

## Влияние нелинейной рефракции и двухфотонного поглощения на процессы оптического ограничения в пленках аморфных халькогенидов

© Р.А. Ганеев, А.И. Ряснянский\*, Т. Усманов

НПО „Академприбор“ Академии наук Узбекистана,  
700143 Ташкент, Узбекистан

\* Самаркандский государственный университет,  
703004 Самарканд, Узбекистан

E-mail: ryan2000@yahoo.com

(Поступила в Редакцию в окончательном виде 20 июня 2002 г.)

Представлены результаты исследования нелинейно-оптических характеристик халькогенидных пленок ( $\text{As}_2\text{S}_3$ ,  $\text{As}_{20}\text{S}_{80}$ ,  $2\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$ ,  $3\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$ ). Измерены нелинейные показатели преломления и коэффициенты двухфотонного поглощения ряда пленок методом Z-сканирования на длинах волн 1064 и 532 нм пикосекундного излучения Nd:YAG-лазера. Проанализирован процесс оптического ограничения, обусловленный керровскими нелинейностями.

Р.А. Ганеев и Т. Усманов благодарят за частичную финансовую поддержку УНТЦ (грант № Uzb-20). А.И. Ряснянский благодарит за поддержку Государственный Комитет по науке и технике Узбекистана (грант № 7/01).

Возможность применения полупроводников для решения различных задач лазерной физики зависит от ряда их нелинейно-оптических характеристик, в частности нелинейного показателя преломления ( $n_2$ ) и коэффициента двухфотонного поглощения ( $\beta$ ). Данное обстоятельство послужило причиной интенсивных исследований нелинейной рефракции и нелинейного поглощения в полупроводниках [1–3]. Особый интерес в последнее время вызывают аморфные халькогенидные структуры. Подобные среды являются многообещающими для использования в системах обработки информации благодаря таким достоинствам, как большие нелинейности, высокая прозрачность в инфракрасном диапазоне и удобная обрабатываемость. К потенциальным областям применения аморфных халькогенидов относят обращение волнового фронта, поляризационную голографию, обработку оптического изображения, оптическое переключение, использование в интегральных оптических приборах и в качестве голографических оптических элементов и т.д. Нелинейные показатели преломления и коэффициенты нелинейного поглощения ряда халькогенидных стекол исследовались в [4]. Халькогенидные стекла обладают различными значениями положения края поглощения (в зависимости от компонентов, содержащихся в этих структурах). Это ведет также и к изменению нелинейных восприимчивостей на соответствующих длинах волн. Так, замена атомов Ge и S на As и Se приводит к росту нелинейного отклика в подобных структурах. В частности, было показано, что увеличение доли атомов Se является эффективным методом увеличения нелинейных восприимчивостей подобных стекол [5]. Данные среды обладают ярко выраженной спектральной зависимостью нелинейно-оптических параметров. Так, если для излучения с длиной волны  $\lambda = 633$  нм нелинейный показатель

преломления  $\gamma$  (выраженный в единицах SI) и коэффициент нелинейного поглощения равны  $7.6 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2 \cdot \text{W}^{-1}$  и  $1.6 \text{ cm} \cdot \text{W}^{-1}$  [6], то для инфракрасной области спектра эти величины составили  $5.7 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2 \cdot \text{W}^{-1}$  и  $2.6 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^2 \cdot \text{W}^{-1}$  соответственно ([7],  $\lambda = 1064$  нм);  $\gamma = 1.7 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2 \cdot \text{W}^{-1}$  ([8],  $\lambda = 1319$  нм).

В последнее время наблюдается повышенный интерес к таким образцам, приготовленным в виде тонких пленок [6]. На характеристики подобных структур влияют как различные условия роста, так и внешние факторы. В частности, влияние облучения на оптические свойства тонких пленок аморфного  $\text{As}_2\text{S}_3$  исследовалось в [9]. Исследование тонких пленок аморфных халькогенидов (в том числе  $\text{As}_2\text{S}_3$ ) показало их перспективность в качестве оптических ограничителей [6].

Эффекты оптического ограничения вызывают интерес в нелинейной оптике и оптоэлектронике вследствие их потенциального использования для защиты глаз и чувствительных детекторов от интенсивного излучения. Механизмы, определяющие оптическое ограничение, имеют различную природу. Обратное насыщенное поглощение, обусловленное большим сечением поглощения с возбужденных уровней, ответственно за оптическое ограничение в коллоидных металлах [10], фуллеренах [11] и фталоцианинах [12]. Интенсивная нелинейная рефракция обуславливает оптическое ограничение в неорганических кластерах [13]. Двухфотонное поглощение отвечает за оптическое ограничение в полупроводниковых структурах [14].

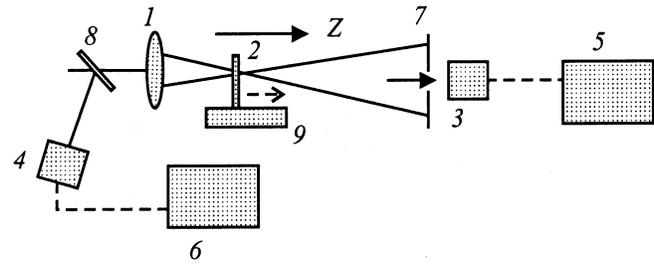
Далее приведены результаты исследования влияния нелинейного преломления и нелинейного поглощения ряда халькогенидных пленок ( $\text{As}_2\text{S}_3$ ,  $\text{As}_{20}\text{S}_{80}$ ,  $2\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$ ,  $3\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$ ) на оптическое ограничение лазерного излучения пикосекундной длительности в

этих структурах. Измерены нелинейные показатели преломления и коэффициенты двухфотонного поглощения ряда пленок. Анализируется процесс оптического ограничения, обусловленного керровскими нелинейностями, в пленках аморфных халькогенидов.

## 1. Схема экспериментов

Исследования нелинейно-оптических характеристик халькогенидных пленок проводились на длинах волн  $\lambda = 1064$  и  $532$  nm с помощью стандартной методики Z-сканирования [14]. Схема экспериментов аналогична описанной в [15]. В экспериментах использовался Nd:YAG-лазер, генерирующий цуг пикосекундных импульсов. Одиночный импульс длительностью 42 ps (по уровню  $1/e$  интенсивности), выделенный из цуга, фокусировался линзой 1 с фокусным расстоянием 25 см (рис. 1). Диаметры перетяжек в фокусе (на уровне  $1/e^2$  интенсивности) были равны соответственно 90 и 75  $\mu\text{m}$  для излучения первой и второй гармоник. Размеры сфокусированного излучения в перетяжке также сравнивались с экспериментально измеренным параметром  $\Delta Z = 1.7z_0$  [14]. Здесь  $\Delta Z$  — расстояние между положениями исследованного образца, при которых наблюдались максимальное и минимальное значения нормализованного пропускания образцов,  $z_0 = kw_0^2/2$  — дифракционная длина лазерного пучка,  $k = 2\pi/\lambda$  — волновое число,  $w_0$  — радиус пучка в точке фокусировки на уровне  $1/e^2$  пространственного распределения интенсивности. В нашем случае  $\Delta Z$  было равно 2 см для излучения с длиной волны  $\lambda = 1064$  nm (см. далее). Соответствующее рассчитанное значение  $w_0$  составило 45  $\mu\text{m}$ . Энергия излучения отдельных лазерных импульсов измерялась калиброванным фотодиодом ФД-24К (4) и регистрировалась цифровым вольтметром В4-17 (5). Для изменения энергии лазерного излучения использовались калиброванные нейтральные фильтры. Халькогенидные пленки 2 перемещались с помощью столика с микроперемещениями 9 вдоль оптической оси Z, проходя через область фокусировки.

На расстоянии 150 см от зоны фокусировки устанавливалась диафрагма диаметром 1 mm (так называемая схема с ограничивающей диафрагмой), пропускавшая  $\sim 3\%$  лазерного излучения. За диафрагмой помещался фотодиод ФД-24К (3), сигнал с которого поступал в цифровой вольтметр В4-17 (6). Для устранения влияния нестабильности выходных энергетических параметров лазеров на результаты измерения излучения, регистрируемое фотодиодом 3, нормировалось на величину излучения, регистрируемого вторым фотодиодом 4. Каждая точка на графиках представляет собой усреднение по пяти измерениям. Схема с ограничивающей диафрагмой позволяла определять как знак, так и величину нелинейного показателя преломления халькогенидных пленок. Для определения величины коэффициента нелинейного поглощения диафрагма 7 убиралась и измерялась зави-



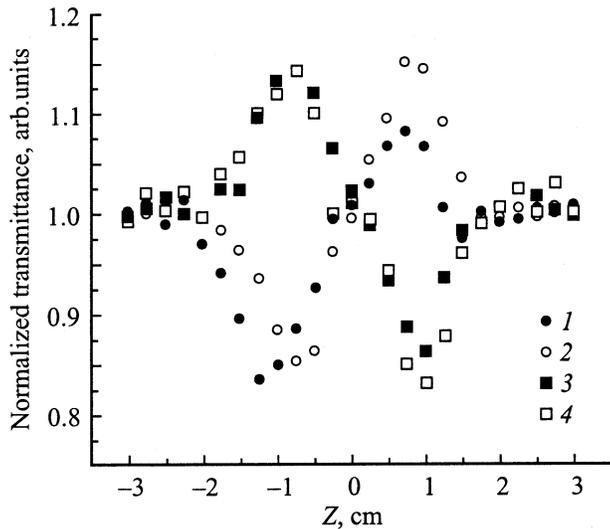
**Рис. 1.** Схема экспериментальной установки для Z-сканирования и изучения оптического ограничения. 1 — фокусирующая линза, 2 — халькогенидные пленки, 3, 4 — фотодиоды ФД-24К, 5, 6 — цифровые вольтметры В4-17, 7 — ограничивающая диафрагма, 8 — отражающая пластина, 9 — столик с микроперемещениями.

симостью пропускания исследуемой пленки от положения кюветы относительно точки фокусировки излучения (так называемая схема с открытой диафрагмой). В экспериментах большое внимание уделялось предотвращению оптического пробоя в среде. Интенсивности оптического пробоя исследованных полупроводниковых пленок на длинах волн первой и второй гармоник составляли соответственно  $8 \cdot 10^9$  и  $2 \cdot 10^9$   $\text{W} \cdot \text{cm}^{-2}$ , максимальные же рабочие интенсивности не превышали соответственно  $10^9$  и  $8 \cdot 10^8$   $\text{W} \cdot \text{cm}^{-2}$ .

В качестве образцов исследовались халькогенидные пленки  $\text{As}_2\text{S}_3$ ,  $\text{As}_{20}\text{S}_{80}$ ,  $2\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$ ,  $3\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$ . Пленки напылялись путем испарения в вакууме размельченных составляющих халькогенидных стекол ( $\text{As}_2\text{S}_3$ ,  $\text{As}_{20}\text{S}_{80}$ ,  $\text{As}_2\text{Se}_3$ ) на поверхность стеклянных пластин БК-7. Скорость испарения составляла 0.5 nm/s. Подобная скорость испарения обеспечивала напыление пленки с параметрами, близкими к первоначальному объемному материалу (что определялось с помощью электронно-микроскопического анализа, показавшего совпадение стехиометрических составов). Аморфные многослойные пленки  $2\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$  и  $3\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$  готовились путем поочередного испарения  $\text{As}_2\text{S}_3$  и  $\text{As}_2\text{Se}_3$ . Отношение толщин монослоев данных пленок составляло соответственно 20:10 nm (для  $2\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$ ) и 30:10 nm (для  $3\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$ ). Толщина всех пленок была равна 10  $\mu\text{m}$ .

## 2. Результаты экспериментов и обсуждение

На рис. 2 приведены зависимости нормализованного пропускания  $T$  от положения халькогенидных пленок в схеме с ограничивающей диафрагмой. В данном случае экспериментальная схема соответствовала исследованию нелинейной рефракции. Здесь большое внимание уделялось проведению измерений в условиях, когда наблюдавшиеся процессы были обусловлены нелиней-



**Рис. 2.** Нормализованное пропускание как функция положения халькогенидных пленок  $\text{As}_{20}\text{S}_{80}$  (1),  $\text{As}_2\text{S}_3$  (2),  $2\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$  (3) и  $3\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$  (4) в схеме с ограничивающей диафрагмой на длинах волн 1064 (1–4) и 532 нм (1).

ностями третьего порядка. Более подробно это будет обсуждаться далее.

Одним из достоинств  $Z$ -сканирования является возможность определения знака  $n_2$  непосредственно из вида зависимости  $T(Z)$ . Наличие минимума перед точкой фокусировки ( $Z = 0$ ) в зависимости  $T(Z)$  и максимума после этой точки характеризует самофокусирующиеся свойства среды. Например, из представленных данных сразу же следует вывод о том, что нелинейный показатель преломления пленок  $2\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$  и  $3\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$  имеет отрицательное значение, вызывающее самодефокусировку в этих средах, в то время как для халькогенидных пленок  $\text{As}_2\text{S}_3$  и  $\text{As}_{20}\text{S}_{80}$  этот параметр имеет положительное значение, т.е. в них протекают процессы самофокусировки. Из приведенных зависимостей легко может быть определен параметр  $\Delta T_{p-v}$  — как разница между нормализованным максимумом и минимумом пропускания в зависимости  $T(Z)$ .

Изменение показателя преломления среды в поле электромагнитной волны (когда принимаются во внимание лишь нелинейно-оптические процессы третьего порядка) определяется соотношением

$$\Delta n = \gamma I_\omega = n_2 \frac{|E_\omega|^2}{2}, \quad (1)$$

где  $I_\omega$  и  $E_\omega$  — соответственно интенсивность и электрическое поле волны с частотой  $\omega$ . Нелинейные показатели преломления ( $n_2$  и  $\gamma$ ), описывающие один и тот же процесс в разных единицах измерения, связаны соотношением  $n_2 [\text{esu}] = (c \times n / 40\pi) \gamma [\text{SI}]$ . Здесь  $c$  — скорость света,  $n$  — линейный показатель преломления среды.

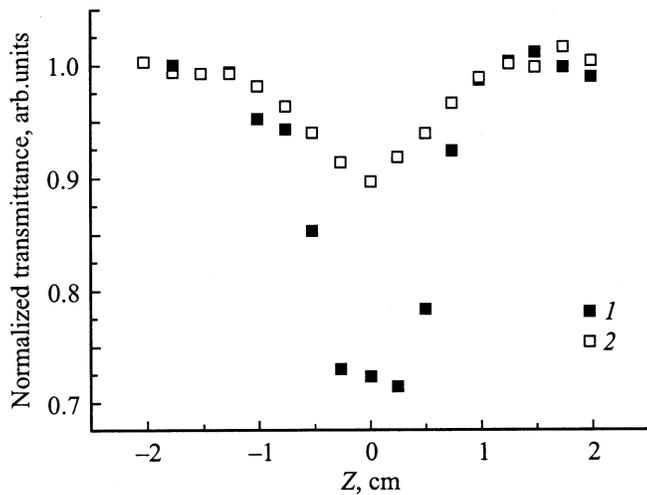
Для определения нелинейно-оптических характеристик пленок использовалось соотношение [14]

$$\Delta T_{p-v} = 0.404(1 - S)^{0.25} \left| \frac{2\pi\gamma I_0 [1 - \exp(-\alpha L)]}{\alpha \lambda} \right|, \quad (2)$$

где  $I_0$  — интенсивность излучения в точке фокусировки,  $S$  — пропускание диафрагмы (доля излучения, попадающая в фотодиод),  $L$  — толщина образца,  $\alpha$  — линейный показатель поглощения пленки.

В наших исследованиях нелинейно-оптических характеристик использовалось излучение пикосекундной длительности с интенсивностью в точке фокусировки ниже критической величины, при которой начинает наблюдаться влияние свободных носителей, образованных в результате двухфотонного поглощения, на линейную рефракцию и поглощение. При малых интенсивностях лазерного излучения нелинейность третьего порядка была обусловлена нелинейной рефракцией, вызываемой связанными электронами [16]. При больших интенсивностях становилось заметным влияние нелинейной рефракции, обусловленной свободными носителями, генерируемыми в процессе двухфотонного поглощения. Так, ранее было показано уменьшение величины  $n_2$  стекол  $\text{As}_2\text{S}_3$  и  $\text{As}_2\text{Se}_3$  в 5 и 9 раз при увеличении интенсивности зондирующего излучения (1064 нм) с  $2 \cdot 10^8 \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$  до единиц  $\text{GW} \cdot \text{cm}^{-2}$  [17]. Авторы выдвинули предположение о влиянии нелинейности пятого порядка, соответствующей отрицательному значению нелинейной добавки к показателю преломления. Поэтому для определения нелинейного коэффициента преломления мы использовали интенсивности лазерного излучения, при которых влияние нелинейного поглощения было незначительным. В частности, для определения  $n_2$  нами использовалась интенсивность  $I_0 = 2 \cdot 10^8 \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ , когда изменение показателя преломления было обусловлено только нелинейностью третьего порядка. Отсутствие влияния свободных носителей заряда на изменение показателя преломления косвенно подтверждалось симметричностью зависимости  $T(Z)$  в схеме с ограничивающей диафрагмой (для всех пленок, за исключением  $\text{As}_{20}\text{S}_{80}$ ; рис. 2). Исследование нелинейностей пленок при малых интенсивностях позволило избежать влияния нелинейностей высшего (в частности, пятого) порядков на результаты  $Z$ -сканирования. Данное влияние позволило ранее в некоторых случаях по-разному интерпретировать полученные данные по измерению некоторых нелинейно-оптических параметров полупроводников. Оно, по-видимому, является причиной различия в сообщавшихся результатах измерений коэффициентов двухфотонного поглощения (в частности, в случае GaAs в 2–5 и более раз, см. [18,19]), а также  $\gamma$ .

Наши измерения показали, что  $n_2$  ряда халькогенидных пленок имеет довольно большие величины. Так, нелинейный показатель преломления пленки  $\text{As}_{20}\text{S}_{80}$  составил  $1.3 \cdot 10^{-8} \text{ esu}$  на длине волны 532 нм. Ошибка измерений в этих экспериментах составила 30%. Наиболь-



**Рис. 3.** Нормализованное пропускание как функция положения полупроводниковой пластины GaAs (1) и халькогенидной пленки  $\text{As}_{20}\text{S}_{80}$  (2) в схеме с открытой диафрагмой на длинах волн 1064 (1) и 532 nm (2).

шее значение  $n_2$  наблюдалось для пленки  $2\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$  ( $-2.6 \cdot 10^{-8}$  esu на длине волны 1064 nm).

Исследования двухфотонного поглощения в полупроводниковых структурах показали его наличие у всех рассматриваемых образцов. На рис. 3 приведены результаты исследования нормализованного пропускания как функции положения пленки  $\text{As}_{20}\text{S}_{80}$  в схеме с открытой диафрагмой. Здесь же для сравнения приведена зависимость  $T(Z)$  для пластины GaAs толщиной 0.4 mm при интенсивности излучения в точке фокусировки  $1.3 \cdot 10^9 \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ . Основной вклад в поглощение в этих экспериментах был обусловлен нелинейным поглощением. Линейное поглощение было незначительным в исследованных халькогенидных пленках. Так, например, для  $\text{As}_2\text{S}_3$  коэффициент линейного поглощения составлял  $0.095 \text{ cm}^{-1}$  на длине волны 1064 nm.

Нормализованное пропускание в случае схемы с открытой диафрагмой определялось выражением [20,21]

$$T(z) = \frac{\ln(1 + q_0)}{q_0}, \quad (3)$$

где

$$q_0 = \beta \frac{I_0 [1 - \exp(-\alpha L)]}{\left(1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2\right) \alpha} \quad (4)$$

Здесь  $z_0 = kr^2/2$ ,  $r$  — радиус пучка в перетяжке. Определяя минимальное нормализованное пропускание в схеме с открытой диафрагмой в точке фокусировки ( $z = 0$ ), из (3) и (4) можно найти коэффициент нелинейного поглощения исследуемой среды. Так, значение  $\beta$  для GaAs составило  $31 \cdot 10^{-9} \text{ cm} \cdot \text{W}^{-1}$ , что находится в хорошем соответствии с измеренными ранее значениями этой величины ( $26 \cdot 10^{-9} \text{ cm} \cdot \text{W}^{-1}$  [18]). Измеренные значения  $\beta$  халькогенидных пленок  $\text{As}_{20}\text{S}_{80}$  ( $\beta = 3 \cdot 10^{-6} \text{ cm} \cdot \text{W}^{-1}$ ,

$\lambda = 532 \text{ nm}$ ,  $I_0 = 4 \cdot 10^8 \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ ) и  $3\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$  ( $\beta = 10^{-7} \text{ cm} \cdot \text{W}^{-1}$ ,  $\lambda = 1064 \text{ nm}$ ,  $I_0 = 3 \cdot 10^8 \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ ) показывают, что тонкие пленки халькогенидов обладают большими коэффициентами нелинейного поглощения.

Оптические свойства аморфных халькогенидов могут варьироваться путем изменения их стехиометрического состава. Подобные пленки могут быть легко получены путем вакуумного напыления. Можно ожидать, что с изменением оптических параметров этих пленок также будут варьироваться и их нелинейно-оптические характеристики. Однако до сих пор сообщалось лишь об экспериментах с исследованием оптических свойств многослойных халькогенидных пленок [22–24]. В [22] исследовались размерные эффекты в аморфных многослойных пленках  $\text{As}_{40}\text{Se}_{60}/\text{Ge}_{25}\text{Se}_{75}$  методами оптического поглощения. Аналогичные исследования были проведены для многослойных структур  $\text{Se}_{0.85}\text{Te}_{0.15}/\text{CdSe}$  и  $\text{Se}/\text{CdSe}$  [23], а также халькогенидных пленок  $\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{S}_8$  [24]. Однако вопрос вариации нелинейно-оптических свойств многослойных пленок (по сравнению с нелинейно-оптическими параметрами компонентов этих пленок) ранее не исследовался.

Нелинейности сложных халькогенидных пленок могут быть оценены из значений нелинейных гиперполяризуемостей отдельных компонентов [25]. Анализ результатов исследования нелинейного показателя преломления пленки  $\text{As}_2\text{S}_3$  показывает, что при исследованных интенсивностях он имеет (как и следовало ожидать) тот же знак, что и  $n_2$  объемной структуры. Данное совпадение соответствует также анализу соотношений Крамерса–Кронига, показывающему, что положительный знак нелинейного показателя преломления должен наблюдаться у полупроводников, для которых выполняется соотношение  $\hbar\omega/E_g < 0.69$  [19]. Здесь  $\omega$  — круговая частота лазерного излучения,  $E_g$  — ширина запрещенной зоны. Значение  $E_g$  для  $\text{As}_2\text{S}_3$  составляет 2.37 eV [26], соответствующее значение  $\hbar\omega/E_g$  в этой среде на исследуемой нами длине волны ( $\lambda = 1064 \text{ nm}$ ) равно 0.49.

Иная ситуация наблюдалась в случае пленки  $\text{As}_{20}\text{Se}_{80}$ . Значение  $E_g$  этой пленки равно 2.5 eV [24]. Параметр  $\hbar\omega/E_g$  в этом случае для использовавшейся нами длины волны излучения ( $\lambda = 532 \text{ nm}$ ) равен 0.93; соответственно среда должна обладать самодефокусирующими свойствами. Наши же результаты показывают, что  $n_2$  этой пленки имеет положительный знак.

Аналогичная ситуация наблюдалась и в случае многослойных пленок  $2\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$  и  $3\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$ . Проведенные ранее сравнительные исследования оптических спектров отдельных компонентов, близких к подобным халькогенидным структурам, вблизи их краев поглощения показали, что ширины запрещенных зон однокомпонентных пленок сульфида мышьяка и селенида мышьяка составляют 2.5 eV ( $\text{As}_2\text{S}_3$ ) и 1.78 eV ( $\text{As}_2\text{Se}_3$ ). В то же время края оптического поглощения и соответственно ширины запрещенных зон многослойных структур типа  $2\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$  и  $8\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$  сдвигаются в сторону

больших энергий относительно оптического края поглощения  $\text{As}_2\text{Se}_3$  на 0.19 и 0.25 eV [24]. Таким образом, ширины запрещенных переходов данных многослойных сложных пленок лежат в диапазоне между значениями  $E_g$  составляющих их халькогенидных стекол, причем даже значительное превышение доли  $\text{As}_2\text{S}_3$  (по сравнению в  $\text{As}_2\text{Se}_3$ ) в многокомпонентной пленке приводит лишь к незначительному сдвигу  $E_g$  в сторону больших значений. Рассчитанные нами ширины запрещенных зон многокомпонентных пленок  $2\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$  и  $3\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$  (с учетом экстраполяции данных работы [24]) составили 1.97 и 1.99 eV. При этих значениях  $E_g$  и соответствующих значениях параметра  $\hbar\omega/E_g$ , равных 0.59 ( $2\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$ ) и 0.59 ( $3\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$ ), данные пленки должны еще обладать самофокусирующими свойствами ( $n_2 > 0$ ) на длине волны  $\lambda = 1064$  nm. Однако наши результаты показывают, что пленки  $2\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$  и  $3\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$  проявляют свойства самодефокусировки (рис. 2).

Причина подобного поведения не совсем ясна. Можно высказать лишь предположение о влиянии свободных носителей (в результате двухфотонного поглощения, которое хоть и в незначительной степени, но имело место при использовавшихся интенсивностях) на общую картину фазовых соотношений проходящего через пленку излучения. Как известно, изменение показателя преломления определяется в общем случае соотношением [18]

$$\Delta n = \gamma I + \sigma_r N. \quad (5)$$

Здесь второй член суммы описывает дополнительное изменение показателя преломления, обусловленное влиянием свободных носителей заряда. Параметр  $\sigma_r$  характеризует изменение показателя преломления, вызываемое единичным свободным носителем заряда, образованным при различных процессах фотовозбуждения и ионизации, ведущих к появлению облака носителей заряда с плотностью  $N$ . Отметим, что  $\sigma_r$  в большинстве полупроводников принимает отрицательное значение, которое может компенсировать и даже превосходить положительную добавку к показателю преломления, обусловленную влиянием связанных электронов [18]. Последнее может вести к изменению поведения лазерного излучения при прохождении через подобную среду (с самофокусировки на самодефокусировку). Другой возможной причиной наблюдавшейся нами картины может быть интерференция в тонких пленках, приводящая к усилению фактора локального поля, росту двухфотонного поглощения и влиянию образовавшихся свободных носителей заряда на показатель преломления среды. Наблюдавшиеся нами процессы самодефокусировки в многослойных пленках и самофокусировки излучения с  $\lambda = 532$  nm в  $\text{As}_{20}\text{S}_{80}$  требуют дополнительных исследований.

Остановимся подробнее на пленках халькогенидов  $\text{As}_2\text{S}_3$ ,  $\text{As}_{20}\text{S}_{80}$ ,  $2\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$ ,  $3\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$  как малоисследованных объектах с точки зрения их использова-

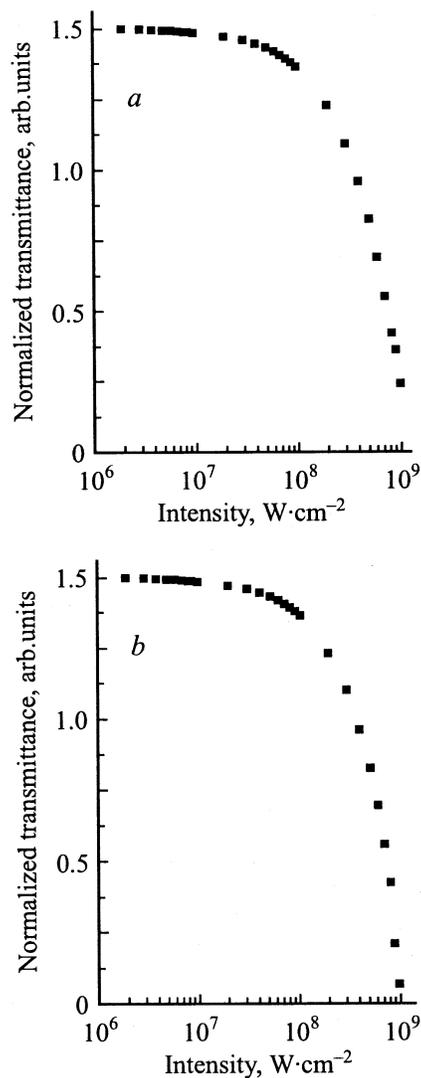
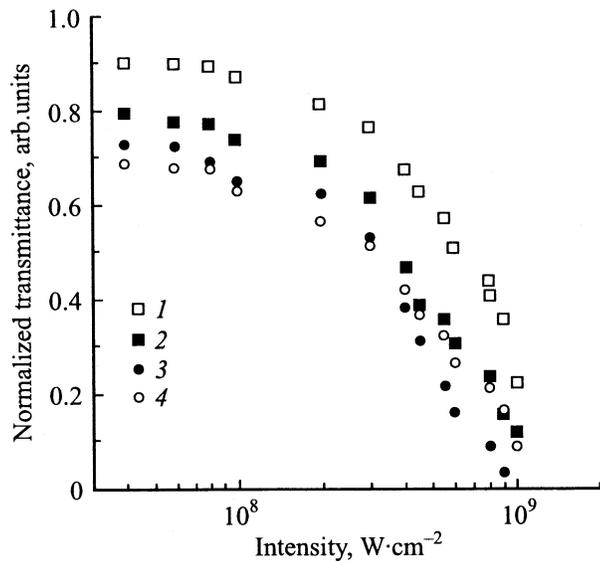


Рис. 4. Расчет нормализованного пропускания как функции интенсивности лазерного излучения для халькогенидных пленок  $3\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$  (a) и  $2\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$  (b).

ния в качестве оптических ограничителей. Исследования ограничивающих характеристик халькогенидов данной серии были сконцентрированы ранее на  $\text{As}_2\text{S}_3$ -стеклах [6]. Далее приводятся результаты теоретического анализа процесса оптического ограничения, обусловленного керровскими нелинейностями, для четырех вышеперечисленных пленок.

Мы использовали стандартную схему расчета Z-сканирования с ограничивающей диафрагмой [14] для оценки оптического ограничения халькогенидных пленок, обусловленного керровскими нелинейностями. Положение пленок фиксировалось в области, соответствующей минимуму пропускания (до фокуса в случае самофокусировки и после фокуса в случае самодефокусировки; рис. 2), когда влияние процессов двухфотонного поглощения было незначительным. В данном случае величина минимального пропускания  $T_v$  пропорциональ-



**Рис. 5.** Нормализованное пропускание как функция интенсивности падающего излучения для халькогенидных пленок  $\text{As}_{20}\text{S}_{20}$  (1),  $2\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$  (2),  $\text{As}_2\text{S}_3$  (3) и  $3\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$  (4) в схеме с открытой диафрагмой на длинах волн 1064 (2–4) и 532 nm (1).

на интенсивности лазерного излучения и нелинейному показателю преломления

$$T_v = BI_0\gamma, \quad (6)$$

где  $B$  — параметр, не зависящий от интенсивности лазерного излучения. Область анализируемых интенсивностей подбиралась таким образом, чтобы нижней границе соответствовала интенсивность, при которой еще наблюдалась характерная зависимость  $T(z)$  в схеме с ограничивающей диафрагмой, а верхней границе отвечала интенсивность, при которой еще не происходило оптического пробоя полупроводника.

На рис. 4 показаны расчетные зависимости нормализованного пропускания для пленок  $3\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$  (а) и  $2\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$  (б). Наибольшее ограничение наблюдается в случае  $2\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$  (в 12.5 раз); для остальных пленок отметим пятикратное ослабление для  $\text{As}_2\text{S}_3$ ,  $\text{As}_{20}\text{S}_{80}$  и трехкратное ослабление для  $3\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$ . Для всех пленок процесс ограничения наблюдается в диапазоне интенсивностей  $10^7$ – $10^9 \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ .

Экспериментальное исследование оптического ограничения в полупроводниках проводилось, как и в случае исследования нелинейного поглощения с использованием схемы с открытой диафрагмой. На рис. 5 представлены зависимости пропускания ряда пленок от интенсивности лазерного излучения. Положение образца соответствовало минимуму пропускания, т.е. он располагался в точке фокусировки. Оптическое ограничение в данном случае было обусловлено влиянием двухфотонного поглощения. Наибольшее ограничение наблюдалось для  $\text{As}_2\text{S}_3$  (в 25 раз).

Как отмечалось выше, процесс двухфотонного поглощения в полупроводниках сопровождается появлением свободных носителей заряда, также вносящих вклад в нелинейный характер распространения излучения в этих средах. Данный эффект нашел применение при использовании полупроводников ( $\text{GaAs}$ ,  $\text{GaP}$ ,  $\text{CdSe}$ ) в качестве пассивных элементов в генераторах протяженных цугов импульсов с пассивной отрицательной обратной связью [27,28]. Последние (при их предельной простоте реализации) позволяют генерировать компрессируемые пикосекундные импульсы со стабильными энергетическими и временными характеристиками, что в свою очередь является важным и необходимым условием проведения нелинейно-оптических исследований. Наши исследования показали, что ряд халькогенидных пленок перспективен для использования в качестве подобных внутрирезонаторных элементов для компрессируемых пикосекундных импульсов ( $2\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$ ,  $3\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$ ).

Отметим, что до сих пор не проведено сравнительного анализа нелинейно-оптических характеристик пленок и объемных образцов аморфных халькогенидов, а также их ограничивающих характеристик для различных диапазонов интенсивностей лазерного излучения, когда существенным становится вклад нелинейностей высшего порядка (в частности, пятого). Возможность появления островковых структур по мере эпитаксиального роста пленок может привести к образованию двумерных кластеров, что в свою очередь может вести к росту оптических нелинейностей, обусловленному эффектом локального поля [29]. Появление так называемых „горячих зон“, где амплитуда поля превышает среднее ее значение на несколько порядков, приводит к значительному увеличению нелинейностей [30]. Последнее может быть представлено в качестве возможного объяснения довольно значительного нелинейного отклика, наблюдавшегося в наших экспериментах с тонкими халькогенидными пленками.

Таким образом, в настоящей работе приведены результаты исследования нелинейно-оптических характеристик халькогенидных пленок ( $\text{As}_2\text{S}_3$ ,  $\text{As}_{20}\text{S}_{80}$ ,  $2\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$ ,  $3\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$ ) и процессов оптического ограничения в этих пленках. Измерены нелинейные показатели преломления и коэффициенты двухфотонного поглощения ряда пленок методом Z-сканирования на длинах волн 1064 и 532 nm пикосекундного излучения Nd:YAG-лазера. Проанализирован процесс оптического ограничения, обусловленного керровскими нелинейностями, в пленках аморфных халькогенидов и показана возможность 12.5-кратного ограничения в случае пленок  $2\text{As}_2\text{S}_3/\text{As}_2\text{Se}_3$ . Приводятся результаты экспериментальных исследований процесса оптического ограничения, обусловленного двухфотонным поглощением. Получено 25-кратное оптическое ограничение в случае пленки  $\text{As}_2\text{S}_3$ .

## Список литературы

- [1] M. Dabbicco, I.M. Catalano. *Opt. Commun.* **178**, 117 (2000).
- [2] K.Y. Tseng, K.S. Wong, G.K.L. Wong. *Opt. Lett.* **21**, 180 (1996).
- [3] K.S. Bindra, R. Chari, V. Shukla, A. Singh, S. Ida, S.M. Oak. *J. Opt. A: Pure. Appl. Opt.* **1**, 73 (1999).
- [4] F. Smektala, C. Quemard, L. Leneindre, J. Lucas, A. Barthelemy, C. De Angelis. *J. Non-Cryst. Sol.* **239**, 139 (1998).
- [5] H. Kanbara, S. Fujiwara, K. Tanaka, H. Nasu, K. Hirao. *Appl. Phys. Lett.* **79**, 925 (1997).
- [6] C.H. Kwak, Y.L. Lee, S.G. Kim. *J. Opt. Soc. Am.* **16**, 600 (1999).
- [7] R. Range-Rojo, T. Kasa, R. Hajto, P.J.S. Ewen, A.E. Owen, A.K. Kar, B.S. Wherrett. *Opt. Commun.* **109**, 145 (1994).
- [8] M. Asobe, K. Suzuki, T. Kanamori, K. Kubodera. *Appl. Phys. Lett.* **60**, 1153 (1992).
- [9] A.L. Dawar, P.K. Shishodia, G. Chauhan, J.C. Joshi, C. Jagadish, P.C. Mathur. *Appl. Opt.* **29**, 1971 (1999).
- [10] R.A. Ganeev, A.I. Ryasnyansky, S.R. Kamalov, M.K. Kodirov, T. Usmanov. *J. Phys. D: Appl. Phys.* **34**, 1602 (2001).
- [11] R.A. Ganeev, A.I. Ryasnyansky, M.K. Kodirov, T. Usmanov. *Opt. Commun.* **185**, 473 (2000).
- [12] L.W. Tutt, A.Kost. *Nature (London)* **356**, 224 (1992).
- [13] Z.R. Chen, H.W. Hou, X.Q. Xin, K.B. Yu, S. Shi. *J. Phys. Chem.* **99**, 8717 (1995).
- [14] M. Sheik-Bahae, A.A. Said, T. Wei, D.J. Hagan, E.W. Van Stryland. *IEEE J. Quant. Electron.* **26**, 760 (1990).
- [15] Р.А. Ганеев, А.И. Ряснянский, Ш.Р. Камалов, М.К. Кодиров, Т. Усманов. *Опт. и спектр.* **90**, 651 (2001).
- [16] M. Sheik-Bahae, D.J. Hagan, E.W. Van Stryland. *Phys. Rev. Lett.* **65**, 96 (1990).
- [17] F. Smektala, C. Quemard, V. Couderc, A. Barthelemy, J. Non-Cryst. Sol. **274**, 232 (2000).
- [18] A.A. Said, M. Sheik-Bahae, D.J. Hagan, T.H. Wei, J. Wang, J. Yong, E.W. Van Stryland. *J. Opt. Soc. Am. B* **9**, 405 (1992).
- [19] M. Sheik-Bahae, D.C. Hutchings, D.J. Hagan, E.W. Van Stryland. *IEEE J. Quant. Electron.* **27**, 1296 (1991).
- [20] J.P. Rakovich, M.V. Artemyev, A.G. Rolo, M.I. Vasilevskiy, M.J.M. Gomes. *Phys. Stat. Sol. (b)* **224**, 319 (2001).
- [21] P.B. Capple, J. Staromlynska, J.A. Hermann, T.J. Mckay. *J. Nonlin. Opt. Phys. Matter.* **6**, 251 (1997).
- [22] T. Ogino, Y. Mizushima. *Jpn. J. Appl. Phys.* **22**, 1647 (1983).
- [23] R. Ionov, D. Nesheva, D. Arsova. *J. Non-Cryst. Sol.* **137–138**, 1151 (1991).
- [24] H. Hamanaka, S. Konagai, K. Murayama, M. Yamagushi, K. Morogaki. *J. Non-Cryst. Sol.* **198–200**, 808 (1996).
- [25] R. Adair, L.L. Chase, S.A. Payne. *Phys. Rev. B* **39**, 3337 (1989).
- [26] J.B. Ramirez-Malo, E. Marquez, C. Corrales, P. Villares, R. Jimenez-Garay. *Mat. Sci. Eng. B* **25**, 53 (1994).
- [27] A. Agnessi, A. Del Corno, P. Di Trapani, M. Fogliani, G.P. Reali, J.-C. Diels, C.-Y. Yen, X.M. Zhao, V. Kubecek. *IEEE J. Quant. Electron.* **28**, 7120 (1992).
- [28] R.A. Ganeev, T. Usmanov. *Jpn. J. Appl. Phys.* **39**, 5111 (2000).
- [29] V.M. Shalaev, E.Y. Polyakov, V.A. Markel. *Phys. Rev. B* **53**, 2437 (1996).
- [30] A.E. Neeves, M.N. Birnboim. *J. Opt. Soc. Am.* **6**, 787 (1989).