

Двухфотонное поглощение в стеклах на основе сульфида мышьяка

Д.С.Чунаев, Г.Е.Снопатин, В.Г.Плотниченко, А.Я.Карасик

Измерен коэффициент двухфотонного поглощения света на длине волны 1047 нм в халькогенидном стекле состава $As_{35}S_{65}$. При помощи непрерывного пробного излучения наблюдалось наведенное двухфотонным возбуждением линейное поглощение в стекле. Время жизни наведенного поглощения составило ~ 2 мс.

Ключевые слова: двухфотонное поглощение, халькогенидное стекло.

1. Введение

Нелинейно-оптические явления в кристаллах и стеклах, в частности двухфотонное поглощение [1], продолжают вызывать интерес исследователей. Значительные усилия направлены на изучение нелинейно-оптических свойств стекол, содержащих халькогены (S, Se, Te). Халькогенидные стекла имеют окна прозрачности в области длин волн 0.7–20 мкм (в зависимости от состава стекла) и являются наиболее подходящим материалом для создания устройств нелинейной оптики, работающих в среднем ИК диапазоне [2]. Прогресс в технологии создания полупроводниковых халькогенидных кристаллов и стекол с малыми оптическими потерями привел к разработке высококачественных оптических световодов для работы в ближнем и среднем ИК диапазонах спектра [3,4]. В волоконной оптике наиболее часто используются халькогенидные стекла систем As–S, As–Se, As–S–Se, As–Se–Te и Ge–As–Se–Te.

Большая нелинейность третьего порядка выделяет халькогенидные стекла среди стекол других классов. Нелинейные коэффициенты преломления и поглощения, а также коэффициент усиления комбинационного рассеяния света халькогенидных стекол в ближнем ИК диапазоне на 2–3 порядка превышают соответствующие коэффициенты кварцевого стекла [2].

В литературе имеются данные по исследованию ВКР, измерению керровского показателя преломления в халькогенидных стеклах вблизи края полосы фундаментального поглощения (см. обзор [2] и ссылки в нем). В то же время нелинейный процесс двухфотонного поглощения (ДФП), приводящий к серьезной трансформации и ограничению мощности лазерного излучения, изучен, на наш взгляд, недостаточно. В частности, отсутствуют данные

по измерению коэффициентов двухфотонного поглощения на различных длинах волн.

В настоящей работе приведены результаты измерения коэффициента двухфотонного поглощения β в стекле состава $As_{35}S_{65}$. Коэффициент ДФП в стеклах системы As–S измерялся в работах [5–10]. В наших работах [11, 12] предложен экспресс-метод исследования и анализа динамики межзонного ДФП в кристаллах при их возбуждении цугом пикосекундных лазерных импульсов с плавно изменяющейся интенсивностью. В качестве источника возбуждающего излучения использовался лазер на кристалле Nd:YLF с пассивной синхронизацией мод и модуляцией добротности с длиной волны излучения $\lambda = 1047$ нм.

2. Измерение коэффициента двухфотонного поглощения

На рис.1 приведен спектр пропускания одного из образцов стекла $As_{35}S_{65}$ в диапазоне длин волн 500–1200 нм. Коротковолновая граница диапазона прозрачности стекла находится вблизи длины волны $\lambda_g \approx 580$ нм. Коэффициент ДФП мы измеряли на длине волны $\lambda = 1047$ нм, полагая, что необходимое условие для межзонного двухфотонного поглощения ($2h\nu > E_g$) при этом выполняется.

При двухфотонном поглощении изменение интенсивности света I вдоль оси распространения z определяется уравнением

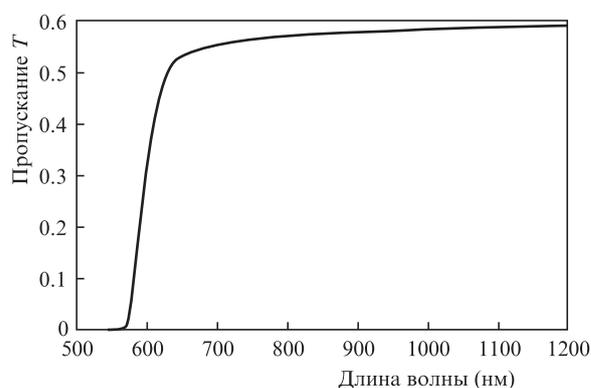


Рис.1. Спектр пропускания стекла $As_{35}S_{65}$, измеренный с помощью спектрометра Cary 5000.

Д.С.Чунаев, А.Я.Карасик. Институт общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38; e-mail: chunaev@lst.gpi.ru, karasik@lst.gpi.ru

Г.Е.Снопатин. Институт химии высококичистых веществ им. Г.Г.Десятых РАН, Россия, 603950 Н.Новгород, ул. Тропинина, 49

В.Г.Плотниченко. Научный центр волоконной оптики РАН, Россия, 119333 Москва, ул. Вавилова, 38; e-mail: victor@fo.gpi.fo.ru

Поступила в редакцию 21 июня 2016 г., после доработки – 24 августа 2016 г.

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha I - \beta I^2, \tag{1}$$

где α – коэффициент линейного поглощения; β – коэффициент ДФП (см. [10]). Решение этого уравнения дается формулой

$$I(z) = \frac{I_0 \exp(-\alpha z)}{1 + (\beta/\alpha) I_0 [1 - \exp(-\alpha z)]}, \tag{2}$$

где I_0 – интенсивность света при $z = 0$. Тогда ослабление света, прошедшего через среду длиной L , определяется выражением

$$\frac{I_0}{I} = e^{\alpha L} + \beta \frac{e^{\alpha L} - 1}{\alpha} I_0. \tag{3}$$

При двухфотонном поглощении величина ослабления света линейно увеличивается с ростом входной интенсивности I_0 . График этой зависимости представляет собой прямую линию с наклоном $b = \alpha^{-1} \beta (e^{\alpha L} - 1)$. Измеряя этот наклон, определяем коэффициент β .

Для получения зависимости ослабления I_0/I от интенсивности падающего излучения I_0 использовались импульсы пикосекундного лазера на кристалле Nd:YLiF₄ с пассивной синхронизацией мод и модуляцией добротности [11, 12]. Лазер на длине волны $\lambda = 1047$ нм генерировал цуги (длительностью ~ 100 нс) пикосекундных импульсов с плавно изменяющейся амплитудой (рис.2). Длительность лазерных импульсов τ по полувысоте составляла 25 пс. Излучение фокусировалось в образец стекла с помощью линзы с фокусным расстоянием $f = 40$ см. Распределение мощности пучка лазерного излучения было близко к гауссову, измеренный радиус пятна в фокусе линзы $w_0 = 77$ мкм (по уровню I_{\max}/e). Длина перетяжки гауссова пучка [12] $l_G = 4\pi w_0^2/\lambda = 7.0$ см. Поскольку длина исследуемого образца стекла As₃₅S₆₅ ($L = 1.0$ см) во много раз меньше длины перетяжки, поперечное сечение лазерного пучка по длине среды можно считать неизменным.

Осциллограммы излучения на входе и на выходе образца стекла записывались в одной лазерной вспышке в

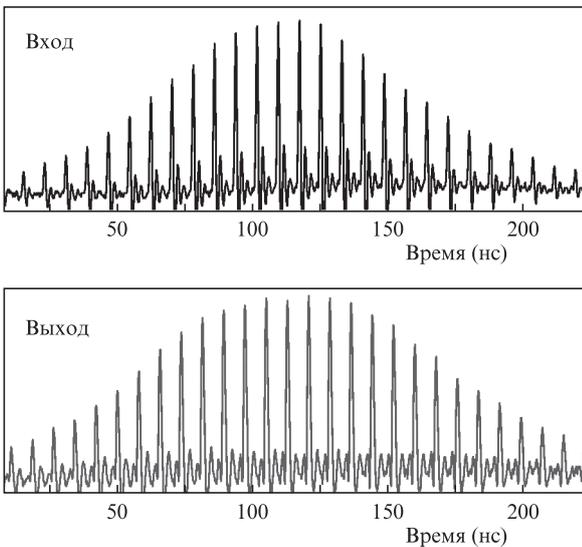


Рис.2. Осциллограммы цугов импульсов лазерного возбуждения с $\lambda = 1047$ нм на входе (I_0) и выходе (I) образца стекла As₃₅S₆₅ длиной $L = 1.0$ см.

реальном времени (см. рис.2). Амплитуды импульсов в цуге регистрировались с помощью лавинных Ge-фотодиодов ЛФД-2 и цифрового осциллографа Tektronix DPO-4104 с полосой усиления 1 ГГц. Фотодиоды калибровались по энергии излучения, падающего на образец и прошедшего через него, так что для каждого пикосекундного импульса были известны энергии на входе и выходе образца – E_{in} и E_{out} соответственно. Энергия излучения измерялась пирозлектрическим джоульметром Molektron J3-05. На осциллограмме отчетливо видна нелинейность поглощения: ослабление более интенсивных импульсов больше, чем малоинтенсивных (рис.3).

В случае импульсного излучения выражение (3) преобразуется в формулу для ослабления импульса по энергии [13, 14]. Для импульса с гауссовым временным профилем ослабление в зависимости от энергии на входе в образец определяется формулой

$$\frac{E_{in}}{E_{out}} \approx \frac{e^{\alpha L}}{T_{in} T_{out}} + \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{2}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\ln 2} \frac{\beta}{S_{eff} \tau} \frac{1}{T_{out}} \frac{e^{\alpha L} - 1}{\alpha} E_{in}, \tag{4}$$

где T_{in} и T_{out} – коэффициенты пропускания границы сред воздух–стекло на входе и выходе образца; $S_{eff} = 2\pi w_0^2$ – эффективная площадь сечения пучка.

Коэффициенты пропускания T_{in} и T_{out} вычисляются по формуле Френеля: $T_{in} = T_{out} = 4n/(n + 1)^2$, где n – показатель преломления стекла. Большой показатель преломления стекла ($n \approx 2.4$ [15]) обуславливает высокое значение френелевского отражения; $T_{in} = T_{out} = 83\%$, и линейное пропускание образцов $T_{lin} = T_{in} T_{out} = 69\%$.

На рис.4 приведена измеренная зависимость ослабления энергии излучения, прошедшего через образец длиной $L = 1$ см, от энергии падающих импульсов. Поскольку лазер излучает цуг пикосекундных импульсов с плавно изменяющейся интенсивностью, эта зависимость измеряется в одной лазерной вспышке. Два набора отсчетов соответствуют возрастанию и уменьшению интенсивности в цуге импульсов. При увеличении энергии E_{in} ослабление излучения выражено сильнее вследствие роста двухфотонного поглощения. Наклон этой зависимости в наших экспериментах $b \approx 0.09 - 0.11$ мкДж⁻¹.

Расчетная формула для коэффициента двухфотонного поглощения

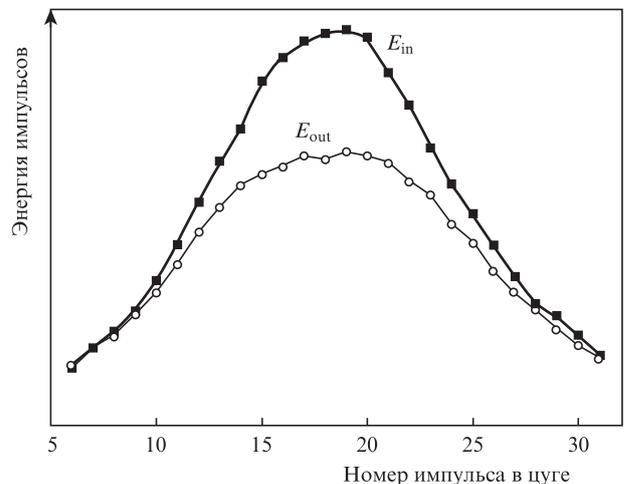


Рис.3. Трансформация формы цугов лазерных импульсов в результате нелинейного двухфотонного поглощения.

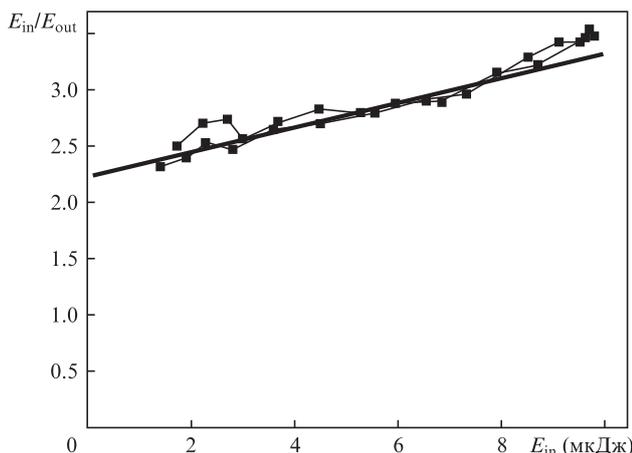


Рис.4. Зависимость ослабления энергии проходящего через образец излучения от энергии падающих импульсов.

$$\beta = \sqrt{2} \frac{\sqrt{\pi}}{2} \frac{\tau}{\sqrt{\ln 2}} S_{\text{eff}} \frac{\alpha}{e^{\alpha L} - 1} T_{\text{out}} b \quad (5)$$

дает $\beta = 0.83 - 1.0$ см/ГВт. Импульсу возбуждающего излучения длительностью $\tau = 25$ пс с энергией $E_{\text{in}} = 10$ мкДж соответствует пиковая мощность $P = E/\tau = 0.4$ МВт, и плотность мощности в центре фокального пятна $I_{\text{max}} = P/\pi w_0^2 = 2.2$ ГВт/см². При такой интенсивности нелинейная добавка βI к коэффициенту линейного поглощения $\alpha = 0.40$ см⁻¹ составляет примерно 1.8 см⁻¹.

3. Кинетика генерации и релаксации электронных возбуждений при двухфотонном межзонном поглощении в стекле As₃₅S₆₅

Двухфотонное поглощение оптического излучения в твердых телах приводит к возбуждению электронных состояний в зоне проводимости. В работах [11, 12, 16, 17] экспериментально показано, что в процессе заселения состояний зоны проводимости при двухфотонном возбуждении среды мощными импульсами лазерного излучения возникает наведенное поглощение из возбужденных состояний. В этих работах предложена методика изучения кинетики роста и последующей релаксации наведенного поглощения при помощи непрерывного пробного излучения. Для измерения кинетики релаксации оптических возбуждений в стекле As₃₅S₆₅ мы также применили данную методику, используя непрерывное пробное излучение.

С этой целью наряду с пикосекундным интенсивным излучением с помощью светоделительной пластинки в образец стекла длиной 2 см вводилось коллинеарное пробное непрерывное излучение He-Ne-лазера с $\lambda = 632.8$ нм. Прошедшее через образец стекла пробное излучение направлялось в ФЭУ-76 и затем анализировалось осциллографом. Временное разрешение схемы регистрации (~12 нс) в этом случае определялось характеристикой ФЭУ.

На рис.5 показана кинетика наведенного поглощения, измеренная при комнатной температуре на $\lambda = 632.8$ нм при пикосекундном лазерном возбуждении ($\lambda = 1047$ нм) в образце стекла As₃₅S₆₅. На графике наблюдается стадия роста поглощения продолжительностью около 150 нс и

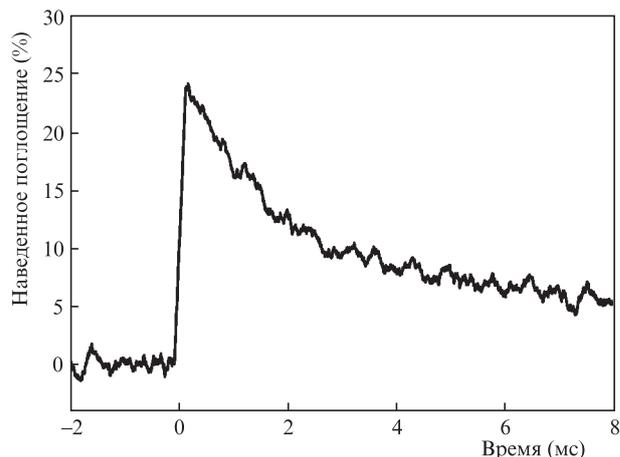


Рис.5. Кинетика роста и релаксации наведенного поглощения в образце стекла As₃₅S₆₅ длиной $L = 2$ мм, измеренная при комнатной температуре на $\lambda = 632.8$ нм при пикосекундном лазерном возбуждении с длиной волны 1047 нм.

следующая за ней стадия релаксации наведенного поглощения. Длительность фронта нарастания наведенного поглощения (~150 нс) определяется длительностью цуга возбуждающих импульсов. Кинетика релаксации наведенного поглощения близка по форме к моноэкспоненциальной зависимости с постоянной времени около 2 мс.

Пропускание образца стекла длиной 2 мм уменьшает примерно на 20% при возбуждении наведенного поглощения. В этом случае коэффициент наведенного линейного поглощения $\alpha_{\text{ind}} \approx 1.1$ см⁻¹. Зная коэффициент нелинейного поглощения $\beta = 0.83$ см/ГВт, можно оценить энергию, поглощаемую единицей объема среды в одиночном пикосекундном импульсе мощного возбуждающего излучения:

$$W = \beta I^2 \tau. \quad (6)$$

В наших экспериментах максимальная энергия возбуждающего импульса составляла 10 мкДж, что соответствует пиковой плотности мощности 2.2 ГВт/см². Тогда поглощенная энергия в единице объема $W \approx 0.1$ Дж/см³. Число возбуждений в единице объема среды определим из соотношения

$$N = \frac{1}{2} \frac{W}{h\nu}, \quad (7)$$

где $h\nu = 2 \times 10^{-19}$ Дж – энергия кванта на длине волны возбуждающего излучения. Для полученного в настоящей работе значения W число возбуждений в единице объема $N \approx 0.25 \times 10^{18}$ см⁻³. В этом случае можно оценить сечение перехода на длине волны пробного непрерывного излучения: $\sigma = \alpha_{\text{ind}}/N = 0.44 \times 10^{-17}$ см² (в работе [16] при возбуждении ДФП в стекле As₂S₃ на $\lambda = 610$ нм получено $\sigma = 10^{-16}$ см²).

Итак, измерены параметры двухфотонного поглощения в халькогенидном стекле As₃₅S₆₅: коэффициент ДФП и время релаксации наведенного поглощения при пикосекундном возбуждении электронных уровней в зоне проводимости стекла.

Работа поддержана РФФИ (грант №16-02-00338) и РНФ (гранты №14-22-00248 и 15-12-20040).

1. Бредихин В.И., Галанин М.Д., Генкин В.И. *УФН*, **110** (1), 3 (1973).
2. Zakery A., Elliot S.R. *Optical Nonlinearities in Chalcogenide Glasses and their Applications* (Berlin – Heidelberg, New York: Springer-Verlag, 2007).
3. Snopatin G.E., Shiryaev V.S., Plotnichenko V.G., Dianov E.M., Churbanov M.F. *Inorganic materials*, **45** (13), 1439 (2009).
4. Devyatych G.G., Churbanov M.F., Scripachev I.V., Snopatin G.E., Dianov E.M., Plotnichenko V.G. *J. Non-Cryst. Solids*, **256**, 318 (1999).
5. Kobayashi H., Kanbara H., Koga M., Kubodera K. *J. Appl. Phys.*, **74**, 3683 (1993).
6. Rangel-Rojo R., Kosa T., Hajto E., Ewen P.J.S., Owen A.E., Kar A.K., Wherrett B.S. *Opt. Commun.*, **109**, 145 (1994).
7. Kwak Ch.H., Lee Y.L., Kim S.G. *J. Opt. Soc. Am. B*, **16**, 600 (1999).
8. Quemard C., Smektala F., Couderc V., Barthelemy A., Lucas J. *J. Phys. Chem. Solids*, **62**, 1435 (2001).
9. Ganeev R.A., Ryasnyansky A.I., Kodirov M.K., Usmanov T. *J. Opt. A*, **4**, 446 (2002).
10. Tanaka K. *Appl. Phys. Lett.*, **80** (2), 177 (2002).
11. Луканин В.И., Чунаев Д.С., Карасик А.Я. *Письма в ЖЭТФ*, **91** (11), 615 (2010).
12. Луканин В.И., Чунаев Д.С., Карасик А.Я. *ЖЭТФ*, **140** (9), 472 (2011).
13. Dragomir A., McInerney J. G., Nikogosyan D. *Appl. Opt.*, **41** (21), 4365 (2002).
14. Peide Zhao, Zhidong Zhang, Wenxia Bao, Qing Yu, Yong Zhang, Zhongya Zhang, Dayun Wang, Ming Liu. *Opt. Commun.*, **283**, 1924 (2010).
15. Rodney W., Malitson I., King Th. *J. Opt. Soc. Am.*, **48** (9), 633 (1958).
16. Fork R.L., Shank C.V., Glass A.M., Migus A., Bosh M.A., Shah I. *Phys. Rev. Lett.*, **43**, 394 (1979).
17. Луканин В.И., Карасик А.Я. *ЖЭТФ*, **144**, 235 (2013).