

Нелинейный оптический отклик наночастиц серебра и меди в ближнем ультрафиолетовом спектральном диапазоне

© Р.А. Ганеев, А.И. Ряснянский*, А.Л. Степанов**,***, Т. Усманов

НПО „Академприбор“, Академия наук Узбекистана,
700125 Ташкент, Узбекистан

* Самаркандский государственный университет им. А. Навои,
703004 Самарканд, Узбекистан

** Институт физики 1А, Технический университет Аахена,
52056 Аахен, Германия

*** Казанский физико-технический институт им. Е.К. Завойского Российской академии наук,
420029 Казань, Россия

(Поступила в Редакцию 16 мая 2003 г.)

В ближнем ультрафиолетовом спектральном диапазоне на длине волны 354.7 nm исследован нелинейный оптический отклик наночастиц серебра и меди, синтезированных ионной имплантацией в силикатных стеклах. Измерены действительная и мнимая составляющие нелинейной восприимчивости третьего порядка $\chi^{(3)}$ композиционных материалов. Показано, что величина $\text{Im} \chi^{(3)}$ обусловлена насыщенным поглощением, тогда как значение $\text{Re} \chi^{(3)}$ определяется эффектом самодефокусировки в композиционных материалах.

Работа выполнена при финансовой поддержке УНТЦ (грант № Uzb-29), Центра по науке и технологии Узбекистана (грант № 2.1.22), Немецкого научного фонда им. А. Гумбольдта, а также Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 00-15-96615).

1. Введение

Практический интерес к диэлектрическим материалам, содержащим металлические наночастицы (НЧ), связан с перспективами, создания на их основе оптических переключателей с ультракоротким временным откликом [1], а также оптических ограничителей интенсивного лазерного излучения [2,3]. Кроме того, особенностью подобных композиционных структур является возможность проявления в них нелинейного насыщенного поглощения, что может быть использовано для синхронизации мод лазеров [4].

Доминирующее число исследований нелинейно-оптических характеристик НЧ металлов в различных диэлектрических матрицах проводилось ранее с использованием лазеров, работающих на длинах волн излучения, лежащих в спектральной области вблизи максимума поверхностного плазменного резонанса (ППР) частиц. Так, например, в стеклянной матрице при ~ 415 nm находится максимум ППР для НЧ серебра, при ~ 565 nm — меди, при ~ 525 nm — золота [5–7]. Нелинейный отклик металлических НЧ максимально проявляется в условиях резонансного возбуждения электронов проводимости, т.е. на частотах ППР. Примером могут служить результаты работы [1], в которой исследовались силикатные стекла с НЧ серебра с целью оценки возможности создания оптических переключателей. Нелинейные восприимчивости третьего порядка $\chi^{(3)}$ данных композиционных материалов при облучении их на длине волны второй гармоники лазера на титанате сапфира ($\lambda = 400$ nm) пикосекундными импульсами имеют большую величину: $1.5 \cdot 10^{-7}$ esu.

В то же время представляет интерес определение нелинейно-оптических характеристик материалов с ме-

таллическим НЧ при воздействии на них лазерным излучением в ранее нерассматриваемых областях оптического спектра, в частности в ближнем ультрафиолетовом спектральном диапазоне. В настоящее время имеется мало работ, посвященных анализу нелинейно-оптических свойств в ультрафиолетовой области и для неметаллических нанометрических материалов, но все же известно, что, например, для НЧ кремния при облучении на длине волны 355 nm лазером Nd:YAG ($\tau = 8$ ns) была зарегистрирована гигантская величина $\chi^{(3)} = 2.28 \cdot 10^{-5}$ esu [8].

Настоящая работа посвящена исследованию в ближней ультрафиолетовой спектральной области нелинейно-оптических свойств НЧ серебра и меди, синтезированных ионной имплантацией в силикатных стеклах. Измерения проводились при использовании лазерных импульсов пикосекундной длительности на длине волны 354.7 nm по методике Z-сканирования.

2. Методика эксперимента

В качестве подложки композиционного материала использовалось силикатное стекло (SG) Suprasil, характеризующееся высокой оптической прозрачностью $\sim 90\%$ в спектральном диапазоне 250–1100 nm. Стекло имело форму пластины размером 2×2 cm и толщиной 1 mm. Синтез НЧ осуществлялся имплантацией ионами Ag^+ (с дозой $4.0 \cdot 10^{16}$ ion/cm² и энергией 60 keV) и ионами Cu^+ (с дозой $8.0 \cdot 10^{16}$ ion/cm² и энергией 50 keV) при плотности тока в ионном пучке $10 \mu\text{A}/\text{cm}^2$. Для оценки среднего размера синтезируемых металлических НЧ использовалась рентгеновская рефлектометрия [6]. Измерения оптического пропускания стекол, допированных

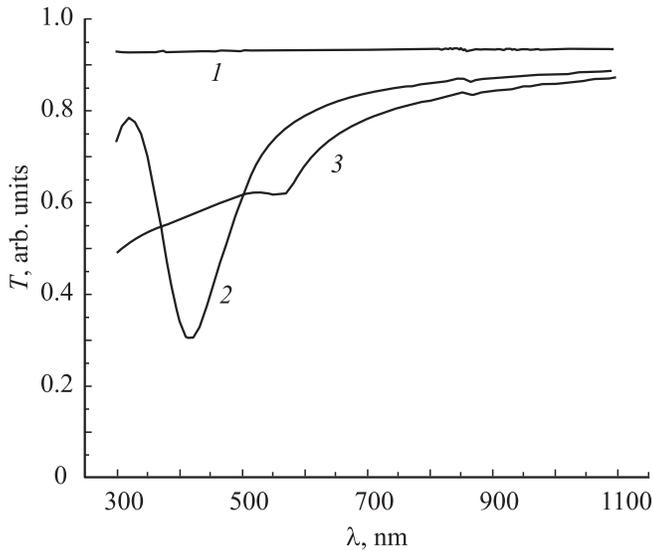


Рис. 1. Оптические спектры пропускания образцов SG (1), SG:Ag (2) и SG:Cu (3).

ионами серебра (SG:Ag) и меди (SG:Cu), проводились на двухлучевом спектрофотометре Perkin Elmer Lambda 19 в области длин волн 300–1100 nm.

Зарождение и рост металлических НЧ в стекле во время имплантации происходят при превышении концентрации атомов металла предела растворимости, определяемого ионной дозой $\sim 1 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ для энергии 50–60 keV [9,10]. Образование металлических НЧ в исследуемых образцах было установлено с помощью рентгеновских измерений, которые позволили, в частности, оценить средний размер частиц меди, равный 3.5–4.5 nm [11]. Образцы, имплантированные ионами серебра, характеризовались более широким разбросом НЧ по размерам в интервале от 2 до 18 nm, что подтверждалось электронно-микроскопическими исследованиями [10]. Глубина залегания металлических НЧ в стеклах для выбранных энергий имплантации не превышала 60 nm [9,12]. Толщина L , соответствующая данной глубине, была в дальнейшем использована для измерения и количественной оценки линейного коэффициента поглощения α_0 образцов SG, SG:Ag и SG:Cu на длине волны применяемого лазера.

Формирование металлических НЧ характеризуется также появлением в оптических спектрах пропускания имплантированного стекла (рис. 1) селективных полос поглощения в видимой области спектра в диапазонах 400–450 nm и 550–600 nm, обусловленных ППР-поглощением в частицах серебра и меди соответственно [13]. При различных условиях ионной имплантации силикатных стекол внедрение ускоренных ионов приводит к появлению радиационных дефектов, которые могут стимулировать обратимые и необратимые изменения структуры материала [10]. Были зарегистрированы различные типы структурных нарушений, такие как протяженные и точечные дефекты, локальная кристаллизация

и аморфизация, формирование новой фазы из атомов, составляющих структуру стекла или внедренных ионов, и т.д. В частности, образование металлических частиц в стекле ведет к увеличению его объема и появлению внутренних напряжений в пределах имплантированного слоя. Радиационные дефекты вызывают повышенное поглощение стекла на краю фундаментальной полосы в ближней ультрафиолетовой области, которое можно наблюдать в нашем случае на коротковолновом участке спектра на рис. 1.

Для определения нелинейно-оптических характеристик образцов была использована установка Z-сканирования, работающая по схеме с ограничивающей диафрагмой, которая подробно описывалась в [14]. Радиус диафрагмы составлял 1.5 mm, что соответствовало $\sim 20\%$ пропускания. В экспериментах использовалась третья гармоника излучения Nd:YAG-лазера со следующими параметрами: длительность импульса 55 ps, энергия импульса 0.1 mJ, длина волны $\lambda = 354.7 \text{ nm}$. Размер фокального пятна в зоне перетяжки составлял $42 \mu\text{m}$. Для предотвращения влияния на измеряемые оптические характеристики тепловых эффектов, возникающих из-за воздействия множества импульсов, частота их следования не превышала 2 Hz. Интенсивности излучения лазера I_0 , при которых проводились измерения, варьировались в пределах $10^9 - 5 \cdot 10^9 \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$, поскольку интенсивности оптического пробоя для стекол, допированных обоими типами ионов, составляли $\sim 10^{10} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$. Каждая точка на приведенных в настоящей работе экспериментальных зависимостях получена в результате усреднения по 20 лазерным импульсам.

3. Результаты экспериментов и обсуждение

На практике при определении величины нелинейного показателя преломления n_2 , входящего в выражение для общего коэффициента преломления $n = n_0 + n_2|E|^2$ (где n_0 — линейный показатель преломления, E — амплитуда напряженности электромагнитного поля лазерного излучения), используется стандартная методика Z-сканирования по схеме с ограничивающей диафрагмой [15,16]. Данный подход также позволяет определить знак n_2 материала. Так, в частности, если в материале проявляется отрицательный n_2 , то в ходе сканирования образца вдоль фокальной плоскости пучка по оси Z наблюдается следующая закономерность изменения нормализованного пропускания $T(z)$. Когда образец находится вдали от фокуса линзы, интенсивность лазера относительно мала и проявляются только линейные оптические процессы, при этом величина $T(z)$ близка к единице. При приближении образца к фокусу линзы происходит повышение интенсивности фокусируемого лазерного излучения, сопровождающееся влиянием отрицательного n_2 , и общий показатель преломления нелинейной среды n уменьшается. Среда выступает в роли

„рассеивающей матрицы“, что вызывает сведение проходящего лазерного луча на регистрируемой диафрагме, приводя к повышению измеряемого пропускания. Максимум пропускания будет достигаться при некотором положении образца, не достигающем фокуса линзы z_0 . При дальнейшем приближении образца к фокусу и увеличении интенсивности лазера самодефокусировка начинает стимулировать уже расхождение луча и, как следствие, ведет к уменьшению $T(z)$. При достижении образцом положения в фокусе линзы $T(z)$ вновь оказывается равной единице. Перемещение образца по оси Z за пределы фокуса приводит к обратному процессу из-за изменения n_2 , т.е. последовательному увеличению и снижению n . Таким образом, зависимость $T(z)$, соответствующая отрицательному n_2 , имеет вид возрастающей синусоидальной кривой, которая после достижения некоторого максимума снижается, достигает минимума и возвращается на исходный уровень. Такое проявление оптической нелинейности соответствует самодефокусировке лазерного излучения. В структурно-однородном образце в отсутствие нелинейного поглощения зависимость $T(z)$, отражающая положение образца до и после фокуса, оказывается центрально-симметричной относительно позиции в фокусе. Самофокусировка лазерного излучения, имеющая место при положительном n_2 , характеризуется аналогичной зависимостью $T(z)$, но только в обратном порядке, т.е. минимум кривой предшествует максимуму.

Как показывает практика, эффективное применение методики Z -сканирования для определения n_2 возможно лишь при ограничивающей диафрагме, пропускающей порядка 1–5% света [16]. Столь малые размеры ограничивающей диафрагмы накладывают на исследуемый образец требования достаточно высокой прозрачности. Ранее для стекол с металлическими НЧ подобные малые диафрагмы успешно использовались нами при исследовании нелинейных процессов в ближней ИК-области спектра [17,18]. Однако в рассматриваемом случае ближнего ультрафиолетового диапазона композиционные материалы характеризуются повышенным пропусканием из-за сильного поглощения на фундаментальном краю металлического серебра и стеклянной матрицы (рис. 1). Поэтому в настоящей работе в экспериментах была использована ограничивающая диафрагма, характеризующаяся высоким пропусканием 20%. Особенностью измерений при таких диафрагмах является то, что на определяемую зависимость $T(z)$ может оказывать влияние не только нелинейная рефракция образца, но и его нелинейное поглощение, если таковое имеется в материале [19]. Тогда в регистрируемых зависимостях влияние обоих нелинейных процессов проявляется в том, что кривая $T(z)$ оказывается несимметричной относительно позиции в фокусе линзы.

Прежде всего отметим, что в неимплантированном силикатном стекле нелинейные рефракция и поглощение на выбранной длине волны излучения лазера не наблюдались. На рис. 2 приведена кривая $T(z)$, изме-

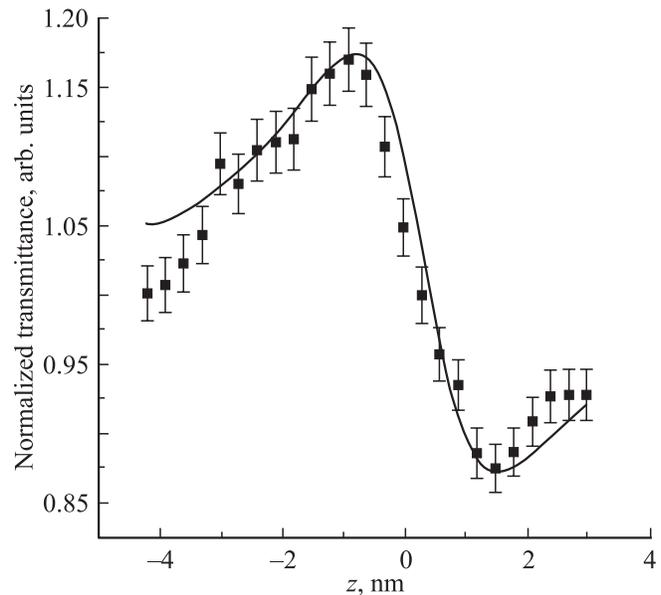


Рис. 2. Зависимости нормализованного пропускания для SG:Ag в схеме Z -сканирования с ограничивающей диафрагмой. Сплошная линия — расчет.

ренная по схеме Z -сканирования с ограничивающей диафрагмой, соответствующая образцу SG:Ag. Как видно из рисунка, последовательное увеличение значения $T(z)$, сменяющееся резким снижением кривой по мере изменения положения образца, указывает на проявление отрицательного n_2 , что характеризует процесс самодефокусировки лазерного излучения. В то же время заметная асимметрия зависимости $T(z)$ относительно фокуса линзы, выражающаяся в преобладании амплитуды в максимуме пропускания по сравнению с амплитудой в минимуме и смещении максимума $T(z)$ в область перед фокусом линзы, свидетельствует о проявлении нелинейного насыщенного поглощения в исследуемом образце [16]. Если бы на кривой $T(z)$ наблюдалось доминирование амплитуды в точке минимума, то можно было бы сделать заключение о наличии нелинейного индуцированного поглощения, такого как двухфотонное или обратное насыщенное, но, как следует из зависимости, приведенной на рис. 2, данные типы нелинейных поглощений могут быть исключены из рассмотрения. Заметим при этом, что наличие нелинейного поглощения (насыщенного или индуцированного) не влияет на знак n_2 , а следовательно, и на процессы самовоздействия, т.е. самофокусировки или самодефокусировки.

В общем случае, когда в исследуемом образце наблюдаются различные нелинейные процессы, зависимость $T(z)$ при измерении по схеме Z -сканирования с ограничивающей диафрагмой для лазерного луча с циркулярной симметрией может быть представлена как [20]

$$T(z) = 1 + T_{\Delta\Phi}(z) + T_{\Delta\Psi}(z), \quad (1)$$

где $T_{\Delta\Phi}(z)$ определяется вкладом от нелинейной рефракции, а $T_{\Delta\Psi}(z)$ — вкладом от нелинейного поглощения.

Нелинейно-оптические параметры образцов SG:Ag и SG:Cu на длине волны 354.7 nm

Образец	$\alpha_0, 10^4$ cm^{-1}	$I_0, 10^9$ $\text{W} \cdot \text{cm}^{-2}$	$n_2, 10^{-7}$ esu	$\beta, 10^{-6}$ $\text{cm} \cdot \text{W}^{-1}$	$\text{Re } \chi^{(3)}, 10^{-8}$ esu	$\text{Im } \chi^{(3)}, 10^{-9}$ esu	$ \chi^{(3)} , 10^{-8}$ esu
SG:Ag	8.8	1.25	-2.7	-14.25	-6.025	-6.14	6.056
SG:Cu	10.7	4.1	-0.6	-6.67	-1.34	-2.87	1.36

Аналитически данная зависимость может быть представлена в следующем виде [20]:

$$T(z) = 1 - \frac{4x}{(x^2 + 9)(x^2 + 1)} \Delta\Phi_0 - \frac{2(x^2 + 3)}{(x^2 + 9)(x^2 + 1)} \Delta\Psi_0, \quad (2)$$

где $x = z/z_0$, $z_0 = kw_0^2/2$ — дифракционная длина пучка, w_0 — радиус пучка в фокусе на уровне $1/e^2$ распределения интенсивности, который в настоящей работе составлял $42 \mu\text{m}$, и $k = 2\pi/\lambda$ — волновой вектор. $\Delta\Phi_0$ и $\Delta\Psi_0$ — параметры, определяющие фазовый сдвиг электромагнитной волны вблизи фокуса в результате нелинейной рефракции и нелинейного поглощения соответственно; $\Delta\Phi_0 = k\gamma I_0 L_{\text{eff}}$ и $\Delta\Psi_0 = \beta I_0 L_{\text{eff}}/2$, где γ — нелинейный показатель преломления, выраженный в SI. Переход к системе esu на практике [16] осуществляется следующим образом: $n_2[\text{esu}] = \frac{cn_0}{40\pi} \gamma[\text{m}^2 \cdot \text{W}^{-1}]$ (здесь скорость света c выражается в m/s). β является коэффициентом нелинейного поглощения, а I_0 соответствует минимальной интенсивности лазерного излучения в фокусе, при которой в настоящем эксперименте удалось зарегистрировать проявление оптических нелинейностей в образцах с НЧ. Величина $L_{\text{eff}} = [1 - \exp(-\alpha_0 L)]/\alpha_0$ определяет эффективную толщину образца при реальной толщине стекла $L = 60 \text{ nm}$, содержащего имплантированные НЧ; α_0 — линейный коэффициент поглощения. Значения I_0 и α_0 , соответствующие исследуемым образцам, приведены в таблице, из которой видно, что для обнаружения нелинейностей свойств в SG:Ag требуется приложить меньшую интенсивность, чем в SG:Cu.

Вводя обозначение $\rho = \beta/2k\gamma$, можно получить соотношение между $\Delta\Phi_0$ и $\Delta\Psi_0$: $\Delta\Psi_0 = \rho\Delta\Phi_0$ [20]. В этом случае уравнение (2) преобразуется в выражение вида

$$T(z) = 1 + \frac{2(-\rho x^2 - 2x - 2\rho)}{(x^2 + 9)(x^2 + 1)} \Delta\Phi. \quad (3)$$

С помощью уравнения (3) в настоящей работе проводилось моделирование зависимости $T(z)$. Наилучшее согласие между расчетной кривой и экспериментальными данными было достигнуто при $\rho = -0.07$ и $\Delta\Phi_0 = -0.75$. Полученная кривая представлена на рис. 2 сплошной линией. Выбранные значения ρ и $\Delta\Phi_0$ позволили, используя соотношение между $\Delta\Psi_0$, ρ и $\Delta\Phi_0$, вычислить величину $n_2 = -2.7 \cdot 10^{-7}$ esu, а также $\beta = -14.25 \cdot 10^{-6} \text{ cm} \cdot \text{W}^{-1}$ для SG:Ag.

В общем случае при проявлении в материале одновременно нелинейной рефракции и нелинейного поглощения керровская восприимчивость представляет собой комплексную величину $\chi^{(3)} = \text{Re } \chi^{(3)} + i \text{Im } \chi^{(3)}$,

при этом действительная часть $\chi^{(3)}$ связана с n_2 [21] ($\text{Re } \chi^{(3)} = \frac{n_0}{3\pi} n_2$), а мнимая — с β [22] ($\text{Im } \chi^{(3)} = \frac{n_0 \epsilon_0 c^2}{\omega} \beta$); ω — частота лазерного излучения, ϵ_0 — диэлектрическая постоянная. Таким образом, зная n_2 и β , можно вычислить значения $\text{Re } \chi^{(3)}$ и $\text{Im } \chi^{(3)}$, которые составили соответственно $-6.025 \cdot 10^{-8}$ и $-6.14 \cdot 10^{-9}$ esu. Тогда абсолютное значение $|\chi^{(3)}|$, определяемое как $[(\text{Re } \chi^{(3)})^2 + (\text{Im } \chi^{(3)})^2]^{1/2}$, будет равно $6.056 \cdot 10^{-8}$ esu. Как следует из полученных значений, основной вклад в $|\chi^{(3)}|$ вносит $\text{Re } \chi^{(3)}$.

Экспериментальная зависимость $T(z)$, соответствующая образцу SG:Cu, приведена на рис. 3. Видно, что наблюдаемая кривая и знак нелинейности n_2 в данном образце и в SG:Ag оказываются подобными. Однако имеется и отличие, заключающееся в расхождении значений амплитуд в точке максимума кривой $T(z)$ и ее минимума, что позволяет предполагать меньший вклад нелинейного насыщенного поглощения в SG:Cu по сравнению с SG:Ag. Применяя аналогичный подход в моделировании зависимости $T(z)$ (сплошная линия на рис. 3), мы получили величины $\rho = -0.15$ и $\Delta\Phi_0 = -0.548$, которые позволили определить $n_2 = -0.6 \cdot 10^{-7}$ esu и $\beta = -6.67 \cdot 10^{-6} \text{ cm} \cdot \text{W}^{-1}$, а также $\text{Re } \chi^{(3)} = -1.34 \cdot 10^{-8}$ esu и $\text{Im } \chi^{(3)} = -2.87 \cdot 10^{-9}$ esu. Абсолютное значение $|\chi^{(3)}|$ в SG:Cu составило $1.36 \cdot 10^{-8}$ esu. Для удобства сравнения все полученные нелинейно-оптические параметры сведены в таблицу.

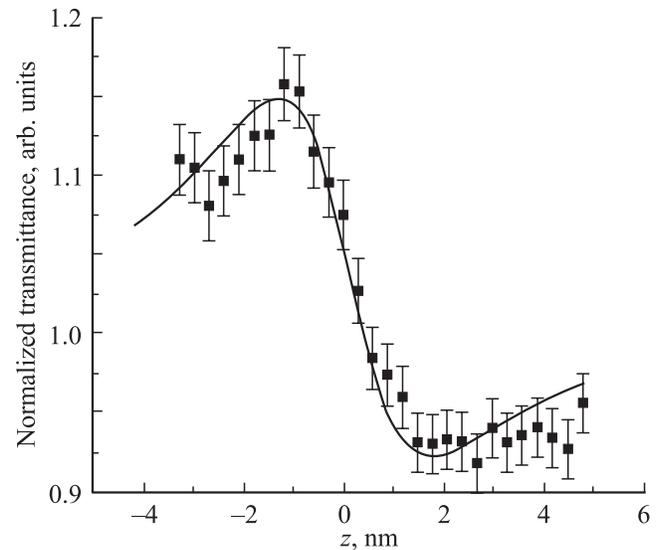


Рис. 3. Зависимости нормализованного пропускания для SG:Cu в схеме Z-сканирования с ограничивающей диафрагмой. Сплошная линия — расчет.

Как и в нашей предыдущей работе по исследованию нелинейно-оптических свойств подобных стекол с металлическими НЧ в ИК-диапазоне [17], для анализа экспериментальных результатов воспользуемся представлением нашего композиционного материала в виде эффективной однородной среды. Правомерности такого подхода способствует малость размеров НЧ по сравнению с длиной волны излучения. Тогда для эффективной гомогенной конденсированной среды, характеризующейся наличием резонансных переходов, можно применить стандартную двухуровневую энергетическую схему [21] и соответствующее ей уравнение для n_2

$$n_2(\omega_i) = -2\pi N \frac{|\mu_{i0}|^4}{n_0 \hbar (\omega_{i0} - \omega_p)^3}, \quad (4)$$

где параметры ω_p и ω_{i0} относятся к частотам ППП металлических НЧ и прикладываемого лазерного излучения. Индекс i определяет одно- или двухфотонный процесс в материале, N — концентрация активных центров нелинейного возбуждения, в первом приближении рассматриваемых как диполи, которые в нашем случае можно соотнести с НЧ в образце, μ_{i0} — дипольный момент перехода на частотах ω_{i0} .

Как видно из соотношения (4), знак n_2 не зависит от N и μ_{i0} и определяется только знаком отстройки от резонанса $\Delta = \omega_{i0} - \omega_p$. Поскольку известно, что величина $\text{Re} \chi^{(3)}$ линейно пропорциональна n_2 [21], соотношение, определяющее знак нелинейности композиционной среды, может быть представлено в виде

$$\text{Re} \chi^{(3)} \propto -(\omega_{i0} - \omega_p). \quad (5)$$

Рассмотрим это соотношение для частоты $\omega_{10} \sim 28\,193\text{ см}^{-1}$ (354.6 nm) используемого в настоящей работе лазерного излучения и частот ППП в образцах SG:Ag и SG:Cu. В случае НЧ меди максимум ППП расположен при $\omega_p = 17\,699.1\text{ см}^{-1}$ (565 nm). Сопоставление этой частоты с ω_{10} приводит к положительному знаку Δ , что указывает на отрицательное значение $\text{Re} \chi^{(3)}$. Аналогичное правило выполняется и для SG:Ag, для которого максимум ППП расположен в области $\omega_p = 24\,096.4\text{ см}^{-1}$ (415 nm). Условие положительного Δ соответствует проявлению самодифракции лазерного излучения, что и наблюдается в эксперименте для образцов SG:Cu и SG:Ag.

Несмотря на то что длительность импульсов лазерного излучения, применяемых в настоящей работе, была достаточно короткой ($\tau = 55\text{ ps}$), рассмотрим возможность влияния теплового эффекта на процессы нелинейной рефракции, поскольку исследуемые образцы характеризуются высоким линейным поглощением в ближнем ультрафиолетовом спектральном диапазоне. Для этого оценим, насколько велико может быть изменение показателя преломления стекла в результате его нагрева, например, вследствие передачи тепла от разогретых лазерным облучением металлических НЧ или непосредственно при поглощении света матрицей.

Изменение показателя преломления из-за нелинейного вклада в локальной области однородного диэлектрика (стекла) при проявлении теплового эффекта под действием лазерного излучения может быть представлено в виде [23]

$$\Delta n_{\text{therm}}(r, z, t) = (\delta\sigma)^{-1} (dn/dT) \Delta E(r, z, t), \quad (6)$$

где δ и σ — удельная теплоемкость и плотность силикатного стекла, равные $0.703\text{ J} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ и $2.203\text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ соответственно. Отношение $\frac{dn}{dT} = 11.9 \cdot 10^{-6}\text{ K}^{-1}$ является термооптическим коэффициентом стекла, а $\Delta E(r, z, t)$ определяется энергией лазерного излучения, поглощенной единицей объема вещества за время t .

Для расчета величины $\Delta E(r, z, t)$, соответствующей отдельному лазерному импульсу длительностью 55 ps, обратимся к условиям проводимых экспериментов, т.е. расположению образца в фокальной области линзы. Значения энергий E поглощенного излучения для SG:Cu и SG:Ag составили $7.63 \cdot 10^{-6}$ и $2.78 \cdot 10^{-6}\text{ J}$ соответственно. При толщине нелинейного слоя 60 nm и радиусе пучка в фокусе $42\text{ }\mu\text{m}$ значение исследуемого объема составило $3.32 \cdot 10^{-10}\text{ cm}^3$, тогда величины $\Delta E(r, z, t)$ для SG:Cu и SG:Ag будут соответственно равны $2.3 \cdot 10^4$ и $8.61 \cdot 10^3\text{ J} \cdot \text{cm}^{-3}$. Приведенные численные оценки позволяют вычислить величину Δn_{therm} в SG:Cu (0.176) и SG:Ag ($6.61 \cdot 10^{-2}$).

С другой стороны, используя полученные значения фазовых сдвигов в результате нелинейной рефракции ($\Delta\Phi_0$) и принимая во внимание соотношение $\Delta\Phi_0 = k\Delta n_{\text{exp}}L_{\text{eff}}$ [16], связывающее данный параметр с величиной Δn , мы определили значения Δn_{exp} , соответствующие настоящему эксперименту. Для SG:Cu и SG:Ag $\Delta n_{\text{exp}} = -0.516$ и -0.7 соответственно. Видно, что данные величины заметно превышают по абсолютному значению величины Δn_{therm} , рассчитанные на основе анализа теплового эффекта и отличаются от них по знаку. Таким образом, можно исключить из рассмотрения вклад от Δn_{therm} и сделать вывод о преобладающем влиянии керровских нелинейностей в рассматриваемых образцах при выбранных условиях нелинейно-оптических экспериментов.

Проанализируем, при каких длительностях импульсов изменение Δn_{therm} , вызванное тепловым влиянием, окажется сопоставимым с Δn_{exp} , определяемым эффектом Керра. По абсолютным значениям Δn_{exp} превышают Δn_{therm} в 3 и 10 раз для SG:Cu и SG:Ag. Заметим при этом, что для проявления теплового механизма определяющим фактором является плотность энергии, а для эффекта Керра — плотность мощности [24]. Если увеличить длительность импульсов излучения в 3 и 10 раз соответственно для образцов SG:Cu и SG:Ag и одновременно увеличить энергию излучения в такое же число раз, то плотность мощности останется неизменной и не скажется на изменениях n , обусловленном эффектом Керра, однако увеличит в 3 и 10 раз Δn_{therm} .

При этом величины Δn_{exp} для двух рассматриваемых эффектов сравниваются. Поэтому можно полагать, что на длине волны 354.7 nm для используемых в настоящей работе образцов влияние тепловых нелинейностей будет сказываться при длительностях импульсов $\tau > 165$ ps для SG:Cu и $\tau > 550$ ps для SG:Ag.

4. Заключение

В настоящей работе исследованы нелинейно-оптические характеристики на длине волны 354.7 nm силикатных стекол, содержащих НЧ серебра и меди, синтезированные методом ионной имплантации. Измерены действительная и мнимая составляющие нелинейной восприимчивости третьего порядка $\chi^{(3)}$ композиционного материала. Показано, что величины $\text{Im}\chi^{(3)}$ обусловлены насыщенным положением в металлических НЧ, тогда как значения $\text{Re}\chi^{(3)}$ определяются эффектом самофокусировки в композиционных материалах. Проведен численный анализ влияния теплового эффекта на процесс нелинейной рефракции стеклянной матрицы. При этом показано, что на используемой длине волны лазерного излучения при прикладываемой длительности импульса разогрев стекла оказывается несущественным по сравнению с оптическими нелинейностями, обусловленными наличием металлических НЧ.

Список литературы

- [1] H. Inouye, K. Tanaka, I. Tanahashi, T. Hattori, H. Nakatsuka. *Jpn. J. Appl. Phys.* **39**, 5132 (2000).
- [2] Y.-P. Sun, J.E. Riggs, H.W. Rollins, R. Guduru. *J. Phys. Chem. B* **103** 77 (1999).
- [3] J. Staromlynska, T.J. McKay, P. Wilson. *J. Appl. Phys.* **88**, 1726 (2000).
- [4] K. Wundke, S. Potting, J. Auxier. *Appl. Phys. Lett.* **76**, 10 (2000).
- [5] J. Olivares, J. Requejo-Isidro, R. Del Coso, R. De Nalda, J. Solis, C.N. Afonso, A.L. Stepanov, D. Hole, P.D. Townsend, A. Naudon. *J. Appl. Phys.* **90**, 1064 (2001).
- [6] F. Hache, D. Ricard, C. Flytzanis, U. Kreibig. *J. Appl. Phys.* **47**, 354 (1988).
- [7] K. Ushida, S. Kaneko, S. Omi, C. Hata, H. Tanji, Y. Asahara, A.J. Ikushima, T. Tokazaki, A. Nakamura. *J. Opt. Soc. Am. B* **11**, 1236 (1994).
- [8] S. Vijayalakshmi, M.A. George, H. Grebel. *Appl. Phys. Lett.* **70**, 708 (1997).
- [9] A.L. Stepanov, D.E. Hole. *Recent Res. Devel. Appl. Phys.* **5**, 1 (2002).
- [10] P.D. Townsend, P.J. Chandler, L. Zhang. *Optical Effects of Ion Implantation*. University Press, Cambridge (1994). P. 157.
- [11] A. Nadon, D. Thiaudiere. *J. Appl. Cryst.* **30**, 822 (1997).
- [12] А.Л. Степанов, В.А. Жихарев, И.Б. Хайбуллин. *ФТТ* **43**, 733 (2001).
- [13] U. Kreibig, M. Vollmer. *Optical Properties of Metal Clusters*. Springer, Berlin (1995). P. 533.
- [14] R.A. Ganeev, A.I. Rysnyansky, S.R. Kamalov, M.K. Kodirov, T. Usmanov. *J. Phys. D.: Appl. Phys.* **34**, 1602 (2001).

- [15] M. Sheik-Bahae, A.A. Said, E.W. Van Stryland. *Opt. Lett.* **14**, 955 (1989).
- [16] M. Sheik-Bahae, A.A. Said, T. Wei, D.J. Hagan, E.W. Van Stryland. *IEEE J. Quant. Electron.* **26**, 760 (1990).
- [17] Р.А. Ганеев, А.И. Ряснянский, А.Л. Степанов, М.К. Кодиров, Т. Усманов. *Опт. и спектр.*, в печати (2003).
- [18] Р.А. Ганеев, А.И. Ряснянский, А.Л. Степанов, Т. Усманов. *ФТТ* **45**, 7, 1292 (2003).
- [19] M. Kyong, M. Lee. *Bull. Korean. Chem. Soc.* **21**, 26 (2000).
- [20] M. Yin, H.P. Li, S.H. Tang, W. Ji. *Appl. Phys. B* **70**, 587 (2000).
- [21] J.F. Reintjes. *Nonlinear-optical parametrical processes in liquids and gases*. Academic Press, Orlando (1984). P. 466.
- [22] R. Rangel-Rojo, T. Kosa, E. Hajto, P.J.S. Ewen, A.E. Owen, A.K. Kar, B.S. Wherrett. *Opt. Comm.* **109**, 143 (1994).
- [23] G.A. Swartzlander, B.L. Justus, A.L. Huston, A.J. Campillo, C.T. Law. *Int. J. Nonlin. Opt. Phys.* **2**, 577 (1993).
- [24] C.S. Mehendale, S.R. Mishra, K.S. Bindra, M. Laghate, T.S. Dhami, K.S. Rustagi. *Opt. Comm.* **133**, 273 (1997).