

A VANÁDIUM-PENTOXID EGYKRISTÁLY NEMLINEÁRIS ABSZORPCIÓJÁRÓL

DOBOS KATALIN

A lineáris optika keretén belül a megszokott gerjesztési módok esetén a fényanyag kölcsönhatásban az anyag reakciója nem függ a fénysugárzás intenzitásától. A negyvenes években Sz. I. Vavilov és munkatársai [1] elméletileg kimutatták, hogy nagy teljesítménysűrűség esetén a közeg reakciója sugárzás hatására intenzitásfüggővé válik. Ennek az ún. nemlineáris optikai jelenségnek a vizsgálata a hatvanas években a nagy intenzitású (MW/cm^2 nagyságrendű) koherens lézer-fényforrások megjelenésével indult rohamos fejlődésnek. A lézertechnika gyors tökéletesedése a nemlineáris jelenségek vizsgálatának további előrehaladását, valamint az anyagok olyan paramétereinek vizsgálatát is lehetővé tette, melyek értéke már nemcsak az anyagi jellemzőktől, hanem a fényforrás intenzitásától is függ. Egyre több olyan munka jelent meg, mely már a nemlineáris polarizációt, az önfókuszálást, az öndefókuszálást, a többfotonos jelenségeket stb. tárgyalja [2].

A félvezető anyagok esetében különösen nagy jelentőséggel bír a nemlineáris optikai konstansok ismerete. Közöttük is az egyik legfontosabb: a kétfotonos abszorpciós koeficiens. Méréseink során fő célunk, a V_2O_5 nemlineáris abszorpciós jellemzői közül, a kétfotonos abszorpciós koeficiens értékének a meghatározása volt, a lézerefény különböző, $E\|a$ és $E\|c$ (ahol a és c a kristálytani főtengelyek) polarizációs állapotainál, különböző intenzitás értékeknél és hullámhosszaknál, különböző vastagságú minták esetében. E koeficiensek ismerete elvi szempontból nagyon fontos, mivel segít tisztázni a roncsolódással, plazmakeltéssel kapcsolatos folyamatokat. Gyakorlati szempontból pedig azért lényeges, mert a kétfotonos abszorpció jelenségén több eszköz működése alapul.

A V_2O_5 elektromos és optikai szempontból sokrétűen vizsgált, elsősorban katalizátorként ismert n -típusú félvezető anyag. A $\text{D}_{2h}^{18}(\text{Pmmn})$ rombos kristályrendszer bipiramisos osztályába tartozik [3]. A V_2O_5 kristály hőkezelés után könnyen hasítható a (010) síkban, planparalel lemezekre. A tiltott sáv szélességére elsősorban optikai mérések alapján $\sim 2,4$ eV értéket kaptak [4], amely bizonyos mértékben függ a polarizációs viszonyoktól. Ha a beeső fénysugár $h\nu$ energiakvantuma kisebb a tiltott sáv szélességnél, akkor a lineáris optika közelítése szerint a kristály erre a hullámhosszra átlátszó. Nagy gerjesztő fényintenzitások esetén azonban ebben az esetben is megfigyelhető abszorpció. Ez a jelenség elsősorban azzal magyarázható, hogy az abszorpció folyamatában koherens módon, egyidőben két vagy több foton vesz részt, melyek összenergiája nagyobb a tiltott sáv szélességnél.

Kétfotonos abszorpció

A félvezetőkben végbemenő két és többfotonos abszorpció kérdését illetően az utóbbi időben kétféle megközelítés terjedt el. Közülük az egyik az adiabatikus közelítés módszerén [5], a másik pedig n -ed rendű perturbációs számításon alapul [6].

Az n -ed rendű perturbációs számításon alapuló módszer, az elméleti számítások és kísérleti eredmények összehasonlítása szerint, az $n \leq 3$ esetben alkalmazható. Az alábbiakban röviden áttekintjük a kétfotonos abszorpcióra ($n=2$) vonatkozó perturbációs számítást.

A perturbációs számítás második rendje szerint az átmeneti valószínűség a következőképpen adható meg [6]:

$$W = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_j \left[\sum_1 \frac{\langle j | H_{\text{int}} | 1 \rangle \langle 1 | H_{\text{int}} | i \rangle}{E_1 - E_i} \right]^2 \delta(E_j - E_i), \quad (1)$$

ahol $|i\rangle$, $|j\rangle$ és $|1\rangle$ jelölések az egymással kölcsönhatásban levő elektron-foton rendszer kezdeti-, vég- és közbülső állapotaira vonatkoznak; H_{int} az elektronok és fotonok kölcsönhatási operátora, amely felírható két különböző alakban:

$$\hat{H}_{\text{int}} = -\frac{e}{c} \hat{A}(t) \hat{P}, \quad (2)$$

$$\hat{H}_{\text{int}} = e\hat{r}E(t),$$

ahol $\hat{A}(t)$ — az elektromágneses tér vektorpotenciálja; \hat{P} — az impulzusoperátor; $E(t)$ — az elektromos térerősség vektor; \hat{r} — a koordináta operátor. Az (1)-ben szereplő

$$M_{ji} = \sum_1 \frac{\langle j | H_{\text{int}} | 1 \rangle \langle 1 | H_{\text{int}} | i \rangle}{E_1 - E_i} \quad (3)$$

mátrixelem kiszámítása általában igen nagy nehézséget jelent. A számításnál ugyanis figyelembe kell venni az összes lehetséges közbülső állapotot. Három típusú közbülső állapot jöhet szóba: a) harmadik sáv jelentése, b) sávon belüli állapot, c) exciton állapot. E három lehetséges közbülső állapot járuléka a (3)-mal kifejezett mátrixelemen, elsősorban a kristály szimmetriájának és a lézerefény polarizációs állapotának függvénye. Szimmetriacentrummal bíró kristályok esetében pl. a harmadik sávot érintő átmenetek tiltottak [6], és a fő járulékot M_{ji} -be a b) és c) állapottal kapcsolatos átmenetek adják. A szimmetriacentrum nélküli kristályokban mind a három közbülső állapot részt vehet a kétfotonos abszorpcióban, de az exciton állapotokkal kapcsolatos átmenetek csak akkor adnak lényeges járulékot M_{ji} -be, ha a kétfotonos abszorpcióban résztvevő fotonok egyikének kvantumenergiája közel azonos az egyfotonos exciton átmenethez tartozó energiakvantummal.

Bonyolult és terjedelmes számítások után, azon egyszerűsítő feltételek mellett, hogy a két foton frekvenciája és polarizációja azonos és, hogy közbülső állapotként csak egy sávbeli állapot lép fel, az átmeneti valószínűsége azt kapjuk, hogy [7]:

$$W_{cv} = \frac{2^{1/2} \pi e^4}{nc^2 (\hbar\omega)^6} \frac{(\vec{\alpha} \vec{P}_{cv})}{m^2} \mu_{cv}^{1/2} (2\hbar\omega - \Delta_{cv})^{3/2} I^2, \quad (4)$$

ahol $\bar{\alpha}$ — a polarizációs állapotot jelzi; $\Delta_{cv} > 2\hbar\omega$ — a lehetséges kezdő- és végállapotok közötti energia különbség; n — a törésmutató; m — a szabad elektron tömege; I — a sugárzás intenzitása;

$$\mu_{cv} = \frac{1}{1/m_c + 1/m_v}, \quad (5)$$

a töltéshordozók redukált effektív tömege.

A (4) egyenletből jól látható, hogy az átmeneti valószínűséggel arányos kétfotonos abszorpciókoefficiens a sugárzás intenzitásától négyzetesen függ. A kétfotonos abszorpcióval kapcsolatos fenti számítások a kísérleti munka értékelése során csak igen nehézkesen használhatók fel. Ezért a kétfotonos abszorpciókoefficiens kísérleti adatokból történő meghatározásához tekintünk az alábbi, többfotonos átmenetekre vonatkozó fenomenológikus tárgyalásmódot.

Lépjen be I_0 intenzitású fény a d vastagságú kristálylemezre merőlegesen. Ekkor a kristályban bekövetkező fényintenzitás-gyengülés [7]:

$$\frac{dI}{dx} = -kI - \beta I^2 - \gamma I^3 - \xi I^4 - \dots, \quad (5)$$

ahol k , β , γ , ξ az egy-, két-, három- és négyfotonos abszorpciókoefficienseket jelenti.

Ha a lineáris abszorpción kívül csak egy magasabb rendű abszorpciót tételezünk fel, akkor az (5) egyenlet könnyen integrálható és pl. a fénygyengülés reciprokértéke (D), egyidejű lineáris és kétfotonos abszorpció esetén, az alábbi módon fejezhető ki:

$$D = \frac{I_0}{I} = \frac{e^{kd}}{(1-R)^2} + \frac{I_0}{k(1-R)} (e^{kd} - 1), \quad (6)$$

ahol I a mintán áthaladó fény intenzitása; R a minta felületi reflexiója. Megfelelő koordináta-rendszert alkalmazva, a fenti (6)-os egyenlet egy olyan egyenest határoz meg, amelynek dőlésszögéből a kétfotonos abszorpciókoefficiens, az egyenesnek az ordinátatengellyel való metszéspontjából pedig a lineáris abszorpciókoefficiense határozható meg. Így:

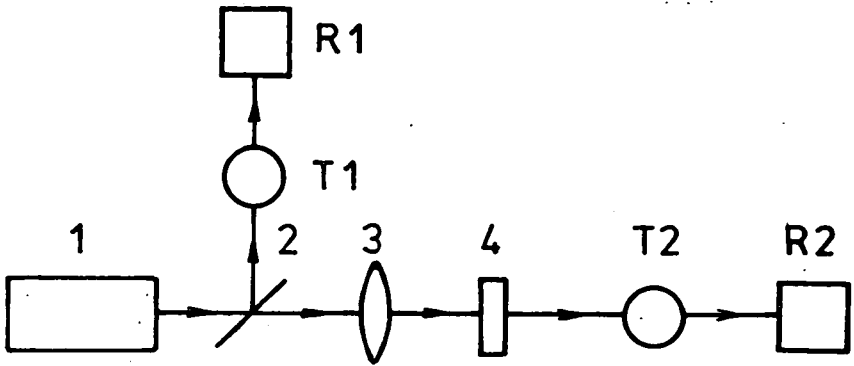
$$D = \delta + \frac{\beta}{k} I_0 (\delta - 1), \quad (7)$$

ahol $\delta = e^{kd}$ az egyfotonos veszteségekkel kapcsolatos fénygyengülés reciprok értéke. A (7) egyenlet alapján, a kísérletileg meghatározott D és δ segítségével, a β könnyen meghatározható.

Kísérleti módszer

A V_2O_5 nemlineáris abszorpcióját, illetve transzmisszióját az 1. ábrán látható kísérleti elrendezés segítségével határoztuk meg.

Vizsgálatainknál fényforrásként Electro-Photonics LTD ír gyártmányú festék-lézert használtuk (impulzus üzemmódban), amelyben az aktív közeg Rhodamin 6G volt. A populáció inverziót rövid impulzusidejű villanólámpával valószínűsítettük meg, melynek feszültségét 16 kV és 24 kV között szabályoztuk. A méréseknél alkalmazott fény hullámhosszát egy prizma és egy tükörrendszer segítségével 586 nm és 606 nm (2,117 eV—2,047 eV) között változtattuk.



1. ábra Kísérleti elrendezés (1. festéklézer; 2. planparalel üveglemez; 3. lencse; 4. minta; T1, T2. termoelem; R1, R2. kompenzográf)

A sugárforrásból kilépő fény energiájának mérése céljából a fénynyaláb egy részét a fényúthoz viszonyítva 45° -os szögben beállított planparalel üveglemez segítségével kicsatoltuk és értékét minden egyes impulzusnál rögzítettük. Az üveglemez első és hátsó felületéről való visszaverődést is figyelembe véve, a Fresnel-formula [8] alapján számításal (és kísérletileg is) meghatároztuk a reflexiót. Az így a kapott értékek figyelembe vételével határoztuk meg a mintába belépő fény (I_0) intenzitását. A sugárnyaláb átmérőjének változtatására 5,75 cm fókusz távolságú üveglencsét alkalmaztunk. Így a mintára jutó teljesítménysűrűség nagyságát egyrészt a pumpáló feszültség, másrészt a lencse-minta távolság változtatásával szabályoztuk. A lézernyaláb átmérőjét számításal és fotografikus módszerrel is meghatároztuk, melyek jó egyezést mutattak.

A méréseknél alkalmazott minták V_2O_5 lapocskák voltak, melyeket a [4] dolgozatban leírt hasítási módszerrel készítettünk, a V_2O_5 egykristálytömb ugyanazon mélységű részéből. A minták mérete $4\text{ mm} \times 6\text{ mm}$ volt, vastagságuk pedig $70\ \mu\text{m}$ és $160\ \mu\text{m}$ között változott. A mintákat résekkel ellátott lemezre ragasztva helyeztük a mintatartóba, mely az optikai tengely irányában és rá merőlegesen elmozdítható volt. A minta 90° -os elforgatása lehetővé tette az $E\|a$ és $E\|c$ polarizációs helyzetekben való mérést is.

Az üveglemezzel kicsatolt, ill. a mintán áthaladó fénynyaláb a T1, ill. T2 termoelemek érzékelő felületére jutott. A keletkező termofeszültséget az R1, ill. R2 nagy érzékenységu kompenzográfal regisztráltuk. A rögzített adatokat számítógép (WANG 2200/C) segítségével dolgoztuk fel.

A kétfotonos abszorpciót a transzmisszió értékének ismerete alapján határoztuk meg. A kétfotonos abszorpciós koeficiens értéke a (7) egyenletből:

$$\beta = \frac{(D - \delta)k}{I_0(\delta - 1)}. \quad (8)$$

A k abszorpciómutatót a különböző vastagságú minták esetén számításal határoztuk meg, a

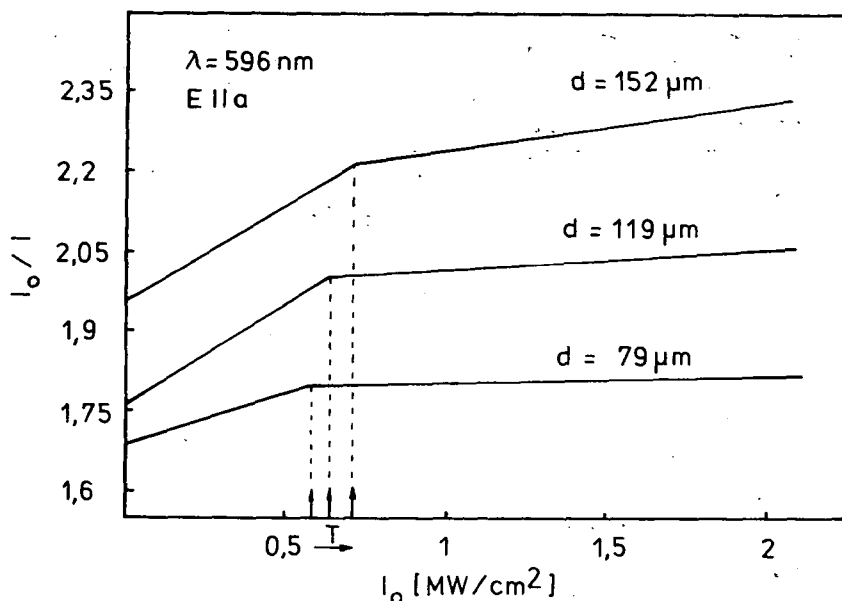
$$k = \frac{\ln \delta}{d} \quad (9)$$

formula alapján.

Mérési eredmények

Az 1. ábra szerinti kísérleti berendezéssel meghatározott transzmisszió értékek alapján a reciproktanszmissziós görbéket ábráztuk a mintára eső fény intenzitásának függvényeként.

Minden alkalmazott mintavastagságnál és hullámhossznál a D reciproktanszmissziós görbék két részből állnak. A D értéke először lineárisan nő a beeső fényintenzitással, majd a növekedés üteme lelassul, illetve közel konstanssá válik. A görbék első szakaszának meredeksége ugyanazon minta esetén, a hullámhossz növekedésével növekvő tendenciát mutat. A reciproktanszmisszió értéke $E \parallel c$ esetén mindig alacsonyabb, mint $E \parallel a$ esetben, de a különböző polarizációs állapotokra vonatkozó értékek aránya intenzitástól függetlenül végig állandó.

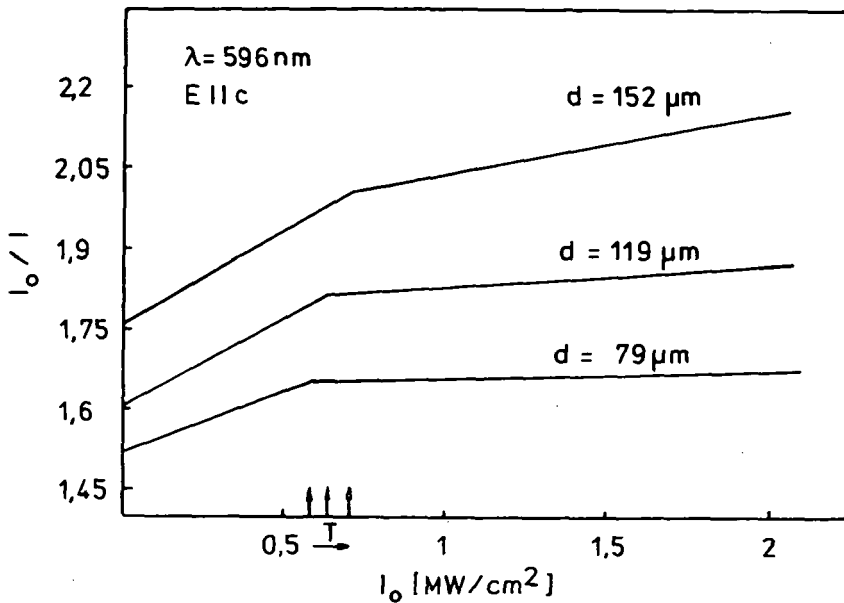


2a ábra A reciproktanszmisszió és a töréspont helyének változása a mintavastagság növelésekor $E \parallel a$ polarizáció esetén

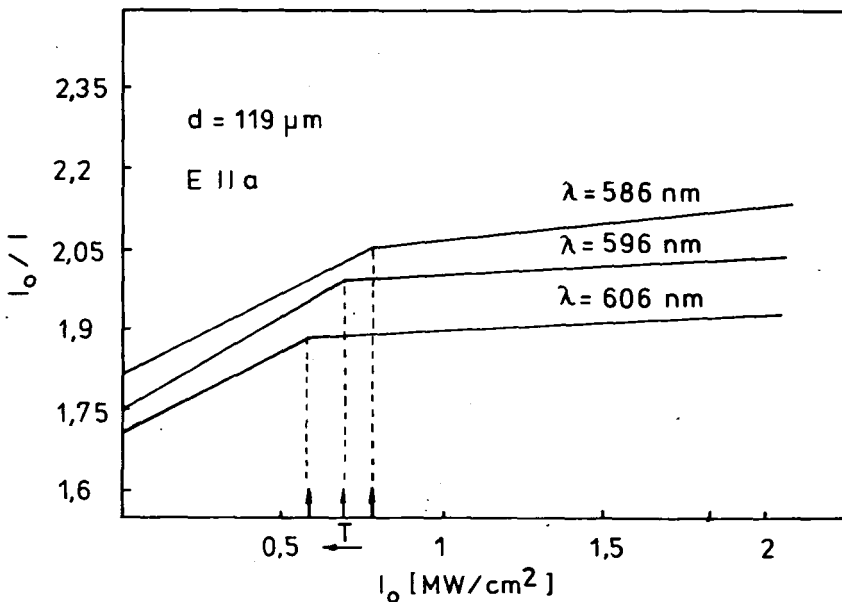
Megfigyelhető, hogy a minták vastagságának növelésével (2. a, b ábra) ugyanazon hullámhosszaknál a reciproktanszmisszió értéke a nagyobb intenzitások esetén már nem konstans, hanem lassú növekedést mutat; valamint az is, hogy a D értéke a minta vastagságának növekedésével, növekszik. Ugyanazon mintavastagság esetén viszont, a D értéke a hullámhossz növekedésével csökkenő tendenciát mutat (3. a, b ábra).

A reciproktanszmissziós görbék T töréspontjának helye a polarizációs állapottól nem függ, a hullámhossz növekedésével az alacsonyabb energiasűrűségek felé tolódik el. Ha a minták vastagságát növeljük, akkor a töréspont a nagyobb intenzitás tartományok felé tolódik el, mint az az előző ábrákon jól látható.

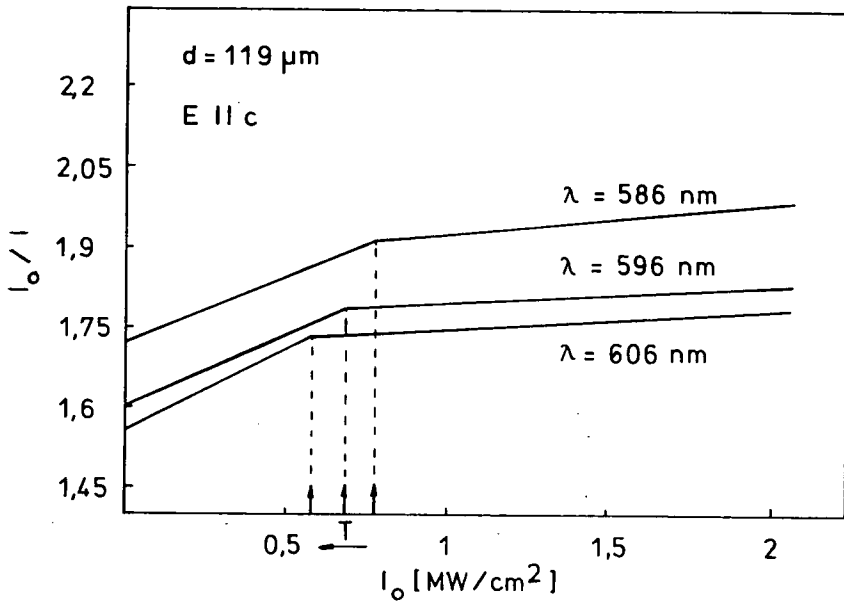
A (8) összefüggés alapján meghatároztuk a β kétfotonos abszorpciós koefficiens értékeit, melyek intenzitás-függéséről általában elmondható, hogy a fény-



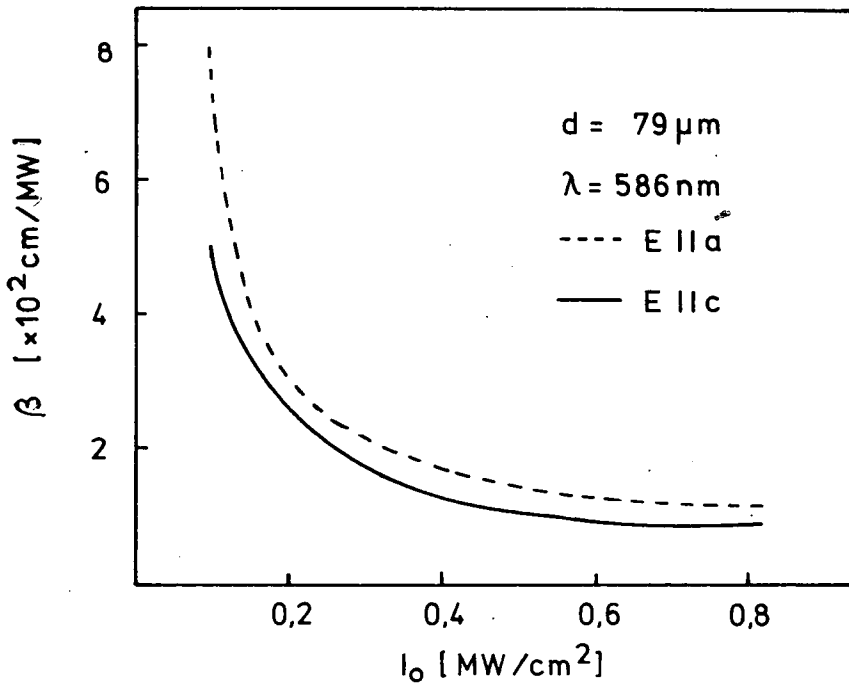
2b. ábra A reciprok-transzmisszió és a töréspont helyének változása a mintavastagság növelésekor $E \parallel c$ polarizáció esetén



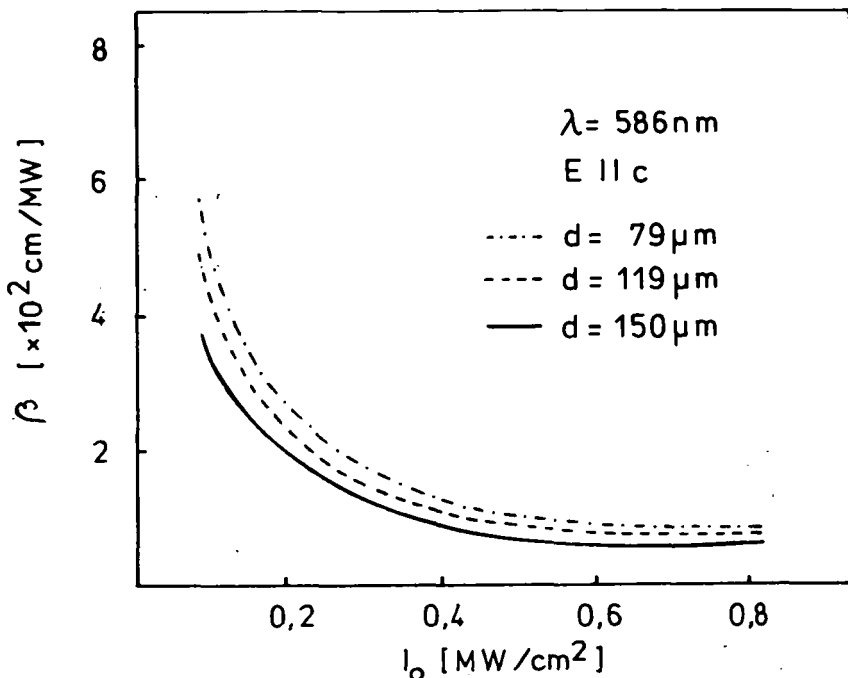
3a. ábra A reciprok-transzmisszió és a töréspont helyének változása a hullámhossz növelésekor $E \parallel a$ polarizáció esetén



3b. ábra A reciprok-transzmisszió és a töréspont helyének változása a hullámhossz növelésekor $E \parallel c$ polarizáció esetén



4. ábra A kétfotonos abszorpciós koefficiens változása a beeső fény intenzitásának növelésekor ($\lambda = 586 \text{ nm}$)



5. ábra A kétfotonos abszorpciós koefficiens változása a mintavastagság növelésekor $E \parallel c$ polarizáció esetén

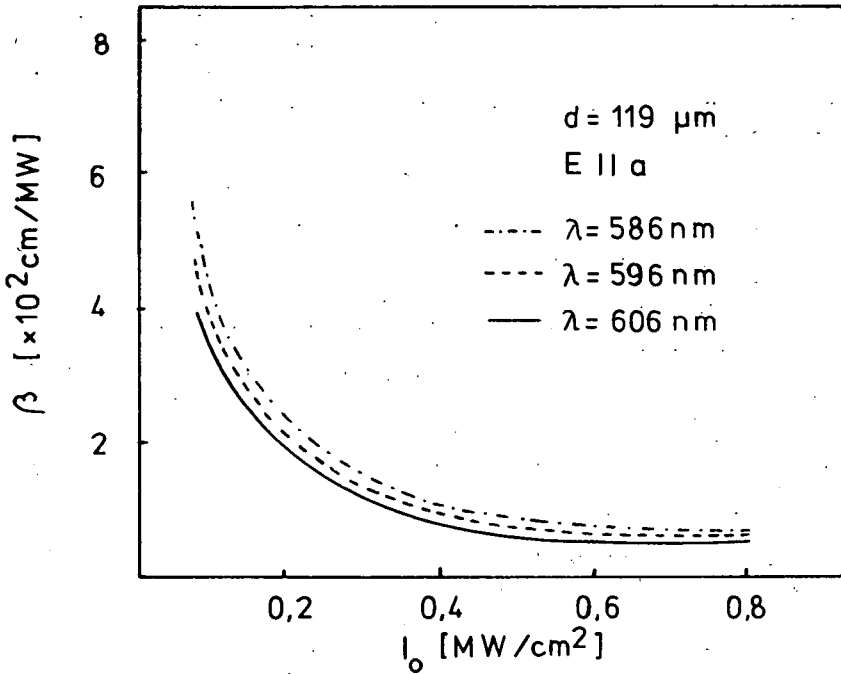
intenzitás növekedésével a kétfotonos abszorpciós koefficiens értéke csökken és ez $E \parallel c$ polarizációnál kisebb, mint $E \parallel a$ esetben (4. ábra). A β értéke mind a minta-vastagság (5. ábra), mind a hullámhossz növekedésével (6. ábra) csökkenő tendenciát mutat.

Az eredmények értékelése

A reciprok-transzmissziós görbék alapján megállapítható, hogy $E \parallel c$ esetben a transzmisszió nagyobb, mint $E \parallel a$ -nál. Ez jó egyezésben van a kis intenzitások esetében kapott transzmissziós viszonyokkal [4]. A különböző polarizációs állapotokhoz tartozó reciprok-transzmissziós görbék dőlésszöge közel állandó, bár a kisebb beeső intenzitásokhoz nagyobb meredekségű egyenesek tartoznak.

A fentiekből arra következtetünk, hogy a V_2O_5 egykristályra eső lézertény intenzitásának csökkenését (a kisebb intenzitások tartományában) egyértelműen a fellépő kétfotonos abszorpció határozza meg. Mivel a V_2O_5 egykristályok tiltott sáv szélessége ($E_g \sim 2,4 \text{ eV}$) — mindkét polarizáció esetében — nagyobb az alkalmazott lézertény kvantumenergiájánál ($2,12 \text{ eV} - 2,04 \text{ eV}$), ezért közbülső állapotként a tiltott sávban elhelyezkedő, feltehetően fém szennyeződésektől származó állapotok, vagy exciton állapotok jöhetnek számításba. Ezen állapotokhoz tartozó energianívók a vezetési sáv aljától $E = 0,3 \text{ eV}$ energiatávolságban helyezkednek el, melyek szoba-hőmérsékleten nem ionizáltak.

Az a tény, hogy a kétfotonos abszorpciós koefficiens értéke a mintára eső inten-



6. ábra A kétfotonos abszorpciós koeficiens változása a hullámhossz növelésekor $E \parallel a$ polarizáció esetén

zítás növekedésével csökken, elsősorban azzal magyarázható, hogy az abszorbeált fénysugárzás hatására a kristály (lokálisan) felmelegszik (az eddigi betöltött közbülső állapotok termikusan ionizálódnak), ezért a kétfotonos abszorpciós valószínűsége csökken. Ezt a csökkenést elősegítheti az a tény is, hogy a kétfotonos abszorpció során keletkezett szabad töltéshordozók felesleges energiájukat fononokon való szóródás útján a kristályrácsnak adják át, ami elősegítheti a további felmelegedést. Így érthető az is, hogy a vastagabb minta abszorpciója — így a felmelegedése is — nagyobb.

A reciprok-transzmissziós görbék kis meredekségű szakaszaihoz elsősorban azt a megjegyzést fűzhetjük, hogy a β csökkenésének ebben az esetben is termikus okai vannak. Ugyanis ilyen nagy beeső intenzitások esetében a minta felmelegedése már olyan nagyfokú lehet, hogy érezteti hatását a defókuszálódás [9, 10]. A defókuszálódás következtében a minta belsejében csökken az effektív teljesítménysűrűség (a felmelegedett rész szórlencseként viselkedik [11, 12]), s a minta transzmissziója az intenzitás növekedésével nem, vagy csak jelentéktelenül csökken.

A nagyobb kvantumenergiák esetében a transzmissziós görbék töréspontjának a nagyobb beeső intenzitások felé való eltolódásából arra következtethetünk, hogy a nagyobb kvantumenergiákhoz tartozó állapotok koncentrációja kisebb, mint a kisebb energiakvantumokhoz tartozó energia állapotoké. Ez az eredmény jó egyezésben van azzal a kísérleti ténnyel, hogy a 2 eV-hoz tartozó tiltott sáv tartományában a nívókonzentráció magas [13]. Annak ellenére, hogy a kísérletek során mértük a minták reflexióját is, s ennek értéke — mérési hibahatáron belül — a mintára eső intenzitás értékétől függetlenül bizonyult, elképzelhető, hogy a második szakaszra

jellemző közel konstans reciprok-transzmisszióért, a fent vázolt termikus okokon kívül, az általunk nem detektálható reflexióképesség megváltozása is felelős.

A fent leírt vizsgálatok részét képezik azoknak a szilárdtest-lézerfény kölcsönhatásával foglalkozó összetett vizsgálatoknak, amelyek a JATE Kísérleti Fizikai Tanszékén folynak.

IRODALOM

- [1] VAVILOV, SZ. I.: Mikrosztruktura szveta Izd. AN SZSZSZR Moszkva, 1950.
- [2] NÁNAI, L.: Egyetemi doktori értekezés Szeged, 1975.
- [3] BYSTRÖM, A., WILHELMI, K. A., BROTZEN, O.: Acta Chem. Scand. 4, 1119, 1950.
- [4] HEVESI, I.: Kandidátusi értekezés Szeged, 1967.
- [5] KOVARSKIJ, V. A.: FTT (USZSZR) 13, 4 1217—1219 1971.
- [6] BRODIN, M. SZ. GOER, D. B. DEMIDENKO, Z. A., DIMITRIENKO, K. A., REZNICSENKO, V. A., SEVEL, SZ. G.: KV. El. 10, 56 1976. Kiev.
- [7] LISZICA, M. P., MOZOL, P. E., TÜCSINA, I. I., FEKESGAZI, I. V., FEDOTOVSKIJ, A. V.: KV. El. (USZSZR) 8, 35 1974.
- [8] MOKEROV, V. G., RAKOV, A. V.: FIT 10, 1127 1968.
- [9] BORS, A. A., BRODIN, N. SZ., VOLKOV, V. I., KRUPA, N. N.: KV. El. 12, 23 (USZSZR) 1977.
- [10] LISZICA, M. P., KOVAL, V. SZ. MOZOL, P. E., POTÜKEVIC, I. V., FEKESGAZI, I. V.: KV. El. (USZSZR) 10, 81 1976.
- [11] BORS, A. A., BRODIN, M. SZ., VOLKOV, V. I., KRUPA, N. N.: Ufzs. 23, 12 (USZSZR) Kiev 1978.
- [12] BORS, A. A., BRODIN, M. SZ.: KV. El. (USZSZR) 11, 3 1976.
- [13] BORS, A. A., BRODIN, M. SZ.: ZSETF (USZSZR) 58, 26 1970.

ÜBER DIE NICHTLINEARE ABSORPTION DES VANADIUM-PENTOXYD-EINKRISTALLS

KATALIN DOBOS

Die Messung der Transmission des Vanadium-pentoxyd-Einkristalls mit Hilfe einer hochenergetischen Laserlichtquelle liess eine nichtlineare optische Absorptionscharakteristik feststellen.

Die Reziprokttransmissionswerte wurden in Abhängigkeit von der auf die Probe fallenden Lichtintensität bei verschiedenen Wellenlängen, Probendicken und Polarisationsverhältnissen dargestellt. Im untersuchten Intensitätsbereich wurden mittels Berechnung die Werte der Zweiphotonen-Absorptionskoeffizienten bestimmt.

Aufgrund der experimentellen Ergebnisse konnte festgestellt werden, dass im untersuchten Energiedichtebereich ($10^5 - 2 \cdot 10^6$ W/cm²) und bei den angewandten Wellenlängen (586–606 nm) die Verringerung der Transmission des V₂O₅-Einkristalls in erster Linie der Doppelphotonenabsorption zuzuschreiben ist. Die Intensitätsabhängigkeit des β -Zweiphotonen-Absorptionskoeffizienten ist tmit derinfolge der Absorption auftretenden lokalen Erwärmung in Zusammenhang zu bringen.

НЕЛИНЕАРНАЯ АБСОРПЦИЯ ОДНОКРИСТАЛЬНОЙ ПЯТИОКИСИ ВАНАДИЯ

КАТАЛИН ДОБОШ

Измеряя трансмиссию однокристалльной пятиокиси ванадия, при помощи мощного лазера, нами были установлены нелинейные оптические абсорпционные свойства.

Реципроктрансмиссионные величины изображались нами в функции интенсивности света, при различной длине волн, толщины пробы и поляризационных условий. При помощи вычисления в исследуемом диапазоне света нами были определены величины двухфотонных абсорпционных коэффициентов.

На основе результатов эксперимента нами было установлено, что в диапазоне исследуемой плотности энергии ($10^5 - 2 \cdot 10^6$ W/cm²) и при волнах определенной длины (586–606 нм) уменьшение трансмиссии V₂O₅ в первую очередь происходит из-за двухфотонной абсорпции. Интенсивность коэффициента В двухфотонной абсорпции связано с местным нагреванием сопровождающим абсорпцию.