

掺 Ag 纳米颗粒的 BaTiO₃ 复合薄膜的非线性光学特性*

杨 光^{1,2)†} 陈正豪²⁾

1) 武汉光电国家实验室激光科学与技术研究部, 华中科技大学, 武汉 430074)

2) 中国科学院物理研究所光物理开放实验室, 北京 100080)

(2006 年 1 月 17 日收到, 2006 年 6 月 30 日收到修改稿)

通过准分子激光(XeCl, 308 nm, 20 ns)在 MgO(100)单晶衬底上制备了不同掺杂浓度的 Ag:BaTiO₃ 纳米复合薄膜,通过 X 射线衍射和 X 射线光电子能谱对薄膜的结构和组分进行了表征.在 430 nm 和 470 nm 附近观测到了不同浓度 Ag 纳米颗粒引起的等离子体吸收峰,通过 z 扫描技术对复合薄膜的三阶非线性光学特性进行了测量,并对其光学非线性的增强机制进行了讨论.

关键词:金属纳米复合薄膜,激光沉积,非线性光学

PACC:81151,4265

1. 引 言

具有很高三阶非线性极化率 $\chi^{(3)}$ 且有很快响应速度的光学薄膜是新一代的非线性光学材料,可广泛应用于光控型位相、折射率调制器、实时全息、光相关器以及相位共轭、光相位恢复等新型光控领域^[1-3]. Ricard 等人在理论上提出了掺金属微粒的玻璃可以大大提高材料的三阶非线性光学效应,并在实验上给予了验证^[4]. 但是当时制备出的金属浓度比较低(体积百分数为 $10^{-6}\%$ — $10^{-5}\%$),得到的 $\chi^{(3)}$ 值较小(10^{-12} — 10^{-11} esu),并且响应速度较慢. 1996 年 Tanahashi 等采用溅射技术制备了 Au/SiO₂ 多层膜,当 Au 的浓度在 3%,表面等离子体共振频率为 530nm 时得到 $\chi^{(3)}$ 为 2×10^{-7} esu^[5]. Liao 等人采用磁控溅射先后制备了 Au:SiO₂, Au:TiO₂, Au:Al₂O₃ 复合薄膜,在 Au:SiO₂ 中当金属 Au 浓度在临界浓度(percolation threshold)附近获得的 $\chi^{(3)}$ 可达 2.5×10^{-6} esu,而当 Au 浓度超过临界浓度以后,其光吸收特性发生了很大的改变,并且三阶非线性效应开始减弱^[6-8]. 最近 Ballesteros 等人首次采用脉冲激光沉积(PLD)技术制备了 Cu:Al₂O₃ 薄膜,其 $\chi^{(3)}$ 值约

为 2×10^{-8} esu^[9,10]. 研究表明金属纳米复合薄膜的光学非线性不仅与所选的金属材料有关,同时也与所选择的基质材料有很大关系,在以往的研究中基质材料主要集中于一些无机介质材料和高分子有机材料,而对于铁电体这类具有优良的压电、光电等性质的材料较少涉及. 本实验将以掺有 Ag 纳米颗粒的 BaTiO₃ 复合薄膜作为研究对象,通过 PLD 方法制备不同 Ag 浓度的复合薄膜,采用 z 扫描技术对其三阶非线性光学特性进行研究,并讨论其光学非线性增强机制.

2. 实 验

采用传统的陶瓷烧结工艺在 1340℃ 制备了 BaTiO₃ 靶材,通过电感耦合等离子体原子发射光谱(ICP-AES)技术对其组分进行了测量,结果表明靶材中 Ba/Ti 的原子比接近于 1:1. 图 1 给出了 BaTiO₃ 陶瓷的 X 射线衍射(XRD)结果. 可以看到,除了 BaTiO₃ 的衍射峰外,没有其他杂峰,表明靶材的成功烧结. Ag 靶选用纯度 99.99% 的金属 Ag 片. 在薄膜生长过程中,Ag/BaTiO₃ 靶材以均匀的速度旋转,从而使得 Ag 和 BaTiO₃ 同时沉积在衬底上. 基片选用双抛 MgO

* 国家自然科学基金(批准号 5001161952)资助的课题.

† E-mail: gyang@hust.edu.cn

(100)单晶(5 mm × 10 mm × 0.5 mm)靶材与基片的距离为40 mm.工作气体为N₂,气压为10Pa(背底真空5 × 10⁻⁴ Pa).激光光源为Lambda Physik公司的准分子激光器(XeCl, 308 nm, 20 ns),靶材表面的激光能量密度约2 J/cm²,重复频率4 Hz.利用单晶硅加热器给基片加热,温度为750 ± 0.5 °C,沉积时间为20 min,薄膜厚度约为150 nm.

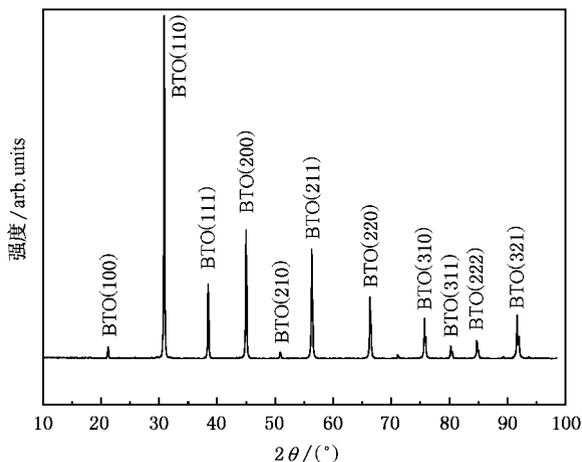


图1 BaTiO₃靶材(1340 °C, 2 h)的XRD结果

Ag:BaTiO₃复合薄膜的结构特性利用XRD表征.样品表面成分以及Ag的价态和原子百分比浓度通过X射线光电子能谱仪(XPS)测量;Ag:BaTiO₃的光吸收特性(300—800 nm)利用ARC SpectraPro 500I型自动扫描单色仪测定;用z扫描技术测量薄膜的三阶非线性光学性质,通过这种技术可以同时得到样品非线性折射率n₂和非线性吸收系数β的大小和符号.

3. 结果和讨论

3.1. 结构特性

图2是在750 °C下沉积的Ag:BaTiO₃薄膜的XRD θ—2θ扫描图,其中曲线1、2表示Ag片在靶材中的面积比分别为1/8、2/8.可以看到,在该温度下生长的Ag:BaTiO₃薄膜具有较好的结晶性,在38.27°处衍射峰的d值为0.23575 nm,对应着Ag的(111)衍射峰.随着Ag浓度的增加,Ag(111)衍射峰越来越强,在高浓度时开始出现Ag(220)衍射峰(图2曲线2);同时随着Ag浓度的增加,BaTiO₃(110), (211)衍射峰则随之减弱,表明了复合薄膜中Ag的

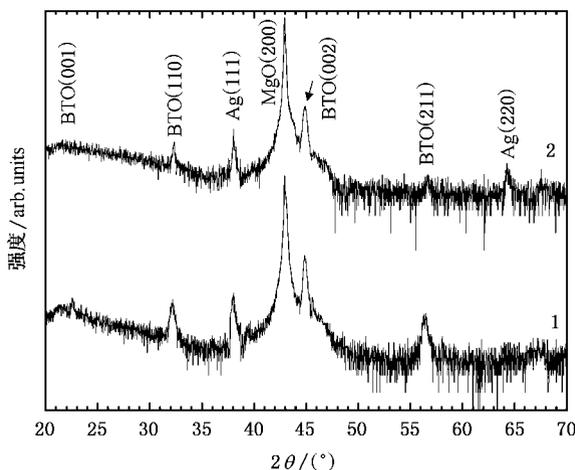


图2 Ag:BaTiO₃薄膜的XRD图 1—1/8Ag 2—2/8Ag

结晶性随着Ag浓度的增加而提高,而BaTiO₃的结晶性则随之降低.

3.2. 成分分析

复合薄膜的成分和电子状态通过XPS测量,图3是Ag:BaTiO₃复合薄膜的XPS全谱图.测量中XPS的辐射源为Mg Kα($h\nu = 1253.6$ eV),并采用C 1s(284.6 eV)校准,X射线发出的光电子强度由相应元素的XPS特征峰表征.为进一步得到Ba 3d, Ti 2p和Ag 3d的X光电子芯能级谱,对Ba 3d, Ti 2p和Ag 3d电子的所在结合能范围重新进行精确扫描,与标准的XPS谱比较,结果表明复合薄膜中Ba为+2价, Ti为+4价.图3中插图是Ag 3d的测量结果, Ag 3d_{5/2}和Ag 3d_{3/2}的结合能分别位于368.23 eV和374.20 eV,表明了Ag在薄膜中呈金属态.为了讨论气氛对复合薄膜中Ag价态的影响,我们在同样条件下在1.5 × 10⁻³ Pa的真空气氛下也制备了Ag:BaTiO₃薄膜.XPS测量结果表明薄膜表面Ag有部分被氧化,利用Ar离子(2 kV)对薄膜剥离5 min,然后进行测量,结果表明Ag呈金属态.因此对于Ag:BaTiO₃纳米复合薄膜的制备,在惰气或氮气的气氛中生长是比较合适的.进一步通过对XPS数据的处理,得到样品a和b复合薄膜中Ag的原子百分比浓度(Ag/(Ag + Ba + Ti), at%)分别为6.7 at%和14.3 at%.

3.3. 光吸收特性

样品a和b的吸收光谱如图4所示.为了比较,在相同条件下制备了没有掺Ag的纯BaTiO₃薄膜

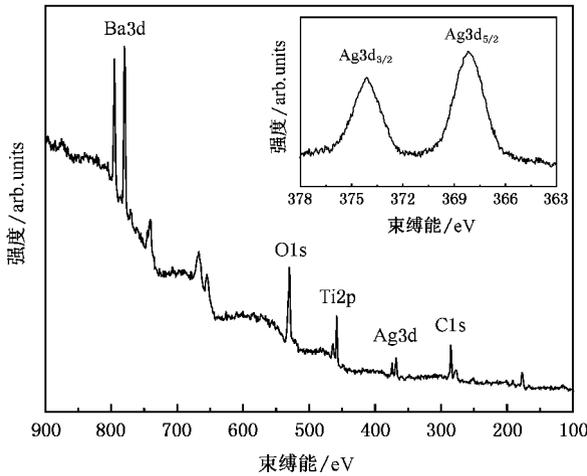


图3 Ag:BaTiO₃ 薄膜的 XPS 结果 插图是 Ag3d 的测量结果

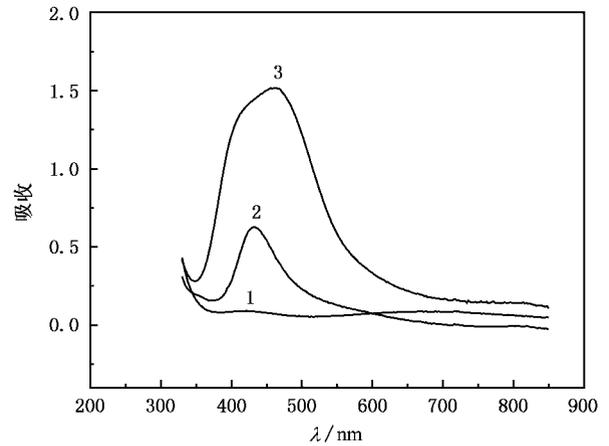


图4 Ag:BaTiO₃ 薄膜的光吸收谱 曲线 1 为没有掺 Ag 的 BaTiO₃ 薄膜,曲线 2 和 3 表示样品中 Ag 的原子百分比浓度分别为 6.7 at% 和 14.3 at%

(如图曲线 1),可以看到,BaTiO₃ 薄膜在 300—800 nm 范围内的吸收曲线几乎为一直线,具有很高的透过率.当 Ag 掺入 BaTiO₃ 薄膜中,导致了 Ag 颗粒引起的吸收峰的出现.样品 a 的表面等离子体振荡峰在 420 nm 附近,样品 b 的吸收峰在 470 nm 附近,表明了随着 Ag 浓度的增加,吸收峰向着长波方向移动,同时吸收峰的峰宽也随之变大.

金属纳米复合薄膜的光吸收特性可以通过电子偶极子近似(electric dipole approximation)和 Mie 共振理论进行解释^[11],

$$\alpha = \frac{18\pi\epsilon_d^{3/2}}{\lambda} \frac{p\epsilon_m''}{(\epsilon_m' + 2\epsilon_d)^2 + \epsilon_m''^2}, \quad (1)$$

这里 p 为复合薄膜中金属颗粒的体积比浓度, λ 为波长, ϵ_m' 和 ϵ_m'' 分别为金属颗粒介电常数 ϵ_m 的实部和虚部,它们是频率 ω 的函数; ϵ_d 是基质材料的介电常数,在可见光范围可视为常数.从公式可知当满足 $\epsilon_m' + 2\epsilon_d = 0$ 的条件时,即出现表面等离子体共振现象,从而导致吸收峰的出现.吸收峰的半高宽则主要决定于 ϵ_m'' ^[12].

3.4. 三阶非线性光学特性

利用 z 扫描技术对薄膜的三阶非线性光学性质进行了测量^[13,14].激光光源选用 Nd:YAG 激光器的二倍频光(532 nm),脉宽 15 ns.通过小孔衍射,获得了得到良好的 TEM₀₀ 高斯光束输出模式,两个高速热释电探头(RjP637)接于双通道能量功率计(Rm-6600 Laser Probe, Inc.),可同时给出两通道能量的大小以及它们的比值.为了减小测量中的误差,取

50 个脉冲的平均值作为测量结果.

判断高斯光束质量好坏的一个重要参数是其束腰半径 ω_0 的大小:

$$\omega(z)^2 = \omega_0^2 (1 + z^2/z_R^2), \quad (2)$$

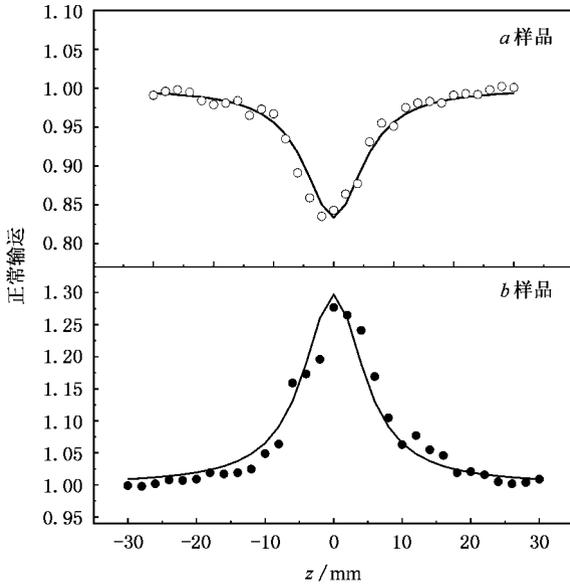
这里 $z_R = \pi\omega_0^2/\lambda$ 为激光光束的散射长度(Rayleigh length), $\omega(z)$ 为 z 处的光束半径.根据上式,得到激光光束的束腰半径为 30 μm ,进一步得到 z_R 的大小为 5.3 mm,远远大于 MgO 基片和薄膜厚度之和,满足 z 扫描测量的要求^[13].

图 5 为样品 a(6.7 at%) 和样品 b(14.3 at%) 开孔时的 z 扫描结果.在图 5 中看到,样品 a 在开孔时测得的 z 扫描曲线为波谷的形状,说明薄膜中存在非线性吸收现象,并表现出正的非线性吸收系数,而在样品 b 中,开孔时 z 扫描结果为波峰形状,表现为非线性饱和吸收现象.为了验证其为三阶非线性光学效应,我们在不同能量下测量了薄膜开孔时的透过率 T , ΔT 与光强 I_0 呈近似线性关系,表明了测量结果为三阶非线性光学效应.

薄膜的非线性吸收系数 β 的大小可以通过下面公式计算得出^[15]:

$$\begin{aligned} \pi(z, S=1) &= \sum_{m=0}^{\infty} \frac{[-q_0(z, 0)]^m}{(m+1)^{3/2}} \\ &= 1 - \frac{\beta I_0 L_{\text{eff}}}{2\sqrt{\chi} (1 + z^2/z_R^2)}, \end{aligned} \quad (3)$$

式中 $S=1$ 表示开孔的情况, $I_0 = E_0/\pi\omega_0^2\tau$ 为焦点处的激光光强, E_0 为焦点处的激光能量, τ 为激光的脉宽, $L_{\text{eff}} = (1 - e^{-\alpha L})/\alpha$ 为薄膜的有效厚度, L 为

图5 样品 *a* 和 *b* 开孔时 ($S=1$) 的 z 扫描结果 实线为拟合曲线

薄膜厚度 d , α 为薄膜的线性吸收系数. 通过换算关系, 可以得到三阶非线性极化率的虚部 $\text{Im}\chi^{(3)}$ (esu) 的大小^[15],

$$\text{Im}\chi^{(3)}(\text{esu}) = c^2 n_0^2 (\alpha \text{ m} \cdot \text{W}^{-1}) / 240\pi^2 \omega, \quad (4)$$

这里 $\omega = 2\pi c/\lambda$ 为激光的角频率.

由(3)和(4)式计算出样品 *a* 和样品 *b* 的 $\text{Im}\chi^{(3)}$ 分别为 2.352×10^{-7} esu 和 $\text{Im}\chi^{(3)} = -4.151 \times 10^{-7}$ esu.

图6为样品 *a* 和 *b* 在小孔情况下测得的 z 扫描结果, 图中的数据已经扣除了开孔的影响. 可以看到样品 *a* 的 z 扫描曲线表现出先波谷后波峰的形状, 说明存在自聚焦效应, 薄膜具有正的非线性折射率 n_2 . 而在样品 *b* 中, 小孔的 z 扫描结果为先波峰后波谷的形状, 具有自散焦效应, 薄膜表现为负的非线性折射率. 从图中可以得出波峰与波谷的距离 $\Delta z_{\text{F-V}} \approx 1.7z_0$, 表明了测量结果为三阶非线性光学效应^[13].

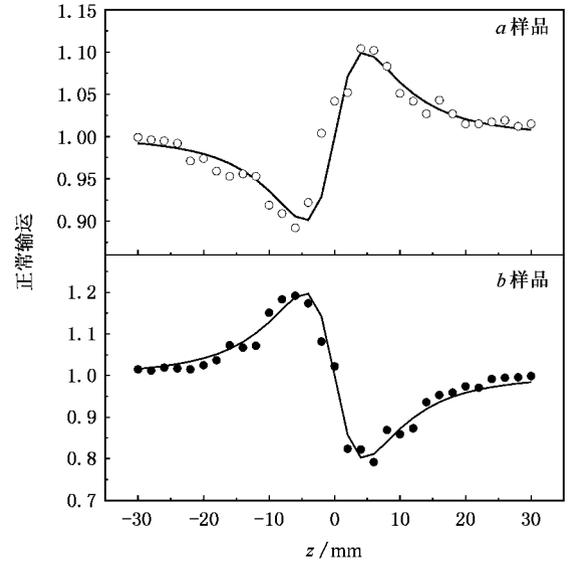
薄膜的非线性折射率 n_2 的大小可以通过下面公式得出:

$$\begin{aligned} \Delta T_{\text{F-V}} &= 0.40(1-S)^{2.25} |\Delta\Phi_0| \\ &= 0.40(1-S)^{2.25} k n_2 I_0 L_{\text{eff}}, \end{aligned} \quad (5)$$

这里 $n_2(\text{m}^2 \cdot \text{W}^{-1})$ 为非线性折射率, $S=0.1$ 为小孔的线性透过率, $\Delta T_{\text{F-V}}$ 为透过率 T 波峰和波谷的差值, $k=2\pi/\lambda$ 为波矢.

通过换算关系, 可进一步得到^[15,16],

$$n_2(\text{esu}) = n_0 c n_2(\text{m}^2 \cdot \text{W}^{-1}) / 40\pi$$

图6 样品 *a* 和 *b* 小孔时 ($S=0.1$) 的 z 扫描结果 实线为拟合曲线

$$\begin{aligned} &= 2.941 \times 10^6 \lambda \tau n_0 \omega^2 \Delta T_{\text{F-V}} / \\ &(1-S)^{2.25} L_{\text{eff}} E, \end{aligned} \quad (6)$$

$$\begin{aligned} \text{Re}\chi^{(3)}(\text{esu}) &= c n_0^2 n_2(\text{m}^2 \cdot \text{W}^{-1}) / 120\pi^2 \\ &= n_0 n_2(\text{esu}) / 3\pi \end{aligned} \quad (7)$$

由(5)–(7)式得出样品 *a* 和样品 *b* 三阶非线性极化率的实部 $\text{Re}\chi^{(3)}$ 分别为 4.544×10^{-6} esu 和 -8.567×10^{-6} esu. 可以看到样品 *b* 的 $\chi^{(3)}$ 的值明显比样品 *a* 的要大一些, 以上结果说明了 Ag 浓度不仅会对 Ag:BaTiO₃ 薄膜三阶非线性极化率的大小产生影响, 而且还会影响它们的符号.

对于更高 Ag 浓度的 Ag:BaTiO₃ 复合薄膜, z 扫描结果与样品 *b* 的结果类似: 开孔时表现为非线性饱和, 小孔时表现为负的非线性折射率. 但由于浓度较高, 薄膜颜色很深, 透过薄膜的光信号相对于参照光太弱, 无法精确得到比值与样品位置 z 的曲线关系.

这里以光学克尔效应为例来讨论金属颗粒复合薄膜光学非线性的增强机制. 假设有一光场为 E_0 , 频率为 ω 的强光作用于薄膜, 由于金属颗粒产生电子极化, 从而在金属内部和外部产生局域电场, 它表示为^[17,18]

$$E_1 = \frac{3\epsilon_d}{\epsilon'_m(\omega) + 2\epsilon_d + i\epsilon''_m(\omega)} E_0 = f_1 E_0, \quad (8)$$

这里 f_1 定义为局域场因子, 金属介质复合薄膜的介电常数可以表示为

$$\epsilon = \epsilon_d + 3p\epsilon_d \frac{\epsilon_m - \epsilon_d}{\epsilon_m + 2\epsilon_d}, \quad (9)$$

这里对 ϵ_m 取微分,可得

$$\delta\epsilon = p[3\epsilon_d(\epsilon_m + 2\epsilon_d)]^{-1} \delta\epsilon_m = pf_1^2 \delta\epsilon_m. \quad (10)$$

对于复合薄膜的 $\delta\epsilon$ 和 $\chi^{(3)}$ 存在关系: $\delta\epsilon = 12\pi\chi^{(3)}|E_0|^2$; 同样的, 对于 $\delta\epsilon_m$ 和 $\chi_m^{(3)}$ 存在关系: $\delta\epsilon_m = 12\pi\chi_m^{(3)}|E_1|^2$, 于是得到复合薄膜的三阶极化率

$$\chi^{(3)} = pf_1^2 |f_1|^2 \chi_m^{(3)}, \quad (11)$$

上式表明复合薄膜中三阶非线性光学效应与局域场因子 f_1 的四次方成正比, 因此 f_1 的变化将对 $\chi^{(3)}$ 的大小产生很大的影响. (8) 式表明了, 在 $\epsilon'_m + 2\epsilon_d = \alpha$ (表面等离子体振荡) 的情况下, f_1 达到极值. 因此在表面等离子体振荡频率附近, 材料的三阶非线性光学效应将得到大大增强, 当 ω 频率越接近振荡频率, 这种增强效应就越明显. 同时, 从 f_1 的关系式可以得出, f_1 的大小除了与激光频率有关外, 同时还与基质的介电常数 ϵ_d 有关, ϵ_d 大的基质材料(如 BaTiO₃ 材料)会使得 f_1 相对较大, 从而导致 $\chi^{(3)}$ 得到更大提高. Liao 等人对 Au:SiO₂ 和 Au:TiO₂ 的实验研究中验证了这一点^[6,7].

(11) 式还说明 $\chi^{(3)}$ 还与金属浓度 p 有着很大关系, 它的大小随着 p 的增大而线性增大. 需要说明的是, (11) 式是在假设 $p \ll 1$ 的时候得到的, 研究表明当金属浓度 p 较大时, $\chi^{(3)}$ 与 p 的关系将不再是线性关系, 而可能是呈更高阶次(如 p^3) 的关系^[6]. 在我们的实验中, Ag:BaTiO₃ 薄膜中的 Ag 团簇的浓度很高, 对于样品 *a*, Ag 浓度达到了 6.7 at%, 而样品 *b* 更是达到了 14.3 at%, 由于高浓度的 Ag 团簇使得薄膜的光学非线性得到了大大增强.

在图 5 和图 6 中还可以看到, 样品 *b* 和样品 *a* 的 z 扫描结果完全相反, 即较高浓度的与较低浓度的 Ag:BaTiO₃ 薄膜的非线性性质有着很大的区别. 对于非线性吸收现象, 在样品 *a* 中表现出正的非线性吸收系数, 样品 *b* 中表现出负的非线性吸收系数, 这可能是由于在样品 *b* 中由于带间跃迁的贡献占据主导地位, 而带间跃迁的贡献主要是三阶极化率的虚部, 而且为负值, 即主要表现为非线性

饱和^[20].

对于非线性折射率的测量, 如图 6 样品 *a* 表现出正的非线性折射率, 即自聚焦效应, 样品 *b* 则表现出负的非线性折射率, 即自散焦效应. 我们认为, 这与两个样品中的 Ag 纳米团簇的浓度有着很大的关系, 样品 *b* 的 Ag 浓度(14.3 at%) 比样品 *a*(6.7 at%) 的大两倍多, 从而使得两者的光吸收特性相差很大, 正如图 4 所示, 样品 *b* 在 532 nm 处的吸收系数 ($\alpha = 1.15 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$) 远大于样品 *a* 的吸收系数 ($\alpha = 4.32 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$), 而且样品 *b* 的表面等离子体峰位(470 nm) 相比于样品 *a* 的吸收峰位(430 nm) 更接近 z 扫描测量的激光波长 532 nm, 这样使得样品 *b* 更容易吸收激光能量, 从而导致在样品 *b* 中产生的热效应大于样品 *a* 的热效应. 由于较强的热效应有可能在样品 *b* 中产生热自散焦效应^[11], 从而产生由自聚焦效应转变为自散焦效应的现象, 使得 Ag:BaTiO₃ 薄膜从正的非线性折射率转变为负的非线性折射率.

与其他一些具有代表性的非线性光学材料相比, 如: 金属-介质复合薄膜、金属-有机物复合薄膜、高分子材料、C₆₀ 等, Ag:BaTiO₃ 薄膜具有很大的三阶非线性光学效应, 在 532 nm 测量得到的三阶非线性极化率达到了 $8.567 \times 10^{-6} \text{ esu}$, 比通常的纳米介质复合薄膜材料的 $\chi^{(3)}$ 要高上 1 至 2 个数量级, 表明了掺有金属纳米颗粒的铁电体复合薄膜具有很大的非线性光学效应, 是一种优良的非线性光学材料, 有望在光计算、光开关等非线性光学领域得到应用.

4. 结 论

通过 PLD 技术成功制备了掺有不同 Ag 颗粒浓度的 BaTiO₃ 纳米复合薄膜, XRD 结果表明薄膜具有较好的结晶性. 在 300—800 nm 范围内研究了薄膜的光吸收特性, 观测到了 Ag 颗粒的等离子体振荡峰, z 扫描测量结果表明 Ag:BaTiO₃ 薄膜的非线性光学性质得到很大提高, 并发现薄膜的非线性折射率和非线性吸收系数的大小和符号随着 Ag 浓度的增大而发生改变, 同时对 Ag:BaTiO₃ 复合薄膜的非线性光学特性的增强机制进行了讨论.

- [1] Shen Y R 1984 *The Principles of Nonlinear Optics* (Berkeley : University of California)
- [2] Zyss I 1994 *Molecular Nonlinear Optics* (New York : Academic Press)
- [3] Wang W T , Yang G , Chen Z H , Zhou Y L , Lu H B. 2002 *Chin. Phys.* **11** 1324
- [4] Ricard D , Roussignol P , Flytzanis C 1985 *Opt. Lett.* **10** 511
- [5] Tanahashi I , Manabe Y , Tohda T 1996 *J. Appl. Phys.* **79** 1244
- [6] Liao H B , Xiao R F , Fu J S , Yu P , Wong G K L , Sheng P 1997 *Appl. Phys. Lett.* **70** 1
- [7] Liao H B , Xiao R F , Wang H , Wong K S , Wong G K L 1998 *Appl. Phys. Lett.* **72** 1817
- [8] Liao H B , Xiao R F , Fu J S , Wang H , Wong K S , Wong G K L 1998 *Opt. Lett.* **23** 388
- [9] Ballesteros J M , Sema R , Solis J , Afonso C N 1997 *Appl. Phys. Lett.* **71** 2445
- [10] Serna R , Ballesteros J M , Solis J , Afonso C N , Osborne D H , Haglund R F , Petford-Long A K 1998 *Thin Solid Films* **318** 96
- [11] Mie G 1908 *Ann. Phys.* **25** 377
- [12] Keibig V , Vollmer M 1995 *Optical Properties of Metal Clusters* (Berlin Springer)
- [13] Sheik-Bahae M , Said A A , Wei T H , Hagan D J , Van Stryland E W 1990 *IEEE J. Quantum Electron.* **26** 760
- [14] Yang G , Wang H H , Tan G T , Jiang A Q , Zhou Y L , Chen Z H 2002 *Appl. Opt.* **41** 1729
- [15] Chapple P B , Staromlynska J , Hermann J A , McKay T J , McDuff R G 1997 *J. Nonlinear Opt. Phys. Mater.* **6** 251
- [16] Shi W S , Chen Z H , Liu N N , Zhou Y L , Pan S H 1999 *J. Crystal Growth* **197** 205
- [17] Hache F , Ricard D , Flytzanis C , Kreibig U 1988 *Appl. Phys. A* **47** 347
- [18] Fukumi K , Chayahara A , Kadono K , Sakaguchi T , Horino Y , Miya M , Fujii K , Hayakawa J , Satou M 1994 *J. Appl. Phys.* **75** 3075
- [19] Hache F , Ricard D , Flytzanis C 1986 *J. Opt. Soc. Am. B* **3** 1647
- [20] Yang L , Osborne D H , Haglund R F , Magruder R H , White C W , Zuhr R A , Hosono H 1996 *Appl. Phys. A* **62** 403

Large optical nonlinearities in Ag-doped BaTiO₃ nanocomposite films^{*}

Yang Guang^{1,2)†} Chen Zheng-Hao²⁾

¹ *Wuhan National Laboratory for Optoelectronics , Huazhong University of Science and Technology , Wuhan 430074 , China)*

² *Laboratory of Optical Physics , Institute of Physics , Chinese Academy of Sciences , Beijing 100080 , China)*

(Received 17 January 2006 ; revised manuscript received 30 June 2006)

Abstract

Ag-doped BaTiO₃ nanocomposite films have been synthesized on MgO substrates by excimer laser deposition. X-ray diffraction was used to characterize the structure and crystallinity of the films. The Ag chemical band and concentrations in the composite films were determined by X-ray photoelectron spectroscopy. The optical absorption were measured in the range of 300 to 800 nm and the absorption peaks due to the surface plasmon resonance of Ag particles were observed. *z*-scan results showed that the films exhibited large optical nonlinearities and the signs of the nonlinear absorption β , and nonlinear refractive index n_2 , changed with the increase of Ag concentration. The mechanism of the enhanced optical nonlinearities in Ag : BaTiO₃ films is discussed.

Keywords : metal nanocomposite films , laser deposition , nonlinear optics

PACC : 81151 , 4265

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No.5001161952).

[†] E-mail : gyang@hust.edu.cn