

# 硫系非晶半导体薄膜中的超快光 Kerr 效应\*

刘启明<sup>1)†</sup> 何 漩<sup>1)</sup> 干福熹<sup>2)</sup> 钱士雄<sup>3)</sup>

1) 武汉理工大学硅酸盐材料工程教育部重点实验室, 武汉 430070)

2) 中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

3) 复旦大学物理系, 上海 200433)

(2008 年 7 月 4 日收到, 2008 年 8 月 17 日收到修改稿)

利用飞秒激光超外差光 Kerr(OHD-OKE)技术研究了  $As_2S_3$ ,  $As_2Se_3$ ,  $GeS_2$ ,  $GeSe_2$ ,  $Ge_{20}As_{25}S_{55}$ ,  $Ge_{20}As_{25}Se_{55}$ ,  $Ge_{10}As_{40}S_{20}Se_{30}$  七个体系硫系非晶态半导体薄膜的三阶非线性性能. 结果表明硫系非晶态半导体薄膜具有较大的三阶非线性极化率  $\chi^{(3)}$  值(达  $10^{-12}$  esu), 非线性响应时间很快(小于 200 fs), 并根据测量结果计算出了薄膜的非线性折射率和吸收. 硫系非晶半导体薄膜中较大的非线性极化率值的出现是由于核外电子轨道的非线性扭曲所致.

关键词: 全光开关, 硫系非晶半导体薄膜, 飞秒激光超外差光 Kerr(OHD-OKE), 三阶非线性

PACC: 4270C, 7360L, 4220H

## 1. 引 言

随着光通信的发展, 需要越来越多的非线性光学器件来满足光通信的高速发展, 因此探讨各种新型非线性光学材料的研究已经引起各国学者极大的兴趣<sup>[1-5]</sup>. 在众多材料中, 如玻璃材料、半导体材料、有机材料等, 玻璃由于制备和设计符合实际应用需要的成分等优点, 尤其是具有较大的非线性折射率, 将是一种很有前途的非线性光学材料, 将被广泛用于全光开关等器件中. 因此, 近些年来, 众多学者对玻璃的非线性进行了研究, 并发现了许多有实际应用价值的非线性光学材料. 在这众多的非线性光学玻璃材料中, 人们发现硫系非晶半导体材料具有较大的三阶非线性光学效应. 前面已经说过, 测量材料的三阶非线性的技术很多, 如三次谐波发生(third-harmonic generation, THG)<sup>[6]</sup>、简并的四波混频(degenerate four-wave-mixing, DFWM)<sup>[7]</sup>、Z-扫描(Z-scan)<sup>[8]</sup>、电场诱导的二次谐波发生(electronic field induced second-harmonic generation, EFISHG)<sup>[9,10]</sup>、光学 Kerr 效应(optical Kerr effect, OKE)<sup>[11,12]</sup>等. 而其中光学 Kerr 效应技术是目前公认的测量材料的三阶非

线性极化率和材料弛豫的一种有力的工具. 光学 Kerr 效应技术唯一的不足之处是只能得到材料的三阶非线性极化率的模值, 而在实际应用中, 我们都希望得到具体三阶非线性极化率的实部和虚部值及其符号, 这样也可以很好地了解材料的三阶非线性动力学行为. 因此, 在 OKE 的基础上加以改进, 一种新的比较先进的测量材料三阶非线性极化率的技术应运而生, 即飞秒超外差光克尔效应法(femtosecond heterodyne detection of optical Kerr effect, OHD-OKE)<sup>[13-15]</sup>, 利用 OHD-OKE 法, 不但可以测量出材料的三阶非线性极化率的实部和虚部及其符号, 还可以得到材料的非线性响应时间. 因此, OHD-OKE 法是研究材料的三阶非线性光学动力学行为一种有力的工具. 本文以  $CS_2$  为参考样品, 利用 OHD-OKE 技术测量了硫系非晶半导体薄膜的三阶非线性极化率的实部和虚部及其符号, 同时也得到了材料的非线性响应时间.

## 2. 实 验

实验以高纯 5N(99.999%) 的 Ge, As, S 和 Se 单质为原料, 按设计组成配比在分析天平中称量后置

\* 国家自然科学基金(批准号 50772080) 国家教育部“新世纪优秀人才支持计划”(批准号: NCET-07-0651) 和教育部科学研究重点项目(批准号: 107078) 资助的课题.

† E-mail: qmliu@whut.edu.cn

于石英玻璃管中, 抽真空  $10^{-3}$  Pa 左右, 熔封石英管后在摇摆炉中熔制, 以使反应充分进行. 由于配料中硫系元素含量较大, 因此石英管中蒸气压也较大, 为防止管内压力过大而发生爆炸, 在制样过程中采取如下措施: 在  $450^{\circ}\text{C}$  以前升温速率为  $3^{\circ}\text{C}/\text{min}$ , 并在  $450^{\circ}\text{C}$  时恒温 1 h, 然后再以  $5^{\circ}\text{C}/\text{min}$  的升温速率升温, 升到各体系玻璃形成所需要的温度, 恒温 72 h, 再根据各体系的具体成玻能力情况而采取空气中、水中或冰水中冷却得到硫系非晶半导体块体玻璃. 然后在玛瑙钵中研磨成粉末. 采取传统的热蒸镀膜方法, 以所得粉末为蒸发源材料, 在 DM220 型真空镀膜仪上以 K9 玻璃为衬底蒸镀非晶半导体薄膜, 系统抽真空至  $10^{-3}$  Pa, 薄膜厚度在 200—800 nm 范围内.

光学超外差效应<sup>[14,15]</sup>飞秒激光脉冲 80 fs, 波长 805 nm, 在探测光路中插入  $1/4$  波片 W 并使其光轴方向与探测光偏振方向成一小角度  $\Phi$  (一般小于  $50^{\circ}$ ), 即可产生光学超外差光学 Kerr 效应(OHD-OKE). 以  $\text{CS}_2$  作为参考样品并利用相应公式可以计算出样品的三阶非线性极化率的实部  $\text{Re}(\chi^{(3)})$ . 如果将  $\lambda/4$  取出, 将 P1 相对于 P2 的正交方向微调一角度  $\Phi$  ( $\Phi < 50^{\circ}$ ), 则可以测量材料的虚部, 即材料的非线性吸收.

### 3. 结果与讨论

实验以  $\text{CS}_2$  为参考样品, 在 80 fs 激光脉冲激发下,  $\text{CS}_2$  三阶非线性极化率  $\chi^{(3)} = 1 \times 10^{-13}$  esu. 由于 OKE 和 OHD-OKE 所测量是  $\chi^{(3)} = \chi_{1122}^{(3)} + \chi_{1212}^{(3)}$ , 在非共振情况下, 根据 Kleinman 对称性,  $\chi^{(3)} = \chi_{1122}^{(3)} + \chi_{1212}^{(3)} = 2/3\chi_{1111}^{(3)} = 0.67 \times 10^{-13}$  esu<sup>[16,17]</sup>. 在 400—800 nm 的波段内,  $\text{CS}_2$  材料的线性和非线性吸收都可以忽略, 因此可以忽略虚部的影响, 即  $\text{Re}(\chi^{(3)}) \approx \chi^{(3)}$ .

图 1 是  $\text{CS}_2$  在超外差角  $2^{\circ}$  和  $-2^{\circ}$  下的 OHD-OKE 信号<sup>[11]</sup>.

$$\begin{aligned} (\chi_s^{(3)})_{\text{OHD-OKE}} &= (n_s/n_{\text{ref}})^2 L_{\text{ref}} Z_s (L_s Z_{\text{ref}} \chi_{\text{ref}}^{(3)})_{\text{OHD-OKE}} \\ &= (n_s/n_{\text{ref}})^2 L_{\text{ref}} A_s (L_s A_{\text{ref}} \chi_{\text{ref}}^{(3)})_{\text{OHD-OKE}} \end{aligned} \quad (1)$$

式中  $n_s$  为待测样品的折射率;  $n_{\text{ref}}$  为  $\text{CS}_2$  的折射率, 其值为 1.62;  $L_{\text{ref}}$  为 Pump 和 Probe 光在  $\text{CS}_2$  中的相互作用长度, 实验中为  $200 \mu\text{m}$ ;  $L_s$  为待测样品的厚度;  $A_s$  为待测样品 OHD-OKE 信号的强度;  $A_{\text{ref}}$  为  $\text{CS}_2$

OHD-OKE 信号的强度,  $\text{CS}_2$  参考样品的三阶非线性极化率  $\chi^{(3)}$  的实部的值为  $0.67 \times 10^{-13}$  esu. 这样(1)式可以简化为

$$\begin{aligned} (\chi_s^{(3)})_{\text{OHD-OKE}} &= (n_s/1.62)^2 200 \times A_s (L_s \times 27.7) \\ &\quad \times 0.67 \times 10^{-13}. \end{aligned} \quad (2)$$

利用超外差-光克尔效应法(OHD-OKE), 以  $\text{CS}_2$  为参考样品, 测出各体系硫系非晶半导体薄膜的三阶非线性极化率  $\chi^{(3)}$  的实部和虚部在超外差角  $2^{\circ}$  和  $-2^{\circ}$  下的 OHD-OKE 信号. 利用公式(2)即可求出硫系非晶态半导体薄膜三阶非线性极化率  $\chi^{(3)}$  的实部、虚部值及其非线性响应时间. 图 2 是  $\text{Ge}_{20}\text{As}_{25}\text{S}_{55}$  非晶半导体薄膜在超外差角  $2^{\circ}$  和  $-2^{\circ}$  下的 OHD-OKE 信号(实部).

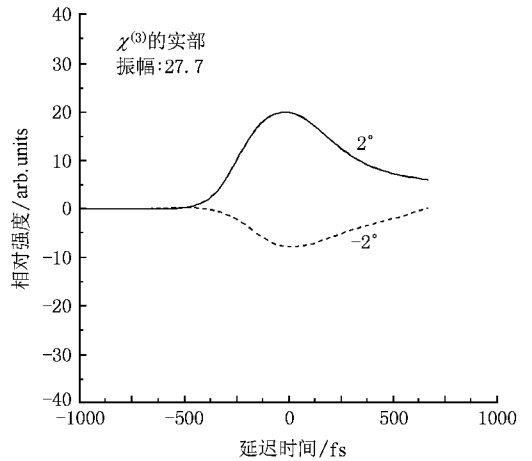


图 1  $\text{CS}_2$  在超外差角  $2^{\circ}$  和  $-2^{\circ}$  下的 OHD-OKE 信号

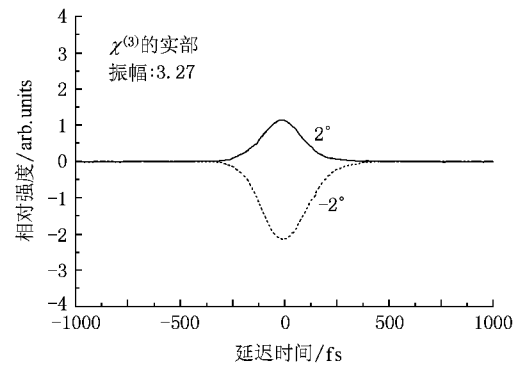


图 2  $\text{Ge}_{20}\text{As}_{25}\text{S}_{55}$  非晶半导体薄膜在超外差角  $2^{\circ}$  和  $-2^{\circ}$  下的 OHD-OKE 信号(实部)

$\text{CS}_2$  参考样品的三阶非线性极化率  $\chi^{(3)}$  的实部的值为  $0.67 \times 10^{-13}$  esu, 由实验结果算出的各体系硫系非晶半导体薄膜的  $\chi^{(3)}$  的实部和虚部及其符号

表 1 硫系非晶半导体薄膜的三阶非线性极化率值(实部和虚部)及其非线性响应时间

样品	实部( $\chi^{(3)}_r$ )	虚部( $\chi^{(3)}_i$ )	非线性响应时间/fs
	$10^{-13}$ esu	$10^{-13}$ esu	
CCs <sub>2</sub> 参考样品	0.67	-	-
As <sub>2</sub> S <sub>3</sub>	-	-	-
As <sub>2</sub> Se <sub>3</sub>	56	-2.0	<200
GeS <sub>2</sub>	-	-	-
GeSe <sub>2</sub>	88	-30	<200
Ge <sub>20</sub> As <sub>25</sub> S <sub>55</sub>	40	-	-
Ge <sub>20</sub> As <sub>25</sub> Se <sub>55</sub>	66	-24	<200
Ge <sub>10</sub> As <sub>40</sub> S <sub>20</sub> Se <sub>30</sub>	90	-40	<200

以及非线性响应时间如表 1 所示. 从表中可以看出, 硫系非晶半导体薄膜具有较大的三阶非线性极化率值, 同时还具有小于 200 fs 很快的非线性响应时间. 硫系非晶半导体薄膜中较大的非线性极化率值的出现是由于围绕 Ge, As, S 和 Se 原子平均位置的核外电子轨道的非线性扭曲所致.

#### 4. 讨论与分析

在非共振实验中, 只要偏离材料的吸收峰, 材料的非线性可归因于电子的影响所致, 并且伴随有较快的非线性响应时间, 但在共振实验中, 实验激光波长在材料的吸收峰附近, 一些电子效应会很明显, 同时材料表现出来的非线性极化率值也会更大, 但其非线性响应将会很慢<sup>[18]</sup>. 在我们测量硫系非晶半导体  $\chi^{(3)}$  值的 OHD-OKE 实验中, 飞秒激光波长为 805 nm, 而从硫系非晶半导体薄膜的吸收或透过谱中可以看出, 所有薄膜的吸收峰均偏离 805 nm 处, 所以硫系非晶半导体薄膜均出现很快的低于 200 fs 的非线性响应时间, 非线性极化率  $\chi^{(3)}$  值也比一些氧化物玻璃或其他硫系玻璃大. 众所周知, 玻璃中的一些非线性光学效应中, 如非线性折射率、多光子吸收等, 玻璃本身对其非线性的作用起着决定性的作用. 因此控制玻璃的组成和结构就能控制玻璃非线性的大小. 由于硫系非晶半导体薄膜结构较韧, 容易在外界条件下, 如光照等, 发生结构变化. 此外, 在硫系非晶半导体薄膜中, 由于硫属原子(S 和 Se)是二重配位的, 并且拥有两个未成键的孤对电子, 这些孤对电子位于价带的顶部很容易在外界光照的影响下而产生一些寿命很短的自由电子, 即瞬态电子. 也

正是由于这些瞬态电子的存在, 使硫系非晶半导体表现出很快的非线性响应时间. 此外, 在 OHD-OKE 实验中, 原子的内层电子可能被激活, 产生了内层空穴, 这些内层空穴可能会马上通过俄歇过程被外层电子所填充, 这样, 在高能带(如键态或孤对电子态)形成更多的空穴, 因为一次俄歇过程能产生两个空穴(空穴级联过程). 在这种情况下, 键的断裂和原子的离子化是容易产生的, 另一方面, 在光照作用下, 由于光子的作用, 原子的核外电子轨道的非线性扭曲很容易产生. 因此, 在硫系非晶半导体薄膜中, 引起了非晶网络结构中局部结构的变化, 也就引起薄膜折射率的变化, 导致薄膜非线性现象的产生. 利用公式(6)算出 OHD-OKE 法已经测出实部和虚部的硫系非晶半导体薄膜的  $\chi^{(3)}$  模值, 结果见表 2.

表 2 硫系非晶半导体薄膜的  $\chi^{(3)}$  值

体系	As <sub>2</sub> Se <sub>3</sub>	GeSe <sub>2</sub>	Ge <sub>20</sub> As <sub>25</sub> Se <sub>55</sub>	Ge <sub>10</sub> As <sub>40</sub> S <sub>20</sub> Se <sub>30</sub>
$\chi^{(3)}/10^{-12}$ esu	5.6	9.3	7	9.8

从表 2 中可以看出, 非晶半导体薄膜 GeSe<sub>2</sub> 的  $\chi^{(3)}$  比 As<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> 要高出许多, 说明元素 Ge 比 As 对三阶非线性极化率  $\chi^{(3)}$  的贡献要大, 这是由于 Ge 的金属性比 As 强, Ge—Se 形成的极性共价键极性比 As—Se 共价键的极性要强, 在外界光场作用下易于发生非线性极化变形, 因而三阶非线性极化率  $\chi^{(3)}$  表现出来就要大些. 此外, 从表中也可以看出, 在非晶半导体薄膜 As<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> 体系中掺入 Ge, 即 Ge<sub>20</sub>As<sub>25</sub>Se<sub>55</sub> 的三阶非线性极化率  $\chi^{(3)}$  比 As<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> 体系要大, 而在 GeSe<sub>2</sub> 中掺入 As, 即 Ge<sub>20</sub>As<sub>25</sub>Se<sub>55</sub> 的三阶非线性极化率  $\chi^{(3)}$  比 GeSe<sub>2</sub> 体系要小, 如果用 Ge 代替 Se 可以提高硫系非晶半导体薄膜的三阶非线性极化率  $\chi^{(3)}$  的值, 同时也说明在硫系非晶半导体薄膜中所形成的极性共价键, 如果极性越强, 在外界强光场作用下, 越容易变形, 因而其三阶非线性极化率  $\chi^{(3)}$  的值也就越大. 很明显, 在 Ge<sub>20</sub>As<sub>25</sub>Se<sub>55</sub> 硫系非晶半导体薄膜中掺入 S, 由于 S 的电负性比 Se 大, 与 Ge 或 As 形成的共价键的极性比 Se 与 Ge 或 As 形成的共价键的极性要强, 所以 Ge<sub>10</sub>As<sub>40</sub>S<sub>20</sub>Se<sub>30</sub> 硫系非晶半导体薄膜的三阶非线性极化率  $\chi^{(3)}$  值比 Ge<sub>20</sub>As<sub>25</sub>Se<sub>55</sub> 的要大许多.

优化 OHD-OKE 实验条件, 或是改变硫系非晶半导体薄膜的组成, 尤其是在硫系非晶半导体薄膜中掺杂重金属元素, 提高薄膜的折射率值, 能够提高

硫系非晶半导体薄膜的非线性极化率值, 从而使硫系非晶半导体薄膜更加适合非线性光学器件的需要.

非线性折射率  $\gamma$  与三阶非线性极化系数  $\chi^{(3)}$  实部的关系为<sup>[19]</sup>

$$(\chi^{(3)})_R = (cn_0^2/160\pi^2)\gamma, \quad (3)$$

式中  $c$  为光速,  $n_0$  为硫系非晶半导体玻璃薄膜的折射率值.

$$n_2(\text{esu}) = (cn_0/40\pi)\gamma(\text{m}^2/\text{W}) \quad (4)$$

$n_2(\text{esu})$  和  $\gamma(\text{m}^2/\text{W})$  分别为不同单位下的非线性折射率值.

通常情况下, 材料中非线性吸收可归因于两个过程, 即两光子或多光子吸收和自由载体吸收过程. 在 OHD-OKE 实验中, 激光的脉冲为 80 fs, 比起自由

载体的再结合时间(纳秒或更长)短得多. 因此, 在硫系非晶半导体薄膜的 OHD-OKE 实验中, 自由载体的吸收是可以忽略不计的. 也就是说, 两光子或多光子吸收是硫系非晶半导体薄膜非线性吸收的主要原因. 因此, 两光子或多光子吸收系数与三阶非线性极化系数  $\chi^{(3)}$  虚部的关系为<sup>[19]</sup>

$$(\chi^{(3)})_I = \lambda cn_0^2 \beta / 640\pi^3, \quad (5)$$

式中  $\beta$  为两光子或多光子吸收系数;  $c$  为光速;  $\lambda$  为 OHD-OKE 实验中的飞秒激光波长.

非线性极化率系数  $\chi^{(3)}$  与其实部和虚部的关系为

$$\chi^{(3)} = \sqrt{(\chi_R^{(3)})^2 + (\chi_I^{(3)})^2}. \quad (6)$$

利用 (3) 和 (5) 式可以分别计算出硫系非晶半导体薄膜的非线性折射率和非线性吸收. 其结果见表 3.

表 3 硫系非晶态半导体薄膜的非线性折射率和吸收

样品	非线性折射率 $\gamma(\text{K} \cdot 10^7 \cdot \text{m}^2 \cdot \text{W}^{-1})$	非线性折射率 $n_2/10^{-10} \text{ esu}$	非线性吸收系数 $\beta(\text{K} \cdot 10^{-10} \cdot \text{m} \cdot \text{W}^{-1})$
As <sub>2</sub> S <sub>3</sub>	-	-	-
As <sub>2</sub> Se <sub>3</sub>	3.7598	2.51	0.0210
GeS <sub>2</sub>	-	-	-
GeSe <sub>2</sub>	7.4114	4.42	0.3944
Ge <sub>20</sub> As <sub>25</sub> S <sub>55</sub>	3.3688	2.01	-
Ge <sub>20</sub> As <sub>25</sub> Se <sub>55</sub>	5.5586	3.32	0.3155
Ge <sub>10</sub> As <sub>40</sub> S <sub>20</sub> Se <sub>30</sub>	7.5798	4.52	0.5299

## 5. 结 论

采用热蒸镀膜方法, 在制备出 As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>, As<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>, GeS<sub>2</sub>, GeSe<sub>2</sub>, Ge<sub>20</sub>As<sub>25</sub>S<sub>55</sub>, Ge<sub>20</sub>As<sub>25</sub>Se<sub>55</sub>, Ge<sub>10</sub>As<sub>40</sub>S<sub>20</sub>Se<sub>30</sub> 七个体系硫系非晶态半导体薄膜的基础上, 使用先进的飞秒超外差光克尔(OHD-OKE)方法测出了硫系非晶态半导体薄膜的三阶非线性极化率  $\chi^{(3)}$  的实部、虚部值及其符号和非线性响应时间, 并且计算出薄膜的非线性折射率和吸收. 硫系非晶态半导体薄膜具有较大的三阶非线性极化率  $\chi^{(3)}$  值(达 10—12 esu), 并且具有小于 200 fs 的非线性响应时间. 硫系非晶态半导体薄膜中较大的非线性极化率值的出现

是由于围绕 Ge, As, S 和 Se 原子平均位置的核外电子轨道的非线性扭曲所致. 此外, 在硫系非晶态半导体玻璃薄膜中, 由于硫系原子(S 和 Se)是二重配位的, 并且拥有两个未成键的孤对电子, 这些孤对电子位于价带的顶部很容易在外界光照的影响下产生一些寿命很短的自由电子, 即瞬态电子. 也正是由于这些瞬态电子的存在, 使硫系非晶态半导体表现出很快的非线性响应时间. 由于硫系非晶态半导体薄膜具有较大的三阶非线性极化率  $\chi^{(3)}$  值, 是满足光通信发展的一种很有前途的非线性光学材料, 尤其是具有很快的非线性响应时间, 将是设计光开关器件的一种很好的材料.

- [ 1 ] Liu Q M 2002 ( Ph. D. Dissertation 〔 Shanghai : Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics , Chinese Academy of Sciences ) ( in Chinese ) [ 刘启明 2002 ( 博士学位论文 〔 上海 : 中国科学院上海光学精密机械研究所 ) ]
- [ 2 ] Liu Q M , Pommellec B , Blum R , Girard G , Bourée J E , Kudlinski A , Martinelli G 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 241919
- [ 3 ] Liu Q M , Pommellec B , Braga D , Blaise G , Ren Y T , Kristensen Martin 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 121906
- [ 4 ] Liu Q M , Gan F X , Zhao X J , Tanaka K , Narazaki A , Hirao K 2001 *Opt. Lett.* **26** 1347
- [ 5 ] Liu Q M , Zhao X J , Gan F X , Mi J , Qian S X 2005 *Solid State Commun.* **134** 513
- [ 6 ] Kajzar F , Messier J 1985 *Phys. Rev. A* **32** 2352
- [ 7 ] Friberg S R , Smith P W 1987 *IEEE J. Quantum Elect.* QE-23 2089
- [ 8 ] Shiek-Bahae M , Said A A , van Stryland E W 1989 *Opt. Lett.* **14** 955
- [ 9 ] Kazansky P G , Kamal A , Russell P S J 1993 *Opt. Lett.* **18** 693
- [ 10 ] Liu Q M , Zhao X J , Gan F X 2001 *Opt. Commun.* **198** 187
- [ 11 ] Gires F , Mayer G 1964 *Compt. Rend.* **258** 2039
- [ 12 ] Maker P D , Terhune R W , Savage C M 1964 *Phys. Rev. Lett.* **12** 507
- [ 13 ] Li B , Tong R , Zhu R Y , Meng F S , Tian H , Qian S X 2006 *J. Lumines.* **116** 119
- [ 14 ] Zhang C F , Deng H , You G J , Dong Z W , Zhu R Y , Cheng H , Wang J C , Qian S X 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 042117
- [ 15 ] Ma G H , Guo L J , Liu Y , Mi J , Qian S X , Liu J H , Wang R Q , He G F , Li Y F 2001 *Phys. Lett. A* **287** 385
- [ 16 ] Sun F , Zhang S , Xia Z , Zou Y , Chen X , Qiang D , Zhou X , Wu Y 1995 *Phys. Rev. B* **51** 4614
- [ 17 ] Minoshima R , Taiji M , Kobayashi T 1991 *Opt. Lett.* **161** 685
- [ 18 ] Vogel E M , Weber M J , Krol D M 1991 *Phys. Chem. Glasses* **32** 231
- [ 19 ] Sheik-Bahae M , Said A A , Wei T H , Hagan D J , van Stryland E W 1990 *IEEE J. Quantum Elect.* **26** 760

## Ultrafast optical Kerr effect in amorphous chalcogenide films<sup>\*</sup>

Liu Qi-Ming<sup>1)†</sup> He Xuan<sup>1)</sup> Gan Fu-Xi<sup>2)</sup> Qian Shi-Xiong<sup>3)</sup>

1 〔 Key Laboratory of Silicate Materials Science and Engineering of Ministry of Education , Wuhan University of Technology , Wuhan 430070 , China )

2 〔 Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics , Chinese Academy of Sciences , Shanghai 201800 , China )

3 〔 Department of Physics , Fudan University , Shanghai 200433 , China )

( Received 4 July 2008 ; revised manuscript received 17 August 2008 )

### Abstract

Amorphous chalcogenide  $As_2S_3$  ,  $As_2Se_3$  ,  $GeS_2$  ,  $GeSe_2$  ,  $Ge_{20}As_{25}S_{55}$  ,  $Ge_{20}As_{25}Se_{55}$  ,  $Ge_{10}As_{40}S_{20}Se_{30}$  films were studied by femtosecond OHD-OKE. It was indicated that the third-order nonlinear susceptibility  $\chi^{(3)}$  was as large as  $10^{-12}$  esu , and they also exhibited a very fast response time shorter than 200 fs. Their nonlinear refractive indices and absorption were also calculated from the above results. The ultrafast response and large third-order nonlinearity in amorphous chalcogenide films are attributed to the ultrafast distortion of the electron cloud of atoms.

**Keywords** : all-optical switching , amorphous chalcogenide film , femtosecond OHD-OKE , third-order nonlinearity

**PACC** : 4270C , 7360L , 4220H

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 50772080 ) , Program for New Century Excellent Talents in University ( Grant No. NCET-07-0651 ) and the Key Project of Chinese Ministry of Education ( Grant No. 107078 ) .

<sup>†</sup> E-mail : qmliu@whut.edu.cn