

ОБЩАЯ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ
ТЕХНИКА

УДК 535.015

ИССЛЕДОВАНИЕ НЕЛИНЕЙНОГО ПОКАЗАТЕЛЯ ПРЕЛОМЛЕНИЯ
ПОЛИКРИСТАЛЛИЧЕСКОГО СЕЛЕНИДА ЦИНКА МЕТОДОМ
ОДНОЛУЧЕВОГО Z-СКАНИРОВАНИЯ

© 2024 г. Е. Ю. Ерушин^{a,b,*}, Н. Ю. Костюкова^{a,b,**}, А. А. Бойко^{a,b,***},
И. Б. Мирошниченко^b, Д. М. Вербоватый^b, А. Ю. Кирьякова^a

^aНовосибирский государственный университет
Россия, 630090, Новосибирск, ул. Пирогова, 1

^bИнститут лазерной физики Сибирского отделения Российской академии наук
Россия, 630090, Новосибирск, просп. Академика Лаврентьева, 15Б

*e-mail: render2012@yandex.ru

**e-mail: n.duhovnikova@gmail.com

***e-mail: baa.nsk@gmail.com

Поступила в редакцию 24.05.2023 г.

После доработки 24.05.2023 г.

Принята к публикации 08.07.2023 г.

Представлена автоматизированная установка для исследования нелинейно-оптических свойств кристаллов методом однолучевого Z-сканирования при длительности импульсов 5.3 нс. Данная схема успешно применена для исследования нелинейного показателя преломления окна из поликристаллического ZnSe. Подробно описана экспериментальная установка, и представлен анализ данных. Измеренное значение нелинейного показателя преломления n_2 составило $(1.01 \pm 0.09) \cdot 10^{-11}$ ед. СГСЭ. Разработанная экспериментальная установка может применяться для исследования нелинейно-оптических характеристик новых нелинейных кристаллов.

DOI: 10.31857/S0032816224020126 EDN: QSLVOA

1. ВВЕДЕНИЕ

Исследование нелинейно-оптических свойств материалов имеет большое значение для многих областей науки и техники, включая телекоммуникации в виде оптических переключателей, модуляторов и электрооптических устройств [1–3], волноводов [4], некоторых биологических задач [5], а также при конструировании оптических схем для лазерной техники [6]. Нелинейный показатель преломления является фундаментальным оптическим свойством, характеризующим реакцию материала на свет большой интенсивности. Он играет решающую роль во многих нелинейно-оптических явлениях, таких как самофокусировка, фазовая самомодуляция и оптическое переключение. Поэтому точные измерения нелинейного показателя преломления необходимы для разработки и оптимизации нелинейно-оптических устройств для различных приложений, от телекоммуникаций

до биофотоники. Для измерения нелинейно-оптических свойств было разработано множество методов, таких как двухимпульсный спектральный метод “накачка-зондирование” [7], вырожденное четырехволновое смешение [8], почти вырожденное трехволновое смешение [9], методика вращения эллипса [10, 11], измерение искажения луча [12] и Z-сканирование [13]. Первые три метода являются потенциально чувствительными методами, но требуют очень сложной экспериментальной аппаратуры. Измерения искажения луча требуют точного сканирования луча с последующим подробным анализом распространения волны. Среди указанных выше методов Z-сканирование приобрело популярность благодаря простоте реализации, универсальности и высокой чувствительности. Метод Z-сканирования успешно используется для измерения коэффициента нелинейного преломления различных материалов, включая

полупроводники, стекла, полимеры и красители. В этом исследовании мы применяли метод Z -сканирования для измерения показателя нелинейного преломления окна из поликристаллического ZnSe, который является важным материалом для инфракрасной оптики и лазерной техники. Мы представляем автоматическую экспериментальную установку для однолучевого Z -сканирования.

2. МЕТОДИКА

Однолучевое Z -сканирование представляет собой простой метод определения величины двухфотонного поглощения (ДФП) и нелинейного показателя преломления (n_2) кристалла. Впервые указанный метод был предложен в 1989 году [13], и он широко применяется и в наше время. Для интерпретации экспериментальных данных используется метод гауссовой декомпозиции. Это широко распространенный метод анализа результатов измерений. Подробное описание метода дано в работе [14]. Принцип метода Z -сканирования довольно прост: лазерный луч фокусируется в образец, который необходимо перемещать вдоль направления распространения излучения, тем самым изменяя интенсивность излучения внутри образца. Далее излучение, прошедшее через образец, вводится в детектор, перед которым устанавливается диафрагма с переменной апертурой с коэффициентом пропускания S . Обычно в экспериментах с закрытой диафрагмой S принимает значение от 0.1 до 0.5. Данный метод применяют для исследования нелинейного показателя преломления. В случае Z -сканирования с открытой диафрагмой пропускание диафрагмы $S=1$, т.е. все излучение проходит через апертуру. Такой метод применяется для исследования двухфотонного поглощения. В обоих случаях процессы самофокусировки/самодефокусировки происходят за счет перемещения образца и изменения интенсивности падающего на детектор излучения. Приближение “тонкого” образца можно использовать при выполнении следующего условия: $z_R n_0 > L$, где n_0 — линейный показатель преломления, z_R — длина Рэлея, а L — толщина образца. Нормированный коэффициент пропускания в точке z при открытой диафрагме для тонкого образца выражается следующим образом [13]:

$$T(z, S=1) = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{[-q_0(z, 0)]^m}{(m+1)^{3/2}}, \quad (1)$$

где

$$q_0(z, t) = \frac{\beta I_0(t) L_{eff}}{1+x^2}. \quad (2)$$

Чаще всего для аппроксимации достаточно второго порядка, поэтому эта формула сводится к выражению

$$T = 1 - \frac{\beta I_0 L_{eff}}{2\sqrt{2}} \frac{1}{1+x^2}, \quad (3)$$

где $L_{eff} = (1 - e^{-\alpha L})/\alpha$ — эффективная толщина образца, α — коэффициент линейного поглощения, I_0 — пиковая интенсивность, β — коэффициент двухфотонного поглощения, L — длина образца, а $x = z/z_R$ — нормализованная координата.

Для нахождения огибающей экспериментальных данных для Z -скана с закрытой диафрагмой обычно используется следующее выражение [13]

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

где

$$\Delta\Phi_0 = \frac{2\pi}{\lambda} n_2 I_0 L_{eff} \quad (5)$$

— аксиальный фазовый сдвиг в фокусе, а n_2 — нелинейный показатель преломления. Единицами этой величины являются [$\text{м}^2/\text{Вт}$] (или [$\text{см}^2/\text{Вт}$]) в системе СИ, но в более старой литературе можно найти значения в единицах [ед. СГСЭ]. Для преобразования таких единиц можно использовать уравнение

$$n_2 [\text{ед. СГСЭ}] = \frac{cn_0}{40\pi} n_2 \left[\frac{\text{М}^2}{\text{Вт}} \right]. \quad (6)$$

Простой способ оценить фазовый сдвиг и, следовательно, нелинейный показатель преломления — найти разницу между максимальным (пик) и минимальным (впадина) коэффициентами пропускания. Для этого можно использовать эмпирически определенное отношение

$$\Delta T_{\text{П-В}} \cong 0.406(1-S)^{0.25} |\Delta\Phi_0|, \quad (7)$$

где S — коэффициент пропускания апертуры в отсутствие образца, а $\Delta T_{\text{П-В}} = T_{\text{П}} - T_{\text{В}}$, $T_{\text{П}}$ и $T_{\text{В}}$ — нормированные максимальные (пик) и минимальные (впадина) коэффициенты пропускания. Расстояние между пиком и впадиной

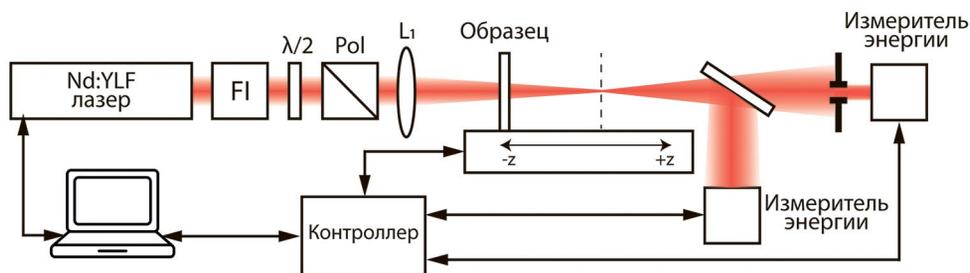


Рис. 1. Изображение схемы Z-сканирования: ОИ – изолятор Фарадея, $\lambda/2$ – полуволновая пластинка, Pol – призма Глана, L_1 – линза с фокусным расстоянием $f = 100$ мм.

$\Delta Z_{П-В}$ может служить прямой мерой оценки дифракционной длины падающего луча для нелинейного отклика заданного порядка. При использовании гауссова пучка и апертуры в дальней зоне это соотношение для нелинейности третьего порядка определяется выражением

$$|\Delta Z_{П-В}| \approx 1.7Z_0. \quad (8)$$

Нелинейная восприимчивость третьего порядка $\chi^{(3)}$ считается комплексной величиной:

$$\chi^{(3)} = \chi_R^{(3)} + i\chi_I^{(3)}, \quad (9)$$

где действительная часть связана с n_2 формулой [13, 15]

$$\chi_R^{(3)} [\text{ед. СГСЭ}] = 10^{-4} \frac{\epsilon_0 c^2 n_0^2}{\pi} n_2 \left[\frac{\text{см}^2}{\text{Вт}} \right], \quad (10)$$

а мнимая часть связана с коэффициентом двухфотонного поглощения β формулой

$$\chi_I^{(3)} [\text{ед. СГСЭ}] = 10^{-2} \frac{\epsilon_0 c^2 n_0^2 \lambda}{4\pi^2} \beta \left[\frac{\text{см}}{\text{Вт}} \right]. \quad (11)$$

В указанных формулах ϵ_0 – диэлектрическая постоянная, c – скорость света, а λ – длина волны излучения.

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА

В качестве тестового образца было взято окно из поликристаллического ZnSe размером $13 \times 15 \times 2.18$ мм³. Исследуемая пластинка имела минимальный клин, а для предотвращения обратного отражения и эффекта эталона [14] на обе грани пластинки было нанесено однослойное антиотражающее покрытие с центром на длине волны 1.053 мкм.

Схема Z-сканирования представлена на рис. 1. В качестве источника излучения использовался Nd:YLF-лазер (TECH 1053 Advanced, ООО “Лазер-экспорт”) с длиной волны 1.053 мкм и длительностью импульсов 5.3 нс на частоте следования импульсов 1 кГц. Максимальная энергия в импульсе лазера накачки составляла 1 мДж, показатель качества пучка $M^2 < 1.4$.

Использование аттенюатора, состоящего из полуволновой пластинки ($\lambda/2$) и поляризатора (Pol), позволяет плавно изменять уровень мощности и энергии излучения при неизменных пространственных параметрах луча и длительности импульсов лазера. Импульсы фокусировались в образец при помощи линзы с фокусным расстоянием $f = 100$ мм. При помощи метода ножа Фуко была измерена каустика пучка вдоль направления распространения излучения (рис. 2). Согласно стандарту для определения качества пучка, ISO 11146-1/2, результаты измерений диаметра пучка в различных сечениях вдоль трассы его распространения аппроксимируются гиперболической зависимостью.

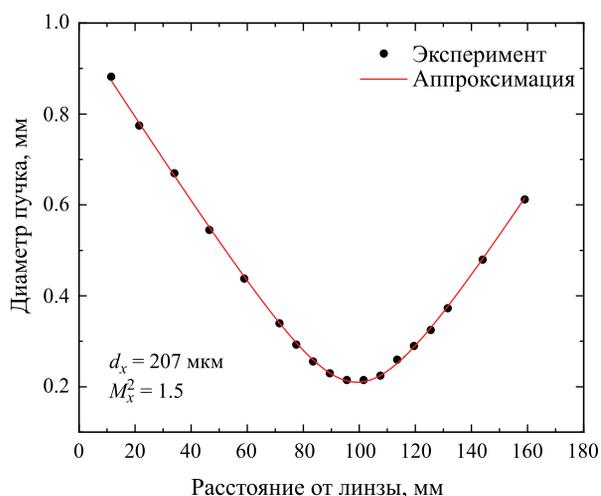


Рис. 2. Зависимость диаметра луча от расстояния от линзы, измеренная методом ножа Фуко.

Исходя из полученных коэффициентов, можно вычислить расходимость, диаметр перетяжки и параметр M^2 . Радиус пучка в перетяжке составил $\omega_0 \approx 103.5$ мкм, длина Рэлея $z_R = 21.4$ мм, а $M^2 = 1.4$.

Пластина тестируемого образца располагалась в держателе, размещенном на моторизированной линейной подвижке с датчиком угла поворота с шагом 0.01 мм и диапазоном перемещения 150 мм. Шаговый двигатель линейной подвижки управлялся при помощи специально разработанного контроллера, подключенного к персональному компьютеру. Для одновременного измерения методом открытой и закрытой диафрагмы за образцом было помещено полупрозрачное зеркало, пропускающее примерно 64% излучения в приемник с диафрагмой и отражающее примерно 36% во второй приемник. На заднюю сторону зеркала нанесено просветляющее покрытие для излучения лазера. Далее излучение, прошедшее через зеркало и отраженное от него, регистрировалось при помощи двух детекторов PE10-C Ophir, также подключенных к ПК. Для схемы с закрытой диафрагмой пропускание апертуры S , определяемое как отношение энергии импульса, проходящего через апертуру, к полной энергии входного импульса, составляло 0.4. Было разработано программное обеспечение, записывающее зависимость детектируемого сигнала от положения линейной подвижки. Далее в программе происходит нормировка сигналов. В случае наличия двухфотонного поглощения тестируемой пластинки необходимо нормированное пропускание образца, записанное при помощи метода с закрытой диафрагмой, разделить на нормированное пропускание, записанное при помощи метода открытой диафрагмы. Одновременная запись обоими методами позволяет минимизировать влияние дрейфа уровня энергии излучения лазера.

В тестируемой пластинке ZnSe двухфотонное поглощение не выявлено, что хорошо согласуется с литературными данными при близкой длине волне. На рис. 3 показана измеренная зависимость нормированного пропускания от положения образца, записанная при частоте повторения лазера 1 кГц и интенсивности излучения в перетяжке (измерено без образца), равной 392 МВт/см².

Для того чтобы найти аксиальный фазовый сдвиг в фокусе $\Delta\Phi_0$, а затем по формуле (5)

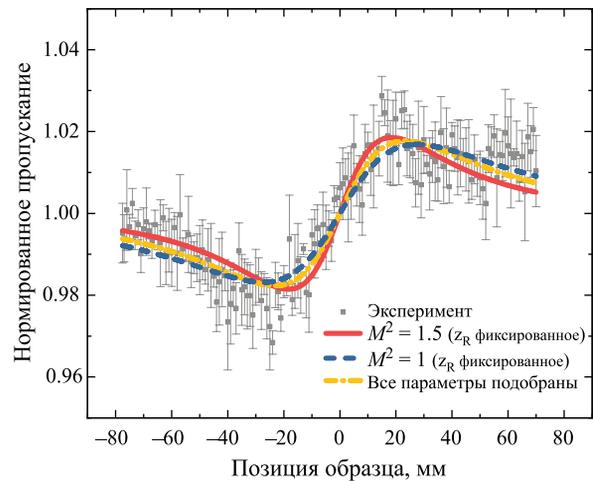


Рис. 3. Нормированное пропускание тестовой пластинки ZnSe, записанное методом Z-сканирования с закрытой апертурой при частоте повторения лазера 1 кГц и интенсивности в перетяжке 392 МВт/см².

и n_2 , мы должны аппроксимировать экспериментальные данные функцией, описываемой формулой (4). Также для этого можно использовать выражение (7), связывающее $\Delta\Phi_0$ с разницей между нормированными коэффициентами пропускания пика и впадины. Стоит отметить, что для интерпретации полученной зависимости мы можем использовать несколько способов. В первую очередь, при аппроксимации данных можно использовать значение длины Рэлея z_R , определенное при измерении каустики луча после прохождения через линзу L_1 с учетом коэффициента распространения пучка $M^2 = 1.5$ (рис. 2). Также можно оценить длину Рэлея, исходя из предположения, что используемый пучок имеет практически гауссово распределение интенсивности в поперечном сечении, т. е. задать коэффициент M^2 равным единице, и использовать соответствующее значение z_R . Другой подход — варьировать все параметры функции аппроксимации для лучшего совпадения с экспериментальной кривой. В табл. 1 показаны полученные значения для z_R , $\Delta\Phi_0$ и n_2 , определенные описанными способами. Как следует из таблицы, нелинейный показатель преломления n_2 при частоте следования импульсов 1 кГц и пиковой интенсивностью 392 МВт/см², определенный тремя способами, лежит в диапазоне от $1.63 \cdot 10^{-14}$ до $1.79 \cdot 10^{-14}$ см²/Вт, что хорошо согласуется с литературными данными [16, 17].

Таблица 1. Значения соответствующих параметров аппроксимирующей функции, полученные с помощью различных процедур подбора

	$M^2 = 1.5$	$M^2 = 1$	Все параметры подогнаны
z_R , мм	21.4 (фиксированный)	32 (фиксированный)	26.96 ± 1.28
$\Delta\Phi_0$	0.0913 ± 0.0034	0.083 ± 0.003	0.087 ± 0.003
n_2 , см ² /Вт	$(1.79 \pm 0.07) \cdot 10^{-14}$	$(1.63 \pm 0.06) \cdot 10^{-14}$	$(1.71 \pm 0.06) \cdot 10^{-14}$
n_2 , ед. СГСЭ	$(1.06 \pm 0.04) \cdot 10^{-11}$	$(0.96 \pm 0.04) \cdot 10^{-11}$	$(1.01 \pm 0.04) \cdot 10^{-11}$
n_2 , см ² /Вт	$2.04 \cdot 10^{-14}$	$1.85 \cdot 10^{-14}$	$1.94 \cdot 10^{-14}$
$\Delta T_{\text{П-В}}$			

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В статье представлена автоматическая схема метода Z-сканирования, которая была успешно применена для исследования нелинейно-оптических свойств поликристаллического окна из ZnSe. Результаты, полученные в этом эксперименте, демонстрируют высокую степень соответствия литературным данным, тем самым подтверждая эффективность и надежность предложенной схемы. Схема автоматического Z-сканирования предлагает значительные преимущества с точки зрения точности, воспроизводимости и эффективности, что делает ее ценным инструментом для исследователей, изучающих нелинейно-оптические свойства различных материалов. В дальнейшем разработанная схема будет использоваться для изучения нелинейных свойств новых кристаллов, в том числе и для параметрического взаимодействия. Это не только будет способствовать более точному прогнозированию изменения свойств материалов при взаимодействии с излучением высокой интенсивности, но и позволит разрабатывать надежные источники излучения среднего ИК-диапазона для различных приложений в области нелинейной оптики и фотоники.

ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Исследование выполнено при поддержке Российского научного фонда (проект № 23-22-00368).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Yao C., Zhang Y., Sun W., Yu C., Li J., and Yuan P. // Opt. Exp. 2013. V. 21 P. 2212. <https://doi.org/10.1364/OE.21.002212>
2. He G. S., Zhu J., Baev A., Samoc M., Frattarelli D.L., Watanabe N., Facchetti A., Agren H., Marks T.J., Prasad P. N. // J. Am. Chem. Soc. 2011. V. 133. № 17. P. 6675. <https://doi.org/10.1021/ja1113112>
3. Dinu M., Quochi F., Garcia H. // Appl. Phys. Lett. 2003. V. 82 P. 2954. <https://doi.org/10.1063/1.1571665>
4. Knight J.C., Skryabin D. V. // Opt. Exp. 2007. V. 15 P. 15365. <https://doi.org/10.1364/OE.15.015365>
5. Nabeshima C.T., Alves S.I.P., Neto A.M.F., Silva F.R.O., Samad R.E., Courrol L.C. // Front. Opt. 2016. P. JTh2A.132. <https://doi.org/10.1364/FIO.2016.JTh2A.132>
6. Ganeev R.A., Kulagin I.A., Ryasnyansky A.I., Tugushev R.I., Usmanov T. // Opt. Comm. 2004. V. 229 P. 403. <http://doi.org/10.1016/j.optcom.2003.10.046>
7. Cotter D., Ironside C.N., Ainslie B.J., Girdlestone H.P. // Opt. Lett. 1989. V. 14. P. 317. <https://doi.org/10.1364/OL.14.000317>
8. Friberg S.R., Smith P.W. // IEEE J. Quantum Electron. 1987. V. 23. P. 2089. <https://doi.org/10.1109/JQE.1987.1073278>
9. Adair R., Chase L.L., Payne S.A. // J. Opt. Soc. Am. B. 1987. V. 4. P. 875. <https://doi.org/10.1364/JOSAB.4.000875>
10. Owyyoung A. // IEEE J. Quantum Electron. 1973. V. 9. P. 1064. <https://doi.org/10.1109/JQE.1973.1077417>
11. Пиццоферрато Р., Мартеллуччи С., Маринелли М., Замит Ю., Скудери Ф., Романьоли М. // КЭ. 1989. Т. 16. С. 2237. <https://doi.org/10.1070/QE1989v019n11ABEH009564>
12. Williams W.E., Soileau M.J., Van Stryland E.W. // Opt. Comm. 1984. V. 50. P. 256. [https://doi.org/10.1016/0030-4018\(84\)90328-6](https://doi.org/10.1016/0030-4018(84)90328-6)
13. Sheik-bahae M., Said A.A., Van Stryland E.W. // Opt. Lett. 1989. V. 14. P. 955. <https://doi.org/10.1364/OL.14.000955>
14. Antony A., Pramodini S., Poornesh P., Kityk I.V., Fedorchuk A.O., Sanjeev G. // Opt. Mater. 2016. V. 62 P. 64. <https://doi.org/10.1016/j.optmat.2016.09.053>
15. Chapple P.B., Staromlynska J., Hermann J.A., McKay T.J., McDuff R.G. // J. Nonlinear Opt. Phys. Mater. 1997. V. 6. № 3. P. 251. <https://doi.org/10.1142/S0218863597000204f>
16. Said A.A., Sheik-Bahae M., Hagan D.J., Wei T.H., Wang J., Young J., Van Stryland E. W. // J. Opt. Soc. Am. B. 1992. V. 9. № 3. P. 405. <https://doi.org/10.1364/JOSAB.9.000405>
17. Durand M., Houard A., Lim K., Durécu A., Vasseur O., Richardson M. // Opt. Exp. 2014. V. 22. № 5. P. 5852. <https://doi.org/10.1364/OE.22.005852>