

ОБЩАЯ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ  
ТЕХНИКА

УДК 535.015

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

© 2023 г. Е. Ю. Ерушин<sup>a,b,\*</sup>, Н. Ю. Костюкова<sup>a,b,\*\*</sup>, А. А. Бойко<sup>a,b,\*\*\*</sup>,  
И. Б. Мирошниченко<sup>b</sup>, Д. М. Вербоватый<sup>b</sup>, А. Ю. Кирьякова<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Новосибирский государственный университет,  
Россия, 630090, Новосибирск, ул. Пирогова 1

<sup>b</sup>Институт 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.

## 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 смещение [8], почти вырожденное трехволновое смещение [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,  $\alpha$  — коэффициент линейного поглощения,  $I_0$  — пиковая интенсивность,  $\beta$  — 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  $[м^2/Вт]$  (или  $[см^2/Вт]$ ) в системе СИ, но в более старой литературе можно найти значения в единицах [ед. СГСЭ]. Для преобразования таких единиц можно использовать уравнение

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

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

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

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

$$\boxed{\text{греческие буквы - прямо}} \quad \chi^{(3)} = \chi_R^{(3)} + i\chi_I^{(3)}, \quad (9)$$

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

$$\chi_R^{(3)} [\text{ед. СГСЭ}] = 10^{-4} \frac{\varepsilon_0 c^2 n_0^2}{\pi} n_2 \left[ \frac{см^2}{Вт} \right], \quad (10)$$

а мнимая часть связана с коэффициентом двухфотонного поглощения  $\beta$  формулой

$$\chi_I^{(3)} [\text{ед. СГСЭ}] = 10^{-2} \frac{\varepsilon_0 c^2 n_0^2 \lambda}{4\pi^2} \beta \left[ \frac{см}{Вт} \right]. \quad (11)$$

В указанных формулах  $\varepsilon_0$  – диэлектрическая постоянная,  $c$  – скорость света, а  $\lambda$  – длина волны излучения.

### 3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА

В качестве тестового образца было взято окно из поликристаллического ZnSe размером  $13 \times 15 \times 2.18$  мм<sup>3</sup>. 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.

Рис. 1

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 1кГц. Максимальная энергия в импульсе лазера накачки составляла 1 мДж, показатель качества пучка  $M^2 < 1.4$ .

Рис. 2

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. Исходя из полученных коэффициентов, можно вычислить расхожимость, 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.

Рис. 3

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/см<sup>2</sup>.

Для того чтобы найти аксиальный фазовый сдвиг в фокусе  $\Delta\Phi_0$ , а затем по формуле (5) 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. Во-первых, 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/см<sup>2</sup>, определенный тремя способами, лежит в диапазоне от  $1.63 \cdot 10^{-14}$  до  $1.79 \cdot 10^{-14}$  см<sup>2</sup>/Вт, что хорошо согласуется с литературными данными [16, 17].

Табл. 1

#### 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. Owyong A. // IEEE J. Quantum Electron. 1973. V. 9 P. 1064. [10.1109/JQE.1973.1077417](https://doi.org/10.1109/JQE.1973.1077417)
11. Пиццоферрато P., Мартелуччи C., Маринелли M., Замит Ю., Скудери Ф., Романьоли M. // 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>

**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)	$26.96 \pm 1.28$
$\Delta\Phi_0$	$0.0913 \pm 0.0034$	$0.083 \pm 0.003$	$0.087 \pm 0.003$
$n_2$ , см <sup>2</sup> /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 <sup>2</sup> /Вт ( $\Delta T_{П-В}$ )	$2.04 \cdot 10^{-14}$	$1.85 \cdot 10^{-14}$	$1.94 \cdot 10^{-14}$

## ПОДПИСИ К РИСУНКАМ

**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, BS – полупрозрачное зеркало.

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

**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/см<sup>2</sup>.

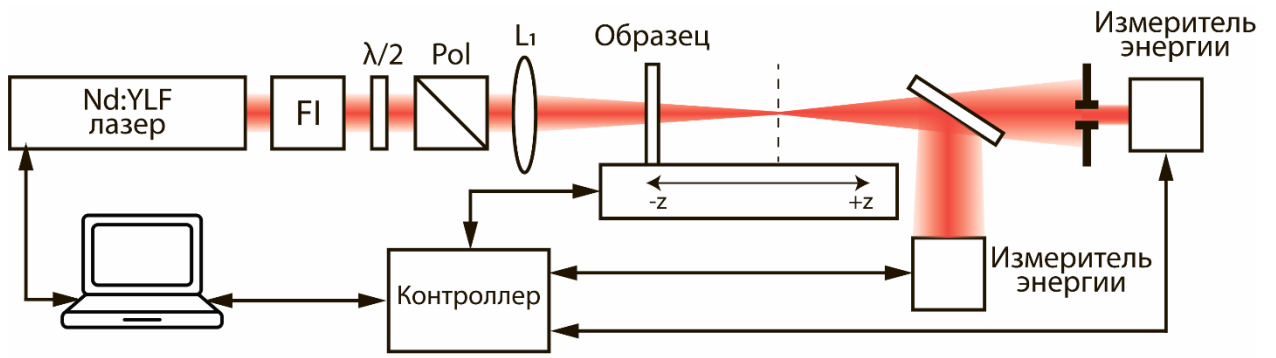


Рис. 1

десятичные запяты  
заменить на точки

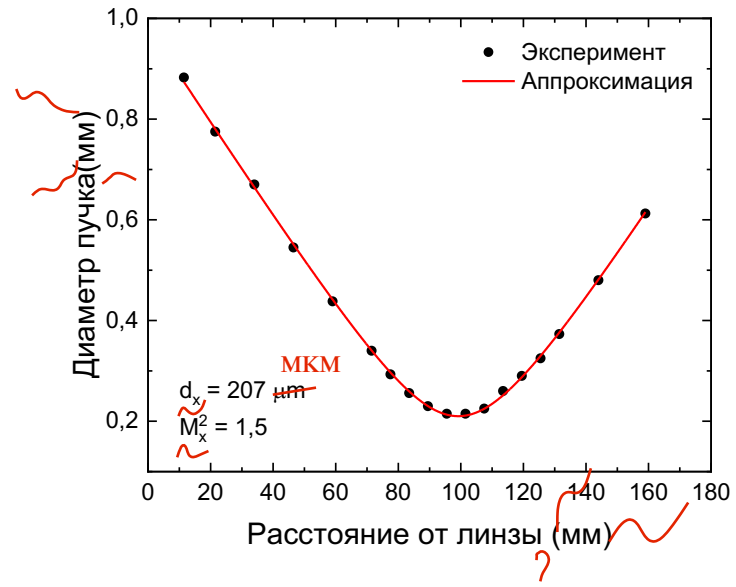


Рис. 2

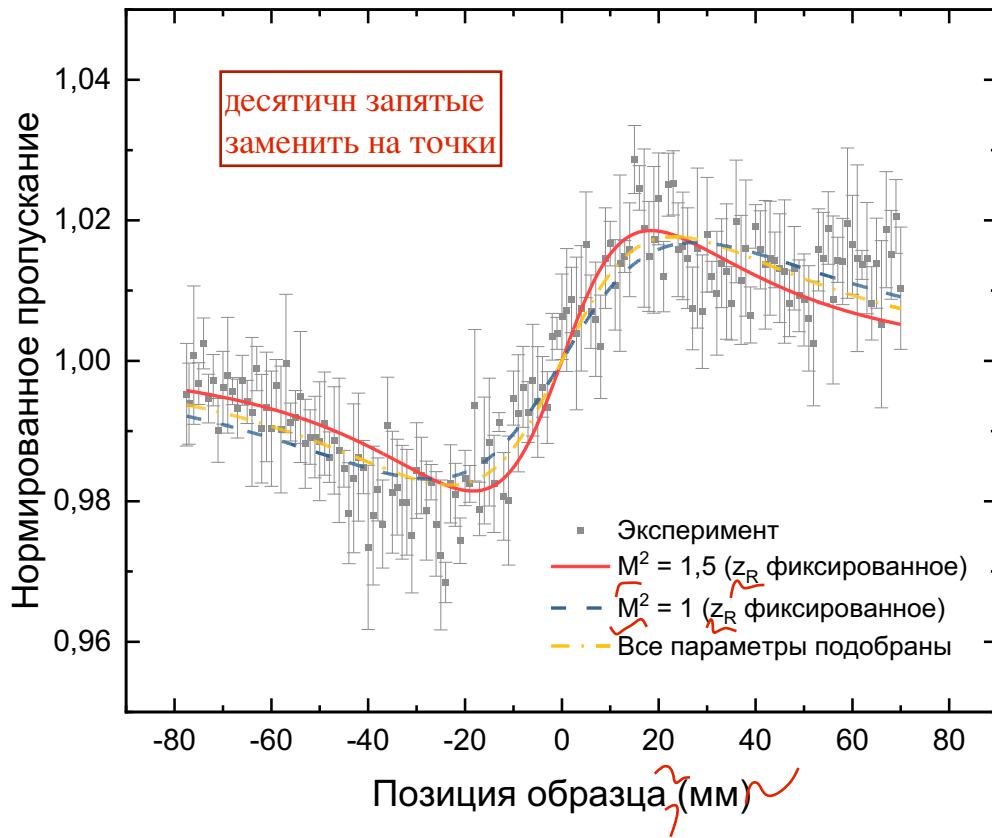


Рис. 3

Для связи с авторами:

**Ерушин Евгений Юрьевич**

**E-mail:** [render2012@yandex.ru](mailto:render2012@yandex.ru)

**Тел.:** 8-996-379-28-25 (моб.)

Костюкова Надежда Юрьевна

**E-mail:** [n.duhovnikova@gmail.com](mailto:n.duhovnikova@gmail.com)

**Тел.:** 8-923-222-76-73 (моб.)

Бойко Андрей Александрович

**E-mail:** [baa.nsk@gmail.com](mailto:baa.nsk@gmail.com)

**Тел.:** 8-913-718-34-68 (моб.)

**В помощь переводчику:**

**INVESTIGATION OF THE NONLINEAR REFRACTIVE INDEX OF POLYCRYSTALLINE ZINC SELENIDE BY SINGLE-BEAM Z-SCAN**

**Evgenii Erushin, Nadezhda Kostyukova, Andrey Boyko, Илья Miroschnichenko, Denis Verbovaty, Anastasia Kiryakova**

*Novosibirsk State University*

*Russia, 630090, Novosibirsk, 1, Pirogova str.*

*Institute of Laser Physics RAS*

*Russia, 630090, Novosibirsk, prosp. Academician Lavrentiev, 15B*

**Abstract:** This article presents an automated setup for studying the nonlinear optical properties of crystals by single-beam Z-scan with the pulse duration of 5.3 ns. The scheme has been successfully applied to study the nonlinear refractive index of a polycrystalline ZnSe window. The experimental setup and data analysis are described in detail. The measured value of the nonlinear refractive index  $n_2$  was  $(1.01 \pm 0.09) \cdot 10^{-11}$  esu. The developed experimental setup can be used to study the nonlinear optical characteristics of new nonlinear crystals.

- накачка-зондирования – **Pump-probe**
- вырожденное четырехволновое смешение - **Degenerate four-wave mixing**
- почти вырожденное трехволновое смешение – **Nearly degenerate three-wave mixing**
- эллипс вращения – **Rotation ellipse**
- Z-сканирование – **Z scan**
- двухфотонное поглощение (ДФП) – **Two photon absorption (TPA)**
- гауссова декомпозиция - **Gaussian decomposition**
- метод ножа Фуко – **Knife-edge technique**

Информация о финансировании: **The study was supported by a grant from the Russian Science Foundation (Project no. 23-22-00368).**