

ЭЛЕКТРОДИНАМИЧЕСКИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ НЕЛИНЕЙНО-ОПТИЧЕСКОГО КРИСТАЛЛА CdSiP_2 В ТЕРАГЕРЦОВОМ ДИАПАЗОНЕ

Я. А. Крюков^{1,2}

¹⁾ МФТИ (ГУ), ²⁾ ИОФ РАН

1. Постановка задачи

В лазерной физике для генерации второй гармоники и управления лазерным излучением получил широкое применение метод нелинейно-оптической генерации, с помощью которого из двух высокочастотных волн получается излучение на разностной частоте. Этот метод используется, в том числе и для генерации волн терагерцового диапазона (0,1–3 ТГц). В ряду нелинейно-оптических материалов кристаллы структурного семейства халькопирита обладают рядом характеристик, которые делают их перспективными для эффективного преобразования лазерного излучения в терагерцовую область спектра. Исследуемый кристалл CdSiP_2 относится к данному структурному семейству, на Рис.1. представлена его структура. При падении на него волны имеют место два случая: вектор \mathbf{E} поляризации направлен перпендикулярно главной кристаллографической оси \mathbf{c} , вектор \mathbf{E} направлен параллельно оси \mathbf{c} .

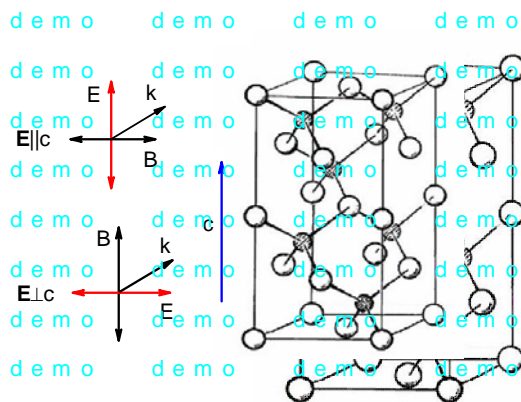


Рис. 1. Структура кристалла CdSiP_2 , направление кристаллографических осей и вектора поляризации \mathbf{E}

Актуальность исследования электродинамических и оптических параметров кристалла CdSiP_2 в ТГц области спектра определена перспективами применения нелинейно-оптических свойств этого кристалла для генерации ТГц излучения. Нелинейно-оптические характеристики, например двулучепреломление, определяются коэффициентами преломления по осям обыкновенного и необыкновенного лучей. Коэффициент поглощения в ТГц области определяет эффективность применения данного кристалла при генерации излучения. Таким образом, эти параметры являются ключевыми при расчете оптических схем генерации на разностных частотах. Целью работы является экспериментальное исследование колебательного спектра и оптических параметров кристалла CdSiP_2 с использованием методов монохроматической субмиллиметровой, TDS (Time-Domain Spectroscopy) и ИК-Фурье спектроскопии.

2. Методы исследования

2.1. Оборудование. Экспериментальные спектры получены с помощью трех взаимодополняющих экспериментальных установок. На низкочастотном участке использован монохроматический СБММ ЛОВ-спектрометр. В диапазоне от 10 до 70 см^{-1} использован лабораторный

TDS-спектрометр. Данные в ИК-области спектра получены на ИК-Фурье спектрометре «Bruker IFS-113v».

2.1.1. Монохроматический субмиллиметровый ЛОВ-спектрометр. Источником излучения является лампа обратной волны. Набор из 13 генераторов позволяет перекрыть весь рабочий диапазон: $1-50 \text{ см}^{-1}$. На данном спектрометре мы можем получать спектры с разрешением 10^{-3} см^{-1} .

2.1.2. TDS-спектрометр. Рабочий диапазон: $3-100 \text{ см}^{-1}$. Разрешение до $0,5 \text{ см}^{-1}$

2.1.3. ИК-Фурье спектрометр «Bruker». Источником излучения является ртутная лампа и глобар. Рабочий диапазон: от 20 до 500 см^{-1} ртутная лампа, от 400 до 4000 см^{-1} – глобар.

2.2. Модели. Пропускание плоскопараллельного образца толщиной d

$$Tr = \frac{(1-R)^2 + 4R \sin^2 \psi}{(1 - \text{Re}^{\alpha d})^2 + 4 \text{Re}^{-\alpha d} \sin^2(2\pi ndv + \psi)} e^{-\alpha d} \quad (1)$$

Зависит от коэффициента отражения R , коэффициента поглощения α и от сдвига фазы волны ψ при отражении

В свою очередь эти величины определяются через комплексный показатель преломления

$$N(\nu) = n(\nu) + ik(\nu) \quad (2)$$

где n – его действительная часть, k – мнимая часть (коэффициент экстинкции). Отражение R и коэффициент поглощения α определяются через комплексный показатель преломления

$$R(\nu) = \frac{(n(\nu)-1)^2 - k^2(\nu)}{(n(\nu)+1)^2 + k^2(\nu)} \quad (3)$$

$$\psi(\nu) = \text{arctg} \frac{2k(\nu)}{n^2(\nu) + k^2(\nu) - 1} \quad (4)$$

$$\alpha = 4\pi k(\nu)\nu \quad (5)$$

Действительная ε' и мнимая ε'' части комплексной диэлектрической проницаемости определялись по формулам

$$n^2(\nu) + k^2(\nu) = \varepsilon' \quad (6)$$

$$2n(\nu)k(\nu) = \varepsilon'' \quad (7)$$

дисперсия которых в области полос поглощения описывалась по аддитивной модели гармонических осцилляторов

$$\varepsilon'(\nu) = \varepsilon_\infty + \sum_j \frac{\Delta\varepsilon_j \nu_j^2 (\nu_j^2 - \nu^2)}{(\nu_j^2 - \nu^2)^2 + \nu^2 \gamma_j^2} \quad (8)$$

$$\varepsilon''(\nu) = \sum_j \frac{\Delta\varepsilon_j \nu_j^2 \nu \gamma_j}{(\nu_j^2 - \nu^2)^2 + \nu^2 \gamma_j^2} \quad (9)$$

Путем подбора трех подгоночных параметров (диэлектрического вклада $\Delta\varepsilon_j$, частоты ν_j и затухания γ_j) рассчитывались модельные спектры пропускания и отражения с учетом интерференции в плоскопараллельном образце [1].

Экспериментальные спектры пропускания и отражения получены для двух поляризаций ($\mathbf{E} \perp \mathbf{c}$, $\mathbf{E} \parallel \mathbf{c}$) в субмиллиметровой, терагерцовой и инфракрасной областях. Выполнен дисперсионный анализ экспериментальных спектров по модели классического осциллятора. Параметры дис-

персионной модели определены методом минимизации среднеквадратичного отклонения расчетных спектров от экспериментальных данных по пропусканию и поглощению. Были обнаружены области, где спектр, рассчитанный в рамках фононного приближения, не совпадает с экспериментальными данными даже с учетом максимально возможной погрешности. Это дополнительное поглощение в терагерцовой области обусловлено ангармонизмом колебаний решетки, разностными многофононными переходами и электродипольным поглощением на дефектах. Получены параметры осцилляторов, описывающих как фононный вклад, так и дополнительное поглощение в области частот ниже фононных резонансов.

3. Экспериментальные результаты

Таблица 1

N	$\Delta\varepsilon$	$\nu_j, \text{см}^{-1}$	$\gamma_j, \text{см}^{-1}$
1	0,215±0,001	452,815±0,005	2,40±0,02
2	0,833±0,003	487,45±0,05	3,5±0,1
3	0,442±0,001	282,08±0,02	5,35±0,05
4	0,285±0,003	251,45±0,05	3,85±0,05
5	0,66±0,01	154,3±0,1	2,95±0,1
6	0,0225±0,0005	66,92±0,01	1,15±0,05

Параметры дисперсионного моделирования, зарегистрированные в поляризации $E \perp c$

Осцилляторы 1–5: оценка погрешностей в определении параметров получена с учетом разброса экспериментальных точек и подгонки по ним модельного спектра (отражение)

Осциллятор 6. Параметры рассчитаны из моделирования спектров коэффициента пропускания, и разброс данных так же определен экспериментальной погрешностью и точностью подгонки модельного спектра под эксперимент (пропускание).

Таблица 2

N	$\Delta\varepsilon$	ν_i	γ_i
7	$6,7 \cdot 10^{-2}$	33	95
8	$5,4 \cdot 10^{-3}$	44	20
9	$3,8 \cdot 10^{-2}$	128	9

Параметры дисперсионного моделирования дополнительного поглощения, зарегистрированные в поляризации $E \perp c$

Таблица 3

N	$\Delta\varepsilon$	ν_i	γ_i
1	0,891	300,37	5,04
2	0,707	487,19	3,85
3	0,0022	77,61	14,65
4	0,0013	83,79	10,49
	0,372	107,83	0,55
5	0,058	49,68	139,88
6	0,0025	160,26	12,16
7	0,0006	170,79	5,68
8	0,0059	206,51	29,02
9	0,114	250,92	6,16
10	0,0085	957,9	8,4
11	0,006	835,18	9,09
12	0,00056	674	41,72

Параметры дисперсионного моделирования, зарегистрированные в поляризации $E||c$
Осциллятор 4 рассчитан по модели взаимодействующих осцилляторов.

4. Экспериментальные спектры кристалла $CdSiP_2$ и их моделирование

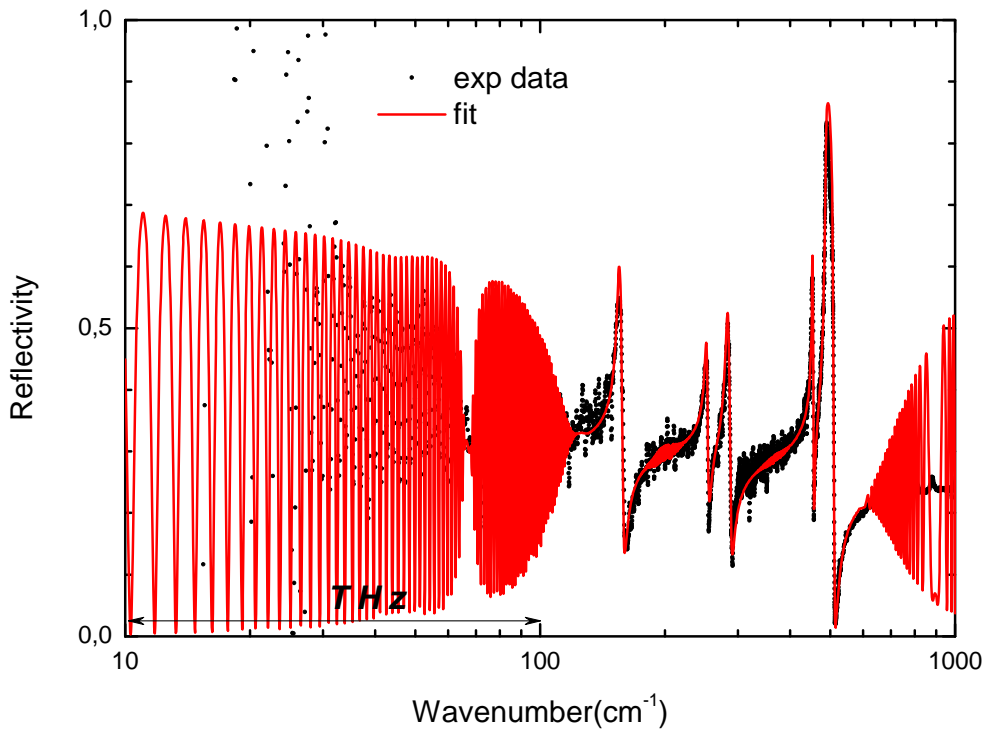


Рис. 2. Спектр отражения в случае поляризации $E \perp c$

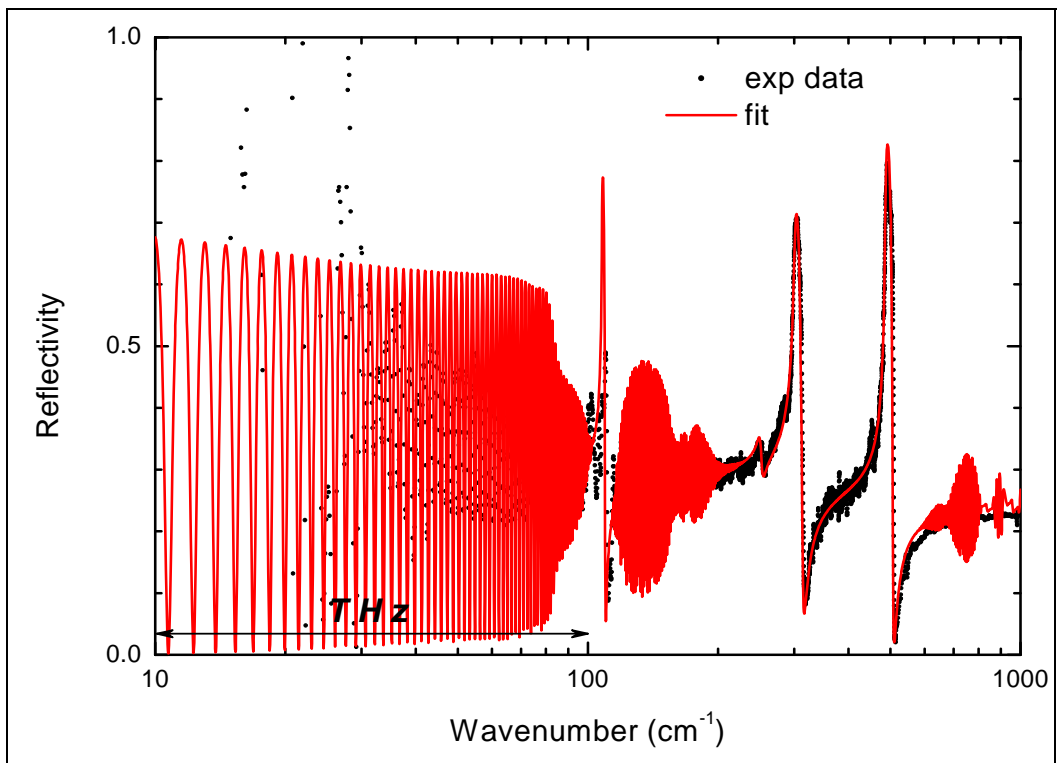


Рис. 3. Спектр отражения в случае поляризации $E||c$

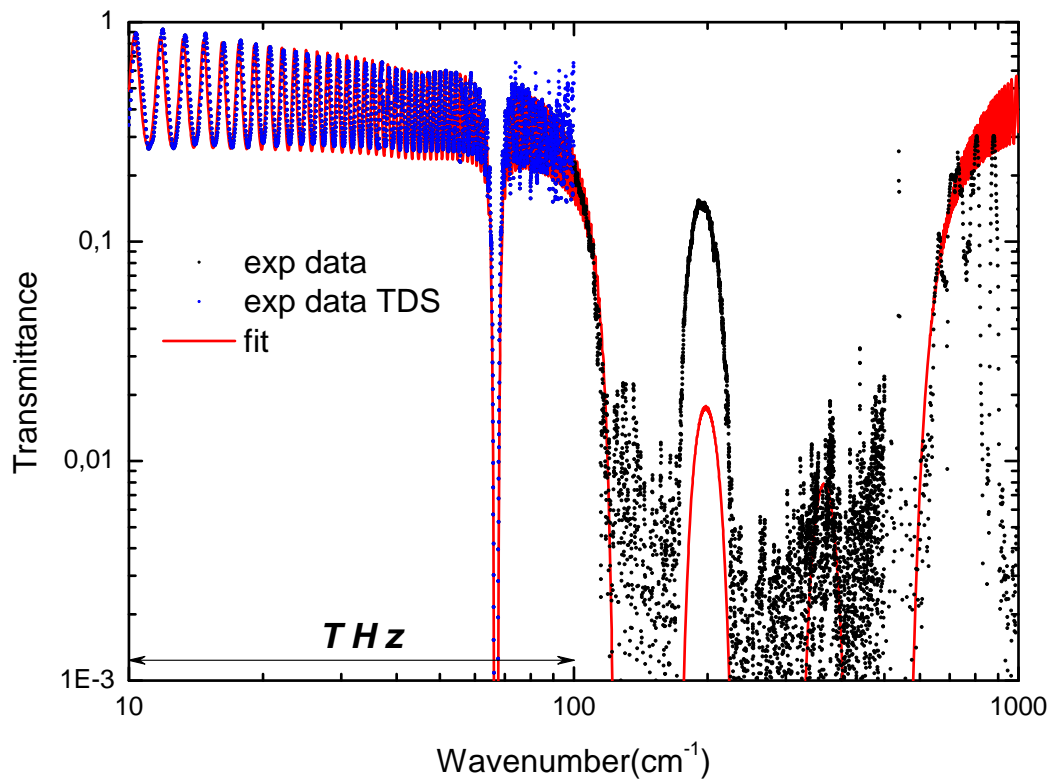


Рис. 4. Спектр пропускания в случае поляризации $E \perp c$

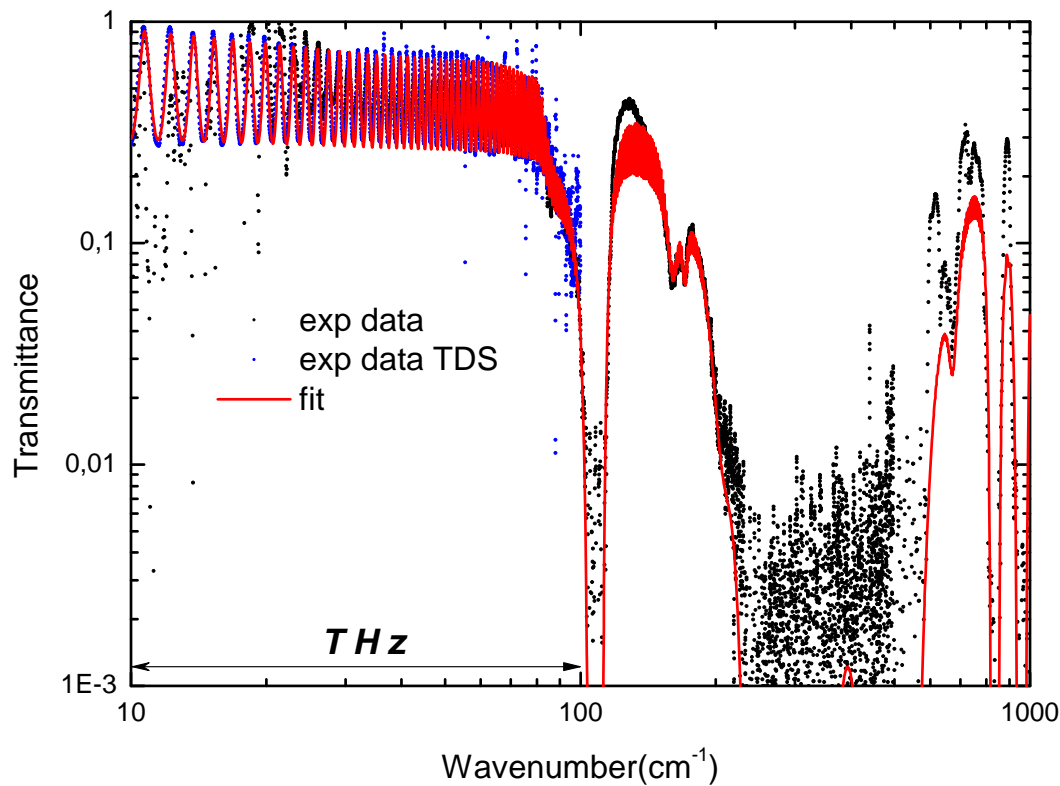


Рис. 5. Спектр пропускания в случае поляризации $E \parallel c$

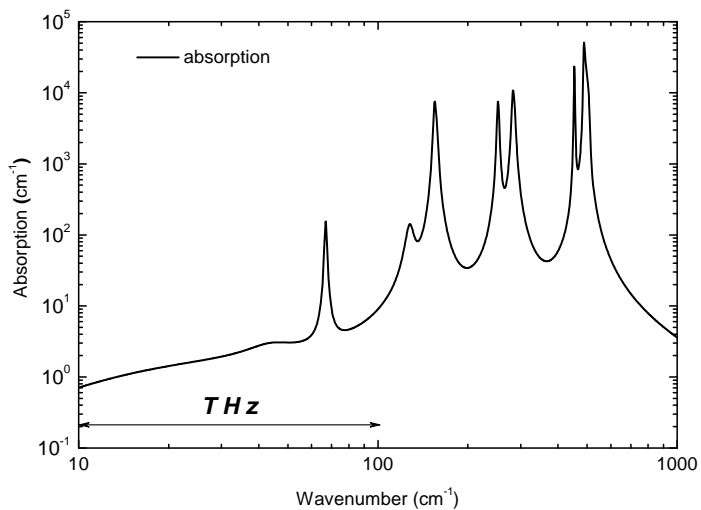


Рис. 6. Спектр коэффициента поглощения в случае поляризации $E \perp c$

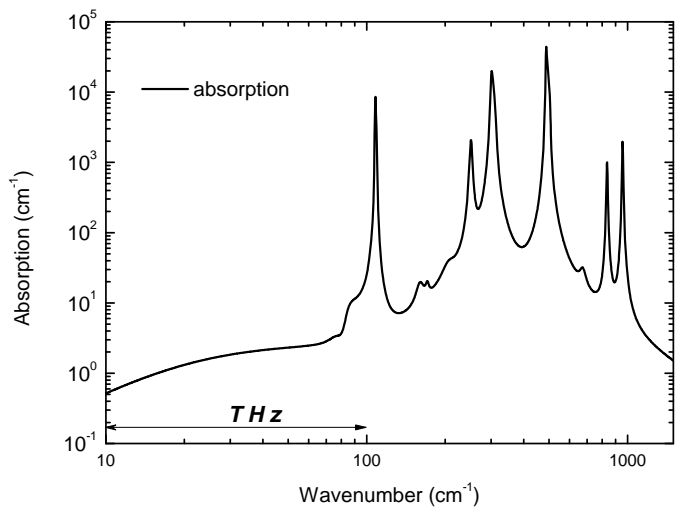


Рис. 7. Спектр коэффициента поглощения в случае поляризации $E \parallel c$

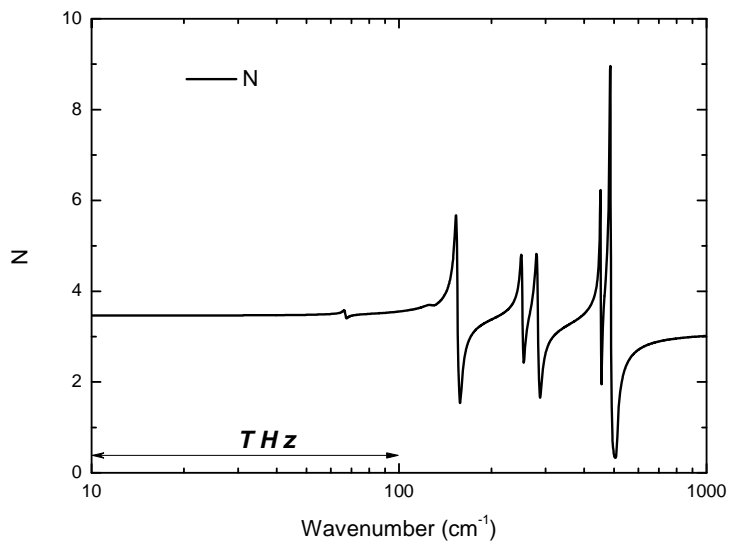


Рис. 8. Спектр коэффициента преломления в случае поляризации $E \perp c$

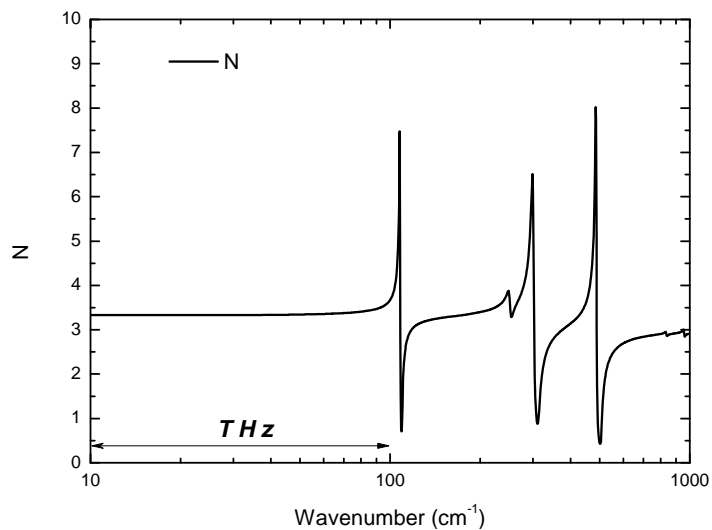


Рис. 9. Спектр коэффициента в случае поляризации $\mathbf{E} \parallel \mathbf{c}$

Заключение

Измерены спектры пропускания и отражения нелинейно-оптического кристалла CdSiP_2 для двух поляризаций в субмиллиметровой, терагерцовой и инфракрасной областях. Методом минимизации среднеквадратичного отклонения расчетного спектра от экспериментальных данных определены параметры дисперсионного моделирования. По полученным параметрам рассчитаны спектры коэффициента поглощения и коэффициента преломления. Эти спектры позволяют определить нелинейно-оптические свойства кристалла и эффективность его применения для нелинейно-оптического преобразования лазерного излучения в терагерцовую область спектра.

Список литературы

1. Чучупал С. В., Командин Г. А., Жукова Е. С., Породинков О. Е., Спектор И. Е., Грибенюков А. И. // ФТТ, 2015. 57, 1467–1468.