

06

## Исследование оптических нелинейных свойств объемного ZnSe для иммерсионных применений

© Н.А. Смирнов<sup>1</sup>, А.Е. Рупасов<sup>1</sup>, С.Н. Шелыгина<sup>1</sup>, А.О. Левченко<sup>1</sup>, М.С. Савинов<sup>1,2</sup>, С.И. Кудряшов<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН,  
119991 Москва, Россия

<sup>2</sup> Национальный исследовательский ядерный университет „МИФИ“,  
115409 Москва, Россия

e-mail: sna1992@mail.ru

Поступила в редакцию 20.12.2021 г.

В окончательной редакции 20.12.2021 г.

Принята к публикации 30.12.2021 г.

В настоящей работе проведено исследование нелинейного поглощения ультракоротких лазерных импульсов варьлируемой длительности (0.3–10 ps) в объемном поликристаллической диэлектрике ZnSe. Измерение пропускания образца производилось для двух длин волн 515 и 1030 nm в широком диапазоне интенсивностей. Обнаружено нелинейное поведение пропускания при облучении образца лазерным излучением с длиной волны 515 nm с насыщением поглощения в области 3–5 TW/cm<sup>2</sup>. Получены поверхностные пороги повреждения для длины волны 1030 nm для длительностей 0.3–10 ps.

**Ключевые слова:** нелинейное поглощение ZnSe, твердотельная иммерсия, двухфотонное поглощение, абляция поверхности халькогенидных стекол, пороги абляции ZnSe.

DOI: 10.21883/OS.2022.04.52267.52-21

### Введение

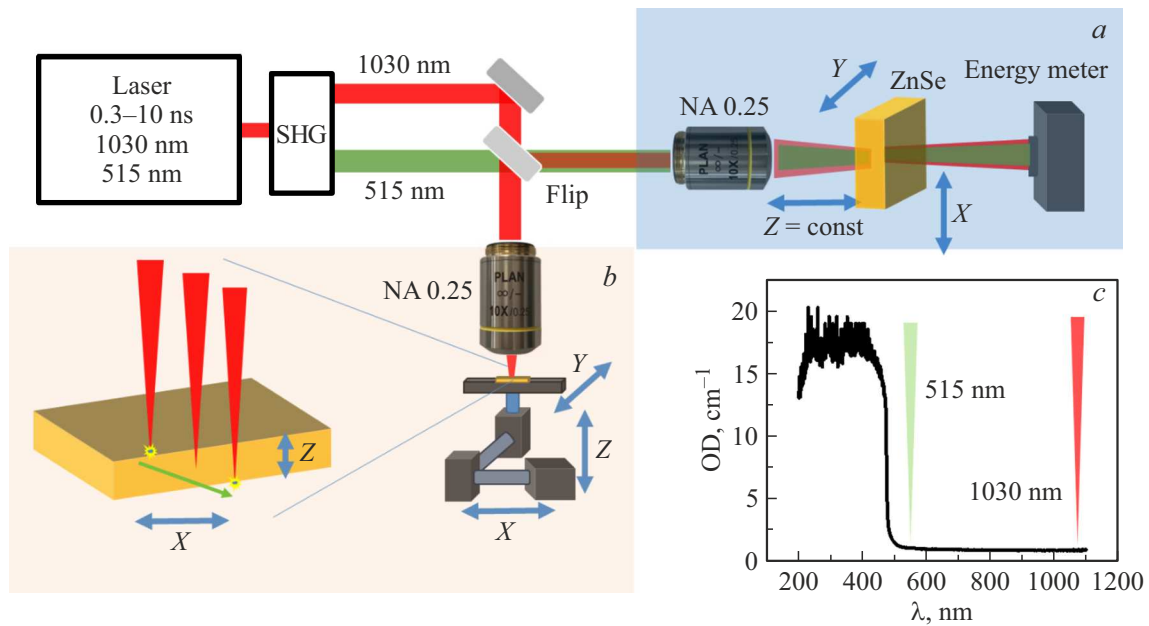
ZnSe является коммерчески доступным материалом, который получил широкое применение в инфракрасной оптике в качестве оптических элементов (линз и оптических окон), благодаря хорошему пропусканию излучения в диапазоне  $\approx 0.5\text{--}21\ \mu\text{m}$  [1]. Поглощение излучения в данной области практически отсутствует для данного материала, и при нормальном падении излучения потери возникают только из-за френелевского отражения. При этом показатель преломления ZnSe ( $n \approx 2.48$ ) практически совпадает с показателем преломления алмаза, что открывает перспективы использования ZnSe в качестве иммерсионной среды, в которую будет помещаться неограниченный алмаз. Это позволит практически без искажений сфокусировать лазерный луч в объеме образца для его микромаркировки [2,3] или исследования внутренней структуры с помощью ИК спектроскопии. При этом для обработки алмаза необходимо лазерное излучение с интенсивностями порядка тераватт, сфокусированное в пятно размером до  $10\ \mu\text{m}$ . Для таких задач необходимо учитывать, как будут меняться оптические свойства иммерсионной среды при таком лазерном воздействии.

Исследованием нелинейных свойств полупроводников занимаются многие годы [4,5]. Как известно, если энергия падающего фотона  $h\nu$  меньше ширины запрещенной зоны  $E_g$ , может реализоваться механизм многофотонного поглощения [4]. Для ультракоротких импульсов (УКИ) к нелинейному поглощению также добавляются и

другие нелинейные процессы, такие как многофотонная ионизация, дефокусировка, филаментация и пр.

На сегодняшний день есть ряд работ, в которых исследуется нелинейное поглощение в ZnSe [6–8]. Измерение нелинейного коэффициента поглощения производится с помощью разного рода методик сканирования сфокусированным лучом вдоль образца — так называемое  $z$ -сканирование [7–10]. При этом при больших интенсивностях при смещении фокуса к границе образца возможен процесс абляции, что крайне нежелательно для данных измерений, также есть ряд условий к фокусировке лазерного луча, которая не должна быть слишком сильной, поэтому больших интенсивностей в данных методиках не используют. Для лазерной маркировки, наоборот, важным является использование острой фокусировки и высоких интенсивностей лазерного излучения. Поэтому исследование нелинейных свойств данного иммерсионного материала при высоких интенсивностях является актуальной задачей.

В настоящей работе проведено исследование нелинейного поглощения ZnSe для ультракоротких импульсов варьлируемой длительности для длин волн 1030 и 515 nm. Использование разных длительностей позволило исследовать нелинейное пропускание в широком диапазоне интенсивностей. Показана возможность применения ZnSe в качестве твердотельной иммерсионной среды для лазерной маркировки объема алмазов сфокусированными лазерными импульсами пикосекундной длительности.



**Рис. 1.** Схема эксперимента. (а) Измерение пропускания лазерных ультракоротких импульсов. (б) Абляция мишени при сканировании через весь образец. (с) Спектр поглощения ZnSe с указанием длин волн используемого лазерного излучения.

## Экспериментальная часть

В качестве образца использовалась полированная с двух сторон плоскопараллельная пластинка ZnSe с толщиной 4 мм. Спектр поглощения образца представлен на рис. 1, с. В качестве источника излучения в работе был использован иттербиевый волоконный лазер Satsuma (Amplitude Systemes) с длинами волн первой и второй гармоник лазерного излучения 1030 и 515 нм соответственно. Изменение длительности импульсов осуществлялось с помощью встроенного компрессора в диапазоне 0.3–10 пс [10]. Лазерное излучение фокусировалось через объектив (NA 0.25) в объем образца на глубине 750 мкм с учетом показателя преломления  $\approx 2.48$ . Энергия лазерного излучения контролировалась с помощью измерителя энергии Ophir PD10-C (рис. 1, а).

В процессе измерения пропускания осуществлялось смещение образца с помощью моторизованной трехкоординатной подвижки XYZ, и каждый новый импульс падал на свежий участок поверхности образца, частота следования лазерных импульсов составляла 10 Гц, усреднение сигнала производилось по 100 импульсам. Длину Рэлея для данной фокусировки можно рассчитать по формуле  $\pi n_0 w_0^2 / \lambda$ , где  $w_0$  — радиус фокального пятна, равный для нашей системы 2 мкм (515 нм) и 4 мкм (1030 нм) [11],  $n_0$  — показатель преломления среды, в которую фокусируется излучение,  $\lambda$  — длина волны лазерного излучения. Длина Рэлея, рассчитанная по данной формуле для используемого объектива, составляет 120 мкм для длины волны 1030 нм и 60 мкм для 515 нм.

Абляция мишени осуществлялась для первой гармоники лазерного излучения в режиме сканирования

образца одновременно по двум координатам X и Z со скоростью 5 мкм/с и частотой следования импульсов лазерного излучения 100 кГц (рис. 1, б). Количество импульсов, приходящих в одну точку, рассчитывалось по формуле  $N = Df/V$ , где  $D = 4 \mu\text{m}$  — характерный диаметр области абляции, и составило  $8 \cdot 10^4$ . Выбор такого режима сканирования был обусловлен тем, что при меньших экспозициях на тыльной стороне мишени для 0.3 пс абляция отсутствовала.

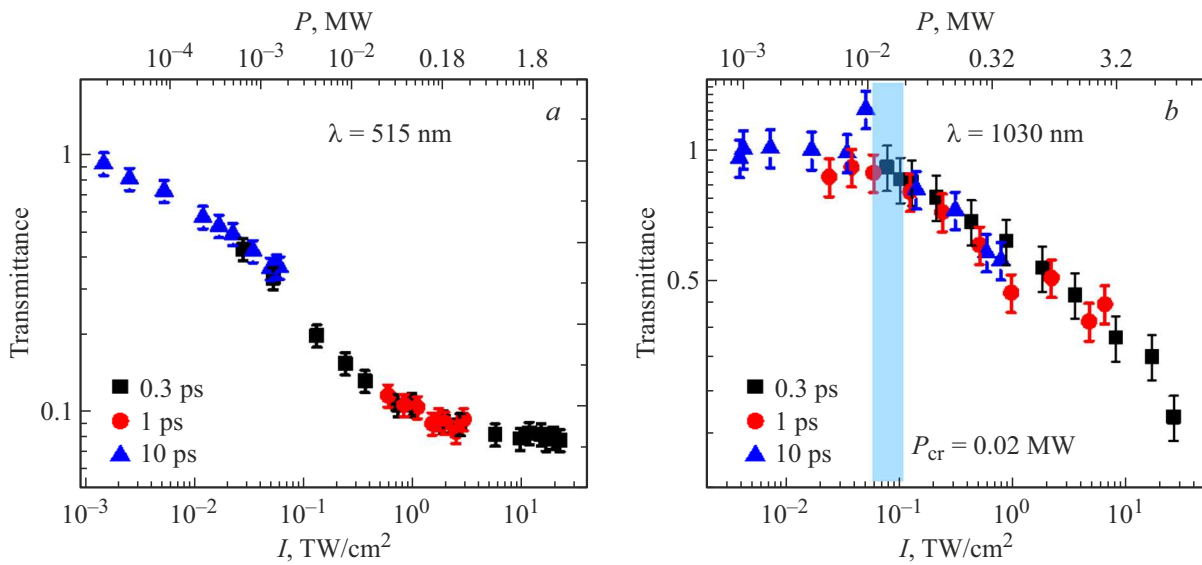
## Результаты и обсуждение

Для исследования поглощения пластины ZnSe были получены зависимости пропускания сквозь образец лазерных импульсов различных длительностей от интенсивности лазерного излучения (рис. 2),

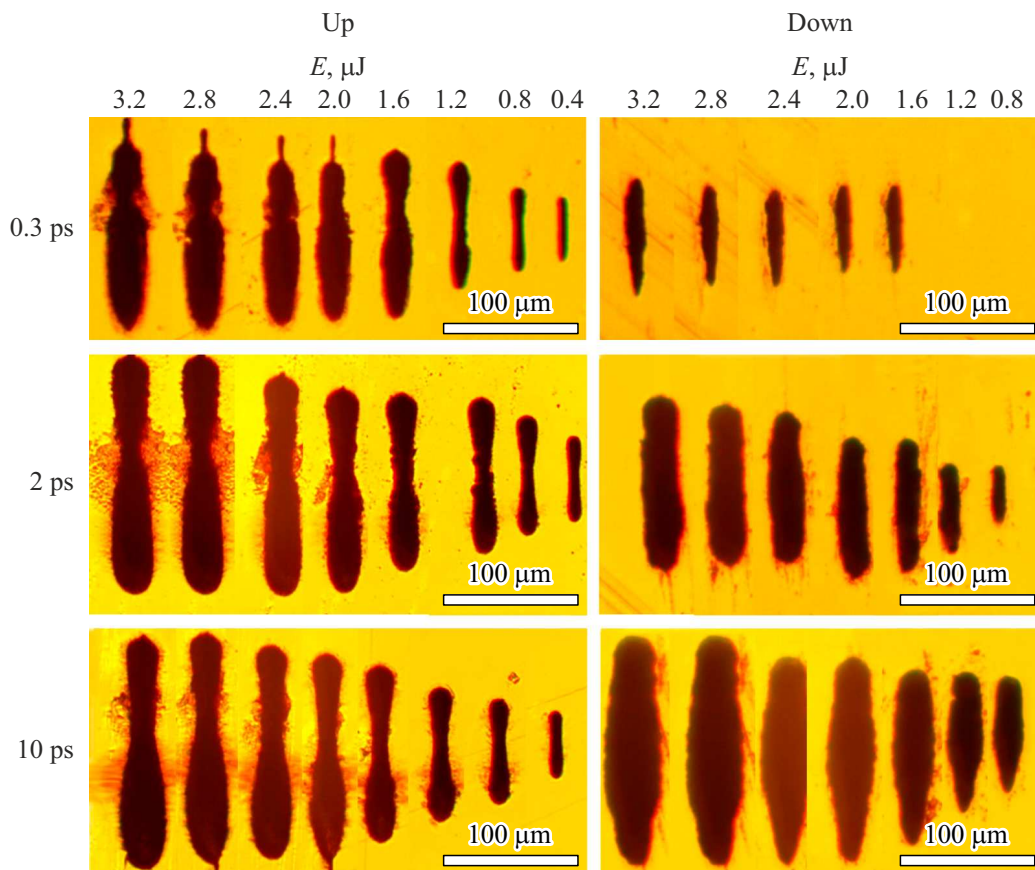
$$T = \frac{I}{I_0}, \quad (1)$$

где  $I_0$  — падающая на образец интенсивность,  $I$  — прошедшая сквозь образец интенсивность. При измерении интенсивности света, прошедшего сквозь образец, учитывалось френелевское отражение от двух граней  $(1 - R)^2$ . Важным фактом, который мы наблюдаем из данных зависимостей, является отсутствие влияния длительности лазерного излучения на пропускание, зависящее только от интенсивности лазерного излучения.

Ранее в работах [7,8] была получена нелинейная часть показателя преломления  $n_2$ , которая для 1030 нм имеет положительное значение  $\approx 2.3 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$ , тогда как вблизи края фундаментального поглощения меняет знак и для длины волны 515 нм принимает отрицательное



**Рис. 2.** Пропускание образца ZnSe на длине (a) 515 nm, (b) 1030 nm. Синей областью отмечена критическая мощность самофокусировки.



**Рис. 3.** Визуализация повреждений передней (верхней) и тыльной (нижней) поверхностей мишени ZnSe, полученных при указанных значениях длительности и энергии лазерного излучения с длиной волны 1030 nm.

значение  $\approx -4 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$ . Это может быть причиной такого разного поведения пропускания излучения сквозь образец (рис. 2). Если для первой гармоники

наблюдается монотонное изменение пропускания, то для второй гармоники можно отметить несколько участков с разным углом наклона кривой пропускания от интенсив-

Таблица

$\tau$ , ps	0.3	2	10
$F_{th1}/F_{th2}$ , J/cm <sup>2</sup>	$(0.13 \pm 0.03)/(1.6 \pm 0.4)$	$(0.28 \pm 0.05)/(1.2 \pm 0.2)$	$(0.4 \pm 0.07)/(1.45 \pm 0.22)$
$w_{abl1}/w_{abl2}$ , $\mu\text{m}$	$(3.5 \pm 0.5)/(10 \pm 1)$	$(3.7 \pm 0.5)/(7.2 \pm 2)$	$(3.8 \pm 0.3)/(7.3 \pm 0.3)$

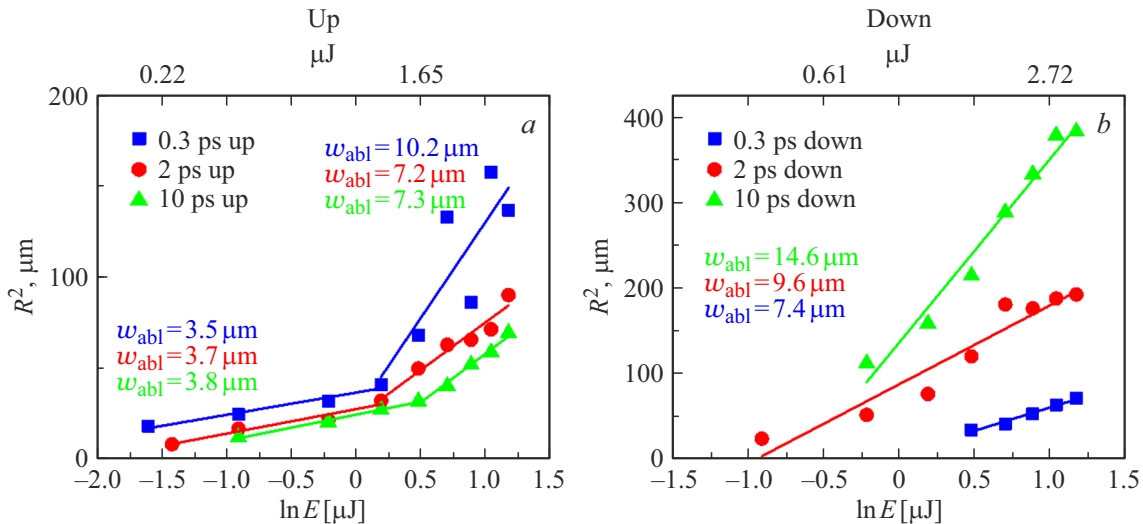


Рис. 4. Зависимости квадрата радиуса абляции вблизи фокуса на верхней и нижней поверхностях мишени от логарифма энергии.

ности с выходом в насыщение поглощения в области 3–5 TW/cm<sup>2</sup>, о чем ранее в работах по измерению нелинейных свойств ZnSe не сообщалось.

Для положительного значения нелинейного показателя преломления будет возникать филаментация при достижении критической мощности самофокусировки  $P_{cr} \approx 0.02 \pm 0.01$  MW, рассчитанной по формуле  $P_{cr} = 3.77\lambda^2/8\pi n_0 n_2$ .

При сканировании через образец на передней и тыльной стороне возникали абляционные повреждения поверхности. Повреждения в объеме не удалось обнаружить с помощью оптического поляризационного микроскопа. Сканирование образца начиналось, когда фокус лазерного излучения был над поверхностью, и заканчивалось, когда фокус был ниже образца. Примеры топологии поверхностных повреждений в зависимости от длительности и энергии лазерного излучения представлены на рис. 3.

Для передней поверхности мы наблюдаем наиболее аккуратные повреждения для 0.3 ps, для 2 и 10 ps они приблизительно равны. Тогда как для тыльной стороны заметно уменьшение размера поврежденной области с уменьшением длительности лазерного излучения, что связано с нелинейным поглощением в образце. Для данного образца были измерены значения области протяжки лазерного излучения, представленные в виде зависимостей  $R^2 - \ln E$  (рис. 4). Из аппроксимации полученных зависимостей были получены значения пороговой плотности повреждения поверхности образца  $F_{th}$  [12].

При абляции верхней поверхности мы наблюдаем два участка с разными углами наклона зависимостей  $R^2 - \ln E$ , где корень из угла наклона кривой соответствует экспериментальному значению радиуса лазерного пятна в области фокусировки  $w_{abl}$  (по уровню 1/e). Для режима с низкими энергиями излучения наблюдается хорошее соответствие полученных значений пятна фокусировки с теоретическим значением 4  $\mu\text{m}$ . Тогда как для значений энергии более 1.5  $\mu\text{J}$  вклад в размер вносят нелинейные эффекты, связанные с экранизацией плазмы, филаментацией и др., поэтому величина  $w_{abl}$  значительно превышает значение геометрической фокусировки для данной оптической системы.

Интересно, что при фокусировке на нижней поверхности пятна получаются больше, чем на верхней, что также связывается с нелинейным взаимодействием в среде. При этом все значения лежат на одной кривой.

Расчетные значения пороговой плотности энергии абляции и радиуса пятна фокусировки лазерного излучения при различных длительностях импульсов, полученные из зависимостей  $R^2 - \ln E$ .

В таблице представлены пороговые значения плотности энергии абляции на верхней поверхности мишени, рассчитанные по формуле  $F_{th} = E_{abl}/\pi w_{abl}^2$ , где  $E_{abl}$  — пороговая энергия абляции, которая определяется путем экстраполяции кривой до нулевого значения ординаты.  $F_{th1}$  и  $w_{abl1}$  соответствуют низкоэнергетическому режиму, а значения  $F_{th2}$  и  $w_{abl2}$  — режиму с большими интенсивностями. При увеличении длительности импульса с 0.3 до 10 ps пороговое значение  $F_{th1}$  возрастает

примерно в 3 раза, тогда как значение  $F_{th2}$  остается в пределах 1.2–1.5 J/cm<sup>2</sup> и от длительности зависит слабо.

## Заключение

В ходе настоящей работы были исследованы нелинейные оптические свойства объемного поликристаллического образца ZnSe. Получены зависимости пропускания образца для ультракоротких лазерных импульсов, сфокусированных в объеме образца объективом NA 0.25 с варьируемой длительностью импульса 0.3–10 ps для длин волн 1030 и 515 nm в широком диапазоне интенсивностей 0.001–20 TW/cm<sup>2</sup>. Обнаружено отсутствие зависимости пропускания от длительности лазерного излучения. Обнаружено нелинейное поведение пропускания при облучении образца лазерным излучением с длиной волны 515 nm с насыщением поглощения в области 3–5 TW/cm<sup>2</sup>. Получены пороги абляционных повреждений поверхности в режиме многоимпульсной абляции, значения которых увеличиваются с длительностью лазерного импульса.

## Финансирование работы

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект № 21-79-30063).

## Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

## Список литературы

- [1] A. Deneuville, D. Tanner, P.H. Holloway. *Phys. Rev. B.*, **43** (8), 6544 (1991). DOI: 10.1103/PhysRevB.43.6544
- [2] A.A. Ionin, S.I. Kudryashov, K.E. Mikhin, L.V. Seleznev, D.V. Sinityn. *Laser Phys.*, **20** (8) 1778–1782 (2010). DOI: 10.1134/S1054660X10150028
- [3] V. Yurgens, J.A. Zuber, S. Flågan, M. De Luca, B.J. Shields, I. Zardo, P. Maletinsky, R.J. Warburton, T. Jakubczyk. *ACS Photonics.*, **8** (6), 1726–1734 (2021). DOI: 10.1021/acsp Photonics.1c00274
- [4] S. Schmitt-Rink, D.A.B. Miller, D.S. Chemla. *Phys. Rev. B.*, **35** (15), 8113 (1987). DOI: 10.1103/PhysRevB.35.8113
- [5] K.S. Bindra, H.T. Bookey, A.K. Kar, B.S. Wherrett, X. Liu, A. Jha. *Appl. Phys. Lett.*, **79** (13), 1939–1941 (2001). DOI: 10.1063/1.1402158
- [6] B. Derkowska, B. Sahraoui, X.N. Phu, W. Bala. *International Society for Optics and Photonics*, **4412**, 337–341 (2001). DOI: 10.1117/12.435856
- [7] H. Garcia, J. Serna, E. Rueda. *OSA Continuum*, **3** (3), 498–504 (2020). DOI: 10.1364/OSAC.379283
- [8] M. Sheik-Bahae, D.C. Hutchings, D.J. Hagan, E.W. Van Stryland. *IEEE J. Quantum Electronics*, **27** (6), 1296–1309 (1991). DOI: 10.1109/3.89946
- [9] T.D. Krauss, F.W. Wise. *Appl. Phys. Lett.*, **65** (14), 1739–1741 (1994). DOI: 10.1063/1.112901
- [10] M. Dabbicco, M. Brambilla. *Solid State Commun.*, **114** (10), 515–519 (2000). DOI: 10.1016/S0038-1098(00)00102-2
- [11] S. Kudryashov, P. Danilov, A. Rupasov, S. Khonina, A. Nalimov, A. Ionin, M. Kovalev. *Optical Materials Express*, **10** (12), 3291–3305 (2020). DOI: 10.1364/OME.412399
- [12] N.A. Smirnov, S.I. Kudryashov, P.A. Danilov, A.A. Rudenko, A.A. Ionin, A.A. Nastulyavichus. *JETP Lett.*, **108** (6), 368–373 (2018). DOI: 10.1134/S002136401818011X