

Температурные дисперсии показателей преломления и коэффициентов поглощения кристаллов тиогалата ртути в терагерцовом диапазоне частот

© Е.В. Строганова, Д.В. Бадиков, Г.С. Шевырдяева, В.В. Галуцкий

Кубанский государственный университет,
350040 Краснодар, Россия
e-mail: stroganova@kubsu.ru

Поступила в редакцию 12.05.2023 г.

В окончательной редакции 19.07.2023 г.

Принята к публикации 30.10.2023 г.

Проведены исследования ТГц спектров поглощения и преломления кристаллов HgGa_2S_4 различного состава в температурном диапазоне 300–400 К, обнаружено изменение показателей преломления для кристаллов в зависимости от их стехиометрии. Для нестехиометрических и стехиометрических образцов $\Delta n/\Delta T$ изменяется более чем в два раза от $1.3 \cdot 10^{-4}$ до $3.1 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$. Коэффициент поглощения исследуемых образцов в диапазоне 0.5–1.2 ТГц составил менее 20 cm^{-1} . Изменение показателя преломления HgGa_2S_4 в диапазоне 0.5–1.2 ТГц составило 3.42–3.55 при $T = 300 \text{ K}$.

Ключевые слова: тиогалат ртути, терагерцовый спектр, стехиометрия.

DOI: 10.61011/OS.2023.11.57018.5090-23

Введение

Интерес к получению ТГц излучения связан с развитием разнообразных приложений, включающих развитие концепции умного города из-за возросшей урбанизации, неразрушающий контроль в сельском хозяйстве, неинвазивные методы визуализации в медицине, развитие высокоскоростных средств связи [1]. Одним из способов получения ТГц излучения является реализация условий нелинейно-оптических преобразований в кристаллах при накачке лазерным излучением. HgGa_2S_4 как эффективный нелинейно-оптический материал вида $\text{A}^{\text{II}}-\text{B}_2^{\text{III}}-\text{C}_4^{\text{VI}}$ имеет халькопиритную структуру и принадлежит к группе $\bar{4}$. Кристаллы HgGa_2S_4 прозрачны в среднем ИК диапазоне, обладают в 1.8 раз большим нелинейным коэффициентом d_{36} , чем кристалл AgGaS_2 [2]. Различные нелинейно-оптические устройства, основанные на генерации разностной частоты, оптического параметрического усиления, реализованы на основе кристаллов HgGa_2S_4 , получена эффективная генерация излучения высокой мощности в среднем ИК диапазоне с непрерывной перестройкой по длине волны в диапазоне 4–12 μm [3,4].

В настоящее время ведутся интенсивные работы по исследованию режимов генерации ТГц излучения на нелинейно-оптических кристаллах, принадлежащих группе халькопирита [5]. Кроме того, важное направление исследований — обратная связь ТГц свойств и совершенствование технологии их выращивания. Широкополосная ТГц генерация реализована во многих важных нелинейно-оптических материалах, например, в ZnGeP_2 , AgGeSe_2 , через процессы генерации разностной частоты и оптическое выпрямление импульсов [6,7].

Однако HgGa_2S_4 как один из выдающихся кристаллов для накачки 1 μm лазерным излучением не исследовался в ТГц диапазоне частот. Потенциальное использование данного материала в ТГц диапазоне частот связано с характеристиками и анализом оптических свойств материала в этом диапазоне для оценки температурной подстройки условий согласования, оценки температурного рассогласования в случае взаимодействия мощного источника излучения.

Ранее авторами [8] было показано, что наличие отклонения от стехиометрии в составе нелинейно-оптических кристаллов приводит к различиям в температурной зависимости показателей преломления взаимодействующих волн в ТГц диапазоне. В настоящей работе представлены температурно-зависимые исследования коэффициентов преломления и поглощения в ТГц диапазоне кристаллов HgGa_2S_4 различного химического состава.

Характеристика объектов и методов исследования

Кристаллы тиогалата ртути HgGa_2S_4 — нелинейно-оптические кристаллы для преобразования лазерного излучения в среднем ИК диапазоне. В качестве объектов исследования выбраны кристаллы тиогалата ртути, выращенные в Лаборатории новейших технологий Кубанского государственного университета методом Бриджмена–Стокбаргера. Образцы кристаллов для исследований представлены кристаллом желтого цвета стехиометрического состава с объемными и поверхностными центрами люминесценции на длинах волн 580 и 550 nm соответственно и кристаллом оранже-

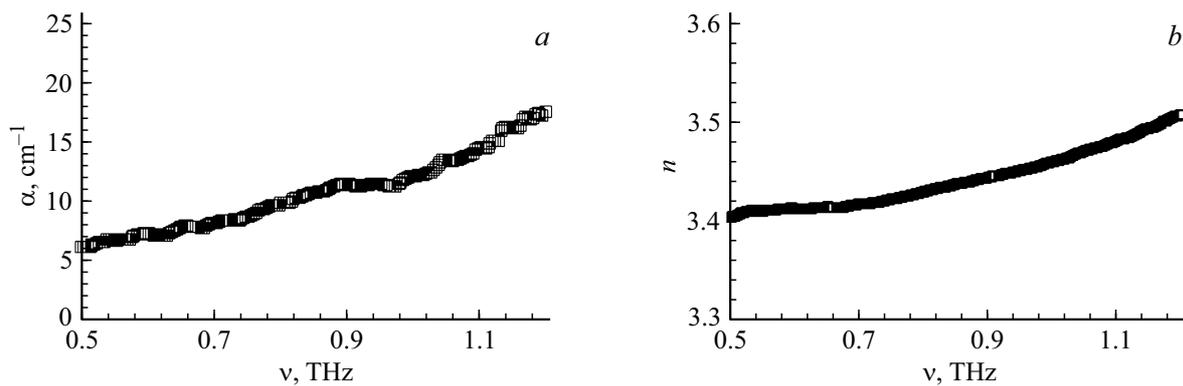


Рис. 1. Спектры поглощения (а) и преломления (b) образца № 1 при $T = 300$ К.

вого цвета нестехиометрического состава с избытком Ga_2S_3 с дополнительной полосой поглощения на 475 nm. Толщина образца № 1 составила 2.33 mm, толщина образца № 2 — 3.47 mm.

Измерения спектров кристаллов в ТГц диапазоне частот проводились с помощью спектрографа Menlo Teга K15 Kit. Нагревание образца и поддержание заданной температуры по сигналу хромель-алюмелевой термопары обеспечивалось контроллером Omron E5CK. Нагревание образцов проводилось в температурном диапазоне 300–400 К для предотвращения высокотемпературного окисления их поверхности и искажения характеристик. Для измерения спектров преломления и поглощения методами спектроскопии с временным разрешением применялось быстрое преобразование Фурье и соотнесение опорного сигнала с сигналом, зарегистрированным после прохождения образцов кристалла.

Экспериментальные результаты и их обсуждение

Полученные экспериментальные данные в виде спектров поглощения и преломления образца № 1 представлены на рис. 1. Диапазон регистрации сигнала составил 0.5–1.2 THz. Видно (рис. 1, а), что при частоте 1.2 THz значение коэффициента поглощения для образца HgGa_2S_4 нестехиометрического состава составляет 18 cm^{-1} . Данное значение коэффициента поглощения меньше, чем для кристаллов ниобата лития конгруэнтного и стехиометрического состава (для сравнения значение коэффициента поглощения на частоте 1.2 THz для кристалла ниобата лития составляет 36 cm^{-1} при $T = 300$ К [9]) сравнимо с значением 9.9 cm^{-1} коэффициента поглощения кристаллов ZnTe в диапазоне 1–2 THz [10], но превышает значение 3.25 cm^{-1} коэффициента поглощения кристаллов GaSe на частоте 1.04 THz [11]. Спектр преломления кристалла (рис. 1, б), измеренный при $T = 300$ К, показывает изменение показателя преломления в диапазоне 0.5–1.2 THz от значения 3.41 до значения 3.52. Даль-

нейшее изменение температуры образцов приводит к трансформации спектров поглощения и преломления (рис. 2, а). В случае спектров поглощения изменение температуры от 300 до 380 К не меняет значения коэффициента поглощения для частот 0.5–0.7 THz, но в области высокочастотных колебаний при изменении температуры наблюдается увеличение коэффициента поглощения с 13 до 14 cm^{-1} (1.1 THz). Для значений коэффициента преломления температурное изменение наблюдается во всем исследуемом частотном интервале (рис. 2, а). На рис. 2, а экспериментальные значения коэффициентов преломления аппроксимированы линиями. Из аппроксимирующего выражения найдены температурные значения изменения коэффициента преломления для кристалла HgGa_2S_4 нестехиометрического состава, который составил $0.13 \cdot 10^{-3} \text{ K}^{-1}$ во всем частотном диапазоне.

На рис. 2, б представлены соответственно температурные зависимости коэффициентов преломления кристалла HgGa_2S_4 стехиометрического состава (образец № 2). Коэффициент поглощения на низких частотах практически не зависит от температуры. Коэффициент преломления, измеренный на различных частотах диапазона 0.5–1.2 THz, показывает одинаковую температурную зависимость, температурная зависимость коэффициента преломления образца № 2, определенная линейной аппроксимацией значений, составила $3.1 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$. Уравнение аппроксимирующей линии для значений коэффициента преломления при разной температуре на частоте ν :

$$n(\nu) = \Delta n / \Delta T T + a, \quad (1)$$

где ν — частота в THz, T — температура в К, $\Delta n / \Delta T$ — температурный коэффициент показателя преломления образца, a — значение показателя преломления при 0 К.

Уравнение аппроксимирующей линии для значений коэффициента поглощения:

$$\alpha(\nu) = \Delta \alpha / \Delta T T + b, \quad (2)$$

где $\Delta \alpha / \Delta T$ — температурный коэффициент поглощения образца, b — значение коэффициента поглощения при 0 К.

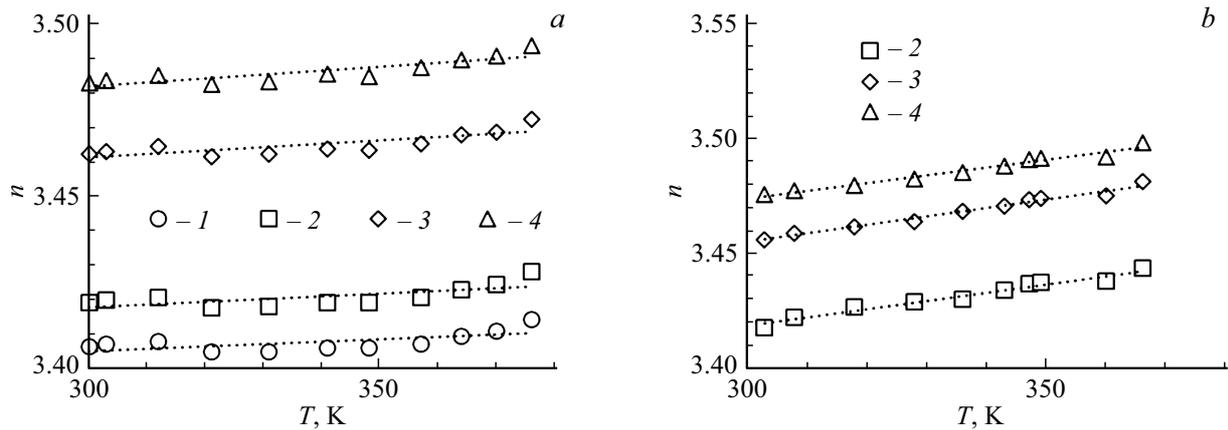


Рис. 2. Зависимости изменения коэффициента преломления образцов № 1 (а) и № 2 (b) на частотах $\nu = 0.5$ (1), 0.7 (2), 1.0 (3), 1.1 THz (4) от температуры.

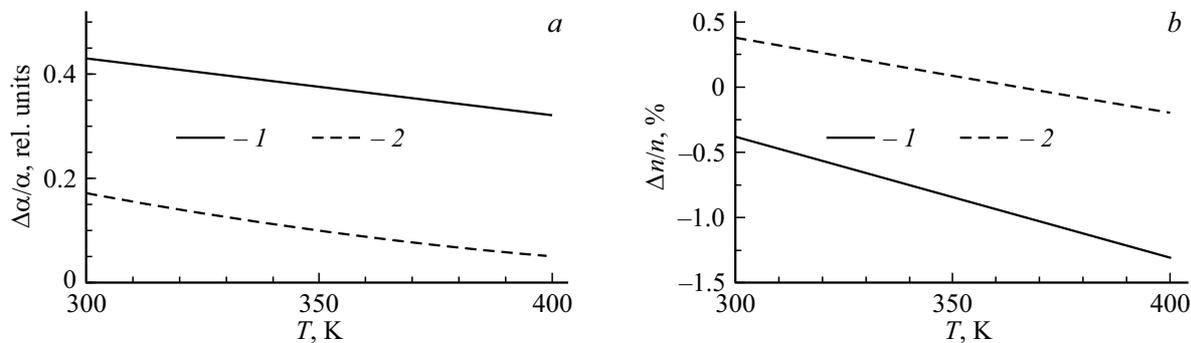


Рис. 3. Зависимости изменения коэффициента поглощения (а) и коэффициента преломления (b) образца 1 относительно образца 2 на частотах 0.7 (1) и 1.1 THz (2) от температуры.

На рис. 3, а, b представлены спектры температурного изменения коэффициентов поглощения и преломления для образцов 1 и 2, измеренные на частотах 0.7 THz (сплошная линия) и 1.1 THz (штриховая линия). Разница в поведении между спектрами поглощения для исследуемых образцов стехиометрического и нестехиометрического состава в температурном диапазоне 300–400 К характеризуется одинаковым наклоном при изменении температуры. При повышении температуры разница между коэффициентами поглощения двух образцов кристаллов стремится к нулю с одинаковой скоростью, т.е. для всего ТГц спектра (рис. 3, а). При анализе температурного поведения разницы коэффициентов преломления обнаруживается разная скорость уменьшения различий между образцами стехиометрического и нестехиометрического состава (рис. 3, b): для высокочастотной части спектра (1.1 THz) разница между коэффициентами сокращается и при температуре 360 К равняется нулю. При дальнейшем повышении температуры разница меняет знак и большим значением коэффициента преломления на частоте 1.1 THz теперь обладает образец стехиометрического состава (образец № 2). Для температурной зависимости в низкочастотной части спектра преломления (0.7 THz) изменения коэффициен-

тов преломления показывают увеличение разницы с повышением температуры (рис. 3, b).

Полученные значения показателей преломления в частотном диапазоне 0.5–1.2 THz показывают сильную температурную зависимость для образцов стехиометрического состава (более чем в 2 раза выше температурный коэффициент), чем для образцов, выращенных с избытком Ga_2S_3 нестехиометрического состава. Данное различие в температурном поведении коэффициентов преломления можно объяснить более устойчивой нестехиометрической фазой (ближе к точке конгруэнтного плавления). Также данное различие в температурной зависимости коэффициентов преломления способствует, с одной стороны, более широкому диапазону температурной подстройки для взаимодействующих волн, с другой — требует учета термооптических искажений в случае преобразования мощных лазерных источников накачки.

Заключение

Проведены исследования ТГц спектров поглощения и преломления кристаллов титогалата ртути различного

состава в температурном диапазоне 300–400 К, обнаружено изменение показателей преломления для кристаллов в зависимости от их стехиометрии. Для оранжевых (нестехиометрических) и стехиометрических образцов $\Delta n/\Delta T$ изменяется более чем в два раза — от $3.1 \cdot 10^{-4}$ до $1.3 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$. Коэффициент поглощения исследуемых образцов титогалата ртуты в диапазоне 0.5–1.2 ТГц составил менее 20 cm^{-1} . Изменение показателя преломления исследуемых образцов титогалата ртуты в диапазоне 0.5–1.2 ТГц составило 3.42–3.55 при $T = 300 \text{ K}$.

Полученный результат способствует широкому диапазону температурной подстройки для взаимодействующих волн для образцов стехиометрического состава, с другой стороны, требует учета термооптических искажений в случае преобразования мощных лазерных источников накачки.

Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке проекта FZEN-2023-0006.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] A.P. Aji, C. Apriono, E.T. Rahardjo. *IEEE Access*, **11**, 29323 (2023). DOI: 10.1109/ACCESS.2023.3260213
- [2] G. Marchev, M. Reza, V. Badikov, A. Esteban-Martin, G. Stöppler, M. Starikova, D. Badikov, V. Panyutin, M. Eichhorn, G. Shevyrdyaeva, A. Tyazhev, S. Sheina, A. Agnesi, A. Fintisova, V. Petrov. In: *CLEO Applications and Technology 2014: QELS Fundamental Science*, (Optica, 2014), p. JT4A.113. DOI: 10.1364/CLEO_AT.2014.JT4A.113
- [3] S. Popien, M. Beutler, I. Rimke, D. Badikov, V. Badikov, V. Petrov. *Optical Engin.*, **57** (11), 111802 (2018). DOI: 10.1117/1.oe.57.11.111802
- [4] V.V. Badikov, A.K. Don, K.V. Mitin, A.M. Seregin, V.V. Sinaiskii, N.I. Schebetova, T.A. Shchetinkina. *Quantum Electronics*, **37** (4), 363 (2007). DOI: 10.1070/QE2007v037n04ABEH013376
- [5] H. Qiao, K. Zhong, F. Li, X. Zhang, Z. Yuan, B. Kang, D. Xu, J. Yao. *Opt. Mat.*, **119**, 111300 (2021). DOI: 10.1016/j.optmat.2021.111300
- [6] W. Qiao, H. Çankaya, A. Hartin, F. Ahr, T. Kroh, P.G. Schunemann, K. Zawilski, N.H. Matlis, F.X. Kärtner. *Conference on Lasers and Electro-Optics OSA Technical Digest* (online) (Optica, 2018), p. JT2A.116. DOI: 10.1364/CLEO_AT.2018.JT2A.116
- [7] B.N. Carnio, K.T. Zawilski, P.G. Schunemann, A.Y. Elezzabi. *Proc. SPIE* **11279**, 1127913 (2020). DOI: 10.1117/12.2546516
- [8] V.V. Galutskiy, S.S. Ivashko. *J. Optical Technology*, **87** (1), 55 (2020). DOI: 10.1364/JOT.87.000050
- [9] L. Pálfalvi, J. Hebling, J. Kuhl, Á. Péter, K. Polgár. *J. Appl. Phys.*, **97** (12), 123505 (2005). DOI: 10.1063/1.1929859
- [10] G. Gallot, J. Zhang, R.W. McGowan, T.-I. Jeon, D. Gri-schkowsky. *Appl. Phys. Lett.*, **74** (23), 3450 (1999). DOI: 10.1063/1.124124
- [11] S. Tochitsky, C. Sung, S. Trubnick, C. Joshi, K. Vodopyanov. *JOSA B: Opt. Phys.* **24**, 2509 (2007). DOI: 10.1364/JOSAB.24.002509