

ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ БЮДЖЕТНОЕ  
ОБРАЗОВАТЕЛЬНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ  
«МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ  
имени М.В.ЛОМОНОСОВА»

ФИЗИЧЕСКИЙ ФАКУЛЬТЕТ

КАФЕДРА ОБЩЕЙ ФИЗИКИ И ВОЛНОВЫХ ПРОЦЕССОВ

«Импульсная терагерцовая спектроскопия и генерация терагерцового  
излучения в кристалле сульфата никеля»

Выпускная работа  
На степень бакалавра физики  
Студента 425 группы  
Резникова К.Е.

---

Научный руководитель:  
д.ф.-м.н., проф. Шкуринов А.П.

---

Допущена к защите

« \_\_\_\_ » \_\_\_\_\_ 2021г.

Зав. кафедрой ОФиВП

д.ф.-м.н., проф. Макаров В.А. \_\_\_\_\_

# Оглавление

Введение . . . . .	2
Обзор литературы . . . . .	6
Теоретическое описание экспериментальных методов . . . . .	10
Предмет исследований - кристалл гексагидрата сульфата никеля, $\alpha$ – <i>NSH</i> . . . . .	14
Экспериментальная реализация . . . . .	16
Результаты . . . . .	20
Заключение . . . . .	26
Список использованных источников . . . . .	28

## ВВЕДЕНИЕ

Терагерцовое излучение – это электромагнитное излучение, лежащее в дальнем инфракрасном диапазоне шкалы электромагнитных волн, происходящее на частотах в интервале от 0.3 ТГц до 10 ТГц. Уникальные свойства терагерцовых (ТГц) волн, такие как неионизирующее действие, прозрачность для большинства неметаллов, сильная связь дипольно-разрешённых вращательных и колебательных переходов молекул с ТГц частотами, делают этот диапазон интересным для изучения. Кроме того, в окружающем нас мире существует множество источников ТГц-излучения, так как, часть теплового излучения человеческого тела как раз попадает на ТГц диапазон.

Появившиеся в начале второй половины двадцатого века когерентные источники лазерного излучения (He-Ne ларез, рубиновый лазер и т.д.) не позволяли получать излучение в дальней инфракрасной зоне (ТГц). Только в 00-ых годах двадцать первого столетия с помощью квантового каскадного лазера удалось добиться генерации излучения в ТГц диапазоне.

Сейчас с развитием сверхкоротких световых импульсов стало возможным создание множества простых источников терагерцового излучения, например, фотомиксеров, квантового каскадного лазера (ККЛ), антенн, в которых происходит фотовозбуждение носителей заряда. Определенный интерес представляют нелинейные кристаллы, которые по сравнению с другими методами отличаются, во-первых, повышенной лучевой стойкостью по сравнению с антеннами, во-вторых, возможностью генерации излучения во всем терагерцовом диапазоне, за исключением фононных линий, в-третьих, большими значениями напряженности электрического поля терагерцового излучения, на выходе из кристалла. Так, в схеме с кристаллом  $\text{LiNbO}_3$  [1], на который падают фемтосекундные

импульсы с наклонным фронтом интенсивности, напряженность электрического поля терагерцового излучения может превышать  $100 \frac{\text{кВ}}{\text{см}}$ , данный способ является наиболее эффективным методом оптико-терагерцового преобразования фемтосекундных импульсов.

Для того чтобы выяснить является ли кристалл способным генерировать ТГц излучение, необходимо знать его комплексный показатель преломления. Данная величина дает возможность определять отклик образца на внешнее воздействие и дает полную характеристику спектральных свойств в том или ином частотном диапазоне. Так, реальная часть показателя преломления характеризует зависимость от частоты фазовой скорости волны  $v = \frac{c}{n}$ , распространяющейся в среде. А мнимая часть - зависимость затухания амплитуды волны от частоты. Кроме того, современные источники ТГц излучения позволяют получать импульсы с большой энергией, такое обстоятельство позволяет наблюдать нелинейные процессы происходящие в среде в этом спектральном диапазоне. Чтобы теоретически описать нелинейные эффекты, происходящие в среде (например, эффект Керра), необходимо знать нелинейный показатель преломления этой среды. Для его определения используются такие методы спектроскопии, как Z-сканирование и I-сканирование. Имея точные значения комплексного показателя преломления и нелинейных параметров среды, можно определить физическую природу электромагнитного отклика материала на внешнее воздействие. Благодаря этим точным данным, вычисленным в терагерцовом диапазоне, можно создавать оптические системы для терагерцовых приложений и манипулирования ТГц излучением.

В данной работе исследуется гексагидрат сульфата никеля:  $\alpha\text{-NiSO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ , это отрицательный одноосный кристалл с тетрагональной сингонией, с существованием хиральности вдоль оптической оси Z. Согласно работе: [2] кристалл имеет аномально большую восприимчивость третьего порядка в видимом диапазоне  $\chi^{(3)} = 4.0481 * 10^{-15} \frac{\text{м}^2}{\text{В}^2}$  (к примеру, значение у GaAs в оптическом диапазоне  $\chi^{(3)} = 1.4 * 10^{-18} \frac{\text{м}^2}{\text{В}^2}$ ), что делает его интересным для изучения его нелинейных свойств в терагерцовом

диапазоне. Если кристалл имеет еще большую  $\chi^{(3)}$  в ТГц части спектра, то представляет особый интерес проверить терагерцовый эффект Керра в этом кристалле.

Для определения комплексного показателя преломления в дальнем инфракрасном диапазоне используется импульсная терагерцовая спектроскопия, принцип работы которой основан на стробировании ТГц импульса, прошедшего через изучаемый объект, импульсом зондирующего лазера. Затем применяется преобразование Фурье к зависимости напряженности электрического поля терагерцового импульса от времени задержки между оптическим излучением и терагерцовым. Чтобы найти нелинейные параметры среды, такие как показатель преломления и коэффициент поглощения использовалось Z-сканирование.

Практическая ценность данной работы состоит в определении пиков поглощения в ТГц диапазоне для кристалла гексагидрата сульфата никеля при комнатной и при низких температурах (до 11 К). Данные провалы не были ранее зарегистрированы научным сообществом. Были проведены оценки для нелинейной восприимчивости третьего порядка, нелинейных коэффициента поглощения и показателя преломления в ТГц диапазоне. Данные значения могут быть использованы для создания электрооптических детекторов. В процессе исследования была сформулирована следующая цель:

1. Описание спектральных характеристик и нелинейных свойств кристалла гексагидрата сульфата никеля в терагерцовом диапазоне, исследование генерации ТГц излучения в кристалле.

Для достижения цели поставлены задачи:

1. Экспериментальная реализация импульсной спектроскопии, генерации ТГц излучения.
2. Определение спектральных характеристик кристалла сульфата никеля в ТГц диапазоне.
3. Построение стационарной установки для Z-сканирования.

4. Оценка нелинейных параметров исследуемого кристалла, в частности, вычисление  $\chi^{(3)}$  в ТГц диапазоне.

## ОБЗОР ЛИТЕРАТУРЫ

Метод импульсной терагерцовой спектроскопии.

В начале 1970-ых Николсоном и Россом был предложен абсолютно новый метод временной спектроскопии [3]. Согласно основной идее, при прохождении короткого импульса через исследуемую среду временной профиль импульса претерпевал изменения, которые в дальнейшем детектировались. Были получены временные профили отраженных и прошедших через образец импульсов, к которым затем применялось Фурье преобразование. Из параметров отражения и пропускания Николсон и Росс считали комплексную диэлектрическую проницаемость. Продолжая свои исследования, авторы в своей работе определили комплексную диэлектрическую проницаемость тефлона в диапазоне от 0.1 до 100 ГГц.

Через несколько лет данный метод был применен научной группой под руководством Д. Остоном из лаборатории Белла, но уже для высоких частот [4]. Чтобы приблизиться к терагерцовому диапазону Остон использовал пикосекундные импульсы, полученные с лазера с синхронизацией мод, которые распространялись в исследуемой среде и когерентно регистрировались фотопроводящим детектором. Фотоиндуцированные оптической накачкой носители заряда ускорялись ТГц излучением и детектировался ток смещения, пропорциональный ТГц полю. Результатом работ стало получение динамического диапазона в 60 dB. Использование фотопроводящих антенн в качестве детекторов привело к развитию первых излучателей и детекторов ТГц волн.

Наряду с методами детектирования развивались методы генерации терагерцового излучения. В 1971 году впервые была продемонстрирована методика генерации ТГц излучения с помощью оптического выпрямления

в кристалле  $LiNbO_3$  [5]. С появлением фемтосекундных импульсов реализация оптического выпрямления стала наиболее простой, такой импульс состоит из множества гармоник, которые на основе явления генерации на разностной частоте в нелинейном кристалле преобразовываются в ТГц излучение. Такой метод получил широкое распространение в электрооптическом кристалле  $ZnTe$ , в котором благодаря равенству фазовой скорости оптических фемтосекундных импульсов и фазовой скорости ТГц импульсов реализуется фазовый синхронизм [6].

Фотопроводящая антенна используется не только в качестве детектора, но и в качестве источника ТГц излучения.

На сегодняшний день наиболее эффективным методом оптико-терагерцового преобразования фемтосекундных импульсов является улучшенная версия предыдущего метода - выпрямление оптических импульсов со скошенным фронтом интенсивности в  $LiNbO_3$ . Такой метод позволяет получать энергию терагерцовых импульсов до 100 мДж [7], однако, главный недостаток метода - его сложная юстировка.

Терагерцовое излучение можно получать не только с помощью кристаллов, но и с помощью оптического пробоя газа. Так как, воздух и другие газы не имеют характерных линий поглощения в ТГц диапазоне, в отличие от кристаллов, и не нужно учитывать лучевую стойкость, то данный способ намного лучше чем оптическое выпрямление в кристаллах. Обычно для получения плазмы, которая является источником ТГц импульсов, используют нелинейный кристалл ВВО, после которого поле складывается из оптического излучения на основной частоте, второй гармоники и ТГц излучения от оптического выпрямления в кристалле [8]. Благодаря, собирающей линзе данное поле фокусируется в перетяжку, в которой образуется - плазма.

Основной схемой для большинства спектральных измерений сегодня является импульсная терагерцовая спектроскопия. Эта схема включает все вышеперечисленные способы детектирования и генерации ТГц излучения. В качестве источника ТГц импульсов может быть либо плазма, либо электрооптический кристалл, либо фотопроводящая антенна. В



качестве детектора часто используется балансный детектор, состоящий из электрооптического кристалла, в котором стробируется видоизмененный временной профиль ТГц импульса, призмы Волластона, пластинки  $\frac{\lambda}{4}$  и двух фотодетекторов. Так, в работе [9] показали, что такая схема детектирования регистрирует мощность ТГц излучения в 5 раз большую, чем при тех же условиях фотопроводящая антенна.

Z-сканирование.

Другая используемая для описания нелинейных явлений схема, которая называется Z-сканирование, была впервые представлена в 1989 году [10]. В этой схеме регистрируется зависимость коэффициент пропускания излучения, прошедшего через образец, от перемещения образца в окрестности перетяжки излучения, сфокусированного линзой. Ключевая идея - включение различных нелинейных процессов, при изменении (увеличении) интенсивности падающего на образец излучения. С помощью этого метода можно определить нелинейный показатель преломления, возникающий при прохождении излучения через среду, а также метод позволяет вычислить нелинейную оптическую восприимчивость третьего порядка. Достоинства Z-сканирования - его простота в экспериментальной реализации, высокая чувствительность и возможность описания нелинейных процессов, таких как эффект Керра, двух-фотонное поглощение. Z-сканирование бывает двух видов: с открытой и с закрытой апертурой. Первый метод позволяет определять нелинейный коэффициент поглощения, второй - нелинейный показатель преломления.

Схожий способ определения нелинейных параметров среды - I-сканирование. Образец находится в перетяжке излучения, в которой меняется интенсивность, детектируется зависимость пропускания от интенсивности. Данный метод выделяется от Z-сканирования тем, что он позволяет определить нелинейную восприимчивость нанокompозитной среды, в то время когда z-сканирование чрезвычайно требовательно к однородности образца [11].

В данной работе учтены достоинства и недостатки вышеописанных

способов генерации и детектирования ТГц излучения. В исследовании была использована схема импульсного терагерцового спектрометра, в котором генерация ТГц излучения происходила в результате оптического пробоя воздуха в фокусе собирающей линзы. Детектирование осуществлялось балансным детектором. В работе 2016 года [2] были определены нелинейные коэффициент поглощения, показатель преломления и нелинейная восприимчивость 3 порядка для длины волны  $\lambda = 632.8\text{нм}$ .  $\beta_2 = 0.72074 * 10^{-3} \frac{\text{М}}{\text{Вт}}$ ,  $n_2 = 3.56 * 10^{-9} \frac{\text{см}^2}{\text{Вт}}$ ,  $\chi^{(3)} = 4.0481 * 10^{-15} \frac{\text{М}^2}{\text{В}^2}$  [2]. Эти данные были сравнены со значениями в ТГц диапазоне, полученными в данном исследовании с помощью упомянутого метода Z-сканирования, в котором ТГц излучение было получено в результате выпрямления оптических импульсов с наклонным фронтом интенсивности в кристалле  $\text{LiNbO}_3$ .

## ТЕОРЕТИЧЕСКОЕ ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ МЕТОДОВ

### Импульсная терагерцовая спектроскопия

Основная идея импульсной спектроскопии это детектирование изменений временного профиля терагерцового импульса, прошедшего через исследуемый образец.

В импульсной ТГц спектроскопии сверхкороткий импульс расщепляется на импульсы зондирующий и накачки. Схема представлена на рисунке №1. Импульс накачки используется для генерации ТГц излучения, которое может быть получено с помощью эффекта оптического выпрямления или через четырехволновое смешение в плазме, образовавшейся в фокусе собирающей линзы после нелинейного кристалла, например, ВВО. Данное излучение проходит через исследуемую среду, после которой временной профиль ТГц импульса претерпевает изменения. Далее ТГц и зондирующие импульсы попадают на электрооптический кристалл (ZnTe, GaP), в котором ТГц импульс наводит анизотропию, то есть, изменяет коэффициенты тензора диэлектрической восприимчивости. Одновременно с этим при прохождении через кристалл зондирующего линейно-поляризованного импульса происходит изменение его поляризации, которая преобразуется балансным детектором в изменение интенсивности. В импульсных спектрометрах присутствует линия задержки, благодаря которой есть возможность получения зависимости напряженности электрического поля от времени задержки, к данной зависимости применяется преобразование Фурье.

$$E(\omega) = \int E(\tau) \exp(-i\omega\tau) d\tau = |E(\omega)| \exp(i\phi(\omega)) \quad (1)$$

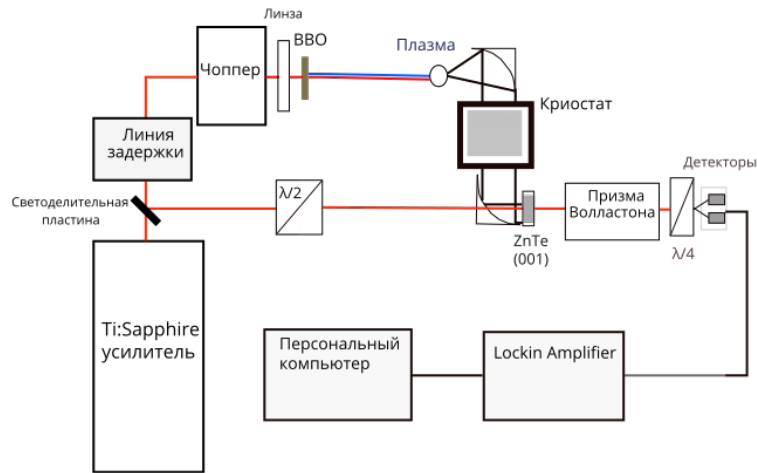


Рис. 0.1: Схема импульсного терагерцового спектрометра, в котором ТГц генерируются с помощью четырехволнового смещения в плазме

Зная зависимость фазы комплексной напряженности электрического поля ТГц импульса от частоты можно получить реальную часть комплексного показателя преломления:

$$n_{real} = 1 + \frac{\phi(\omega)c}{\omega d} \quad (2)$$

Где  $d$  - толщина образца.

Показатель поглощения можно найти, зная модули напряженностей электрических полей опорного сигнала (распространение ТГц импульса через воздух) и прошедшего через среду сигнала:

$$\alpha(\omega) = \frac{1}{d} \ln\left(\frac{|E_R|}{|E_S|}\right) \quad (3)$$

## Z-сканирование

Концепция Z-сканирования, представленного на рисунке №2, заключается в детектировании зависимости коэффициента пропускания падающего на образец лазерного излучения от координаты положения образца. Излучение фокусируется собирающей линзой (Л1), образуется сходящийся пучок, перетяжка ( $Z=0$ ), затем излучение с помощью второй собирающей линзы (Л2) преобразуется в параллельный пучок, интегральная мощность которого регистрируется детектором. В область

перетяжки вставляется образец, так как электромагнитное поле излучения в данной области сильно неоднородно, то при перемещении исследуемой среды вдоль перетяжки происходит изменение интенсивности падающего излучения. Приближаясь к точке с максимальной интенсивностью падающего излучения, в среде проявляются нелинейные процессы, например, самофокусировка, двух-фотонное поглощение и так далее. Необходимо проводить Z-сканирование с открытой и закрытой апертурами, на рисунке №3 представлены типичные зависимости коэффициента пропускания от координаты  $z$ . Метод открытой апертуры позволяет определить нелинейный коэффициент поглощения  $\beta$ , а, благодаря методу с закрытой апертурой, используя данные для поглощения  $\beta$ , есть возможность вычисления нелинейных показателя преломления  $n_2$  и восприимчивости третьего порядка  $\chi^3$ .

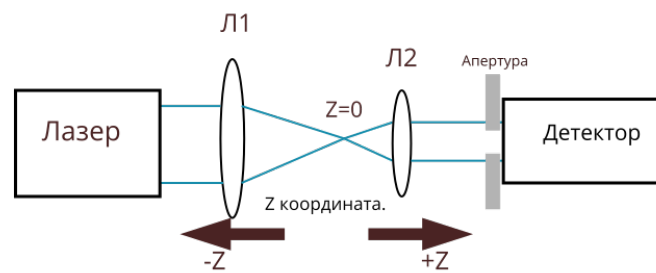


Рис. 0.2: Общий вид экспериментальной схемы Z-сканирования

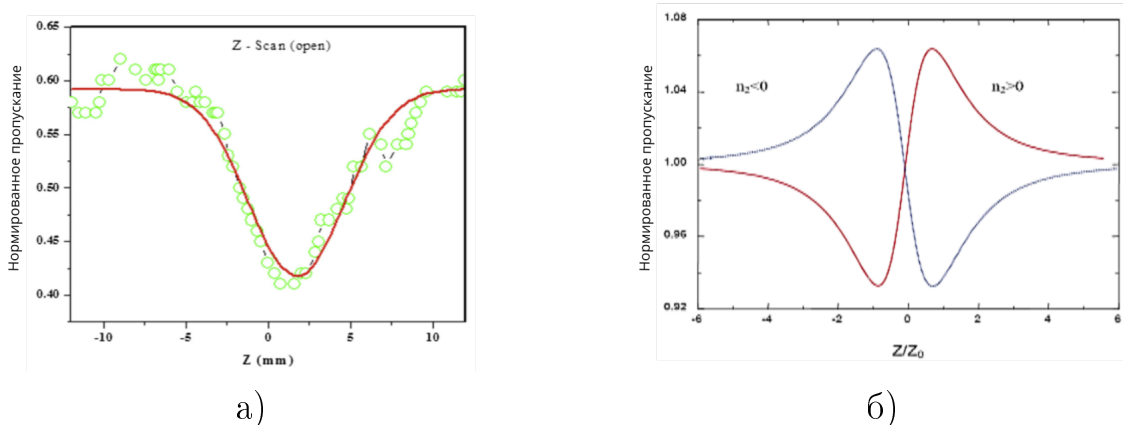


Рис. 0.3: Характерные зависимости пропускания от координаты  $z$  для Z-сканирования с а) открытой апертурой, б) закрытой апертурой.

Согласно работе [12], представим поляризацию среды в виде разложения:  $\tilde{P} = \epsilon_0[\chi^{(1)}\tilde{E} + \chi^{(2)}\tilde{E}\tilde{E} + \chi^{(3)}\tilde{E}\tilde{E}\tilde{E}^*]$ , получим следующее

выражение для индукции электрического поля:  $\tilde{D} = \epsilon_0 \tilde{E} + \tilde{P} = \epsilon_0(1 + \tilde{\chi})\tilde{E} = \epsilon\tilde{E}$ , где скалярное выражение для  $\tilde{\chi}$  имеет следующий вид:  $\chi(\omega) = \chi^{(1)}(\omega) + 3\chi^{(3)}(\omega)|E|^2$ . Раскладывая диэлектрическую проницаемость и комплексный показатель преломления на реальную и мнимую части:  $\epsilon = \epsilon_1 + i\epsilon_2$ ,  $\tilde{n} = n + ik$  и учитывая изменение показателя преломления и коэффициента поглощения под действием сильного внешнего электромагнитного поля ( $n = n_0 + n_2I$ ,  $\alpha = \alpha_0 + \beta I$ ;  $k = \frac{\lambda\alpha}{4\pi}$ ,  $k = k_0 + k_2I$ ) можно получить следующие выражения для мнимой и реальной частей  $\chi^{(3)}$ :

$$\chi_R^{(3)} = 4n_0\epsilon_0\frac{c}{3}(n_0n_2 - k_0k_2) \quad (4)$$

$$\chi_I^{(3)} = 4n_0\epsilon_0\frac{c}{3}(n_0k_2 + k_0n_2) \quad (5)$$

Отмечу, что данные соотношения были получены в предположении, что среда centrosymmetric. Если принять, что в среде незначительное поглощение ( $\alpha_0 \simeq 0$ ), то формулы упрощаются:  $\chi_R^{(3)} = n_0^2\epsilon_0\frac{4c}{3}n_2$ ,  $\chi_I^{(3)} = n_0^2\epsilon_0\frac{c}{3\pi}\beta$ .

С помощью Z-сканирования с открытой апертурой можно оценить  $\beta$ , а из Z-сканирования для закрытой апертуры -  $n_2$  [2]:

$$\beta = \frac{2\sqrt{2}\Delta T}{I_0L_{eff}} \quad (6)$$

$$n_2 = \frac{\Delta\phi}{kI_0L_{eff}} \quad (7)$$

Где  $\Delta\phi = \frac{\Delta T_{p-v}}{0.406(1-S)^{0.25}}$ ,  $\Delta T_{p-v}$  - разница максимального нормированного пропускания и минимального из Z-сканирования с закрытой апертурой,  $\Delta T_{p-v}$  - высота кривой для нормированного пропускания из Z-сканирования для открытой апертуры.  $L_{eff} = \frac{1 - e^{-\alpha L}}{\alpha}$  - эффективная длина,  $\alpha$  - линейный показатель поглощения. S - апертурная функция, интенсивность излучения в перетяжке фокусирующей линзы.

## ПРЕДМЕТ ИССЛЕДОВАНИЙ - КРИСТАЛЛ ГЕКСАГИДРАТА СУЛЬФАТА НИКЕЛЯ, $\alpha - NSH$

Данная работа посвящена исследованию спектральных свойств гексагидрата сульфата никеля. Полная формула:  $\alpha - NiSO_4 \cdot 6H_2O$ .  $\alpha - NSH$  - отрицательный одноосный кристалл с тетрагональной сингонией (смотри рисунок №4), относится к точечной группе  $P422$ , его структура не обладает центром инверсии из-за существования хиральности вдоль оптической оси  $Z$  [13]. Кристалл является диамагнетиком с пьезоэлектрическими свойствами [14].



Рис. 0.4: а) Тетрагональная сингония  $\alpha - NSH$ , б) Расположение сульфатных групп вокруг никелиевого октаэдра.

Структуру  $\alpha - NiSO_4 \cdot 6H_2O$  образуют слои, внутри которых октаэдр  $[Ni(H_2O)_6]^{2+}$  и тетраэдры  $[SO_4]^{2-}$ . Каждый такой октаэдр соединён с тетраэдрами с помощью водородной связи (смотри рисунок №4). Такие группы связаны между собой не только внутри одного слоя, но и между слоями [15].

Тензор диэлектрической восприимчивости кристалла выглядит

следующим образом:  $\begin{pmatrix} \epsilon_1 & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_1 & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_2 \end{pmatrix}$  Согласно работе [2], данный кристалл

имеет следующие нелинейные параметры в оптическом диапазоне :  $\beta_2 = 0.72074 * 10^{-3} \frac{\text{М}}{\text{Вт}}$ ,  $n_2 = 3.56 * 10^{-9} \frac{\text{см}^2}{\text{Вт}}$ ,  $\chi^3 = 4.0481 * 10^{-15} \frac{\text{М}^2}{\text{В}^2}$ . С помощью спектрофотометра SHIMADZU были получены зависимости коэффициента экстинкции для данного кристалла при различных значениях толщин (рисунок №5).

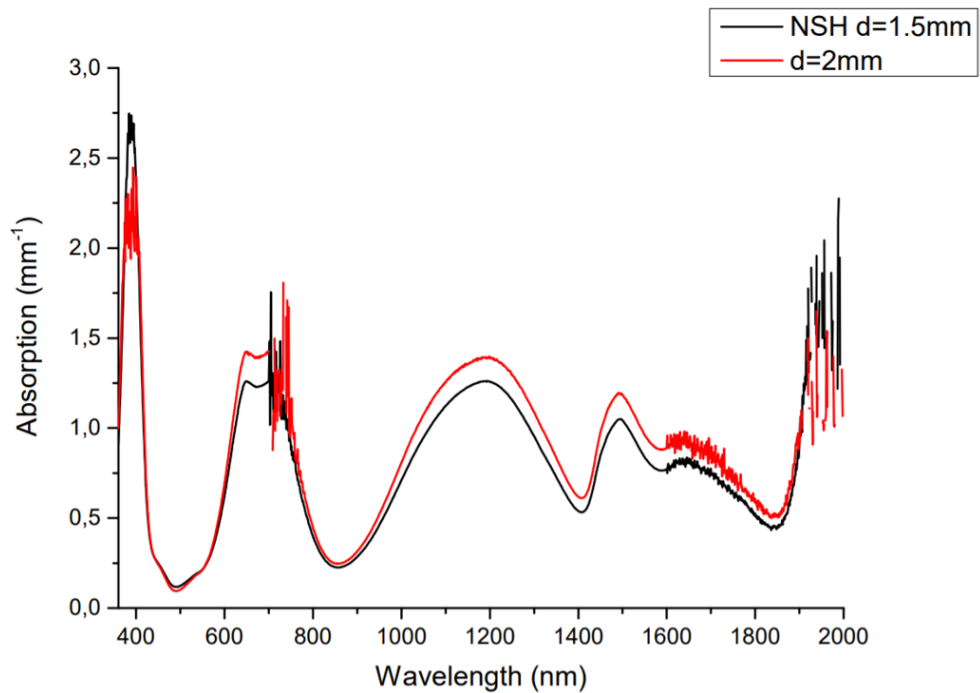


Рис. 0.5: Зависимость коэффициента экстинкции от длины волны для  $\alpha$  — *NSH*



## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ РЕАЛИЗАЦИЯ

В настоящей работе была использована схема импульсного спектрометра, в котором генерация терагерцового излучения была произведена через четырёхволновое смещение в воздухе после кристалла ВВО. Источником фемтосекундных импульсов с энергией  $E = 1.8$  мДж являлся Ti:Sapphire усилитель. Терагерцовое излучение, прошедшее через испытуемый образец, попадало на ZnTe, после чего зондирующий импульс с измененной поляризацией детектировался балансным детектором. В эксперименте испытуемый кристалл гексагидрата сульфата никеля толщиной  $d = 552$  мкм был помещен в перетяжку терагерцового излучения с вертикальной поляризацией так, чтобы оптическая ось кристалла была сонаправлена с поляризацией ТГц. С помощью криостата была получена возможность охлаждения образца до 11К. Все эксперименты проводились при относительной влажности воздуха в 12-14 %. На рисунке №6 присутствует схема экспериментальной установки.

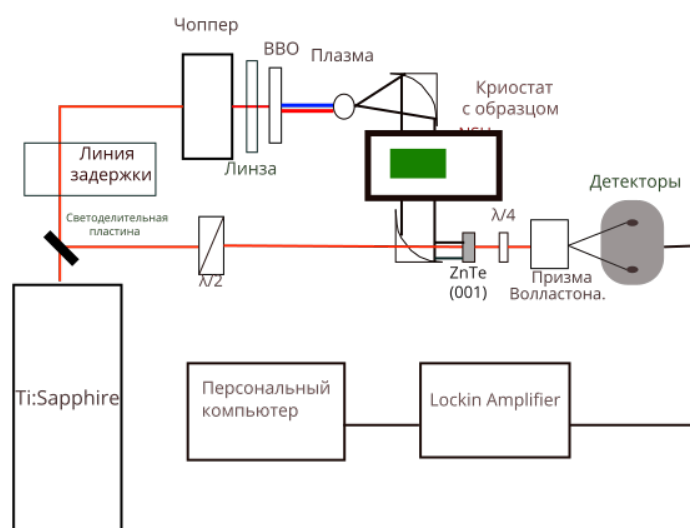


Рис. 0.6: Схема эксперимента по терагерцовой спектроскопии  $\alpha - NSH$

Проводился эксперимент по генерации ТГц излучения в кристалле. На рисунке №7 представлена экспериментальная схема. Фемтосекундное излучение после прохождения через линзу с фокусным расстоянием 25 см преобразовывалось в сходящийся пучок, на пути которого располагался сульфат никеля. Далее, в результате оптико-терагерцового преобразования в кристалле ТГц излучение попадало на электрооптический кристалл и наводило двулучепреломление. Зондирующий импульс менял поляризацию при прохождении через ЭО кристалл, изменение поляризации регистрировалось ячейкой Голея. Эксперимент проводился при температуре  $T=203\text{K}$ , интенсивности оптического излучения  $I = \frac{45\text{ мВт}}{9\text{ мм}^2}$ , относительной влажности 13%. ТГц излучение не было зарегистрировано. При больших значениях интенсивности оптического излучения, кристалл претерпевал постепенное плавление.

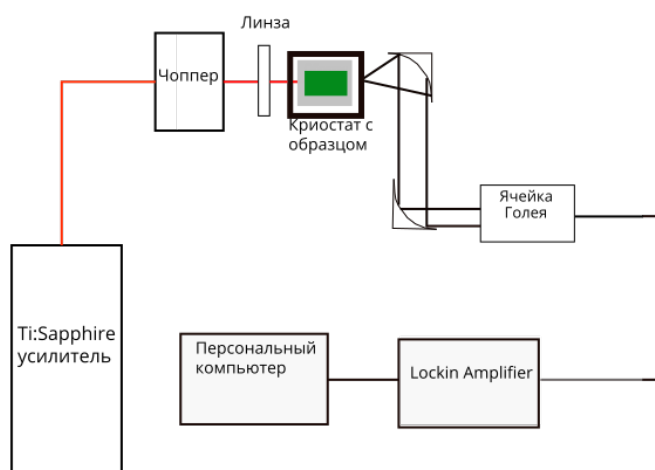


Рис. 0.7: Экспериментальная схема по генерации ТГц излучения в  $\alpha-N\text{SH}$

Для определения нелинейного коэффициента поглощения гексагидрата сульфата никеля была собрана схема Z-сканирования, в которой регистрировалась зависимость коэффициента пропускания от координаты положения образца в области перетяжки. Экспериментальная

схема представлена на рисунке №8 . В эксперименте использовался Ti:Sapphire усилитель, генерировавший импульсы с горизонтальной поляризацией, длительностью 100 фмс и с частотой повторения 1 кГц, длина волны 800 нм. Оптико-терагерцовое преобразование происходило с помощью метода выпрямления оптических импульсов с наклонным фронтом интенсивности в кристалле  $LiNbO_3$ . Благодаря фазовому синхронизму в кристалле, мощность терагерцовых импульсов достигала 100 мкВт при оптической накачке в 3 Вт. Для регулирования мощности накачки применялись полуволновая пластинка ( $\lambda/2$ ) и призма Гланна. Далее, излучение попадало на дифракционную решетку (ДР), после которой формировались оптические импульсы со скошенным фронтом интенсивности. После этого оптическое излучение распространялось через полуволновую пластинку ( $\lambda/2$ ) и изменяло горизонтальную поляризацию на вертикальную. Сфокусированные линзой с фокусным расстоянием в 15 см импульсы с измененным фронтом падали на кристалл  $LiNbO_3$ , генерировалось импульсное ТГц излучение, которое собиралось параболической линзой (ПЛ1) с фокусным расстоянием 10 см. Для изменения мощности ТГц излучения на его пути были поставлены два одинаковых ТГц поляризатора (ПЛР), один из которых мог вращаться относительно другого с помощью автоматической вращательной установки. Затем ТГц излучение отражалось от параболической линзы (ПЛ2) с фокусным расстоянием 10 см. Образовывалась перетяжка в фокусе параболической линзы. Далее, излучение собиралось с помощью терагерцовой линзы (Л2) с фокусным расстоянием в 5 см, установленной на расстоянии  $2F$  от области перетяжки. Параллельный пучок ТГц излучения детектировался ячейкой Голея, предварительно пройдя через 5 кремниевых пластин. Кремниевые пластины использовались для уменьшения мощности ТГц излучения, так как диапазон детектирования мощности излучения у ячейки Голея ограничен. В эксперименте использовался чоппер, с частотой 11 Гц. ТГц пучок в области перетяжки представлял эллипс с полуосями:  $a = 0.5$  мм,  $b = 0.615$  мм.

В область перетяжки был помещен исследуемый образец - гексагидрат сульфата никеля с толщиной  $d = 1.044$  мм, положение

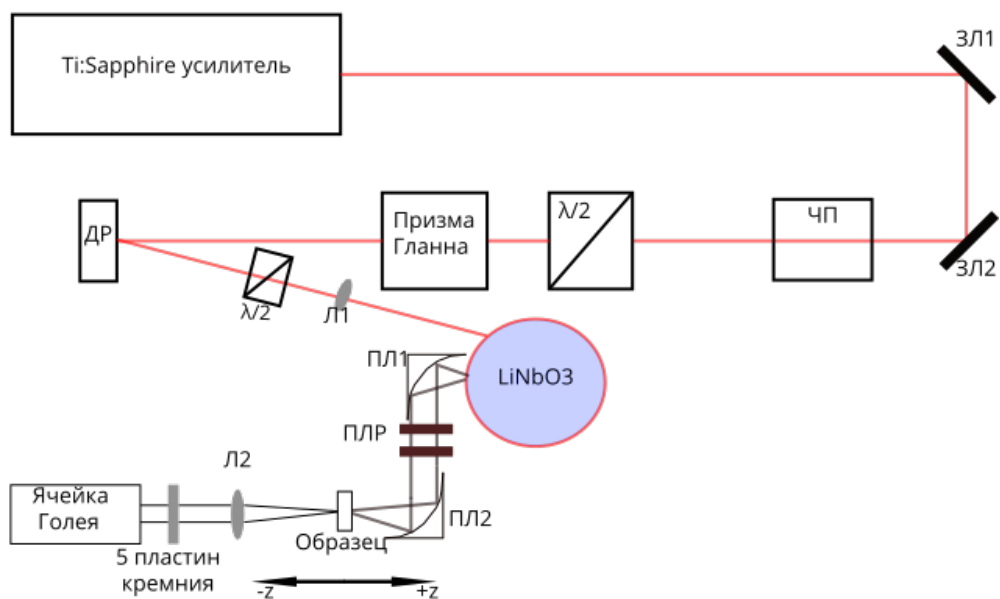


Рис. 0.8: Экспериментальная схема Z-сканирования

которого контролировалось с помощью автоматической подвижной установки (изменение координаты  $z$ ). Сигнал, зарегистрированный ячейкой, передавался токовому усилителю и после этого на персональный компьютер. В результате была получена зависимость коэффициента пропускания от координаты  $z$ .

## РЕЗУЛЬТАТЫ

Были получены следующие амплитудные спектры терагерцового импульса, прошедшего через исследуемый образец. Рисунки № 9, 10, 11, 12. Для рисунка №9 были построены усредненные методом бегущего среднего амплитудные спектры для температур 11К, 203К, 298К. Ошибка измерений для амплитудных спектров при исследуемых температурах была посчитана на основе четырех измерений.

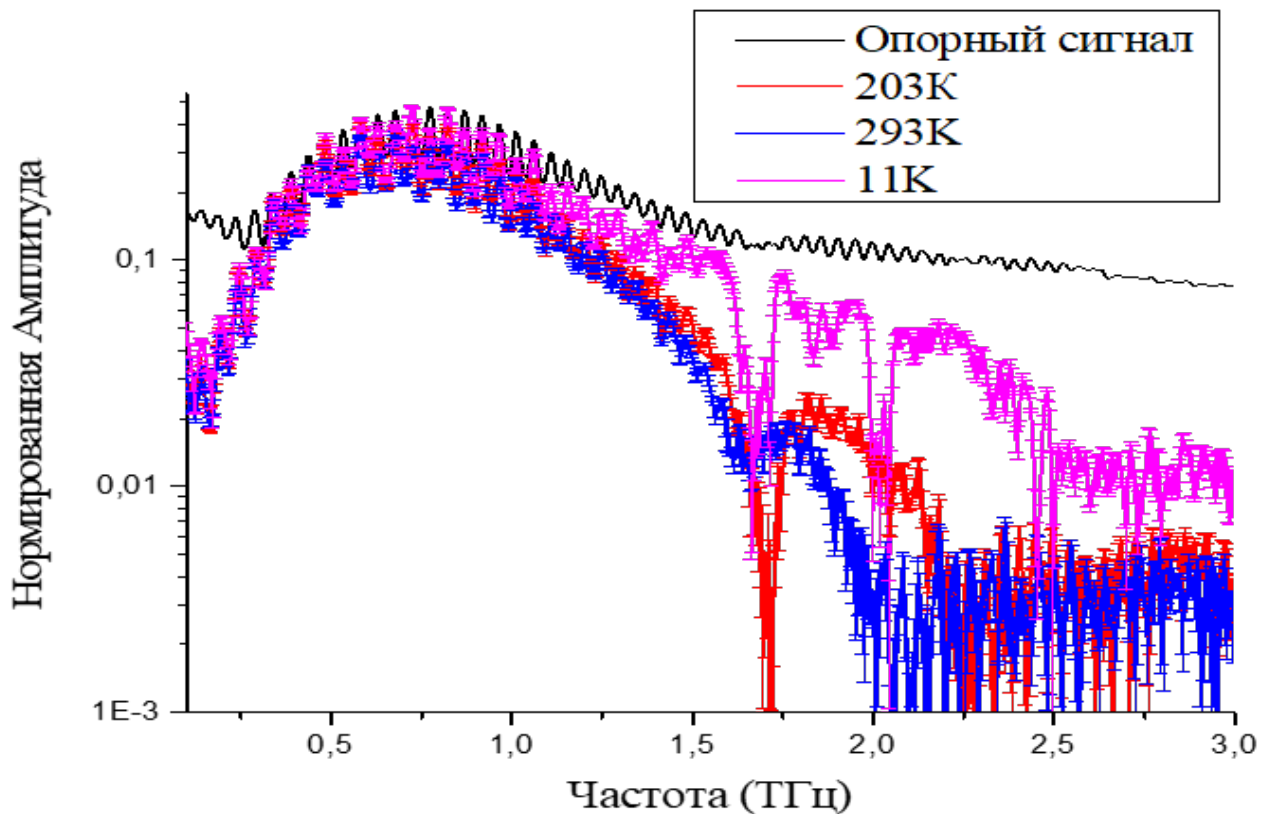


Рис. 0.9: Зависимость модуля напряженности электрического поля ТГц импульса при различных температурах

Из комплексной напряженности электрического поля были

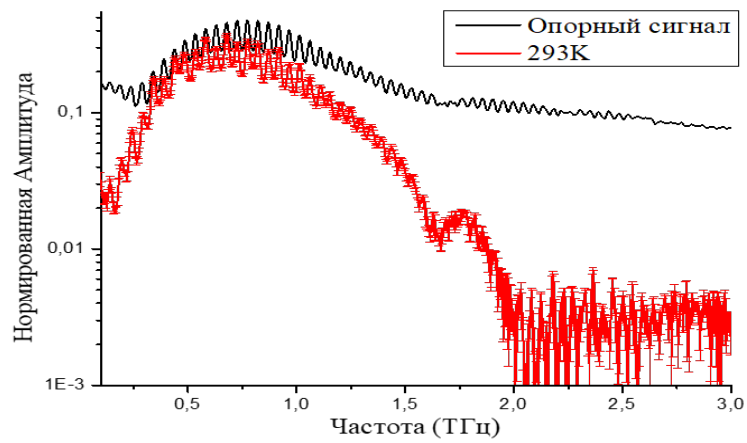


Рис. 0.10: Спектр ТГц импульса при 298К

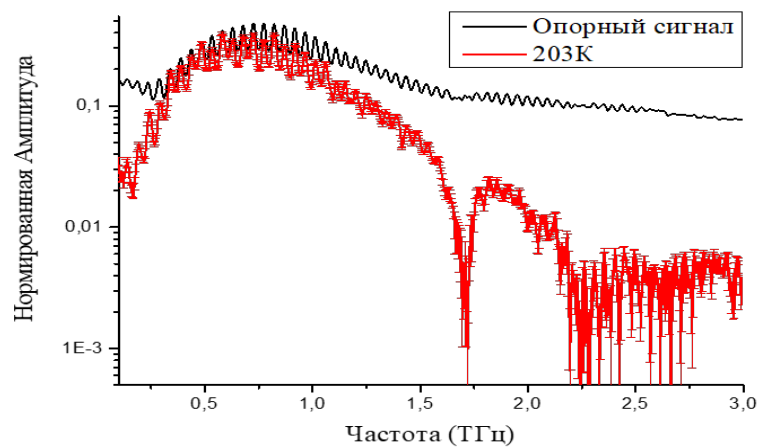
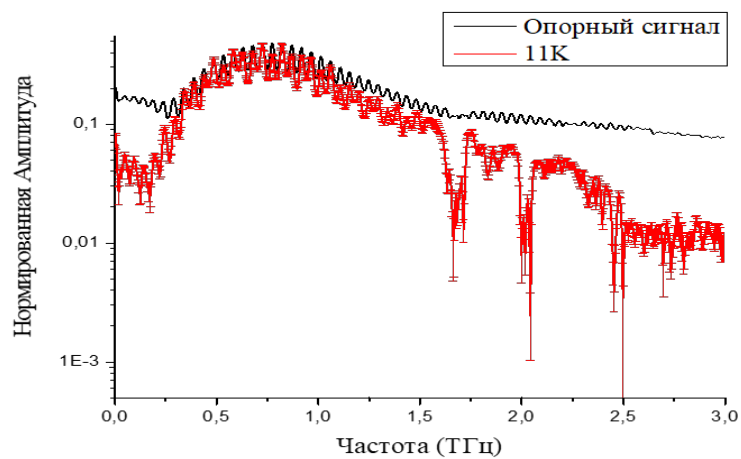


Рис. 0.11: Спектр ТГц импульса при 203К



В

Рис. 0.12: Спектр ТГц импульса при 11К

рассчитаны показатели преломления и поглощения при различных температурах по соотношениям 2 и 3. Рисунки № 13, 14, 15.

С помощью Z-сканирования с открытой апертурой для кристалла

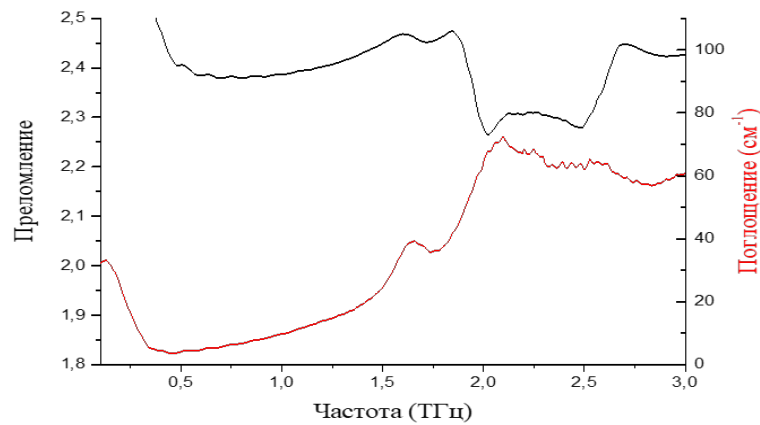


Рис. 0.13: Зависимость коэффициентов преломления и поглощения от частоты при  $T=298\text{K}$

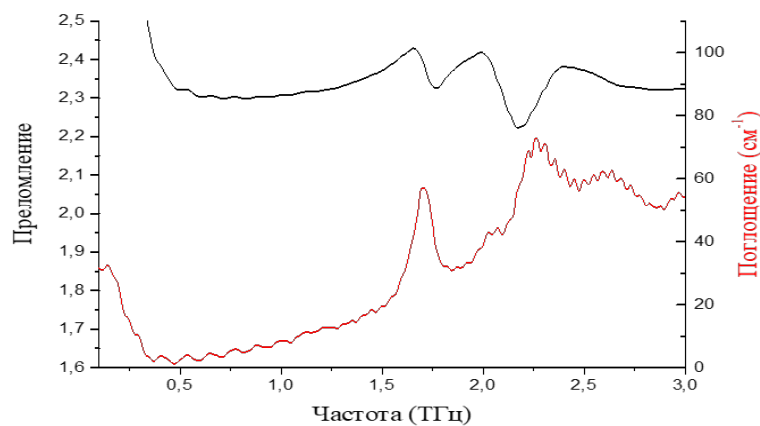


Рис. 0.14: Зависимость коэффициентов преломления и поглощения от частоты при  $T=203\text{K}$

гексагидрата сульфата никеля были получены зависимости коэффициента пропускания от координаты положения образца в области перетяжки. Рисунок № 16.

По графикам можно определить "высоту" кривой, то есть разницу между максимальным и минимальным значениями коэффициента пропускания. Зная её и интенсивность в перетяжке, можно оценить нелинейный коэффициент поглощения и мнимую часть нелинейной восприимчивости третьего порядка. Интенсивность в перетяжке была рассчитана в предположении, что ТГц импульс имеет форму идеального Гауссова импульса и длительность - 1 пс.

На основе Z-сканирования с закрытой апертурой для образца были получены зависимости коэффициента пропускания от координаты положения образца в области перетяжки. Рисунок № 17.

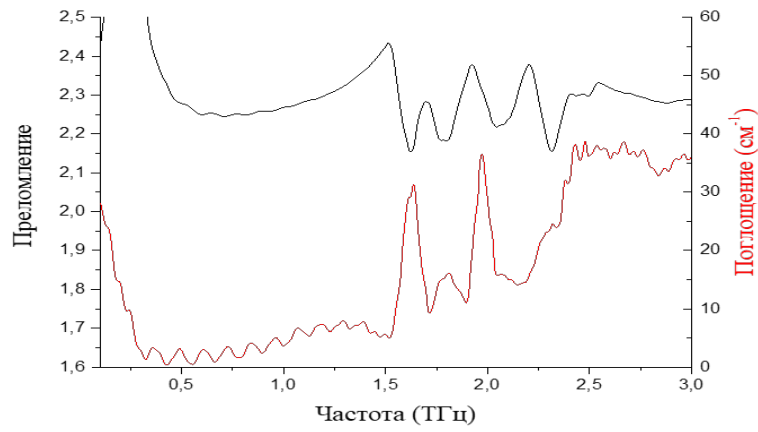


Рис. 0.15: Зависимость коэффициентов преломления и поглощения от частоты при  $T=11\text{K}$

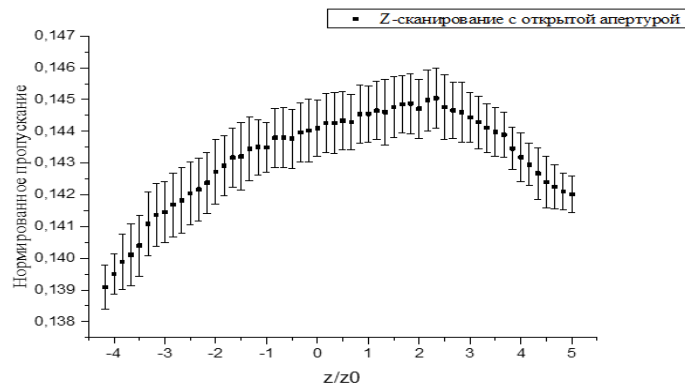


Рис. 0.16: Зависимость коэффициента пропускания от координаты положения образца при  $I = 9.1 \frac{\text{МВт}}{\text{см}^2}$  в перетяжке для z-сканирования с открытой апертурой,  $z_0 = 6$  - координата перетяжки

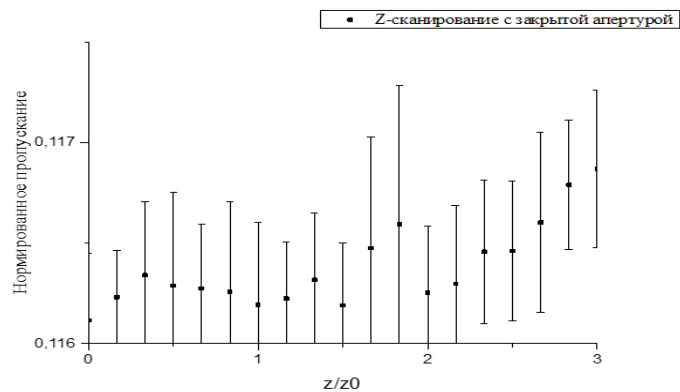


Рис. 0.17: Зависимость коэффициента пропускания от координаты положения образца при  $I = 9.1 \frac{\text{МВт}}{\text{см}^2}$  в перетяжке для z-сканирования с закрытой апертурой,  $z_0 = 6$  мм - координата перетяжки



Можно видеть, как в точке  $\frac{z}{z_0} = 1$  наблюдается локальный минимум, а в точке  $\frac{z}{z_0} = 1.8$  - локальный максимум, то есть кристалл становится керровской линзой и фокусирует излучение в эту точку. Зная интенсивность в перетяжке и нелинейный коэффициент поглощения можно вычислить  $n_2$  и  $Re\chi^{(3)}$  с помощью 4 и 7.

Таким образом, по данным из Z-сканирования через соотношения 4, 5, 6 и 7 были посчитаны  $Im(\chi^{(3)})$ ,  $\beta$ ,  $n_2$  и  $Re\chi^{(3)}$ . Были обработаны экспериментальные данные с импульсного спектрометра. Приведены частоты, соответствующие пикам поглощения. Значения представлены в таблицах №1, №2, №3 соответственно.

Таблица 0.1: Частоты, на которых происходит резонансное поглощение

Температура, К	Частота, ТГц
298	1,64
203	1.7
11	1,68 2,02

Таблица 0.2: Экспериментальные значения  $Im(\chi^{(3)})$  и  $\beta$

Интенсивность, $\frac{МВт}{см^2}$	$\beta$ , $10^{-8} \frac{см}{Вт}$	$Im(\chi^{(3)})$ , $10^{-15} \frac{М^2}{В^2}$
9.1	$5.9 \pm 0.3$	$28 \pm 2$

Таблица 0.3: Экспериментальные значения  $Re(\chi^{(3)})$  и  $n_2$

Интенсивность, $\frac{МВт}{см^2}$	$n_2$ , $10^{-11} \frac{см^2}{Вт}$	$Re(\chi^{(3)})$ , $10^{-17} \frac{М^2}{В^2}$
9.1	$1.9 \pm 1.6$	$3.7 \pm 3.2$

Полное значение  $\chi^{(3)} = (2.8 \pm 0.2) * 10^{-14} \frac{М^2}{В^2}$ .

Также, были построены зависимости интенсивности ТГц излучения от координаты z. Рисунки №18, 19.  $z = 0$  мм соответствует области перетяжки ТГц излучения.

По виду этого распределения интенсивности в пространстве видно, что ТГц сигнал от -5 мм до 10 мм не изменяет значительно свою форму,

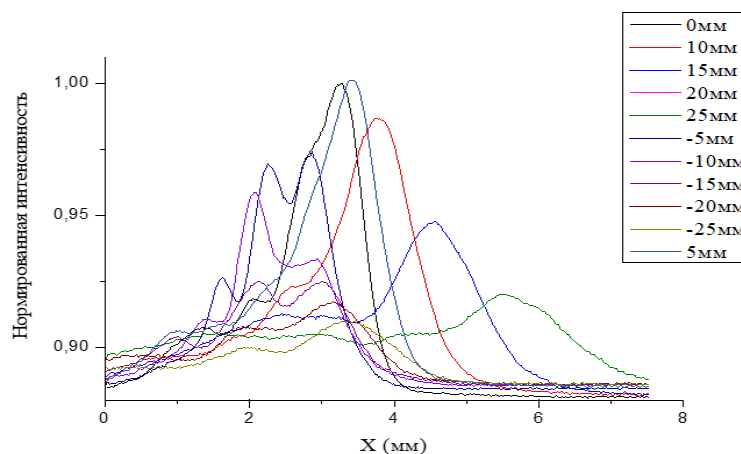


Рис. 0.18: Зависимость интенсивности ТГц пучка от координаты без образца, в сечении X, перпендикулярном направлению распространения пучка

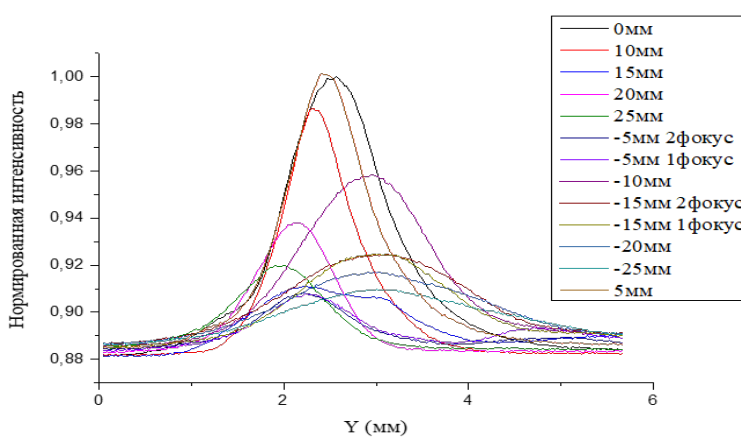


Рис. 0.19: Зависимость интенсивности ТГц пучка от координаты без образца, в сечении Y-, параллельном направлению распространения пучка что соответствует растянутому виду кривых для Z-сканирования с закрытой и открытой апертурами.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, в ходе работы были получены следующие результаты:

1. На основании результатов спектроскопии можно сделать вывод о достоверном существовании пиков поглощений на частотах 1.6 ТГц и 2 ТГц. В работе не проводилось дополнительных исследований на выяснение физического происхождения данных пиков, однако так как это кристалл, то предположительно эти пики объясняются фоннными колебаниями на данных частотах.
2. В работе проверялась генерация ТГц излучения, пики генерации должны находиться в районе частот провалов в поглощении, однако кристалл неустойчив к интенсивностям, превышающим  $5 \frac{\text{мВт}}{\text{мм}^2}$ , излучения с длиной волны  $\lambda = 800\text{нм}$ . Интенсивности меньшие данного значения недостаточны для эффективной генерации ТГц излучения, следовательно будем считать, что данный кристалл является негенерационным, то есть, эффективность оптико-терагерцового преобразования нулевая.
3. В ходе работы были получены первые оценки значений нелинейных коэффициента поглощения, мнимой и реальной частей восприимчивости третьего порядка:  $\beta = (5.9 \pm 0.3) * 10^{-8} \frac{\text{см}}{\text{Вт}}$  (из работы [2] для оптического диапазона  $\beta = 0.720 * 10^{-3} \frac{\text{м}}{\text{Вт}}$ ),  
 $Im(\chi^{(3)}) = (28 \pm 2) * 10^{-15} \frac{\text{м}^2}{\text{В}^2}$ ,  $n_2 = (1.9 \pm 1.6) * 10^{-11} \frac{\text{см}^2}{\text{Вт}}$  (из работы [2] для оптического диапазона  $n_2 = 3.56 * 10^{-9} \frac{\text{см}^2}{\text{Вт}}$ ),  
 $Re\chi^{(3)} = (3.7 \pm 3.2) * 10^{-17} \frac{\text{м}^2}{\text{В}^2}$ ,  $\chi^{(3)} = (2.8 \pm 0.2) * 10^{-14} \frac{\text{м}^2}{\text{В}^2}$ .  
Данное значение  $\chi^{(3)}$  в 7 раз больше чем в оптическом диапазоне

$(\chi_{opt}^{(3)} = 4.0481 * 10^{-15} \frac{\text{M}^2}{\text{B}^2})$  [2]. Дальнейшие исследования могут дать более точные значения этих величин.

## СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ

1. Hebling J. et al. Velocity matching by pulse front tilting for large-area THz-pulse generation //Optics Express. – 2002. – Т. 10. – №. 21. – С. 1161-1166.
2. Kathiravan P. et al. Growth and characterization of  $\alpha$ -nickel sulphate hexahydrate single crystal //Karbala International Journal of Modern Science. – 2016. – Т. 2. – №. 4. – С. 226-238.
3. Nicolson A. M., Ross G. F. Measurement of the intrinsic properties of materials by time-domain techniques //IEEE Transactions on instrumentation and measurement. – 1970. – Т. 19. – №. 4. – С. 377-382.
4. Cheung K. P., Auston D. H. A novel technique for measuring far-infrared absorption and dispersion //Infrared physics. – 1986. – Т. 26. – №. 1. – С. 23-27.
5. Yang K. H., Richards P. L., Shen Y. R. Generation of far-infrared radiation by picosecond light pulses in LiNbO<sub>3</sub> //Applied Physics Letters. – 1971. – Т. 19. – №. 9. – С. 320-323.
6. Leitenstorfer A. et al. Detectors and sources for ultrabroadband electro-optic sampling: Experiment and theory //Applied physics letters. – 1999. – Т. 74. – №. 11. – С. 1516-1518.
7. Zhong S. C. et al. Generation of 0.19-mJ THz pulses in LiNbO<sub>3</sub> driven by 800-nm femtosecond laser //Optics express. – 2016. – Т. 24. – №. 13. – С. 14828-14835.
8. Li H. et al. Contribution of the optical rectification in terahertz radiation driven by two-color laser induced plasma //Optics express. – 2020. – Т. 28. – №. 4. – С. 4810-4816.

9. Wu Q., Zhang X. C. Ultrafast electro-optic field sensors //Applied physics letters. – 1996. – Т. 68. – №. 12. – С. 1604-1606.
10. Sheik-Bahae M., Said A. A., Van Stryland E. W. High-sensitivity, single-beam n<sup>2</sup> measurements //Optics letters. – 1989. – Т. 14. – №. 17. – С. 955-957.
11. Головань Л. А. и др. Измерения кубической нелинейной восприимчивости наноструктурированных материалов по изменению профиля лазерного пучка в дальнем поле //Интеграл. – 2013. – №. 1-2. – С. 26-28.
12. Del Coso R., Solis J. Relation between nonlinear refractive index and third-order susceptibility in absorbing media //JOSA B. – 2004. – Т. 21. – №. 3. – С. 640-644.
13. Stadnicka K., Glazer A. M., Koralewski M. Structure, absolute configuration and optical activity of  $\alpha$ -nickel sulfate hexahydrate //Acta Crystallographica Section B: Structural Science. – 1987. – Т. 43. – №. 4. – С. 319-325.
14. Харьковский А. И., Шалдин Ю. В., Нижанковский В. И. Магнитоэлектрический эффект и магнитострикция в парамагнитном пьезоэлектрике NiSO<sub>4</sub> · 6H<sub>2</sub>O //Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 2013. – Т. 144. – №. 6. – С. 1216-1224.
15. Маноменова В. Л. Рост, структура и свойства кристаллов простых и сложных сульфатов никеля и кобальта : дис. – Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова Российской академии наук, 2013.