

ИНСТИТУТ ЛАЗЕРНОЙ ФИЗИКИ СО РАН

Institute of Laser Physics, Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences

Конкурс молодых ученых — 2024 по присуждению премий имени выдающихся ученых СО РАН Премия имени В.П. Чеботаева — за работы в области квантовой электроники и лазерной физики

Цикл научных работ: Исследование нелинейных кристаллов бариевых халькогенидов и создание на их основе перестраиваемых параметрических генераторов света среднего ИК диапазона для применений в газоанализе

Костюкова Надежда Юрьевна

к.ф.-м.н., Зав. лаборатории квантовых оптических технологий (ЛКОТ) Институт лазерной физики СО РАН

Цикл научных работ

2022 — 2024 гг.

- 1. Kostyukova N., Erushin E., Boyko A., Shevyrdyaeva G., Badikov D. Barium Chalcogenide Crystals: A Review // Photonics. 2024. Vol. 11, Issue 3. P.281. https://doi.org/10.3390/photonics11030281
- Erushin E., Boyko A., Shevyrdyaeva G., Badikov D. and Kostyukova N. Measurement of nonlinear refraction and absorption coefficient in BaGa₂GeSe₆ crystal // Optical Materials. 2024.
 Vol. 154. P. 115745. <u>https://doi.org/10.1016/j.optmat.2024.115745</u>
- 3. Kostyukova N., Trunov V., Frolov S., Kolker D., Boyko A., Isaenko L. Cascade picosecond optical parametric amplification for generating radiation in the 2.1 μm // Infrared Physics & Technology. 2024. Vol. 136. P. 105103. https://doi.org/10.1016/j.infrared.2023.105103
- 4. Bednyakova A., Erushin E., Miroshnichenko I., Kostyukova N., Boyko A., Redyuk A. Enhancing long-term stability of photoacoustic gas sensor using an extremum-seeking control algorithm // Infrared Physics & Technology. 2023. Vol. 133. P. 104821. https://doi.org/10.1016/j.infrared.2023.104821
- 5. Erushin E., Kostyukova N., Boyko A., Loginova A., Safaraliev G., Shevyrdyaeva G., Badikov D. Ba₂Ga₈GeS₁₆: New nonlinear optical crystals with high laser-induced damage threshold for parametric down-conversion in mid-IR // Appl. Phys. B. 2024. Vol. 130. P. 10. <u>https://doi.org/10.1007/s00340-023-08152-2</u>.
- 6. Erushin E., Boyko A., Shevyrdyaeva G., Badikov D. and Kostyukova N. Nonlinear absorption and refraction study of barium chalcogenide crystals // Optical Materials. (в печати)
- 7. Erushin E.Y., Badikov D.V., Kostyukov A.I., Boyko A., Shevyrdyaeva G., Safaraliev G. and Kostyukova N. Laser-induced damage threshold of sulfur-containing crystals of barium chalcogenides // Appl. Phys. B. (в печати)
- 8. Kostyukova N., Erushin E., Boyko A., Kostyukov A., Kiryakova A., Badikov D. Nonlinear absorption and refraction study of quaternary barium chalcogenide BaGa₂GeSe₆ crystal at 1053 nm in nanosecond regime // Сборник трудов конференции «International Conference on Advanced Laser Technologies (ALT)». 2023. №23. р. 163.
- 9. Kostyukova N.Yu., Trunov V.I., Kolker D.B., Erushin E.Yu., Kolker M.D., Boyko A.A., Isaenko, L.I. Cascaded OPG based on BaGa4Se7 to broadband continuum generation in mid-IR range. In 2022 International Conference Laser Optics, ICLO 2022 Proceedingss, 2022. <u>https://doi.org/10.1109/ICLO54117.2022.9839775</u>
- 10. Костюкова Н. Ю., Ерушин Е. Ю., Бойко А. А., Шевырдяева Г. С., Бадиков Д. В. Исследование оптических и нелинейно-оптических характеристик кристаллов бариевых халькогенидов для создания источников излучения среднего ИК диапазона // Сборник тезисов докладов Всероссийской конференции МТФ 2024 с международным участием «Материалы и технологии фотоники, электроники и нелинейной оптики». г. Томск, Россия, 2024.
- 11.

Всего по теме исследования в период 2022 – 2024 гг. - 14 публикаций

Всего по теме исследования в период 2015 – 2024 гг. - 35 публикаций, в том числе: 14 статей Q1 и Q2

и 21 тезисов из научных сборников конференций

Актуальность

Линии поглощения некоторых распространенных летучих соединений



На сегодняшний день задача разработки источников когерентного излучения, перестраиваемых в среднем инфракрасном (ИК) диапазоне, является актуальной.

*	В	этой	части	спектра	находятся	основные	окна
	прозрачности атмосферы;						

✤ широко представлены характеристичные линии поглощения колебательно-вращательных переходов различных газов (H₂O, CO₂, CH₄, NH₃, CO, NO, N₂O и др.);

области прозрачности многих биологических объектов и соединений биологического происхождения, оптических и полупроводниковых материалов.

Применение

- Экология: мониторинг атмосферы;
- Промышленность:

геологоразведка, поиск утечек в котельных, на ТЭЦ и в автомобильной промышленности;

• Медицина:

неинвазивная медицинская диагностика; лазерная хирургия;

Источники среднего ИК диапазона

🛠 Газовые СО лазеры	4.9 – 7.5 мкм + первый обертон: 2.5 – 4.2 мкм
Газовые СО ₂ лазеры	9.2 – 10.6 мкм + с использованием изотопов: 8.9 – 12.3 мкм
Химические HF и DF лазеры	2.7 – 5 мкм
 твердотельные лазеры, использующие кристаллы, легированные ионами переходных и редкоземельных элементов 	до 5 мкм
Межзонные каскадные лазеры (ICLs)	до 5 мкм, генерация в более длинноволновой части спектра возможна только при криогенных температурах
Квантово-каскадные лазеры (QCLs)	3.5 – 24 мкм
Параметрические преобразователи частоты, такие как ПГС и ГРЧ	Определяется нелинейным кристаллом, лазером накачки и используемой оптикой







Нелинейные кристаллы среднего ИК диапазона





BaGa₂GeSe₆

BaGa₄Se₇



AgGaS₂





ZnGeP₂

Выбор подходящего нелинейного кристалла должен основываться на комплексной оценке всех его физических свойств, соответствующих конкретным требованиям данной задачи.

- В приложениях, связанных с генерацией излучения высокой средней мощности или непрерывного излучения, важнейшей характеристикой кристаллов является их высокая теплопроводность.
- Для приложений, требующих перестройки длины волны в широком спектральном диапазоне, решающее значение имеют такие параметры, как диапазон прозрачности, коэффициент нелинейности и выполнение условий фазового синхронизма в широком диапазоне.



При разработке оптических систем с высокой пиковой интенсивностью также крайне важным становится учёт нелинейного поглощения и нелинейного преломления среды.

Isaenko, L I; Yelisseyev, A P . (2016). Recent studies of nonlinear chalcogenide crystals for the mid-IR. Semiconductor Science and Technology, 31(12), 123001–. doi:10.1088/0268-1242/31/12/123001 http://loc-ltd.com

Кристаллы бариевые халькогениды





Kostyukova N., Erushin E., Boyko A., Shevyrdyaeva G., Badikov D. Barium Chalcogenide Crystals: A Review // Photonics. – 2024. – Vol. 11, Issue 3. – 281. https://doi.org/10.3390/photonics11030281

Нелинейное поглощение и преломление

Нелинейное поглощение и **нелинейное преломление**, возникающие в кристаллах при взаимодействии с мощным лазерным излучением, могут приводить к искажению поперечного распределения интенсивности лазерного пучка в кристалле и проявлению эффектов самофокусировки и рассогласованию оптического резонатора, и тем самым уменьшать эффективность преобразования в ПГС. Поэтому их важно учитывать при проектировании оптических схем!

Кристалл	Условия измерения	n ₂ 10 ⁻¹⁴ , см ² /Вт	β, см/ГВт
PCS	1028 нм, 180 фс, 100 Гц – 100кГц, 8 ГВт/см², о- и е-поляризация, 4,8 мм длина образца	0,72-0,83	Не наблюдалось
DUS	1028 нм, 180 фс, 100 Гц — 100кГц, 2,3 ГВт/см ² , о- и е-поляриз., 8,3 мм длина образца	1,0	Не наблюдалось
BGSe	1064 нм, 30 пс, 10 Гц, 1,3 ГВт/см², 4 мм длина образца	Нет данных	Наблюдалось
BGGSe	1053 нм, 10 нс, 1 кГц, о-поляриз., 150 МВт/см², длина образца 2 мм	Нет данных	Наблюдалось

Нелинейное поглощение и преломление



Sheik-Bahae, M.; Said, A.A.; Stryland, E.W.V. High-sensitivity, single-beam n₂ measurements. Opt. Lett. 1989, 14, 955–957.

Erushin E.Yu., Kostyukova N.Yu., Boyko A.A., Miroshnichenko I.B., Verbovaty D.M., Kiryakova A.Yu., Investigation of the nonlinear refractive index of polycrystalline zinc selenide by single-beam Z-Scan // Instruments and Experimental Techniques – 2024 – Vol. 67, Issue 2. – P. 298–302. https://doi.org/10.1134/S0020441224700404

Нелинейное поглощение



Нормированный коэффициент пропускания кристалла BGGSe для необыкновенных (красная кривая) и обыкновенных (черная кривая) волн при частоте повторения импульсов 100 Гц и пиковой интенсивности 122 MBT/cm² (круги) и 265 MBT/cm² (квадраты).

нормированное пропускание

фазовый сдвиг





9

о-волна,	е-волна,
см/ГВт	см/ГВт
0,03	0,85

Erushin E.Y., Boyko A.A., Shevyrdyaeva G.S., Badikov D.V. and Kostyukova N.Y. Measurement of nonlinear refraction and absorption coefficient in BaGa₂GeSe₆ crystal // Optical Materials. – 2024. – Vol. 154, Issue. – P. 115745. https://doi.org/10.1016/j.optmat.2024.115745

Нелинейное преломление



10

Erushin E., Boyko A., Shevyrdyaeva G., Badikov D. and Kostyukova N. Nonlinear absorption and refraction study of barium chalcogenide crystals // Optical Materials. (в печати)

Нелинейное преломление

Воздействие непрерывным излучением



Erushin E.Y., Boyko A.A., Shevyrdyaeva G.S., Badikov D.V., Kostyukova N.Y. Measurement of nonlinear refraction and absorption coefficient in BaGa2GeSe6 crystal // Optical Materials. – 2024. – Vol. 154, Issue. – P. 115745. https://doi.org/10.1016/j.optmat.2024.115745

Нелинейное преломление

Кристалл	Длина, мм	Волна	α ₀ , cm ⁻¹	ү×10 ⁻¹⁴ см²/Вт	n ₂ (эксп.) ×10 ⁻¹¹ (esu)	n₂(теор.)×10 ⁻¹¹ (esu)	χ _R ⁽³⁾ ×10 ⁻¹² (esu)	Р _{кр} кВт
BGGSe		0		5,5	3,4	2,9	9	11.6
(θ = 30°, φ = 30°)	2.04	E	0.026	6,8	4,3	4,1	11.8	9.1
BGSe		0		1,6	0,96	1,1	2.5	40.7
(θ = 46.46°, φ = 0°)	2.31	Е	0.182	1,8	1,1	1,1	2.9	35.8
B2GGS	2.6	—	0.062	1,14	0,6	0,8	1.9	55.9
BGGS	2.05	—	0.013	0,78	0,43	0,4	1.1	89.7
BGS	2.7	_	0.01	0,58	0,32	0,29	0.8	122

Кристалл BGGSe демонстрирует самый высокий нелинейный показатель преломления среди проанализированных образцов, а кристалл BGS демонстрирует самый низкий нелинейный показатель преломления, n₂=0,58×10⁻¹⁴ см²/Вт (0,32×10⁻¹¹ esu), что близко к теоретически предсказанному значению 0,29×10⁻¹¹ esu. Однако эти измеренные значения немного ниже данных, представленных Mero и др., которые находятся в диапазоне от 0,72 до 1,0×10⁻¹⁴ см²/Вт.

Mero, M.; et al. Progress in ultrafast, mid-infrared optical parametric chirped pulse amplifiers pumped at 1 μm. In Nonlinear Frequency Generation and Conversion: Materials and Devices XIX;—SPIE: Cergy-Pontoise, France, 2020; Volume 11264, p. 112640F. https://doi.org/10.1117/12.2545961

Исследование лучевой стойкости



λ/2 – полуволновая пластинка, L₁ – фокусирующая линза, нелинейный кристалл.



*ISO 21254-1-4:2011: Lasers and laser-related equipment - Test methods for laser-induced damage threshold - Part 1-4 *ISO 11146-1/2 BSI Standards Publication Lasers and laser-related equipment — Test methods for laser-induced damage threshold Part 1-2 *https://lidaris.com/laser-damage-testing

Исследование лучевой стойкости @1,053 мкм



14

Erushin E., Kostyukova N., Boyko A., Loginova A., Safaraliev G., Shevyrdyaeva G., Badikov D. Ba2Ga8GeS16: New nonlinear optical crystals with high laser-induced damage threshold for parametric down-conversion in mid-IR // Appl. Phys. B. – 2024. – Vol. 130. – P. 10.

Erushin E.Y., Badikov D.V., Kostyukov A.I., Boyko A., Shevyrdyaeva G., Safaraliev G. and Kostyukova N. Laser-induced damage threshold of sulfur-containing crystals of barium chalcogenides // Appl. Phys. B. (в печати)

Исследование лучевой стойкости

	λ	2 мкм	1 мкм	
Нелинейные кристаллы	BGS	1/12 Π _W /cm ² /2 1 μαγμα 30 μc 1 Γμ) [1]	2,4 Дж/см² (1,064 мкм, 15 нс, 1 Гц) [4]	
			3,7/2,9 Дж/см² (1,064 мкм, 14/1 нс, 0,1/0,5 кГц) [5]	
			7,4/6,4 Дж/см² (1,053 мкм, 5,1 нс, 0,1/1 кГц)	
	BGSe	4,8/3,3/2,1 Дж/см² (2,091 мкм, 15 нс, 2/5/10 кГц)	2,5/2,3 Дж/см² (1,053 мкм, 5,1 нс, 0,1/1 кГц)	
		3,3 Дж/см² (2,091 мкм, 27 нс, 0,5 кГц) [2]	4,1/4/3,6 Дж/см² (1,064 мкм, 16 нс, 0,1/0,15/0,2 кГц) [6]	
		$2.1 \text{ m}/\text{m}^2/2 001 \text{ m}/\text{m}^2/2 001$	1,4/1 Дж/см² (1,064 мкм, 14/1 нс, 0,1/0,5 кГц) [7]	
		2,1 Дж/см² (2,091 мкм, 35 нс, 1 кіц) [3]	5,6 Дж/см² (1,064 мкм, 5 нс, 1 Гц) [8]	
	BGGSe	6,5/4,3/2,7 Дж/см² (2,091 мкм, 15 нс, 2/5/10 кГц)	3,7/2,7 Дж/см² (1,053 мкм, 5,1 нс, 0,1/1 кГц)	
	BGGS	нет данных	6,8/7 Дж/см² (1,053 мкм, 5,1 нс, 0,1/1 кГц)	
	B2GGS	нет данных	6,9/7 Дж/см² (1,053 мкм, 5,1 нс, 0,1/1 кГц)	

Kostyukova N., Erushin E., Boyko A., Shevyrdyaeva G., Badikov D. Barium Chalcogenide Crystals: A Review // Photonics. – 2024. – Vol. 11, Issue 3. – 281. https://doi.org/10.3390/photonics11030281



Kostyukova N., Erushin E., Boyko A., Shevyrdyaeva G., Badikov D. Barium Chalcogenide Crystals: A Review // Photonics. – 2024. – Vol. 11, Issue 3. – 281. https://doi.org/10.3390/photonics11030281

ПГС на основе кристалла BGSe



Kostyukova N., Erushin E., Boyko A., Shevyrdyaeva G., Badikov D. Barium Chalcogenide Crystals: A Review // Photonics. – 2024. – Vol. 11, Issue 3. – 281. https://doi.org/10.3390/photonics11030281

Заключение

- Экспериментально измерены коэффициенты нелинейного преломления кристаллов бариевых халькогенидов на длине волны 1,053 мкм и рассчитана критическая пиковая мощность и нелинейная восприимчивость 3-го порядка. Измеренные значения нелинейного поглощения и нелинейного преломления сравнивались с теоретическими значениями, полученными из двухпараболической зонной модели, основанной на соотношении Крамера-Кронинга. Полученные значения показали в среднем не более ~20% отклонения от теоретических.
- С помощью непрерывного Nd: YAG лазера было проведено измерение теплового нелинейного показателя преломления BGGSe кристалла. Полученные значения n_{2T} показали в среднем ~10% отклонения от расчетных, что указывает на достоверность таких оценок.
- Нелинейное поглощение наблюдалось только в кристалле BGGSe. Показано, что коэффициент двухфотонного поглощения для кристалла BGGSe линейно увеличивается с увеличением пиковой интенсивности. Используя линейную аппроксимацию, были определены коэффициенты двухфотонного поглощения для о-волны и е-волны при частоте повторения импульсов 0,1 кГц и пиковой интенсивности 50 MBT/cm², они составили 0,03 см/ГВт и 0,85 см/ГВт, соответственно.
- Порог пробоя нелинейных кристаллов сульфидов бария (6,5–7,5 Дж/см²) превышает порог пробоя их селеносодержащих аналогов (2,4–3,5 Дж/см²) более чем в 3 раза при схожих параметрах излучения. Данные кристаллы имеют большой потенциал для приложений, требующих высокой энергии в импульсах. Селенсодержащие кристаллы демонстрируют большую нелинейность и более широкий диапазон прозрачности, что делает их привлекательными для применений в спектроскопических задачах.

Результаты использования кристаллов в параметрических преобразователей частоты свидетельствуют о том, что кристаллы халькогенида бария могут стать перспективными нелинейными кристаллами для генерации среднего ИК-диапазона с исключительно широким спектральным диапазоном перестройки.



Спасибо за внимание

к.ф.-м.н. Надежда Костюкова Заведующая лаб. квантовых оптических технологий ИЛФ СО РАН, с.н.с. ЛКОТ НГУ n.duhovnikova@gmal.com

Выражаю глубокую благодарность всем соавторам представленных работ, в особенности Е.Ю. Ерушину, Д.В. Бадикову

Данные об авторе работы

Фамилия Имя Отчество	Костюкова Надежда Юрьевна
Ученая степень	к.фм.н.
Год присуждения ученой степени	2018
Полное название организации – основного места работы	Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт лазерной физики Сибирского отделения Российской академии наук
Должность по основному месту работы	Заведующая Лаборатории квантовых оптических технологий (Лаб. 2.4)
Scopus ID	56681970000
Кол-во публикаций (Scopus)	74
h-индекс	13
Награды	 2019 г медаль молодым ученым имени проф. В.С. Летохова за новаторские работы по лазерной физике, спектроскопии и их приложениям. 2022 г премия мэрии города Новосибирска в сфере науки и инноваций в номинации "– «Лучший молодой исследователь в организациях науки». 2023 г именная премия Правительства Новосибирской области за выдающиеся научные достижения в номинации – «Лучший молодой исследователь». 2023 г почетная грамота президиума СО РАН за цикл работ, представленных на премию имени В.П. Чеботаева – за работы в области квантовой электроники и лазерной физики.
	20

Исследование лучевой стойкости @2,09 мкм



При увеличении частоты до 10 кГц порог пробоя уменьшался почти в 2 раза



Kostyukova N.Y., Boyko A.A., Eranov I.D., Antipov O.L., Kolker D.B., Kostyukov A.I., Erushin E.Y., Miroshnichenko I.B., Badikov D.V., Badikov V.V. Laser-induced damage threshold of the nonlinear crystals BaGa₄Se₇ and BaGa₂GeSe₆ at 2091 nm in the nanosecond regime // J. Opt. Soc. Am. B. – 2020. – Vol. 37, № 9. – P. 2655-2659

Нелинейное поглощение



нормированное пропускание



фазовый сдвиг



22

 265 МВТ/СМ² (Квадраты).
 0,03
 0,

 Erushin E.Y., Boyko A.A., Shevyrdyaeva G.S., Badikov D.V. and Kostyukova N.Y. Measurement of nonlinear in the second se

Erushin E.Y., Boyko A.A., Shevyrdyaeva G.S., Badikov D.V. and Kostyukova N.Y. Measurement of nonlinear refraction and absorption coefficient in BaGa₂GeSe₆ crystal // Optical Materials. – 2024. – Vol. 154, Issue. – P. 115745. https://doi.org/10.1016/j.optmat.2024.115745



В 1984 Веррет обобщил на N-фотонное поглощение теорию правил масштабирования многофотонного межзонного поглощения, предполагающая изотропную эффективную массу и только две параболические зоны.

$$\alpha_{N} = \left(\frac{e^{2}}{\hbar c}\right)^{N} \hbar^{N-1} \frac{P^{2N-3}}{n^{N} E_{g}^{4N-5}} F_{N}\left(\frac{N\hbar\omega}{E_{g}}\right)$$

Согласно данной теории для поглощения N-фотонов коэффициент α_N определяется таким образом, что для интенсивности излучения I скорость поглощения энергии единицей объема материала равна α_NI^N. В терминах скорости межзонного перехода в единице объема, связанной с одновременным поглощением N фотонов частоты ω коэффициент поглощения, выражается равенством:

$$\alpha_N = W_N N \hbar \omega I^{-N}$$

где W_N – скорость переходов фотонов из зоны проводимости в валентную зону 2ФП новых материалов можно предсказать по формуле:

$$\alpha_{2} = K_{2} \frac{\sqrt{E_{p}}}{n_{0}^{2} E_{g}^{3}} \left[\frac{\left((2\hbar\omega/E_{g}) - 1 \right)^{3/2}}{\left(2\hbar\omega/E_{g} \right)^{5}} \right] \qquad K_{2} = \frac{2^{9}\pi}{5} \frac{e^{4}}{\sqrt{m_{0}c^{2}}}$$

где Ер — энергия Кейна является мерой силы связи между валентной зоной и зоной проводимости и для многих полупроводников составляет около 21 эВ, а К2 представляет собой константу, не зависящую от материала.

Wherrett B.S. Scaling rules for multiphoton interband absorption in semiconductors // JOSA B. 1984. Vol. 1, № 1. P. 67. Stryland E.W. Van et al. Energy band-gap dependence of two-photon absorption. 1985. Vol. 10, № 10. P. 490–492.



Дисперсия нелинейного показателя преломления n_2 . Данные для n_2 масштабируются как $n_2 n_0 E_g^4 / K' \sqrt{E_p}$.

Сплошная линия — функция $G(h\nu/E_g)$ двухзонной модели полупроводника.

- Красными кружками на графике показаны коэффициенты нелинейного показателя преломления, полученные в данной работе.
- Mero, M.; et al. Progress in ultrafast, mid-infrared optical parametric chirped pulse amplifiers pumped at 1 μm. In Nonlinear Frequency Generation and Conversion: Materials and Devices XIX;—SPIE: Cergy-Pontoise, France, 2020; Volume 11264, p. 112640F. https://doi.org/10.1117/12.2545961
- ❑ Sheik-Bahae M. et al. Dispersion of bound electron nonlinear refraction in solids // IEEE J. Quantum. Electron. 1991. Vol. 27, № 6. P. 1296–1309
- F. Rotermund V.P.F.N. Characterization of ZnGeP2 for Parametric Generation with Near-Infrared Femtosecond Pumping // Fiber and Integrated Optics. 2001. Vol. 20, № 2. P. 139–150.

Sheik-Bahae M. et al. Dispersion of bound electron nonlinear refraction in solids // IEEE J. Quantum. Electron. 1991. Vol. 27, № 6. P. 1296–1309.

