

Министерство образования и науки Российской Федерации
ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ БЮДЖЕТНОЕ
ОБРАЗОВАТЕЛЬНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ
«САРАТОВСКИЙ НАЦИОНАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ
ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ ИМЕНИ Н.Г.ЧЕРНЫШЕВСКОГО»

Базовая кафедра
компьютерной физики и
метаматериалов в
Саратовском филиале ИРЭ
им. В.А. Котельникова РАН

**Нелинейное самовоздействие лазерного пучка при наличии
двухфотонного поглощения и нелинейной восприимчивости третьего
порядка**

АВТОРЕФЕРАТ МАГИСТЕРСКОЙ РАБОТЫ

Студента 2 курса 254 группы
направления (специальности)

физика 03.04.02
код и наименование
направления (специальности)
факультет физический

Зарькова Сергея Владимировича

Научный руководитель

доцент, к.ф.-м.н.,
должность, уч. степень, уч. звание

дата, подпись

А.И. Конюхов
инициалы, фамилия

Заведующий кафедрой

д.ф.-м.н. профессор
должность, уч. степень, уч. звание

дата, подпись

В.М. Аникин
инициалы, фамилия

Саратов 2016

Введение В настоящее время, в связи с активным развитием оптики сверхкоротких импульсов, волоконной и интегральной оптики для ближнего и среднего ИК-диапазона, актуальной проблемой является изучение нелинейных свойств и разработка новых оптических материалов с заданными свойствами. Наиболее актуальными материалами для создания современных компактных устройств нелинейной оптики, работающих в диапазоне 1-10 мкм в т. ч. для применения в качестве датчиков в медицинской диагностике, мониторинге окружающей среды, для обработки и передачи информации являются халькогенидные стёкла.

Важными задачами являются как развитие методов измерения нелинейно-оптических коэффициентов: керровской постоянной и коэффициента двухфотонного поглощения, так и численное моделирование нелинейного самовоздействия импульсных лазерных пучков в аморфных полупроводниках с известными значениями нелинейно-оптических коэффициентов, в т. ч. при разработке устройств и создании микро- и наноструктур в оптических стёклах методом фемтосекундной модификации.

На этапе разработки схемы модификации материалов лазерными импульсами и выбора режима облучения важным является рассмотрение теоретической модели, описывающей пространственно-временную динамику лазерного пучка с учётом различных эффектов: дисперсии, керровской нелинейности, многофотонного поглощения и образования плазмы.

Для измерения нелинейного оптического отклика в халькогенидных стеклах используются различные методы, такие как вырожденное четырёхволновое смешение, z-сканирование, самомодуляция фазы, метод «накачка-зондирование» и генерация третьей гармоники. В данной работе произведена оценка величины керровской нелинейности методом обработки результатов эксперимента по генерации третьей гармоники в схеме Maker-Fringes («Биения Мейкера») и решена задача численного моделирования распространения гауссова пучка в средах с керровской нелинейностью и

двухфотонным поглощением на примере халькогенидных стёкол состава As_2S_3 (сульфид мышьяка) и As_2Se_3 (селенид мышьяка).

Цели дипломной работы:

- Рассмотреть самофокусировку в присутствии двухфотонного поглощения.
- Построить модель распространения гауссова пучка с учётом керровской нелинейности и двухфотонного поглощения.
- Рассмотреть генерацию третьей гармоники в халькогенидных стёклах.
- Провести обработку экспериментальных результатов и рассчитать величину керровской нелинейности, используя данные по генерации третьей гармоники.

В соответствии с поставленными целями решались следующие задачи:

- Построение численной модели распространения импульсного гауссова пучка в среде с учётом керровской нелинейности и двухфотонного поглощения.
- Численное моделирование самофокусировки пикосекундного лазерного импульса с учётом эффекта двухфотонного поглощения в халькогенидных стёклах на примере трисульфида и триселенида мышьяка.
- Оценка величины нелинейной восприимчивости третьего порядка в образцах халькогенидных стёкол (трисульфида и триселенида мышьяка) методом аппроксимации биений Мейкера, полученных в эксперименте по генерации третьей гармоники, с учётом однофотонного поглощения излучения гармоники в образце.

Научная новизна магистерской дипломной работы заключается в том, что:

- Предложена математическая модель самофокусировки гауссова пучка в среде с двухфотонным поглощением.
- Впервые измерено эффективное значение нелинейности третьего порядка в области полосы поглощения As_2S_3 и As_2Se_3 .

Защищаемые положения и результаты:

- В математической модели эффект двухфотонного поглощения при самофокусировке гауссова пучка можно учитывать посредством комплексного коэффициента керровской нелинейности
- Для сфокусированных гауссовых пучков двухфотонное поглощение проявляется в резком росте поглощенной энергии в области фокуса.
- При фокусировке гауссова пучка в глубь среды двухфотонное поглощение приводит к смещению фокуса (область максимальной интенсивности) по направлению к источнику
- Метод биений Мейкера применим для измерения эффективной нелинейности третьего порядка в области полосы поглощения материала
- Генерация третьей гармоники в As_2S_3 и As_2Se_3 при облучении лазером с длиной волны 1064 нм происходит в тонком приповерхностном слое. Измеренные значения нелинейности третьего порядка $3,13 \times 10^{-14} \text{ см}^2 \text{ Вт}$ (у селенида мышьяка) и $2,9 \times 10^{-14} \text{ см}^2 \text{ Вт}$ (у сульфида мышьяка).

Основное содержание работы. Во введении обоснована актуальность темы, сформулированы цели и задачи магистерской работы, приведены положения и результаты, выносимые на защиту.

В главе 1 дан краткий обзор эффектов взаимодействия лазерного излучения с веществом: самофокусировки, эффекта многофотонного поглощения, многофотонной ионизации и генерации третьей гармоники. Для явления самофокусировки дано определение критической мощности самофокусировки, введено определение коэффициента двухфотонного поглощения и приведено сравнение с однофотонным поглощением (законом Бугера), произведён обзор таких процессов, как многофотонная и лавинная ионизация, дающих основной вклад в образование свободных электронов в результате прохождения через среду лазерного импульса. Показано, что эффект генерации третьей гармоники может быть использован, как

экспериментальный метод измерения нелинейной восприимчивости третьего порядка. Прямое измерение величины нелинейной восприимчивости затруднено, т.к. для этого требуется знать точное значение интенсивности лазерного излучения внутри образца. Чтобы избежать ошибок, связанных с неточным определением интенсивности внутри образца, пользуются сравнением с результатами измерений для образца с известным значением нелинейной восприимчивости третьего порядка.

В главе 2 производится построение математической модели распространения импульсного гауссова пучка и численное моделирование самофокусировки импульса в халькогенидных стёклах. В п.2.1 из нелинейного волнового уравнения (1) получена система уравнений для описания распространения светового пучка в нелинейной среде.

$$2ik \frac{\partial E}{\partial z} + \nabla_{\perp}^2 E = -2k\gamma E^2 E, \quad (1)$$

где k – волновое число в среде: $k = 2\pi n / \lambda$, z – продольная координата, $\nabla_{\perp}^2$ – оператор Лапласа в цилиндрической системе координат, γ – комплексный коэффициент керровской нелинейности

$$\gamma = kn_2 + i\beta^{(2)}, \quad (2)$$

где n_2 – керровская постоянная. $\beta^{(2)}$ – коэффициент двухфотонного поглощения, Поперечный профиль пучка задавался в виде гауссовой функции:

$$E(z, r) = A(z, t) e^{-p(z)r^2/2} \quad (3)$$

где $A(z, r)$ – вещественная часть амплитуды электрического поля, $p(z)$ – комплексный параметр пучка, r – радиальная координата. Комплексный параметр пучка в формуле (3) определяется по формуле:

$$p(z) = \eta(z) + i\xi(z). \quad (4)$$

Радиус и кривизна волнового фронта гауссова пучка могут быть выражены через комплексный параметр (4) по формулам

$$w(z) = \sqrt{2/\eta(z)} \quad R(z) = k/\xi(z) \quad (5)$$

где $w(z)$ – радиус пучка, $R(z)$ – радиус кривизны волнового фронта.

Используя метод моментов можно свести уравнение (1) к системе обыкновенных дифференциальных уравнений с начальными условиями для параметров $\eta(z)$, $\xi(z)$, $A(z)$:

$$\begin{aligned}
 -k \frac{d\xi}{dz} &= \eta^2 \left(1 - \frac{k}{2\pi} \gamma_k W \right) - \xi^2 & \eta(0, t) &= 2 w_0^2 \\
 k \frac{d\eta}{dz} - 2\eta\xi &= -\frac{k\beta^{(2)}}{4\pi} W \eta^2 & \xi(0, t) &= k R_0 \\
 \frac{dW}{dz} &= -\frac{\beta^{(2)}}{2\pi} W^2 \eta & W(0, t) &= W_0 e^{\frac{t}{\tau}} \\
 I &= \frac{W\eta}{2\pi} & \eta(z, -\tau) &= \eta(z, \tau) \\
 & & \xi(z, -\tau) &= \xi(z, \tau) \\
 & & W(z, -\tau) &= W(z, \tau),
 \end{aligned} \tag{6}$$

где $\gamma_k = kn_2$, W – полная мощность пучка, I – интенсивность, w_0 – начальный радиус пучка, R_0 – начальная кривизна волнового фронта (определялись из формулы преобразования гауссова пучка тонкой линзой), t – время в бегущей системе координат, τ – начальная длительность импульса. В п.2.2 используя модель Друде

$$\frac{\partial \rho(z, r, t)}{\partial t} = \alpha \rho E^2 + \frac{\beta^{(2)}}{2\hbar\omega} E^4 - \delta \rho^2, \tag{8}$$

где ρ – концентрация электронов, α – коэффициент лавинной ионизации, $\beta^{(2)}$ – коэффициент двухфотонного поглощения, δ – скорость рекомбинации электронов плазмы, получено выражение для плотности фотоэлектронов, без учёта эффектов лавинной ионизации и рекомбинации ($\alpha = \delta = 0$)

$$\rho(z, r) = \frac{\tau}{-\tau} \frac{\beta^{(2)}}{2\hbar\omega} I^2 e^{-2\eta(z, t)r^2} dt. \tag{7}$$

В п.2.3 с использованием математической модели, построенной в п.2.1 произведено численное моделирование самофокусировки лазерного импульса с учётом эффекта двухфотонного поглощения в халькогенидных стёклах на примере сульфида мышьяка (As_2S_3) и селенида мышьяка (As_2Se_3). Представлялось, что лазерное излучение с длиной волны 1064 нм и радиусом пучка $w_0=2,5$ мм фокусировалось линзой с фокусным расстоянием $f = 4$ см, расположенной на расстоянии $z = 3,9$ см от поверхности образца. Длительность импульса принималась равной $\tau_0 = 30$ пс. Оптические

характеристики стекол, использованные в численном моделировании приведены в таблице 1. Значения коэффициентов взяты из [9].

Таблица 1.

Состав	n	n_2 , мкм ² /МВт	$\beta^{(2)}$, мкм/МВт	$W_{кр}$, МВт	$J_{кр}$, нДж
As ₂ S ₃	2,45	4,5	1	0,016	869
As ₂ Se ₃	2,91	18	45	0,0034	183

В случае $J_0 \ll J_{кр}$ наблюдается линейное распространение. В случае $J_0 \approx J_{кр}$ совместное действие самофокусировки и дифракции приводит к изменению диаметра пучка вдоль импульса (Рисунок 1а, б). Центральная часть импульса, после самофокусировки в образце, испытывает повышенную расходимость (Рис. 1а).

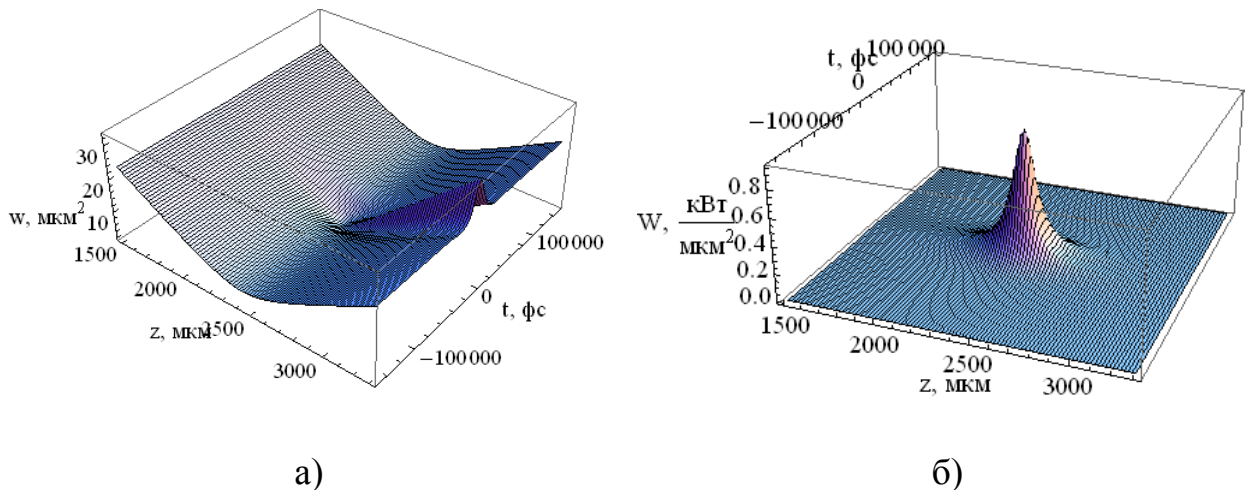


Рис.1 Распространение 30 пс импульса в сульфиде мышьяка (As₂S₃). а– радиус пучка, б– интенсивность.

Чтобы выяснить, как проявляется двухфотонное поглощение при фокусировке гауссова пучка в глубь среды, построим график изменения интенсивности при распространении в стекле, долю поглощенной энергии импульса вдоль направления распространения z при $W_0 = 0,99W_{кр}$ (Рис. 2) и огибающую импульса до прохождения фокуса, в фокусе и после прохождения фокуса (Рис. 3).

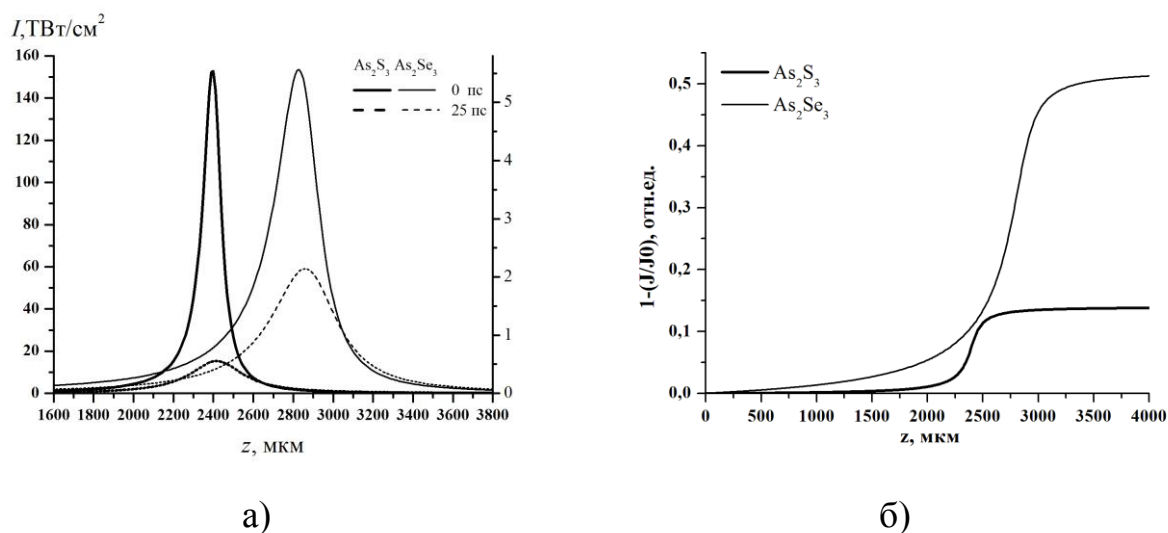


Рис. 2. Изменение интенсивности (а) и доля поглощенной энергии импульса (б) при распространении в стеклах состава As_2S_3 и As_2Se_3 . На рис.2а сплошные линии соответствуют центру импульса ($\tau = 0$ пс), штриховые – краю импульса ($\tau = 25$ пс). На рис 2а.б жирные линии соответствуют сульфиду мышьяка, тонкие – селениду мышьяка.

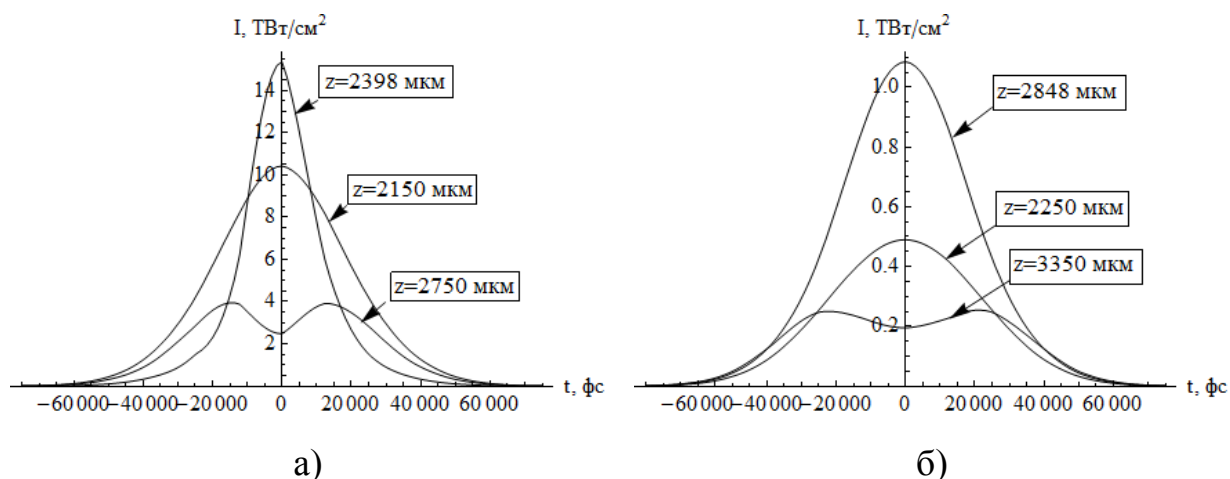


Рис. 3 Огибающая импульса до прохождения фокуса, в фокусе и после прохождения фокуса. а) – сульфид мышьяка, в фокусе ($z=2398$ мкм) интенсивность нормирована на 10 б) – селенид мышьяка, в фокусе ($z=2848$ мкм) интенсивность нормирована на 5.

Как можно наблюдать на рисунке 2а, максимум периферийной части импульса ($\tau = 25$ пс) смещен вправо (по направлению распространения импульса), а его центральная часть ($\tau = 0$ пс) – влево (к «источнику»). Это связано с сильно выраженным двухфотонным поглощением в центральной части импульса, где интенсивность максимальна. Расчёты показали, что

такой же характер смещения фокуса наблюдается при варьировании начальной энергии импульса и величины $\beta^{(2)}$. Чем больше энергия импульса и/или больше величина $\beta^{(2)}$, тем сильнее выражено двухфотонное поглощение и тем больше величина смещения фокуса по направлению к «источнику». На рисунке 2б построен график величины поглощенной энергии вдоль направления распространения z . Видно, что двухфотонное поглощение проявляется в резком росте поглощенной энергии в области фокуса. Доля поглощённой энергии зависит от величины $\beta^{(2)}$, причем чем больше величина $\beta^{(2)}$, тем большая доля энергии поглощается в фокусе. Соотношение $\beta^{(2)} n_2$ определяет «остроту» фокуса, как в продольном, так и в поперечном сечении пучка. Чем оно меньше, тем более резко изменяется интенсивность в области фокуса. С величиной поглощенной энергии связана плотность электронов в области фокуса. Построим графики для пространственного распределения плотности электронов (Рисунок 4), рост плотности электронов в фокусе в центре пучка и радиальное распределение плотности электронов в фокусе (Рисунок 5).

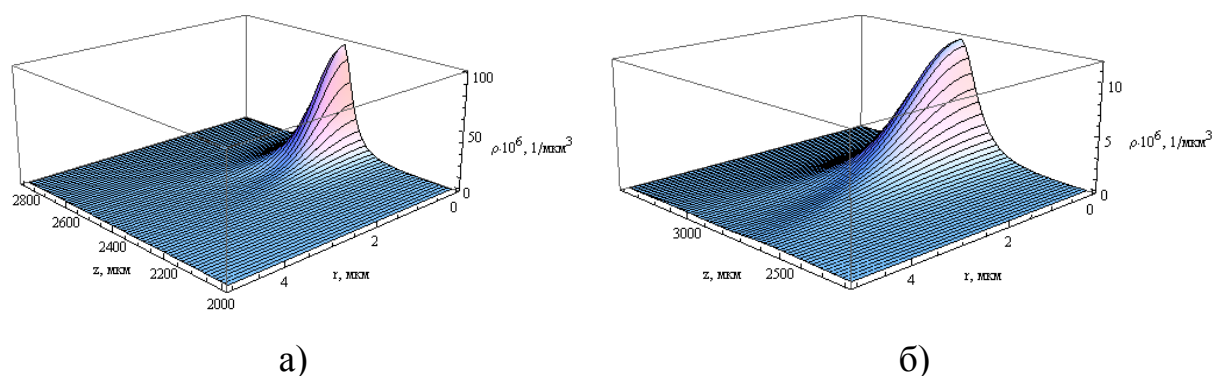


Рис. 4 Пространственное распределение плотности электронов после прохождения импульса в сульфиде мышьяка (а) селениде мышьяка (б)

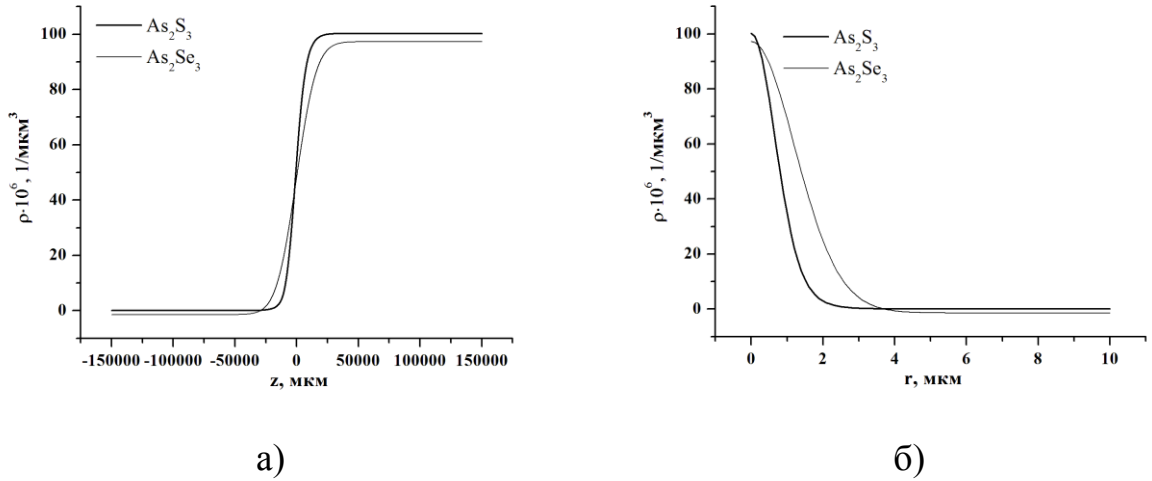


Рис. 5 Рост плотности электронов(а) и радиальное распределение (б) в фокусе пучка в сульфиде (As_2S_3) и селениде мышьяка (As_2Se_3), для селенида мышьяка плотность электронов нормирована на 10.

Глава 3 посвящена рассмотрению метода измерения нелинейных восприимчивостей третьего порядка на основе генерации третьей гармоники (ГТГ) и обработке экспериментальных данных, полученных для образцов плавленого кварца и халькогенидных стёкол состава As_2S_3 и As_2Se_3 . В оптически-изотропных средах можно оптимизировать КПД генерации путем регулирования длины взаимодействия. Интенсивность ТГ осциллирует как функция длины взаимодействия. Изменение длины взаимодействия обычно осуществляется путем вращения образца, интенсивность ТГ в зависимости от угла поворота (угла падения света с частотой ω) осциллирует как

$$I_{3\omega} = \frac{576\pi^6}{n_{3\omega}n_{\omega}^2\lambda_{\omega}^2c^2} \chi^{(3)}{}^2 I_{\omega}^3 L^2 \text{Sinc} \Delta k L(\theta_i)/2^2, \quad (8)$$

где $n_{3\omega}$ – показатель преломления на длине волны третьей гармоники, n_{ω} – показатель преломления на длине волны накачки, λ – длина волны накачки, c – скорость света, $\chi^{(3)}$ – нелинейная восприимчивость, I_{ω} – интенсивность излучения, прошедшего в образец, $L(\theta_i) = d \cdot \cos \arcsin \sin \theta_i n_{\omega}^{-1}$ – длина оптического пути излучения накачки внутри образца (длина взаимодействия), θ_i – угол падения, $\Delta k = 6\pi n_{3\omega} - n_{\omega} / \lambda$ – фазовая расстройка, $I_{3\omega}$ – интенсивность излучения третьей гармоники, выходящего

из образца. Интенсивности I_ω и $I_{3\omega}$ связаны коэффициентами Френеля с интенсивностью света частоты ω , падающей на образец и генерируемого света с частотой 3ω , соответственно. В случае существенного поглощения в образце от длины взаимодействия L необходимо перейти к эффективной длине:

$$L_{eff} \theta_i = 1 - \exp \alpha L \theta_i \quad \alpha \quad (9)$$

где α – коэффициент однофотонного поглощения, L – длина взаимодействия. Для образцов As_2S_3 и As_2Se_3 при толщине $d \approx 1$ мм оценка по формуле (9) даёт значение $L_{eff} \approx 100$ мкм. Таким образом, эффективная генерация третьей гармоники происходит в тонком приповерхностном слое стекла. Экспериментальные графики и наложенные на них аппроксимации, полученные подбором величины расстройки Δk до совпадения пиков для плавленого кварца и халькогенидного стекла As_2Se_3 , показаны на рис 6.

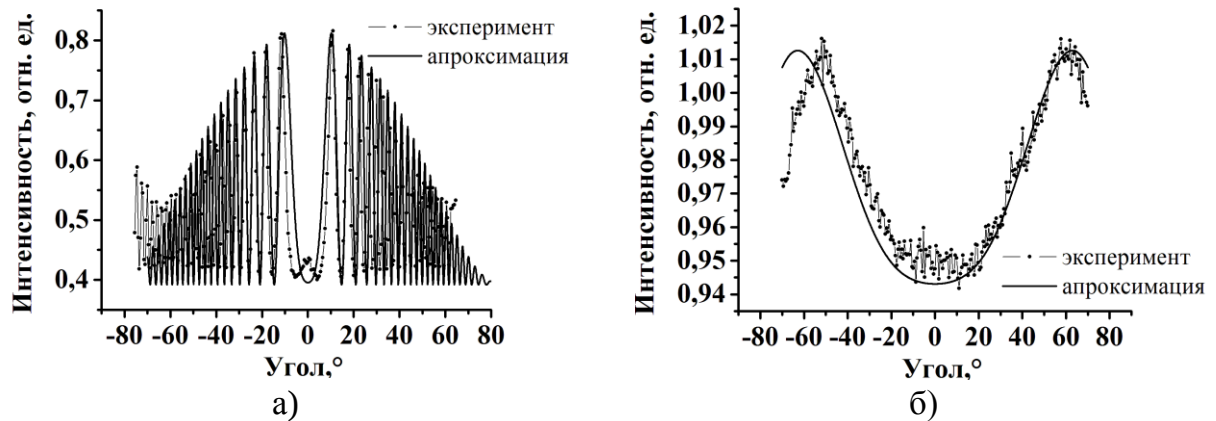


Рисунок 6. Биения Мейкера, полученные с образцами: а) плавленого кварца; б) халькогенидного стекла As_2Se_3 . Точками отмечены экспериментальные значения, сплошной линией – аппроксимация по формуле (8)

Величина нелинейной восприимчивости может быть рассчитана по формуле

$$\chi^{(3)} = (n + 1)/(n_s + 1) (\Delta k \Delta k_s) \overline{I_{3\omega} I_{3\omega s} \chi_s^{(3)}}, \quad (10)$$

где n и n_s - показатели преломления, Δk и Δk_s - фазовые расстройки, $I_{3\omega}$ и $I_{3\omega s}$ - интенсивности излучения гармоники для образца халькогенидного стекла и плавленого кварца, соответственно, $\chi_s^{(3)} = 1,8 \times 10^{-18} \text{ см}^2/\text{Вт}$ –

нелинейная восприимчивость плавленого кварца. Характеристики образцов и рассчитанные значения $\chi^{(3)}$ приведены в таблице 2.

Таблица 2.

Образец	d , мкм	n	α , см ⁻¹	$\chi^{(3)} \cdot 10^{-14}$, см ² Вт
SiO ₂	2000	1,45	10 ⁻⁵	1,8 · 10 ⁻¹⁸
As ₂ Se ₃	614	2,9	90,7	3,13
As ₂ S ₃	618	2,45		2,9

Заключение

- Показано, что в математической модели эффект двухфотонного поглощения при самофокусировке гауссова пучка можно учитывать посредством комплексного коэффициента керровской нелинейности
- Для сфокусированных гауссовых пучков двухфотонное поглощение проявляется в резком росте поглощенной энергии в области фокуса.
- При фокусировке гауссова пучка вглубь среды двухфотонное поглощение приводит к смещению фокуса (область максимальной интенсивности) по направлению к источнику.
- При определённом соотношении коэффициента двухфотонного поглощения β^2 и керровской постоянной n_2 наблюдается немонотонное изменение интенсивности вдоль направления распространения пучка. Нелинейное поглощение и дифракция вызывают падение интенсивности в районе фокальной плоскости.
- Метод биений Мейкера применим для измерения эффективной нелинейности третьего порядка в области полосы поглощения материала
- Генерация третьей гармоники в As₂S₃ и As₂Se₃ при облучении лазером с длиной волны 1064 нм происходит в тонком приповерхностном слое стекла.
- Измеренные значения нелинейности третьего порядка $3,13 \times 10^{-14}$ см² Вт (у селенида мышьяка) и $2,9 \times 10^{-14}$ см² Вт (у сульфида мышьяка).