Письма в ЖЭТФ, том 124, вып. 11, с. 916 – 923 © 2026 г. 10 декабря

Резонансный вклад полярных фононов в электрооптический отклик нелинейных кристаллов $BaGa_2GeS_6$ и $BaGa_2GeSe_6$ в ТГц диапазоне частот

Д. З. Сулейманова[+], *Е. А. Мигаль*[+], *М. Д. Киселев*[+], *Д. В. Бадиков*[*], *Ф. В. Потёмкин*[+1)]

[+]*Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия*

[*]*Кубанский государственный университет, 350040 Краснодар, Россия*

Поступила в редакцию 9 октября 2026 г.
После переработки 21 октября 2026 г.
Принята к публикации 22 октября 2026 г.

В данной работе впервые экспериментально исследованы электрооптические свойства четверных кристалллов на основе бария $BaGa_2GeS_6$ (BGGS) и $BaGa_2GeSe_6$ (BGGSe) в диапазоне частот 0.1–2.6 ТГц. Проведены сравнительные эксперименты по электрооптическому детектированию узкополосного ТГц-излучения в кристаллах BGGS и BGGSe, вырезанных перпендикулярно оси Z, и стандартных кристаллах GaP и ZnTe в низкочастотной части спектра (0.75–1 ТГц) и в окрестности резонанса с поперечными ТО-фононами (52 $см^{-1}$ (1.6 ТГц) в BGGSe и 63 $см^{-1}$ (1.9 ТГц) в BGGS). Впервые выполнены оценки эффективных электрооптических коэффициентов, составившие 2.7 ± 0.7 пм/В для BGGSe и 1.9 ± 0.7 пм/В для BGGS для низкочастотной части спектра. Обнаружено, что при приближении к фононным резонансам эффективный электрооптический коэффициент значительно возрастает и составляет 11.0 ± 1.9 пм/В (на частоте 2.05 ТГц) и 6.3 ± 1.0 пм/В (на частоте 2.55 ТГц) для селенида и сульфида соответственно. На основе спектральных данных в терагерцовом и инфракрасном диапазонах, а также с учетом дисперсии электрооптических коэффициентов, впервые приводятся функции отклика кристаллов BGGS и BGGSe для электрооптического детектирования ТГц-импульсов в диапазоне частот 0.1–2.6 ТГц.

DOI: 10.7868/S3034576626120029

1. Введение. Четверные кристаллы на основе бария привлекают значительный интерес в последнее время благодаря своим исключительным нелинейно-оптическим свойствам. Кристаллы $BaGa_2GeS_6$ (BGGS) и $BaGa_2GeSe_6$ (BGGSe) обладают широким диапазоном прозрачности (0.34–3.3 мкм и 0.46–18 мкм соответственно) и высокой оптической нелинейностью [1, 2], что позволяет эффективно использовать их для преобразования частоты доступных лазеров накачки в окрестности 1 мкм в средний и дальний инфракрасные (ИК) диапазоны [3, 4].

Недавно [5] также сообщалось о возможности применения этих кристаллов для генерации узкополосного терагерцового (ТГц) излучения. В работах [5, 6] было установлено, что диэлектрические свойства кристаллов в ТГц-области подвержены влиянию большого числа фононных резонансов, наиболее низкочастотные из которых расположены в диапазоне 50–70 $см^{-1}$. При этом кристаллы демонстрируют значительную прозрачность в низкочастотной области до 1.2–1.5 ТГц и затем дополнительные окна прозрачности в окрестности 2.0 и 2.5 ТГц в случае селенида и сульфида соответственно [5].

Высокий порог оптического пробоя (6.5 $Дж/см^2$ [7] для BGGS и до 2.3 $Дж/см^2$ [8] для BGGSe под действием наносекундных импульсов на длине волны ~ 1 мкм), высокие показатели преломления и прозрачность в ИК-области делают данные среды перспективными для создания электрооптических (ЭО) модуляторов и детекторов. Однако ЭО константы данных кристаллов до сих пор остаются неисследованными. В работе [9] значения их ЭО коэффициентов были получены лишь теоретически на основе расчетов из первых принципов, а в работах [10, 11] экспериментально определялись исключительно нелинейно-оптические коэффициенты d_{ij}, которые могут послужить для оценки электронного отклика кристаллов. В то же время богатый фононный спектр кристаллов может приводить к усилению ЭО отклика вблизи фононных резонансов за счет ионного вклада, что требует дополнительного исследования. Таким образом, актуальной задачей является экспериментальное определение ЭО коэффици-

[1)]e-mail: potemkin@physics.msu.ru

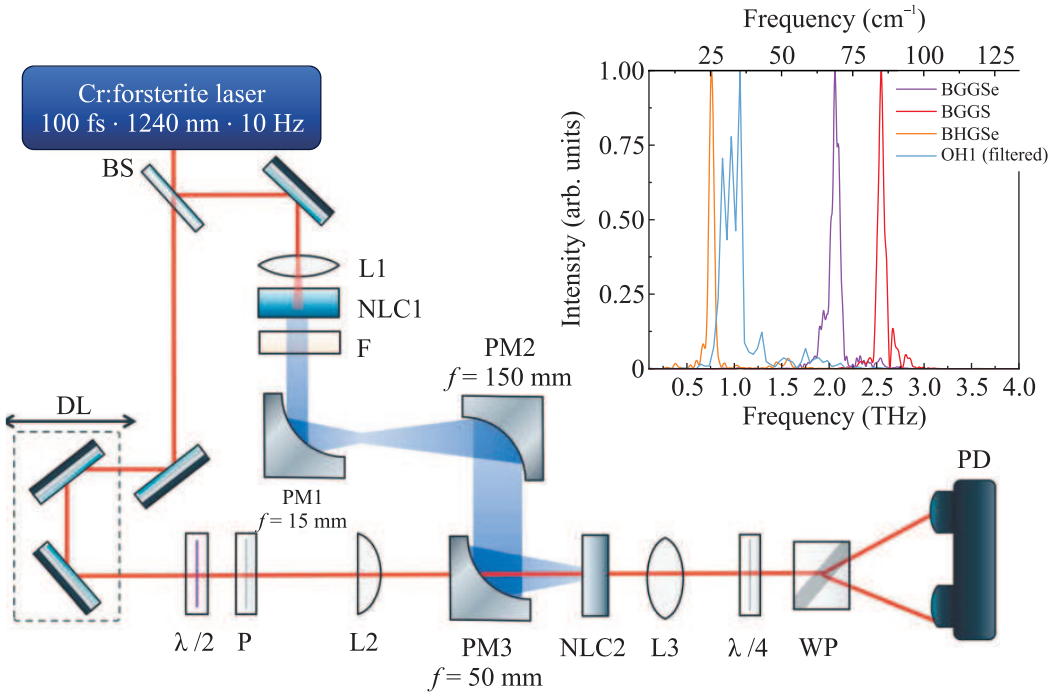


Рис. 1. (Цветной онлайн) Экспериментальная схема генерации и ЭОД ТГц излучения. BS – светоделитель; NLC1 – нелинейный кристалл-генератор ТГц излучения; NLC2 – нелинейный ЭО кристалл-детектор ТГц излучения; F – фильтр; P – призма Глана; DL – линия задержки, PM1–PM3 – параболические зеркала; WP – призма Волластона; L1–L3 – линзы; PD – балансный фотодетектор. На вставке продемонстрированы спектры ТГц излучения, регистрируемого в схеме ЭОД

ентов кристаллов BGGS и BGGSe на разных частотах в ТГц-области спектра, что необходимо для оценки их применимости в качестве активных элементов ЭО модуляторов, а также в качестве ЭО детекторов.

2. Методика эксперимента. Детектирование ТГц-излучения осуществлялось в классической схеме балансного электрооптического детектирования (ЭОД), представленной на рис. 1, позволяющей регистрировать электрическое поле ТГц-импульсов во временном представлении.

Величина поворота плоскости поляризации оптического пробного импульса, регистрируемая балансным фотодетектором в зависимости от задержки между пробным и ТГц-импульсами, представляет собой свертку поля ТГц-импульса и функции отклика ЭО кристалла-детектора $F(\omega_{\mathrm{THz}})$:

$$S(t) = \arcsin\left(\frac{2\Delta I(t)}{I_1(t)+I_2(t)}\right) = \frac{2\pi}{\lambda} L n_{\mathrm{opt}}^3 \times \int_{-\infty}^{\infty} E_{\mathrm{THz}}(\omega_{\mathrm{THz}}) F(\omega_{\mathrm{THz}}) e^{-i\omega_{\mathrm{THz}}t}\, d\omega_{\mathrm{THz}}, \quad (1)$$

где λ – длина волны пробного оптического излучения, L – толщина ЭО кристалла-детектора, n_{opt} – показатель преломления пробного импульса, $E_{\mathrm{THz}}(\omega_{\mathrm{THz}})$ – комплексный фурье-спектр напряженности электрического поля ТГц-импульса.

Функция ЭО отклика в общем случае регистрации широкополосного ТГц-излучения учитывает конечную длительность пробного импульса, фазовую расстройку между оптическим и ТГц импульсами, распространение ТГц-импульса в ЭО кристалле-детекторе и дисперсию нелинейного отклика кристалла:

$$F(\omega_{\mathrm{THz}}) = \frac{A_{\mathrm{opt}}(\omega_{\mathrm{THz}})}{A_0} \times \times r_{\mathrm{eff}}(\omega_{\mathrm{THz}}) \Delta\Phi(\omega_{\mathrm{THz}})\, T(\omega_{\mathrm{THz}}), \quad (2)$$

где $A_{\mathrm{opt}}(\omega_{\mathrm{THz}})/A_0$ – нормированная автокорреляционная функция электрического поля пробного оптического импульса, $r_{\mathrm{eff}}(\omega_{\mathrm{THz}})$ – эффективный ЭО коэффициент, определяющийся комбинацией компонент тензора r_{ij} и в общем случае зависящий от частоты ω_{THz}. Функция $\Delta\Phi(\omega_{\mathrm{THz}}) = \left[\exp(-i\Delta\tilde{k}(\omega_{\mathrm{THz}})L) - 1\right]/\left[i\Delta\tilde{k}(\omega_{\mathrm{THz}})\right]$ определяет фазовую расстройку, причем $\Delta\tilde{k} = \frac{\omega_{\mathrm{THz}}}{c}[\tilde{n}(\omega_{\mathrm{THz}}) - n_g(\omega_{\mathrm{opt}})]$, где $\tilde{n}(\omega_{\mathrm{THz}}) = n(\omega_{\mathrm{THz}}) + i\kappa(\omega_{\mathrm{THz}})$, ω_{opt} – центральная частота пробного оптического импульса, а $n_g(\omega_{\mathrm{opt}})$ его

групповой индекс $n_g(\omega_{\text{opt}}) = c/v_{gr}(\omega_{\text{opt}})$, тогда как $T(\omega_{\text{THz}}) = \frac{2\tilde{n}(\omega_{\text{THz}})}{\tilde{n}(\omega_{\text{THz}})+1}$ учитывает распространение ТГц-импульса в ЭО кристалле.

В кристаллах низкой симметрии, к которым относятся тригональные кристаллы BGGS и BGGSe, эффективный ЭО коэффициент r_{eff} зависит от ориентации осей кристалла относительно поляризации оптического и ТГц-импульсов. Поэтому для полного описания ЭО отклика необходимо учитывать угловую зависимость эффективного ЭО коэффициента от азимутального угла φ. Для используемых кристаллов с Z-срезом реализуется *ooo*-взаимодействие, для которого $r_{\text{eff}}(\varphi)$ может быть записан в виде [11]:

$$r_{\text{eff}}^{ooo}(\varphi) = r_{11}\sin(3\varphi) + r_{22}\cos(3\varphi), \qquad (3)$$

где r_{11} и r_{22} – независимые компоненты линейного ЭО тензора. В дальнейшем в работе мы будем говорить о максимальном значении $r_{\text{eff}}(\varphi)$, реализуемом для кристаллов с Z-срезом.

В классических кристаллах-детекторах, таких как GaP и ZnTe, величина ЭО коэффициента в рассматриваемом диапазоне частот (0.1–2.6 ТГц) не зависит от частоты и является постоянной величиной. Однако вблизи фононных резонансов дисперсия ЭО коэффициента может быть значительной, и ее необходимо учитывать. Так, для кристаллов BGGS и BGGSe может наблюдаться значительная дисперсия нелинейного отклика $r_{\text{eff}}(\omega_{\text{THz}})$ уже в области 0.1–2.6 ТГц, так как наиболее низкочастотные оптические фононы находятся на частотах $\omega_{\text{TO}} = 52.4\,\text{см}^{-1}$ (1.6 ТГц) для BGGSe и $\omega_{\text{TO}} = 63.4\,\text{см}^{-1}$ (1.9 ТГц) для BGGS Z-срезов. Таким образом, прямая регистрация и восстановление поля широкополосного ТГц-импульса согласно формулам (1)–(2) в этих кристаллах является непростой задачей. В связи с этим естественным представляется использование узкополосных источников ТГц-излучения с шириной спектра Δf меньше ширины резонанса $\Delta\omega_{TO} \approx 190\,\text{ГГц}$ для BGGSe и $\Delta\omega_{TO} \approx 160\,\text{ГГц}$ для BGGS для оценки влияния резонансов на ЭО коэффициент. В таком случае коэффициент $r_{\text{eff}}(\omega_{\text{THz}})$ может считаться независимым от частоты в пределах ширины спектра используемых импульсов Δf и формула (1) преобразуется следующим образом:

$$S(t) = \frac{2\pi}{\lambda} L n_{\text{opt}}^3 r_{\text{eff}} \times$$
$$\times \int_{-\infty}^{\infty} E_{\text{THz}}(\omega_{\text{THz}}) F(\omega_{\text{THz}}) e^{-i\omega_{\text{THz}}t}\, d\omega_{\text{THz}}. \qquad (4)$$

Однако при изменении частоты узкополосного излучения коэффициент r_{eff} необходимо определять независимо. В таком случае, проводя измерения на разных частотах и сравнивая полученные данные с эталонными измерениями в стандартных ЭО кристаллах-детекторах GaP и ZnTe, можно определить влияние фононного резонанса на величину r_{eff}, т.е. получить его частотную зависимость.

В данной работе эксперименты проводились с использованием излучения лазерной системы на кристалле хром-форстерита, генерирующей импульсы длительностью 100 фс с центральной длиной волны 1.24 мкм и частотой повторения 10 Гц [12] (рис. 1). Это излучение с энергией 3.5 мДж фокусировалось в нелинейно-оптический кристалл (NLC1), в котором генерировалось узкополосное ТГц излучение. ТГц излучение на частотах 2.05 ТГц (ширина спектра $\Delta f = 75\,\text{ГГц}$) и 2.55 ТГц ($\Delta f = 80\,\text{ГГц}$) генерировалось в кристаллах BGGSe и BGGS, вырезанных по нормали к оптической оси Z [5], и имело пиковые напряженности поля 90 кВ/см и 80 кВ/см соответственно. Для генерации ТГц излучения в низкочастотной области использовался кристалл $BaHgGeSe_4$ (BHGSe), вырезанный по нормали к оси X, обеспечивающий генерацию излучения на частоте 0.75 ТГц ($\Delta f = 63\,\text{ГГц}$) [13] с пиковой напряженностью поля порядка 6 кВ/см, и органический кристалл OH1 (2-(3-(4-hydroxystyryl)-5,5-dimethylcyclohex-2-enylidene)malononitrile), широкополосное излучение которого пропускалось через узкополосный фильтр для выделения спектральной компоненты на частоте 1 ТГц с пиковой напряженностью поля до 320 кВ/см. Спектр излучения каждого из кристаллов приведен на рис. 1 (вставка).

Генерируемое ТГц излучение селектировалось от излучения накачки с помощью фильтра F и с помощью системы параболических зеркал (PM1–PM3) направлялось в ЭО кристалл-детектор (NLC2). В качестве кристаллов-детекторов использовались как эталонные кристаллы ZnTe и GaP толщиной 200 мкм, так и исследуемые бариевые кристаллы: BGGS толщиной 500 мкм, BGGSe толщиной 140 и 500 мкм. Исследуемые кристаллы были вырезаны по нормали к оси Z, что позволяло исключить влияние двулучепреломления при распространении вдоль оси симметрии кристалла.

Низкоэнергетичное пробное излучение (1.24 мкм) заводилось в схему через полуволновую пластину и призму Глана (P), что позволяло снижать его энергию до 1–2 мкДж. Затем пробное излучение фокусировалось на кристалл-детектор (NLC2) с помощью линзы (L2) с фокусным расстоянием 100 мм. Регистрация поворота плоскости поляризации линейно поляризованного пробного излучения под действием

поля ТГц-импульса осуществлялась с помощью четвертьволновой пластинки, призмы Волластона (WP) и балансного фотодетектора (PD).

3. Экспериментальные результаты. Оценка эффективного ЭО коэффициента. Как уже отмечалось, экспериментальная оценка эффективного ЭО коэффициента r_{eff} исследуемых кристаллов BGGS и BGGSe была основана на том, что один и тот же ТГц-импульс регистрировался последовательно двумя различными кристаллами-детекторами: эталонным с известным ЭО коэффициентом, независящим от частоты, GaP ($r_{\text{eff}}(\omega) = r_{41} = 0.97$ пм/В) или ZnTe ($r_{\text{eff}}(\omega) = r_{41} = 3.90$ пм/В) [14] и исследуемым с неизвестным коэффициентом. Напряженность электрического поля ТГц-импульса $E_{\text{THz}}(t)$ восстанавливалась на основе измеренного сигнала $S_{\text{ref}}(t)$ и функции отклика эталонного кристалла $F_{\text{ref}}(\omega_{\text{THz}})$. Затем на его место помещался исследуемый кристалл-детектор (BGGS или BGGSe) для регистрации того же самого ТГц-импульса, и процедура восстановления повторялась. Оценка эффективного ЭО коэффициента выполнялась путем сопоставления спектральной плотности мощности зарегистрированных ТГц-импульсов, что позволяло проводить как качественный сравнительный анализ формы спектров, так и их точную количественную оценку. В качестве примера на рис. 2 представлена процедура восстановления ТГц поля на частоте 2.55 ТГц, регистрируемого эталонным кристаллом-детектором GaP и исследуемым кристаллом-детектором BGGS. Рисунок 2a соответствует экспериментально измеренному сигналу $S(t)$, а рис. 2b, c демонстрируют восстановленные спектральные и временные характеристики ТГц поля. Видно хорошее согласие между данными, измеренными разными кристаллами-детекторами.

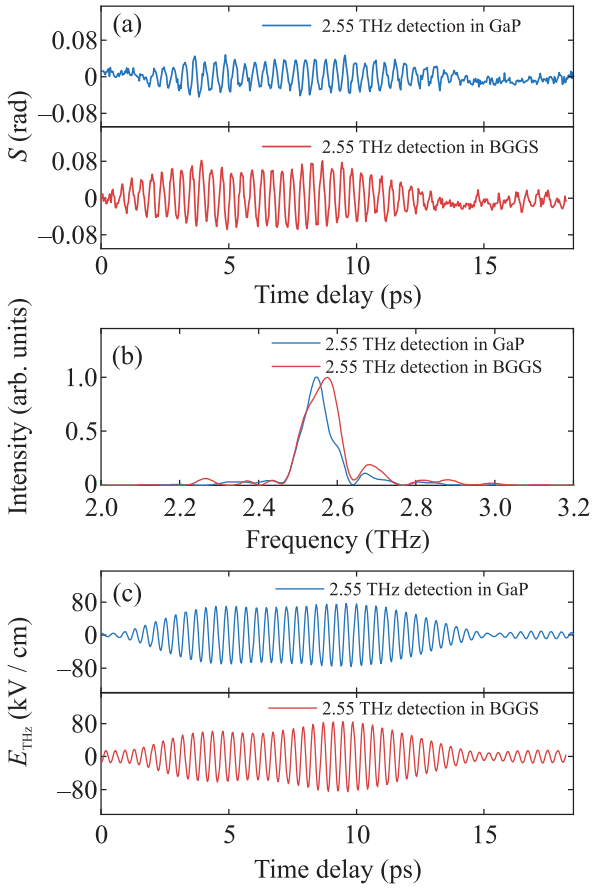


Рис. 2. (Цветной онлайн) (a) – Экспериментально измеренные сигналы $S(t)$, (b) восстановленные спектры и (c) – восстановленные временные профили напряженности электрического поля ТГц-импульсов $E_{\text{THz}}(t)$, зарегистрированных в стандартном кристалле-детекторе GaP толщиной 200 мкм и исследуемом кристалле-детекторе BGGS толщиной 500 мкм

Результаты оценок эффективных ЭО коэффициентов для кристаллов BGGSe и BGGS, полученные на различных частотах по описанной выше методике, приведены в табл. 1 и 2. Обнаружено, что в низкочастотной области (0.75–1 ТГц) значения r_{eff} составляют порядка 2.7 ± 0.7 пм/В для BGGSe и 1.9 ± 0.7 пм/В для BGGS, в то время как в высокочастотной части было обнаружено увеличение ЭО коэффициента в 3–4 раза. Так, для четверного селенида бария (BGGSe) r_{eff} возрастает до значения порядка 11.0 ± 1.9 пм/В на частоте 2.05 ТГц, а для сульфида бария (BGGS) наблюдается увеличение r_{eff} до 6.3 ± 1.0 пм/В на частоте 2.55 ТГц, что свидетельствует о резонансном усилении ЭО коэффициента, обусловленном ионным вкладом в нелинейный отклик вблизи фононных мод. Стоит отметить, что основной вклад в погрешность определения r_{eff}, составляющую около 30 %, вносит статистический разброс, обусловленный особенностями юстировки оптической схемы ЭОД как при смене кристаллов-генераторов, так и кристаллов-детекторов. Отметим, что контрольное определение ЭО коэффициента кристалла ZnTe и его сопоставление с литературными данными послужило подтверждением корректности

Таблица 1. Эффективный ЭО коэффициент r_{eff} кристалла BGGSe

Frequency (THz)	r_{eff} (pm/V)
0	3.1 [9]
0.75	2.7 ± 0.7
1.0	2.6 ± 0.7
2.05	11.0 ± 1.9

ности используемого в работе метода определения ЭО коэффициента с точностью 30 %.

Таблица 2. Эффективный электрооптический коэффициент r_{eff} кристалла BGGS

Frequency (THz)	r_{eff} (pm/V)
0	2.9 [9]
1.0	1.9 ± 0.7
2.55	6.3 ± 1.0

4. Частотная дисперсия эффективного ЭО коэффициента. Обнаруженное в эксперименте сильное различие (в 3–4 раза) эффективных ЭО коэффициентов r_{eff} кристаллов BGGSe и BGGS в низко- и высокочастотной областях указывает на необходимость учета частотной зависимости ЭО коэффициента вблизи фононных резонансов, которая может быть выполнена в рамках модели Фауста–Генри [15]:

$$r_{\text{eff}}(\omega) = r^{e}_{\text{eff}}\left(1 + C^{\text{eff}}_{\text{FH}}\frac{\omega^2_{\text{TO}}}{\omega^2_{\text{TO}} - \omega^2 - i\omega\gamma}\right), \qquad (5)$$

где r^{e}_{eff} – электронный вклад в ЭО коэффициент, $C^{\text{eff}}_{\text{FH}}$ – эффективный коэффициент Фауста–Генри, характеризующий отношение ионного и электронного вкладов, ω_{TO} и γ – частота и затухание поперечной оптической фононной моды соответственно.

В отличие от эмпирического правила Миллера, установленного для описания нелинейно-оптического отклика второго порядка некоторых кристаллов, данная модель не предполагает прямой связи между линейной и нелинейной дисперсией, что позволяет описывать более широкий класс кристаллов, характеризующихся богатыми фононными спектрами и более сложной симметрией – в том числе и тригональные кристаллы с точечной группой 3, к которым относятся исследуемые в настоящей работе BGGS и BGGSe. Наличие фононных мод в ТГц-диапазоне частот приводит к тому, что вклад ионной поляризации в нелинейный отклик становится существенным, и правило Миллера перестает быть применимым. Так, например, в работе [16] применение этого подхода позволило описать нелинейно-оптическое преобразование частоты в кристалле ZnTe с высокой точностью, включая спектральные области с высокой дисперсией $\chi^{(2)}_{36}(\omega_{\text{THz}})$ вблизи фононного резонанса. Кроме того, недавно в работе [17] был экспериментально оценен эффективный коэффициент Фауста–Генри для кристалла GaSe, что позволило скорректировать искажение функции отклика, обусловленное фононным резонансом на частоте 6.4 ТГц, и восстановить корректную временную форму широкополосных ТГц-импульсов.

Для описания частотной дисперсии ЭО коэффициентов в рамках данной модели были использованы параметры фононных мод, доминирующих в рассмотренном частотном диапазоне (0.1–2.6 ТГц): $\omega_{\text{TO}} = 52.4\,\text{см}^{-1}$ (1.6 ТГц), $\gamma = 6.41\,\text{см}^{-1}$ для кристалла BGGSe и $\omega_{\text{TO}} = 63.4\,\text{см}^{-1}$ (1.9 ТГц), $\gamma = 5.38\,\text{см}^{-1}$ для BGGS, определенные на основе данных поляризованных спектров ИК отражения из работ [6, 18]. Было определено, что данные поперечные фононные моды обеспечивают наибольшую модуляцию коэффициента отражения в рассматриваемом ТГц-диапазоне частот в конфигурации $\mathbf{E} \perp Z$, что соответствует срезу используемых кристаллов.

На основе экспериментально определенных значений была построена аппроксимация частотной зависимости эффективного ЭО коэффициента вблизи фононного резонанса $r_{\text{eff}}(\omega)$ (рис. 3). Так как для

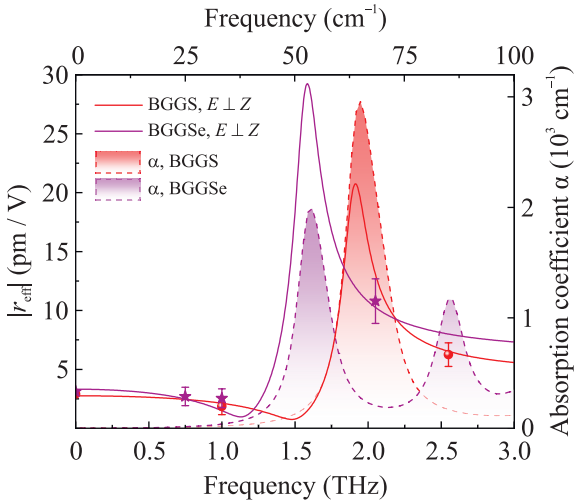


Рис. 3. (Цветной онлайн) Частотная дисперсия эффективного электрооптического коэффициента $r_{\text{eff}}(\omega)$ для кристаллов BGGSe и BGGS, рассчитанная на основе экспериментальных данных и аппроксимированная по модели Фауста–Генри. Символы соответствуют значениям r_{eff}, полученным на выделенных частотах экспериментально

определения частотной зависимости по данным узкополосных источников присутствует малое число экспериментальных точек, то особое внимание было уделено корректному восстановлению более широкополосных сигналов. В качестве примера на рис. 4 представлены спектры ТГц-излучения, имеющего доминирующую спектральную компоненту на частоте 1 ТГц и слабые компоненты на 2.05 и 2.55 ТГц. Ре-

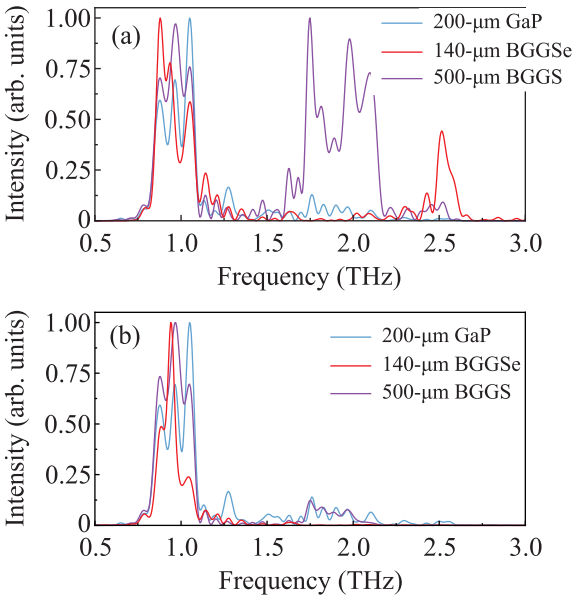


Рис. 4. (Цветной онлайн) Спектры ТГц-излучения, генерируемого в органическом кристалле OH1 и прошедшего через узкополосный фильтр, восстановленные из измерений в стандартном ЭО кристалле-детекторе GaP и исследуемых бариевых кристаллах-детекторах BGGSe и BGGS с использованием функции отклика, (a) – не учитывающей и (b) – учитывающей дисперсию нелинейной восприимчивости второго порядка

гистрация ТГц излучения проводилась в эталонном ЭО кристалле-детекторе GaP и в исследуемых бариевых кристаллах-детекторах BGGSe и BGGS как без учета дисперсии ЭО коэффициента (рис. 4a), так и с учетом дисперсии (рис. 4b). Наилучшего согласия удалось добиться для коэффициентов Фауста–Генри $C_{\mathrm{FH}}^{\mathrm{eff}} = -0.47 \pm 0.14$ для BGGSe и $C_{\mathrm{FH}}^{\mathrm{eff}} = -0.38 \pm 0.11$ для BGGS. Соответствующие значения эффективной высокочастотной константы $r_{\mathrm{eff}}^{\mathrm{high}}$, полученные из аппроксимации, составили 6.2 ± 0.9 пм/В для BGGSe и 4.4 ± 0.7 пм/В для BGGS. Важно отметить, что $r_{\mathrm{eff}}^{\mathrm{high}}$ не соответствует электронному вкладу в ЭО коэффициент (r_{eff}^{e}), а представляет собой эффективный параметр, описывающий асимптотическое поведение ЭО коэффициента на верхней границе исследуемого частотного диапазона 2.6–3 ТГц. На частотах, превышающих 2.6–3 ТГц, необходим учет дополнительных фононных резонансов. Как видно из рис. 4, без учета дисперсии ЭО коэффициента компоненты на частотах 2.05 и 2.55 ТГц, зарегистрированные в BGGSe и BGGS, выглядят значительно более интенсивными по сравнению с сигналом, зарегистрированным в GaP, в котором доминирует компонента на 1 ТГц. С использованием корректной функции отклика восстановленные спектры ТГц-излучения демонстрируют хорошее качественное согласие с измерениями в эталонном кристалле GaP (рис. 4b).

5. Обсуждение. Расчет функции отклика для кристаллов BGGS и BGGSe. На рисунке 5 представлен расчет модуля амплитуды функций отклика $|F(\omega_{\mathrm{THz}})|$ для рассматриваемых в настоящей работе ЭО кристаллов-детекторов при длительности пробного импульса (1.24 мкм) 100 фс. Для учета линейной дисперсии $\tilde{n}(\omega_{\mathrm{THz}})$ в ТГц-диапазоне был выполнен расчет диэлектрических свойств кристаллов на основе известных данных ТГц [5] и ИК [6, 18] спектроскопии. Анализ представленных функций позволяет выделить несколько характерных спектральных областей, определяющих возможности ЭО детектирования в четверных соединениях на основе бария.

В диапазоне низких частот (0.1–1 ТГц) оба кристалла BGGSe и BGGS характеризуются высокой прозрачностью [5], вследствие чего функции отклика имеют практически постоянные значения аналогично стандартным кристаллам ZnTe и GaP. Большая нелинейность по сравнению с GaP (0.97 пм/В), но меньшая по сравнению с ZnTe (3.90 пм/В), помещает кристаллы BGGS (1.9 пм/В) и BGGSe (2.7 пм/В) между ними. В диапазоне выше 1 ТГц функции отклика для обоих кристаллов испытывают заметное влияние фононных мод, приводящих к значительному поглощению ТГц излучения. Как следствие, функция отклика испытывает резкое подавление, что ограничивает возможность использования толстых кристаллов для детектирования широкополосного ТГц-излучения. Однако наличие узких окон прозрачности в спектре пропускания данных кристаллов, в которых ранее была продемонстрирована эффективная генерация узкополосного ТГц излучения методом оптического выпрямления [5], а также резонансное увеличение эффективных ЭО коэффициентов, обеспечивает локальное увеличение амплитуды функций отклика на частотах около 2 ТГц и 2.5 ТГц для кристаллов BGGSe и BGGS соответственно. Подчеркнем, что увеличение обусловлено как реализацией фазового согласования между оптическим и ТГц импульсами, что отражено в функциях отклика, рассчитанных без учета дисперсии нелинейности (рис. 2a, пунктирные линии), так и резонансным усилением ЭО коэффициента вблизи фононных мод. Действительно, из рис. 2a видно, что учет дисперсии нелинейности приводит к дополнительному увеличению отклика в областях фононных резонансов (сплошные линии). Это делает данные кристаллы более перспективными материалами для узкополосного детектирования на выделенных частотах в

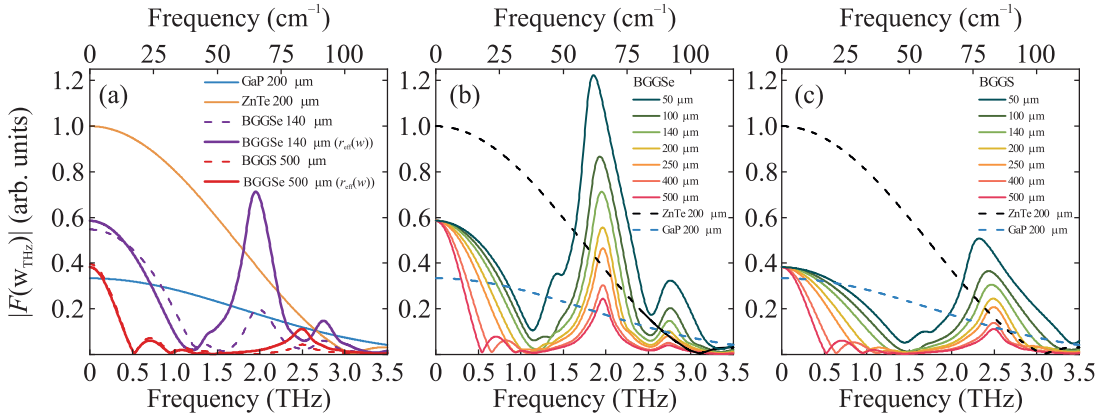


Рис. 5. (Цветной онлайн) (a) – Модуль амплитуды частотного отклика $|F(\omega_{\mathrm{THz}})|$ для исследуемых ЭО кристаллов-детекторов BGGSe, BGGS толщиной 140 мкм и 500 мкм, а также стандартных GaP и ZnTe толщиной 200 мкм при длительности пробного импульса 100 фс. Функции отклика для BGGSe и BGGS рассчитаны как с учетом дисперсии нелинейной восприимчивости второго порядка (сплошные линии), так и без учета (пунктирные линии) для демонстрации ее влияния. (b), (c) – Модуль амплитуды частотного отклика $|F(\omega_{\mathrm{THz}})|$ для кристаллов BGGSe и BGGS различной толщины, рассчитанный с учетом дисперсии нелинейной восприимчивости второго порядка. Представленные частотные отклики нормированны на отклик эталонного кристалла ZnTe толщиной 200 мкм

сравнении со стандартными ЭО-кристаллами GaP и ZnTe. В частности, максимальный выигрыш в чувствительности достигается в тонких кристаллах толщиной порядка 50 мкм на частотах 2–3 ТГц. Так, амплитуды функций откликов кристаллов BGGSe на частоте 2.05 ТГц и BGGS на частоте 2.55 ТГц превышают отклик стандартных ZnTe и GaP в 3–6 раз (рис. 2b, c).

6. Выводы. Таким образом, в данной работе впервые исследуются ЭО свойства кристаллов BGGS и BGGSe. Показано, что эффективный низкочастотный ЭО коэффициент кристаллов с Z-срезом составляет 2.7 ± 0.7 пм/В для BGGSe и 1.9 ± 0.7 пм/В для BGGS. Кроме того, полученные результаты демонстрируют, что резонансное усиление эффективного ЭО коэффициента в окрестности поперечных оптических фононов 52.4 см$^{-1}$ (1.6 ТГц) в BGGSe и 63.4 см$^{-1}$ (1.9 ТГц) в BGGS позволяет увеличить r_{eff} до 11.0 ± 1.9 пм/В (на 2.05 ТГц) и 6.3 ± 1.0 пм/В (на 2.55 ТГц) для селенида и сульфида соответственно, и повысить чувствительность детектирования в этих узких спектральных диапазонах, что особенно важно для задач, требующих высокочувствительного детектирования узкополосных ТГц-сигналов, сформированных различными источниками на основе генерации разностной частоты, оптического выпрямления в тех же кристаллах или, например, спинтронных устройствах. Использование одного и того же кристалла как для генерации, так и для детектирования ТГц-излучения может существенно упростить экспериментальную схему и повысить ее стабильность. Кроме того, оптимальные оптические свойства четверных кристаллов на основе бария и довольно высокие значения ЭО коэффициента в низкочастотной области делают кристаллы BGGS и BGGSe привлекательными для создания эффективных ЭО модуляторов для излучения среднего ИК диапазона.

Финансирование работы. Исследование электрооптического отклика вблизи резонансов выполнено за счет гранта Российского научного фонда # 25-22-00084. Оборудование, использованное в данной работе, приобретено при поддержке программы развития Московского государственного университета и национального проекта “Наука и Университеты”. Сулейманова Д. З. является стипендиатом фонда развития теоретической физики и математики “БАЗИС”.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. N. Kostyukova, E. Erushin, A. Boyko, G. Shevyrdyaeva, and D. Badikov, “Barium Chalcogenide Crystals: A Review”, Photonics **11**, 281 (2024).
2. V. Petrov, V. V. Badikov, D. V. Badikov, K. Kato, G. S. Shevyrdyaeva, K. Miyata, M. Mero, L. Wang, Z. Heiner, and V. L. Panyutin, “Barium nonlinear optical crystals for the mid-IR: characterization and some applications”, J. Opt. Soc. Am. B **38**, B46 (2021).
3. E. A. Migal, D. Z. Suleimanova, D. V. Badikov, and F. V. Potemkin, “Unlocking superior performance of broadband powerful mid- IR optical parametric amplifiers with a $BaGa_2GeS_6$ crystal pumped at 1.24 μm”, Opt. Lett. **49**, 4537 (2024).

4. E. Yu. Erushin, S. E. Sere, M. V. Vostrikova, A. A. Boyko, G. S. Shevyrdyaeva, D. V. Badikov, A. A. Karapuzikov, and N. Yu. Kostyukova, "An optical parametric oscillator based on $BaGa_2GeS_6$ with energy exceeding 2 mJ at 6.45 μm", Infrared Phys. Technol. **154**, 106393 (2026).
5. D. Z. Suleimanova, E. A. Migal, D. V. Badikov, and F. V. Potemkin, "High-efficiency narrowband terahertz generation in novel wide-bandgap barium chalcogenide crystals", Appl. Phys. Lett. **128**, 161108 (2026).
6. С. А. Климин, Б. Н. Маврин, И. В. Будкин, В. В. Бадиков, Д. В. Бадиков, "Динамика решетки и электронные свойства нелинейного кристалла $BaGa_2GeS_6$: комбинационное рассеяние, ИК отражение и расчет ab initio", Оптика и спектроскопия **127**, 20 (2019) [S. A. Klimin, B. N. Mavrin, I. V. Budkin, V. V. Badikov, and D. V. Badikov, "Lattice dynamics and electronic properties of $BaGa_2GeS_6$ a nonlinear crystal: Raman scattering, IR reflection and ab initio calculation", Opt. Spectrosc. **127**, 14(2019)].
7. E. Erushin, D. Badikov, K. Anton, A. Boyko, G. Shevyrdyaeva, G. Safaraliev, and N. Kostyukova, "Laser-induced damage threshold of sulfur-containing crystals of barium chalcogenides", Applied Physics B **131**, 11 (2025).
8. N. Y. Kostyukova, A. A. Boyko, E. Y. Erushin, A. I. Kostyukov, V. V. Badikov, D. B. Badikov, and D. B. Kolker, "Laser-induced damage threshold of $BaGa_4Se_7$ and $BaGa_2GeSe_6$ nonlinear crystals at 1053 μm", J. Opt. Soc. Am. **36**, 2260 (2019).
9. R. Li, "Theoretical material properties of the nonlinear optical crystals: disordered barium gallium chalcogenides", J. Opt. Soc. Am. B **42**, 2068 (2025)
10. K. Kato, N. Umemura, K. Miyata, and V. Petrov, "Effective nonlinearity of trigonal $BaGa_2GeS_6$", J. Opt. Soc. Am. B **41**, E29 (2024).
11. K. Kato, V. V. Badikov, L. Wang, V. L. Panyutin, K. V. Mitin, K. Miyata, and V. Petrov, "Effective nonlinearity of the new quaternary chalcogenide crystal $BaGa_2GeSe_6$", Opt. Lett. **45**, 2136 (2020).
12. A. Pushkin, E. Migal, D. Suleimanova, E. Mareev, and F. Potemkin, "High-Power Solid-State Near- and Mid-IR Ultrafast Laser Sources for Strong-Field Science", Photonics **9**, 90 (2022).
13. E. Migal, D. Suleimanova, O. Parashchuk, D. Badikov, and F. Potemkin, "Phonon-mediated tailoring of dielectric properties in $BaHgGeSe_4$ for collinear narrowband THz generation", IEEE Trans. Terahertz Sci. Technol. **16**, 1 (2026).
14. Q. Wu and X.-C. Zhang, "7 terahertz broadband GaP electro-optic sensor", Appl. Phys. Lett. **70**, 1784 (1997).
15. W. L. Faust and C. H. Henry, "Mixing of Visible and Near-Resonance Infrared Light in GaP", Phys. Rev. Lett. **17**, 1265 (1966).
16. B. N. Carnioand and A. Y. Elezzabi, "An Extensive Finite-Difference Time-Domain Formalism for Second-Order Nonlinearities Based on the Faust-Henry Dispersion Model: Application to Terahertz Generation", J. Infrared Millim. Terahertz Waves **41**, 291 (2020).
17. K. Ogawa, N. Kanda, Y. Murotani, S. Tanaka, J. Yoshinobu, and R. Matsunaga, "Correction of broadband terahertz electro-optic sampling with GaSe crystals", J. Infrared Millim. Terahertz Waves **50**, 4822 (2025).
18. I. Budkin, S. Klimin, D. Badikov, and V. Badikov, "IR-active phonons of $BaGa_2GeSe_6$ nonlinear crystal", in *8th International Conference Photonics and Information Optics (PhIO), Book of Abstracts, MIFI* (MIFI, Moscow, Russia, 2019), p. 313.