

# Условия квазисинхронизма при одновременной генерации нескольких гармоник лазерного излучения в кристаллах с регулярной доменной структурой

С.Г.Гречин\*, В.Г.Дмитриев\*\*

*Рассмотрены условия квазисинхронизма при одновременной генерации нескольких гармоник в квадратично-нелинейных кристаллах с регулярной доменной структурой.*

**Ключевые слова:** преобразование частоты, кристаллы с доменной структурой, квазисинхронизм, генерация гармоник.

Нелинейно-оптические кристаллы с регулярной доменной структурой (РДС) позволяют реализовать ряд качественно новых вариантов преобразования частоты лазерного излучения. К их числу относятся: одновременная генерация нескольких оптических гармоник [1], ГВГ одновременно на трех типах взаимодействия [2], ГВГ при одновременной реализации синхронного и квазисинхронного взаимодействий [3] и т. п. В нашей работе [4] была отмечена взаимосвязь между взаимодействиями различных типов при ГВГ, генерации третьей (ГТГ) и четвертой (ГЧГ) гармоник.

В настоящей работе мы определим условия квазисинхронизма для одновременных ГВГ, ГТГ и ГЧГ, ограничившись случаем коллинеарных взаимодействий в РДС-кристалле с квадратичной нелинейностью. Учитывая, что четвертая гармоника может быть получена либо как суммарная частота первой ( $\omega$ ) и третьей ( $3\omega$ ) гармоник ( $\omega + 3\omega = 4\omega$ ), либо как удвоение второй гармоники ( $2\omega + 2\omega = 4\omega$ ), в общем случае четырех расматриваемых процессов для суммарных волновых расстройек можно записать следующие выражения:

$$\text{ГВГ} \quad \omega + \omega = 2\omega,$$

$$\delta k_1 = k_{2i} - k_{1j} - k_{1k} + m_1 G_1 = \Delta k_1 + m_1 G_1, \quad (1)$$

$$\text{ГТГ} \quad \omega + 2\omega = 3\omega,$$

$$\delta k_2 = k_{3m} - k_{1k} - k_{2i} + m_2 G_2 = \Delta k_2 + m_2 G_2, \quad (2)$$

$$\text{ГЧГ-1} \quad \omega + 3\omega = 4\omega,$$

$$\delta k_3 = k_{4n} - k_{1j} - k_{3m} + m_3 G_3 = \Delta k_3 + m_3 G_3, \quad (3)$$

$$\text{ГЧГ-2} \quad 2\omega + 2\omega = 4\omega,$$

$$\delta k_4 = k_{4n} - 2k_{2i} + m_4 G_4 = \Delta k_4 + m_4 G_4, \quad (4)$$

где  $\Delta k_q$  – волновые расстройки для однородного кристалла ( $q = 1, 2, 3, 4$ );  $k_{q\alpha}$  – волновые числа взаимодействующих волн;  $\alpha = i, j, k, m, n$  – индексы, соответствующие различным типам взаимодействующих волн (o, e для одноосных и s, f для двухосных кристаллов);  $G_q = 2\pi A_q^{-1}$  – волновое число (модуль псевдовектора) решетки доменной структуры с периодом  $A_q$ ;  $m_q = 0, \pm 1, \pm 3, \pm 5, \dots$  – порядки квазисинхронизма.

Выполнению условия квазисинхронизма для определенного процесса соответствует  $\delta k_q = 0$  (при этом условию «традиционного» синхронизма для однородных кристаллов  $\Delta k_q = 0$  соответствует  $m_q = 0$ ), а одновременный квазисинхронизм для всех четырех процессов в одной и той же доменной структуре (т. е. при  $G_1 = G_2 = G_3 = G_4$ ) может иметь место в общем случае для разных порядков квазисинхронизма, или, другими словами, для разных длин когерентности  $L_{\text{coh}}^{(q)} = \pi/\Delta k_q = A_q/(2m_q)$ .

Предположим, что для ГВГ и ГТГ выполняются условия квазисинхронизма ( $\delta k_1 = \delta k_2 = 0$ ) на одной доменной структуре ( $G_1 = G_2$ ) и для одного порядка квазисинхронизма ( $m_1 = m_2$ ). Тогда имеем соотношение

$$2k_{2i} = k_{1j} + k_{3m}. \quad (5)$$

Из (3)–(5) следует, что в этом случае  $\Delta k_3 = \Delta k_4$ . Если при этом выполняется условие квазисинхронизма, например, для ГЧГ-1 ( $\delta k_3 = 0$ ), то  $\delta k_4 = m_4 G_4 - m_3 G_3$ . Можно предположить, что выполнение условий квазисинхронизма для ГЧГ-2 ( $\delta k_4 = 0$ ) будет обеспечено равенством  $m_4 G_4 = m_3 G_3$  при одном и том же порядке синхронизма ( $m_3 = m_4$ ) и, следовательно, на одной структуре ( $G_3 = G_4$ ); при этом в общем случае  $m_1 \neq m_3$ ,  $G_1 \neq G_3$ .

Сказанное выше иллюстрируется рис.1, где представлены зависимости длины когерентности  $L_{\text{coh}}^{(q)}$  от длины волны основного (лазерного) излучения для всех четырех коллинеарных процессов еее-типа при распространении излучения в плоскости  $xz$  стехиометрического кристалла  $\text{LiNbO}_3$ , для которого коэффициенты уравнения Селлмейера взяты из работы [5]. Как следует из рис.1, на длинах волн  $\lambda_1 = 3579.54$  нм и  $\lambda_2 = 4256.45$  нм наблюдается попарное равенство когерентных длин: на длине волны  $\lambda_1$  имеем  $L_{\text{coh}}^{(1)} = L_{\text{coh}}^{(2)} = 16.05$  мкм и  $L_{\text{coh}}^{(3)} = L_{\text{coh}}^{(4)} = 13.62$  мкм, а на  $\lambda_2$  имеем  $L_{\text{coh}}^{(1)} = L_{\text{coh}}^{(3)} = 14.09$  мкм и  $L_{\text{coh}}^{(2)} = L_{\text{coh}}^{(4)} = 15.85$  мкм.

\*Московский государственный технический университет им. Н.Э. Баумана, Россия, 107005 Москва, 2-я Бауманская ул., 5; e-mail: gera@mx.bmstu.ru

\*\*Федеральное государственное унитарное предприятие «НИИ «Полос» им. М.Ф.Стельмаха», Россия, 117342, ул. Введенского, 3; e-mail: vgdmitr@orc.ru

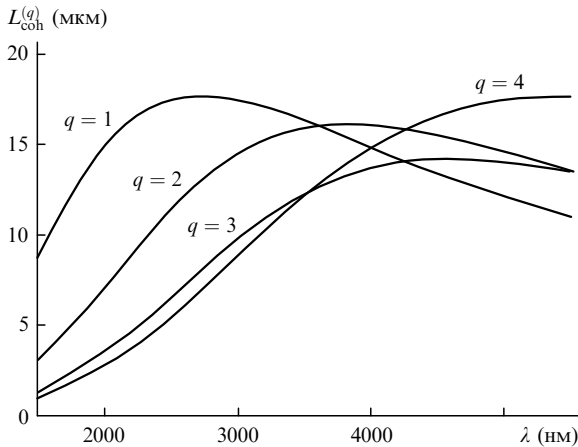


Рис.1. Дисперсионные зависимости когерентных длин коллинеарных eee-процессов ГВГ ( $q = 1$ ), ГТГ ( $q = 2$ ), ГЧГ-1 ( $q = 3$ ), ГЧГ-2 ( $q = 4$ ) в стехиометрическом кристалле  $\text{LiNbO}_3$ . На длинах волн  $\lambda_1 = 3579.54$  и  $\lambda_2 = 4256.45$  нм наблюдается попарное равенство когерентных длин.

Для выполнения условий квазисинхронизма на  $\lambda_1$  одновременно для ГВГ и ГТГ достаточно выбрать период доменной структуры  $A_1 = 2m_1L_{\text{coh}}^{(1)}$ , а для одновременной реализации ГЧГ-1 и ГЧГ-2 – период  $A_3 = 2m_3L_{\text{coh}}^{(3)}$ . Для выполнения квазисинхронизма одновременно для всех четырех процессов на одной доменной структуре необходимо обеспечить равенство  $A_1 = A_3$ :

$$A_1 = \frac{2\pi}{G_1} = 2m_1L_{\text{coh}}^{(1)} = 2m_3L_{\text{coh}}^{(3)}, \tag{6}$$

т.е. период доменной структуры должен быть кратен одновременно двум длинам когерентности. Из (6) следует, что

$$\frac{L_{\text{coh}}^{(1)}}{L_{\text{coh}}^{(3)}} = \frac{m_3}{m_1}, \tag{7}$$

т.е. отношение когерентных длин должно быть равным или целому нечетному числу, или отношению целых нечетных чисел. Соотношение (7) позволяет установить, при каких условиях (т.е. на каких длинах волн основного

излучения и для каких типов взаимодействующих волн) реализуется одновременный квазисинхронизм для всех четырех процессов (1)–(4), что ограничивает число комбинаций типов взаимодействия (всего их 64, но, во-первых, далеко не для всех пар взаимодействий условия квазисинхронизма выполняются в диапазоне прозрачности кристалла и, во-вторых, не для всех справедливо условие (7)).

Аналогично случаю для  $\lambda_1$  при выполнении условий квазисинхронизма для  $\lambda_2$  одновременно для ГВГ и ГЧГ-1 имеем  $A_1 = 2m_1L_{\text{coh}}^{(1)}$ , а для ГТГ и ГЧГ-2 –  $A_2 = 2m_2L_{\text{coh}}^{(2)}$ . Для выполнения квазисинхронизма одновременно для всех четырех процессов на одной доменной структуре необходимо выполнение равенства  $A_1 = A_2$ , т.е.

$$A_1 = \frac{2\pi}{G_1} = 2m_1L_{\text{coh}}^{(1)} = 2m_2L_{\text{coh}}^{(2)}, \tag{8}$$

откуда

$$\frac{L_{\text{coh}}^{(1)}}{L_{\text{coh}}^{(2)}} = \frac{m_2}{m_1}. \tag{9}$$

Проиллюстрируем сказанное на примере одноосного отрицательного кристалла  $\text{LiNbO}_3$  стехиометрического состава в случае распространения излучения в плоскости  $xz$ . В табл.1 приведены результаты расчета длин когерентности для различных комбинаций типов взаимодействия для всех четырех процессов (1)–(4). В первом – четвертом столбцах табл.1 приведены рассматриваемые типы взаимодействия, в пятом – длины волн, на которых длины когерентности совпадают попарно: для процессов (1), (2), т.е.  $L_{\text{coh}}^{(1,2)}$ , и для процессов (3), (4), т.е.  $L_{\text{coh}}^{(3,4)}$ . Величины  $L_{\text{coh}}^{(3,4)}$  и  $L_{\text{coh}}^{(1,2)}$  приведены в шестом и седьмом столбцах, а в восьмом столбце дано отношение  $L_{\text{coh}}^{(1,2)}/L_{\text{coh}}^{(3,4)}$ . Если последнее отношение равно целому нечетному числу или отношению целых нечетных чисел, то квазисинхронизм реализуется одновременно для всех четырех процессов: ГВГ, ГТГ, ГЧГ-1, ГЧГ-2.

Порядок синхронизма  $m$  в (1)–(4), являющийся целым нечетным числом, может быть как положительным, так и отрицательным (последнее соответствует отрицательной когерентной длине, или, другими словами, об-

Табл.1.

$2\omega + 2\omega = 4\omega$	$\omega + 3\omega = 4\omega$	$\omega + 2\omega = 3\omega$	$\omega + \omega = 2\omega$	$\lambda$ (нм)	$L_{\text{coh}}^{(3,4)}$ (мкм)	$L_{\text{coh}}^{(1,2)}$ (мкм)	$L_{\text{coh}}^{(1,2)}/L_{\text{coh}}^{(3,4)}$
e eo	eee	eee	eee	3579.54	3.95	16.05	4.07
	eee	eee	eee	3579.54	3.95	35.51	9.00
	eee	eee	eee	5349.02	5.97	13.94	2.34
	eee	eee	eee	5349.02	5.97	18.01	3.02
o oo	ooo	ooo	ooo	2144.32	3.00	4.89	1.63
	ooo	ooo	ooo	2144.32	3.00	7.19	3.40
	ooo	ooo	ooo	3541.2	10.61	9.21	0.87
	ooo	ooo	ooo	3541.2	10.61	13.53	1.27
e ee	eee	eee	eee	3579.54	12.62	35.51	2.81
	eee	eee	eee	3579.54	12.62	16.05	1.27
	eee	eee	eee	5349.05	17.69	18.01	1.02
	eee	eee	eee	5349.05	17.69	13.94	0.79
o oe	ooo	ooo	ooo	2144.32	339.45	4.89	0.01
	ooo	ooo	ooo	2144.32	339.45	7.19	0.02
	ooo	ooo	ooo	3541.2	-12.19	9.21	-0.76
	ooo	ooo	ooo	3541.2	-12.19	13.53	-1.11

ратному направлению псевдовектора доменной структуры  $G_q$ ). Взаимосвязь двух пар процессов (ГВГ и ГТГ, ГЧГ-1 и ГЧГ-2) в уравнениях (1)–(4) показывает, что для выполнения условия квазисинхронизма одновременно для всех четырех процессов знаки порядков квазисинхронизма для процессов (1), (2) и (3), (4) должны быть одинаковыми внутри этих пар, хотя знаки пар могут быть и противоположными. Отметим, что пары процессов (1), (2) и (3), (4) в двух последних строках табл.1 имеют разные знаки порядков квазисинхронизма.

Если не ставить перед собой задачу удовлетворения условиям квазисинхронизма одновременно для всех четырех процессов, то внутри пары процессов (ГВГ и ГТГ или ГЧГ-1 и ГЧГ-2) знаки порядков квазисинхронизма могут быть разными. В табл.2 представлены результаты расчета когерентной длины для того же стехиометрического кристалла  $\text{LiNbO}_3$  при одновременной реализации процессов ГЧГ-1 и ГЧГ-2 при подаче на вход нелинейного РДС-кристалла первой ( $\omega$ ), второй ( $2\omega$ ) и третьей ( $3\omega$ ) гармоник. Разумеется, при этом ни для одного из процессов, представленных в табл.2, нельзя добиться одновременной реализации условий квазисинхронизма для ГВГ и ГТГ.

Аналогичные расчеты можно провести для первой пары процессов (ГВГ и ГТГ) в случае равных и разных по знаку когерентных длин. При этом реализация квазисинхронизма (одновременно ГВГ и ГТГ) для процессов ГЧГ-1 и ГЧГ-2 исключается. Этим способом можно устранить нежелательную конкуренцию другой пары процессов.

Отметим, что в случае разных знаков порядков квазисинхронизма (разных знаков когерентных длин) внутри пары знаки эффективной нелинейности кристалла  $d_{\text{eff}}$  для этих пар в общем случае также различны. Для случая пары процессов ГЧГ-1, ГЧГ-2 это приводит к уменьшению общей эффективности преобразования в четвертую гармонику. По этой причине для данной пары важно иметь одинаковые знаки  $d_{\text{eff}}$  для обоих процессов (например, за счет выбора надлежащего октанта взаимодействия), что приведет к увеличению эффективности преобразования при ГЧГ, как показано для ГВГ в нашей работе [6].

Перейдем к рассмотрению возможности реализации одновременного квазисинхронизма всех четырех процессов на одной доменной структуре при неравных порядках квазисинхронизма внутри каждой пары процессов. Пусть, например, для процессов (1), (2), т. е. ГВГ и ГТГ, условия одновременного синхронизма выполняются при  $m_1 \neq m_2$  и  $G_1 = G_2 = G$ . Тогда, если одновременно на той же структуре выполняется условие  $\delta k_3 = 0$  (для процесса ГЧГ-1), то из (1)–(4) получаем (т. к. при этом  $G_3 = G$ ) со-

Табл.2.

$2\omega + 2\omega = 4\omega$	$\omega + 3\omega = 4\omega$	$\lambda$ (мкм)	$L_{\text{coh}}^{(3)}$ (мкм)	$L_{\text{coh}}^{(4)}$ (мкм)
eee	oee	3439.5	11.76	-11.76
		4003.4	14.84	-14.84
oee	oee	2027.67	24.66	-24.66
		2725.8	-13.49	13.49
	5002.18	-19.21	19.21	
	eoe	2157.38	-1873.04	1873.04
	eee	3424.66	-12.01	12.01
		4132.4	-13.95	13.95

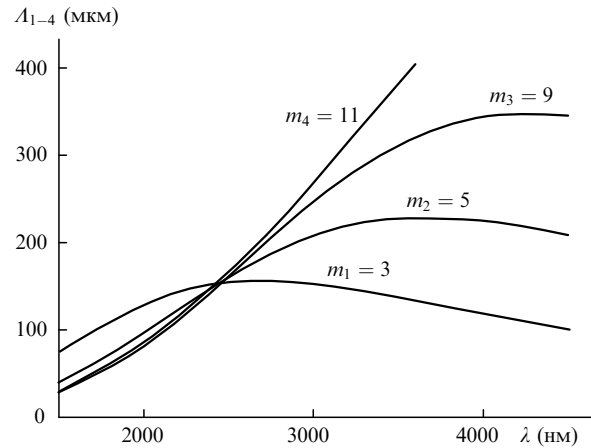


Рис.2. Дисперсионные зависимости периода доменной структуры, необходимого для протекания коллинеарных sss-процессов ГВГ ( $m_1 = 3$ ), ГТГ ( $m_2 = 5$ ), ГЧГ-1 ( $m_3 = 9$ ) и ГЧГ-2 ( $m_4 = 11$ ) в кристалле КТР. На длине волны 2445.5 нм наблюдается пересечение кривых при  $A_{1-4} \approx 153$  мкм ( $L_d = 76.46$  мкм).

отношение  $\delta k_4 = -(m_2 - m_1)G + m_4G_4 - m_3G$ , и выполнение квазисинхронизма для ГЧГ-2 ( $\delta k_4 = 0$ ) на той же структуре ( $G_4 = G$ ) возможно при условии

$$m_1 + m_4 = m_2 + m_3. \tag{10}$$

Выражение (10) определяет возможность реализации квазисинхронизма на одной доменной структуре одновременно для всех четырех процессов (1)–(4).

Для иллюстрации сказанного на рис.2 приведены зависимости требуемого периода доменной структуры  $A_q = 2L_d^{(q)}$ , где  $L_d$  — ширина одного домена, от длины волны основного излучения в двухосном кристалле КТР для четырех процессов (1)–(4) с разными порядками квазисинхронизма, подобранными в соответствии с соотношением (10) ( $m_1 = 3, m_2 = 5, m_3 = 9, m_4 = 11$ , так что  $m_1 + m_4 = m_2 + m_3 = 14$ ) для sss-взаимодействия в плоскости  $xu$  (напомним, что при переходе от одноосных кристаллов к двухосным следует заменить индексы  $o$  и  $e$  на индексы  $s$  и  $f$ ).

При расчете использовались коэффициенты уравнения Селлмейера из [7]. Условия квазисинхронизма одновременно для процессов (1)–(4) на длине волны основного излучения 2442.5 нм при  $A_{1-4} \approx 153$  мкм удалось реализовать при различных порядках квазисинхронизма и нагреве кристалла до 31.5 °С.

Полученные результаты можно обобщить и на генерацию гармоник более высокого порядка. Так, выполнение условия квазисинхронизма  $\delta k_q = 0$  в уравнениях (1)–(4) приведет к тому, что автоматически будут создаваться предпосылки для одновременной генерации пятой гармоники (ГПГ) в процессах  $\omega + 4\omega = 5\omega$  (ГПГ-1) и  $2\omega + 3\omega = 5\omega$  (ГПГ-2):

$$\text{ГПГ-1} \quad \delta k_5 = k_{5s} - k_{1k} - k_{4n} + m_5G_5 = \Delta k_5 + m_5G_5, \tag{11}$$

$$\text{ГПГ-2} \quad \delta k_6 = k_{5s} - k_{2i} - k_{3m} + m_6G_6 = \Delta k_6 + m_6G_6. \tag{12}$$

При  $\Delta k_1 = \Delta k_4$  получаем  $\Delta k_5 = \Delta k_6$ .

Аналогично для генерации шестой гармоники (ГШГ) в процессах  $\omega + 5\omega = 6\omega$  (ГШГ-1),  $2\omega + 4\omega = 6\omega$  (ГШГ-2) и  $3\omega + 3\omega = 6\omega$  (ГШГ-3) имеем

$$\text{ГШГ-1} \quad \delta k_7 = k_{6p} - k_{5s} - k_{1j} + m_7 G_7 = \Delta k_7 + m_7 G_7, \quad (13)$$

$$\text{ГШГ-2} \quad \delta k_8 = k_{6p} - k_{2i} - k_{4n} + m_8 G_8 = \Delta k_8 + m_8 G_8, \quad (14)$$

$$\text{ГШГ-3} \quad \delta k_9 = k_{6p} - 2k_{3m} + m_9 G_9 = \Delta k_9 + m_9 G_9. \quad (15)$$

Из (13), (15) получаем, что при выполнении условия квазисинхронизма на одном порядке для всех взаимодействий будет справедливо равенство

$$k_{4n} + k_{2i} = k_{5s} + k_{1j}.$$

Это равенство создает предпосылки для выполнения условий квазисинхронизма для ГВГ (1) и ГПГ-1 (11).

В настоящей работе мы ограничились рассмотрением выполнения условий квазисинхронизма, не затрагивая вопроса об эффективной нелинейности. В частности, для кристаллов точечной группы  $3m$  в плоскости  $xu$  отличны от нуля эффективные нелинейности для следующих типов взаимодействия:  $eoe$ ,  $oee$ ,  $ooo$  и  $eo$ . При изменении направления волновых векторов взаимодействующих волн  $k_q(\omega_i)$  (угла  $\theta$ ) эффективные нелинейности отличны от нуля и могут быть реализованы все процессы.

Таким образом, существует связь между порядками квазисинхронизма для одновременной генерации различных гармоник лазерного излучения в РДС-кристаллах. Это позволяет создавать многочастотные преобра-

зователи частоты лазерного излучения в оптические гармоники, что может найти ряд интересных применений, в частности для создания источника ударных электромагнитных волн оптического диапазона. Однако в том случае, когда необходимы, например, только 2-я и 3-я гармоники, одновременная ГЧГ может выступать как конкурирующий процесс, мешая основному преобразованию и уменьшая его эффективность. Подавление нежелательной пары процессов может быть достигнуто за счет применения взаимодействий с разными знаками порядков квазисинхронизма.

Все результаты настоящей работы получены при использовании справочно-расчетного пакета программ LID-SHG (Laser Investigator&Designer – Second Harmonic Generation), расположенного на сайте <http://www.bmstu.ru/~lid>. Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 00-02-17857).

1. Fejer M.M., Magel G.A., Jundt D.H., Byer R.L. *IEEE J. Quantum Electron.*, **28**, 2631 (1992).
2. Гречин С.Г., Дмитриев В.Г. *Квантовая электроника*, **26**, 151 (1999).
3. Гречин С.Г., Дмитриев В.Г., Юрьев Ю.В. *Квантовая электроника*, **26**, 155 (1999).
4. Dmitriev V.G., Grechin S.G. *Proc.SPIE*, **3733**, 228 (2001).
5. Smith D.S., Riccius H.D., Edwin R.P. *Optics Comms*, **17**, 332 (1976).
6. Гречин С.Г., Дмитриев В.Г. *Квантовая электроника*, **31**, 929 (2001).
7. Anthon D.W., Crowder C.D. *Appl.Optics*, **27**, 2650 (1988).