

Получение перестраиваемого по частоте излучения в дальнем УФ диапазоне с применением методики неколлинеарного некритического фазового синхронизма в кристалле LB4*

А.М.Рудра, П.Кумбхакар, С.Гангопадхайя, Ч.Гхош, У.Чаттерджи

Рассмотрена перестраиваемая по частоте генерация излучения в области дальнего УФ диапазона, полученная при помощи суммирования частот в режиме неколлинеарного некритического синхронизма с использованием кристалла LB4 длиной 3.4 см. В процессе экспериментов проводилось суммирование излучений Nd:YAG-лазера и второй гармоники перестраиваемого лазера на красителе. Область перестройки была равна 204.7–205.5 нм. Угловая полоса приёма в режиме неколлинеарного некритического синхронизма составляла порядка 0.50 мрад, что в 1.8 раза больше соответствующего значения для режима критического фазового синхронизма. Коэффициент преобразования на длине волны дальнего УФ излучения 205 нм составил 2.1 %. Помимо этого была получена перестраиваемая в диапазоне 246–255 нм генерация излучения при удвоении частоты перестраиваемого лазера на красителе в кристалле LB4.

Ключевые слова: некритический фазовый синхронизм, кристалл LB4, суммирование частот, генерация в УФ диапазоне, неколлинеарный фазовый синхронизм, генерация второй гармоники.

1. Введение

Когерентное лазерное излучение, перестраиваемое по частоте в УФ диапазоне, может найти самое широкое применение – от спектроскопии и подводной связи до фотохимии и дактилоскопии. К наиболее эффективным методам получения перестраиваемого УФ излучения относятся нелинейно-оптические методы с использованием нелинейных кристаллов. Основным условием внедрения этих методов является необходимость получения нелинейных кристаллов достаточно хорошего качества и невысокой стоимости. В настоящее время поиск подобных кристаллов продолжается. Очевидно, что кристаллы, используемые в качестве конвертера, должны иметь высокую лучевую прочность, большие размеры, достаточное для получения фазового синхронизма двулучепреломление, прекрасные механические свойства и т. д. Кроме того, коротковолновость диапазона требует высокого оптического качества кристаллов.

В настоящее время для получения перестраиваемого УФ излучения наиболее известны и широко используются кристаллы группы боратов, такие как LiB₃O₅ (LBO) и β-BaB₂O₄ (BBO). Развитие технологии выращивания кристаллов привело к появлению серии других перспективных типа CsLiB₆O₁₀ (CLBO), Li₂B₄O₇ (LB4), KBe₂BO₃F (KBBF), Sr₂Be₂B₂O₇ (SBBO), Ba₂Be₂B₂O₇ (TBO) и

K₂Al₂B₂O₇ (КАВО) [1]. Широко используемые кристаллы BBO и CLBO гигроскопичны и недостаточно тверды (особенно гигроскопичен последний), что в значительной степени ограничивает возможности их практического применения. Сравнительно недавно выращенный кристалл КАВО негигроскопичен и обладает механическими характеристиками, позволяющими применять его в нелинейной оптике УФ диапазона [2], но он всё ещё мало доступен.

Среди различных кристаллов группы боратов кристалл LB4 (Li₂B₄O₇) обнаруживает ряд свойств, благодаря которым он может быть использован при создании параметрических и иных нелинейно-оптических приборов. Этот отрицательный одноосный кристалл, принадлежащий к точечной группе 4mm [3], имеет ряд очевидных достоинств, таких как самый коротковолновый среди кристаллов группы боратов край поглощения (160 нм) и высокий порог разрушения (40 ГВт/см²) на длине волны Nd:YAG-лазера при длительности импульса 1.1 нс [4]. Он негигроскопичен, обладает хорошими механическими свойствами и может легко выращиваться до больших размеров по сравнению с другими кристаллами данной группы. Порог разрушения LB4 в три раза выше, чем у BBO, и в полтора раза выше, чем у CLBO. Таким образом, по сравнению с другими кристаллами группы боратов он обладает самым высоким порогом разрушения, что является одним из наиболее важных достоинств при генерации излучения в УФ диапазоне, поскольку из-за большой энергии фотона в этом диапазоне кристаллы легко разрушаются. Единственный недостаток LB4 – сравнительно низкий коэффициент нелинейности [3, 5].

Рядом авторов для получения перестраиваемого УФ излучения был использован механизм критического фазового синхронизма (КФС) суммирования частот. В этом случае быстрый выход из пространственного резонанса уменьшает эффективную длину взаимодействия. В работе [6] была продемонстрирована возможность ис-

*Перевел с англ. С.И.Михайлов.

A.M.Rudra. Physics Department, Netaji Mahavidyalaya, Arambagh, Hooghly-712601, India

P.Kumbhakar. Physics Department, Regional Engineering College, Durgapur-713209, India

S.Gangopadhyaya, C.Ghosh, U.Chatterjee. Physics Department, Burdwan University, Burdwan- 713104, India; e-mail: duitudit@yahoo.com

пользования кристалла LB4 для получения вакуумного ультрафиолета вплоть до $\lambda = 170$ нм с помощью фемтосекундного лазера. Эффект выхода из пространственного резонанса может быть устранён путём использования не критического фазового синхронизма (НКФС). В результате угловая и спектральная полосы становятся на порядок больше, что благоприятно сказывается на эффективности преобразования. Более того, в случае применения LB4 его нелинейность при НКФС становится максимальной. Этот режим может быть реализован с помощью изменения температуры кристалла, его химического состава, а также выбором соответствующей неколлинеарности взаимодействующих волн [7, 8].

В настоящей работе режим НКФС для получения перестраиваемого УФ излучения был получен при помощи выбора взаимодействующих пучков в соответствующей неколлинеарной геометрии. Насколько нам известно, впервые получена перестраиваемая по частоте генерация в области дальнего ультрафиолета при суммировании частот Nd:YAG-лазера и второй гармоники лазера на красителе в кристалле LB4 с использованием режима НКФС. В этом же кристалле получена и перестраиваемая генерация от второй гармоники лазера на красителе.

2. Экспериментальная установка

На рис.1 представлена схема установки для получения перестраиваемой генерации на кристалле LB4 в области дальнего ультрафиолета. Использованный в экспериментах Nd:YAG-лазер с электрооптической модуляцией добротности (Spectra-Physics, DCR-11) генерировал импульсы длительностью ~ 10 нс при диаметре выходного пучка около 6 мм. Лазер на красителе (Spectra-Physics, PDL-2) накачивался третьей гармоникой Nd:YAG-лазера, получаемой в кристалле DKDP с температурной подстройкой. Красителем являлся кумарин-500 с областью перестройки 492–511 нм. Пучки излучения неодимового лазера и лазера на красителе были поляризованы вертикально.

Эксперимент проводился в два этапа. На первом этапе частота лазера на красителе удваивалась в кристалле ВВО (взаимодействие первого типа, угол фазового синхронизма $\theta = 55^\circ$, коллинеарный фазовый синхронизм). Область частотной перестройки второй гармоники составляла 246–255.5 нм. Для получения горизонтальной поляризации пучка излучения использовался 90-градусный вращатель поляризации. Это позволяло вращать кристалл в вертикальной плоскости для получения фазового синхронизма первого типа, в результате чего пучок

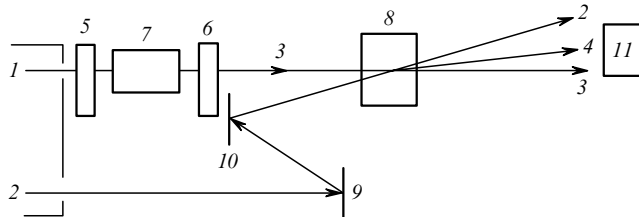


Рис.1. Экспериментальная установка для получения перестраиваемого по частоте УФ излучения:

1 – излучение лазера на красителе; 2 – излучение Nd:YAG-лазера; 3 – излучение второй гармоники лазера на красителе; 4 – генерируемое УФ излучение; 5 – поляризатор; 6 – фильтр; 7, 8 – кристаллы; 9, 10 – зеркала на $\lambda = 1064$; 11 – измеритель энергии.

излучения второй гармоники становился вертикально поляризованным. Длина кристалла ВВО в экспериментах составляла 6 мм.

На втором этапе экспериментов излучение второй гармоники лазера на красителе ($\lambda = 246 - 255.5$ нм) неколлинеарно смешивалось с непреобразованной частью излучения неодимового лазера ($\lambda = 1064$ нм) в кристалле LB4 для получения перестраиваемой генерации дальнего УФ диапазона ($\lambda = 204.7 - 205.5$ нм). Перестраивая частоту лазера на красителе от 492 до 511 нм, можно было получить указанную выше область перестройки в дальнем ультрафиолете. В этом случае кристалл LB4 вращался в горизонтальной плоскости. Поляризации взаимодействующих пучков были вертикальными, а поляризация выходного пучка ввиду использования взаимодействия первого типа была горизонтальной. Поляризации всех взаимодействующих пучков устанавливались с помощью поляризатора Глана – Томсона.

Энергетические измерения осуществлялись измерителем энергии Gentec, ED-100A. Несмотря на использование неколлинеарной геометрии, вследствие малости угла схождения взаимодействующих пучков изменение длины взаимодействия было незначительным и не сказывалось на эффективности преобразования. При этом генерируемый пучок автоматически отделялся от входных без использования дополнительных фильтров. Внутренний угол схождения двух входных пучков составлял 3.7° . Настройка угла схождения производилась при помощи зеркал (см. рис.1). Было показано, что генерация длин волн менее 204.8 нм невозможна из-за исчезновения режима НКФС. Генерируемый пучок легко визуализировался на листе плотной белой бумаги.

Аналогичный кристалл был использован для получения второй гармоники лазера на красителе. Диапазон перестройки составлял при этом 246–255 нм. Генерации более коротких длин волн не наблюдалось из-за нарушения режима НКФС. Для подфокусировки излучения лазера на красителе применялась длиннофокусная линза ($F = 110$ см), диаметр пучка на входном торце кристалла составлял 3 мм. Горизонтально поляризованное УФ излучение отделялось от непреобразованной части исходного излучения при помощи призмы из флюорита магния. Измерения энергии исходного и выходного пучков осуществлялись измерителем энергии Gentec, ED-100A.

3. Результаты и дискуссия

На рис.2 представлена зависимость коэффициента поглощения кристалла LB4 от длины волны проходящего

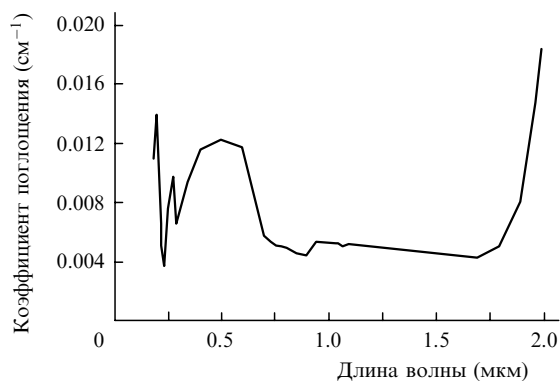


Рис.2. Параметры поглощения в кристалле LB4 длиной 3.4 см.

излучения, полученная при помощи спектрофотометра UV-VIS-NIR (Hitachi, U-3400), работающего в диапазоне 185–2600 нм. Полоса пропускания исследуемого кристалла составляет 160–3600 нм [9], однако мы не могли проводить измерения во всей полосе из-за ограниченного диапазона спектрофотометра. Поскольку кристалл имеет значительную толщину, поглощение является особенно высоким для длин волн более 2600 нм, что хорошо видно из рис.2.

Угол фазового синхронизма можно получить из известного соотношения

$$k_1^o + k_2^o = k_3^o(\theta), \quad (1)$$

где k_1 , k_2 и k_3 – волновые векторы, соответствующие длинам волн λ_1 , λ_2 и λ_3 . Для неколлинеарной геометрии угол фазового синхронизма θ определяется как угол между волновым вектором k_3 (внутри кристалла) и оптической осью кристалла. Его можно найти из уравнения [10]

$$\frac{\theta_1}{\lambda_1} + \frac{\theta_2}{\lambda_2} = \frac{\theta}{\lambda_3}. \quad (2)$$

Здесь θ_1 и θ_3 – внутренние углы между волновыми векторами и оптической осью кристалла. Угол неколлинеарности α (угол схождения пучков) равен разности углов θ_1 и θ_3 .

На рис.3 представлены зависимости угла фазового синхронизма θ от длины волны генерируемого излучения в области перестройки частоты при суммировании излучений Nd:YAG-лазера и второй гармоники лазера на красителе в кристалле LB4. Сплошная кривая представляет собой теоретическую зависимость, полученную из дисперсионных соотношений Селлмейера (см. [3]), а точки соответствуют экспериментально полученным значениям. Видно хорошее согласие между теоретическими и экспериментальными данными. Экспериментально полученные значения слегка отличаются от предсказанных теорией из-за широкого угла приёма в режиме НКФС. На рис.4 представлены аналогичные зависимости, полученные для генерации второй гармоники излучения лазера на красителе в кристалле LB4. В этом случае также наблюдается хорошее согласие между теоретическими и экспериментальными значениями.

Мы не ставили перед собой цель увеличить эффек-

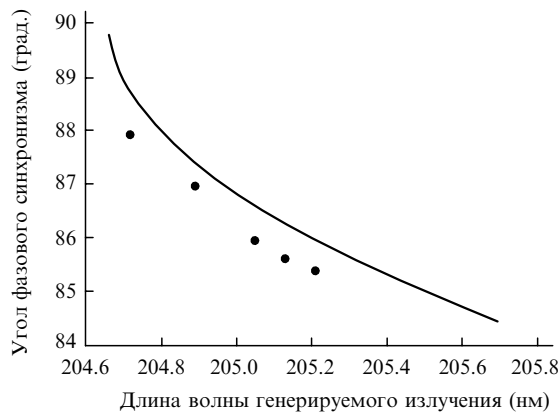


Рис.3. Характеристики фазового синхронизма при генерации перестраиваемого УФ излучения в режиме суммирования частот. Сплошная линия – теоретическая зависимость, точки – эксперимент.

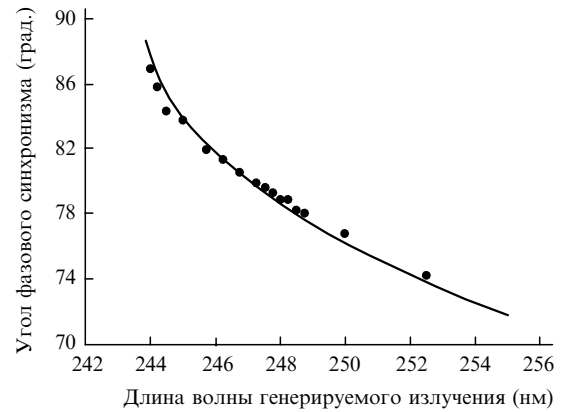


Рис.4. Характеристики фазового синхронизма при получении перестраиваемого УФ излучения в режиме генерации второй гармоники. Сплошная линия – теоретическая зависимость, точки – эксперимент.

тивность преобразования. Нашей задачей была демонстрация возможностей данного кристалла генерировать перестраиваемое излучение в области дальнего ультрафиолета вплоть до его отсечки у края режима НКФС. Тем не менее в процессе экспериментов измерялись энергии всех взаимодействующих пучков. В экспериментах по суммированию частот энергия импульса лазера на красителе ($\lambda = 507$ нм) составляла 9.96 мДж, тогда как энергия его второй гармоники, генерируемой в кристалле ВВО, – 0.95 мДж. При суммировании этого излучения с излучением Nd:YAG-лазера в кристалле LB4 было получено излучение на длине волны 204.7 нм с энергией 0.02 мДж в импульсе. Это значение соответствует эффективности преобразования, составляющей по отношению ко входному УФ излучению 2.1%. Пиковые интенсивности излучения на длине волны 1064 нм и второй гармоники лазера на красителе были равны соответственно 127 и 1.34 МВт/см², что значительно меньше пороговых интенсивностей разрушения кристалла.

Теоретически эффективность преобразования при суммировании частот была рассчитана в приближении заданных плоских волн с помощью уравнения (2) из работы [6]; с учетом поглощения она составила 3.49%. В расчетах мы не учитывали слабую подфокусировку взаимодействующих пучков. Эффективный коэффициент нелинейности $d_{\text{eff}} = d_{31} \sin \theta = 0.21$ пм/В [6]. Расчетная эффективность превышает экспериментально полученную в 1.6 раза. Отметим, что слабая подфокусировка взаимодействующих пучков не может сказываться на эффективности преобразования, поскольку в режиме НКФС ширина угловой полосы приёма гораздо больше. Кроме того, паразитный эффект двухфотонного поглощения не должен влиять на эффективность преобразования в использованном нами диапазоне пиковых интенсивностей. Подобное, хотя и не очень большое несоответствие теории и эксперимента вполне возможно из-за многомодового характера излучения лазера на красителе. Как уже указывалось выше, мы оценивали эффективность преобразования, следуя работе [6].

В случае генерации второй гармоники лазера на красителе в кристалле LB4 энергия входного импульса на длине волны 488 нм составляла 8.12 мДж при энергии выходного излучения 0.1 мДж на длине волны 244 нм и эффективности преобразования $\sim 1.2\%$. При этом эффективность преобразования была меньше, чем в кристаллах ВВО, поскольку эффективный коэффициент нели-

нейности в LB4 является самым низким по сравнению с эффективными коэффициентами нелинейности других кристаллов группы боратов.

В режиме НКФС наблюдалась большая ширина углового синхронизма. Согласно экспериментальным измерениям, при суммировании частот излучения на 1064 и 253.5 нм в режиме НКФС она составила 0.50 мрад, что в 1.8 раза больше значения 0.28 мрад, полученного для режима КФС на длине волны 258.6 нм. Теоретические оценки дали соответственно 0.44 и 0.24 мрад. Была измерена также ширина спектральной полосы синхронизма, составившая 0.017 нм (теоретическая оценка – 0.014 нм). В случае коллинеарной геометрии при получении излучения второй гармоники лазера на красителе ширина углового синхронизма вблизи режима НКФС на длине волны 244 нм согласно теоретическим оценкам равнялась 1.37 мрад при экспериментально измеренном значении 1.5 мрад. На длине волны излучения лазера на красителе 0.5 мкм те же ширины составляли 0.25 и 0.4 мрад. В данном случае теоретически полученная ширина углового синхронизма для режима НКФС почти в 5.5 раз больше полученной в режиме КФС. Теоретически рассчитанная ширина спектральной полосы синхронизма при этом составляет 0.03 нм.

4. Заключение

Отметим, что мы впервые продемонстрировали потенциальные возможности использования кристалла LB4 в качестве сумматора излучений Nd:YAG-лазера и второй гармоники лазера на красителе в режиме НКФС для получения перестраиваемой по частоте генерации в области дальнего УФ излучения. Режим НКФС имеет место при длине волны генерации 204.7 нм и неколлинеарной геометрии взаимодействия. При использовании слегка подфокусированных пучков эффективность преобразования составила около 2.1%. Учитывая высокую лучевую прочность кристаллов LB4, можно утверждать, что использование остророфокусированных пучков позволяет увеличить эффективность преобразования. Благо-

даря режиму НКФС получена большая ширина углового синхронизма (0.5 мрад), что в 1.8 раза больше соответствующей ширины для режима КФС. Была также продемонстрирована перестраиваемая генерация УФ излучения при коллинеарном преобразовании излучения второй гармоники лазера на красителе в кристалле LB4.

С практической точки зрения использование неколлинеарного НКФС является более предпочтительным, т. к. в этом случае не нужна дополнительная фильтрация выходного излучения и больше ширина углового синхронизма. Возможность выращивания крупных образцов, высокая лучевая прочность, прозрачность в широком диапазоне длин волн и возможность осуществления режима НКФС делают кристалл LB4 уникальным с точки зрения его использования в УФ области спектра.

А.М.Рудра благодарит Университетскую комиссию по грантам за частичную финансовую поддержку. S.Gangopadhyay и С.Гхош благодарят CSIR, правительство Индии за дружеское участие. Авторы также признательны властям VECC, Kolkata и правительству Индии за энергетическое обеспечение.

1. Chen C., Ye N., Lin J., Jiang J., Zeng W., Wu B. *Adv. Matter.*, **11**, 1071 (1999).
2. Kumbhakar P., Adachi S., Hu Z., Yoshimura M., Mori Y., Sasaki T., Kobayashi T. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **42**, L1255 (2003).
3. Sugawara T., Komatsu R., Uda S. *Sol. State Commun.*, **107**, 233 (1997).
4. Komatsu R., Sugawara T., Sassa K., Sarukura N., Liu Z., Izumida S., Segawa Y., Uda S., Fukuda T., Yamanouchi K. *Appl. Phys. Lett.*, **70**, 3492 (1997).
5. Furusawa S., Chikagawa O., Tange S., Ishidate T., Orchara H., Ishibashi Y., Miwa K. *J. Phys. Soc. Jpn.*, **60**, 2691 (1991).
6. Petrov V., Rotermund F., Noack F., Komatsu R., Sugawara T., Uda S. *J. Appl. Phys.*, **84**, 5887 (1998).
7. Bhar G.C., Rudra A.M., Kumbhakar P., Chatterjee U., Nagahori A. *Nonlinear Opt.*, **23**, 83 (1999).
8. Schunemann P.G., Setzler S.D., Pollak M.T. *J. Cryst. Growth*, **211**, 257 (2000).
9. Kwon T.Y., Ju J.J., Cha J.W., Kim J.N., Yun S.I., *Mater. Lett.*, **20**, 211 (1994).
10. Bhar G.C., Chatterjee U. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **29**, 1103 (1990).