

Фазовый синхронизм и некритичные по частоте взаимодействия при преобразовании частоты импульсов фемтосекундной длительности

С.Г.Гречин, С.С.Гречин

Представлены результаты анализа фазосинхронных свойств двухосных нелинейных кристаллов, реализующих условия высокоэффективного преобразования частоты фемтосекундных импульсов при генерации второй гармоники. Метод исследования основан на разделении условий фазового синхронизма и некритичного по частоте взаимодействия.

Ключевые слова: нелинейная оптика, преобразование частоты, фемтосекундные импульсы, фазовый синхронизм, ширина синхронизма.

Фемтосекундные лазеры с преобразованием частоты находят применение для решения широкого круга задач (см., напр., [1, 2]). Год от года возрастает как число активных сред лазеров, с использованием которых получена генерация фемтосекундных импульсов, так и число нелинейных кристаллов, в которых возможно преобразование частоты импульсов фемтосекундной длительности. Выбор нелинейного кристалла для преобразователя частоты определяется совокупностью независимых требований. Помимо традиционных требований (большой коэффициент эффективной нелинейности и выполнение условия фазового синхронизма (ФС)) для импульсов малой длительности (с большой шириной спектра излучения) необходимо также обеспечить большую спектральную ширину синхронизма [3]. Выполнение этого требования создает предпосылки для высокоэффективного преобразования всех спектральных компонент, взаимодействующих в среде импульсов, что в конечном итоге обеспечивает формирование с высокой эффективностью импульса минимальной длительности при генерации суммарной и разностной частот. К этому кругу задач относится также преобразование частот излучения перестраиваемых по длине волны лазеров и излучения с широким спектром (излучения с большим числом несфазированных продольных мод лазера).

Выбор кристалла для преобразования частоты УКИ обычно базируется на минимизации расстройки групповых скоростей взаимодействующих импульсов [2, 4, 5]. В работе [6] показано, что этот метод является частным случаем метода, основанного на поиске некритичного по частоте фазового синхронизма (НКЧС)*.

* Этот режим можно определить и как некритичный по длине волны синхронизм. В дальнейшем все уравнения будут представлены относительно длины волны, т. к. традиционно в уравнениях Sellmeiera используется длина волны излучения

С.Г.Гречин. НИИ радиоэлектроники и лазерной техники МГТУ им. Н.Э.Баумана, Россия, 107005 Москва, 2-я Бауманская ул., 5; e-mail: gega@bmstu.ru

С.С.Гречин. Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, физический факультет, Россия, 119992 Москва, Воробьевы горы; e-mail: grechin@mail.ru

Поступила в редакцию 29 сентября 2005 г.

Наличие НКЧС в нелинейных кристаллах можно определить качественно из характера изменения направлений ФС при изменении длины волны. В большом числе одноосных кристаллов зависимость угла синхронизма θ от длины волны имеет экстремум. На рис.1, например, приведены такие зависимости для двух типов синхронизма (ооо и оое) при генерации второй гармоники в кристалле KDP. На УФ границе диапазона длин волн, в пределах которого существует ФС, угол синхронизма $\theta = 90^\circ$. С ростом длины волны основного излучения угол θ уменьшается. Режиму НКЧС соответствуют длины волн, при которых угол ФС имеет минимальное значение (показаны штриховыми линиями на рис.1). В этом случае в достаточно большом диапазоне длин волн направление ФС практически не изменяется (выполняется условие ФС).

Если в одноосных кристаллах направления ФС образуют конические поверхности второго порядка, биссектрисой которых является ось z , то в двухосных кристаллах – это конические поверхности четвертого порядка, биссектрисами которых может быть любая из главных осей кристалла или оптические оси кристалла. В [7] была впервые приведена диаграмма направлений ФС для генерации второй гармоники в двухосных кристаллах. Позднее в работе [8] была представлена полная диаграмма. В двухосных кристаллах при изменении длины волны про-

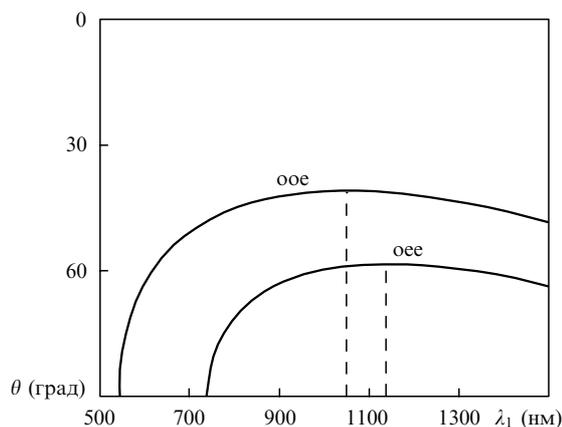


Рис.1. Дисперсия направлений ФС для кристалла KDP.

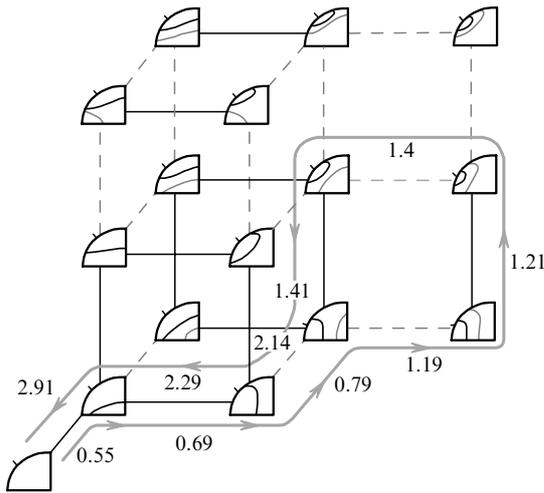


Рис.2. Дисперсия направлений ФС для кристалла LBO при взаимодействиях ssf- (сплошные линии) и sff-типов (штриховые линии). У кривой со стрелками указаны длины волн основного излучения (в мкм), при которых происходит переход от одного распределения к другому.

исходит переход от одного распределения направлений ФС к другому. На рис.2 показаны такие переходы для кристалла LBO при генерации второй гармоники. Характер переходов показывает, что существует предельное состояние, которое, очевидно, и соответствует НКЧС. Для кристалла LBO с синхронизмом как ssf-, так и sff-типа НКЧС расположен в диапазоне 1200–1400 нм. Аналогичная зависимость для кристалла КТР приведена на рис.3. Для этого кристалла НКЧС сосредоточен в диапазоне 1100–3700 нм.

Обычно фазосинхронные свойства кристалла используются при определении, прежде всего, направления ФС. Далее рассматривается устойчивость этого направления ФС относительно изменения внешних параметров – температуры или длины волны лазерного излучения, а также угловых отклонений от направления ФС. Допустимое изменение параметра называется шириной ФС, которая

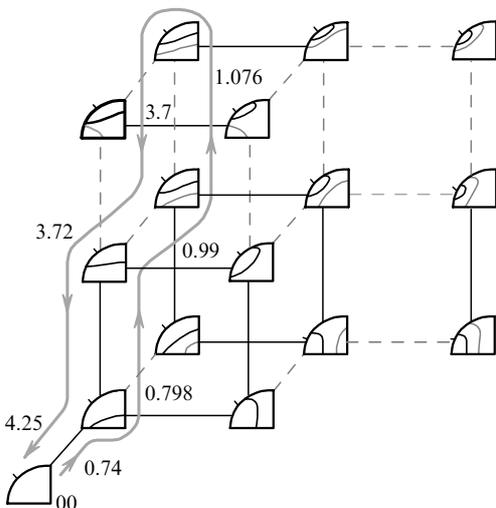


Рис.3. Дисперсия направлений ФС для кристалла КТР при взаимодействиях ssf- (сплошные линии) и sff-типов (штриховые линии). У кривой со стрелками указаны длины волн основного излучения (в мкм), при которых происходит переход от одного распределения к другому.

определяется для спектральной ширины $\Delta\lambda$ из уравнения

$$\frac{\Delta k L_{cr}}{2} = \left[\Delta k_0 + \frac{\partial \Delta k}{\partial \lambda} \Delta \lambda + \frac{1}{2} \frac{\partial^2 \Delta k}{\partial \lambda^2} (\Delta \lambda)^2 + \dots \right] \frac{L_{cr}}{2} = \frac{\pi}{2}, \quad (1)$$

где L_{cr} – длина кристалла; Δk_0 – волновая расстройка для центральных длин волн.

Для преобразования частоты УКИ требуется большая спектральная ширина синхронизма. Наиболее полную информацию о спектральной зависимости фазосинхронных свойств кристалла ($\Delta k(\varphi, \theta)$) можно получить, если независимо от направлений ФС определить направления не критичных по частоте взаимодействий (НКЧВ). Это такие направления, в которых равна нулю производная разности волновых чисел $d\Delta k(\varphi, \theta)/d\lambda$. При этом в общем случае в данных направлениях разность волновых чисел отлична от нуля ($\Delta k_0(\varphi, \theta) \neq 0$), но удовлетворяет условию $d\Delta k(\varphi, \theta)/d\lambda = 0$. Очевидно, что если направления НКЧВ существуют, то они описываются в пространстве углов φ и θ коническими поверхностями, которые могут не пересекаться с направлениями ФС. Направления НКЧВ соответствуют общему решению задачи преобразования частоты – задачи распространения в среде (в том числе линейной) трех волн, при изменении частот которых изменяются все волновые векторы, но их разность остается неизменной.

Направления НКЧВ могут быть определены через разность производных первого порядка ($d\Delta k(\varphi, \theta)/d\lambda = 0$) или, для импульсов с большой шириной спектра, с учетом производных более высокого порядка как при коллинеарном, так и неколлинеарном взаимодействии:

$$\frac{\partial \Delta k(\varphi, \theta)}{\partial \lambda} \Delta \lambda + \frac{1}{2} \frac{\partial^2 \Delta k(\varphi, \theta)}{\partial \lambda^2} (\Delta \lambda)^2 + \dots = 0. \quad (2)$$

Пересечения направлений НКЧВ и ФС соответствуют направлениям НКЧС. В этих направлениях равны нулю $\Delta k_0(\varphi, \theta)$ и $d\Delta k(\varphi, \theta)/d\lambda$.

Эффективность использования подхода с независимо введенными направлениями не критичного взаимодействия и ФС была продемонстрирована в работах [9, 10] для температурных зависимостей. Применение этого подхода позволило определить диапазон длин волн, в пределах которого реализуется не критичный по температуре синхронизм. Метод разделения направлений ФС и НКЧВ позволяет также сделать простой анализ возможности преобразования УКИ в кристаллах с регулярной доменной структурой (РДС-кристаллах), т. к. наличие этой структуры не изменяет дисперсионных свойств кристаллов. В этом случае рационально использовать независимое от ФС вычисление направлений НКЧВ. Для найденных направлений НКЧВ может быть определен период доменной структуры, при котором имеет место фазовый квазисинхронизм.

В настоящей работе рассматривается реализация НКЧВ и НКЧС при генерации второй гармоники в однородных кристаллах. Однако этот подход может быть развит для более общего случая – генерации суммарной и разностной частот, параметрической генерации.

Поскольку модули волновых векторов (или показатели преломления) взаимодействующих s- и f-волн зависят от направления волнового вектора \mathbf{k} , задаваемого углами φ и θ , то и производные $\partial k(\varphi, \theta)/\partial \lambda$ этих модулей по длине волны также зависят от направления вектора \mathbf{k} . В

пространстве углов φ и θ направлений НКЧВ образуют конические поверхности подобно направлениям ФС [7, 8]. Отличие заключается в характере распределения направлений для волнового числа и его производной по длине волны. При стандартной (прямой) оптической установке между показателями преломления имеет место следующее соотношение: $n_z > n_y > n_x$. Нормальные поверхности для показателей преломления взаимодействующих волн не имеют точек разрыва, но имеют особенности вдоль направлений оптических осей. Соотношения между производными $\partial k(\varphi, \theta)/\partial \lambda$ вдоль главных осей кристалла являются произвольными. Одновременно с этим зависимости $\partial k(\varphi, \theta)/\partial \lambda$ для обеих волн имеют точки разрыва в направлении, соответствующем направлению оптической оси. Подобно определению направлений ФС [8], можно найти условия существования направлений НКЧВ в главных плоскостях кристаллооптической системы координат.

Одним из главных вопросов является вопрос о том, для какого параметра определять направления НКЧВ: для разности волновых чисел или для разности показателей преломления взаимодействующих волн. Распределения этих направлений в пространстве будут различными. В направлении НКЧС одновременно равны нулю $d\Delta k(\varphi, \theta)/d\lambda$, $d\Delta n(\varphi, \theta)/d\lambda$ и $\Delta k(\varphi, \theta)$. Далее для НКЧВ будем рассматривать выражение для производной от $\Delta k(\varphi, \theta)$, т. к. она определяет спектральную ширину синхронизма.

Для взаимодействия sff-типа в плоскостях xu и yz условия реализации НКЧВ имеют следующий вид:

$$\left[\frac{dk_z^{(\omega)}}{d\lambda} - \frac{dk_y^{(2\omega)}}{d\lambda} \right] \left[\frac{dk_z^{(\omega)}}{d\lambda} - \frac{dk_x^{(2\omega)}}{d\lambda} \right] < 0 \quad (3)$$

в плоскости xu ($\theta = 90^\circ$) и

$$\left[\frac{dk_x^{(2\omega)}}{d\lambda} - \frac{dk_z^{(\omega)}}{d\lambda} \right] \left[\frac{dk_x^{(2\omega)}}{d\lambda} - \frac{dk_y^{(\omega)}}{d\lambda} \right] < 0 \quad (4)$$

в плоскости yz ($\varphi = 90^\circ$).

В плоскости xz направления НКЧВ отличаются от направлений ФС. Зависимость угла V_z между осью z и оптической осью от длины волны излучения может быть монотонно возрастающей или убывающей, а также иметь минимум или максимум. На рис.4 приведены зависимости $V_z(\lambda)$ для некоторых кристаллов в диапазонах их прозрачности. Подобного вида зависимости приводят к тому, что в общем случае соотношение углов между осью z и оптическими осями волн основного излучения и второй гармоники может быть произвольным ($V_z^{(\omega)} > V_z^{(2\omega)}$,

$V_z^{(\omega)} < V_z^{(2\omega)}$ или $V_z^{(\omega)} = V_z^{(2\omega)}$). Поэтому для определения направлений НКЧВ по углу θ можно выделить три области: $0 < \theta < V_z^{(1)}$, $V_z^{(1)} < \theta < V_z^{(2)}$ и $V_z^{(2)} < \theta < 90^\circ$, где $V_z^{(i)}$ – углы для волны основного излучения ($i = 1$) и второй гармоники ($i = 2$). Для этих областей условия существования корней имеют вид

$$\left[\frac{\partial k_y^{(1)}}{\partial \lambda} - \frac{\partial k_x^{(2)}}{\partial \lambda} \right] \left[\frac{\partial k_y^{(1)}}{\partial \lambda} - \frac{\partial k^{(2)}(V_z^{(1)})}{\partial \lambda} \right] < 0, \quad (5)$$

$$\left[\frac{\partial k_y^{(1)}}{\partial \lambda} - \frac{\partial k^{(2)}(V_z^{(1)})}{\partial \lambda} \right] \left[\frac{\partial k^{(1)}(V_z^{(2)})}{\partial \lambda} - \frac{\partial k_y^{(2)}}{\partial \lambda} \right] < 0, \quad (6)$$

$$\left[\frac{\partial k^{(1)}(V_z^{(2)})}{\partial \lambda} - \frac{\partial k_y^{(2)}}{\partial \lambda} \right] \left[\frac{\partial k_z^{(1)}}{\partial \lambda} - \frac{\partial k_y^{(2)}}{\partial \lambda} \right] < 0. \quad (7)$$

Для взаимодействия sff-типа в плоскостях xu и yz условия реализации НКЧВ могут быть получены заменой в (3) $k_{x,y}^{(2\omega)}$ на $\frac{1}{2}(k_{x,y}^{(2\omega)} + k_z^{(2\omega)})$ и заменой в (4) $k_{z,y}^{(\omega)}$ на $\frac{1}{2}(k_{z,y}^{(\omega)} + k_x^{(\omega)})$. Для плоскости xz условия будут иметь вид

$$\left[\frac{1}{2} \left(\frac{\partial k_x^{(1)}}{\partial \lambda} + \frac{\partial k_y^{(1)}}{\partial \lambda} \right) - \frac{\partial k_x^{(2)}}{\partial \lambda} \right] \left[\frac{\partial k_y^{(1)}}{\partial \lambda} - \frac{\partial k^{(2)}(V_z^{(1)})}{\partial \lambda} \right] < 0, \quad (8)$$

$$\left[\frac{\partial k_y^{(1)}}{\partial \lambda} - \frac{\partial k^{(2)}(V_z^{(1)})}{\partial \lambda} \right] \times \left\{ \frac{1}{2} \left[\frac{\partial k_y^{(1)}}{\partial \lambda} + \frac{\partial k^{(1)}(V_z^{(2)})}{\partial \lambda} \right] - \frac{\partial k_y^{(2)}}{\partial \lambda} \right\} < 0, \quad (9)$$

$$\left\{ \frac{1}{2} \left[\frac{\partial k_y^{(1)}}{\partial \lambda} + \frac{\partial k^{(1)}(V_z^{(2)})}{\partial \lambda} \right] - \frac{\partial k_y^{(2)}}{\partial \lambda} \right\} \times \left[\frac{1}{2} \left(\frac{\partial k_z^{(1)}}{\partial \lambda} + \frac{\partial k_y^{(1)}}{\partial \lambda} \right) - \frac{\partial k_y^{(2)}}{\partial \lambda} \right] < 0. \quad (10)$$

Аналогично можно определить условия существования НКЧВ для всех возможных типов взаимодействия, реализуемых в РДС-кристаллах (sss, fss, ffs и др.).

Направления ФС никогда не совпадают с направлением оптической оси (см., напр., [10]), что следует из соотношения для главных значений показателей преломления и наличия дисперсии. Направления НКЧВ могут располагаться как вокруг оптических осей, соответствующих волнам с разной частотой, так и между осями. Для взаимодействия sss-типа в кристалле КТР на длине волны 2400 нм зависимость от угла θ первой производной по длине волны расстройки в плоскости xz приведена на

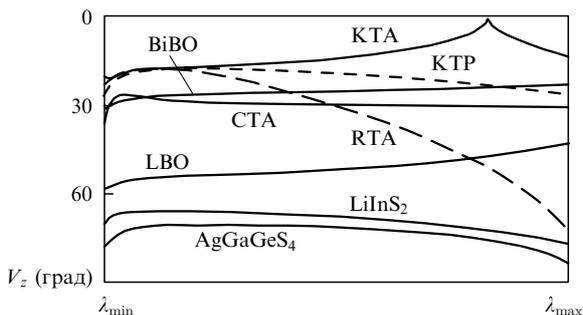


Рис.4. Дисперсия угла V_z между осью z и оптической осью для различных кристаллов.

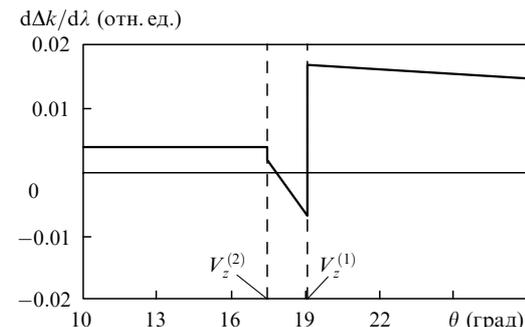


Рис.5. Зависимость производной разности волновых чисел по длине волны от угла θ .

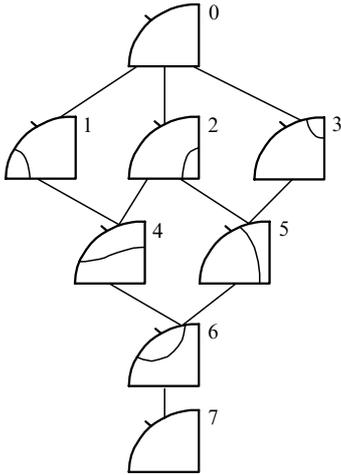


Рис.6. Диаграмма направлений НКЧВ.

рис.5. Один из нулей этой зависимости расположен между $V_z^{(1)}$ и $V_z^{(2)}$. Второе нулевое значение имеет место в направлении оптической оси (угол $V_z^{(1)}$). Аналогичные рис.5 зависимости могут быть реализованы для всех возможных типов взаимодействия.

Обобщив приведенные выше результаты, мы получили диаграмму направлений НКЧВ (рис.6). В общем случае направления НКЧВ могут отсутствовать. Появление их возможно вдоль любой из главных осей кристалла. При изменении длины волны происходит изменение распределений направлений НКЧВ по связывающим диаграммы линиям.

Рассмотрим реализацию этих направлений на примере кристалла LBO. На рис.7 и 8 приведены распределения направлений НКЧВ и ФС для взаимодействий ssf- и sff-типов при изменении длины волны основного излучения. Для взаимодействия ssf-типа при длине волны основного излучения $\lambda < 554$ нм направления ФС и НКЧВ

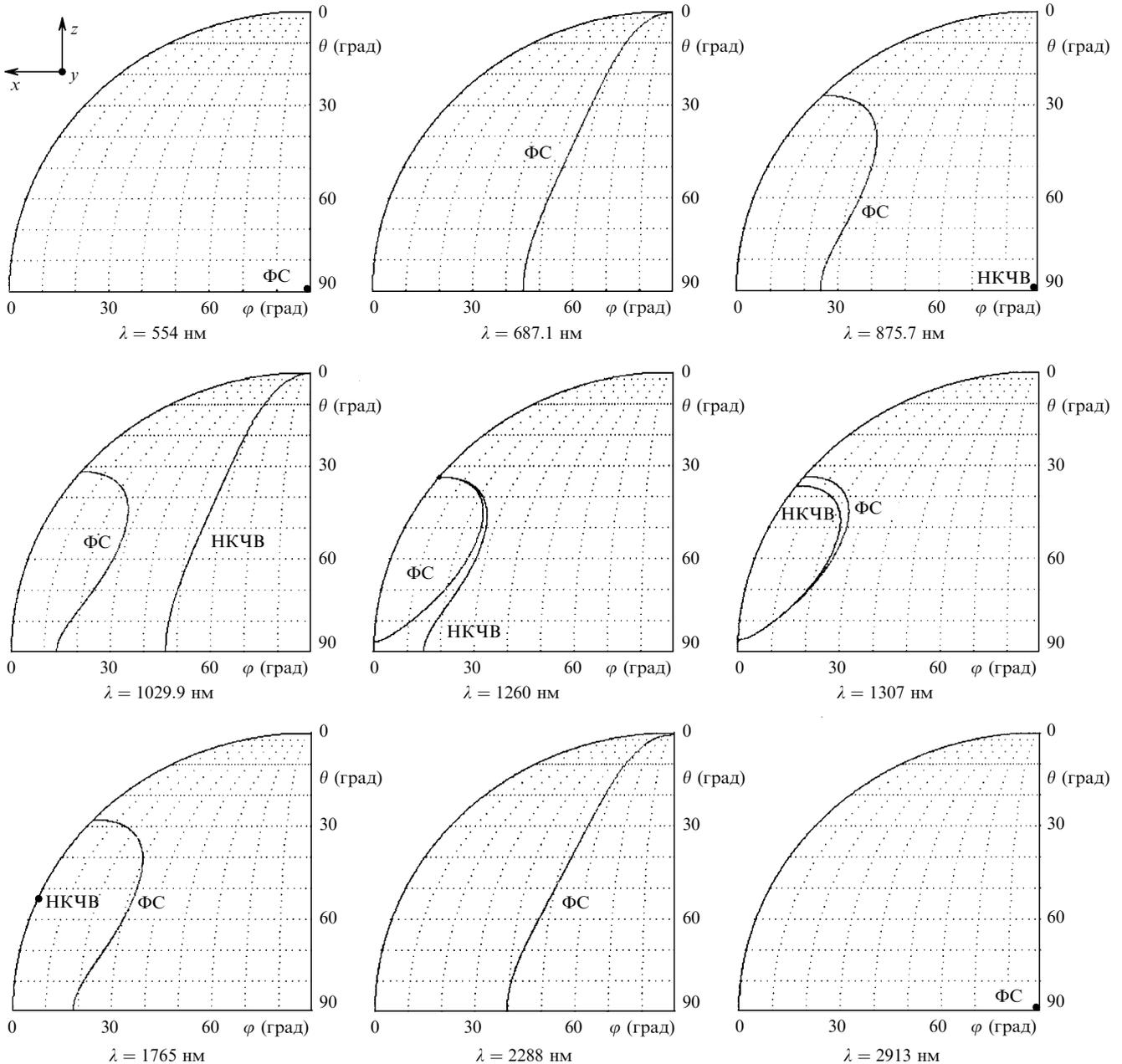


Рис.7. Диаграммы направлений НКЧВ и ФС для взаимодействия ssf-типа в кристалле LBO.

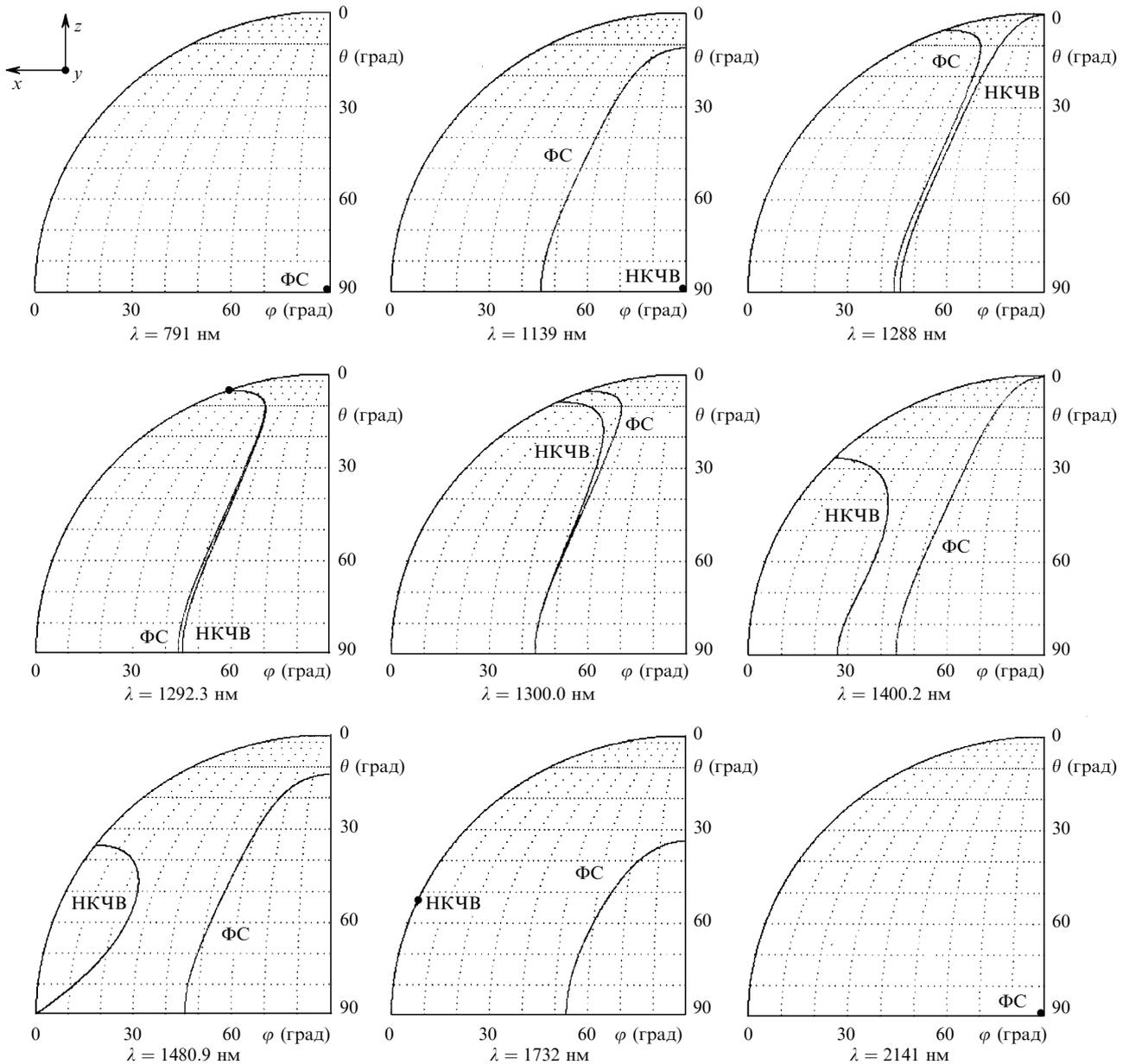


Рис.8. Диаграммы направлений НКЧВ и ФС для взаимодействия sff-типа в кристалле LBO.

отсутствуют. На $\lambda = 554$ нм появляется ФС вдоль оси y . При увеличении длины волны конус направлений ФС расширяется. На $\lambda = 687.1$ нм происходит переход направлений ФС из плоскости yz в плоскость xz . Далее конус направлений ФС «стягивается» к оси x . На $\lambda = 875.7$ нм появляется НКЧВ вдоль оси y . Для кристалла LBO на этом этапе изменения направлений НКЧВ аналогичны изменениям направлений ФС. Пересечение конусов направлений ФС и НКЧВ происходит в плоскости xz при $\lambda = 1260$ нм вдоль прямой, расположенной выше оптической оси. В этой области коэффициент эффективной нелинейности тождественно равен нулю.

При дальнейшем увеличении длины волны скорость изменения направлений НКЧВ больше, чем направлений ФС, в результате чего точка пересечения указанных конических поверхностей на диаграмме (рис.7) перемещается. При $\lambda = 1307$ нм, как и в первом случае, пересечение происходит в плоскости xz , но ниже оптической оси. В этой области коэффициент эффективной нелинейности максимален. При дальнейшем увеличении длины

волны направления НКЧВ «стягиваются» к оптической оси, и на $\lambda = 1765$ нм НКЧВ исчезает. Конус направлений ФС изменяется, «стягиваясь» к оси y . На $\lambda = 2913$ нм ФС исчезает.

Таким образом, в кристалле LBO для взаимодействия sff-типа ФС существует в диапазоне длин волн 554–2913 нм, НКЧВ – в диапазоне 875.7–1765 нм, а НКЧС – в диапазоне 1260–1307 нм. Наиболее предпочтителен НКЧС в плоскости xu (на $\lambda = 1307$ нм), где коэффициент эффективной нелинейности имеет максимальное значение. При уменьшении длины волны НКЧС реализуется не в главных плоскостях кристалла, а коэффициент эффективной нелинейности плавно уменьшается до нуля.

Аналогичный характер в кристалле LBO имеют изменения направлений ФС и НКЧВ для взаимодействия sff-типа (рис.8). ФС существует в диапазоне длин волн 791–2141 нм, НКЧВ – в диапазоне 1139–1732 нм, а НКЧС – в диапазоне 1292.3–1300 нм. Для этого типа взаимодействия коэффициент эффективной нелинейности максимален вдоль оси z . Для обоих типов взаимодействия в кри-

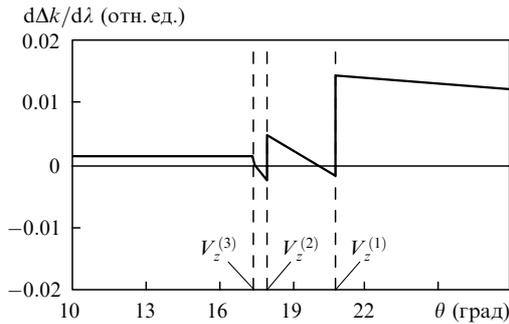


Рис.9. Зависимость производной разности волновых чисел по длине волны от угла θ для взаимодействия sss-типа ($\lambda_1 = 3100$ нм, $\lambda_2 = 1815$ нм).

талле LBO при изменении длины волны для НКЧВ происходят переходы 0–2–5–6–7 (рис.6).

Анализ условий реализации НКЧВ (3)–(10) показывает, что при генерации второй гармоники в пространстве углов φ , θ может существовать уединенный конус направлений НКЧВ. В более общем случае трехчастотного взаимодействия (генерации суммарных и разностных частот), когда частоты всех взаимодействующих волн различны, изменения направлений НКЧВ в целом аналогичны рассмотренным выше изменениям этих направлений для второй гармоники. Особенно это является то, что в плоскости xz возможно получение более двух корней. Это является следствием того, что для производных $\partial\Delta k(\varphi, \theta)/\partial\lambda$ имеет место разрыв вдоль оптических осей кристалла. На рис.9 приведена зависимость производной разности волновых чисел по длине волны от угла θ в плоскости xz для взаимодействия sss-типа. На рис.10 показано распределение величины $\partial\Delta k(\varphi, \theta)/\partial\lambda$ в зависимости от углов φ и θ в окрестности оптических осей. В этой области при фиксированном значении угла φ существуют четыре значения угла θ , при которых $\partial\Delta k(\varphi, \theta)/\partial\lambda = 0$.

Подводя итоги, можно отметить следующее. Разделение направлений ФС и НКЧВ можно эффективно использовать при анализе возможности преобразования частоты УКИ. Направления НКЧВ образуют конические поверхности, аналогичные поверхностям, возникающим при ФС. При изменении длины волны основного излучения происходит изменение направлений НКЧВ.

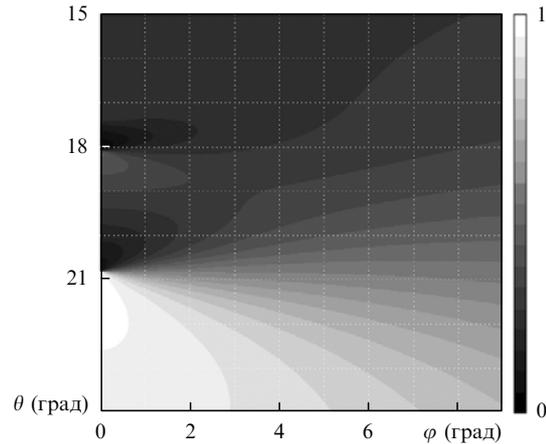


Рис.10. Зависимость производной разности волновых чисел по длине волны от углов θ и φ для взаимодействия sss-типа ($\lambda_1 = 3100$ нм, $\lambda_2 = 1840$ нм). Градация яркости с шагом 0.05.

Скорость и характер изменений направлений НКЧВ и ФС различны. Те направления, в которых пересекаются конусы направлений НКЧВ и ФС, являются направлениями некритичного по частоте синхронизма. В двухосных кристаллах эти направления имеют место в некотором диапазоне длин волн. Так, в кристалле LBO режим НКЧС реализуется в диапазонах длин волн 1260–1307 нм (ssf-тип взаимодействия) и 1292.3–1300 нм (sff-тип).

1. Cerullo G., De Silvestri S. *Rev. Sc. Instr.*, **74**, 1 (2003).
2. Petrov V., Rotermund F., Noack F. *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.*, **3**, R1 (2001).
3. Дмитриев В.Г., Тарасов Л.В. *Прикладная нелинейная оптика* (М.: Физматлит, 2004).
4. Xia J., Wei Z., Zhang J. *Opt. Laser Technol.*, **32**, 241 (2000).
5. Dubietis A., Tamosauskas G., Varanavicius A. *Opt. Commun.*, **186**, 211 (2000).
6. Гречин С.С., Прялкин В.И. *Квантовая электроника*, **33**, 737 (2003).
7. Hobden M.V. *J. Appl. Phys.*, **38**, 4365 (1967).
8. Гречин С.Г., Гречин С.С., Дмитриев В.Г. *Квантовая электроника*, **30**, 377 (2000).
9. Гречин С.Г., Дмитриев В.Г., Дьяков В.А., Прялкин В.И. *Квантовая электроника*, **34**, 461 (2004).
10. Гречин С.Г., Дмитриев В.Г., Дьяков В.А., Прялкин В.И. *Изв. РАН. Сер. физич.*, **66**, 4365 (2002).