

Формирование субфемтосекундных лазерных импульсов в аперiodически поляризованных нелинейно-оптических кристаллах

И.В.Шутов, А.А.Новиков, А.С.Чиркин

Рассмотрен метод синтеза сверхкоротких лазерных импульсов в нелинейных кристаллах с аперiodической доменной структурой, основанный на одновременной генерации нескольких высших оптических гармоник. Изучен процесс взаимодействия четырех волн с кратными частотами, состоящий из трех связанных между собой нелинейных трехчастотных процессов, и показано, что при вводе в кристалл интенсивного лазерного излучения возможно формирование на его выходе импульсов длительностью порядка нескольких сотен аттосекунд.

Ключевые слова: квазисинхронные взаимодействия, аперiodическое изменение нелинейности, связанные процессы, многочастотные взаимодействия, синтез сверхкоротких импульсов.

1. Введение

В настоящее время интенсивно исследуется возможность получения сверхкоротких лазерных импульсов длительностью $10^{-15} - 10^{-17}$ с (см., напр., [1]). Генерация таких импульсов представляет интерес для различных областей науки, техники и медицины. Современные предложения по формированию сверхкоротких импульсов сводятся в основном к проблеме фазировки эквидистантных гармоник высокого порядка. Этот принцип идеологически близок принципу синхронизации мод, активно используемому в лазерных системах [2, 3]. При этом длительность импульсов τ определяется шириной спектра, а частота их следования – частотой межмодовых биений.

Возможность генерации аттосекундных импульсов путем сложения высших гармоник излучения, генерируемых в газе, отмечалась в обзоре [4]. В экспериментах [5] в парах натрия наблюдались биения аттосекундной длительности при возбуждении двух частот. Формирование сверхкороткого светового импульса при генерации ВКР в газах путем возбуждения пяти частот было реализовано в [6]. Разработанные к настоящему времени теоретические методы получения импульсов аттосекундной длительности связаны в основном с газовой средой (см. [6] и цитируемую там литературу, а также [7–9]).

Впервые применение фазировки эквидистантных оптических частот, получаемых с помощью преобразования частот в нелинейно-оптических кристаллах, для формирования субфемтосекундных световых импульсов рассмотрел, по-видимому, Т.Хэнш в работе [10], где обсуждался синтез субфемтосекундного импульса путем сло-

жения шести частот: частот излучения двух лазеров и возбуждаемых ими в нелинейных кристаллах суммарных и разностных частот.

Цель настоящей работы – обратить внимание на то, что в нелинейно-оптическом кристалле с аперiodической доменной структурой можно одновременно эффективно генерировать несколько высших оптических гармоник в относительно умеренных лазерных полях. Таким образом, можно синтезировать субфемтосекундные импульсы, располагая одним лазером и только одним нелинейно-оптическим кристаллом. Это обстоятельство позволяет исключить ряд технических моментов, которые необходимо преодолевать в предложенном в [10] методе. В частности, в предлагаемом нами методе условие фазовой синхронизации выполняется автоматически.

2. Волновые взаимодействия в кристалле с аперiodической доменной структурой

Как известно, для реализации нелинейно-оптических взаимодействий световых волн в кристалле необходимо выполнение условий фазового синхронизма. В настоящее время наряду с традиционными синхронными взаимодействиями широкое распространение получили квазисинхронные взаимодействия [11], в которых волновая расстройка взаимодействующих волн компенсируется вектором обратной нелинейной решетки кристалла с регулярной доменной структурой (РДС-кристалла), обеспечивая тем самым эффективный энергообмен между волнами. Квазисинхронные взаимодействия позволяют использовать наибольшие нелинейные коэффициенты и реализовывать нелинейно-оптические процессы в случаях, когда условия обычного фазового синхронизма не выполняются. Более того, в РДС-кристаллах возможно осуществление так называемых последовательных связанных процессов, когда условия квазисинхронизма выполняются одновременно для двух нелинейно-оптических процессов (на различных порядках квазисинхронизма). Однако дисперсионные свойства РДС-кристаллов позволяют реализовать в геометрии коллинеарного взаимо-

И.В.Шутов, А.С.Чиркин. Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова, физический факультет, Россия, 119992 Москва, Воробьевы горы; e-mail: iwitty@gmail.com, aschirkin@rambler.ru
А.А.Новиков. Международный учебно-научный лазерный центр МГУ им. М.В.Ломоносова, Россия, 119992 Москва, Воробьевы горы

Поступила в редакцию 9 июля 2007 г., после доработки – 31 августа 2007 г.

действия одновременно только два связанных трехчастотных процесса.

Вместе с тем одновременное осуществление нескольких нелинейно-оптических процессов возможно в кристаллах, в которых коэффициент нелинейной восприимчивости с расстоянием меняется аперидически [12]. Суть этого подхода состоит в следующем. В РДС-кристалле множитель, характеризующий периодическую зависимость нелинейного коэффициента связи волн от длины кристалла, можно записать в виде

$$g(z) = \text{sign} \left(\sin \frac{2\pi z}{A} \right), \quad (1)$$

где A – период модуляции нелинейного коэффициента.

Исследованный в [12] метод создания аперидической структуры кристалла является обобщением соотношения (1) на случай произвольного числа одновременно протекающих нелинейно-оптических процессов:

$$g(z) = \text{sign} \left(\sum_{j=1}^N a_j \sin \left(\frac{2\pi z}{A_j} + \varphi_j \right) \right), \quad (2)$$

где a_j, φ_j – амплитуда и фаза модулирующих гармоник; N – число трехчастотных процессов, одновременно протекающих в кристалле; $A_j = 2\pi/|\Delta k_j|$ – период РДС-структуры для реализации j -го процесса с волновой расстройкой Δk_j . Анализ (2) показал, что в спектре аперидической функции $g(z)$ присутствуют компоненты вектора обратной решетки $2\pi/A_j$, которые компенсируют волновые расстройки для j -го процесса в первом порядке квазисинхронизма. Отметим, что изменение значений фаз φ_j не отражается на эффективности нелинейного преобразования, в то время как соотношение амплитуд a_j играет существенную роль. Фактически a_j определяет удельный вес j -го процесса. Изменение соотношения между амплитудами a_j эквивалентно изменению эффективности j -го нелинейного процесса по отношению к другим процессам.

3. Связанные трехчастотные взаимодействия в кристалле LiNbO_3

Будем рассматривать кристалл ниобата лития с аперидической модуляцией коэффициента нелинейной связи волн. (Такие кристаллы возможно создать методом послеростовой переполаризации [13].) Изучим возможность реализации в аперидически поляризованном кристалле LiNbO_3 двух типов связанных четырехволновых взаимодействий.

Первый тип протекающих в поле интенсивной волны накачки с частотой ω взаимодействий (тип I) состоит из следующих процессов:

$$\omega \rightarrow \omega/2 + \omega/2, \quad (3.1)$$

$$\omega + \omega/2 \rightarrow 3\omega/2, \quad (3.2)$$

$$\omega/2 + 3/2\omega \rightarrow 2\omega. \quad (3.3)$$

Тип I включает процесс параметрического преобразования частоты вниз (3.1) и два процесса генерации суммарной частоты (3.2), (3.3).

Второй тип взаимодействий (тип II) состоит из следующих процессов:

$$\omega \rightarrow \omega/2 + \omega/2, \quad (4.1)$$

$$\omega + \omega/2 \rightarrow 3\omega/2, \quad (4.2)$$

$$\omega + \omega \rightarrow 2\omega. \quad (4.3)$$

Как видно, в нем, в отличие от первого типа взаимодействия, излучение на частоте 2ω является результатом удвоения частоты волны накачки, а не смещения частот. Далее для удобства записи используем обозначения: $\omega_1 = \omega, \omega_2 = \omega/2, \omega_3 = 3/2\omega$ и $\omega_4 = 2\omega$.

Волновые расстройки для рассматриваемых процессов есть:

$$\Delta k_1 = k_1 - 2k_2, \quad (5.1)$$

$$\text{тип I} \quad \Delta k_2 = k_3 - k_2 - k_1, \quad (5.2)$$

$$\Delta k_3 = k_4 - k_2 - k_3; \quad (5.3)$$

$$\Delta k_1 = k_1 - 2k_2, \quad (6.1)$$

$$\text{тип II} \quad \Delta k_2 = k_3 - k_2 - k_1, \quad (6.2)$$

$$\Delta k_3 = k_4 - 2k_1. \quad (6.3)$$

Здесь k_j – волновое число для волны с частотой ω_j . Указанные расстройки определяют значения соответствующих периодов доменной структуры в первом порядке квазисинхронизма посредством соотношения $A_j = 2\pi/|\Delta k_j|$.

Для вычисления волновых расстроек и соответствующих им периодов модуляции A_j мы использовали дисперсионные данные кристалла LiNbO_3 , приведенные в [14]. При этом предполагалось, что доменная структура создана таким образом, что доменные стенки лежат в плоскости zy , а вектор обратной нелинейной решетки параллелен оси x , что возможно при создании доменной структуры с помощью метода переполаризации [13]. Периоды A_j для длины волны $\lambda_1 = 2\pi c/\omega = 1.064$ мкм таковы:

$$A_1 = 20.7 \text{ мкм}, \quad (7.1)$$

$$\text{тип I} \quad A_2 = 14.2 \text{ мкм}, \quad (7.2)$$

$$A_3 = 8.0 \text{ мкм}; \quad (7.3)$$

$$A_1 = 20.7 \text{ мкм}, \quad (8.1)$$

$$\text{тип II} \quad A_2 = 14.2 \text{ мкм}, \quad (8.2)$$

$$A_2 = 14.2 \text{ мкм}. \quad (8.3)$$

На рис.1 изображен вид функции $g(z)$ (2) для связанных квазисинхронных взаимодействий, которая содержит периоды модуляции типа I.

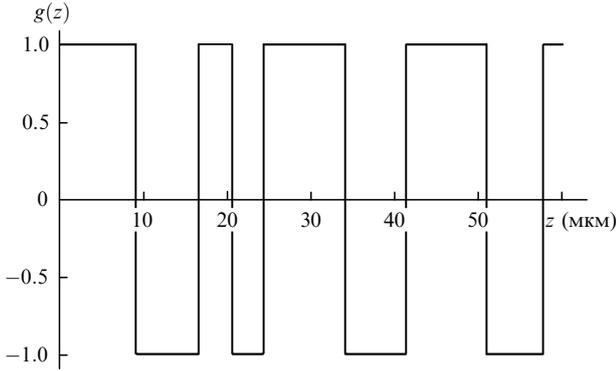


Рис.1. Функция $g(z)$, характеризующая аperiодическое изменение знака нелинейного коэффициента при взаимодействии световых волн с кратными частотами в кристалле LiNbO_3 (длина волны основного излучения 1.064 мкм).

Рассматриваемые четырехволновые процессы описываются следующими системами укороченных уравнений для комплексных амплитуд взаимодействующих волн: в случае взаимодействий типа I (3)

$$\begin{aligned} \frac{dA_1}{dz} &= ig(z)[\beta_{11}A_2^2e^{i\Delta k_1z} + \beta_{21}A_2^*A_3e^{-i\Delta k_2z}], \\ \frac{dA_2}{dz} &= ig(z)[\beta_{12}A_1A_2^*e^{-i\Delta k_1z} + \beta_{22}A_3^*A_1e^{-i\Delta k_2z} + \beta_{32}A_3^*A_4e^{-i\Delta k_3z}], \\ \frac{dA_3}{dz} &= ig(z)[\beta_{23}A_1A_2e^{i\Delta k_2z} + \beta_{33}A_2^*A_4e^{-i\Delta k_3z}], \\ \frac{dA_4}{dz} &= ig(z)[\beta_{34}A_3A_2e^{i\Delta k_3z}]; \end{aligned} \quad (9)$$

в случае взаимодействий типа II (4)

$$\begin{aligned} \frac{dA_1}{dz} &= ig(z)[\beta_{11}A_2^2e^{i\Delta k_1z} + \beta_{21}A_2^*A_3e^{-i\Delta k_2z} + \beta_{31}A_1^*A_4e^{-i\Delta k_3z}], \\ \frac{dA_2}{dz} &= ig(z)[\beta_{12}A_1^*A_2e^{-i\Delta k_1z} + \beta_{22}A_3^*A_1e^{-i\Delta k_2z}], \\ \frac{dA_3}{dz} &= ig(z)[\beta_{23}A_1A_2e^{i\Delta k_2z}], \\ \frac{dA_4}{dz} &= ig(z)[\beta_{34}A_1^2e^{i\Delta k_3z}]. \end{aligned} \quad (10)$$

Здесь A_j – комплексная амплитуда волны с частотой ω_j ; β_{ij} – коэффициенты нелинейной связи, удовлетворяющие соотношениям (см. [15], с. 291):

$$\begin{aligned} \text{тип I} \quad & \beta_{12} = \beta_{11}, \quad \beta_{23} = \beta_{21} + \beta_{22}, \quad \beta_{34} = \beta_{32} + \beta_{33}; \\ \text{тип II} \quad & \beta_{12} = \beta_{11}, \quad \beta_{23} = \beta_{21} + \beta_{22}, \quad \beta_{34} = \beta_{31}. \end{aligned}$$

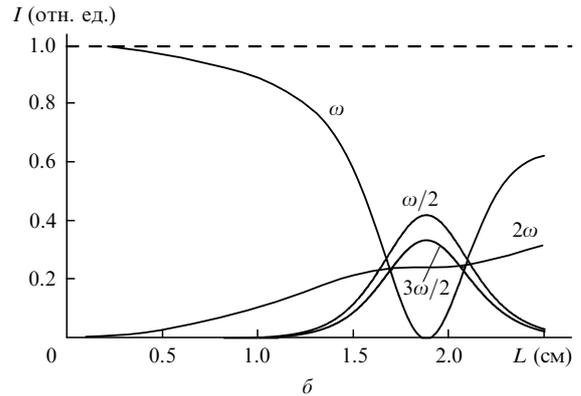
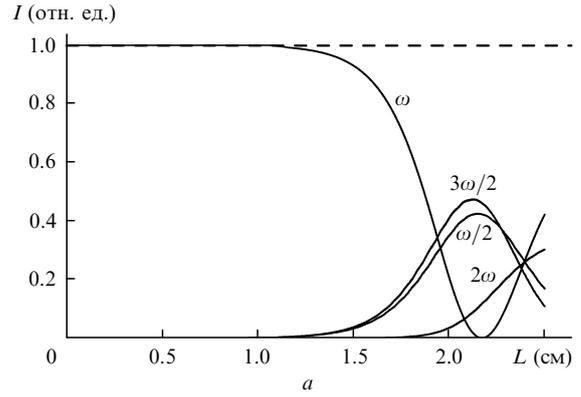


Рис.2. Зависимости интенсивностей волн от длины взаимодействия для процесса типа I при пространственных амплитудах гармоник $a_1 = 13.9, a_2 = 12.1, a_3 = 7$ (а) и для процесса типа II при $a_1 = 20, a_2 = 18, a_3 = 1.4$ (б).

Система уравнений (9), (10) решалась численно. В качестве накачки использовалось излучение с $\lambda = 1.064$ мкм. Интенсивность накачки предполагалась около 100 МВт/см²; для ниобата лития ей соответствует характерная нелинейная длина $L_{nl} = (\beta_{11}|A_1(0)|) \approx 0.1$ см, где A_1 – амплитуда волны накачки.

На рис.2 приведены интенсивности взаимодействующих волн в зависимости от длины кристалла для процессов типа I и II. Комплексные амплитуды A_j при решении системы нормировались на $|A_1(0)|$. Граничные условия для решения обеих систем уравнений полагались следующими:

$$\begin{aligned} \text{Re}A_1(z=0) &= 1, \quad \text{Re}A_2(z=0) = 10^{-3}, \quad \text{Re}A_3(z=0) \\ &= \text{Re}A_4(z=0) = 0, \quad \text{Im}A_j(z=0) = 0, \quad j = 1 - 4. \end{aligned}$$

4. Обсуждение результатов

Из анализа рис.2 следует, что значительный энергообмен между взаимодействующими волнами имеет место на длинах взаимодействия около 2 см, что для рассматриваемого нами случая соответствует $20L_{nl}$. С точки зрения генерации кратных частот II тип взаимодействия оказывается предпочтительным, поскольку процесс генерации второй гармоники происходит в результате удвоения частоты волны накачки, тогда как в типе I необходимы интенсивные поля на частотах $\omega/2$ и $3\omega/2$. Отметим также, что в типе II существуют две длины взаимодействия (см. рис.2,б), при которых интенсивности волн оказываются почти равными. Динамика энергообмена между волнами, представленная на рис.2, имеет место

при некоторых коэффициентах нелинейной связи волн, которые, как отмечалось выше, определяются амплитудами модулирующих гармоник a_j в (2).

Нами исследовалось поле излучения на выходе кристалла длиной L , которое представляет собой суперпозицию волн с кратными частотами,

$$E(t, L) = \sum_{j=1}^4 A_j(L) e^{i(\omega_j t - k_j L)}. \quad (11)$$

Анализ показал, что поведение «мгновенной интенсивности» поля $S(t, z) = (cn/8\pi)|E(t, z)|^2$ (плотность потока световой энергии) носит сложный характер. Оно зависит от длины взаимодействия, которая определяет как интенсивности взаимодействующих волн, так и их фазы.

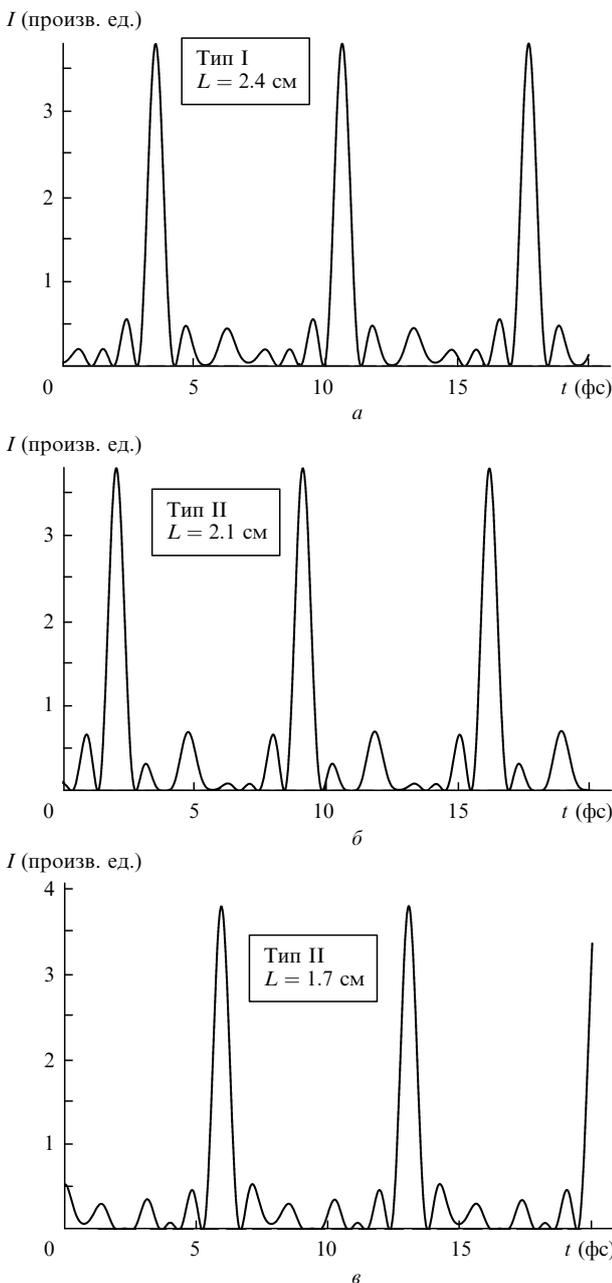


Рис.3. Интенсивности излучения в зависимости от времени для процесса типа I при длине кристалла $L = 2.4$ см (а) и для процесса типа II при $L = 2.1$ (б) и 1.7 см (в).

Для формирования регулярной последовательности импульсов необходимо соблюдение двух условий: фазы волн должны быть одинаковыми, а амплитуды гармоник – почти равными друг другу. Как показали наши численные расчеты, можно подобрать такую длину кристалла, при которой эти условия выполняются. При этом фазировка волн на некоторой длине взаимодействия обеспечивается дисперсией самого кристалла.

Характерные картины зависимостей интенсивности от времени на выходе кристалла для этого случая приведены на рис.3. Видно, что интенсивность демонстрирует хорошую периодическую зависимость. Различные значения пиковой интенсивности импульсов на разных длинах взаимодействия обусловлены, по нашему мнению, неполным согласованием фаз генерируемых частот. Период повторения импульсов определяется частотой $\omega/2$ и составляет около 7.1 фс, длительность импульса зависит от числа гармоник. В соответствии с данными рис.3 она составляет немногим менее 700 ас. Пиковая интенсивность более чем в 3 раза превышает интенсивность основного излучения. Заметим, что сформированные импульсы (рис.3) отличаются от традиционных сверхкоротких лазерных импульсов, поскольку не содержат модуляционную внутреннюю структуру, т. е. являются видеоимпульсами [4].

Для реализации рассматриваемых взаимодействий в реальных нелинейно-оптических кристаллах, длины которых могут составлять несколько сантиметров, необходимы интенсивности ~ 100 МВт/см². Такие значения можно получить с помощью Nd:YAG-лазера ($\lambda = 1.064$ мкм) при длительности импульсов около 100 пс и средней мощности 1 Вт. Однако при этом следует иметь в виду, что развитая выше теория относится к стационарному случаю взаимодействия волн, а при использовании коротких импульсов в нелинейном процессе могут проявляться эффекты группового запаздывания. В табл.1 приведены расстройки групповых скоростей в кристалле LiNbO₃ для исследуемых длин волн. Групповое запаздывание принято характеризовать длиной $l_{gr} = \tau/v_{jk}$, где $v_{jk} = 1/u_j - 1/u_k$ – групповая расстройка, а u_q – групповая скорость волны с длиной λ_q .

Табл.1. Расстройки групповых скоростей v_{jk} (10^{-12} с/см) для LiNbO₃.

λ (мкм)	2.128	1.064	0.709	0.532
2.128	0	-0.15	-2.8	-8.14
1.064	0.15	0	-2.65	-7.99
0.709	2.8	2.65	0	-5.34
0.532	8.14	7.99	5.34	0

Тогда в соответствии с табл.1 для $\tau = 100$ пс минимальная l_{gr} составляет около 12 см. Следовательно, в рассмотренном случае эффекты группового запаздывания не играют существенной роли и результаты развитой теории можно применить к анализу взаимодействия наносекундных лазерных импульсов.

5. Заключение

В настоящей работе исследован метод синтеза субфемтосекундных лазерных импульсов в нелинейно-оптических кристаллах с аперидической модуляцией нелинейной восприимчивости. Для кристалла LiNbO₃ с аперидической модуляцией нелинейного коэффициента

выполнены исследования двух четырехволновых процессов, состоящих из трех одновременно протекающих нелинейных процессов с кратными частотами. Показано, что при определенном выборе длины кристалла возможно получение импульсов длительностью несколько сотен аттосекунд. Для формирования более коротких импульсов следует использовать всю полосу прозрачности нелинейного кристалла, что возможно при более коротковолновой накачке. Это позволит генерировать большее число гармоник и увеличить период следования импульсов.

Представленные в работе результаты показывают принципиальную возможность генерации импульсов аттосекундного диапазона длительности в нелинейных кристаллах с аperiodически изменяющимся нелинейным коэффициентом.

Авторы благодарят Г.Д.Лаптева за обсуждение результатов работы и П.Г.Крюкова за ценные замечания.

Работа выполнена при частичной поддержке РФФИ (грант № 05-02-17017) и гранта Президента РФ № МК-4708.2006.2.

1. Желтиков А.М. *Оптика микроструктурированных волокон* (М.: Наука, 2004).
2. Крюков П.Г. *Квантовая электроника*, **31**, 95 (2001).
3. Ахманов С.А., Выслоух В.А., Чиркин А.С. *Оптика фемтосекундных лазерных импульсов* (М.: Наука, 1988).
4. Гладков С.М., Коротеев Н.И. *УФН*, **160**, 7 (1990).
5. DeBeer D., Usadi E., Hartmann S.R. *Phys. Rev. Lett.*, **60**, 13 (1988).
6. Sokolov A.V., Walker D.R., Yavuz D.D., Yin G.Y., Harris S.E. *Phys. Rev. Lett.*, **87**, 3 (2001).
7. Платоненко В.Т., Стрелков В.В. *Квантовая электроника*, **24**, 799 (1997).
8. Sokolov A.V. *Appl. Phys. B*, **77**, 343 (2003).
9. Таранухин В.Д. *ЖЭТФ*, **125**, 744 (2004).
10. Hänsch T.W. *Opt. Commun.*, **80**, 71 (1990).
11. Чиркин А.С., Волков В.В., Лаптев Г.Д., Морозов Е.Ю. *Квантовая электроника*, **30**, 847 (2000).
12. Novikov A.A., Chirkin A.S. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **6604**, 66041D (2007).
13. Ito H., Takyu C., Inada H. *Electron. Lett.*, **27**, 1221 (1991).
14. Kitaeva G.K., Naumova I.I., Mikhailovsky A.A., Losevsky P.S., Penin A.N. *Appl. Phys. B*, **66**, 201 (1998).
15. Дмитриев В.Г., Тарасов Л.В. *Прикладная нелинейная оптика* (М.: Физматлит, 2004).