УДК 535.32/58

# ГЕНЕРАЦИЯ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ ФЕМТОСЕКУНДНЫХ ЛАЗЕРНЫХ ИМПУЛЬСОВ В УСЛОВИЯХ НЕЛИНЕЙНОЙ ДИФРАКЦИИ РАМАНА—НАТА

© 2015 г. А. М. Вьюнышев<sup>1, 2</sup>, Ю. А. Шереметьева<sup>2</sup>, Б. А. Наседкин<sup>2</sup>, И. С. Батурин<sup>3, 4</sup>, А. Р. Ахматханов<sup>3, 4</sup>, В. Я. Шур<sup>3, 4</sup>

E-mail: vyunishev@iph.krasn.ru

Рассмотрен процесс генерации второй гармоники фемтосекундных лазерных импульсов в условиях нелинейной дифракции Рамана—Ната в периодических доменных структурах ниобата лития. Теоретическая модель для нелинейной дифракции Черенкова использована для расчета спектральноугловых характеристик генерации второй гармоники фемтосекундных лазерных импульсов в условиях нелинейной дифракции Рамана—Ната. Достоверность полученных результатов подтверждена экспериментальными данными.

DOI: 10.7868/S0367676515020325

#### **ВВЕДЕНИЕ**

Периодические квадратично-нелинейные оптические среды перспективны для нелинейно-оптического преобразования лазерного излучения. Периодичность структуры обусловливает дискретный набор векторов обратной решетки, который позволяет достичь фазового квазисинхронизма в случаях, когда нелинейно-оптическое преобразование в условиях углового синхронизма невозможно. В периодических структурах реализуются такие типы фазового согласования, как фазовый квазисинхронизм, нелинейная дифракция Черенкова [1-5], а также нелинейная дифракция Рамана–Ната [2–4, 6, 7]. Последние два типа фазового согласования относятся к неколлинеарному типу взаимодействия и описываются в рамках общей теоретической модели [1]. Различие этих процессов состоит в том, что нелинейная дифракция Черенкова наблюдается при согласовании продольных компонент волновых векторов взаимодействующих волн, в то время как нелинейная дифракция Рамана-Ната наблюдается при согласовании тангенциальных составляющих. Одновременное выполнение этих условий приводит к реализации полного векторного синхронизма, известного как явление нелинейной дифракции

Брэгга. Менее изученна из указанных процессов нелинейная дифракция Рамана–Ната, которая в эксперименте проявляется в виде серии пучков излучения второй гармоники (ВГ), генерируемых под малыми углами к падающему излучению на основной частоте. Практическое значение данного явления связано с возможностью создания устройств мультиплексирования (пространственного разделения) лазерных пучков. Для этого требуется решить проблему отсутствия полного фазового согласования, которое приводит к осцилляционному характеру зависимости сигнала второй гармоники вдоль нелинейной среды и, как результат, к низкой эффективности преобразования. Ситуацию осложняет склонность большинства используемых нелинейных сред к фоторефракции при умеренных плотностях мощности падающего излучения в случае импульсов наносекундной длительности. Напротив, использование фемтосекундных импульсов характеризуется более высокими пороговыми значениями начала развития фоторефрактивных эффектов, поэтому предметом настоящей работы является экспериментальное и теоретическое изучение генерации второй гармоники (ГВГ) фемтосекундных лазерных импульсов в условиях нелинейной дифракции Рамана-Ната.

# ТЕОРИЯ НЕЛИНЕЙНОЙ ДИФРАКЦИИ

Нелинейная дифракция Рамана—Ната — это родственное явление нелинейной дифракции Черенкова. Разницу между этими явлениями легко пояснить, прибегнув к рассмотрению диаграммы фазового согласования в периодической структуре (рис. 1). Для удобства отдельно рассмотрим согласование продольных (вдоль волнового вектора

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт физики им. Л.В. Киренского Сибирского отделения Российской академии наук, Красноярск.

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup> Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего профессионального образования "Сибирский федеральный университет", Красноярск.

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup> Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего профессионального образования Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина, Екатеринбург.

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup> ООО "Лабфер".



**Рис.** 1. a - функция g(x), характеризующая изменение знака нелинейного коэффициента связи волн в периодической структуре; ось *у* направлена нормально плоскости рисунка;  $\delta$  – диаграмма фазового согласования.

основного излучения) и поперечных (ортогональных волновому вектору основного излучения) компонент волновых векторов взаимодействующих волн  $k_i$  на основной (j = 1) и удвоенной частоте (i = 2). Заметим, что в случае распространения основного излучения нормально плоскости векторов обратной решетки G<sub>x</sub> последние входят только в условие на поперечные компоненты, обеспечивая дискретный набор пространственных гармоник  $G_x = mG_0$ . В результате можно ожидать генерацию второй гармоники в направлениях, соответствующих набору пространственных гармоник. Однако такой процесс будет неэффективным по причине фазового рассогласования продольных компонент. В результате сигнала второй гармоники будет осциллировать вдоль нелинейной среды подобно тому, как осциллирует сигнал второй гармоники в однородной нелинейной среде в отсутствие углового синхронизма. С увеличением угла распространения фазовое рассогласование продольных компонент  $\Delta k_{\parallel}$  уменьшается, достигая нуля в направлении равенства проекции волнового вектора второй гармоники удвоенному волновому вектору основного излучения. Это направление есть направление нелинейной дифракции Черенкова. К сожалению, указанный процесс также не отличается высокой эффективностью вследствие того, что данное направление, как правило, лежит в области высоких пространственных гармоник (порядков квазисинхронизма *m*), характеризующихся низкими фурье-амплитудами. Кроме того, в общем случае отсутствует полное согласование поперечных компонент ( $\Delta k_{\perp} \neq 0$ ). В противном случае имеет место нелинейная дифракция Брэгга ( $\Delta k_{\perp,\parallel} = 0$ ). Реализовать данный процесс позволяет угловая подстройка периодической структуры относительно направления распространения пучка основного излучения [4] либо перестройка основного излучения по частоте. Взаимосвязь рассматриваемых явлений позволяет предположить, что данные явления описываются в рамках одной теоретической модели, на роль которой претендует модель, предложенная группой А.С. Чиркина для нелинейной дифракции в регулярных доменных структурах [1]. Ранее данная модель позволила описать нелинейную дифракцию Черенкова и получить согласие расчетных спектральных и угловых зависимостей генерируемого излучения с измеренными [1, 5]. В настоящей работе указанная теоретическая модель будет использована для описания нелинейной дифракции Рамана-Ната фемтосекундных импульсов в периодической доменной структуре в кристалле ниобата лития.

Пусть основное излучение распространяется в положительном направлении оси *y*, которая лежит в плоскости границ доменов, а знак нелинейного коэффициента связи волн описывается периодической функцией поперечной координаты g(x) с периодом  $\Lambda$ , как показано на рис. 1 (*a*). Рассмотрим случай периодической структуры с неравными толщинами соседних доменов. В качестве характеристики структуры введем параметр скважности  $D = l_+/(l_+ + l_-)$ , где  $l_+$  – толщины "положительного" и "отрицательного" доменов, образующих период структуры  $\Lambda = l_+ + l_-$ . В приближении медленно меняющихся амплитуд, а также малой эффективности ВГ имеет вид [1]

$$S(\Omega, K, y) = (|\alpha y|)^{2} \exp\left(-\frac{\tau^{2}\Omega^{2}}{4}\right) \times$$

$$\times \operatorname{sinc}\left(\frac{y}{2}\left[\Delta k + \nu\Omega - \frac{K^{2}}{2k_{2}}\right]\right)^{2} R(K),$$
(1)

где  $\alpha = (\pi/2)^{3/2} \tau a^2 \Gamma$ ,  $\Gamma = -i\beta_2 I_1$ ,  $\beta_2 = 2\pi k_2 \chi^{(2)} / n_2^2$ ,  $I_1 -$ максимальная интенсивность основного излучения;  $2\tau$  и a -длительность импульса и радиус фокального пятна основного излучения по уровню амплитуды поля  $e^{-1}$ ;  $\Delta k = 2k_1 - k_2 -$ рассогласование волновых векторов на основной  $\omega_1$  и удвоенной частоте  $\omega_2$ ,  $\Omega = \omega_2 - 2\omega_{10}$  представляет собой частотную отстройку от центральной частоты основного излучения  $\omega_{10}$ ;  $\nu = (u_2^{-1} - u_1^{-1}) -$ расстройка обратных групповых скоростей;  $\chi^{(2)} -$ эффективная нелинейная восприимчивость второго порядка;  $n_j$  обозначает показатель преломления материала на частоте  $j\omega_1$  (j = 1, 2) [8]. Произведение  $\nu\Omega$  соответствует первому приближению тео-

ИЗВЕСТИЯ РАН. СЕРИЯ ФИЗИЧЕСКАЯ том 79 № 2 2015

рии дисперсии и отвечает за запаздывание импульсов за счет расстройки обратных групповых скоростей. Функция

$$R(K) = \left(\sum_{m} g_{m} \exp\left[-a^{2} \left(mG_{0} + K\right)^{2}/8\right]\right)^{2} \qquad (2)$$

представляет собой фурье-образ периодической структуры в пределах области распространения пучка накачки, где *K* и  $G_0 = 2\pi/\Lambda$  – пространственная частота и модуль основного вектора обратной решетки. Фурье-коэффициенты  $g_m$  для периодической решетки со скважностью *D* имеют вид

$$g_m = \begin{cases} 2D - 1, & m = 0\\ 2\sin(\pi m D)/\pi m, & m \neq 0, \end{cases}$$
(3)

где  $m = 0, \pm 1, \pm 2,...$  порядок квазисинхронизма. На практике удобно пользоваться полным размером пучка, взятым на полувысоте по интенсивности  $w = (2\ln 2)^{1/2} a$ . Для расчета спектрально-угловых зависимостей ГВГ удобно перейти от пространственных частот к углам распространения спектральных компонент внутри структуры  $\theta$  с помощью соотношения:  $K = 4\pi n_2 \sin(\theta)/\lambda$ , в котором  $\lambda$  является длиной волны основного излучения.

# РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

В качестве исследуемого образца использовали кристалл ниобата лития конгруэнтного состава, содержащий периодическую доменную структуру. Образец имел размеры  $11 \times 2 \times 0.5$  мм<sup>3</sup>. Знак квадратичной нелинейной восприимчивости был промодулирован вдоль кристаллографической оси х с периодом 10 мкм и скважностью ~0.8. Излучение фемтосекундного лазера на титан-сапфире средней мощностью около 600 мВт (длительность импульсов  $\tau_{1/2} = 80 \ \varphi c$ , частота следования f = 80 МГц) фокусировалось вдоль кристаллографической оси у с помощью линзы с фокусным расстоянием 20 см. Размер фокального пятна составлял w = 80 мкм. Поляризация основного излучения совпадала с кристаллографической осью z с целью использования максимального нелинейного коэффициент ниобата лития  $d_{33}$ . Спектры генерируемого излучения второй гармоники регистрировали с помощью спектрометра Solar MSDD1000 с обратной линейной дисперсией 0.826 нм/мм в интересующем спектральном диапазоне.

На рис. 2 приведена измеренная угловая зависимость средней мощности излучения второй гармоники, а также соответствующая расчетная кривая, полученная с помощью выражения (1), усредненная по спектру и отложенная в шкале углов распространения вне образца  $\Theta$ . Экспериментальная кривая получена путем транслирования узкой щели в поперечном направлении относительно направления распространения основного излуче-



**Рис. 2.** Измеренная (сплошная линия) и расчетная (пунктир) угловая зависимость средней мощности второй гармоники при накачке основным излучением с центральной длиной волны 800 нм.

ния с синхронной регистрацией средней мощности прошедшего излучения ВГ с помощью измерителя мощности Newport 918D. Излучение второй гармоники выделялось с помощью фильтра BG39, поглощающего основное излучение. Отдельные пики соответствуют различным порядкам квазисинхронизма т. Расчетная зависимость получена с использованием параметров, соответствующих условиям эксперимента. Оптимальная величина скважности составила 0.82, что согласуется с измеренным с помощью оптического микроскопа значением 0.8. Наблюдается хорошее согласие углового положения пучков, а также их угловых ширин и амплитуд. Небольшое расхождение значений амплитуд наблюдается для пучков первого порядка, которое можно объяснить "несовершенством" периодической структуры, т.е. локальным нарушением периодичности структуры. В эксперименте наблюдали пучки второй гармоники, соответствующие первым пяти порядкам. Максимальная средняя мощность центрального пучка достигала уровня 1 мкВт, что в пересчете на эффективность преобразования соответствует значению 10<sup>-6</sup>.

На рис. За приведена расчетная угловая зависимость спектральной плотности излучения второй гармоники для порядка m = 2. Данная зависимость имеет пичковую структуру, которая объясняется осцилляционным поведением сигнала второй гармоники в нелинейной среде. Максимумы соответствуют спектральным компонентам, для которых на длине нелинейно-оптического взаимодействия укладывается нечетное количество длин когерентности. В противном случае наблюдаются минимумы спектральной интенсивности.

215



**Рис.** 3. a – расчетная угловая зависимость спектральной плотности второй гармоники (m = 2).  $\delta$  – измеренный спектр второй гармоники (m = 2).

В данную зависимость вносит вклад задержка обратных групповых скоростей v, входящая в выражение (1). Наличие задержки обратных групповых скоростей приводит к сужению спектральных пичков и сокращению расстояния между ними. В условиях задачи ширина спектральных пичков составила приблизительно 0.01 нм, а расстояние между ними 0.06 нм. К сожалению, в эксперименте не удалось разрешить пичковую структуру спектров второй гармоники из-за слабого сигнала и связанной с этим необходимости увеличения ширины входной щели спектрометра. На рис. 36 приведен измеренный спектр второй гармоники. Очевидно, что усреднение расчетной зависимости на рис. За по углу и в пределах спектрального диапазона (равного спектральному разрешению спектрометра в условиях эксперимента), приведет к сглаживанию спектра второй гармоники.

Как правило, использование оптических элементов, в том числе линз, приводит к увеличению длительности фемтосекундных импульсов. Однако в условиях задачи данный эффект не играет большого значения, поскольку выражение для амплитуды поля ВГ (1) содержит спектральную огибающую, соответствующую длительности исходных импульсов, в предположении, что они являются спектрально-ограниченными. Внесение в оптическую схему оптических элементов приводит к расплыванию волнового пакета во времени (длительность импульсов увеличится). С этого момента импульсы не являются спектральноограниченными, но форма их спектра и спектральная ширина остается прежней. В эксперименте это должно привести к сокращению эффективности преобразования и не должно повлиять на спектральные характеристики генерируемого излучения.

Другая особенность зависимости на рис. За состоит в том, что спектральные компоненты испытывают сдвиг в длинноволновую область с увеличением угла распространения, т.е. длинноволновые компоненты распространяются под большим углом по отношению к коротковолновым. Подобные зависимости принято характеризовать угловым чирпом. В рассматриваемом случае природа углового чирпа может быть объяснена с помощью условия Рамана–Ната, записанного в скалярной форме:  $\sin\theta_m = m\lambda/\Lambda$ , которую нетрудно получить из анализа уравнений (1) и (2). Важно, что величина углового чирпа растет с увеличением порядка квазисинхронизма.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Изучен процесс генерации второй гармоники фемтосекундных лазерных импульсов в условиях нелинейной дифракции Рамана—Ната в периодических доменных структурах ниобата лития. Расчетные угловые зависимости спектральной плотности второй гармоники получены с помощью аналитических выражений для нелинейной дифракции Черенкова при рассмотрении низших порядков квазисинхронизма. Расчетные интегральные характеристики согласуются с измеренными величинами.

Работа выполнена при финансовой поддержке гранта Президента РФ МК-250.2013.2, гранта Красноярского краевого фонда поддержки научной и научно-технической деятельности, гранта РАН № 24.31. А.Р. Ахматханов выражает благодарность за финансовую поддержку молодых ученых в рамках программы развития Уральского федерального университета.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Шутов И.В., Ожередов И.А., Шумицкий А.В., Чиркин А.С. // Оптика и спектроскопия. 2008. № 105. С. 87.
- Saltiel S.M., Neshev D.N., Fischer R. et al. // Phys. Rev. Lett. 2008. V. 100. 103902.
- Saltiel S.M., Neshev D.N., Krolikowski W. et al. // Opt. Lett. 2009. V. 34. P. 848.
- Kalinowski K., Roedig P., Sheng Y. et al. // Opt. Lett. 2012. V. 37. P. 1832.
- Vyunishev A.M., Aleksandrovsky A.S., Zaitsev A.I., Slabko V.V. // Appl. Phys. Lett. 2012. V. 101. P. 211114.
- Chen Y., Dang W., Zheng Y. et al. // Opt. Lett. 2013. V. 38. P. 2298.
- Sheng Y., Kong Q., Wang W. et al. // J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 2012. V. 45. 055401.
- 8. Jundt D.H. // Opt. Lett. 1997. V. 22. P. 1553.