

07;12

Генерация третьей гармоники лазерного излучения в парах органических красителей

© Р.А. Ганеев, Ш.Р. Камалов, М.К. Кодиров, М.Р. Маликов,
А.И. Ряснянский, Р.И. Тугушев, Ш.У. Умидуллаев, Т. Усманов

НПО "Академприбор" АН РУз, Ташкент, Узбекистан
Самаркандский государственный университет им. А. Навои, Узбекистан

Поступило в Редакцию 14 октября 1999 г.

Приведены результаты исследования нелинейно-оптического преобразования частоты излучения YAG:Nd лазера из инфракрасного в ультрафиолетовый диапазон в парах нафталина. Найдена оптимальная температура паров нафталина, при которой осуществляется синхронная перекачка излучения накачки в излучение третьей гармоники (170°C). Предложен механизм генерации третьей гармоники, обусловленный генерацией разностной частоты в шестифотонном процессе. Эффективность преобразования в третью гармонику варьировалась в пределах 10^{-10} – 10^{-8} в зависимости от интенсивности накачки и температуры кюветы. Рассчитаны нелинейно-оптические восприимчивости паров нафталина на нелинейностях третьего и пятого порядков.

Впервые нелинейно-оптические свойства паров органических соединений исследовались в парах бензола (C_6H_6) [1], где осуществлялось преобразование излучения в вакуумную ультрафиолетовую область, а также в парах ацетилена (C_2H_2), где была реализована генерация третьей гармоники (ГТГ) излучения лазера на красителе [2] в ультрафиолетовом (УФ) диапазоне. В последующих исследованиях было показано, что нелинейные восприимчивости ряда молекул органических красителей с сопряженными двойными связями сравнимы с резонансными нелинейными восприимчивостями атомов [3,4], что связано с наличием у подобных молекул делокализованного π -электрона. Последнее приводит к росту нелинейных восприимчивостей этих сред. Такие молекулы с двойными сопряженными связями крайне перспективны в качестве нелинейно-оптических материалов. Отметим, что делокализация π -электронов в фуллеренах (C_{60}) также является причиной большой

нелинейной восприимчивости последних, наблюдавшейся как в процессах генерации гармоник [5,6], так и в процессах обращения волнового фронта [7]. В ряде работ [4,8] были изучены нелинейно-оптические характеристики паров органических красителей, предложены различные схемы преобразования частоты лазерного излучения. Однако до сих пор открытыми остаются некоторые вопросы, такие как условия фазового синхронизма при преобразовании частоты по различным каналам, знаки дисперсии при нелинейно-оптических процессах, влияние различных нелинейных процессов на эффективность преобразования частоты в подобных средах и т. д.

Задачей проведенного цикла исследований было изучение процессов преобразования частоты инфракрасного (ИК) излучения пикосекундной длительности в УФ диапазон при ГТГ в парах органических красителей.

Для расчетов дипольных моментов и нелинейных восприимчивостей паров органических красителей была использована модель свободного электрона (СЭ). Теория модели СЭ описывает системы сопряженных двойных связей органических молекул исходя из предположения, что σ -электроны углеродных атомов, дающие σ -связи, образуют скелет молекулы определенной геометрической формы. Благодаря своему положительному заряду скелет создает потенциал, под действием которого все π -электроны свободно движутся по всей сопряженной структуре. Несмотря на то что модель СЭ является упрощенной [9], для описания систем с сопряженными двойными связями она дает возможность достаточно точно рассчитать их основные оптические и нелинейно-оптические спектральные характеристики [10].

В качестве объекта исследования процесса генерации третьей гармоники лазерного излучения в парах органических красителей был выбран нафталин ($C_{10}H_8$). Отметим, что выбор нафталина был обусловлен тем, что уже при относительно небольших температурах ($\sim 200^\circ C$) пары этого соединения имеют достаточно большую концентрацию, что необходимо для достижения условия синхронной перекачки излучения из волны накачки в волну гармоники.

Используя результаты расчетов уровней энергии, частоты переходов (ω_{mn}) и дипольных моментов переходов (d_{ij} , см. таблицу) для нафталина, было вычислено значение нелинейной восприимчивости третьего порядка $\chi^{(3)}(3\omega)$ (для генерации третьей гармоники излучения YAG: Nd

Дипольные моменты переходов ($d_{ij} \cdot 10^{-18}$ ед. СГСЕ) молекулы нафталина

d_{ij}	5	6	7	8	9
5	0	13.55073	0	1.454014	0
6	13.55073	0	13.5708	0	1.467431
7	0	13.5708	0	13.58422	0
8	1.454014	0	13.58422	0	13.59362
9	0	1.467431	0	13.59362	0

лазера, $\omega = 9391 \text{ cm}^{-1}$, процесс $\omega + \omega + \omega \Rightarrow 3\omega$ по формуле [11]:

$$\chi^{(3)} = \frac{1}{4\hbar^3} \times \sum_{n,m,l} \left[\frac{d_{gn}d_{nm}d_{ml}d_{lg}}{(\omega_{gn} - \omega)(\omega_{gm} - 2\omega)(\omega_{gl} - 3\omega)} \right]. \quad (1)$$

Полученное значение нелинейной восприимчивости составило величину $\chi^{(3)}(3\omega) = 0.42 \cdot 10^{-34}$ ед. СГСЕ.

ГТГ в изотропных средах наряду с процессом $\omega + \omega + \omega \Rightarrow 3\omega$ реализуется и по каналу $\omega + \omega + \omega + \omega - \omega \Rightarrow 3\omega$. Для последнего канала также была рассчитана нелинейная восприимчивость пятого порядка ($\chi^{(5)}(3\omega)$) по аналогичной методике. Величина $\chi^{(5)}(3\omega)$ составила $\chi^{(5)}(3\omega) = 1.3 \cdot 10^{-46}$ ед. СГСЕ.

В качестве источника излучения использовался лазер на YAG:Nd, генерирующий цуг пикосекундных импульсов [12]. Выходные характеристики лазерного излучения были следующими. Энергия цуга пикосекундных импульсов 5 мДж, количество импульсов в цуге 7, длительность импульсов 35 пс. Излучение фокусировалось линзой с фокусным расстоянием 25 см в центр кюветы с парами красителей (рис. 1). Кювета представляла собой трубу из нержавеющей стали с входным и выходным фланцами с кварцевыми окнами, а также системой нагрева и охлаждения. Давление паров красителя определялось по измерению температуры внутри кюветы с помощью термопары и по калибровочной кривой, связывающей температуру паров красителя и их давление. В качестве нелинейной среды использовались пары нафталина ($C_{10}H_8$). Кювета нагревалась до 220°C, что позволяло работать при концентрациях $N \sim 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. Излучения накачки и гармоники выводились через выходное кварцевое окно и направлялись в спектрограф ИСП-30. Излучение третьей гармоники ($\lambda = 354.7 \text{ nm}$) регистрировалось фотоэлектронным умножителем ФЭУ-106, сигнал с которого выводился на

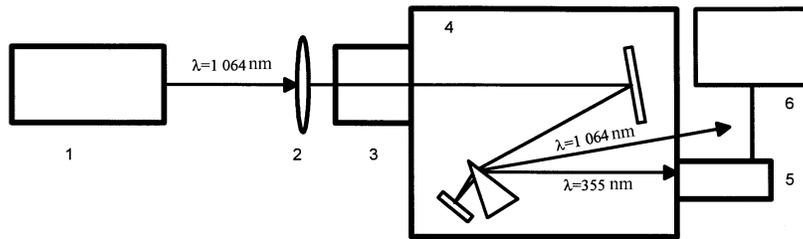


Рис. 1. Схема экспериментов по генерации третьей гармоники излучения YAG:Nd лазера в парах нафталина: 1 — YAG:Nd лазер, 2 — фокусирующая линза, 3 — кювета с парами нафталина, 4 — спектрограф, 5 — ФЭУ-106, 6 — вольтметр В4-17.

цифровой вольтметр В4-17. Исследовалось влияние энергии излучения накачки и температуры паров красителя на величину генерируемого сигнала третьей гармоники.

На рис. 2 показана зависимость сигнала третьей гармоники от температуры паров нафталина. Максимальное значение преобразованного излучения наблюдалось при температуре 170°C . Подобная зависимость характерна для режима генерации нечетных гармоник в условиях тонкой фокусировки ($b \ll L_c$; здесь b — конфокальный параметр сфокусированного излучения, $b = 8\text{ мм}$; L — длина нелинейной среды, $L_c = 180\text{ мм}$) для изотропной нелинейной среды, обладающей отрицательной дисперсией, а также для режима генерации разностной частоты вне зависимости от знака дисперсии среды.

Процесс ГТГ в парах нафталина, как отмечалось выше, может идти по двум каналам: по прямому каналу ($\omega + \omega + \omega \Rightarrow 3\omega$) и в шестифотонном процессе генерации разностной частоты ($\omega + \omega + \omega + \omega - \omega \Rightarrow 3\omega$). Необходимым условием синхронной ГТГ по первому каналу в случае тонкой фокусировки преобразуемого излучения в нелинейную среду является попадание длины волны излучения гармоники в область отрицательной дисперсии (т.е. выполнение условия $k_3 - 3k_1 < 0$, здесь k_3 и k_1 — волновые векторы излучения гармоники и накачки). Только в этом случае дополнительный фазовый сдвиг, обусловленный переходом излучения через область фокусировки, компенсируется дисперсией нелинейной среды; и при этом создаются условия синхронной перекачки энергии электромагнитной волны накачки в волну гармоники.

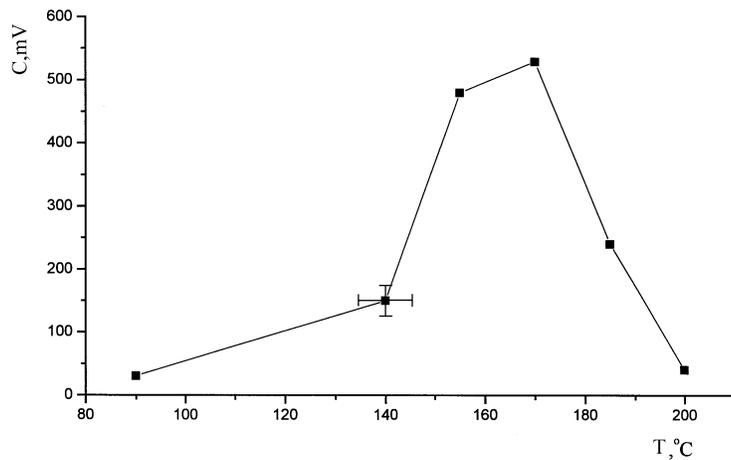


Рис. 2. Зависимость сигнала третьей гармоники от температуры кюветы с парами нафталина. Каждая точка — усреднение по 15 измерениям при данной температуре.

Для наличия областей отрицательной дисперсии в среде последняя должна обладать в этой спектральной области аномальной дисперсией ($dn/d\lambda > 0$) и соответствующими линиями электронных переходов. Спектр однофотонного поглощения паров нафталина показывает, что вблизи длины волны генерации третьей гармоники (354.7 nm) в последнем отсутствуют линии и полосы поглощения [13]. В этом диапазоне нафталин обладает нормальной дисперсией. Поэтому условия синхронной перекачки энергии по каналу $\omega + \omega + \omega \Rightarrow 3\omega$ для паров нафталина при умеренных интенсивностях излучения накачки лазера на YAG: Nd, когда влияния эффекта Керра недостаточно для измерения знака дисперсии, не реализуются. Иная картина и условия генерации наблюдаются для второго случая. Для протекания процесса $\omega + \omega + \omega + \omega - \omega \Rightarrow 3\omega$ уже не требуется наличие области отрицательной дисперсии, поскольку генерация разностной частоты может осуществляться в синхронном режиме в средах с различным знаком дисперсии [14,15]. Таким образом, в нашем случае наиболее вероятным выглядит нелинейно-оптический процесс пятого порядка. Нелинейная восприимчивость ($\chi^{(5)}$) в этом случае, так же как и для случая $\chi^{(3)}$, будет определяться наличием

линий с большими силами осцилляторов вблизи четырехфотонного резонанса (37564 cm^{-1}). Для паров нафталина отстройка в этом случае достаточно велика. Аналогичный процесс генерации разностной частоты в парах нафталина на длине волны третьей гармоники излучения лазера на YAG:Nd исследовался ранее в четырехфотонном процессе ($2\omega + 2\omega - \omega \Rightarrow 3\omega$) [8].

Абсолютное значение эффективности преобразования измерялось с учетом пропускания оптических элементов, эффективности фотокатода и коэффициента усиления ФЭУ, а также аппаратной функции спектрографа. Абсолютная калибровка системы регистрации осуществлялась с помощью установки перед кюветой двух кристаллов KDP (дигидрофосфат калия), в которых ИК излучение преобразовывалось в третью гармонику и регистрировалось как с помощью измерителя энергии, так и с помощью ФЭУ. Максимальная измеренная эффективность преобразования процесса ГТГ в парах нафталина составила 10^{-8} .

В заключение отметим, что нами исследовалось нелинейно-оптическое преобразование частоты излучения YAG:Nd лазера из ИК в УФ диапазон в парах нафталина. Найдена оптимальная температура паров нафталина, при которой осуществляется синхронная перекачка излучения накачки в излучение третьей гармоники (170°C). Предложен механизм генерации третьей гармоники, обусловленный генерацией разностной частоты в шестифотонном процессе. Эффективность преобразования в третью гармонику варьировалась в пределах $10^{-10} - 10^{-8}$ в зависимости от интенсивности накачки и температуры кюветы. Рассчитаны оптические и нелинейно-оптические характеристики паров нафталина вблизи линии генерации на нелинейностях третьего и пятого порядков.

Список литературы

- [1] *Innes K.K., Stoicheff B.P., Wallace S.C.* // Appl. Phys. Lett. 1976. V. 29. N 11. P. 715–717.
- [2] *Ashfold M.N.R., Heryet C.D., Prince J.D.* et al. // Chem. Phys. Lett. 1986. V. 131. N 1,2. P. 291–297.
- [3] *Lukinykh V.F., Myslivets S.A., Popov A.K.* et al. // Appl. Phys. 1985. V. B38. P. 143–146.
- [4] *Александров К.С., Александровский А.С., Карпов С.В.* и др. // Докл. АН СССР. 1987. Т. 296. № 1. С. 85–88.
- [5] *Meth J.S., Vanherzeele H., Wang Y.* // Chem. Phys. Lett. 1992. V. 197. N 1, 2. P. 26–31.

- [6] *Neher D., Stegeman G.I., Tinker F.A.* et al. *Opt. Lett.* 1992. V. 17. N 21. P. 1491–1493.
- [7] *Knize R.J., Partanen J.P.* // *Phys. Rev. Lett.* 1992. V. 68. N 11. P. 2704–2706.
- [8] *Aleksandrovsky A.S., Karpov S.V., Myslivets S.A.* et al. // *J. Phys. B.* 1993. V. 26. P. 2965–2975.
- [9] *Ruegenberg K., Scherr C.W.* // *J. Chem. Phys.* 1953. V. 21. N 7. P. 1565–1572.
- [10] *Дюкунг Ж.* // *Нелинейная спектроскопия.* М.: Мир, 1979. С. 369–389.
- [11] *Miles R.B., Harris S.E.* // *IEEE J. Quantum Electron.* 1973. V. QE-9. P. 470–475.
- [12] *Ganeev R.A., Kulagin I.A., Begishev I.A.* et al. // *Nonlinear Optics.* 1996. V. 16. P. 109–130.
- [13] *Kitagawa T.* // *J. Molec. Spectrosc.* 1968. V. 26. N 1. P. 1–23.
- [14] *Дубовик А.Д.* // *Вестник МГУ. Сер. физика, астрономия.* 1977. Т. 18. С. 82–92.
- [15] *Райнтжес Д.* *Нелинейные оптические параметрические процессы в жидкостях и газах / Пер. с англ.* М.: Мир, 1987. С. 510.