

06

Нелинейная рефракция диэлектрических монокристаллов при возбуждении ультракороткими лазерными импульсами ближнего инфракрасного диапазона

© А.И. Водчиц¹, В.С. Горелик^{2,3}, В.А. Орлович¹, П.А. Апанасевич¹

¹ Институт физики им. Б.И. Степанова НАН Беларуси,
220072 Минск, Беларусь

² Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН,
119991 Москва, Россия

³ МГТУ им. Н.Э. Баумана,
105005 Москва, Россия

e-mail: gorelik@sci.lebedev.ru

Поступила в редакцию 03.06.2019 г.

В окончательной редакции 03.06.2019 г.

Принята к публикации 11.06.2019 г.

Методом однопучкового Z-сканирования исследована нелинейная рефракция в ряде кристаллов (KGW, KGW : Eu³⁺, Ba(NO₃)₂, BaWO₄, PbMoO₄, CdWO₄), перспективных для возбуждения многочастотного вынужденного комбинационного рассеяния света. Для возбуждения нелинейно-оптических процессов использовались пикосекундные лазерные импульсы лазера YAG : Nd³⁺, генерирующего излучение на длине волны 1064 nm. Выполнено сопоставление величин n_2 в зависимости от типа кристалла, от ориентации оптической оси и от концентрации примесей.

Ключевые слова: нелинейная рефракция, нелинейное поглощение, вынужденное комбинационное рассеяние, лазер, Z-сканирование, пикосекундный импульс, диафрагма, детектор.

DOI: 10.21883/OS.2019.10.48359.173-19

Введение

К настоящему времени разработана технология выращивания совершенных монокристаллов, перспективных для нелинейно-оптических приложений. Особый класс нелинейно-оптических кристаллов формируется на основе диэлектрических структур, перспективных для возбуждения процессов вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) [1–7]. Среди такого типа кристаллов большой практический интерес представляют следующие: KGW, KGW, легированный ионами европия (KGW : Eu³⁺), нитрат бария (Ba(NO₃)₂), вольфрамат бария (BaWO₄), вольфрамат кадмия (CdWO₄) и молибдат свинца (PbMoO₄). Генерационные параметры нелинейно-оптических и лазерных устройств, создаваемых на основе этих кристаллов, тесно связаны с их нелинейно-оптическими свойствами. К таким свойствам, в частности, относятся двухфотонно-возбуждаемая фотолюминесценция [7,8], двухфотонное поглощение [9,10], нелинейная рефракция [11–14], генерация высших оптических гармоник [15–17] и др. Нелинейная рефракция и нелинейное поглощение света приводят к искажению поперечного распределения поля в лазерном пучке, к изменению расходимости пучка на выходе из образца, к проявлению эффектов самофокусировки и др. Нелинейное поглощение интенсивного лазерного излучения в конденсированной диэлектрической среде обусловлено главным образом процессами двухфотонного поглоще-

ния, в наибольшей степени проявляющимися при попадании удвоенной частоты лазерного излучения в область частот электронных переходов среды, расположенных в фиолетовой или ультрафиолетовой областях спектра. Информация о величине нелинейного показателя преломления и нелинейного показателя поглощения имеет большое значение при проектировании нелинейно-оптических и лазерных устройств с использованием обсуждаемых конденсированных диэлектрических сред.

В настоящей работе приводятся результаты экспериментальных исследований процессов нелинейной рефракции и двухфотонного поглощения в упомянутых выше кристаллах при возбуждении этих процессов интенсивным лазерным излучением ближнего инфракрасного (ИК) диапазона. Для измерений нелинейного показателя преломления кристаллов в наших исследованиях применялся известный однопучковый метод Z-сканирования [11–14].

Методика эксперимента

В экспериментах по исследованию нелинейной рефракции и двухфотонного поглощения использовался пикосекундный лазер на алюмоиттриевом гранате (YAG : Nd³⁺) на основе прибора LS-2151, LOTIS ТП (Беларусь). Лазер генерировал импульсы длительностью 80 ps на длине волны 1064 nm и 60 ps на длине волны второй оптической гармоники (532 nm). Частота

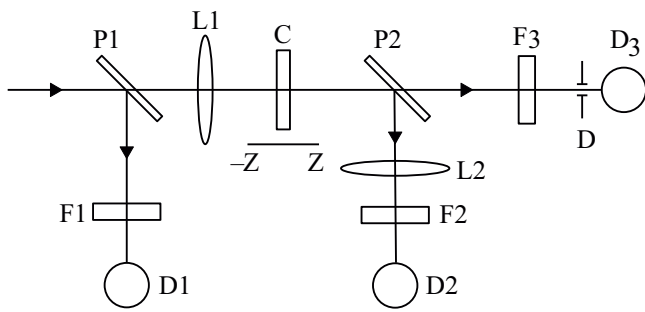


Рис. 1. Оптическая схема однолучевого Z-сканирования: P1, P2 — плоскопараллельные кварцевые пластинки; F1, F2, F3 — фильтры; L1, L2 — линзы; C — исследуемый кристалл; D — диафрагма; D1, D2, D3 — фотодетекторы.

повторения импульсов составляла 20 Нз. Оптическая схема однолучевого Z-сканирования представлена на рис. 1.

Лазерный пучок излучения, имеющего горизонтальную поляризацию, фокусировался в плоскопараллельные пластинки диэлектрических кристаллов с помощью сферической линзы с фокусным расстоянием 35 см. В области фокальной перетяжки интенсивность возбуждающего лазерного излучения составляла $10^{10} - 10^{11} \text{ W/cm}^2$. При перемещении линзы L1 в Z-направлении (рис. 1) в исследуемых образцах в области фокальной перетяжки пучка образец испытывал воздействие лазерного излучения изменяющейся интенсивности. После образца использовались два канала регистрации: канал с диафрагмой D и канал без диафрагмирования пучка (рис. 1). При этом проводились исследования процессов нелинейной рефракции при использовании диафрагмы D, а также двухфотонного поглощения (при отсутствии такой диафрагмы). Нелинейная рефракция приводит к изменению интенсивности излучения, прошедшего через диафрагму D. В канале без диафрагмирования изменение сигнала может быть обусловлено главным образом нелинейным поглощением. В канале измерения нелинейной рефракции устанавливалась диафрагма диаметром 2 мм на расстоянии 138 см относительно центра фокальной перетяжки пучка. Кристаллы перемещались вдоль фокальной перетяжки в автоматизированном режиме с помощью шагового двигателя, управляемого от компьютера. Шаг перемещения составлял 0.5 мм. Усреднение сигналов производилось по 100 лазерным вспышкам в каждой точке. Для сбора излучения от всего пучка в канале без диафрагмы устанавливалась дополнительная фокусирующая линза. Сигналы от детекторов D3 и D2 нормировались на сигнал „накачки“ — детектор D1. Полученные экспериментальные зависимости сигналов от положения Z кристалла относительно центра перетяжки ($Z = 0$) моделировались с использованием теоретической модели, изложенной в [12,13].

Толщина плоскопараллельных монокристаллических пластин составляла 1–4 мм. Кристаллы имели

определенные срезы. Исследовались три кристалла KGW: Eu^{3+} с концентрациями ионов Eu^{3+} 2, 10 и 25 ат.%. В качестве эталонного образца применялась тонкая пластинка плавленого кварца.

Результаты и их обсуждение

Нелинейный показатель преломления определяется из соотношения для нелинейного изменения фазы поля излучения $\Delta\Phi_{nr}$ [12,13]:

$$\Delta\Phi_{nr} = (2\pi/\lambda)l_{ef}n_2I_\omega, \quad (1)$$

где λ — длина волны лазерного излучения, $l_{ef} = [1 - \exp(-\alpha_0 l)]/\alpha_0$ — эффективная длина кристалла, l — физическая длина кристалла, α_0 — линейный коэффициент поглощения кристалла, I_ω — интенсивность лазерного излучения в фокальной перетяжке пучка, n_2 — нелинейный показатель преломления.

Нелинейный коэффициент поглощения (β) определяется с использованием следующего соотношения для нелинейного изменения фазы $\Delta\Phi_{na}$ в этом случае [12–14]:

$$2\Delta\Phi_{na} = \ln(1 + l_{ef}\beta I_\omega). \quad (2)$$

Для определения нелинейных показателей преломления и нелинейного коэффициента поглощения регистрируемые экспериментальные кривые Z-сканирования моделировались теоретическими зависимостями (1), (2) с учетом предположений, изложенных в [12–14]. Основные предположения состояли в следующем: возбуждающий лазерный пучок имеет гауссово пространственное распределение интенсивности излучения, эффективная длина исследуемых кристаллов существенно меньше длины фокальной перетяжки пучка, временная форма лазерного импульса является гауссовой. Данные предположения выполняются в условиях выполненного эксперимента. При этом мощность пикосекундного импульса P вычисляется по формуле

$$P = 0.94 \left(\frac{W}{\Delta t_p} \right), \quad (3)$$

где W — энергия импульса, Δt_p — его временная длительность. Интенсивность лазерного излучения в пучке I в фокальной перетяжке определяется с использованием следующего соотношения:

$$I = \frac{P}{\pi \left(\frac{\omega_0}{2} \right)^2}, \quad (4)$$

где ω_0 — радиус перетяжки гауссова пучка в точке $z = 0$.

Отметим также, что измеряемые экспериментальные зависимости для нелинейной рефракции соответствуют средним значениям нелинейного показателя преломления. Его пиковое значение в $\sqrt{2}$ раз больше. В настоящей работе приводятся пиковые значения нелинейного показателя преломления.

Согласно нашим измерениям, нелинейный показатель преломления плавленого кварца на длине волны 1064 nm составляет $n_2 = 2 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$. Эта величина находится в хорошем согласии с данными других исследователей и предыдущими измерениями [12–14]. Исследования показали, что во всех исследованных кристаллах величина коэффициента нелинейного поглощения при возбуждении лазером с длиной волны 1064 nm очень мала и находится в пределах ошибки измерений. Такой результат обусловлен тем, что край полосы фундаментального электронного поглощения в исследованных материалах находился в коротковолновой области спектра. При этом двухфотонные переходы ($\lambda = 532 \text{ nm}$) попадают в область прозрачности анализируемых диэлектрических сред. В связи с этим процессы двухфотонно-возбуждаемой люминесценции были сильно подавлены, и потери энергии лазерного пучка за счет перехода в тепло в обсуждаемых диэлектрических средах практически отсутствовали.

На рис. 2 представлена полученная экспериментальная зависимость для кристалла KGW, зарегистрированная при Z-сканировании. Энергия импульсов накачки при этом составляла $54 \mu\text{J}$. Ось „с“ кристалла была перпендикулярна вектору поляризации лазерного излучения. На представленном рисунке приведено нормированное пропускание сигнала через диафрагму в зависимости от координаты Z (от центра фокальной перетяжки: $Z = 0$). Измеренный нелинейный показатель преломления оказался равным: $n_2 = 14 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$. Это значение меньше по сравнению со значением на длине волны 790 nm [13], что обусловлено дисперсией n_2 .

Поведение нелинейной рефракции (величины n_2) в кристаллах KGW: Eu^{3+} оказалось более сложным: показатель нелинейной рефракции n_2 зависел от концентрации ионов европия и от ориентации оси „с“ относительно поляризации лазерного излучения. Ориентационная зависимость n_2 становилась более выраженной при вы-

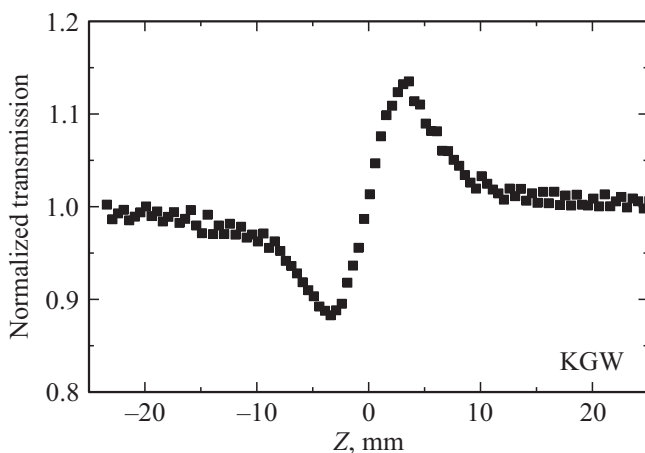


Рис. 2. Экспериментальная кривая Z-сканирования для кристалла KGW (ось „с“ кристалла перпендикулярна вектору поляризации лазерного излучения).

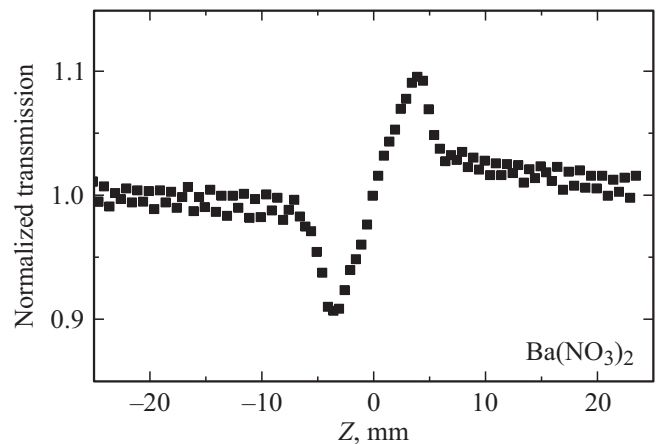


Рис. 3. Экспериментальная кривая Z-сканирования для кристалла нитрата бария.

сокой концентрации ионов. При этом увеличивалась разность между значениями n_2 при различных ориентациях оптической оси „с“ относительно вектора поляризации лазерного излучения. Значение n_2 было наименьшим в том случае, когда ось „с“ была параллельна вектору поляризации лазерного излучения и уменьшалось при более высоких концентрациях европия. Для другой ориентации оси „с“ нелинейная рефракция значительно увеличивалась. Такие закономерности свидетельствуют об анизотропии величины n_2 в одноосных кристаллах, а также о концентрационной зависимости этой величины от ионов Eu^{3+} .

Нелинейная рефракция кристалла нитрата бария не зависела от ориентации кристалла относительно поляризации лазерного излучения, что связано с кубической симметрией соответствующей кристаллической структуры. Экспериментальные данные по Z-сканированию для нитрата бария иллюстрируются рис. 3. Энергия импульсов излучения при этом составляла $71 \mu\text{J}$. Определяемое методом подгонки значение n_2 составило $6 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$. Для вольфрамата бария нелинейный показатель преломления оказался равным $n_2 = 7 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$. В вольфрамате кадмия наблюдалась существенно более сильная нелинейная рефракция. Для этого кристалла при параллельной ориентации оси „с“ и вектора поляризации излучения $n_2 = 14 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$; при перпендикулярной ориентации — $n_2 = 17 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$.

Сильная нелинейная рефракция наблюдалась в молибдате свинца. В PbMoO_4 (*a*-срез) $n_2 = 25 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$ (при этом ось *a* была параллельна вектору лазерной поляризации) и $n_2 = 28 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$ для перпендикулярной ориентации. Для PbMoO_4 (*c*-срез) было получено значение $n_2 = 30 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$ для параллельной ориентации и $n_2 = 35 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$ для перпендикулярной.

Полученные данные о величинах n_2 для всех исследованных кристаллов иллюстрируются таблицей. В этой таблице приведены значения n_2 для длины волны воз-

Значения n_2 для исследованных кристаллов при использовании в качестве возбуждающего излучения ультракоротких интенсивных импульсов лазерного излучения с длиной волны $\lambda = 1064$ nm

№	Тип кристалла	(g) $n_2 \cdot 10^{-16}$, cm ² /W	(v) $n_2 \cdot 10^{-16}$, cm ² /W
1	KGW	13	14
2	KGW : Eu ³⁺ , 2 at.%	16	18
3	KGW : Eu ³⁺ , 10 at.%	13	16
4	KGW : Eu ³⁺ , 25 at.%	12	20
5	Ba(NO ₃) ₂	6	6
6	BaWO ₄	7	7
7	CdWO ₄	14	17
8	PbMoO ₄ (a-среда)	25	28
9	PbMoO ₄ (c-среда)	30	35

буджающего излучения 1064 nm для двух ориентаций оптических осей кристаллов относительно вектора поляризации лазерного излучения (g — параллельная и v — перпендикулярная ориентации).

Заключение

Таким образом, методом однопучкового Z-сканирования построены графики зависимости нормированной интенсивности направленного вторичного излучения от координаты Z, состоящие из областей ослабления и усиления (рис. 2 и 3) интенсивности излучения, регистрируемого детектором D3 (рис. 1). Получены количественные данные о нелинейной рефракции (о величинах n_2) для ряда ориентированных пластинок монокристаллов: KGW, KGW:Eu³⁺, Ba(NO₃)₂, BaWO₄, PbMoO₄, CdWO₄. Исследованные кристаллы используются для создания многочастотных ВКР-лазеров, генерирующих стоксовы и антистоксовы спутники в ИК и видимом спектральных диапазонах. Исследования выполнены с использованием в качестве возбуждающего излучения ультракоротких импульсов лазера YAG : Nd³⁺ ближнего инфракрасного диапазона ($\lambda = 1064$ nm), характеризующегося большой пиковой интенсивностью излучения и высокой плотностью мощности при фокусировке возбуждающего излучения в объеме образцов. Установлено, что при используемых режимах возбуждения двухфотонное поглощение в исследованных образцах практически не наблюдалось, что обусловлено прозрачностью этих кристаллов в области двухфотонных переходов ($\lambda = 532$ nm) и низкой эффективностью нелинейно-возбуждаемой люминесценции. В связи с отсутствием двухфотонного поглощения главным механизмом для реализации нелинейной рефракции в данном случае остаются стоксовы и антистоксовы процессы ВКР, приводящие к квантовой интерференции, т.е. к фотон-бифотонной конверсии с образованием связанных состояний двух фотонов с антипараллельными направлениями спинов (векторов

напряженности электрического поля). В результате образования связанных состояний двух фотонов [15–17] со скалярной поляризацией („темных фотонов“ — „дарктонов“) и малой расходимостью соответствующего излучения происходит ослабление интенсивности возбуждающего излучения (рис. 2 и 3), регистрируемого детектором D3 в небольшом телесном угле, задаваемом диафрагмой D (рис. 1). При распаде скалярных бифотонов на два „запутанных“ фотона, наоборот, наблюдается возрастание интенсивности направленного излучения, регистрируемого детектором D3 (рис. 2 и 3). Возрастание коэффициентов нелинейной рефракции следует ожидать при понижении порога ВКР, реализуемого в конденсированных диэлектрических средах при приближении к условиям резонансного возрастания эффективного сечения спонтанного комбинационного рассеяния, а также при использовании микрорезонаторного усиления в фотонных кристаллах и при реализации нелинейно-оптических резонансов Ми.

Финансирование работы

Работа выполнена за счет средств Российского научного фонда, проект № 19-12-00242.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] Zverev P.G., Basiev T.T., Osiko V.V., Kulkov A.M., Voitshkhovskii V.N., Yakobson V.E. // Opt. Mater. 1999. V. 11. P. 315.
- [2] Zverev P.G., Basiev T.T., Prokhorov A.M. // Optical Materials. 1999. V. 11. P. 335.
- [3] Orlovich V.A., Apanasevich P.A., Batishche S.A., Belyi V.N., Bui A.A., Grabchikov A.S., Kazak N.S., Kachinskii A.V. // J. Optical Technology. 2000. V. 67. P. 984.
- [4] Basiev T.T., Osiko V.V., Prokhorov A.M., Dianov E.M. // Topics in Appl. Phys. 2003. V. 89. P. 459.
- [5] Apanasevich P.A., Batishche S.A., Grabchikov A.S., Kuz'muk A.A., Lisinetskii V.A., Orlovich V.A., Tatur G.A., Chulkov R.V. // J. Appl. Spectrosc. 2006. V. 73. P. 371.
- [6] Lisinetskii V.A., Grabchikov A.S., Khodasevich I.A., Eichler H.J., Orlovich V.A. // Opt. Commun. 2007. V. 272. P. 509.
- [7] Gorelik V.S., Kozulin E.A. // Квант. электрон. 1994. Т. 2. P. 499; Gorelik V.S., Kozulin E.A. // Quant. Electron. 1994. V. 24. P. 462.
- [8] Gorelik V.S., Agaltsov A.M., Zlobina L.I. // J. Mol. Structures. V. 266. 1992. P. 121.
- [9] Buganov O.V., Grabchikov A.S., Malakhov Y.I., Popov Y.M., Orlovich V.A., Tikhomirov S.A. // Laser Phys. Lett. 2012. V. 9. P. 786.
- [10] Rumi M., Perry J.W. // Advances in Optics and Photonics. 2010. V. 2. P. 451.
- [11] Amudha M., Madhavan J., Praveen Kumar. // J. Optics. 2017. V. 46. P. 382.

- [12] *Sheik-Bahae M., Said A.A., Wei T.-H., Hagan D.J., Stryland E.W.V.* // IEEE J. Quant. Electron. 1990. V. 26. P. 760.
- [13] *Vodchits A.I., Kozich V.P., Orlovich V.A., Apanasevich P.A.* // Opt. Commun. 2006. V. 263. P. 304.
- [14] *Vodchits A.I., Orlovich V.A., Apanasevich P.A., Basiev T.T., Zverev P.G.* // Opt. Mater. 2007. V. 29. P. 1616.
- [15] *Gorelik V.S.* // Acta Phys. Hung. 2006. V.A. P. 2637.
- [16] *Gorelik V.S.* // J. Russ. Laser Research. 2006. V. 27. P. 400.
- [17] *Gorelik V.S.* // Laser Phys. 2008. V. 18. P. 1479.