

Секция Н

ФОТОФИЗИЧЕСКИЕ ПРОЦЕССЫ, ПРЕОБРАЗОВАНИЕ ЛАЗЕРНОГО
ИЗЛУЧЕНИЯ, НЕЛИНЕЙНАЯ ОПТИКА И ЛАЗЕРНЫЙ СИНТЕЗ
НАНОСТРУКТУР

УДК 535-32/52

Новые возможности параметрического преобразования
частоты лазерного излучения в нелинейном кристалле LBOЮ.М. Андреев¹, П.В. Выборнов¹, К.А. Кох²¹ Институт мониторинга климатических и экологических систем СО РАН
634055, Томск, Россия, пр. Академический, 10/3, yuandreev@yandex.ru, yavwvay@yandex.ru² Институт геологии и минералогии СО РАН
630090, Новосибирск, Россия, пр. Академика Коптюга, 3, k.a.kokh@gmail.com

Впервые обнаружены специфические возможности управления знаком двуосного отрицательного нелинейного кристалла LBO изменением его рабочей температуры и создания на его основе методами нелинейной кристаллооптики оригинальные источники излучения, работающие в длинноволновой части ИК и/или ТГц диапазона спектра. Изменения знака приводят к возможности реализации новых, соответствующих ему, типов параметрического преобразования частоты излучения лазеров накачки. Кроме того, регулировкой температуры можно оптимизировать процесс преобразования частоты для достижения максимальной эффективности. Рассмотрены особенности преобразования частоты излучения накачки в чистых и легированных серой кристаллах GaSe.

Ключевые слова: нелинейный кристалл, знак нелинейного кристалла, параметрическое преобразование частоты, терагерцовый диапазон; nonlinear crystal, nonlinear crystal sign, parametric frequency conversion, terahertz range.

Введение

Параметрическое преобразование частоты (ППЧ) лазерного излучения в нелинейных оптических кристаллах (НОК) широко используется на практике как результативный путь создания источников когерентного излучения работающих в новых диапазонах спектра. Эффективность ППЧ в значительной мере определяется такими базовыми характеристиками кристаллов как коэффициент нелинейной восприимчивости, лучевая стойкость к излучению накачки на длинах волн в пределах областей максимальной прозрачности и коэффициент оптических потерь.

Для ППЧ излучения наносекундных лазерных импульсов преимущественно используются кристаллы толщиной 0,5–3 см. Эффективное ППЧ излучения пико- и фемтосекундных лазеров успешно осуществляется и в приграничных к основным окнам прозрачности участках спектра пропускания, несмотря на многократно более высокий уровень потерь. В этом случае применяются кристаллы миллиметровых и субмиллиметровых толщин, чтобы исключить влияние нежелательных тепловых эффектов. В данной работе рассматриваются кристаллы большей длины, чем длина когерентности излучений накачки.

Увеличение энергетических и модификация спектральных выходных характеристик существующих преобразователей частоты представляет большой практический интерес. Данная работа посвящена исследованию новых возможностей модификации и управления выходными характеристиками преобразованного по частоте излучения накачки в ТГц диапазон спектра путем контроля числа оптических осей и знака двуосного нелинейного кристалла LBO регулировкой его рабочей температуры.

Преобразователи частоты, созданные на основе кристаллов LBO

При характеризации волн излучения накачки в двуосные НОК (каковым является и кристалл LBO) и генерируемого излучения, используются термины медленная (slow, s) и быстрая (fast, f) волна. Соответствующие значения компонента показателя преломления, определяющих скорость распространения взаимодействующих волн, обозначаются как n_s и n_f . Оптические свойства кристаллов в графической форме представ-

ляются в диэлектрической (X, Y, Z) или кристаллографической (a, b, c) системе координат. Взаимное соответствие компонент в этих двух системах координат установлено и приведено, например, в справочнике [1].

Двуосные кристаллы, как и одноосные, также подразделяются по знаку. Положительными двуосными кристаллами называют те из них, у которых соотношение значений компонент показателя преломления имеет вид $n_x < n_y < n_z$ и углы между оптическими осями $2V_z < 90^\circ$ (V_z — угол между осью Z трехмерной системы координат и оптической осью двуосного кристалла). В свою очередь, отрицательными двуосными кристаллами называют те из них, у которых значения компонент показателя преломления соотносятся как $n_x > n_y > n_z$ и угол $2V_z > 90^\circ$. Отметим, при угле $2V_z = 0^\circ$ двуосные кристаллы вырождаются в одноосные, а при угле $2V_z = 90^\circ$ — в изотропные [1].

В основном окне прозрачности двуосного НОК LBO соотношение значений компонент показателя преломления при комнатной температуре имеет типичный для отрицательных кристаллов вид $n_x < n_y < n_z$. Такой порядок следования подтвержден и вне основного окна прозрачности, в частотном диапазоне 0,3–10 ТГц [2]. Однако, при проведении исследований по фазосогласованной генерации излучения терагерцового (ТГц) диапазона в Национальной физической лаборатории Великобритании в 2016 г., в области еще более низких частот, авторами данного сообщения обнаружен измененный порядок следования компонент на $n_z < n_x < n_y$ [3]. Такое соотношение указывает на неотмеченное ранее выравнивание значений компонент n_z и n_x на какой-то более высокой частоте, а значит и не отмеченный факт превращение двуосного НОК в одноосный. Однако координаты точки равенства значений компонент находится в области высоких оптических потерь она не отражена на графике и ее координаты не идентифицирована. Позднее, для визуализации области равенства компонент на графической зависимости, был проведен дополнительный эксперимент. Равенство значений компонент n_x и n_y было видно на температурной зависимости их значений при 84 °С [4].

Для исключения влияния погрешностей измерений рабочей температуры нелинейных кристаллов, обусловленных применением контактных датчиков, в данном исследовании был использован дистанционный измеритель температуры НОК на основе линейки широкополосных детекторов собственного изготовления. Линейка детекторов была тщательно изолирована от фонового излучения окружающего оборудования минимально возможным углом поля зрения, а для компенсации влияния температуры окружающей среды применен дифференциальный метод измерения. Предел обнаружения детекторов в этом случае составил 320 пВт, а динамический диапазон измеряемой мощности — $6,5 \cdot 10^6$ [5]. При работе в импульсно-периодическом режиме с частотой обновления данных 10 кГц ошибка измерения температуры не превышала $\pm 0,02$ °С.

Дисперсионные свойства в длинноволновой области спектра

В данной работе проведено исследование оптических свойств образцов НОК LBO, выращенных в Институте геологии и минералогии СО РАН А.Е. Кохом и К.А. Кохом (рис. 1). Особое внимание уделено исследованию оптических свойств кристалла и характеристикам генерируемого излучения в длинноволновой части среднего ИК и ТГц диапазоне спектра, вплоть до частоты 0,05 ТГц. Изготовленные рабочие элементы имеют рекордно высокое оптическое качество, как и образцы, использованные в недавно проведенных исследованиях [2–4].

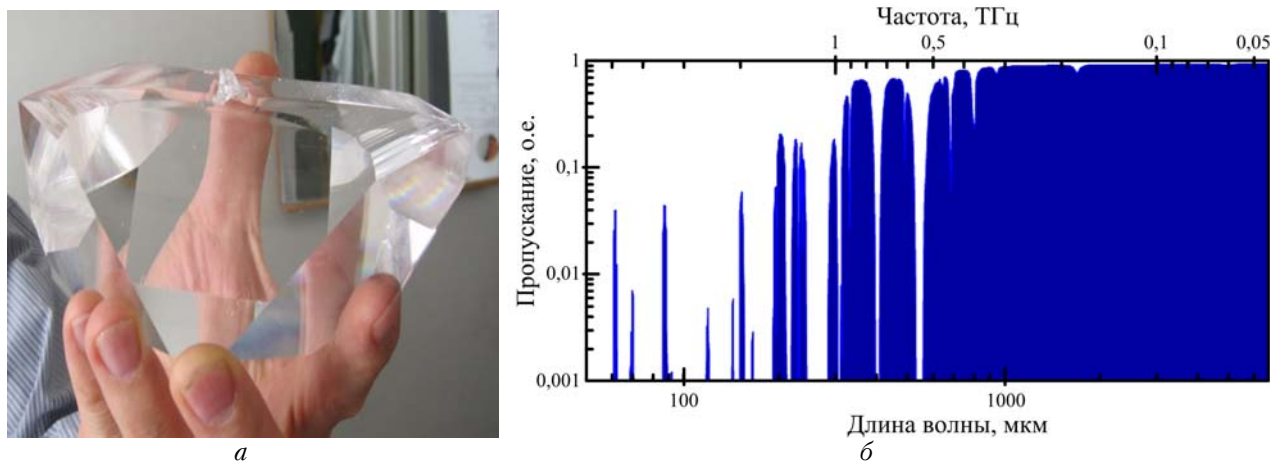


Рис. 1. Внешний вид монокристаллической були LBO крайне высокого оптического качества весом около 1,5 кг, сравним с внешним видом ранее выращенных булей использованных в установке по управляемому термоядерному синтезу (г. Бурже, Франция) [6] (а); спектр пропускания на приземной трассе длиной 10 м в атмосфере при температуре 20 °С и 70% относительной влажности воздуха (б)

Для получения высоких выходных энергетических параметров в данном исследовании, использованы образцы кристалла толщиной до 5–10 мм. Частотный сдвиг специфических особенностей спектра преобразованного по частоте излучения осуществлялся регулировкой рабочей температуры образца, которая приводила, в том числе, к изменению коэффициента поглощения в областях максимальной прозрачности. Измерен-

ный коэффициент поглощения при температуре 100 °С не превышал 0,2 см⁻¹. Полученные результаты позволили установить набор частот, на которых значения спектрального хода трех пар компонент показателя преломления: n_x и n_y , n_y и n_z , n_z и n_x в отдельности имеют равные по величине значения, но на разных длинах волн или при различных температурах. Отметим, что при подходе из области высоких частот соотношение значений третьей пары компонент можно записать и как $n_x = n_z$. Установлено, что координаты точек равных значений всех трех пар компонент показателя преломления сдвигаются с изменением температуры с разными температурными градиентами: при нагреве — в длинноволновую сторону, а при охлаждении — в коротковолновую. Точки равенства значений компонент существенно варьировались в зависимости от оптического качества образцов. В частности, точка равенства компонент n_x и n_y , обнаруженная в пределах спектрального интервала 0,05–0,3 ТГц, сдвигалась в пределах границ диапазона при варьировании температуры от –32 до +98 °С. Наличие трех точек равенства значений различных пар компонент говорит о том, что двуосный НОК LBO трижды поочередно вырождается в них в одноосный нелинейный кристалл. Таким образом, спектральным положением точек попарного равенства значений компонент показателя преломления можно управлять, контролируя их температуру. Когда все три пары компонент поочередно поменяют свое взаимное положение в соотношении значений, образцы НОК LBO становятся образцами другого — положительного знака. Смена знака позволяет реализовать новые, в соответствии со знаком, типы ППЧ. Контролируя спектральный сдвиг точек равенства значений компонент изменением температуры можно оптимизировать эффективность реализуемого процесса ППЧ.

Отрицательный полупроводниковый НОК GaSe имеет слоистую структуру. Его базовые слои состоят из четырехслойных субструктур: двух двумерных слоев Ga заключенных между слоями роста состоят из четырехслойных субструктур: двух двумерных слоев Ga заключенных между двумя монослоями Se. Слои роста связаны в объемную кристаллическую структуру слабыми электростатическими силами взаимодействия Ван-дер-Ваальса (рис. 2).



Рис. 2. Монокристалл GaSe_{1-x}S_x, $x = 0,2$ с минимальной эвтектикой и местом отслоения части кристалла на переднем плане

Специфика структуры обусловила и свойственные только этому кристаллу оптические и другие физические свойства. В частности, двулучепреломление в основном окне прозрачности на длине волны 10 мкм, равно 0,35, а в ТГц диапазоне огромно — 0,79. Столь высокое двулучепреломление [8] исключает смену знака этого кристалла в длинноволновой части спектра прозрачности.

Заключение

Проведенные исследования показали, что регулировкой рабочей температуры образцов двуосного нелинейного кристалла LBO, вырезанных ортогонально оптическим осям X , Y , Z , можно реализовать поочередное попарное выравнивание значений компонент показателя преломления n_x и n_y , n_y и n_z , n_z и n_x (идентично n_x и n_z). Попарное выравнивание значений идет поэтапно в силу различия температурных градиентов изменения значений компонент показателя преломления. Последующее уменьшение температуры ведет к обратному восстановлению отрицательного знака образцов кристалла. Соответственно изменяются и реализуемые в нем типы параметрического преобразования частот. Контроль смены знака кристалла температурой и вариация ее в ограниченных пределах позволяет максимизировать эффективность преобразования частоты и энергетические параметры выходного излучения.

Исследование слоистых одноосных нелинейных кристаллов GaSe показало невозможность установить наличие равенства значений компонент показателя преломления в нем путем контроля температуры, т.е. температуры вырождения в изотропный кристалл.

Благодарности. Работа выполнена при финансовой поддержке РАН в рамках госзадания Института мониторинга климатических и экологических систем СО РАН.

Список литературы

1. *Dmitriev V.G., Gurzadyan G.G., Nikogosyan D.N.* Handbook of nonlinear optical crystals. Springer, 1999. 414 p.
2. *Применение* нелинейного кристалла трибората лития (LBO) для фазосогласованной генерации излучения терагерцового диапазона: Пат. 2617561. Россия, МКИ6, G 02 F 1/35. Андреев Ю.М., Кох А.Е., Кох К.А., Кононова Н.Г., Ланский Г.В., Светличный В.А.; Томск. гос. ун-т, Инст. геол. и мин. СО РАН № 2015148804; Заявл. 13.11.2015. Оpubл. 25.04.2017. Бюл. № 12.
3. *Andreev Yu.M., Kokh A.E., Kokh K.A., Lanski G.V., Litvinenko K., Mamrashev A.A., Molloy J.F., Murdin B., Naftaly M., Nikolaev N.A., Svetlichnyi V.A.* Observation of a different birefringence order at optical and THz frequencies in LBO crystal // *Opt. Mater.* 2017. V. 66. P. 94–97. DOI: 10.1016/j.optmat.2017.01.031
4. *Ezhov D.M., Lubenko D.M., Mamrashev A.A., Andreev Y.M.* Temperature dependence of refractive indices of nonlinear LiB₃O₅ crystals in the THz range // *Atmospheric and Oceanic Optics.* 2022. V. 35. P. 171–173. DOI: 10.1134/S1024856023010050.
5. *Vybornov P., Filatov N.* High-accuracy uncooled bolometer system with a wide dynamic range // *IEEE Sensors J.* 2023. V. 23, iss. 20. P. 24247–24253. DOI: 10.1109/JSEN.2023.3312496.
6. *Shi W., Ding Y.J., Fernelius N., Vodopyanov K.* Efficient, tunable and coherent 0.18–5.27 THz source based on GaSe crystal // *Optics Letters.* 2002. V. 27, iss. 16. P. 1454–1456. DOI: 10.1364/OL.28.000136.
7. *Mei J., Zhong K., Wang M., Liu Y., Xu D., Shi W., Wang Y., Yao J., Norwood R.A., Eyghambaran N.P.* Widely-tunable high-repetition-rate terahertz generation in GaSe with a compact dual-wavelength KTP OPO around 2 μm // *Optics Express.* 2016. V. 24, iss. 20. P. 23368–23375. DOI: 10.1364/OE.24.023368.
8. *Kokh A., Kononova N., Mennerat G., Villeval Ph., Durst S., Lupinski D., Vlezko V., Kokh K.* Growth of high quality large size LBO crystals for high energy second harmonic generation // *Journal of Crystal Growth.* 2010. V. 312, iss. 10. P.1774–1778. DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2010.02.023.

Yu.M. Andreev, P.V. Vybornov, K.A. Kokh. New possibilities of parametric frequency converters of laser emission in oxide nonlinear crystals.

Specific possibilities of controlling the sign of a biaxial negative nonlinear LBO crystal by changing its operating temperature and creating original radiation sources operating in the long-wave part of the IR and/or THz spectral range using nonlinear crystal optics methods have been discovered for the first time. Sign changes lead to the possibility of implementing new, corresponding types of parametric frequency conversion of pump laser radiation. In addition, the frequency conversion process can be optimized by adjusting the temperature to achieve maximum efficiency. Features of frequency conversion of pump radiation in pure and sulfur-doped GaSe crystals are considered.