

Г. В. КРИВОЩЕКОВ, В. И. САМАРИН,  
 В. И. СТРОГАНОВ, В. М. ТАРАСОВ  
 (Новосибирск)

### КАСКАДНОЕ ПРЕОБРАЗОВАНИЕ ЧАСТОТЫ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ В НЕЛИНЕЙНЫХ КРИСТАЛЛАХ

Наиболее важная задача лазерной физики — поиск путей расширения области когерентного оптического излучения. Принципиально новым направлением является возбуждение нелинейных процессов на оптических частотах в нелинейных средах, что дает возможность преобразовывать спектр лазерного излучения. Цель данной работы — обратить внимание на широкие возможности каскадного преобразования частот для создания мощных источников когерентного ультрафиолетового излучения.

В общем случае анализ преобразования спектра лазерного излучения в нелинейных кристаллах в приближении медленных амплитуд для плоских волн при квазистационарном процессе сводится к решению системы неоднородных дифференциальных уравнений [1]:

$$(\vec{s}_n \vec{k}_n) (\vec{s}_n \nabla) A_n + \frac{i}{2} \Delta_{\perp} A_n + \vec{e}_n \hat{\gamma}_n \vec{e}_n A_n = -2i\pi \frac{\omega_n^2}{c^2} \vec{e}_n \vec{P}_n^{\text{нл}} \exp(i\vec{k}\vec{r} - i\omega_n t), \quad (1)$$

где  $\vec{s}_n, \vec{k}_n$  — лучевой и волновой векторы на частоте  $\omega_n$ ;  $\vec{e}_n$  — единичные векторы поляризации;  $A_n$  — комплексные амплитуды взаимодействующих волн поля в среде  $\vec{E} = \sum_n \vec{e}_n A_n e^{i\omega_n t - i\vec{k}_n \vec{r}}$ ;  $\vec{P}_n^{\text{нл}}$  — нелинейная поляризация среды на частоте  $\omega_n$ ;  $\hat{\gamma}_n$  — тензор, описывающий линейное поглощение в кристалле. Апертурные эффекты, возникающие при взаимодействии реальных волн, учитываются членами в (1), содержащими лапласиан  $\Delta_{\perp}$  по переменным в плоскости, перпендикулярной к направлению распространения луча. Влияние анизотропии (угол дублелучепреломления  $\beta$ ) для светового пучка радиуса  $a$  становится существенным на расстояниях так называемой апертурной длины  $l_{\beta} = \frac{2am}{\beta}$ , где параметр  $m$  определяется структурой лазерного излучения [2]. Дифракционная расходимость и поглощение среды сказываются на характерных расстояниях  $l_{\text{д}} \approx \frac{k_n a^2}{2}$  и  $l_{\text{п}} \sim \frac{k_n}{\gamma_n}$  соответственно.

Специфика процесса последовательного преобразования частоты лазерного излучения остается такой же, как при возбуждении второй

гармоники и суммарной частоты. В случае выполнения условий синхронизма (точного согласования фаз волны нелинейной поляризации и электромагнитной волны возбуждаемой частоты) амплитуда второй гармоники (при  $\gamma \approx 0$ ,  $\beta \approx 0$ ,  $l_d \rightarrow \infty$ ) будет равна [3]

$$A_2 = A_{10} \operatorname{th}(\sigma_2 A_{10} z). \quad (2)$$

Для суммарной волны ( $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ ) [3]

$$A_3 = \frac{A_{20}}{A_{10}} \sqrt{\frac{\sigma_3}{\sigma_2}} \operatorname{sn} \left( \sqrt{\frac{\sigma_2}{\sigma_3}} \sigma_3 A_{10} z, p \right), \quad (3)$$

где  $p = \sqrt{\frac{\sigma_1}{\sigma_2} \frac{A_{20}}{A_{10}}} \leq 1$ ;  $A_{10}$ ,  $A_{20}$ ,  $A_{30}$  — граничные значения амплитуд взаимодействующих полей ( $A_{20}$  для  $2\omega$  и  $A_{30}$  в случае смешения полагаются равными нулю);  $\sigma_n$  — коэффициенты нелинейной связи;  $z$  — направление распространения взаимодействующих волн.

В случае неточного синхронизма  $\Delta k = k_{10} + k_{20} - k_{3z} \neq 0$  имеем [4]

$$A_3 = A_{10} \left( \frac{\bar{p}}{s_4} \right)^{1/2} \operatorname{sn} \left( A_{20} \sigma_3 \sqrt{\frac{s_4}{\bar{p}}} z, \bar{p} \right), \quad (3')$$

где

$$\bar{p} = \frac{1}{s_4} (s_1 + s_2 + s_3 - \sqrt{(s_2 - s_1)^2 + 2s_3(s_1 + s_2) + s_3^2}); \quad s_1 = \frac{\sigma_1}{2\sigma_3};$$

$$s_2 = \frac{\sigma_2 A_{10}^2}{2\sigma_3 A_{20}^2}; \quad s_3 = \frac{A_{10} \Delta k}{4\sigma_3 A_{20}^2}; \quad s_4 = 2 \sqrt{s_1 s_2};$$

$\operatorname{sn}(\xi, p)$  — эллиптическая функция Якоби. Следует отметить, что при  $A_2/A_1 \ll 1$  процесс возбуждения гармоник достаточно точно описывается приближением заданного поля ( $A_1 = \text{const}$ ) [5]. При этом для синхронного взаимодействия волн

$$I_2 \sim \chi^2 I_1^2 L^2 \omega_1^2, \quad (4)$$

где  $\chi$  — нелинейная восприимчивость;  $L$  — длина кристалла. Таким образом, при смещении в коротковолновую область спектра эффективность возбуждения гармоники возрастает пропорционально  $\omega_1^2$ . Вне синхронизма [5]

$$I_2 \sim I_1^2 \frac{\chi^2}{(n_{10} - n_{c2})^2} \sin \frac{\Delta k L}{2}. \quad (5)$$

Максимальная интенсивность возбуждения второй гармоники в этом случае

$$I_2^{\max} = \text{const} \chi^2 I_{\text{к.э.}}, \quad (6)$$

куда введена эффективная длина когерентного взаимодействия, явно не зависящая от  $\lambda_1$ . Выражение (6) позволяет сравнить нелинейные среды при несинхронном взаимодействии волн, которое представляет значительный интерес в связи с возможностью преобразования спектра импульсов в область далекого ультрафиолета. Несинхронное преобразование лазерного излучения приобретает существенное значение в связи с отсутствием в настоящее время кристаллов, обеспечивающих синхронное взаимодействие в коротковолновой области ультрафиолета. В таблице

| Кристалл          | $\lambda_1$ , мкм | $l_K$ , мкм | $l_{K.э}$ | $\chi_{отн}$      | $\chi^2 l_{K.э}^2$     | Литература |
|-------------------|-------------------|-------------|-----------|-------------------|------------------------|------------|
| KDP               | 1,06              | 11,43       | 10,8      | $\chi_{36}=1$     | 113                    | [11]       |
| KDP               | 0,69              | 9,85        | 14,2      | $\chi_{36}=1$     | 200                    | [11]       |
| LiIO <sub>3</sub> | 1,06              | 2,4         | 2,26      | $\chi_{31}=12$    | 720                    | [4]        |
| Кварц             | 1,06              | 20,65       | 19,5      | $\chi_{11}=0,77$  | 224                    | [11]       |
| CdS               | 1,06              | 1,7         | 1,6       | $\chi_{31}=32$    | 2600                   | [12]       |
|                   |                   | 1,8         | 1,7       | $\chi_{33}=63$    | 11300                  |            |
| Cds               | 10,6              | 50          | 4,7       | $\chi_{31}=10,5$  | 2420                   | [13]       |
| ZnTe              |                   | 67          | 6,3       | $\chi_{33}=17,5$  | 12150                  |            |
| ZnTe              | 10,6              | 290         | 27,3      | $\chi_{11}=36,7$  | 10 <sup>6</sup>        | [13]       |
| GaAs              | 10,6              | 110         | 10,4      | $\chi_{11}=146,7$ | 2,32 · 10 <sup>6</sup> | [13]       |

приведены значения  $l_K$ ,  $l_{K.э}$ ,  $\chi$  и эффективности преобразования во вторую гармонику ( $\chi^2 l_{K.э}^2$ ) для ряда кристаллов\*.

Согласование фаз взаимодействующих волн может быть в принципе получено за счет естественной оптической активности [6], которая значительно возрастает в области далекого ультрафиолета. Усредняя (5) по возможным малым расстройкам около направления синхронизма [4], можно получить более точное значение эффективности преобразования:

$$\eta = \eta_0 \left[ \frac{2}{L \Delta_{max}} \text{si}(L \Delta_{max}) - \frac{\sin^2 \left( \frac{L}{2} \Delta_{max} \right)}{\left( \frac{L}{2} \Delta_{max} \right)^2} \right], \quad (7)$$

где  $\eta_0$  — соответствует коэффициенту преобразования в случае точного синхронизма. Из (5), (7) видно, что существует минимальная расстройка, когда  $\eta = \eta_0/2$ ; соответствующее  $\Delta k$  определяет ширину синхронизма при нелинейном взаимодействии волн. Наличие двулучепреломления вызывает появление  $\Delta k \neq 0$  при отходе от направления синхронизма. При этом

$$\Delta k = - \frac{2\omega}{c} \frac{\partial n_{2e}}{\partial \theta} \Big|_{\theta = \theta_c} \Delta \theta; \quad (8)$$

здесь  $\theta_c$  — направление синхронизма;  $\Delta \theta$  — угол отхода от синхронизма;

$$\frac{\partial n_{2e}}{\partial \theta} \Big|_{\theta = \theta_c} = \frac{n_{10}^3 (n_{2e}^2 - n_{2o}^2) \sin 2\theta_c}{2n_{2o}^2 n_{2e}^2}.$$

Из (5) следует, что угловая ширина синхронизма составляет

$$\delta \theta_c = \frac{1,3916 \lambda_1}{\pi c L \left| \frac{\partial n_{2e}}{\partial \theta} \right|_{\theta = \theta_c}}. \quad (9)$$

Для примера на рис. 1 приведены значения  $2\Delta \theta_c = \frac{\pi \delta \theta_c}{1,3916}$  (график 2 — ширина между нулями функции (5), а на рис. 2 показана дисперсия угла синхронизма  $\theta_c(\lambda_1)$  (график 1) для кристалла LiIO<sub>3</sub>. При пе-

\*Для KDP  $\chi_{36} = 3 \cdot 10^{-9}$  эл. ст. ед;  $l_K = \frac{\lambda_1}{4(n_{10} - n_{2e})}$ ;  $l_{K.э} = l_K / \lambda_1$ .

ремещении в коротковолновую область спектра  $2\Delta\theta_c$  уменьшается вплоть до  $\lambda_1 \approx 0,7$  мкм, после чего  $2\Delta\theta_c$  должно возрастать, что следует из

$$2\Delta\theta_c \approx \frac{\lambda_1}{L(n_{2e} - n_{2o}) \sin 2\theta_c}, \quad (10)$$

здесь  $n_{2e} - n_{2o} \approx \text{const}$ ,  $\theta_c \rightarrow \frac{\pi}{2}$  (см. рис. 2). В случае 90°-го синхронизма, учитывая второй член разложения (8) (так как  $\frac{\partial n_{2e}}{\partial \theta} \Big|_{\theta = \theta_c} = 0$ ), имеем:

$$\Delta k = -\frac{2\pi}{\lambda_1} n_{2e} \left(1 - \frac{n_{2e}^2}{n_{2o}^2}\right) \Delta\theta^2; \quad (11)$$

$$\delta\theta_c = 2 \sqrt{\frac{1,3916\lambda_1}{\pi n_{2e} L \left(1 - \frac{n_{2e}^2}{n_{2o}^2}\right)}}. \quad (12)$$

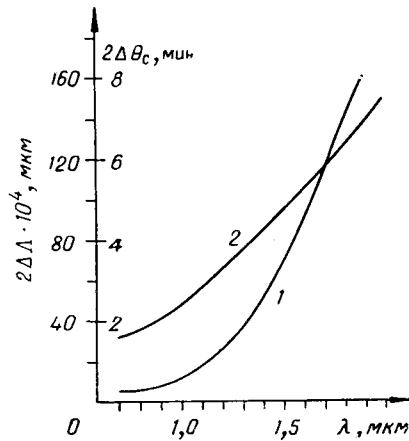


Рис. 1.

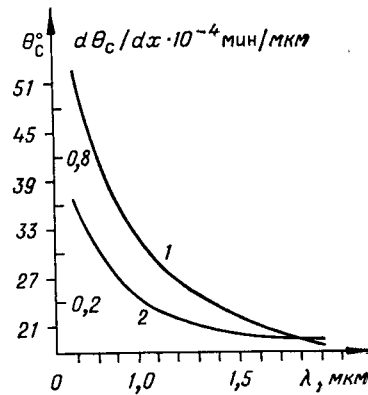


Рис. 2.

Из-за конечного спектрального состава лазерного излучения ( $\lambda_1$ ) в силу дисперсионных характеристик среды необходимо учитывать частотную ширину синхронизма [7]

$$2\Delta\Lambda_1^c = \frac{\lambda_1}{L \left( \frac{\partial n_1}{\partial \lambda_1} - \frac{1}{2} \frac{\partial n_2}{\partial \lambda_2} \right)}. \quad (13)$$

Дисперсионная зависимость  $2\Delta\Lambda_1^c$  для кристалла  $\text{LiIO}_3$  ( $L=1$  см) приведена на рис. 1 (график 1). На коэффициент преобразования при накачке ( $\lambda_1$ ) с широким спектром влияет и «чувствительность направлений синхронизма»  $\frac{d\theta_c}{d\lambda_1} \lambda_1$  (см. на рис. 2 график 2) [8].

Поглощение части излучения средой, помимо понижения интенсивности, приводит к ряду эффектов, таких как тепловое самовоздействие [9], температурное вращение плоскости поляризации лазерного излучения [10], перемещение направления синхронизма [11]. Ширина температурного синхронизма [7]:

$$2\Delta T_c = \frac{\lambda_1}{L \left| \frac{\partial n_{1o}}{\partial T} - \frac{\partial n_{2e}}{\partial T} \right| T = T_c}. \quad (14)$$

В далекой ультрафиолетовой области спектра возникает ряд трудностей, препятствующих широкой реализации метода последовательного умножения частоты, а именно (кроме отсутствия в изученных нелинейных кристаллах направлений синхронизма): существенное возрастание поглощения, значительная частотная дисперсия направлений синхронизма  $\theta_c(\lambda_1)$  (например, для  $\lambda_1=1,06$  мкм  $d\theta_c/d\lambda_1=5 \cdot 10^2$  мин/мкм, для  $\lambda_1=0,53$  мкм  $3 \cdot 10^4$  мин/мкм [12]) накладывают жесткие условия на ширину спектра и стабилизацию частоты излучения лазера.

Методом каскадного преобразования получены: третья гармоника ( $\lambda=0,353$  мкм) лазера на стекле с неодимом (более 30 МВт при общем коэффициенте преобразования 4%) [13], а также четвертая ( $\lambda=$

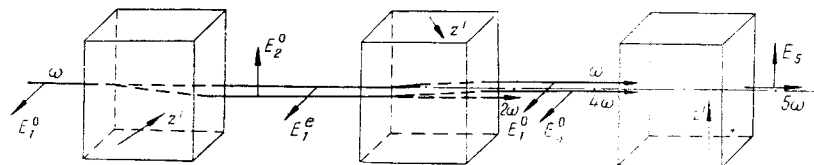


Рис. 3.

$=0,265$  мкм) [14] и пятая ( $\lambda=0,212$  мкм) [15]. Максимально достигнутая мощность четвертой гармоники составляла 1 МВт [14] (эффективность относительно второй гармоники более 50%). При возбуждении пятой гармоники нелинейным смесителем использовался кристалл KDP, охлаждаемый до  $-70^\circ\text{C}$  [15], выходная мощность достигала 1 кВт; вне синхронизма — 0,1—1 Вт. На рис. 3 приведена схема каскадного преобразования частоты до пятой гармоники включительно ( $z'$  — оптические оси). В нашем эксперименте при использовании кристалла  $\text{LiIO}_3$  ( $L=0,62$  см) в качестве первого преобразователя в каскаде возбуждения четвертой гармоники интенсивность второй гармоники была в три раза выше, чем при тех же условиях в кристалле KDP ( $L=3$  см). Для точного выставления кристаллов в направлении синхронизма использовалось свойство неколлинеарного взаимодействия световых волн [16]. Плоскость главного сечения кристалла выделяет два направления распространения второй гармоники  $\varphi_3'$  и  $\varphi_3''$  из конуса лучей  $2\omega_1$ , образованного при векторном синхронном взаимодействии излучения накачки ( $\omega_1$ ) с излучением, рассеянным в кристалле ( $\omega_1$ ). На рис. 4 приведена зависимость углов  $\varphi_3$  от угла падения  $\varphi_1$  излучения накачки ( $\omega_1$ ) для кристалла ADP (взаимодействие  $oo \rightarrow e$ , кривая 1 — излучение лазера на стекле с неодимом; 2 — излучение рубина:  $\varphi_3$  и  $\varphi_1$  отсчитываются от оптической оси). В случае рас-

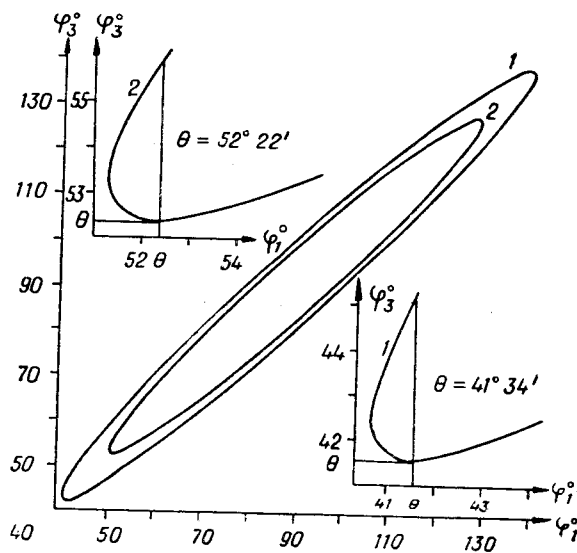


Рис. 4.

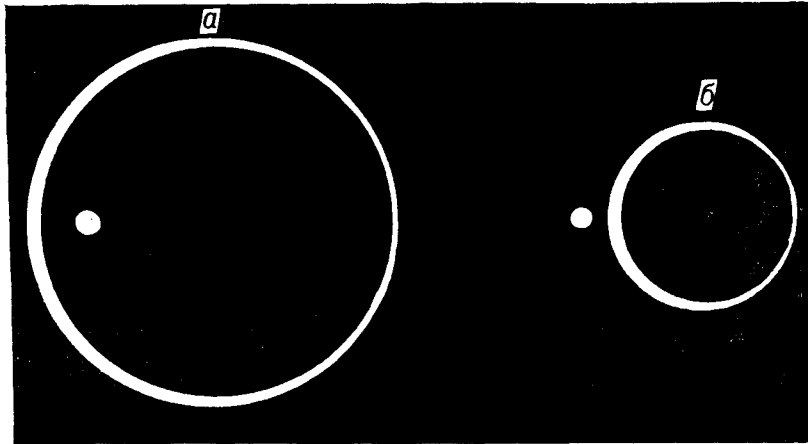


Рис. 5.

пространения излучения ( $\omega_1$ ) перпендикулярно к оптической оси ( $\varphi_1 = 90^\circ$ ,  $\varphi_3' = \varphi_3''$ ) в дальнем поле имеем окружность ( $2\omega_1$ ; векторное взаимодействие) и точку в центре этой окружности (несинхронная вторая гармоника). При  $\theta_c < \varphi_1 < 90^\circ$  распределение подобно приведенному на рис. 5, а. Для  $\varphi_1 = \theta_c$  точка лежит на окружности, а при  $\varphi_1 < \theta_c$  выходит за окружность (см. рис. 5, б). Дальнопольная картина в ультрафиолетовой области спектра наблюдается на флуоресцирующем экране. Угол доориентации кристалла рассчитывается по измеренному отходу светлой точки от ближайшей части кольца.

В заключение следует отметить, что, несмотря на преимущества каскадного метода преобразования, еще предстоит решить ряд вопросов по оптимизации параметров источников накачки и самого процесса преобразования спектра.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. С. А. Ахманов, А. П. Сухоруков, А. С. Чиркин. Нестационарные явления и пространственно-временная аналогия в нелинейной оптике.— ЖЭТФ, 1968, т. 55, вып. 4.
2. С. А. Ахманов, А. П. Сухоруков, А. С. Чиркин. Об апертурных ограничениях эффективности оптических удвоителей частоты.— ИВУЗ, Радиотехника, 1967, т. 10, № 12.
3. Н. Бломбергс. Нелинейная оптика. М., «Мир», 1966.
4. В. Д. Волосов. Влияние параметров излучения ОКГ и нелинейной среды на эффективность генерации второй оптической гармоники.— ЖТФ, 1969, т. 39, вып. 12.
5. С. А. Ахманов, Р. В. Хохлов. Проблемы нелинейной оптики. М., Изд-во АН СССР, 1964.
6. H. Rabin, P. P. Ve u. Phase Matching in Harmonic Generation Employing Optical Rotatory Dispersion.— Phys. Rev., 1967, v. 156, № 3.
7. А. Г. Акманов. Исследование некоторых оптических эффектов в ультрафиолетовом диапазоне. Реф. дисс. М., 1969.
8. Б. И. Кидяров, Г. В. Кривошеков, П. Л. Митницкий, В. И. Самарин, В. И. Строганов, В. М. Тарасов. Дисперсия волнового синхронизма в кристалле  $\text{LiIO}_3$ .— В сб. «Нелинейные процессы в оптике» (Труды II Вавиловской конференции по нелинейной оптике). Новосибирск, «Наука», 1972.
9. А. П. Сухоруков. Тепловая самофокусировка световых пучков.— В сб. «Нелинейные процессы в оптике» (Труды I Вавиловской конференции по нелинейной оптике). Новосибирск, «Наука», 1970.
10. С. И. Рыжакова, И. В. Томов. Тепловое нелинейное вращение плоскости поляризации лазерного излучения.— Вестник МГУ, физика, астрономия, 1971, № 2.

11. Т. В. Михина, А. П. Сухоруков, И. В. Томов. Влияние тепловых самовоздействий на протекание когерентных нелинейных оптических процессов.— ЖПС, 1971, т. 15, вып. 6.
12. А. Г. Акманов, А. И. Ковригин, Н. К. Подсотская. Различие частоты в оптических генераторах гармоник.— Радиотехника и электроника, 1969, т. 14, вып. 8.
13. Р. Б. Андреев, В. Д. Волосов, А. А. Мак, Б. Г. Малинин, А. И. Степанов. Генерирование ультрафиолетового излучения методом последовательного преобразования частот.— Оптико-механическая промышленность, 1969, № 8.
14. Л. В. Норинский, В. А. Колосов. Эффективная генерация мощного когерентного ультрафиолетового излучения.— Письма в ЖЭТФ, 1971, т. 13, вып. 4.
15. А. Г. Акманов, С. А. Ахманов, Б. В. Жданов, А. И. Ковригин, Н. К. Подсотская, Р. В. Хохлов. Генерация когерентного излучения на  $\lambda=2120 \text{ \AA}$  путем каскадного преобразования частоты.— Письма в ЖЭТФ, 1969, т. 10, вып. 6.
16. Г. В. Кривошеков, В. И. Строганов, В. И. Самарин, В. М. Тарасов. Некоторые особенности векторного синхронного взаимодействия световых волн в анизотропных кристаллах.— Оптика и спектроскопия, 1972, т. 33.

*Поступила в редакцию  
9 марта 1972 г.*

---