

УДК 535.44

PACS number(s): 42.65.-k; 42.65.Dr; 42.65Yj; 42.65.Ky

## НЕЛІНІЙНО-ОПТИЧНІ ЕФЕКТИ В $\chi^3$ -АКТИВНОМУ КРИСТАЛІ $\beta$ -BaV<sub>2</sub>O<sub>4</sub>

О. Смирнов, Д. Кудрявцев, І. Пундик<sup>1</sup>

*Запорізька державна інженерна академія  
кафедра фізики, лабораторія нелінійно-оптичних перетворювачів частоти  
просп. ім. Леніна, 226, 69006 м. Запоріжжя, Україна  
e-mail: ASMIRALEX@yandex.ru*

*<sup>1</sup>Київський національний університет ім. Т.Шевченка  
фізичний факультет  
просп. ім. Глушкова, 2, м. Київ, Україна*

Явище спонтанного параметричного розсіювання (СПР) ефективно використовують в спектроскопії, квантовій метрології та квантовій оптиці. Використання СПР є перспективним для спектроскопії кристалів, особливо в області спектроскопії низькочастотних фононів та поляритонів. У статті досліджено спонтанне параметричне розсіювання світла на кристалі ВВО з використанням титан-сапфірового лазера із тривалістю імпульсу 70 фс і довжиною хвилі 790 нм. Одночасно з спонтанним параметричним розсіюванням простежувалося вимушене комбінаційне розсіювання світла. Для генерації гармонік і реєстрації ефективності застосовували стандартну методику. Спектральні особливості вихідного випромінювання при накачуванні другою гармонікою реєстрували за допомогою спектрографа з використанням ПЗС – приймача випромінювання.

*Ключові слова:* нелінійна оптика, спонтанне параметричне розсіювання, вимушене комбінаційне розсіювання.

Останнім часом посилюється інтерес до вивчення нелінійно-оптичних явищ під час фемтосекундного накачування лазером на титані-сапфірі й хромі-форстериті.

Застосування фемтосекундних лазерів дає змогу активізувати не лише квадратичну нелінійність ( $\chi^{(2)}$ ), але й нелінійності вищих порядків, коли  $\left| \frac{P_{n+1}}{P_n} \right| > 1$ , де  $P_n$  – поляризація  $n$ -го порядку. Отож, стає можливим спостереження нелінійно-оптичних ефектів, пов'язаних із сприйнятливостями  $\chi^{(3)}$ ,  $\chi^{(4)}$ , ...,  $\chi^{(n)}$  – прямої генерації вищих гармонік, багатофотонного спонтанного параметричного розсіювання (СПР) й гіперкомбінаційного вимушеного розсіювання. Водночас використання надкоротких світлових імпульсів у разі вивчення ефективності перетворення в нелінійних кристалах потребує врахування не лише кутового, спектрального синхронізму та ефективної

нелінійності, але й урахування групового синхронізму взаємодіючих імпульсів, пов'язаного з розстроюванням групових швидкостей і дисперсійним розпливанням взаємодіючих імпульсів [1].

Перспективним у вивченні нелінійних ефектів у полі випромінювання імпульсів фемтосекундної тривалості є кристал  $\beta$ -BaV<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (BBO), що має високу нелінійність, прозорість в широкому спектральному діапазоні ( $\sim 0,195$ -  $\approx 2,7$  мкм) і порівняно високу променеву міцність [2].

На цьому кристалі простежено прояв змішаної нелінійності  $\chi^{(2)} + \chi^{(3)}$  [2], пряма генерація третьої гармоніки і СПР [3, 4].

У цій статті наведені результати дослідження параметричної люмінесценції в умовах векторного синхронізму в кристалах BBO при накачуванні 70-фс імпульсами з довжиною хвилі 800 нм титан-сапфірового лазера. Всі кристали отримані в лабораторії нелінійно-оптичних перетворювачів частоти Запорізької державної інженерної академії.

Для дослідження розсіювання другої гармоніки фемтосекундного лазерного випромінювання у кристалах  $\beta$ -BaV<sub>2</sub>O<sub>4</sub> було використано установку, схема якої показана на рис. 1.

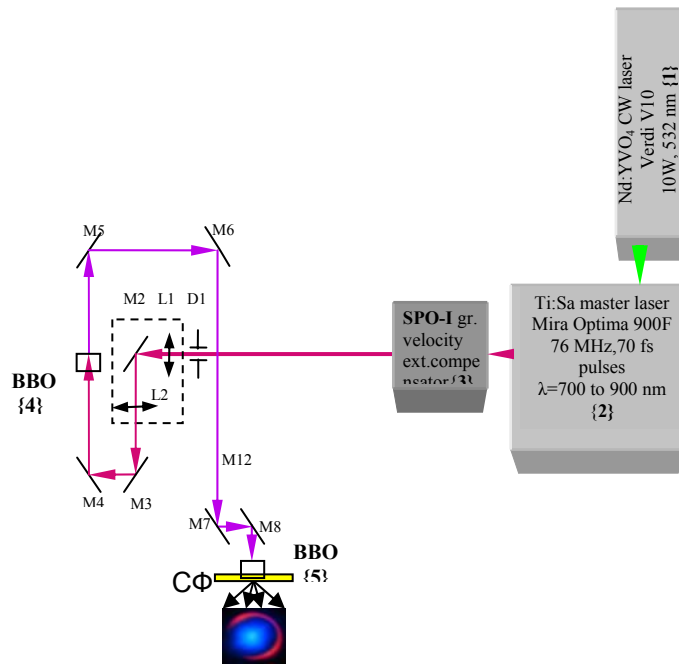


Рис. 1. Схема експериментальної установки: 1 – лазер безперервної дії Coherent Nd:YVO<sub>4</sub> 10-W 532-nm Verdi V10; 2 – фемтосекундний титан-сапфіровий лазер Coherent Mira Optima 900-F; 3 – зовнішній компенсатор групового розстроювання Coherent SPO-I; 4 – кристал BBO для генерації другої гармоніки

Як джерело фемтосекундних лазерних імпульсів з довжиною хвилі 780 нм було використано титан-сапфіровий лазер **Coherent Mira Optima 900-F** (2), що генерує із частотою 76 МГц. Накачували основний випромінювач лазером безперервної дії **Coherent Nd:YVO<sub>4</sub> 10-W 532-nm Verdi V10** (1). Застосування зовнішнього компенсатора групового розстроювання **Coherent SPO-I** (3) дфкї рвїє одержати імпульси тривалістю 70 фс.

Для одержання лазерного випромінювання другої гармоніки було використано просторове розведення основного пучка за допомогою системи дзеркал М2–М7(рис. 1). Друга гармоніка генерувалася на кристалі ВВО (4) завтовшки 3 мм, вирізаному для першого типу синхронізму під кутом  $\theta = 29,2^\circ$  до оптичної осі. Спектр випромінювання другої гармоніки представлено на рис. 2. Ширина спектра становить 1,02 нм.

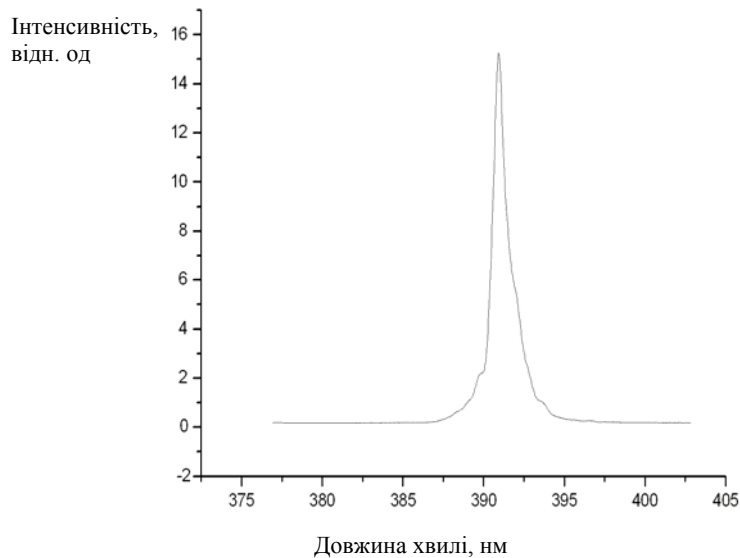


Рис. 2. Спектр випромінювання другої гармоніки

Під час проведення експерименту було досліджено явище розсіювання випромінювання другої гармоніки в широкому спектральному діапазоні на таких кристалах ВВО:

- 1) ВВО(5) завтовшки 3,5 мм, вирізаному під кутом  $\theta = 44,3^\circ$ ;
- 2) ВВО(1) завтовшки 3 мм, вирізаному під кутом синхронізму для другої гармоніки випромінювання накачування  $\theta = 29,2^\circ$ ;
- 3) ВВО(2), вирізаному в головних площинах.

При падінні на кристал ВВО(5) випромінювання другої гармоніки з довжиною хвилі  $\lambda = 390$  нм і повороті зразка на  $45^\circ$  навколо нормалі до передньої грані, на виході простежувалося інтенсивне випромінювання, вигляд якого представлено на рис. 3 (випромінювання другої гармоніки відсічено за допомогою світлофільтра ЖС11).

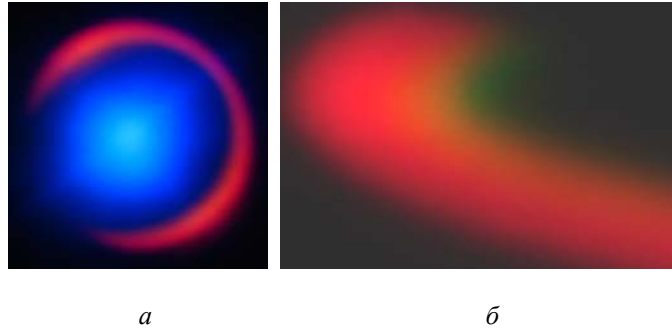
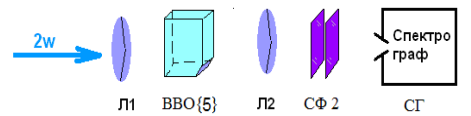


Рис. 3. Випромінювання на виході зі зразка ВВО (б) при накачуванні другою гармонікою:  
а – загальний вигляд випромінювання; б – деталізоване зображення кільцевої зони  
випромінювання, отримане із застосуванням призми

З рис. 3 бачимо, що в структурі спостереженого випромінювання може бути виділено дві області. Спектр центральної області випромінювання представлено на рис. 5. Для реєстрації спектра використовували оптичну схему, показану на рис. 4.



- Л – лінза для збільшення щільності потужності вхідного випромінювання другої гармоніки;
- ВВО{5} – кристал ВВО товщиною 4мм, вирізаний під кутом  $\theta = 44,3^\circ$ ;
- Л2 – лінза для фокусування центральної області розсіяного випромінювання на щілину спектрографа;
- СФ2 – пара світлофільтрів НС на вході спектрографа для ослаблення випромінювання;
- СГ – спектрограф (щільність штрихів дифракційної ґратки – 1800 штр./мм).

Рис. 4. Схема реєстрації спектра СПР

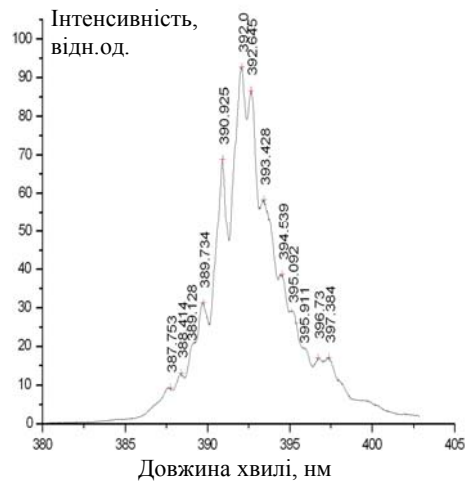


Рис. 5. Спектр центральної області випромінювання на виході кристала ВВО(б) при накачуванні другою гармонікою

Розсіяне випромінювання синього спектрального діапазону, ймовірно, пов'язане із вимушеним комбінаційним розсіянням (ВКР). Про це однозначно засвідчує спектральна періодичність піків, їх симетричність та еквідистантність, а також близькість частот до частот власних коливань кристала ВВО [2]. Відсутність стоксових та антистоксових компонент вищих порядків можна пояснити малою тривалістю імпульсу. Розсіяні компоненти вищих порядків унаслідок дисперсії виходять з області взаємодії.

Спектр кільцевої зони вихідного випромінювання СПР, српстежений на кристалах ВВО(5) та ВВО(1) показано на рис. 6. Реєстрували спектр в оптичній схемі, зображеній на рис. 7.

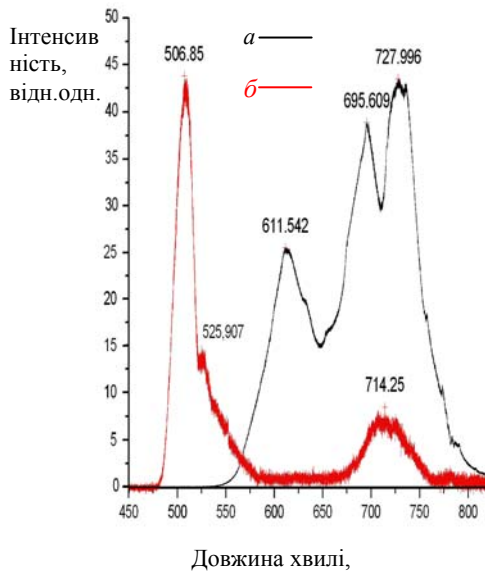
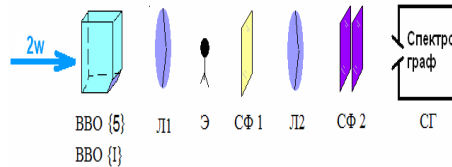


Рис. 6. Спектр кільцевої зони випромінювання: *a* – для кристала ВВО(5); *b* – для кристала ВВО(1)



ВВО(6),ВВО(1) – досліджувані кристали;  
 Л1, Л2 – лінзи для фокусування досліджуваного випромінювання на щілину спектрографа;  
 Э – екран, що блокує інтенсивне випромінювання центральної області розсіяного випромінювання;  
 СФ1 – світлофільтр ЖС11, що відфільтровує випромінювання другої гармоніки;  
 СФ2 – пара світлофільтрів НС на вході спектрографа для ослаблення випромінювання;  
 СГ – спектрограф (щільність штрихів дифракційної ґратки – 1800 штр/мм)

Рис. 7. Схема реєстрації спектра, показаного на рис. 6

Було зазначено, що:

- 1) випромінювання простежувалося у напрямі поширення пучка, а не в напрямі оптичної осі кристала;
- 2) спектральний склад та інтенсивність випромінювання залежить від повороту кристала навколо нормалі до передньої грані зразка;
- 3) випромінювання простежувалося по обидва боки від кристала унаслідок внутрішнього відбиття від його поверхонь;
- 4) при більш щільному фокусуванні вхідного пучка другої гармоніки за допомогою лінзи спостерігалось збагачення спектра вихідного випромінювання.

Для кристала ВВО(2), вирізаного в головних площинах, розсіяне випромінювання не було простежене.

Аналізуючи результати експерименту, це явище інтерпретують як результат параметричної взаємодії в умовах неколінеарного синхронізму.

Відповідно до теорії, при параметричній люмінесценції хвиля накачування із частотою  $\omega_3$  взаємодіє зі слабкими хаотичними сигналами флуктуацій поля, що супроводжується перевипромінюванням світлових хвиль на частотах, менших частоти накачування. Ефективна параметрична взаємодія трьох світлових хвиль у квадратично-нелінійному середовищі потребує виконання двох умов:

$$\begin{aligned}\omega_1 + \omega_2 &= \omega_3, \omega_1 < \omega_2 < \omega_3, \\ k_1 + k_2 &= k_3.\end{aligned}\quad (1)$$

При частотному співвідношенні  $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$  для хвилі накачування  $\omega_3$  й перевипромінених хвиль  $\omega_1, \omega_2$  унаслідок нелінійної взаємодії хвиля накачування підсилює сигнальний промінь частоти  $\omega_2$  одночасно з генерацією третього холостого променя  $\omega_1$  відповідно до умови фазового синхронізму:

$$\hbar \vec{k}_1 + \hbar \vec{k}_2 = \hbar \vec{k}_3.$$

Отож, із квантової точки зору фотон хвилі накачування поділяється на сигнальний і холостий фотони.

В умовах фемтосекундного накачування для ефективного перетворення потрібно також виконання умови узгодження фазових швидкостей трьох взаємодіючих пучків.

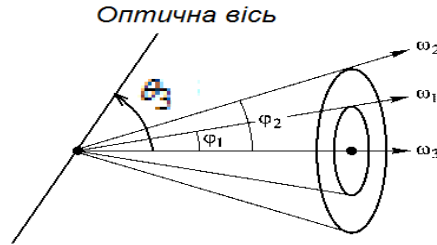


Рис. 8. Схема взаємодії хвилі накачування  $\omega_3$ , сигнальної й холостої хвиль із частотами  $\omega_1, \omega_2$  в умовах неколінеарного синхронізму

Співвідношення (1) можуть бути виконані в анізотропних кристалах за взаємодії хвиль із різними поляризаціями. Для кожного з типів взаємодії можливі випадки колінеарного й неколінеарного синхронізму.

Розглянемо випадок неколінеарного *ooe*-синхронізму, що трапляється під час проведення експерименту.

Нехай у кристалі під кутом  $\theta_3$  до оптичної осі поширюється незвичайна хвиля накачування на частоті  $\omega_3$  (рис. 8).

Посилювані унаслідок параметричної взаємодії флуктуації поля на частотах  $\omega_1$  і  $\omega_2$ , що відповідають звичайним хвилям, будуть поширюватися в напрямках синхронізму під кутами [5]:

$$\begin{aligned}\varphi_1 &= \arccos\left[\frac{\gamma n_{01} - (1 - \gamma)n_{02} + n_{e3}^2(1 - \varepsilon_3^2 \cos^2 \theta_3)^{-1}}{2\gamma n_{01} n_{e3}(1 - \varepsilon_3^2 \cos^2 \theta_3)^{-1/2}}\right], \\ \varphi_2 &= \arccos\left[\frac{(1 - \gamma)n_{02} - \gamma n_{01} + n_{e3}^2(1 - \varepsilon_3^2 \cos^2 \theta_3)^{-1}}{2(1 - \gamma)n_{02} n_{e3}(1 - \varepsilon_3^2 \cos^2 \theta_3)^{-1/2}}\right].\end{aligned}\quad (2)$$

У всіх інших напрямках за цих параметрів  $\gamma$ ,  $\omega_3$ ,  $\theta_3$  флуктуаційні хвилі підсилюватися не будуть. Посилене шумове випромінювання (параметрична люмінесценція) на частотах  $\omega_1$  і  $\omega_2$  поширюється по твірних двох кругових конусів, осі

яких збігаються з вектором  $\vec{k}_3^e$ , а кути розхилу рівні  $\varphi_1$  для частоти  $\omega_1$  й  $\varphi_2$  для  $\omega_2$  (рис. 8).

Посилені шумові хвилі на інших частотах  $\omega'_1$  і  $\omega'_2$ , яким відповідає інший параметр  $\gamma$ , будуть поширюватимуться під іншими кутами  $\varphi'_1$  й  $\varphi'_2$ .

Залежність між кутом синхронізму й параметром  $\gamma$  описують за допомогою характеристик перестроювання, що задаються співвідношенням (2).

Вирази (2) були використані для теоретичного опису отриманих експериментальних результатів за побудови характеристик перестроювання для кристала ВВО для діапазону кутів розхилу  $0^\circ < \varphi_1 < 45^\circ$  за умови накачування випромінюванням другої гармоніки з довжиною хвилі 391 нм. Характеристики показані на рис. 9.

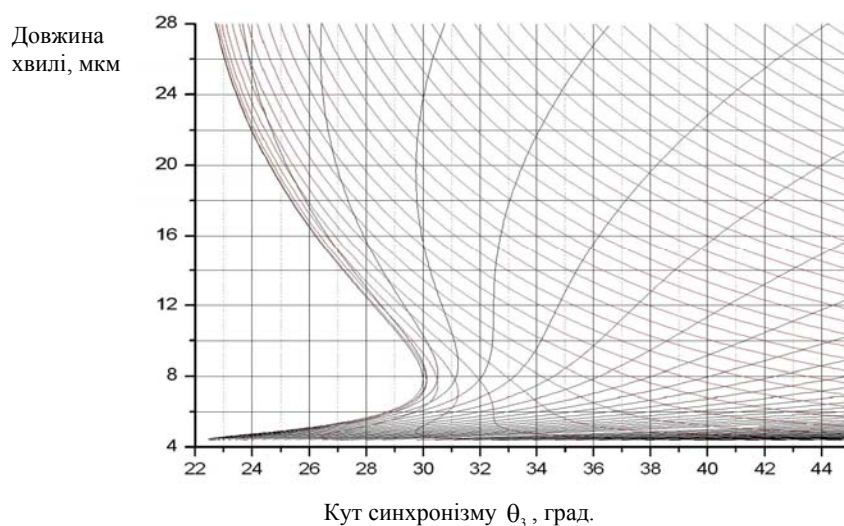


Рис. 9. Сукупність кривих перестроювання для процесу параметричної люмінесценції в кристалі ВВО

З рис. 9 бачимо, що в діапазоні кутів  $0^\circ < \theta < 22^\circ$  умови синхронізму не можуть бути задоволені. Це пояснює відсутність параметричної люмінесценції під час накачування кристала ВВО(2), вирізаного в головних площинах, випромінюванням другої гармоніки титан-сапфірового лазера уздовж кристалографічних осей.

З отриманих характеристик перестроювання також робимо висновок, що під час накачування кристала ВВО(1) має спостерігатися параметрична люмінесценція в спектральних діапазонах (450–650) нм та (1 000–2 560) нм.

Як видно з рис. 6, в експерименті для кристала ВВО(1) простежувалося випромінювання в спектральному діапазоні (460–770) нм. Такий результат можна пояснити незначним відхиленням кристала від положення строго нормального до напрямку поширення пучка накачування, оскільки вже при  $\theta_3 = 30^\circ$  можлива генерація параметричного спектра в діапазоні (460–2 560) нм.

Отож, три яскраво виражених максимуми на довжинах хвиль 611,542, 695,609 і 727,996 нм у спектрі випромінювання кристала ВВО(5), представленому на рис. 9 можна розглядати як результат виконання умов ефективної параметричної взаємодії для декількох наборів частот  $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ . При цьому спостережувані спектральні лінії відповідають сигнальним хвилям. Випромінювання, що відповідає холостим хвилям, в експерименті не реєструвалося, тому що область чутливості спектральної апаратури становила (200–1 000) нм.

У статті досліджено параметричну люмінесценцію в умовах векторного синхронізму в кристалах ВВО при накачуванні 70 фс імпульсами титан-сапфірового лазера з довжиною хвилі 780 нм. Спектр параметричної люмінесценції відповідає обчисленим кривим перестроювання для кристала ВВО. Експериментально визначені основні властивості випромінювання, що зумовлене,  $\chi^{(2)}, \chi^{(3)}$  – активністю кристала ВВО при накачуванні другою гармонікою. З'ясовано, що одночасно зі спонтанним параметричним розсіюванням спостерігалось вимушене комбінаційне розсіювання світла. Про це свідчить спектральна періодичність піків у зареєстрованому спектрі, їх симетричність та еквідистантність, а також близькість їх частот до частот власних коливань кристала ВВО.

Автори висловлюють подяку доктору фіз.-мат. наук Ю.С. Оселечкику та доктору фіз.-мат. наук І.М. Дмитруку за увагу, приділену цій роботі, консультації і критичні зауваження. Роботу виконано із залученням методичних можливостей Центру колективного користування приладами НАН України “Лазерний фемтосекундний комплекс”.

1. *Гречин С.С., Прялкин В.И.* Генерация гармоник фемтосекундного излучения в условиях группового синхронизма в одноосных и двухосных кристаллах // Квант. электрон. 2003. № 8. С. 737–741.
2. *Каминский А.А., Багаев С.Н.* Новые нелинейно-лазерные эффекты в  $\chi^{(2)} + \chi^{(3)}$  – активном кристалле  $\beta - \text{BaB}_2\text{O}_4$  // Докл. АН (Россия). 1999. № 4. С. 468–473.
3. *Krylov V., Gallus J.* Femtosecond noncollinear and collinear parametric generation and amplification in BBO crystal // Appl. Phys. 2000. Vol. 70. P. 163–168.
4. *Ambika Nautiyal, Prem B. Bisht* Sum and frequency generation of white light continuum with the ps pulses of  $\text{Nd}^{+3}$ :YAG laser in a thick BBO crystal // Opt. Commun. 2007. Vol. 278. P. 175–179.
5. *Дмитриев В.Г., Тарасов Л.В.* Прикладная нелинейная оптика. М.: Физматлит, 2004. 512 с.



**NON-LINEAR OPTICAL EFFECTS IN  $\chi^3$  - ACTIVE  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>-CRYSTAL****O. Smyrnov, D. Kudryavtzev, I. Pundyc<sup>1</sup>**

*Zaporizhzhya State Engineering Academy,  
Department of General Physics Laboratory of Non-linear Optics  
Lenin av., 226, UA-69006 Zaporizhzhya, Ukraine*

*<sup>1</sup>Taras Shevchenko Kyiv National University, Faculty of Physics  
Glushkov av. 2, Kyiv, Ukraine*

The effect of spontaneous parametric scattering (SPS) is widely used in spectroscopy, quantum metrology and quantum optics. The usage of SPS has a good perspective for the spectroscopy of crystals, especially in the sphere of low-frequency phonons and polaritons. In this work SPS in BBO-crystal is investigated with the usage of Ti<sup>3+</sup>:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> –laser with the pulse-duration of 70 fs and wavelength of 790 nm. For generation of harmonics and efficiency-registration standard methods were used. The spectral peculiarities of the resulting radiation when pumped with the second harmonic were registered by spectrograph, equipped with CCD-camera.

*Key words:* non-linear optics, spontaneous parametric scattering, stimulated Raman scattering.

**НЕЛИНЕЙНО ОПТИЧЕСКИЕ ЭФФЕКТЫ В  $\chi^3$ -АКТИВНОМ КРИСТАЛЛЕ  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>****О. Смирнов, Д. Кудрявцев, И. Пундик<sup>1</sup>**

*Запорожская государственная инженерная академия  
кафедра физики, лаборатория нелинейно-оптических преобразователей частоты  
просп. им. Ленина, 226, 69006 Запорожье, Украина*

*<sup>1</sup>Київський національний університет ім. Т.Шевченка  
фізический факультет  
просп. ім. Глушкова, 2, Київ, Україна*

Явление спонтанного параметрического рассеивания (СПР) эффективно используется в спектроскопии, квантовой метрологии и квантовой оптике. Использование СПР является перспективным для спектроскопии кристаллов, особенно в области спектроскопии низкочастотных фононов и поляритонов. В статье исследовано спонтанное параметрическое рассеивание света на кристалле ВВО с использованием титан-сапфирного лазера с длительностью импульса 70 фс и длиной волны 790 нм. Одновременно со спонтанным параметрическим рассеиванием прослеживалось вынужденное комбинационное рассеивание света. Для генерации гармоник и регистрации эффективности применяли стандартную методику. Спектральные особенности исходного излучения при накачке второй гармоникой регистрировали с помощью спектрографа с использованием ПЗС – приемника излучения.

*Ключевые слова:*