

НЕЛИНЕЙНЫЕ ОПТИЧЕСКИЕ ЭФФЕКТЫ ПРИ ПИКОСЕКУНДНОЙ НАКАЧКЕ

Р. Н. ГЮЗАЛЯН, К. В. КАРМЕНЯН, Ю. С. ЧИЛИНГАРЯН

Экспериментально исследованы нелинейные эффекты в нестационарном режиме в средах, поляризация которых квадратична (генерация второй гармоники—ГВГ) и кубична (вынужденное комбинационное рассеяние—ВКР) по полю возбуждающего излучения.

Определен вклад эффектов группового запаздывания в развитие ВКР в кальците и ГВГ в йодате лития. Выполнено сравнение с теорией ГВГ в нестационарном режиме.

1. В в е д е н и е

Хорошо известно, что нестационарность нелинейных эффектов может быть связана с неквазистатичностью отклика нелинейной среды как целого при временах релаксации нелинейности, меньших длительности возбуждающего импульса, $\tau_{\text{рел}} < \tau_{\text{н}}$ (что может иметь место при ГВГ), и с неквазистатичностью локального нелинейного отклика (при $\tau_{\text{рел}} > \tau_{\text{н}}$ — в случае ВКР).

В обоих случаях неквазистатичность отклика нелинейной среды как целого, т. е. когда эффект в данной точке и в данный момент времени зависит от значений возбуждающего поля в предшествующие моменты времени, играет большую роль. В этом случае неквазистатичность связана с групповым запаздыванием импульсов [1].

Нестационарные эффекты, связанные с групповым запаздыванием, существенно сказываются при длинах взаимодействия Z , превышающих некоторый параметр l_k , называемый квазистатической длиной,

$$l_k = \frac{\tau_{\text{н}}}{\gamma}, \text{ где } \gamma = \frac{1}{u_2} - \frac{1}{u_1}, \text{ } u_1 \text{ и } u_2 \text{ — групповые скорости волн в среде.}$$

Для волны, модулированной по амплитуде, спектр интенсивности второй гармоники в случае $Z > l_k$ описывается формулой [1]

$$I_{2\omega} \sim \frac{\sin^2[\gamma(2\omega - \Omega) - \Delta]Z/2}{\{\gamma(2\omega - \Omega) - \Delta\}^2}, \quad (1)$$

где ω — центральная частота, Ω — текущая частота,

$$\Delta = \frac{2\omega}{c} [n(\omega) - n(2\omega)] \text{ — фазовая расстройка.}$$

В случае квазистатического удвоения ширина спектра второй гармоники имеет порядок удвоенной ширины спектра основного излучения.

Из уравнения (1) следует, что при неквазистатическом преобразовании во вторую гармонику в спектре интенсивности последней по-

является структура, а именно, наблюдается ряд провалов интенсивности, отстоящих друг от друга на величину

$$\delta\Omega = \frac{2\pi}{Z\nu} \quad (2)$$

При этом максимум спектральной плотности гармоники достигается на частоте

$$\Omega_{\max} = 2\omega - \frac{\Delta}{\nu} \quad (3)$$

Из (3) видно, что изменяя фазовую расстройку Δ можно перестроить частоту генерации второй гармоники.

В случае вынужденного комбинационного рассеяния имеется локальная нестационарность, связанная с временем релаксации молекулярных колебаний, которая приводит к уменьшению коэффициента преобразования по сравнению со стационарным случаем. Наряду с этим эффекты группового запаздывания приводят к изменению спектральных характеристик [2].

Если длина взаимодействия $l_{вз} \ll l_k$, то стоксовый импульс распространяется синхронно с импульсом накачки. В этом случае из-за экспоненциальной зависимости интенсивности стоксового излучения от интенсивности основного излучения I_0 длительность стоксового импульса будет уменьшаться и его спектр будет соответственно уширяться. Когда $l_{вз} > l_k$, длительность стоксового импульса увеличится вследствие того, что импульс накачки и импульс стоксового излучения распространяются с различными групповыми скоростями. Это может привести к уменьшению ширины спектра ВКР.

2. Экспериментальная установка. Методика измерений

В наших экспериментах использовался лазер на стекле с неодимом, работающий в режиме синхронизации мод (в экспериментах по ГВГ), и его вторая гармоника (в экспериментах по ВКР). Схема экспериментальной установки приведена на рис. 1.

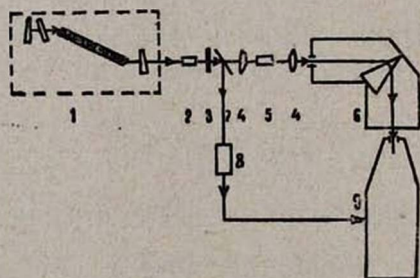


Рис. 1. Схема экспериментальной установки. 1. Оптический квантовый генератор на стекле с неодимом. 2. Плоскопараллельные стеклянные пластинки. 3. Кристалл КДР или LiIO_3 . 4. Светофильтр СЗС-21, обрезавший основное излучение. 5. Линза. 6. Кристалл CaCO_3 . 7. Спектрограф. 8. Фотозвонный регистратор ФЭР 2-1. 9. Коаксиальный фотозвон ФЭК-09 для запуска фотозвонного регистра.

Генератор давал серию импульсов, состоящую примерно из 20 пиков с промежутками между ними $T = \frac{2L}{c} = 8$ нсек, где L — длина резонатора, c — скорость света. Длительность импульсов излучения, измеренная с помощью фотоэлектронного регистратора ФЭР 2—1, не превышала времени разрешения прибора ($\approx 2 \cdot 10^{-11}$ сек). Оценка длительности импульса по спектральной ширине линии излучения дала величину $\tau_{\text{сп}} \sim 5 \cdot 10^{-13}$ сек (так как для полностью связанных мод $\tau_{\text{и}} \sim \frac{1}{\Delta \nu}$, где $\Delta \nu$ — ширина спектра генерации). Проведенные ранее измерения с помощью метода двухфотонной флуоресценции во встречных пучках дали типичную длительность импульсов $\tau_{\text{и}} \sim 1,5 \cdot 10^{-12}$ сек, что и было принято за основу. Энергия серии пиков измерялась калориметрическим измерителем энергии ИЭК—1 и составляла $W_{\text{и}} = 2,6$ дж.

Удвоение частоты неодимового лазера для экспериментов по ВКР производилось с помощью кристалла КДР длиной 2,5 см, потому что при этих длинах ГВГ в нем носит квазистатистический характер и спектр второй гармоники достаточно гладкий. Коэффициент преобразования во вторую гармонику $\frac{I_{2\omega}}{I_{\omega}} \approx 7,5\%$. Энергия второй гармоники составляла $W_{2\omega} = 0,19$ дж, что дает оценку для средней мощности порядка 10^9 вт. Основное излучение отфильтровывалось стеклом СЗС—21. Спектр второй гармоники после фильтрации регистрировался спектрографом ИСП—51 (с линейной дисперсией в области $\lambda = 0,5$ мк — 21 Å/мм) и одновременно контролировался спектр основного излучения на спектрографе ДФС—13 (с линейной дисперсией 4 Å/мм).

3. Генерация второй гармоники в нестационарном режиме

Вторая гармоника возбуждалась в кристаллах KN_2PO_4 (КДР) и LiIO_3 , вырезанных под углом синхронизма для преобразования типа $0 + 0 \rightarrow e$, при котором показатель преломления необыкновенной волны второй гармоники ($\lambda = 0,53$ мк) равен показателю преломления волны основного излучения ($\lambda = 1,06$ мк). Эти углы составляют 41° [3] и 30° [4] по отношению к оптической оси для КДР и LiIO_3 соответственно.

В экспериментах по ГВГ использовались кристаллы КДР длиной 3, 10 и 30 мм и кристаллы LiIO_3 длиной 3 и 4,2 мм. Вычисления квазистатистической длины по дисперсионным кривым при $\tau_{\text{и}} \approx 10^{-12}$ сек дали значения: для КДР $l_k \approx 50$ мм, т. е. ГВГ носит квазистатистический характер, $Z < l_k$; для LiIO_3 $l_k = 2, 3$ мм, т. е. $Z > l_k$. Ширина спектра основного излучения, определенная на уровне $0,1 I_{\text{max}}$, составляла ≈ 110 см $^{-1}$, а огибающая возбуждающего излучения была достаточно гладкой. Эксперименты по ГВГ в кристалле КДР показали,

что процесс генерации второй гармоники носит квазистатический характер для всех использованных в этом случае образцов (т. е. при длине кристалла Z от 3 до 30 мм, см. рис. 2).

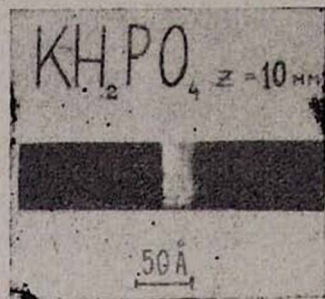


Рис. 2. Спектр второй гармоники ($\lambda = 0,53 \text{ мк}$) в КДР.

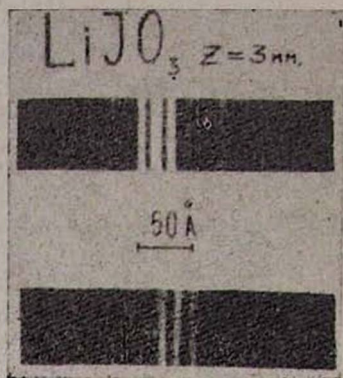


Рис. 3. Спектр второй гармоники в кристалле LiIO_3 .

При генерации второй гармоники в кристаллах LiIO_3 длиной $Z = 3 \text{ мм}$ спектр состоял из четко разделенных полос с расстоянием между нулями $\delta\Omega = 53,4 \pm 0,7 \text{ см}^{-1}$. Ширина отдельной полосы на полувывсоте составляла $27 \pm 0,3 \text{ см}^{-1}$, т. е. была существенно уже ширины возбуждающего излучения, в соответствии с предсказаниями теории [1]. Число наблюдаемых полос обычно составляло 5–10 (см. рис. 3), однако в отдельных случаях с кристаллом длиной 4,2 мм это число достигало 20.

Это свидетельствует о том, что полный спектральный интервал превышает ширину спектра второй гармоники, определенную по ширине возбуждающей линии. Такое уширение может быть приписано четырехфотонному параметрическому взаимодействию. Кроме того, крыло линии может захватывать низшие частоты фононного спектра йодата лития, что должно приводить к усилению вблизи этих колебательных частот. В пользу этого механизма свидетельствует также появление второго максимума на частоте, близкой к колебательным частотам низших мод [5]. Теория предсказывает в спектре второй гармоники лишь одну полосу, максимум спектральной плотности которой существенно выше, чем у остальных, тогда как в полученных спектрах наблюдались две и больше полос с примерно одинаковыми интенсивностями максимумов. Это, по-видимому, можно объяснить насыщением ГВГ в центральных полосах, а также смещением максимумов спектральных плотностей отдельных пиков генератора.

Аналогичные результаты были получены с кристаллом LiIO_3 длиной 4,2 мм, однако расстояние между минимумами составляло $\delta\Omega = 36,4 \pm 0,5 \text{ см}^{-1}$.

Из формулы (2) видно, что произведение длины кристалла на расстояние между нулями должно оставаться постоянным, $Z \cdot \delta\Omega = \text{const}$, что подтверждается экспериментально в пределах ошибок измерений.

При изменении ориентации кристалла КДР относительно направления распространения света наблюдалось смещение максимума спектральной плотности второй гармоники, представленное на рис. 4. Зависимость максимума от ориентации в неявном виде определяется формулой (3). При отклонении кристалла КДР от направления точного синхронизма ширина второй гармоники возрастала; полученные значения позволяли определить γ по формуле (2), а затем вычислить Ω_{max} согласно (4). Эти значения показаны на рис. 4 кружочками и

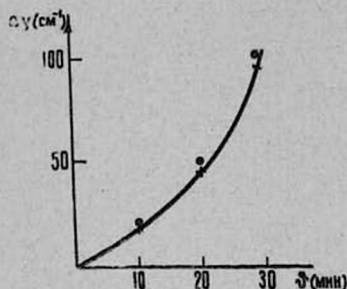


Рис. 4. Смещение максимума спектральной плотности второй гармоники в кристалле КДР длиной 25 мм в зависимости от ориентации; δ — отклонение от угла точного синхронизма; $\times$ — экспериментальные точки, $\circ$ — теоретические значения, вычисленные для этого случая по наблюдаемым ширинам максимума второй гармоники.

достаточно хорошо согласуются с непосредственными измерениями максимума спектральной плотности. Попытки наблюдения аналогичного смещения в кристаллах йодата лития не дали ощутимого результата. Измерения расстояния между минимумами в LiIO_3 позволили экспериментально определить групповую расстройку γ — параметр, весьма важный при нестационарной генерации второй гармоники. Экспериментально определенное нами значение γ составило $\frac{1}{16c}$. В случае

полностью синхронизированного излучения из формулы (2) и условия $l_k < \frac{\tau_u}{\gamma} < Z$ можно оценить верхнюю границу длительности импульса возбуждающего излучения

$$\tau_u < Z\gamma < \frac{2\pi}{\delta\Omega} \approx 8 \cdot 10^{-12} \text{ сек.} \quad (4)$$

4. Вклад эффектов группового запаздывания в вынужденное комбинационное рассеяние

Экспериментальное исследование вынужденного комбинационного рассеяния проводилось в кристалле CaCO_3 (кальцит), поляризация которого кубична по полю. Были получены спектральные и непосред-

ственные спектрально-временные характеристики ВКР при возбуждении второй гармоникой неодимового лазера ($\lambda = 0,53 \text{ мк}$). Выбор кальцита в качестве исследуемого кристалла обусловлен тем, что он имеет сравнительно большой коэффициент усиления ВКР на частоте полносимметричных колебаний перехода $1085,6 \text{ см}^{-1}$ [6] и большую анизотропию. Кроме того, хорошо известны его показатели преломления в широком интервале длин волн [7] и имеется ряд экспериментальных работ по ВКР в стационарном режиме [8].

При возбуждении ВКР в кальците основное и рассеянное излучения распространялись как обыкновенный луч. Длина кристалла варьировалась от 3 до 30 см путем помещения нескольких кристаллов в иммерсионную жидкость (в нашем случае — глицерин) для предотвращения паразитных отражений на плоскостях переходов среда—воздух (влияние прослоек на ВКР было несущественно, так как их толщина не превышала нескольких микрон). Возбуждающее излучение фокусировалось в кристаллах линзой с фокусным расстоянием $f = 192 \text{ мм}$. Спектр ВКР в кальците представлен на рис. 5. Из сравнения ширин ВКР видно, что линии ВКР в кальците уже линии возбуждающего излучения, тогда как спектр ВКР в бензоле (рис. 6), снятый для контроля, показывает явное уширение компонент (см. также [9]).

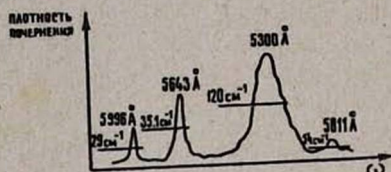


Рис. 5. Спектрограмма ВКР в кристалле CaCO_3 длиной 5 см при возбуждении второй гармоникой.

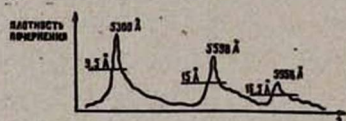


Рис. 6. Спектрограмма ВКР в бензоле при возбуждении второй гармоникой ($\lambda = 0,53 \text{ мк}$).

Непосредственная экспериментальная проверка показала наличие группового запаздывания и в этом случае. Временные изменения, зафиксированные с помощью фотоэлектронного регистратора, подтвердили существенность эффектов группового запаздывания в случае ВКР при пикосекундной накачке, связанную с большой мощностью возбуждающего излучения. Однако, эффекты находятся вблизи предела разрешения применяемой аппаратуры и поэтому можно проводить лишь качественные исследования поведения ВКР при данных длительностях импульсов.

На рис. 7 показан вид спектра ВКР на экране электронного фоторегистратора. Отчетливо видно наличие двух стоксовых компонент. При исследовании временных характеристик ВКР применялся спектрограф ИСП—51 с короткофокусной камерой $f = 270 \text{ мм}$. Непосредственные временные измерения показали отставание излучения накачки, что должно приводить к сужению спектра ВКР вследствие эффекта группового запаздывания.

Можно заметить, что первая и вторая стоксовые компоненты следуют с опережением относительно излучения второй гармоники. Однако расчеты по дисперсионной кривой кальцита при длине кристалла

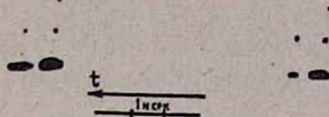


Рис. 7. Временная развертка спектра ВКР при возбуждении второй гармоникой ($\lambda = 0,53$ мк); длина кристалла кальцита — 10 см.

10 см для данного случая дали ожидаемое опережение порядка $3 \cdot 10^{-13}$ сек, тогда как из развертки видно, что оно составляет примерно $5 \cdot 10^{-11}$ сек, а это означает, что волна второй гармоники изменяет показатель преломления среды подобно тому, как это имеет место при обычной самофокусировке. В условиях нашего эксперимента напряженность поля была $E \approx 7 \cdot 10^6$ в/см. При таких напряженностях становится существенным влияние поля на отдельные молекулы, приводящее к искажению их конфигурации (дисторсия молекул [11]), а следовательно, к изменению показателя преломления. Кроме того, возрастает сечение эффектов многофотонного поглощения, также могущих приводить к изменению показателя преломления.

Удлинение импульсов второй гармоники при ВКР, которое видно из рис. 7, может быть обусловлено рядом причин: обратным воздействием излучения ВКР на возбуждающее излучение, неоднородностью показателя преломления на данной частоте по сечению пучка, групповым запаздыванием в течение импульса, обусловленным изменением показателя преломления в зависимости от интенсивности, и т. д. Точный учет вклада каждого из возможных механизмов в настоящее время весьма затруднителен.

Ереванский государственный университет,
Институт физических исследований
АН АрмССР

Поступила 20.VIII.1972

Л И Т Е Р А Т У Р А

1. С. А. Ахманов, А. П. Сухоруков, А. С. Чиркин. ЖЭТФ, 55, 1430 (1968).
2. С. А. Ахманов, К. Н. Драбович, А. П. Сухоруков, А. С. Чиркин. Тезисы докладов IV Всесоюзного симпозиума по нелинейной оптике, Киев, 1968.
3. С. А. Ахманов, Р. В. Хохлов. Проблемы нелинейной оптики, Изд. АН СССР, 1964.
4. U. Deserno, G. Nath. Phys. Lett., 30, 8 (1969).
5. W. Otaguro, E. Wiener-Avnear, C. A. Arguello, S. P. S. Porto. Phys. Rev., B4, 4542 (1971).
6. G. Eckhart, D. Bortfeld, M. Geller. Appl. Phys. Lett., 3, 137 (1963).
7. T. W. Gifford. Proc. Roy. Soc., A70, 329 (1962); Оптические материалы, применяемые в инфракрасной технике, Изд. Наука, М., 1965.
8. В. Н. Луговой. Введение в теорию ВКР, Изд. Наука, М., 1968 (см. также имеющийся там список литературы).

9. М. А. Большов, Ю. Д. Голяев, В. С. Днепровский, И. И. Нурминский. ЖЭТФ, 57, 346 (1969).
10. Г. А. Аскарьян. ЖЭТФ, 42, 1567 (1962).
11. R. G. Brewer, A. D. McLean. Phys. Rev. Lett., 11, 271 (1968).

ՈՉԳԵՄԱՅԻՆ ՕՊՏԻԿԱԿԱՆ ԷՖԵԿՏՆԵՐ ՊԻԿՈՎԱՐԿՅԱՆԱՆ ԳՐԳՌՄԱՆ ԴԵՊՓՈՒՄ

Ռ. Ն. ԳՅՈՒԶԱԼՅԱՆ, Կ. Վ. ԿԱՐՄԵՆՅԱՆ, ՏՈՒ. Ս. ՉԻԼԻՆԳԱՐՅԱՆ

Կատարված է ոչգծային էֆեկտների էքսպերիմենտալ հետազոտում ոչ ստացիոնար ռեժիմում ալիպիսի միջավայրերում, որոնց բեննացումը ըստ գրգռող դաշտի քառակուսային է (երկրորդ հարմոնիկի գրգռում) և խորանարդային է (ստիպոդական կոմբինացիոն ցրում)։ Որոշված է խմբային ուշացման ազդեցությունը կալցիտում ստիպոդական կոմբինացիոն ցրման առաջացման պրոցեսում և լիթիումի յոդատում երկրորդ հարմոնիկի առաջացման պրոցեսում։ Կատարված է էքսպերիմենտալ և տեսական արդյունքների համեմատություն։

NONLINEAR OPTICAL EFFECTS FOR PICOSECOND PUMPING

R. N. GYUZALIAN, K. W. KARMENIAN, Yu. S. CHILINGARIAN

Experimental investigations of nonstationary nonlinear effects in media, the polarizations of which are quadratic (second harmonic generation SHG) and cubic (stimulated Raman scattering SRS) powers of stimulating radiation field are presented. The contribution of the group retardation effects to SRS in calcite and to SHG in lithium iodate are determined. Experimental results are compared with theoretical estimations for nonstationary SHG.