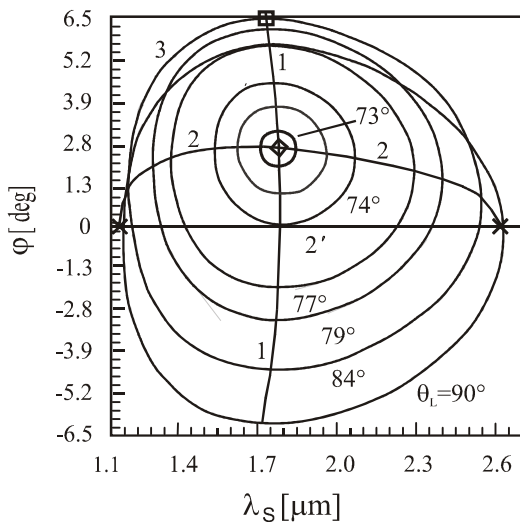


КОНЦЕПЦИЯ ВЕКТОРНЫХ ГРУППОВЫХ И КРАТНО НЕКРИТИЧНЫХ ФАЗОВЫХ СИНХРОНИЗМОВ ДЛЯ ПРОЦЕССОВ ПРЕОБРАЗОВАНИЯ ЧАСТОТЫ ИЗЛУЧЕНИЯ В НЕЛИНЕЙНЫХ КРИСТАЛЛАХ

Корниенко Н.Е., Задорожный В.И., Кутовой С.Ю., Сиденко Т.С.
Киевский национальный университет имени Тараса Шевченко,
03680, Киев, проспект Глушкова, 2, физический факультет
sidenko@univ.kiev.ua

Развитая нами концепция векторных групповых и кратно некритичных по частотам и углам фазовых синхронизмов (ФС) имеет важное значение в квантовой электронике, в частности, при генерации суммарных и разностных частот $\omega_R = \omega_L \pm \omega_S$ [1,2], в колебательной спектроскопии обертонов и составных тонов, а также при анализе процессов релаксации энергии в конденсированных средах с коллективным характером элементарных возбуждений. Широкополосные по частотам и углам (расходимостям) взаимодействующих волн ФС перспективны для создания новых эффективных источников перестраиваемого когерентного излучения, а также визуализации широких ИК спектров и немонохроматических изображений ИК и УФ диапазонов. Проблема широкополосности преобразования существенна также при работе с пико- и фемтосекундными лазерными импульсами, а также для изучения быстропротекающих процессов.



В докладе обобщаются результаты систематических исследований групповых и кратно некритичных ФС для трехфотонных нелинейных взаимодействий в одноосных и двухосных кристаллах. Изучены процессы генерации суммарных и разностных частот в наиболее часто используемых одноосных (KDP, LiJO₃, LiNbO₃, AgGaS₂, HgGaS₂, AgAsS₃, CdSe) и двухосных (КТР, LBO, RTA, KNbO₃) нелинейных кристаллах. Изучены все типы взаимодействия в различных кристаллографических плоскостях при всех возможных направлениях распространения волн. Подход основан на рассмотрении общих свойств

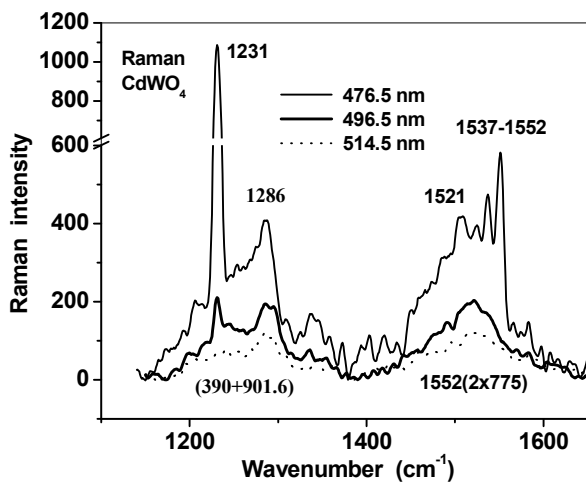
поверхности ФС, построенной в координатах частот и углов, и анализе ее особых линий и точек. Проведено строгое аналитическое рассмотрение условий некритичности в окрестности особых линий и точек в сочетании с численным анализом топологии поверхности ФС для конкретных кристаллов. Общий вид поверхности ФС для процесса генерации суммарной частоты в плоскости ZX кристалла КТР при взаимодействии типа ое-о и $\lambda_L = 1.064$ мкм показан на рис.1. Здесь ϕ – угол между направлениями распространения взаимодействующих волн $\omega_{L,S}$. Установлено, что широкополосные и широкоугловые ФС реализуются вдоль особых линий поверхности ФС. Наибольший интерес представляет линия векторного группового синхронизма (1), на которой достигается широкополосное преобразование по ИК сигналу. В анизотропных кристаллических средах векторный групповой синхронизм реализуется при равенстве проекций групповых скоростей сигнального и результирующего излучений $V_{S,R}$ на направление волны сигнала ω_S . При этом происходит компенсация расстройки групповых скоростей в направлении распространения

сигнала за счет векторной геометрии взаимодействия и анизотропии кристалла. Таким образом, в научном плане проблема сводится к оптимальному сочетанию дисперсии и анизотропии среды для целей нелинейно-оптического преобразования частоты излучения. Спектральная ширина группового ФС для большинства кристаллов при их толщине ~ 1 см изменяется в пределах $200-1000 \text{ см}^{-1}$. При согласовании не только групповых скоростей, но и их производных по частоте, реализуется сверхширокополосное (шириной более 10^4 см^{-1}) преобразование излучения.

Существуют также линии касательных ФС по сигналу (2) и по накачке (2'), вдоль которых достигаются значительные угловые апертуры для волн ω_S и ω_L , а также линия условного ФС (3), где возможны значительные согласованные изменения углов $\theta_{L,S}$ при выполнении условия $\theta_S - \theta_L = \varphi = \text{const}$. В случае фиксированной длины волны лазерной накачки условия векторного группового синхронизма могут сканироваться по частоте ИК сигнала в некотором интервале $\Delta\lambda_S$ при изменении геометрии взаимодействия. При этом ширина области частотной перестройки $\Delta\lambda_S$ возрастает с увеличением длины волны накачки λ_L и в некоторых случаях может перекрывать значительную часть области прозрачности кристаллов. В точках пересечения особых линий поверхности ФС достигается двукратная некритичность ФС по частотам и углам. Предложена классификация областей двукратной некритичности (по частоте и одному из углов или по двум углам): групповой центр (ГЦ), касательный центр (КЦ) и условный центр (УЦ). Наиболее оптимальные условия для визуализации ИК излучений достигаются в ГЦ. В этом случае при равенстве векторов групповых скоростей $V_S=V_R$ одновременно с широкополосностью ФС реализуется касательный ФС с большой угловой апертурой. В КЦ реализуется двойной касательный синхронизм для накачки и сигнала при коллинеарном взаимодействии волн для минимальной и максимально допустимых длин волн λ_S (рис.1). В окрестности пересечения линии условных ФС с линией векторного группового синхронизма в области максимальных значений угла φ (УЦ) возможно преобразование «цветных» изображений при использовании цилиндрической фокусировки излучений. Приведенная систематизация особых линий и точек поверхности ФС позволяет целенаправленно проводить их экспериментальный поиск.

Существенно, что область ГЦ, т.е. двукратной некритичности по частоте и расходимости ИК сигнала может сканироваться по всей области прозрачности нелинейных кристаллов при перестройке частоты длинноволновой лазерной накачки. Рассмотрена перестройка ГЦ в двухосных кристаллах при переходе от плоскости XZ к YZ. Проведено сравнение кристаллов со слабой (КТР, РТА) и более сильной (LBO) анизотропией в плоскости XY. С использованием рассмотренных одноосных кристаллов LiIO_3 , AgGaS_2 , HgGa_2S_4 , CdSe и др., а также двухосных кристаллов КТР, РТА, LBO возможна реализация ГЦ в области $0,8-18 \text{ мкм}$. Как показали численные расчеты, поверхность ФС уменьшается в размерах при уменьшении λ_L и в пределе ($\lambda_L \rightarrow 0,999 \text{ нм}$, $\lambda_S \rightarrow 1,813 \text{ нм}$) стягивается в точку ($\theta_L=90^\circ$, $\varphi=0$), за которой условия ФС не выполняются ($k_L+k_S < k_R$). Окрестность этой точки соответствует тройному некритичному ФС по ω_S и двум углам θ_L и φ . Использование других кристаллов позволяет расширить область существования трехкратных некритичных ФС.

Впервые экспериментально обнаружено, что векторные некритичные ФС проявляются в колебательной спектроскопии обертонов и составных тонов. В частности, в КР спектрах кристалла CdWO_4 обнаружено возникновение резких по интенсивности пиков 1231 и $1521, 1537, 1552 \text{ см}^{-1}$ в областях суммарного тона колебательных мод 390 и $901,6 \text{ см}^{-1}$, а также обертона $2 \times 775 \text{ см}^{-1}$ при перестройке длины волны лазерного возбуждения $514,5 \rightarrow 496,5 \rightarrow 476,5 \text{ нм}$, что показано на рис.2. Пик 1231 см^{-1} возникает при $496,5 \text{ нм}$, а пики в области обертона $1400-1600 \text{ см}^{-1}$ – при $476,5 \text{ нм}$. Как было показано выше, линии двойной некритичности (ГЦ) возникают в критических точках при изменении длины волны лазерного



излучения λ_L . Таким образом, максимумы в колебательных спектрах 2-го порядка могут быть связаны не только с областями максимумов плотности колебательных состояний. Широко известные особые точки фонной зоны $\omega(k)$, в которых $\partial\omega/\partial k=0$, являются частным случаем ФС, некритичных только по волновым векторам фононов k_f . Наибольшие пики в спектрах 2-го и более высоких порядков возникают при реализации условий кратных некритичных ФС при согласованном изменении дисперсии фонных ветвей в произвольных областях зоны Бриллюэна, когда одновременно

достигается некритичность по k_f и частотам фононов ω_f . Благодаря этому новый пик 1231 см^{-1} в спектре КР примерно в 3 раза выше, чем максимум 1286 см^{-1} , связанный с плотностью колебательных состояний. Однако последний случай однократной некритичности реализуется чаще, чем более интенсивные пики, соответствующие двойной некритичности в ГЦ. ИК спектры второго порядка образуются в результате взаимодействия фотона с двумя фононами и для их анализа применимо проведенное ранее рассмотрение. КР спектры 2-го порядка возникают в результате актов рассеяния лазерных фотонов с участием двух фононов и рождением стоксовых фотонов. При фиксированных направлениях распространения (в обычной 90° геометрии эксперимента) и частотах световых излучений заданными являются суммы частот и волновых векторов двух фононов, принимающих участие в процессе рассеяния. Однако эти суммарные величины получаются в результате комбинации всех возможных значений $\omega_{f1,2}$ и $k_{f1,2}$. Следовательно и в случае КР проблема сводится к уже рассмотренной задаче трехчастотных взаимодействий.

Использование концепции некритичных ФС является перспективным для следующих направлений: 1) для преобразования широкополосных спектров и изображений из невидимых диапазонов в видимую или ближнюю ИК области, где разработаны многоканальные CCD-приемники с высоким пространственным разрешением; 2) для создания новых источников когерентного излучения, в том числе фемтосекундной длительности, причем при генерации разностной частоты можно получать узкополосное излучение при использовании относительно широкополосной накачки (концентраторы излучений); 3) некритичные ФС важны для объяснения колебательных спектров второго и более высоких порядков и уточнения хода дисперсионных фонных ветвей в средней части зоны Бриллюэна; 4) кратные некритичные ФС имеют важное значение для изучения путей релаксации энергии в неравновесных системах, в частности, в живых организмах; 5) развиваемая в работе концепция может быть использована для создания нелинейных моделей фазовых переходов 2-го рода, поскольку по поведению многих параметров окрестность критической точки нелинейного взаимодействия аналогична критической точке фазового перехода жидкость-пар.

1. S.G. Dolinichuk, N.E. Kornienko, V.I. Zadorozhnii. Noncritical vectorial phase matchings in nonlinear optics of crystals and infrared up-conversion, *Infrared Physics. Technol.*, 1994, **35**, №.7, pp.881-895.
2. V.I. Zadorozhnii, N.E. Kornienko, T.S. Sidenko. Broadband tunable and multiple noncritical phase matchings in LBO crystal. *Functional materials* v.12, N1, 2005, p.91-97.