

НЕЛИНЕЙНЫЕ ОПТИЧЕСКИЕ ЭФФЕКТЫ ЧЕТВЕРТОГО ПОРЯДКА ПО ПОЛЮ В КРИСТАЛЛЕ ФОРМИАТА ЛИТИЯ

С.А.Ахманов, А.Н.Дубовик, С.М.Салтиел,

И.В.Томов, В.Г.Тункин.

Путем измерения относительных мощностей четвертой гармоники, генерируемой в различных направлениях в кристалле формиата лития, измерена величина эффективной нелинейности четвертого порядка. Особое внимание уделено влиянию каскадных процессов на генерацию четвертой гармоники.

1. Предметом настоящей статьи является изложение результатов экспериментальной работы, в которой впервые были зарегистрированы нелинейные оптические эффекты четвертого порядка по полю в кристаллах. В кристалле формиата лития (LFM) нами был получен синхронный процесс генерации четвертой гармоники, связанный с нелинейной поляризацией вида $P_{нл} = \chi^{(4)} E^4$. Определена эффективная величина нелинейной восприимчивости четвертого порядка; она оказалась равной $\chi_{эфф}^{(4)} = 2,8 \cdot 10^4 [d_{32}]^3$; для LFM $d_{32} = 2,8 \cdot 10^{-9}$ CGSE, это дает $\chi_{эфф}^{(4)} = 0,6 \cdot 10^{-21}$ CGSE.

2. Экспериментальное исследование оптических нелинейностей высших порядков, наряду с принципиальным интересом (в последнее время эти работы стимулируются успехами теории нелинейной поляризуемости) приобрели и практический интерес: в мощных полях пикосекундных импульсов эти нелинейности могут быть использованы для генерации высоких гармоник [1].

Опубликованные к настоящему времени экспериментальные данные по нерезонансным нелинейностям не выходя за рамки определения

нелинейной поляризации $P_{\text{нл}} = \chi^{(3)} E^3$ и соответствующей восприимчивости $\chi^{(3)}$. При этом корректное определение $\chi^{(3)}$ в нецентросимметричных кристаллах не может быть проведено без учета конкуренции со стороны каскадных процессов; внимание на это важное обстоятельство было обращено лишь в самое последнее время [2, 3]. Естественно, что для процессов высоких порядков проблема конкуренции со стороны каскадных процессов, возникающих на низших нелинейностях становится еще более острой. Обсуждение и экспериментальное исследование этой проблемы в случае генерации четвертой гармоники в кристалле LFM — один из главных аспектов настоящей работы.

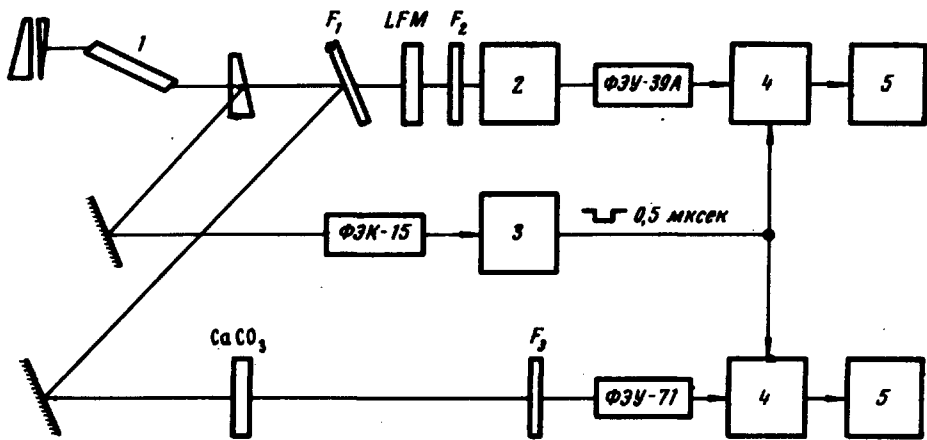


Рис. 1. Блок-схема экспериментальной установки: 1 — пикосекундный лазер на неодимовом стекле, 2 — монохроматор, 3 — формирователь строба, 4 — амплитудно-временной преобразователь, 5 — счетчик, F_1, F_2, F_3 — фильтры

3. В кристаллах без центра инверсии, к которым принадлежит LFM, нелинейная поляризация с точностью до членов четвертого порядка по полю записывается в виде:

$$P_{\text{нл}} = \chi^{(2)} E^2 + \chi^{(3)} E^3 + \chi^{(4)} E^4.$$

Генерация четвертой гармоники, в том числе и синхронная генерация, может быть обусловлена как прямым процессом на нелинейности $\chi^{(4)}$, так и различными каскадными процессами на нелинейностях $\chi^{(2)}$ и $\chi^{(3)}$. Поскольку каскадные процессы оказываются синхронными в направлении синхронизма $4k_1 = k_4$ фактически в этом направлении измеряется эффективная восприимчивость

$$\begin{aligned} \chi_{\text{эфф}}^{(4)} = & \chi^{(4)} + \alpha_1 \chi_{\omega + \omega + \omega}^{(3)} + \alpha_2 \chi_{\omega + \omega}^{(2)} \chi_{2\omega + \omega + \omega}^{(3)} + \\ & + \alpha_3 [\chi_{\omega + \omega}^{(2)}]^2 \chi_{2\omega + 2\omega}^{(2)}. \end{aligned} \quad (1)$$

Константы $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$ определяются ориентацией кристалла и показателями преломления для взаимодействующих волн [4].

Кроме направления $4k_1 = k_4$ имеется еще несколько направлений синхронной генерации четвертой гармоники, соответствующих чисто каскадным процессам, в том числе: $2k_2 = k_4$, $k_1 + k_3 = k_4$, $2k_1 + k_2 = k_4$. Измерение относительных мощностей четвертой гармоники, генерируемой в различных синхронных направлениях, позволяет выразить $\chi_{\text{эфф}}^{(4)}$ через низшие нелинейности и, кроме того, если известны знаки различных членов в выражении (1) определить $\chi^{(4)}$.

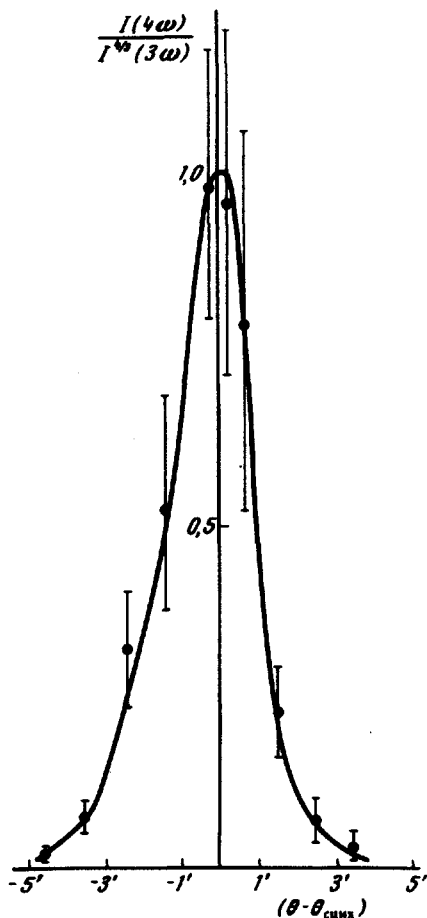


Рис. 2. Угловая зависимость интенсивности четвертой гармоники, генерируемой вблизи направления синхронного взаимодействия $4k_1 = k_4$

4. Блок-схема экспериментальной установки представлена на рис. 1. Основными элементами ее являются генератор пикосекундных импульсов на стекле с Nd^{3+} , работающий в режиме генерации нулевой поперечной моды, и чувствительная система регистрации. Для отсекаания шумов ФЭУ, использовалось стробирование амплитудно-временного преобразователя, длительность строба 0,5 мксек. С целью уменьшения влияния нестабильности параметров импульсов накачки использовался эталонный канал, в котором регистрировалась третья гармоника, возбуждаемая в кристалле кальцита. Кристаллы LFM имели длину 5 мж. Излучение лазера распространялось в плоскости XZ кристаллов.

На рис. 2 приведена угловая зависимость интенсивности четвертой гармоники вблизи направления $4k_1 = k_4$. Экспериментальная ширина синхронизма составляла 2,5°.

Для определения $\chi_{\text{эфф}}^{(4)}$ сравнивались сигналы четвертой гармоники в направлениях синхронизмов a и z (рис. 3). Угол между вектором E и осью Y составлял при этом 45° . Экспериментально было получено, что $\chi_{\text{эфф}}^{(4)} = [2,8 \pm 0,7] \cdot 10^4 d_{32}^3$. $\chi_{\text{эфф}}^{(4)}$ определяется, исходя из следующего равенства: $P(4\omega) = \chi_{\text{эфф}}^{(4)}(4\omega, \omega, \omega, \omega)E^4_y(\omega)$; поле E определялось так же, как и в работе [5].

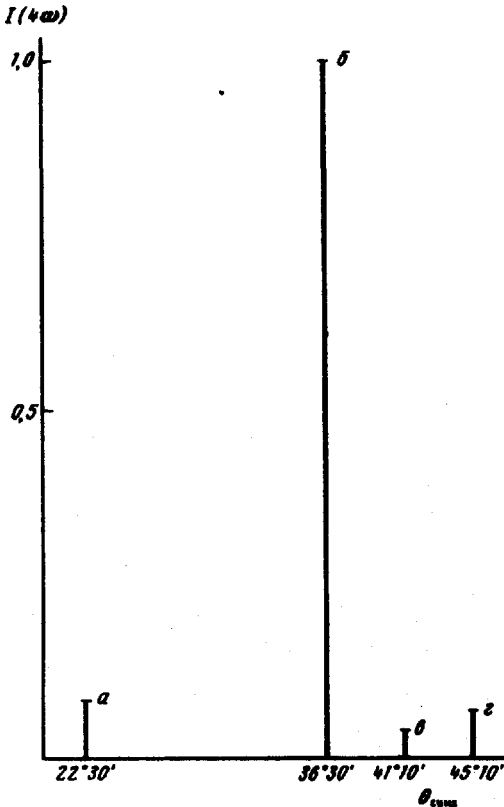


Рис. 3. Относительные интенсивности четвертой гармоники, генерируемой в кристалле LFM для разных синхронных взаимодействий: $a - 2k_1 + k_2 = k_4$; $b - 4k_1 = k_4$; $v - 2k_2 = k_4$; $z - k_1 + k_3 = k_4$

Если воспользоваться величиной компоненты d_{32} для LFM, приведенной в [6], то получим $\chi_{\text{эфф}}^{(4)} = (0,6 \pm 0,3) \cdot 10^{-21} \text{ CGSE}$.

Для оценки вклада каскадных членов в выражении (1) для $\chi_{\text{эфф}}^{(4)}$ сравнивались интенсивности четвертой гармоники в направлениях a , b , v (рис. 3). В этих измерениях излучение лазера было поляризовано параллельно оси Y . Отсутствие информации о знаках компонент $\chi^{(3)}$, входящих в $\chi_{\text{эфф}}^{(4)}$ вносит неопределенность в оценку величины компоненты $\chi_{zyyy}^{(4)}$, ответственной за генерацию четвертой гармоники на нелинейности $\chi^{(4)}$ при данной ориентации кристалла. На основе полученных данных можно сказать, что величина $\chi_{zyyy}^{(4)}$ заключена в пределах $0,2 + 2 \cdot 10^{-21} \text{ CGSE}$.

5. Проблема отделения прямого процесса от каскадных существенно упрощается при генерации пятой гармоники в кристаллах с центром инверсии. В кристалле CaCO_3 возможно получение прямой генерации синхронной пятой гармоники неодимового лазера; единственным конкурирующим процессом при этом является каскадный процесс на кубической нелинейности.

6. Полученные результаты характеризуют в первую очередь величину нелинейности четвертого порядка в LFM. Если интересоваться поляризациями высших порядков для генерации высоких оптических гармоник, следует стремиться к увеличению $\chi_{\text{эфф}}^{(n)}$. При этом следует учитывать возможность интерференции каскадных и прямых процессов.

Авторы выражают искреннюю благодарность Л.Н.Рашковичу за предоставление кристалла LFM, В.Мартынову и Е.Яковлеву за помощь в измерениях.

Московский государственный университет
им. М.В.Ломоносова
Софийский университет

Поступила в редакцию
5 июля 1974 г.

Литература

- [1] S.Harris. Phys. Rev. Lett., 31, 341, 1973.
 - [2] E.Yablonovitch, C.Flytzanis, N.Bloembergen. Phys. Rev. Lett., 29, 865, 1972.
 - [3] J.P.Herrmann. Optics Commun., 9, 74, 1973.
 - [4] С.А.Ахманов, А.И.Дубовик, С.А.Магницкий, С.М.Солтиел, И.В.Томов, В.Г.Тункин. "Прямые и каскадные процессы при генерации оптических гармоник". VII Всесоюзная конференция по когерентной и нелинейной оптике, Ташкент, май, 1974, изд. МГУ, тезисы, стр. 15.
 - [5] G.D.Boyd, D.A.Kleinman. J.Appl. Phys., 39, 3597, 1968.
 - [6] I.Singh. Appl. Phys. Lett., 17, 292, 1970.
-