

ОПТИКА И СПЕКТРОСКОПИЯ

УДК 535-14

DOI: 10.17223/00213411/64/7/157

*Д.М. ЕЖОВ¹, Д.М. ЛУБЕНКО², Ю.М. АНДРЕЕВ^{1,3}***УМНОЖЕНИЕ ЧАСТОТЫ ТГц-ИЗЛУЧЕНИЯ В НЕЛИНЕЙНЫХ КРИСТАЛЛАХ
БОРАТОВ ***

Использование оксидных нелинейных кристаллов для генерации и преобразования излучения в ТГц-диапазоне спектра методами нелинейной кристаллооптики – новое перспективное направление, которое активно развивается в последние годы. Впервые рассмотрена возможность эффективного удвоения миллиметрового излучения в диапазоне 400–2500 мкм в боратных кристаллах. Рассчитаны углы фазового синхронизма. Показано, что для кристаллов LN и β -BBO возможна реализация $o + o \rightarrow e$ - и $e + o \rightarrow e$ -взаимодействия, а для LB4 – только $o + o \rightarrow e$. Рассчитан угол сноса, спектральные и угловые ширины синхронизма. Дана оценка максимальной эффективности генерации второй гармоники с учетом измеренного порога оптического разрушения 150 ТВт/см² для кристалла LB4 и 100 ТВт/см² для β -BBO, которая показывает преимущества использования оксидных кристаллов в ТГц-диапазоне спектра.

Ключевые слова: генерация второй гармоники, терагерцовое излучение, нелинейные кристаллы, тетраборат лития $Li_2B_4O_7$, бета-борат бария, ниобат лития, триборат лития.

Введение

Эффективные источники терагерцового (ТГц) излучения, перекрывающие широкие спектральные участки, представляют большой практический интерес, в частности для создания лидарных трассовых и дистанционных систем мониторинга состава и состояния атмосферы. Высокая проникающая способность ТГц-излучения в непрозрачные и необходимые среды позволяет разработать системы лидарного типа для обнаружения и характеристики свойств скрытых в различных средах объектов, наличия дефектов, неоднородностей состава и температуры [1].

ТГц-излучение может быть получено традиционными методами нелинейной кристаллооптики: генерацией разностных частот лазеров от видимого до среднего ИК-диапазонов. К сожалению, высоконелинейные полупроводниковые кристаллы имеют низкие механические и тепловые свойства, а также лучевую стойкость. Кроме того, они характеризуются относительно большими, от сотых до десятых долей см⁻¹, оптическими потерями на длинах волн накачки и особенно ТГц-излучения [2], что ограничивает выходные и эксплуатационные характеристики. Такое положение делает актуальным поиск новых нелинейных кристаллов и схем реализации надежных генераторов мощного ТГц-излучения.

К настоящему времени освоено производство качественных большеразмерных, диаметром до 100–200 мм, образцов оксидных нелинейных кристаллов из химических элементов с малым атомным весом [3]. Обычно такие кристаллы имеют низкие нелинейные коэффициенты и обладают сложной структурой элементарных ячеек, состоящих из многих десятков атомов [4]. Это привело к изначально низкому интересу исследователей к их применению в ТГц-области спектра (первые работы появились лишь около 10 лет назад). На сегодняшний день в научной литературе опубликовано ограниченное число работ по свойствам и применению для генерации ТГц-излучения оксидных кристаллов. Вместе с тем благодаря большей (вплоть до нескольких порядков) лучевой стойкости по сравнению с известными полупроводниковыми ($ZnGeP_2$, GaSe и др.) оксидные кристаллы имеют значительный потенциал использования для преобразования видимого и ИК-излучения в ТГц-диапазон.

Получение корректных данных о лучевой стойкости кристаллов – достаточно сложная задача. Поэтому количество таких данных крайне ограничено, а разброс значений составляет десятки раз. Так, для 10 нс импульсов накачки кристалла тетрабората лития $Li_2B_4O_7$ (LB4) она определена как равная 1 [5] и 40 ГВт/см² [6], а для кристалла бета-бората бария β -BaB₂O₄ (β -BBO) – как >1 ТВт/см² для 100 фс импульсов накачки [7]. Для кристалла трибората лития LiB_3O_5 (LBO) при субфемтосекундной накачке приводятся данные от 0.3 до 47 ТВт/см² [8].

* Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 20-32-90106.

Другой известный вариант получения излучения ТГц-области спектра – использование хорошо отработанных в техническом плане электронных источников длинноволнового, от миллиметровых волн и выше, излучения. Однако простая минимизация геометрических размеров резонаторов электронных источников приводит в итоге к радикальному падению выходных энергетических характеристик и/или неконтролируемой многомодовости получаемого выходного излучения. Энергетические характеристики становятся низкими, спектральный состав излучения сложным, а сами источники непригодными для решения многих прикладных задач. Таким образом, поиск путей создания эффективных и мощных источников ТГц-излучения остается актуальной задачей нелинейной оптики.

В данной работе показана возможность получения эффективной генерации ТГц-излучения путем умножения частоты (ап-конверсии) электронных источников миллиметрового излучения при помощи нелинейных боратных кристаллов LB4, β -BBO, LBO, отличающихся высокой лучевой стойкостью. Приведено сравнение с применяющимся для ТГц-генерации [9] кристаллом ниобата лития LiNbO_3 (LN).

Физические свойства оксидных кристаллов в ТГц-диапазоне

Основные известные оптические свойства из числа ответственных за эффективность преобразования частоты для исследуемых в работе боратных нелинейных кристаллов приведены в табл. 1. Кроме того, для сравнения в таблице даны свойства кристалла LN. Ниобат лития обладает радикально большими по сравнению с боратными кристаллами нелинейными коэффициентами, но это, скорее всего, указывает на существенно большие оптические потери, чем в легких оксидных кристаллах, и на необходимость их определения специальными методиками.

Таблица 1

Физические свойства кристаллов в ТГц-диапазоне

Кристалл	$\Delta\lambda_{\text{ТГц}}$, мкм	d_{ij} (ТГц), пм/В	α_{vis} , см^{-1}	$\alpha_{2\text{ мм}}$, см^{-1}	Порог разрушения, Вт/см ²
$\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ (LB4)	>600 (o) >400 (e) [10]	$d_{31} = 0.12$ [11]	<0.001 [2]	<0.01 [10]	$40 \cdot 10^9$ (10 нс) [11]
LiNbO_3 (LN)	>430 (o) >375 (e) [12]	$d_{22} = 2.46,$ $d_{31} = -4.64$ [2]	~ 0.002 [2]	~ 1 [12]	$\sim 0.3 \cdot 10^9$ (10 нс) [2] $3.7 \cdot 10^9$ (1 нс) [13] $40 \cdot 10^{12}$ (50 фс) [14]
β - BaB_2O_4 (β -BBO)	>400 (o) >250 (e) [15]	$d_{22} = 2.2$ $d_{31} = -0.4$ [16]	<0.001 [2]	<1 [15]	$13.5 \cdot 10^9$ (10 нс) [17] $25 \cdot 10^9$ (1 нс) [13] > 10^{12} (100 фс) [7]
LiB_3O_5 (LBO)	>500 (x) >350 (y) >150 (z) [18]	$d_{31} = 0.67$ $d_{32} = -0.85$ $d_{33} = -0.04$ [2]	0.00035 [2]	<0.01 [18]	$\sim 20 \cdot 10^9$ (10 нс) [18] $36 \cdot 10^9$ (1 нс) [13] $2.3 \cdot 10^{12}$ (700 фс) [19]

Примечание. $\Delta\lambda_{\text{ТГц}}$ – диапазон в ТГц-области спектра с коэффициентами поглощения $\alpha_i < 10 \text{ см}^{-1}$; α_{vis} , $\alpha_{2\text{ мм}}$ – минимальные значения коэффициентов поглощения в видимой и ТГц-области; d_{ij} (ТГц) – отличные от нуля коэффициенты нелинейности второго порядка для генерации второй гармоники (ГВГ) ТГц-излучения.

Отметим, что при переходе от рассмотрения нелинейных свойств в основном окне прозрачности к таковым в ТГц-диапазоне аналитические выражения для $d_{\text{эфф}}$ изменяются [20]. Более того, в ТГц-диапазоне в кристаллах может реализовываться фазовый синхронизм для взаимодействий $oo \rightarrow o$ - и $ee \rightarrow e$ -типов [21], тогда как в видимом диапазоне такие преобразования рассматриваются только с точки зрения для квазисинхронных взаимодействий. Поэтому расчет фазового синхронизма необходимо проводить для всех разрешенных по симметрии типов взаимодействий.

Экспериментальные результаты и их обсуждение

В ходе проведенных исследований измерены и уточнены дисперсионные уравнения для кристалла β -BBO. Установлено, что представленные нами ранее в работе [15] дисперсионные уравнения для ТГц-области при комнатной температуре опубликованы с ошибкой. Достоверный вид уравнений для диапазона $\lambda = 200\text{--}3000$ мкм имеет следующий вид:

$$n_o = 2.040 + \frac{0.816\lambda^2}{\lambda^2 - 12815},$$

$$n_o = 2.478 + \frac{0.160\lambda^2}{\lambda^2 - 15598}.$$

Для оценки максимальной возможной эффективности преобразования частоты сверхкоротких импульсов в данной работе переопределен порог оптического пробоя кристаллов LB4 и β -BBO. При накачке одиночными импульсами на длине волны 950 нм длительностью 60 фс пороги необратимого внутреннего разрушения составили не менее $1.5 \cdot 10^{14}$ и $\sim 10^{14}$ Вт/см² соответственно.

Расчет кривых синхронизма

Выбранные для рассмотрения нелинейные кристаллы LN и β -BBO относятся к кристаллам точечной группы симметрии $3m$. Расчет показал, что в ТГц-диапазоне условия фазового синхронизма в них могут быть выполнены для двух типов взаимодействия: $o + o \rightarrow e$ и $e + o \rightarrow e$. Кристалл LB4 принадлежит к точечной группе симметрии $4mm$. Для данной группы симметрии значение d_{eff} для взаимодействия $e + o \rightarrow e$ равно нулю [20]. Возможной является лишь реализация взаимодействия $o + o \rightarrow e$ -типа. Кристалл LBO относится к точечной группе симметрии $mm2$, т.е. является двуосным. Для него рассмотрены все возможные типы взаимодействий в главных плоскостях. С помощью уточненных дисперсионных уравнений для кристалла β -BBO и известных дисперсионных уравнений для других кристаллов [10, 12, 18] рассчитаны условия фазового синхронизма для ГВГ ТГц-излучения. Результаты моделирования приведены на рис. 1.

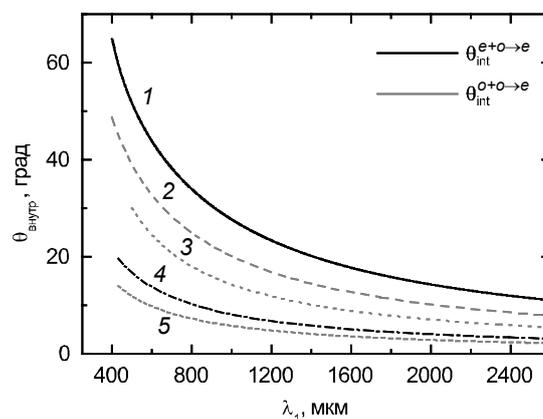


Рис. 1. Угол фазового синхронизма для ГВГ при комнатной температуре в кристаллах: кр. 1, 2 – β -BBO; кр. 3 – LB4; кр. 4, 5 – LN; черным обозначены кривые для $e + o \rightarrow e$ -взаимодействия, серым – для $o + o \rightarrow e$

Коротковолновый диапазон длин волн определялся краем полосы поглощения в выбранных кристаллах. Для кристалла LBO в главных плоскостях XY , XZ и YZ условия фазового синхронизма не выполняются для любых типов взаимодействий, включая $s + s \rightarrow s$ и $f + f \rightarrow f$.

Сравнение эффективности преобразований

Используя полученные кривые фазового синхронизма и имеющиеся дисперсионные уравнения, были рассчитаны параметры преобразований и потенциальные эффективности для удвоения частоты ТГц-излучения. Для расчета эффективных длин взаимодействий в нелинейных кристаллах и ширины фазового синхронизма длительность импульса накачки принята равной 1 пс, а толщина кристаллов – 1 см. При моделировании эффективности ГВГ за толщину кристалла принималась минимальная эффективная длина. Для расчета апертурной длины использовался радиус пучка, определяемый дифракционным пределом на выбранной длине волны в рассматриваемом кристалле. Эффективность преобразования в данном случае оценивалась без учета волновой расстройки и поглощения в нелинейном кристалле [20]. Плотность мощности была принята равной установленному уровню лучевой стойкости 150 ТВт/см² для LB4, 40 ТВт/см² для LN и 100 ТВт/см² для кристалла β -BBO. Полученные данные представлены в табл. 2.

Приведенные в таблице параметры показывают, что, несмотря на низкий коэффициент эффективной нелинейной восприимчивости, боратные кристаллы имеют схожую (LB4) или даже

превосходящую (β -BBO) потенциальную эффективность по сравнению с традиционно используемым LN. Малый, по сравнению с углом фазового синхронизма, угол сноса позволяет эффективно применять кристаллы большой длины. При учете потерь в выбранном диапазоне ($<0.1 \text{ см}^{-1}$ для LB4 и $\sim 1 \text{ см}^{-1}$ для LN) итоговая эффективность боратных кристаллов длиной 1 см должна оказаться как минимум в 2.5 раза выше.

Таблица 2

Параметры взаимодействий для преобразования по частоте вверх

Кристалл	Тип	$\lambda_{1,2}$, мкм	$\theta_{\text{pm}}^{1,2}$, град	ρ , град	$d_{\text{эфф}}$, пм/В	L_a , см	$\Delta\lambda$, мкм	$\Delta\theta$, град	$\eta_{2\omega}$, %
LB4	$o+o \rightarrow e$	800	18.0	1.3	0.04	1.2	759	0.48	0.2
		2500	5.6	0.4	0.01	10.8	2496	4.75	0.2
LN*	$o+o \rightarrow e$	800	7.2	4.9	3.03	0.1	686	0.06	0.5
		2500	2.3	1.6	2.64	1.4	2487	0.62	3.8
	$e+o \rightarrow e$	800	10.2	6.7	2.38	0.1	738	0.01	0.2
		2500	3.2	2.2	2.45	0.9	2494	0.59	1.6
β -BBO*	$o+o \rightarrow e$	800	24.9	3.6	2.16	0.4	661	0.15	37.5
		2500	8.1	1.4	2.23	3.6	2482	1.56	-
	$e+o \rightarrow e$	800	33.9	4.4	1.51	0.4	740	0.20	10.6
		2500	11.5	1.9	2.11	2.6	2491	0.23	-

Примечание. * Для LN и β -BBO выбран оптимальный угол ϕ для соответствующих взаимодействий. $\lambda_{1,2}$ – границы диапазона генерации; $\theta_{\text{pm}}^{1,2}$ – минимальное и максимальное значения углов фазосогласования; ρ – угол сноса; L_a – апертурная длина кристалла; $\Delta\lambda$, $\Delta\theta$ – спектральная и угловая ширины синхронизма; $\eta_{2\omega}$ – эффективность удвоения частоты.

Заключение

В результате проведенных исследований в работе уточнен вид дисперсионных уравнений при комнатной температуре для кристалла β -BBO. Впервые рассмотрена возможность эффективной ГВГ излучения диапазона 400–2500 мкм в оксидных нелинейных кристаллах. Рассчитаны углы фазового синхронизма и показано, что для кристаллов LN и β -BBO возможна реализация $o+o \rightarrow e$ - и $e+o \rightarrow e$ -взаимодействия, а для кристалла LB4 – $o+o \rightarrow e$. Определены угол сноса, спектральные и угловые ширины синхронизма. Дана оценка максимальной эффективности генерации второй гармоники с учетом измеренного порога оптического разрушения. Показано, что, несмотря на низкие коэффициенты нелинейной восприимчивости, по совокупности параметров боратные кристаллы LB4, β -BBO и LBO оказываются эффективнее широко используемого кристалла LN благодаря низким потерям и возможности выращивания большего размера образцов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Naftaly M., Vieweg N., and Deninger A. // Sensors. – 2019. – V. 19. – No. 19. – P. 4203–4235.
- Nikogosyan D.N. Nonlinear Optical Crystals: A Complete Survey. – Springer, 2005. – 427 p.
- Hu Z., Zhao Y., Yue Y., et al. // J. Cryst. Growth. – 2011. – V. 335. – No. 1. – P. 133–137.
- Chen C., Sasaki T., Li R., et al. Nonlinear Optical Borate Crystals: Principles and Applications. – Wiley-VCH, 2012. – 387 p.
- LB4 Нелинейный оптический кристалл [Электронный ресурс]. – 2021. – URL: <http://singlecrystal.ru/lc/11b4.htm> (дата обращения 17.05.2021).
- Komatsu R., Sugawara T., Sassa K., et al. // Appl. Phys. Lett. – 1997. – V. 70. – No. 26. – P. 3492–3494.
- Zhang T.R., Choo H., and Downer M.C. // Appl. Opt. – 1990. – V. 29. – No. 27. – P. 3928–3933.
- Nikogosyan D.N. // Appl. Phys. A. – 1994. – V. 58. – No. 3. – P. 181–190.
- Zhang B., Ma Z., Ma J., et al. // Laser Photon. Rev. – 2021. – V. 15. – No. 3. – P. 2000295.
- Николаев Н.А., Мамрашев А.А., Андреев Ю.М. и др. // Изв. вузов. Физика. – 2021. – Т. 63. – № 12. – С. 21–24.
- Kaminskii A.A., Bohaty L., Becker P., et al. // Laser Phys. Lett. – 2006. – V. 3. – No. 11. – P. 519–530.
- Wu X., Zhou C., Huang W.R., et al. // Opt. Express. – 2015. – V. 23. – No. 23. – P. 29729–29737.
- Yoshida H., Fujita H., Nakatsuka M., et al. // Jpn. J. Appl. Phys. – 2006. – V. 45. – No. 2A. – P. 766–769.
- Meng Q., Zhang B., Zhong S., et al. // Appl. Phys. A. – 2016. – V. 122. – P. 582–586.
- Nikolaev N.A., Andreev Yu.M., Antsygin V.D., et al. // J. Phys. Conf. Ser. – 2018. – V. 951. – No. 1. – P. 012003.

16. Shoji I., Nakamura H., Ohdaira K., et al. // J. Opt. Soc. Am. B. – 1999. – V. 16. – No. 4. – P. 620–624.
17. Louchev O.A., Hatano H., Saito N., et al. // J. Appl. Phys. – 2013. – V. 114. – No. 20. – P. 203101–203111.
18. Andreev Yu.M., Kokh A.E., Kokh K.A., et al. // Opt. Mater. – 2017. – V. 66. – P. 94–97.
19. LBO Crystals LIDT information [Электронный ресурс]. – 2021. – URL: <https://www.altechna.com/products/lbo-crystal/> (дата обращения 17.05.2021).
20. Sutherland R.L. Handbook of Nonlinear Optics. – CRC Press, 2003. – 976 p.
21. Nazarov M.M., Sarkisov S.Y., Shkurinov A.P., et al. // Int. Conf. Infrared, Millimeter, Terahertz Waves. – IEEE, 2011. – P. 1–2.

Поступила в редакцию 11.02.2021.

¹ Национальный исследовательский Томский государственный университет,
г. Томск, Россия

² Институт сильноточной электроники СО РАН, г. Томск, Россия

³ Институт мониторинга климатических и экологических систем СО РАН,
г. Томск, Россия

Ежов Дмитрий Михайлович, аспирант, мл. науч. сотр. НИ ТГУ, e-mail: ezhov_dm@mail.ru;

Лубенко Дмитрий Михайлович, мл. науч. сотр. ИСЭ СО РАН, e-mail: lubenkodm@gmail.com;

Андреев Юрий Михайлович, д.ф.-м.н., ведущ. науч. сотр. НИ ТГУ, гл. науч. сотр. ИМКЭС СО РАН, e-mail: yandreev@yandex.ru.