

Преобразование частоты фемтосекундного импульса титан-сапфирового лазера в длинноволновую область среднего ИК диапазона в кристалле $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$

И. О. Киняевский¹⁾, А. В. Корибут, Я. В. Грудцын, М. В. Ионин

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Физический институт имени П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 4 апреля 2024 г.

После переработки 4 апреля 2024 г.

Принята к публикации 13 апреля 2024 г.

Экспериментально продемонстрирована генерация ультракоротких импульсов среднего ИК диапазона (длина волны от 8.5 до 10.5 мкм) с высокой энергией (до 4.5 мкДж) путем генерации разностной частоты в кристалле $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ при его накачке импульсами титан-сапфирового лазера длительностью 100 фс и длиной волны 0.95-мкм. Для таких импульсов накачки определены порог оптического повреждения и коэффициент двухфотонного поглощения $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$. Эффективность преобразования частоты достигла 0,24 % при энергии импульса накачки 1.85 мДж, которая уменьшалась при большей энергии. Оценки показывают, что применение широкоапертурного (диаметром 15 мм) образца $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ позволит увеличить энергию импульса накачки до ~ 10 мДж и, соответственно, увеличить энергию импульса среднего инфракрасного диапазона до 24 мкДж при той же эффективности.

DOI: 10.31857/S1234567824100045, EDN: NQKXFV

Разработка фемтосекундных лазерных источников, действующих в длинноволновой области среднего инфракрасного (ИК) диапазона (длина волны 6–12 мкм), представляет большой интерес для многих фундаментальных и прикладных задач, таких как ускорение частиц [1], генерация аттосекундных импульсов [2], дистанционный газовый анализ [3], модификация кристаллов [4], инактивация болезнетворных бактерий [5] и других. Один из основных способов генерации фемтосекундных лазерных импульсов среднего ИК диапазона является преобразование спектра надежных лазеров ближнего ИК-диапазона в нелинейных кристаллах посредством генерации разностной частоты (ГРЧ) или оптической параметрической генерации (ОПГ) [6–11]. По большей части такие системы основаны на лазере с высокой частотой повторения импульсов, которая обеспечивает относительно высокую среднюю мощность излучения при малой пиковой мощности/энергии импульсов [7–9]. Следовательно, энергия генерируемых фемтосекундных импульсов среднего ИК-диапазона в этом случае невелика, на уровне пико- [9] или нано-Дж [7]. Наша работа направлена на разработку фемтосекундной лазерной системы среднего инфракрасного диапазона с энергией импульса на уровне несколь-

ких мкДж, пиковая мощность которого достигнет критической мощности самофокусировки для материалов среднего ИК диапазона (десятки МВт). Поэтому в качестве базового лазера мы выбрали фемтосекундный титан-сапфировый лазер, чей уровень технологического развития позволяет получать лазерные импульсы мощностью до 10 ПВт [12].

В качестве нелинейного кристалла мы выбрали перспективный недавно разработанный кристалл $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ (BGGSe) [13, 14], который обладает хорошей прозрачностью в среднем ИК-диапазоне, высокой нелинейностью, благоприятной дисперсией и высоким порогом оптического повреждения. Подробную характеристику линейных и нелинейных оптических свойств BGGSe можно найти в [13, 14]. В последнее время этот материал был успешно использован для преобразования частоты фемтосекундных [9] и наносекундных [10] лазерных импульсов ближнего ИК диапазона, а также для широкополосного преобразования микросекундных импульсов СО-лазера [11]. Наш образец BGGSe размером $7 \times 7 \times 0.6$ мм³ был выращен Д. В. Бадиковым и В. В. Бадиковым в Лаборатории новейших технологий Кубанского государственного университета. Образец был обрезан под углами $\theta = 29^\circ$, $\phi = 42.7^\circ$ для I-типа фазового синхронизма (ФС). Для сравнения мы также рассмотрели традиционный кристалл AgGaS_2 (AGS) как эталон-

¹⁾e-mail: kinyaevskiyio@lebedev.ru

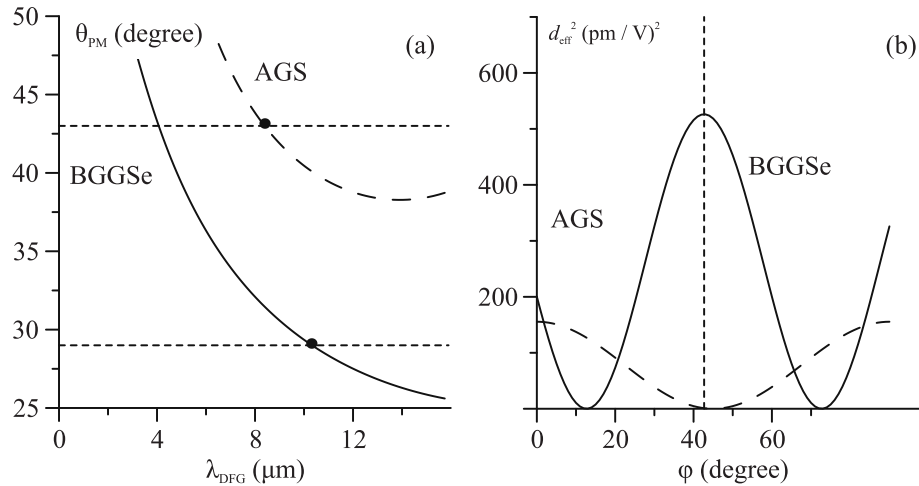


Рис. 1. Рассчитанные углы ФС (а) и квадрат эффективной нелинейности (б) для ГРЧ в кристаллах BGGSe (сплошная линия) и AGS (штриховая линия)

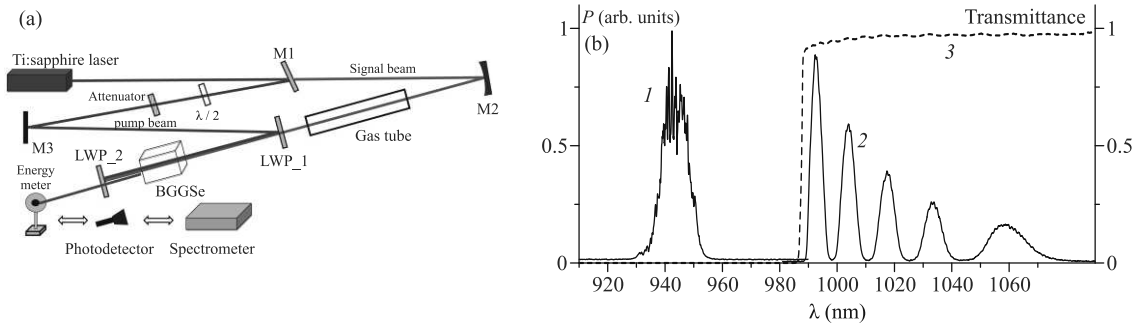


Рис. 2. (Цветной онлайн) (а) – Оптическая схема эксперимента, см. текст для получения подробной информации; (б) – спектры импульсов накачки (1) и сигнальной волны (2) и пропускание фильтра LWP_1 (3)

ный материал. Образец AGS размером $7 \times 8 \times 2$ мм³, выращенный в Институте Геологии и минералогии СО РАН, был вырезан под углами $\theta = 43^\circ$, $\phi = 0^\circ$ для II-типа ФС. Следует отметить, что BGGSe и AGS имеют близкую величину запрещенной зоны: 2.38 эВ [13] и 2.62 эВ [15] соответственно.

Рассчитанные углы ФС для ГРЧ между импульсным титан-сапфировым лазером ($\lambda = 0.95$ мкм) и широкополосным излучением ближнего ИК-диапазона ($\lambda = 1.0\text{--}1.2$ мкм) представлены на рис. 1а: I-тип ФС ($o - e \rightarrow e$) для BGGSe и II-тип ФС ($e - o \rightarrow e$) для AGS. Расчет угла ФС является “стандартной” процедурой, которую можно найти, например, в справочнике [15]. Дисперсионные уравнения для кристаллов BGGSe и AGS были взяты из [14] и [15], соответственно. Кроме того, квадрат эффективной нелинейности в зависимости от азимутального угла ϕ был рассчитан и представлен на рис. 1б. Для BGGSe эффективная нелинейность была рассчитана как $d_{eff} = (d_{11} \sin 3\phi + d_{22} \cos 3\phi) \cos 2\theta$, где $d_{11} = 23.6$ пм/В, $d_{22} = -18.5$ пм/В [14]. Для AGS она рассчитыва-

лась как $f_{def} = d_{36} \sin 2\theta \cos 2\phi$, где $d_{36} = 12.5$ пм/В [15]. Рисунок 1 показывает, что угол среза нашего образца BGGSe соответствует длине волны ГРЧ 10 мкм, а угол среза AGS соответствует длине волны ГРЧ 8 мкм. Угол ϕ оптимизирован для обоих кристаллов. Квадрат эффективной нелинейности для BGGSe оказался 3.4 раз выше, чем у AGS и, соответственно, BGGSe должен быть в 3.4 раза эффективнее.

Оптическая схема нашего эксперимента представлена на рис. 2а. Мы использовали титан-сапфировый лазер “СТАРТ-480М” (ООО “Авеста Проект”, Россия) с энергией импульса до 10 мДж, центральная длина волны $\lambda \approx 0.95$ мкм, спектральная ширина на полувысоте ~ 12 нм, длительность импульса 100 фс, частота повторения импульсов – 10 Гц. Лазерный луч разделялся на два плеча с помощью частично пропускающего зеркала (M1). Отраженный луч с высокой энергией импульса ($E \approx 9.3$ мДж) был использован как волна накачки кристалла, прошедший луч с меньшей энергией ($E \approx 0.7$ мДж) как

сигнальная волна. Энергия импульса накачки регулировалась управляемым дифракционным ослабителем. Поляризация волны накачки была повернута на 90° с помощью полуволновой пластинки, потому что она должна соответствовать обыкновенной волне в BGGSe (при использовании кристалла AGS поляризация сигнальной волны была повернута на 90°). Луч сигнальной волны фокусировался сферическим зеркалом (M2, фокусное расстояние 2 м) в газовую трубку длиной 1.46 м, наполненную CO_2 при давлении 3 атм. В газовой трубе спектр лазерного импульса уширялся из-за эффекта фазовой самомодуляции в филаменте. Затем, импульсы волны накачки и сигнальной волны объединялись. Согласование импульсов по времени осуществлялось путем контроля длины плеча для импульса накачки регулировкой положения зеркала M3. Пространственное сведение осуществлялось фильтром LP02-980RU-25 (Semrock, США), LWP_1 на рис. 2а. Фильтр имел коэффициент отражения $> 99.9\%$ для излучения накачки и пропускание $> 95\%$ для излучения сигнальной волны. Спектры излучения накачки и сигнальной волны после фильтра представлены на рис. 2б, вместе с коэффициентом пропускания фильтра. После фильтра энергия импульса сигнальной волны составляла 0.15 мДж, энергия импульса накачки могла достигать ~ 9 мДж.

Комбинированный лазерный импульс был направлен в нелинейный кристалл (BGGSe или AGS) без какой-либо фокусировки, диаметр пучка накачки и сигнального импульсов составили 4.1 мм и 4.5 мм на уровне $1/e^2$, соответственно. Импульс излучения среднего ИК диапазона, генерируемый в нелинейном кристалле, отделялся от излучения ближнего ИК-диапазона фильтром (# 5 из комплекта фильтров ИК-спектрометра ИКС-31, ЛОМО, Россия), LWP_2 на рис. 2а. Фильтр имел коэффициент пропускания 50 % для длин волн 5–14 мкм и абсолютно подавлял излучение ближнего ИК-диапазона. Излучение ГРЧ регистрировалось фотоприемником РЕМ-Л-3 (VIGO Systems, Польша), спектры измерялись с помощью самодельного спектрометра на основе дифракционной решетки с 75 штр/мм оснащенного фотоприемником РЕМ-Л-3, средняя энергия импульсов ГРЧ измерялась с помощью измерителя мощности Ophir-3A.

Сначала была найдена оптимальная ориентация кристаллов. Зависимость мощности/энергии импульса ГРЧ от угла падения (α) на кристалл BGGSe представлена на рис. 3. Этот угол был пересчитан в угол θ между волновым вектором излучения накачки и оптической осью кристалла, верхняя ось

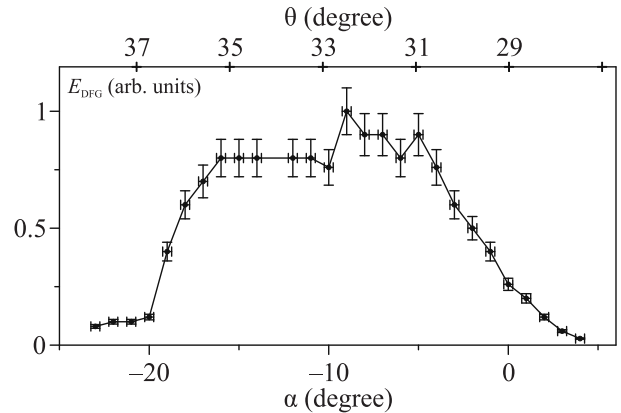


Рис. 3. Зависимость энергии импульса ГРЧ от угла падения излучения на кристалл BGGSe (α), верхняя ось X – угол ФС (θ)

на рис. 3. Зависимость на рис. 3 имеет плато при $\theta = 30^\circ - 36^\circ$, что согласно рис. 1а соответствует перестройке длины волны ГРЧ от 7.5 мкм до 10.5 мкм, меньший θ соответствует большей длине волны. Падение мощности ГРЧ при $\theta \leq 29^\circ$ может быть связано с уменьшением соотношения Мэнли-Роу при сдвиге спектра ГРЧ в сторону более длинных волн. Падение энергии ГРЧ при $\theta \geq 36^\circ$ было связано со сдвигом спектра ГРЧ в сторону более коротких длин волн, что требовало излучения с длиной волны $\lambda > 1070$ нм, где мощность излучения сигнальной волны имела заметное уменьшение (см. рис. 2б).

Далее измерялась относительная энергия импульса ГРЧ (амплитуда сигнала на фотодетекторе) в зависимости от энергии импульса накачки при оптимальном положении образцов ($\alpha = -10^\circ$ для BGGSe и $\alpha = -14^\circ$ для AGS), см. рис. 4. С увели-

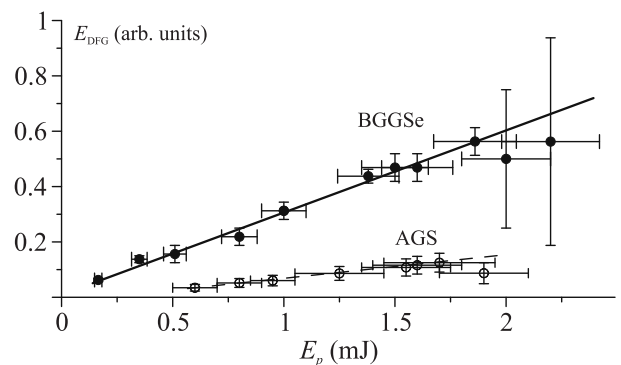


Рис. 4. Относительная энергия импульса ГРЧ в зависимости от энергии импульса накачки при оптимальном положении кристаллов BGGSe и AGS

чением энергии до определенного значения эта зависимость имела линейный характер для обоих кри-

сталлов, что согласуется с теорией параметрического преобразования частоты (см., например, [15]). Кристалл BGGSe оказался примерно в 5 раз эффективнее AGS. В BGGSe при высокой энергии импульса накачки $E_p \geq 2$ мДж, амплитуда сильнейших импульсов ГРЧ возрастала, однако их стабильность и воспроизводимость становилась низкой, что привело к снижению их средней энергии. Явное оптическое повреждение поверхности образца BGGSe наблюдалось при $E_p \approx 2.5$ мДж, что соответствует плотности энергии 0.04 Дж/см² и интенсивности 0.4 ТВт/см². Следует отметить, что снижение средней энергии импульса ГРЧ наблюдалось также в кристалле AGS при $E_p \approx 1.8$ мДж.

Природа нестабильности ГРЧ при высокой энергии накачки на данный момент для нас не ясна. Одна из причин может быть связана с нелинейным поглощением и образованием плазмы в кристалле, что вызывает отражение/рассеяние/поглощение длинноволнового излучения среднего ИК-диапазона. Зависимость коэффициента пропускания BGGSe от энергии импульса накачки представлена на рис. 5. Даже

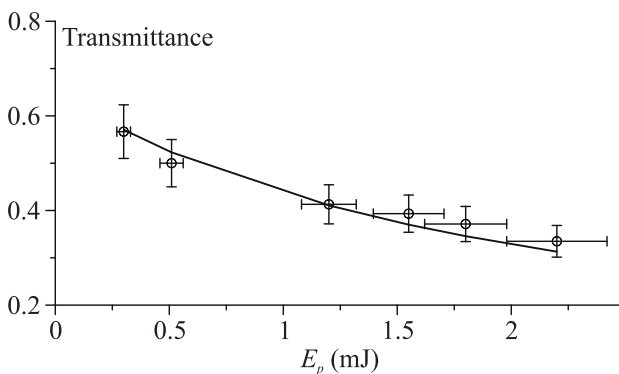


Рис. 5. Зависимость пропускания кристалла BGGSe от энергии импульса накачки

при $E_p = 0.25$ мДж коэффициент пропускания заметно ниже, чем тот, который определяется только Френелевским отражением (70 %). При $E_p = 2$ мДж коэффициент пропускания уменьшился до ~ 35 %. Линия на рис. 5 соответствует пропусканию образца BGGSe рассчитанному при коэффициенте двухфотонного поглощения $\beta = 0.25$ см/ГВт, который обеспечивает наилучшее согласие с экспериментом. Эта величина оказалась в 5–10 раз меньше, чем представленная в [14].

Чтобы измерить абсолютное значение энергии импульса ГРЧ использовался измеритель мощности Ophir-3A. Средняя энергия определялась как отношение средней мощности ГРЧ к частоте повторения импульсов (10 Гц) с учетом пропускания фильтра

LWP_2. Средняя энергия импульса ГРЧ, полученная с помощью BGGSe при $E_p = 1.85$ мДж, составила 4.5 ± 0.5 мкДж. Эта энергия соответствует эффективности преобразования 0.24 %, что сопоставимо с результатами, полученными с другими лазерами с высокой частотой повторения импульсов, например [9]. Учитывая возможность увеличить энергию импульса накачки нашей установки до ~ 10 мДж, энергия импульса ГРЧ может быть увеличена до ~ 24 мкДж при той же эффективности преобразования, однако, это потребует использования широкоапертурного образца BGGSe диаметром ~ 15 мм. Отметим, что средняя энергия импульса ГРЧ в AGS достоверно не измерена из-за ее низкой величины.

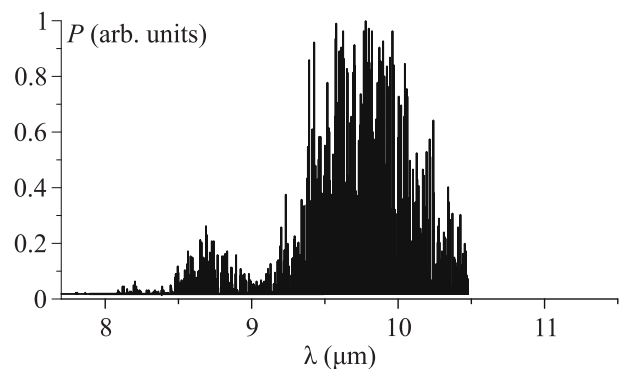


Рис. 6. Спектр импульса ГРЧ, полученный в кристалле BGGSe при $\alpha = -10^\circ$

Спектр импульса ГРЧ, полученный в BGGSe при оптимальных условиях ($\alpha = -10^\circ$, при $E_p = 1.85$ мДж) представлен на рис. 6. Спектр измерялся импульс за импульсом при медленном вращении дифракционной решетки самодельного спектрометра. Спектр импульса ГРЧ простирался от 8.5 мкм до 10.5 мкм (по уровню 0.1 от максимальной мощности), что согласуется с результатами работы [9], где сообщается о применимости BGGSe для получения импульсов среднего ИК-диапазона длительностью в несколько периодов поля. Однако спектр ГРЧ имел побочный максимум на длине волны 8.7 мкм, возникший из пиковой структуры спектра импульса сигнальной волны (см. рис. 2b). Поэтому для оптимизации формы спектра ГРЧ, спектр импульса сигнальной волны должен иметь более однородную форму.

Таким образом, нами реализована и исследована ГРЧ лазерных импульсов длительностью 100 фс, длиной волны 0.95 мкм и энергия свыше 1 мДж в кристалле BGGSe. Оптическое повреждение BGGSe наблюдалось при плотности энергии 0.04 Дж/см². Измеренный коэффициент двухфотонного поглощения составил 0.25 ± 0.05 см/ГВт. Сгенерированные

ультракороткие импульсы среднего ИК диапазона имели энергию до 4.5 мкДж и простирались в диапазоне длин волн от 8.5 мкм до 10.5 мкм. Принимая во внимание длительность импульса накачки 100 фс, эта энергия соответствует пиковой мощности 45 МВт, что превышает критическая мощность самофокусировки в твердых телах, например, в ZnSe [16]. Поэтому такие лазерные импульсы могут быть использованы для изучения филаментации в среднем ИК-диапазоне. Другое применение этой лазерной системы – использование ее в качестве задающего генератора для CO₂-лазерного усилителя высокого давления [17]. Необходимо отметить, что представленная схема ГРЧ относительно проста и имеет большой потенциал для масштабирования энергии, путем увеличения энергетики исходного титан-сапфирового лазера (вплоть до сотен джоулей [12]), однако в этом случае потребуется разработка широкоапертурных образцов BGGSe.

Финансирование работы. Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда # 22-79-10068, <https://rscf.ru/project/22-79-10068/>.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. K. Pogorelsky, I. Ben-Zvi, W. D. Kimura, N. A. Kurnit, and F. Kannari, *Infrared Phys. Technol.* **36**, 341 (1995).
2. C. Hernández-García, T. Popmintchev, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, L. Plaja, A. Becker, and A. Jaron-Becker, *Opt. Express* **25**, 11855 (2017).
3. A. A. Lanin, A. A. Voronin, A. B. Fedotov, and A. M. Zheltikov, *Nature* **4**, 6670 (2014).
4. N. A. Smirnov, Y. S. Gulina, N. I. Busleev, P. P. Pakholchuk, A. V. Gorevoy, V. G. Vins, and S. I. Kudryashov, *JETP Lett.* **119**, 411 (2024).
5. V. O. Kompanets, S. I. Kudryashov, E. R. Totordava, S. N. Shelygina, V. V. Sokolova, I. N. Saraeva, M. S. Kovalev, A. A. Ionin, and S. V. Chekalin, *JETP Lett.* **113**, 365 (2021).
6. I. O. Kinyaevskiy, A. A. Koribut, L. V. Seleznev, Yu. M. Klimachev, E. E. Dunaeva, and A. A. Ionin, *Opt. Laser Technol.* **169**, 110035 (2024).
7. R. T. Murray, T. H. Runcorn, E. J. R. Kelleher, and J. R. Taylor, *Opt. Lett.* **41**, 2446 (2016).
8. Y. Cui, H. Huang, Y. Bai, W. Du, M. Chen, B. Zhou, I. Jovanovic, and A. Galvanauskas, *Opt. Lett.* **48**, 1890 (2023).
9. U. Elu, L. Maidment, L. Vamos, T. Steinle, F. Haberstroh, V. Petrov, V. Badikov, D. Badikov, and J. Biegert, *Opt. Lett.* **45**, 3813 (2020).
10. W. Chen, L. Wang, I. B. Divliansky, V. Pasiskevicius, O. Mhibik, K. M. Moelster, A. Zukauskas, L. B. Glebov, and V. Petrov, *Opt. Express* **32**, 1728 (2024).
11. A. A. Ionin, I. O. Kinyaevskiy, Yu. M. Klimachev, A. A. Kotkov, A. Yu. Kozlov, A. M. Sagitova, D. V. Sinitsyn, V. V. Badikov, and D. V. Badikov, *Opt. Laser Technol.* **115**, 205 (2019).
12. W. Li, Z. Gan, L. Yu et al. (Collaboration), *Opt. Lett.* **43**, 5681 (2018).
13. V. V. Badikov, D. V. Badikov, V. B. Laptev, K. V. Mitin, G. S. Shevyrdyaeva, N. I. Shchebetova, and V. Petrov, *Opt. Mater. Express* **6**, 2933 (2016).
14. N. Kostyukova, E. Erushin, A. Boyko, G. Shevyrdyaeva, and D. Badikov, *Photonics* **11**, 281 (2024).
15. V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan, and D. N. Nikogosyan, *Handbook of nonlinear optical crystals*, Springer (2013).
16. G. N. Patwardhan, J. S. Ginsberg, C. Y. Chen, M. M. Jadidi, and A. L. Gaeta, *Opt. Lett.* **46**, 1824 (2021).
17. M. N. Polyanskiy, I. V. Pogorelsky, M. Babzien, and M. A. Palmer, *OSA Contin* **3**, 459 (2020).