

УДК 535.544:535-14

ПРИМЕНЕНИЕ ОКСИДНЫХ НЕЛИНЕЙНЫХ КРИСТАЛЛОВ В КАЧЕСТВЕ ПРЕОБРАЗОВАТЕЛЕЙ ЧАСТОТЫ В ТГц ДИАПАЗОН

© 2022 г. Д. М. Лубенко¹*, В. Ф. Лосев¹, Ю. М. Андреев², Д. М. Ежов³

¹Федеральное государственное бюджетное учреждение науки

“Институт сильноточной электроники Сибирского отделения Российской академии наук”, Томск, Россия

²Федеральное государственное бюджетное учреждение науки

“Институт мониторинга климатических и экологических систем Сибирского отделения
Российской академии наук”, Томск, Россия

³Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования

“Национальный исследовательский Томский государственный университет”, Томск, Россия

*E-mail: lubenkodm@gmail.com

Поступила в редакцию 14.02.2022 г.

После доработки 28.02.2022 г.

Принята к публикации 23.03.2022 г.

Рассмотрена и обоснована возможность применения оксидных нелинейных кристаллов, таких как бета-борат бария, триборат лития и тетраборат лития для создания мощных источников излучения терагерцового диапазона, работающих в окнах прозрачности атмосферы. Показано, что оксидные кристаллы по совокупности свойств могут обеспечивать более высокую эффективность и выходную мощность в терагерцовом диапазоне, чем широко распространенные полупроводниковые и органические кристаллы.

DOI: 10.31857/S0367676522070183

ВВЕДЕНИЕ

Портативные перестраиваемые по частоте узкополосные источники излучения терагерцового (ТГц) диапазона, работающие в длинноволновых окнах прозрачности атмосферы, являются привлекательными для создания сверхчувствительных лидарных систем мониторинга газовых компонентов и температуры атмосферы в силу слабого влияния аэрозолей и осадков. Для получения такого излучения обычно используются источники, использующие генерацию разностной частоты (ГРЧ) на основе нелинейных полупроводниковых и органических кристаллов, таких как ZGP (0.2–5 ТГц) [1], GaSe (0.4–3.7 ТГц) [2], DSTMS (0.15–5.5 ТГц) [3], OH1 [4] и др. — накачка которых осуществляется лазерами ближнего ИК диапазона. Эти кристаллы характеризуются невысокой лучевой стойкостью и низкими эксплуатационными характеристиками. В данной работе в качестве мощных генераторов ТГц излучения рассматривается возможность использования оксидных нелинейных кристаллов тетрабората лития ($\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ или LB4), трибората лития (LiB_3O_5 или LBO) и бета-бората бария (BaB_2O_4 или β -BBO, в дальнейшем BBO), для которых основные окна прозрачности совпадают с рабочими диапазонами мощных твердотельных лазеров накачки и их

гармоник. Известно, что перечисленные кристаллы, имеют чрезвычайно низкие коэффициенты нелинейной восприимчивости второго порядка и резкое уменьшение анизотропии поглощения в субтерагерцовой области. Характеризуются не только предельно низкими коэффициентами поглощения $\leq 10^{-4} \text{ см}^{-1}$, но и крайне высокой лучевой стойкостью, которая на два порядка превышает известные данные. Именно последнее может компенсировать их низкую нелинейную восприимчивость и позволить создавать более мощные источники ТГц излучения.

Целью настоящей работы являлось определение возможности ГРЧ с выполнением условий фазового синхронизма в рассматриваемых оксидных кристаллах, оценка их лучевой стойкости при накачке импульсами излучения фемтосекундной длительности для получения высокой пиковой мощности излучения в ТГц области.

АППАРАТУРА И МЕТОДИКИ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

Эксперименты проводились на фемтосекундном стартовом лазерном комплексе “Старт-480М”. Комплекс состоит из задающего генератора, стретчера, регенеративного и двух многопроход-

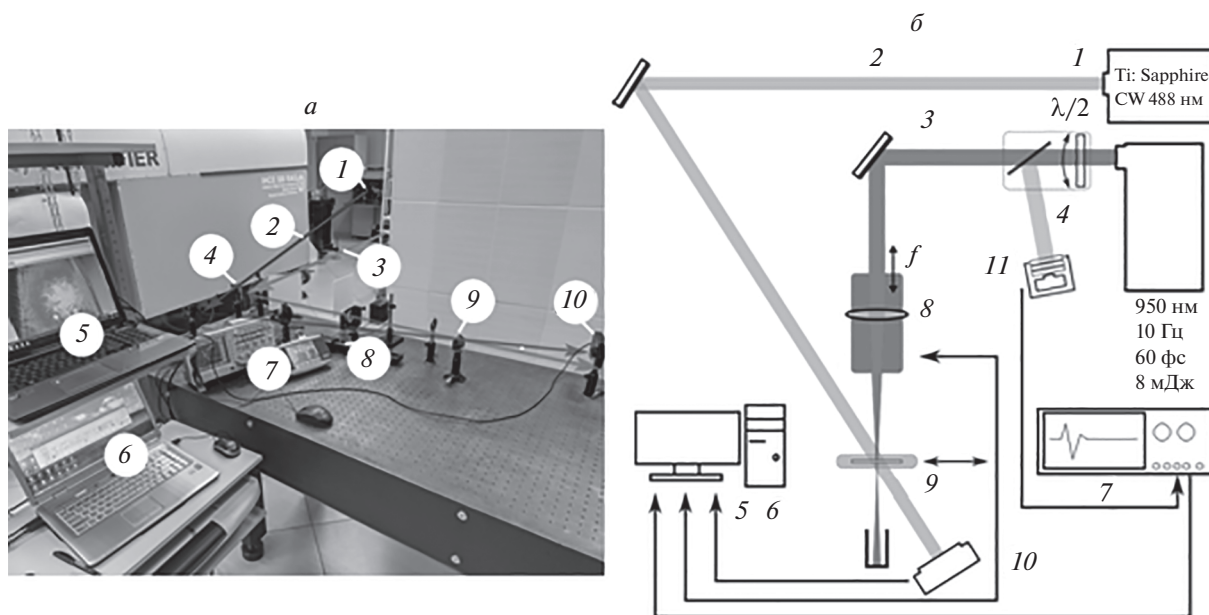


Рис. 1. Фотография (а) и схема (б) экспериментальной установки. Цифрами обозначены: 1 – сканирующий лазер, 2 – сканирующий пучок, 3 – основной пучок, 4 – аттенюатор, 5 – регистрирующий ПК, 6 – ПК управления, 7 – осциллограф контроля энергии, 8 – подвижная платформа, 9 – образец, 10 – профилометр, 11 – фотодиод.

ных усилителей, компрессора на дифракционных решетках. Параметры комплекса: центральная длина волны $\lambda = 950$ нм, длительность импульса $\tau = 60$ фс, энергия в импульсе $E = 10\text{--}15$ мДж, диаметр пучка 10 мм и частота следования импульсов 10 Гц. Измерение энергии лазерного излучения проводилось с помощью фотодиода, подключенного к осциллографу Tektronix TDS2034 (Tektronix, США). Регистрировалась только часть ослабленной энергии, отраженная от тонкой пластинки. Амплитуда сигнала с фотодиода калибровалась с использованием измерителя мощности и энергии Gentec Maestro (Gentec, США). Использование фотодиода было обусловлено необходимостью измерения энергии в каждом импульсе, а используемый измеритель мощности и энергии не позволял регистрировать столь малые значения, получаемые в отраженном пучке. Для определения длительности лазерных импульсов применялся автокоррелятор ASF-20 (Avesta, Россия). Определение начала возникновения повреждений в кристаллах осуществлялось профилометром Ophir SP620U (Ophir Optronics, Израиль), источником сканирующего пучка служил непрерывный одномодовый Ti:Sapphire лазер, работающий на длине волны 488 нм. Схема проведения экспериментов приведена на рис. 1.

В экспериментах лазерное излучение проходило через линзу с фокусным расстоянием 400 мм, установленную на моторизованную подвижную платформу для грубой регулировки требуемой

плотности мощности на поверхности исследуемого образца. Аттенюатор на основе полуволновой пластинки позволял осуществлять плавную регулировку мощности излучения в пределах 77–100%, столь низкое ослабление было обусловлено широким спектром излучения фемтосекундного импульса.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Дисперсионные свойства нелинейных кристаллов β -ВВО, LB4 и LBO хорошо известны в оптическом [5] и ТГц [6–8] диапазонах.

Нелинейный кристалл ВВО – отрицательный одноосный точечной группы симметрии 3m. Показатели преломления при комнатной температуре на частоте 0.5 ТГц составляют $n_o = 2.89$, $n_e = 2.65$, коэффициенты поглощения $\alpha_o = 2.3 \text{ см}^{-1}$, $\alpha_e = 6.8 \text{ см}^{-1}$. При увеличении длины волны коэффициенты поглощения уменьшаются до значений менее 1 см^{-1} . Дисперсионные уравнения ТГц диапазона для расчета коэффициентов преломления обыкновенной (n_o) и необыкновенной волн (n_e) в β -ВВО кристалле имеют следующий вид:

$$n_o = 2.040 + \frac{0.816\lambda^2}{\lambda^2 - 12815}, \quad (1)$$

$$n_e = 2.478 + \frac{0.160\lambda^2}{\lambda^2 - 15598}. \quad (2)$$

Таблица 1. Лучевая стойкость оксидных и органических кристаллов

Кристалл	Длительность импульса	Лучевая стойкость	Нелинейные коэффициенты	Источник
β -BaB ₂ O ₄ (β -BBO)	10 нс	2.4–4.5 ГВт · см ⁻²	$d_{22} = 2.2$	[9]
	15 пс	8 ГВт · см ⁻²	$d_{15} = 0.03$	[10]
	25 фс	>3.4 ГВт · см ⁻²	$d_{31} = -0.04$ $d_{33} = 0.04$	[11]
LiB ₃ O ₅ (LBO)	10 нс	20 ГВт · см ⁻²	$d_{31} = 0.67$	[8]
	400 фс	38 ТВт · см ⁻²	$d_{32} = 0.85$ $d_{33} = 0.04$	[12]
Li ₂ B ₄ O ₇ (LB4)	10 нс	40 ГВт · см ⁻²	$d_{31} = 0.12$ $d_{33} = 0.47$	[13]
ZGP	23 нс	86 МВт · см ⁻²	$d_{36} = 70$	[14]
	130 фс	>100 ГВт · см ⁻²		[15]
GaSe	60 нс	8 МВт · см ⁻²	$d_{22} = 54$	[16]
	2 пс	>1 ГВт · см ⁻²		[17]
DSTMS/DAST	68 фс	300 ГВт · см ⁻²	$d_{111} = 214/210$ $d_{122} = 32$ $d_{212} = 35/25$	[18]
ОН1	10 нс	0.62 ГВт · см ⁻²	$d_{333} = 120$	[19]

Нелинейный кристалл LB4 – отрицательный одноосный точечной группы симметрии 4mm. Показатели преломления при комнатной температуре на частоте 0.5 ТГц составляют $n_o = 3.13$, $n_e = 2.74$; коэффициенты поглощения $\alpha_o = 7.5 \text{ см}^{-1}$, $\alpha_e = 10 \text{ см}^{-1}$, которые так же уменьшаются с увеличением длины волны. Дисперсионные уравнения ТГц диапазона для LB4 имеют следующий вид:

$$n_o^2 = 8.085 + \frac{0.644\lambda^2}{\lambda^2 - 14277}, \quad (3)$$

$$n_e^2 = 7.169 + \frac{0.345\lambda^2}{\lambda^2 - 18139}. \quad (4)$$

Нелинейный кристалл трибората лития LBO – отрицательный двуосный точечной группы симметрии mm2. Показатели преломления на частоте 0.5 ТГц составляют $n_x = 2.62$, $n_y = 2.7$, $n_z = 2.27$ при комнатной температуре, коэффициенты поглощения $\alpha_x = 6.7 \text{ см}^{-1}$, $\alpha_y = 4 \text{ см}^{-1}$, $\alpha_z = 0.4 \text{ см}^{-1}$, которые также уменьшаются с увеличением длины волны. Дисперсионные уравнения ТГц диапазона для LBO имеют следующий вид:

$$n_x^2 = 2.453 + \frac{0.0119}{\lambda^2} + \frac{5.12 \times 10^{-5}}{\lambda^4} + \frac{4.2 \times 10^{-6}}{\lambda^6} + \frac{4.39\lambda^2}{\lambda^2 - 327}, \quad (5)$$

$$n_y^2 = 2.539 + \frac{0.0132}{\lambda^2} + \frac{7.12 \times 10^{-5}}{\lambda^4} + \frac{5.1 \times 10^{-6}}{\lambda^6} + \frac{4.76\lambda^2}{\lambda^2 - 246}, \quad (6)$$

$$n_z^2 = 2.589 + \frac{0.0122}{\lambda^2} + \frac{1.9 \times 10^{-4}}{\lambda^4} + \frac{3.3 \times 10^{-6}}{\lambda^6} + \frac{2.59\lambda^2}{\lambda^2 - 133}. \quad (7)$$

Для реализации в указанных кристаллах ГРЧ, в частности с центром генерации на частоте 0.5 ТГц был рассчитан угол фазового синхронизма $\theta_{\text{внутр}}^{\text{ФС}}$ с использованием уравнений (1)–(7). Для рассматриваемых кристаллов он составит: $\theta_{\text{BBO}}^{o \rightarrow e} = 6.98^\circ$; $\theta_{\text{LB4}}^{o \rightarrow o} = 10.98^\circ$; $\theta_{\text{LBO}}^{s \rightarrow s} = 55.56^\circ$ (в плоскости XZ).

Известно, что указанные кристаллы имеют высокую лучевую стойкость, которая лишь увеличивается с уменьшением длительности импульса (табл. 1).

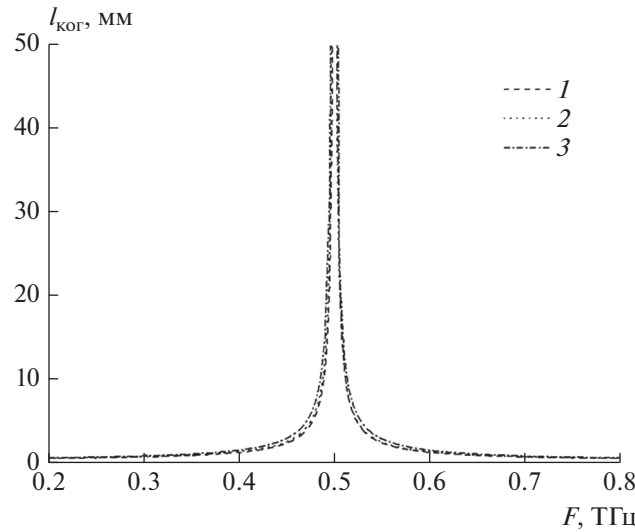


Рис. 2. Длина когерентности для нелинейных кристаллов LB4 (1), VBO (2) и LBO (3), вырезанных для реализации ГРЧ в режиме ФС на частоте 0.5 ТГц.

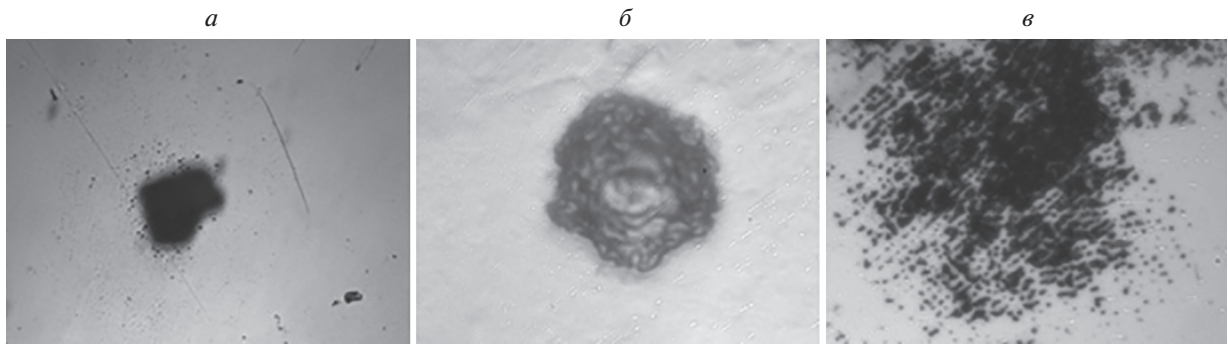


Рис. 3. Области повреждения кристаллов: VBO толщиной 0.5 мм (а), VBO толщиной 1.2 мм (б), LB4 толщиной 0.3 мм (в), при воздействии на них мощных фемтосекундных лазерных импульсов.

Однако, литературные справочные данные приводятся в основном для широко используемых импульсов накачки наносекундного диапазона. В отличие от них фемтосекундные импульсы излучения с длительностью 30–70 фс имеют широкую спектральную полосу, достаточную для ГРЧ в диапазоне 0.02–5 ТГц и высокую пиковую мощность. Последняя вместе с высокой лучевой стойкостью оксидных кристаллов может позволить компенсировать невысокие значения их нелинейных коэффициентов и получить более высокую пиковую мощность ТГц излучения.

Рассчитаем нелинейный коэффициент d_{eff} и коэффициент качества FOM для выбранных кристаллов согласно [5]:

$$d_{\text{eff}}^{\text{LB4}} (o - e \rightarrow e) = d_{15} \sin \theta = 0.09 \text{ пм/В}; \quad (8)$$

$$\text{FOM}_{\text{LB4}} = 0.001 \text{ пм}^2/\text{В}^2;$$

$$d_{\text{eff}}^{\text{VBO}} (o - e \rightarrow e) = d_{22} \cos^2 \theta \cos 3\varphi = 2.17 \text{ пм/В}; \quad (9)$$

$$\text{FOM}_{\text{VBO}} = 0.594 \text{ пм}^2/\text{В}^2;$$

$$d_{\text{eff}}^{\text{LBO}} (s - f \rightarrow s) = d_{32} \sin^2 \theta + d_{31} \cos^2 \theta = 0.79 \text{ пм/В}; \quad (10)$$

$$\text{FOM}_{\text{LBO}} = 0.09 \text{ пм}^2/\text{В}^2;$$

С использованием вышеприведенных дисперсионных уравнений рассчитана длина когерентности для рассматриваемых кристаллов. Результаты представлены на рис. 2.

Таблица 2. Лучевая стойкость образцов для фс длительности

Кристалл	Количество импульсов	Флюенс, Дж · см ⁻²	Порог разрушения, ТВт · см ⁻²	Погрешность, %
ВВО	1	6.4	107.4	±21
ВВО	100	4	66.2	±23
LB4	1	16.8	278.9	±12
LB4	100	5.3	87.6	±8

Для уточнения данных по лучевой стойкости кристаллов LB4, ВВО нами были проведены эксперименты с фемтосекундным импульсом накачки. Полученные результаты сведены в табл. 2. Можно видеть, что при малой длительности импульса накачки лучевая стойкость в этих кристаллах примерно на 3–5 порядков выше, чем при накачке наносекундными импульсами. Это означает, что несмотря на низкие значения нелинейных коэффициентов в оксидных кристаллах, но за счет высокой лучевой стойкости можно будет существенно повысить мощность ТГц излучения.

На рис. 3 представлены фотографии поврежденных участков кристаллов, которые были получены при интенсивностях, приведенных в табл. 2.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Показано, что несмотря на низкие нелинейные коэффициенты оксидные кристаллы по совокупности свойств могут обеспечивать более высокую пиковую выходную мощность в ТГц диапазоне, чем широко распространенные полупроводниковые и органические кристаллы со значительно более высокими значениями нелинейных коэффициентов. Это становится возможным при переходе от наносекундных импульсов накачки к фемтосекундным, когда лучевая стойкость в кристаллах повышается до сотен ТВт · см⁻².

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект № 19-19-00241).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Rao K.S., Ganesh D., Chaudhary A.K. // Opt. Laser Technol. 2018. V. 103. P. 126.
- Mei J., Zhong K., Wang M. et al. // Opt. Express. 2016. V. 24. No. 20. Art. No. 23368.
- Ruchert C., Vicario C., Hauri C.P. // Phys. Rev. Lett. 2013. V. 110. No. 12. Art. No. 123902.
- Ruchert C., Vicario C., Hauri C.P. // Opt. Lett. 2012. V. 37. No. 5. P. 899.
- Nikogosyan D.N. Nonlinear optical crystals: a complete survey. N.Y.: Springer, 2005. 428 p.
- Nikolaev N.A., Andreev Y.M., Antsygin V.D. et al. // J. Phys. Conf. Ser. 2018. V. 951. No. 1. Art. No. 012003.
- Николаев Н.А., Мамрашев А.А., Андреев Ю.М. и др. // Изв. вузов. Физика. 2020. Т. 63. № 12. С. 21; Nikolaev N.A., Mamrashev A.A., Andreev Y.M. et al. // Russ. Phys. J. 2021. V. 63. No. 12. P. 2066.
- Andreev Y.M., Kokh A.E., Kokh K.A. et al. // Opt. Mater. 2017. V. 66. P. 94.
- Kouta H. // Appl. Opt. 1999. V. 38. No. 3. P. 545.
- Zhang J.Y., Huang J.Y., Shen Y.R., Chen C. // J. Opt. Soc. Amer. B. 1993. V. 10. No. 9. P. 1758.
- Kanai T., Zhou X., Sekikawa T. et al. // Opt. Lett. 2003. V. 28. No. 16. P. 1484.
- Bayanov I.M., Gordienko V.M., Djidjoev M.S. et al. // Proc. SPIE. 1992. V. 1800. P. 2.
- Kaminskii A. A., Bohaty L., Becker P. et al. // Laser Phys. Lett. 2006. V. 3. No. 11. P. 519.
- Hildenbrand A., Kieleck C., Tyazhev A. et al. // Proc. SPIE. 2014. V. 8964. Art. No. 896417.
- Petrov V., Rotermund F., Noack F., Schunemann P. // Opt. Lett. 1999. V. 24. No. 6. P. 414.
- Vodopyanov K.L., Mirov S.B., Voevodin V.G., Schunemann P.G. // Opt. Commun. 1998. V. 155. No. 1–3. P. 47.
- Dahinten T., Plödereder U., Seilmeier A. et al. // IEEE J. Quantum Electron. 1993. V. 29. No. 7. P. 2245.
- Monozslai B., Vicario C., Jazbinsek M., Hauri C.P. // Opt. Lett. 2013. V. 38. No. 23. P. 5106.
- Bharath D., Kalainathan S. // Opt. Laser Technol. 2014. V. 63. P. 90.

Using of the oxide nonlinear crystals as frequency converters at the THz range**D. M. Lubenko^{a, *}, V. F. Losev^a, Yu. M. Andreev^b, D. M. Ezhov^c**^a *Institute of High Current Electronics of the Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences, Tomsk, 634055 Russia*^b *Institute of Monitoring of Climatic and Ecological Systems of the Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences, Tomsk, 634055 Russia*^c *National Research Tomsk State University, Tomsk, 634050 Russia***e-mail: lubenkodm@gmail.com*

The possibility of using oxide nonlinear crystals, such as beta-barium borate, lithium triborate and lithium tetraborate to create powerful sources of terahertz radiation working in atmosphere transparency windows is considered and substantiated. It is shown that oxide crystals can provide higher efficiency and power output in the terahertz range in terms of combined properties than that of widespread semiconductor and organic crystals.