Широкополосное параметрическое усиление в ближнем ИК-диапазоне (2–2.5 мкм) в условиях дисперсионных аномалий перестроечных характеристик с накачкой хром-форстеритовым лазером

Е.А. Мигаль¹⁾, Ф.В. Потемкин

Физический факультет и Международный учебно-научный лазерный центр, МГУ им. М.В. Ломоносова, 119992 Москва, Россия

Поступила в редакцию 15 января 2018 г. После переработки 18 января 2018 г.

Получена генерация импульсов с шириной спектра 450 нм на длине волны 2.2 мкм в параметрическом усилителе на основе кристалла BBO I типа взаимодействия с накачкой второй гармоникой хромфорстеритового лазера (620 нм). Генерация широкополосного излучения достигается за счет специфического режима согласования групповых скоростей взаимодействующих импульсов вблизи вертикального участка перестроечной кривой. Генерируемые импульсы могут быть компрессированы до длительности около 2.5 периодов поля (34 фс) за счет распространения в среде с положительной дисперсией групповых скоростей.

DOI: 10.7868/S0370274X18050041

Значительный интерес к фемтосекундным источникам ультракоротких импульсов диктуется широкими возможностями их применения как в научных исследованиях, так и прикладных областях науки. Импульсы, длительность которых составляет несколько оптических циклов поля, используются для изучения сверхбыстрых процессов изменения фазового состояния вещества [1], процессов переноса и релаксации носителей заряда [2, 3]. Даже при небольшой энергии в импульсе (0.1-10 мкДж) фокусировка такого излучения в вещество приводит к существенно нелинейному отклику среды, выражающемся в генерации оптических гармоник [4, 5]. При использовании фокусирующей оптики с большей числовой апертурой (NA ~ 0.4-0.5) локальное изменение электронной плотности в области перетяжки лазерного излучения вплоть до критической (для длины волны возбуждающего импульса) может привести к формированию устойчивых структур в веществе - микромодификаций, и даже созданию новых фаз вещества [6]. При этом использование ультракоротких импульсов ближнего и среднего ИКдиапазона в двухимпульсной методике воздействия позволяет существенно повысить энерговклад в среду [7]. Кроме того, длинноволновые источники излучения ультракоротких импульсов позволяют создавать модификации в режиме туннельной ионизации в объеме полупроводников, что находит свое применение при разработке кремниевой микроэлектроники и фотоники.

Наиболее простым и эффективным методом генерации излучения ближнего и среднего ИКдиапазонов на сегодняшний день является оптическое параметрическое усиление. Особенность процессов параметрического усиления и генерации ультракоротких (фемтосекундных) импульсов необходимость согласования групповых скоростей взаимодействующих импульсов на всей длине нелинейного кристалла. Для достижения эффективного усиления и, как следствие, широкополосной генерации обычно используется один из следующих подходов: (i) генерация в вырожденном режиме в кристаллах I типа [8–10] и (ii) генерация с использованием неколлинеарной геометрии в кристаллах I типа [11–13] и II типа [14]. С помощью указанных методов были созданы параметрические усилители в видимом и ближнем ИК-диапазоне с длительностью импульса до 3.9 фс (порядка двух оптических циклов поля) [11] и выходной мощностью до 0.56 ПВт [15]. В то же время применение таких схем имеет ряд недостатков. Например, в случае использования вырожденного режима генерации параметрический усилитель фактически работает на фиксированной длине волны, так как отстройка от вырождения при-

 $^{^{1)}{\}rm e\text{-}mail:}$ ea.migalj@physics.msu.ru

водит как к уменьшению коэффициента усиления, так и ширины синхронизма. Важной особенностью неколлинеарной геометрии является наличие углового чирпирования холостого импульса, компенсация которого необходима для дальнейшего использования излучения (распространение, фокусировка), что однако приводит к дополнительным потерям и значительному усложнению схемы [16].

Альтернативный подход для генерации широкополосного излучения – это поиск областей согласования групповых скоростей в коллинеарной схеме. Такие области возникают в окрестности аномалий перестроечных характеристик параметрического усилителя, которые впервые были рассмотрены теоретически в работах [17–19]. Аномальные участки представляют собой области перегибов перестроечной кривой, количество и положение которых существенно зависит от длины волны накачки [20]. На рис. 1 приведены расчеты перестроечных характери-



Рис. 1. (Цветной онлайн) Угловые перестроечные характеристики параметрического усилителя света на кристалле BBO I типа для длин волн накачки в диапазоне 500–800 нм

стик для разных длин волн накачки для кристалла BBO I типа (уравнения Селлмейера взяты из работы [21]). Стандартный вид перестроечной кривой представляет собой параболу и наблюдается для длин волн накачки, превышающих 800 нм. При длине волны накачки ~714 нм наблюдается широкая область некритического синхронизма: длина волны генерации в диапазоне 1.1–2 мкм практически не зависит от угла синхронизма. Появление такого вертикального участка на перестроечной кривой непосредственно связано с дисперсионными свойствами кристалла BBO. При длине волны накачки 714 нм ("magic wavelength" для кристалла BBO) близка к нулю не только расстройка групповых скоростей между сигнальным и холостым импульсом (за счет генерации вблизи вырожденного режима), но и дисперсия групповых скоростей (ДГС). что приводит к широкополосной генерации [17]. Аналогичный эффект наблюдался экспериментально для кристалла ВіВО, ноль ДГС которого достигается на длине волны 1.6 мкм [22]. При дальнейшем уменьшении длины волны накачки перестроечные кривые становятся более сложными и демонстрируют аномальное поведение (наличие трех перегибов). При этом видно, что в диапазоне 550-700 нм условие фазового синхронизма для одного и того же угла может выполняться для двух пар волн одновременно ("retracing behavior"). Такая генерация была продемонстрирована экспериментально в пикосекундном параметрическом усилителе с накачкой второй гармоникой Nd:YAG лазера (532 нм) в кристаллах LBO [18] и BBO [21]. В отличие от пикосекундных параметрических усилителей в параметрических источниках ультракоротких импульсов этот эффект может быть использован для широкополосной генерации. При этом за счет отстройки от вырожденного режима эффективное усиление можно получить в области ближнего и среднего ИК-диапазонов. Например, в нашей работе [23] исследовалась генерация в кристалле КТА II типа взаимодействия, в котором вертикальный участок перестроечной кривой существует в среднем ИК-диапазоне (~ 4 мкм).

Предметом данной статьи являлось экспериментальное исследование возможностей генерации широкополосного излучения вдали от вырождения в кристалле BBO I типа в окрестности аномальных участков перестроечных кривых.

Как уже отмечалось ранее, расстройка групповых скоростей взаимодействующих импульсов является ключевым параметром в фемтосекундных параметрических усилителях. Отсутствие группового синхронизма ограничивает как длину эффективной генерации, так и спектральную ширину генерируемых импульсов. Для выбора оптимальной длины кристалла предварительно рассчитывались расстройки групповых скоростей $\delta_{ij} = \frac{1}{v_{gi}} - \frac{1}{v_{gj}}$, где v_{gi}, v_{gj} – групповые скорости накачки, сигнального и холостого импульсов. Результаты расчетов приведены на рис. 2: с приближением к диапазону длин волн 2.2–2.5 мкм, соответствующему вертикальному участку перестроечной кривой, расстройки групповых скоростей существенно уменьшаются. Фиолетовой кривой (2) на графике приведена оптимальная длина нелинейного кристалла для импульса накачки длительностью 120 фс, полученная как минимальная



Рис. 2. (Цветной онлайн) Расстройки групповых скоростей сигнального и холостого импульса $\delta_{\rm si}$ (1), сигнального импульса и накачки $\delta_{\rm sp}$ (3), холостого импульса и накачки $\delta_{\rm ip}$ (4) в зависимости от длины волны холостого импульса для кристалла BBO I типа синхронизма. Длина волны накачки 620 нм. Расчетная оптимальная длина кристалла показана линией 2

из групповых длин. Видно, что в указанной области длин волн можно использовать достаточно длинные кристаллы – 5–9 мм. Так как параметрическое усиление слабого сигнала экспоненциально зависит от длины среды [24], такой параметрический усилитель будет обладать очень высокой эффективностью преобразования. Для наших исследований был выбран кристалл длиной 6 мм, позволяющий эффективно усиливать импульсы в диапазоне длин волн 2.3–2.5 мкм.

Оптическая схема исследуемого параметрического усилителя приведена на рис 3. Излучение хромфорстеритового лазера (длина волны 1240 нм, длительность 170 фс, выходная энергия до 2.6 мДж) предварительно преобразовывалось в излучение второй гармоники (ВГ) (длина волны 620 нм, длительность 120 фс), которое использовалось для накачки параметрического усилителя. В качестве кристалла генератора ВГ взят кристалл ВВО ($\theta = 21, \phi = 90$) длиной 1 мм. Кристалл накачивался излучением с энергией 860 мкДж. Эффективность преобразования в ВГ составляла $\sim 40\%$, так что непосредственно для накачки параметрического усилителя использовалось 340 мкДж. Излучение ВГ проходило через линию задержки для согласования во времени с излучением инжекции. Затравочное излучение в области перестройки сигнальной волны (800-950 нм) генерировалось при филаментации части излучения хром-форстеритового лазера (7-10 мкДж) в образце кварца длиной 9 мм (рис. 3). Излучение фокусировалось в кристалл линзой с фокусным расстояни-



Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Схема параметрического усилителя: BBO1, BBO2 – нелинейные кристаллы, DM – дихроичное зеркало, DL – линия задержки. (b) – Спектр суперконтинуума генерируемого в образце кварца длиной 9 мм при падающей мощности 3.6*P*_{cr}

ем 10 см. Для плавной подстройки падающей энергии использовался тонкопленочный поляризатор и ирисовая диафрагма. Генерируемое излучение суперконтинуума коллимировалось ахроматической линзой с фокусным расстоянием 40 мм и заводилось в кристалл BBO. Интенсивность накачки на кристалле подстраивалась таким образом, чтобы отсутствовала параметрическая суперфлуоресценция из кристалла при отсутствии излучения инжекции. При оптимальных условиях интенсивность накачки составляла 40–50 ГВт/см². Кристалл BBO размером $4 \times 4 \times 6$ мм³ (производство компании LEA Ltd., Новосибирск) был вырезан под углом 21 град.

На выходе из параметрического усилителя регистрировались энергия и спектр холостой волны. Для регистрации энергии использовался калиброванный детектор Gentec QE-B. Спектры холостой волны измерялись спектрометром Solar SDH-IV. На рис. 4 приведена угловая перестройка параметрического усилителя. Видно, что при приближении длины волны генерации к области вертикального участка перестроечной кривой (2.3 мкм) спектральная ширина генерируемых импульсов резко возрастает, что непосредственно связано с уменьшением расстройки групповых скоростей в этом диапазоне длин волн. Ширина спектра холостого импульса на длине волны 1825 нм составляет 216 нм (FWHM), а на длине волны 2240 нм – 450 нм. При этом в спектре наибо-



Рис. 4. (Цветной онлайн) Спектры(1–6) и энергия (7) холостой волны на выходе параметрического усилителя на основе кристалла BBO I типа длиной 6 мм. Вставка: пространственное распределение интенсивности в пучке на длине волны 2.2 мкм, измеренное в дальней зоне

лее широкополосного импульса (кривая 5 на рис. 4) выделяется двухпиковая структура, что связано с приближением к вертикальному участку перестроечной кривой. Как следует из рис. 1, в таком случае при фиксированном угле синхронизма в кристалле возможна генерация двух пар длин волн. В фемтосекундном усилителе за счет существенной спектральной ширины генерируемые импульсы частично или полностью перекрываются, образуя единый широкий спектр, так что генерация двух уединенных импульсов не наблюдается. Стоит отметить, что аналогичное свойство параметрических усилителей используется при генерации в вырожденном режиме, где нелинейный кристалл отстраивается от точного угла вырождения для увеличения спектральной ширины [9]. При этом отмечалось, что для такой отстройки два генерируемых пучка (сигнальный и холостой) интерферируют между собой, давая значительную модуляцию спектра. В нашем случае интерференции не наблюдалось, а выходное излучение имело гауссово пространственное распределение (профиль пучка, измеренный в дальней зоне с помощью пироэлектрической камеры Spiricon Pvrocam III, приведен на вставке к рис. 4). При дальнейшем повороте нелинейного кристалла спектр параметрического усилителя незначительно перестраивался, а эффективность генерации резко снижалась. Спектральная ширина генерируемого холостого импульса соответствует спектрально ограниченному импульсу длительностью 34 фс, что составляет менее трех оптических циклов поля. Так как кристалл ВВО в этом диапазоне длин волн обладает значительной дисперсией групповых скоростей (243 фс/мм²), то генерируемый импульс не является спектрально ограниченным. Однако приобретенная им спектральная фаза, может быть легко компенсирована при распространении излучения в средах с положительной дисперсией групповых скоростей в этом диапазоне длин волн (германий, арсенид галлия и др.).

Выходная энергия параметрического усилителя слабо меняется с длиной волны и превышает 7 мкДж во всем диапазоне длин волн 1.6–2.4 мкм. Энергия холостого импульса на длине волны 2.2 мкм составляет 11 мкДж.

Подводем итог. В данной работе впервые продемонстрирована возможность генерации широкополосного излучения, перестраиваемого в диапазоне длин волн 1.6-2.6 мкм в коллинеарной однокаскадной схеме на основе кристалла BBO I типа с накачкой хром-форстеритовым лазером. Генерируемые импульсы имеют ширину спектра 450 нм на длине волны 2240 нм, что соответствует импульсу с длительностью порядка 2.5 периодов поля. Выходная энергия холостого импульса составляет 11 мкДж и может быть увеличена путем создания дополнительных каскадов усиления. Таким образом, разработанный параметрический усилитель может быть успешно использован для решения различных задач, включая создание лазерно-индуцированного экстремального состояния вещества с формированием новых фаз в объеме диэлектриков и полупроводников при использовании остросфокусированных фемтосекундных низкоэнергетичных (мкДж) импульсов, что важно для развития фемтотехнологий.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (проект 17-72-20130).

- B. Mayer, C. Schmidt, A. Grupp, J. Bühler, J. Oelmann, R. E. Marvel, R. F. Haglund, T. Oka, D. Brida, A. Leitenstorfer, and A. Pashkin, Phys. Rev. B 91, 235113 (2015).
- S. M. Falke, C. A. Rozzi, D. Brida, M. Maiuri, M. Amato, E. Sommer, A. De Sio, A. Rubio, G. Cerullo, E. Molinari, and C. Lienau, Science **344**, 1001 (2014).
- D. Brida, A. Tomadin, C. Manzoni, Y.J. Kim, A. Lombardo, S. Milana, R.R. Nair, K.S. Novoselov, A.C. Ferrari, G. Cerullo, and M. Polini, Nat. Commun. 4, 1987 (2013).
- C. M. Heyl, J. Güdde, A. L'Huillier, and U. Höfer, J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys. 45, 7420 (2012).
- E. A. Migal, F. V. Potemkin, and V. M. Gordienko, Opt. Lett. 42, 5218 (2017).
- L. Rapp, B. Haberl, C.J. Pickard, J.E. Bradby, E.G. Gamaly, J.S. Williams, and A.V. Rode, Nat. Commun. 6, 7555 (2015).

Широкополосное параметрическое усиление ...

- F. Potemkin, E. Mareev, Y. Bezsudnova, V. Platonenko, B. Bravy, and V. Gordienko, Appl. Phys. Lett. **110**, 163903 (2017).
- J. Limpert, C. Aguergaray, S. Montant, I. Manek-Hönninger, S. Petit, D. Descamps, E. Cormier, and F. Salin, Opt. Express 13, 7386 (2005).
- D. Brida, G. Cirmi, C. Manzoni, S. Bonora, P. Villoresi, S. De Silvestri, and G. Cerullo, Opt. Lett. 33, 741 (2008).
- A. M. Siddiqui, G. Cirmi, D. Brida, F. X. Kärtner, and G. Cerullo, Opt. Lett. **34**, 3592 (2009).
- A. Baltuška, T. Fuji, and T. Kobayashi, Opt. Lett. 27, 306 (2002).
- J. Nillon, O. Crégut, C. Bressler, and S. Haacke, Opt. Express 22, 14964 (2014).
- V.V. Lozhkarev, G.I. Freidman, V.N. Ginzburg, E.A. Khazanov, O.V. Palashov, A.M. Sergeev, and I.V. Yakovlev, Laser Phys. 15, 1319 (2005).
- C. Schmidt, J. Bühler, A.-C. Heinrich, A. Leitenstorfer, and D. Brida, J. Opt. 17, 94003 (2015).
- V. V. Lozhkarev, G.I. Freidman, V.N. Ginzburg, E.V. Katin, E.A. Khazanov, A.V. Kirsanov, G.A. Luchinin, A.N. Mal'shakov, M.A. Martyanov, O.V. Palashov, A.K. Poteomkin, A.M. Sergeev,

A. A. Shaykin, and I. V. Yakovlev, Laser Phys. Lett. 4, 421 (2007).

- S.-W. Huang, J. Moses, and F.X. Kärtner, Opt. Lett. 37, 2796 (2012).
- A. Birmontas, A. Piskarskas, and A. Stabinis, Sov. J. Quantum Electron. 13, 1243 (1983).
- X. Liu, D. Deng, M. Li, D. Guo, and Z. Xu, J. Appl. Phys. 74, 2989 (1993).
- B. Bareika, A. Birmontas, G. A. Dikchyus, A. Piskarskas, V. Sirutkaitis, and A. Stabinis, Sov. J. Quantum Electron. 12, 1654 (1982).
- S.N. Orlov, E.V. Pestryakov, and Y.N. Polivanov, Quantum Electron. 34, 477 (2004).
- D. Zhang, Y. Kong, and J.Y. Zhang, Opt. Commun. 184, 485 (2000).
- V. Petrov, M. Ghotbi, O. Kokabee, A. Esteban-Martin, F. Noack, A. Gaydardzhiev, I. Nikolov, P. Tzankov, I. Buchvarov, K. Miyata, A. Majchrowski, I. V. Kityk, F. Rotermund, E. Michalski, and M. Ebrahim-Zadeh, Laser Photon. Rev. 4, 53 (2010).
- F. V. Potemkin, E. A. Migal, A. A. Podshivalov, and V. M. Gordienko, J. Opt. 18, 95502 (2016).
- G. Cerullo and S. De Silvestri, Rev. Sci. Instrum. 74, 1 (2003).