Письма в ЖЭТФ, том 122, вып. 10, с. 644 – 649

Генерация широкополосных фемтосекундных импульсов среднего инфракрасного диапазона путем генерации разностной частоты импульсов титан-сапфирового лазера в кристалле $BaGa_2GeS_6$

И. О. Киняевский[+], *М. В. Ионин*[+1)], *А. В. Корибут*[+], *Я. В. Грудцын*[+], *Ю. М. Климачев*[+], *Д. В. Бадиков*[*]

[+]*Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия*

[*]*Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования “Кубанский государственный университет”, 350040 Краснодар, Россия*

Поступила в редакцию 21 октября 2025 г.
После переработки 21 октября 2025 г.
Принята к публикации 21 октября 2025 г.

Экспериментально исследована генерация разностной частоты 100-фемтосекундных импульсов титан-сапфирового лазера в область длин волн 5–10 мкм в нелинейном кристалле $BaGa_2GeS_6$, который показал себя одним из лучших для получения предельно коротких лазерных импульсов в этом спектральном диапазоне. Максимальная энергия лазерного импульса с центральной длиной волны 6 мкм и шириной спектра около половины октавы составила 14 мкДж. Экспериментально показано, что вариация энергии лазерного импульса до филамента, формирующего сигнальную волну, не влияет на энергию импульса излучения разностной частоты, если уширение достигает требуемого частотного сдвига.

DOI: 10.31857/S0370274X25110174

Введение. Разработка мощных и эффективных лазерных источников, излучающих ультракороткие импульсы среднего инфракрасного (ИК) диапазона, мотивирована потребностями науки и практики, такими задачами, как ускорение частиц [1], анализ динамики атомов [2], лазерная хирургия [3]. Для достижения этой цели активно изучаются и совершенствуются устройства параметрического преобразования частоты, использующие нелинейные кристаллы, такие как генераторы разностной частоты (РЧ), оптические параметрические генераторы и усилители [4–10]. Отметим, что для достижения высокой энергии импульсов в среднем ИК-диапазоне зачастую приходится использовать сложные системы с несколькими каскадами оптических параметрических усилителей [10], что делает лазерные установки громоздкими и чувствительными к их настройке.

Ранее была продемонстрирована простая и эффективная схема генерации РЧ в средний ИК-диапазон с использованием одного нелинейного кристалла, накачиваемого фемтосекундными импульсами титан-сапфирового лазера [11–13]. В схеме сигнальная волна формируется путем спектрального уширения лазерного импульса при его филаментации в молекулярном газе. Наибольшую энергию импульсов РЧ в этой схеме продемонстрировали кристаллы $HgGa_2S_4$ и $BaGa_2GeSe_6$ – 35 и 12.5 мкДж, соответственно [13]. Несмотря на большую нелинейность, кристалл $BaGa_2GeSe_6$ показал меньшую энергию импульса РЧ из-за эффекта двухфотонного поглощения импульсов накачки [11].

В настоящей работе в качестве нелинейного кристалла для генерации РЧ импульсов титан-сапфирового лазера исследуется кристалл $BaGa_2GeS_6$ (BGGS). Первые образцы данного кристалла размером в несколько кубических сантиметров и высокого оптического качества удалось вырастить в Кубанском государственном университете группой В. В. Бадикова в 2016 г. [14]. Преимуществом этого кристалла является хорошее сочетание широкого диапазона прозрачности (0.4–11.8 мкм) и большой ширины запрещенной зоны – 3.37 эВ [14]. Такая ширина запрещенной зоны исключает двухфотонное поглощение для излучения широко распространенных фемтосекундных лазеров с длиной волны ~ 1 мкм, в том числе титан-сапфирового лазера ($\lambda \sim 0.95$ мкм), использованного в [11–13]. Однако до последнего времени этот материал не демонстрировал высокой эффективности преобразования частоты лазерного излучения, что было обусловлено неопределенностью его значений коэффициентов тензора нелинейной восприимчивости d_{ij}.

Впервые значения d_{ij} для кристалла BGGS (так же, как и BGGSe) приводятся в работе [15], которые были получены численным методом. В работе

1)e-mail: ioninmv@lebedev.ru

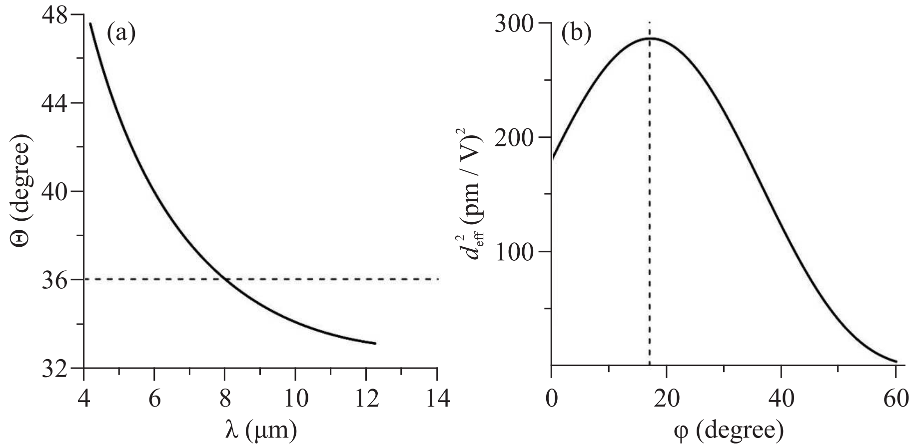

Рис. 1. Рассчитанные углы ФС (a) от длины волны излучения РЧ (λ) и квадрат эффективной нелинейности (b) от угла φ по II-типу ФС в кристалле BGGS, пунктирная линия соответствует значениям углов среза экспериментального образца

[16] приведены значения d_{ij}, полученные экспериментально, а в работе [17] проведена их проверка путем исследования генерации суммарных частот по I и II типу фазового синхронизма (ФС) с использованием излучения широкополосного CO-лазера ($\lambda \sim \sim 5{-}6$ мкм). В работе [18] кристалл BGGS с уточненной ориентацией продемонстрировал высокую эффективность преобразования лазерных импульсов с длиной волны 1.24 мкм, удалось получить генерацию сигнального импульса с энергией 340 мкДж (1.67 мкм) и импульса холостой волны с энергией 100 мкДж (4.65 мкм) с эффективностью преобразования 28 %.

Таким образом, целью предлагаемой работы являлось экспериментальное исследование генерации РЧ фемтосекундных импульсов титан-сапфирового лазера в перспективном кристалле BGGS.

Кристалл BGGS. Экспериментальный образец нелинейного кристалла BGGS размером $7 \times 5.7 \times \times 0.7$ мм^3, вырезанный под полярным углом $\theta = 36°$ и азимутальным углом $\varphi = 17°$, был изготовлен группой Д. В. Бадикова в Лаборатории новейших технологий Кубанского государственного университета.

На рисунке 1a представлены рассчитанные углы ФС для генерации РЧ (II-тип ФС) между импульсом накачки ($\lambda = 0.95$ мкм) и сигнальным импульсом, который представляет из себя широкополосное излучение ближнего ИК-диапазона ($\lambda = 1.0{-}1.2$ мкм). Рисунок 1a показывает, что угол среза образца соответствует генерации РЧ с длиной волны ~ 8 мкм. Отметим, что дисперсионные уравнения для кристалла BGGS были взяты из [14]. На рисунке 1b представлена зависимость квадрата эффективной нелинейности от угла φ в кристалле BGGS (сплошная линия), рассчитанная по данным работы [16]. По графику видно, что значение угла среза образца $\varphi = 17°$ (пунктирная линия) соответствует максимуму квадрата эффективной нелинейности ~ 285 [пм/В]^2, т.е. кристалл при нормальном падении на него излучения накачки ориентирован по углу φ на наибольшую эффективность преобразования.

Было измерено пропускание образца кристалла BGGS в видимом, ближнем и среднем ИК-диапазоне (рис. 2). Коэффициент пропускания в диапазоне

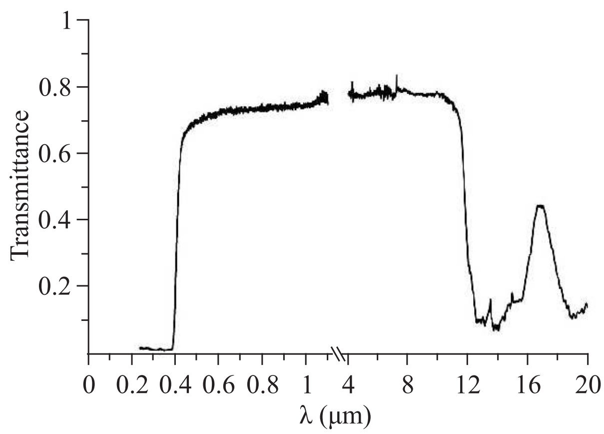

Рис. 2. Пропускание образца кристалла BGGS

длин волн 0.3–1.5 мкм измерялся на спектрофотометре СФ-2000 (ООО “ОКБ СПЕКТР”, Россия), а в диапазоне длин волн 4.0–20 мкм измерялся на ИК Фурье-спектрометре АФ-3 (НТЦ УП РАН, Россия). Кристалл BGGS имеет высокое пропускание (на уровне 70 ± 5 %) в диапазоне длин волн от 0.4–11 мкм. Отсутствие аномальных линий и полос поглощения указывает на высокое оптическое каче-

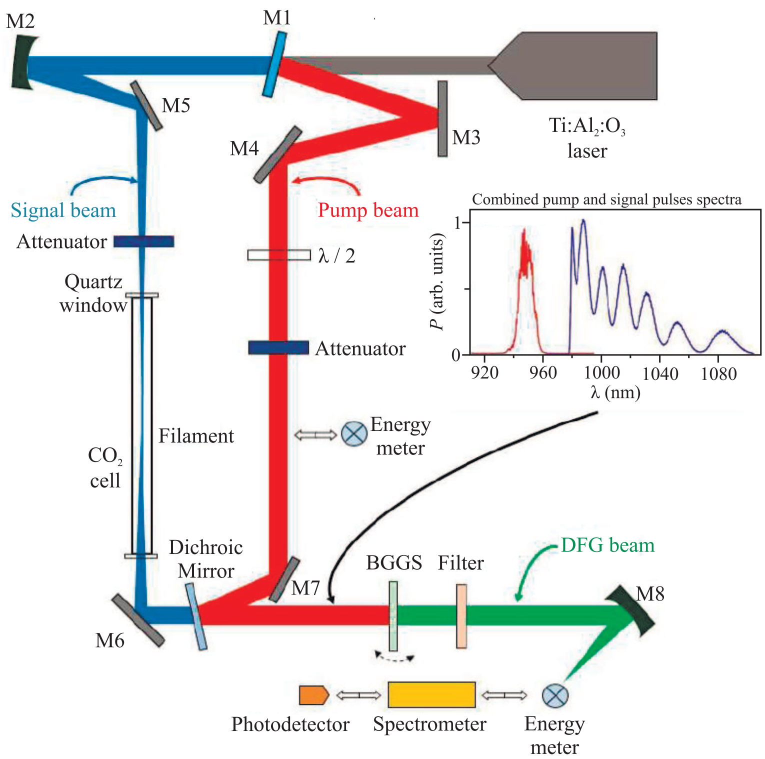

Рис. 3. (Цветной онлайн) Оптическая схема эксперимента

ство образца. Пропускание, представленное на рис. 2, подтверждает, что для излучения с длиной волны 0.95 мкм не должно наблюдаться двухфотонного поглощения. Отметим, что образец не демонстрирует существенного поглощения на длине волны 10.6 мкм, что позволяет использовать данный кристалл для формирования затравочного излучения для CO_2 лазерного усилителя высокого давления.

Описание эксперимента. Оптическая схема эксперимента по генерации РЧ изображена на рис. 3. В качестве источника излучения применялся титан-сапфировый лазер "СТАРТ-480М" (ООО "Авеста Проект", Россия). Центральная длина волны лазера составляла около 0.95 мкм, ширина спектра по полувысоте составляла ~ 12 нм, длительность импульсов равнялась 100 фс, а частота их следования – 10 Гц. Луч лазера разделялся на две части с использованием частично отражающего зеркала (M1 на рис. 3). Отраженная часть, обладающая энергией до 2.5 мДж, служила волной накачки для кристалла BGGS, тогда как прошедшая часть с энергией ~ 2 мДж использовалась для формирования сигнальной волны. Для регулировки энергии импульсов накачки или сигнальной волны применялся управляемый дифракционный ослабитель.

Поляризация волны накачки поворачивалась на 90° с помощью полуволновой пластинки, чтобы обеспечить соответствие обыкновенной волне в кристалле BGGS. Сигнальная волна направлялась сферическим зеркалом M2 с фокусным расстоянием $f = 2$ м в газовую ячейку длиной 1.46 м, заполненную углекислым газом (CO_2) под давлением 1 атм. Внутри ячейки происходило уширение спектра импульса за счет эффекта фазовой самомодуляции в филаменте. После этого волна накачки и сигнальная волна совмещались с использованием дихроичного зеркала (LP02-980RU-25, Semrock, США). Синхронизация импульсов по времени достигалась за счет контроля оптической длины плеча схемы с волной накачки путем перемещения зеркала M3. Для направления излучения использовались поворотные зеркала M4–M7. Спектральные характеристики излучения волны накачки и сигнальной волны, падающие на BGGS (после совмещения на дихроичном зеркале), показаны на вставке рис. 3. Энергия сигнального импульса после прохождения дихроичного зеркала составила 0.45 мДж.

Объединенный лазерный импульс направлялся в нелинейный кристалл BGGS без использования фокусировки. Излучение среднего ИК-диапазона, возникающее в кристалле, отделялось от излучения ближнего ИК-диапазона с помощью фильтра # 5 из набора фильтров ИК-спектрометра ИКС-31 (ЛОМО, Россия). Для регистрации импульсов РЧ, излучение фокусировалось с помощью сферического зеркала M8 ($f = 2$ м) в фотоприемник PEM-L-3 (VIGO Systems, Польша). Измерение спектров проводилось с использованием самодельного спектрометра, оснащенного дифракционной решеткой с плотностью 75 штрихов/мм и фотоприемником PEM-L-3. Средняя энергия импульсов РЧ определялась измерителем мощности Ophir-PE9.

Результаты эксперимента. На рисунке 4 представлена измеренная зависимость энергии импульса излучения РЧ от угла падения излучения накачки на кристалл BGGS (α) при энергии импульса накачки $E_{\mathrm{pump}} = 1$ мДж. Угол α был пересчитан в угол между волновым вектором излучения накачки и оптической осью кристалла θ (угол ФС), верхняя ось X на рис. 4. Над рисунком указана ожидаемая длина волны излучения РЧ, определенная из расчетов условий ФС (см. рис. 1).

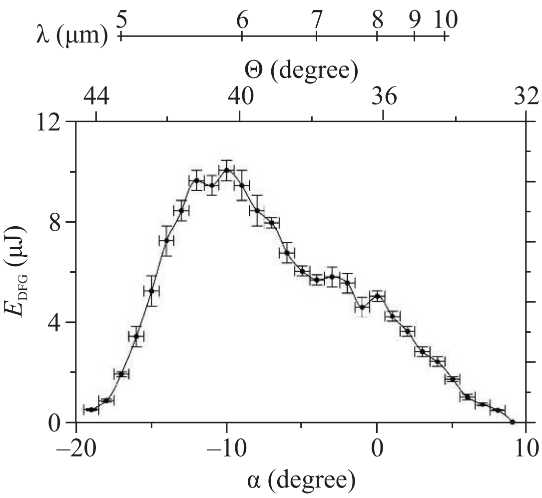

Рис. 4. Зависимость энергии импульса РЧ от угла падения излучения на кристалл α (нижняя ось), а также угла ФС (средняя ось), который соответствует длине волны излучения РЧ (верхняя ось)

Реализованный диапазон перестройки угла падения α, согласно расчетам, соответствует диапазону перестройки длины волны излучения РЧ 5–12 мкм. Наибольшая энергия импульсов РЧ получена при угле $\alpha \approx -10°$ ($\theta \approx 40.3°$), что соответствует длине волны излучения РЧ ~ 6 мкм. Снижение энергии импульсов РЧ с длиной волны ~ 5 мкм обусловлено уменьшением энергии соответствующей части уширенного спектра сигнальной волны, то есть излучения с частотным сдвигом $\sim 2000\,\text{см}^{-1}$ относительно импульса накачки с $\lambda = 950$ нм (см. вставку на рис. 3), а также потерями на фильтре среднего ИК-диапазона для $\lambda \leq 5$ мкм. Снижение энергии импульсов РЧ при увеличении длины волны излучения РЧ объясняется уменьшением соотношения Мэнли–Роу при смещении спектра в область более длинных волн.

После этого, при угле $\alpha \approx -10°$ ($\theta \approx 40.3°$) была измерена зависимость энергии импульса РЧ от энергии импульса накачки (рис. 5a).

При E_{pump} до ~ 1 мДж зависимость на рис. 5a близка к линейной, что согласуется с теорией параметрического преобразования частоты, однако при $E_{\mathrm{pump}} \sim 2$ мДж рост энергии импульсов РЧ замедляется – наблюдается "насыщение" преобразования. Наибольшая энергия импульса РЧ составила $\sim 14 \pm 1$ мкДж при энергии накачки 2 мДж, что соответствует внешней энергетической эффективности генерации РЧ – 0.7 %. С учетом потерь на френелевское отражение от непросветленных граней кристалла внутренняя квантовая эффективность преобразования фотонов с длиной волны 0.95 мкм в фотоны с длиной волны 6 мкм составила ~ 6 %. Отметим, что согласно теории параметрического преобразования частоты (см., например, [19]), "насыщение" должно начинаться при квантовой эффективности преобразования более 80 %. Одной из причин "насыщения" преобразования могло быть нелинейное поглощение излучения накачки. Однако, измеренная зависимость коэффициента пропускания BGGS от энергии импульса накачки, представленная на рис. 5b, показывает, что пропускание образца BGGS в диапазоне энергий от 0.6 до 2.2 мДж оставалось на уровне ~ 75 %. Другими словами, заметного нелинейного (трехфотонного) поглощения в BGGS не происходило. Также отметим, что нами не зарегистрировано видимого оптического повреждения образца кристалла даже при энергии накачки 2.2 мДж, поэтому причины "насыщения" эффективности генерации РЧ в BGGS на данный момент остаются не ясными и требуют дальнейшего исследования.

Далее впервые исследовано влияние энергии импульса, формирующего сигнальную волну, на эффективность генерации РЧ в схеме, где сигнальная волна формируется путем уширения спектра при филаментации в газовой ячейке. Отметим, что при увеличении энергии импульса на входе в газовую ячейку ширина спектра и энергия стоксового крыла увеличиваются [20], поэтому ожидалось, что это позволит увеличить энергию импульса РЧ при прочих равных условиях. На рисунке 6 представлена зависимость энергии импульса РЧ от энергии импульса на входе в газовую ячейку, формирующую сигнальную волну. При этом энергия импульса накачки оставалась фиксированной и равнялась ~ 0.9 мДж. Измерения проводились при настройке ФС кристалла BGGS на длины волн 6 и 8 мкм.

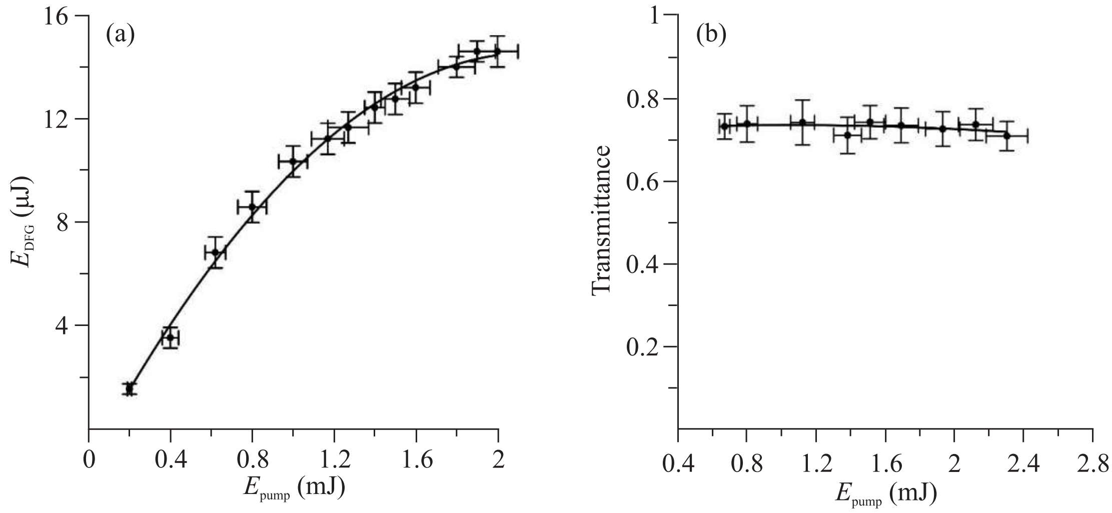

Рис. 5. Энергия импульса РЧ в зависимости от энергии импульса накачки при угле ФС $\theta \approx 40.3^\circ$, соответствующему длине волны излучения РЧ ~ 6 мкм (a). Зависимость пропускания кристалла BGGS от энергии импульса накачки (b)

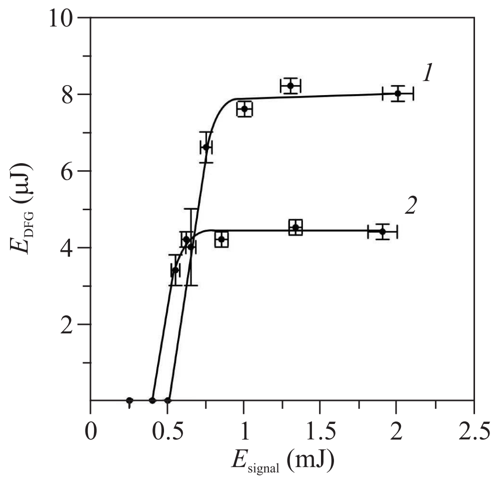

Рис. 6. Зависимость энергии импульса РЧ от энергии импульса, формирующего сигнальную волну: *1* – длина волны 6 мкм; *2* – длина волны 8 мкм

Зависимости на рис. 6 имели форму ступеньки, что объясняется следующим: пока энергии лазерного импульса недостаточно, чтобы уширение спектра в филаменте достигало требуемого частотного сдвига ($1250\,\text{см}^{-1}$ для $\lambda = 8$ мкм и $1667\,\text{см}^{-1}$ для $\lambda = 6$ мкм), генерация РЧ не реализуется. Когда уширение спектра достигает требуемого частотного сдвига, появляется резкий скачок энергии импульса РЧ. При дальнейшем повышении энергии лазерного импульса на входе в газовую ячейку идет увеличение уширения, при этом спектральная яркость излучения с заданным частотным сдвигом остается постоянной и не приводит к увеличению эффективности генерации РЧ. Отметим, что данная "ступенька" для излучения РЧ с длиной волны 8 мкм появляется при меньшей энергии, поскольку большие длины волн излучения РЧ соответствуют меньшему частотному сдвигу в сигнальной волне.

На рисунке 7 показаны характерные спектры импульсов РЧ, измеренные при разных углах ФС: $\theta \sim 40^\circ$ ($\alpha = -10^\circ$), $\theta \sim 37^\circ$ ($\alpha = -3^\circ$), $\theta \sim 36^\circ$ ($\alpha = 0^\circ$) и $\theta \sim 35^\circ$ ($\alpha = 2^\circ$). При этих углах центральная длина волны излучения РЧ перестраивалась от 6 до 8.5 мкм, что хорошо согласуются с расчетными данными (см. рис. 1 или 4). Можно заметить, что каждый спектр импульса РЧ имел ширину, порядка половины октавы, которая значительно больше ширины спектра импульса РЧ, полученных с помощью кристалла $HgGa_2S_4$ [13]. Таким образом, кристалл BGGS выглядит привлекательным для получения наиболее коротких лазерных импульсов в длинноволновой области среднего ИК-диапазона.

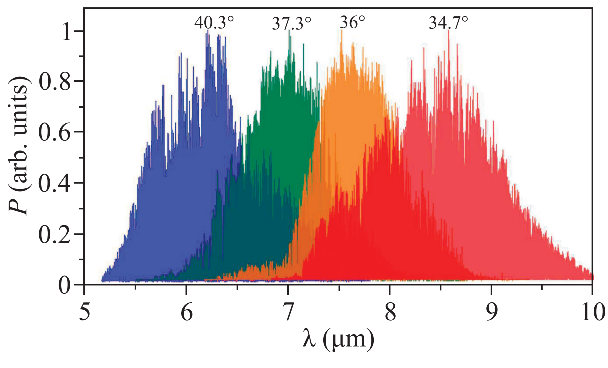

Рис. 7. (Цветной онлайн) Спектры импульса РЧ, полученные в кристалле BGGS при различных углах ФС

Заключение. Экспериментально исследовано преобразование фемтосекундных импульсов титан-сапфирового лазера в длинноволновую область среднего ИК диапазона (методом генерации РЧ) в нелинейном кристалле $BaGa_2GeS_6$ размером $7 \times 5.7 \times 0.7\,мм^3$, вырезанным под углами $\theta = 36°$, $\varphi = 17°$. Продемонстрирована перестройка центральной длины волны излучения РЧ от 6 до 8.5 мкм при спектральной ширине излучения около половины октавы.

Максимальная энергия лазерного импульса РЧ была получена при центральной длине волны 6 мкм и составила 14 мкДж, что является вторым результатом по энергии импульса РЧ полученным в такой же схеме с другими кристаллами: $AgGaS_2$, $ZnGeP_2$, $LiGaS_2$, $BaGa_2GeSe_6$, и $HgGa_2S_4$. Несмотря на то, что максимальная энергия импульсов РЧ в кристалле $BaGa_2GeS_6$ оказалась в 2.5 раза меньше, чем в кристалле $HgGa_2S_4$, их спектральная ширина оказалась в 2–5 раз больше, чем в кристалле $HgGa_2S_4$, в зависимости от центральной длины волны. Таким образом, кристалл $BaGa_2GeS_6$ выглядит более предпочтительным для получения предельно коротких лазерных импульсов в диапазоне длин волн 5–10 мкм.

Впервые определено влияние энергии импульса, формирующего сигнальную волну, на эффективность генерации РЧ в схеме, где сигнальная волна формируется путем уширения спектра при филаментации в газовой ячейке. Показано, что вариация энергии лазерного импульса до филамента не влияет на энергию импульса РЧ, если уширение достигает требуемого частотного сдвига. Таким образом, несмотря на то, что процесс филаментации чувствителен к энергии лазерного импульса, формирующего филамент, это слабо сказывается на эффективности генерации РЧ.

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

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

1. S. Tochitsky, A. Pak, F. Fiuza, D. Haberberger, N. Lemos, A. Link, D. H. Froula, and C. Joshi, Phys. Plasmas **27**(8), 083102 (2020).
2. B. Wolter, C. Lemell, M. Baudisch, M. Pullen, X. Tong, M. Hemmer, A. Senftleben, C. Schroter, J. Ullrich, R. Moshammer, J. Biegert, and J. Burgdorfer, Phys. Rev. A **90**(6), 063424 (2014).
3. Y. Xiao, M. Guo, K. Parker, and M. S. Hutson, Biophys. J. **91**(4), 1424 (2006).
4. 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).
5. R. T. Murray, T. H. Runcorn, E. J. R. Kelleher, and J. R. Taylor, Opt. Lett. **41**, 2446 (2016).
6. Y. Cui, H. Huang, Y. Bai, W. Du, M. Chen, B. Zhou, I. Jovanovic, and A. Galvanauskas, Opt. Lett. **48**, 1890 (2023).
7. U. Elu, L. Maidment, L. Vamos, T. Steinle, F. Haberstroh, V. Petrov, V. Badikov, D. Badikov, and J. Biegert, Opt. Lett. **45**, 3813 (2020).
8. 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).
9. 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).
10. X. Gu, Y. Ding, Z. Hu, P. Yuan, D. Zhang, J. Wang, G. Xie, J. Ma, and L. Qian, Laser Photonics Rev. **19**, 2400507 (2024).
11. I. O. Kinyaevskiy, A. V. Koribut, Y. V. Grudtsyn, and M. V. Ionin, JETP Lett. **119**, 758 (2024).
12. I. O. Kinyaevskiy, A. V. Koribut, Ya. V. Grudtsyn, M. V. Ionin, Yu. M. Klimachev, N. N. Yudin, and A. A. Ionin, Opt. Laser Technol. **183**, 112270 (2024).
13. I. O. Kinyaevskiy, A. V. Koribut, Ya. V. Grudtsyn, and M. V. Ionin, Opt. Lett. **50**, 2267 (2025).
14. 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).
15. W. Yin, K. Feng, R. He, D. Mei, Z. Lin, J. Yao, and Y. Wu, Dalton Trans. **41**, 5653 (2012).
16. V. Petrov, K. Kato, and K. Miyata, Opt. Mater. X **22**, 100319 (2024).
17. М. В. Ионин, А. А. Ионин, И. О. Киняевский, Ю. М. Климачев, А. В. Корибут, А. М. Сагитова, Е. П. Федорова, Д. В. Бадиков, Г. К. Сафаралиев, Квантовая электроника **54**, 461 (2024).
18. E. A. Migal, D. Z. Suleimanova, D. V. Badikov, and F. V. Potemkin, Opt. Lett. **49**, 4537 (2024).
19. Г. Г. Гурзадян, В. Г. Дмитриев, Д. Н. Никогосян, *Нелинейно-оптические кристаллы. Свойства и применение в квантовой электронике: Справочник*, Радио и связь, М. (1991).
20. И. О. Киняевский, Я. В. Грудцын, А. В. Корибут, М. В. Ионин, Квантовая электроника **54**, 231 (2024).