Письма в ЖЭТФ, том 123, вып. 6, с. 420 – 424 © 2026 г. 25 марта

Генерация ВУФ-излучения в улучшенной нелинейной фотонно-кристаллической структуре α-тетрабората стронция

Р. Г. Бикбаев[+*], *Д. Пыхтин*[+], *И. В. Тимофеев*[+*], *А. В. Тайченачев*[×], *А. С. Александровский*[+*1)]

[+]*Институт физики им. Л. В. Киренского, Федеральный исследовательский центр "Красноярский научный центр Сибирского отделения Российской академии наук", 660036 Красноярск, Россия*

[*]*Институт инженерной физики и радиоэлектроники, Сибирский федеральный университет, 660041 Красноярск, Россия*

[×]*Институт лазерной физики Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия*

Поступила в редакцию 3 февраля 2026 г.
После переработки 5 февраля 2026 г.
Принята к публикации 5 февраля 2026 г.

Орторомбический тетраборат стронция является одним из немногих нелинейных оптических материалов, пригодных для генерации излучения в диапазоне ниже 150 нм. Возможность эффективной нелинейной оптической генерации в тетраборате стронция зависит от наличия спонтанно образующихся доменных структур в этом несегнетоэлектрическом кристалле. В данной статье сообщается об исследовании улучшенной доменной (нелинейной фотонно-кристаллической) структуры, обратный вектор сверхрешетки которой демонстрирует увеличение в вакуумном ультрафиолетовом диапазоне при уменьшении генерируемой длины волны. Генерация вакуумного ультрафиолетового излучения, перестраиваемая от 200 до 162 нм с эффективностью выше 10^{-4}, достигается с использованием задающего фемтосекундного лазера низшего класса мощности.

DOI: 10.7868/S3034576626030169

Введение. Разработка источников когерентного излучения в дальнем ультрафиолетовом (ДУФ) и вакуумном ультрафиолетовом (ВУФ) диапазонах остается актуальной темой, объединяющей усилия физиков-оптиков и кристаллофизиков. Среди последних достижений можно упомянуть изучение новых нелинейных кристаллов, позволяющих генерировать ВУФ-излучение в условиях углового фазового согласования [1] и в условиях фазового квазисинхронизма [2]. В этих исследованиях использовались несегнетоэлектрический кристалл $NH_4B_4O_6F$ (ABF) и сегнетоэлектрический кристалл $LiKSO_4$ (LPS) соответственно. Диапазон прозрачности этих кристаллов ограничен 155 и 162 нм соответственно. Куримура [3] попытался вернуть кварц в нелинейную оптику с помощью механического двойникования для создания полностью твердотельного источника на длине волны 193 нм. Недавно нелинейные фотонные кристаллы (НФК) на кварце были использованы для перестраиваемой генерации ДУФ-излучения в диапазоне 203–150 нм [4]. Для генерации на более коротких длинах волн номенклатура нелинейных кристаллов остается ограниченной и, по существу, сводится к сегнетоэлектрическому фториду бария–магния (BMF) и несегнетоэлектрическому α-тетраборату стронция (α-SBO). Нелинейная восприимчивость первого невелика, и, как следствие, многолетние усилия по инженерии доменов BMF не привели к каким-либо заметным достижениям.

α-Тетраборат стронция (орторомбический, точечная группа симметрии $mm2$, пространственная группа симметрии $Pnm2_1$) прозрачен по меньшей мере до 121 нм [5], а его нелинейная восприимчивость второго порядка гораздо выше, чем у BMF [6, 7]. Положение края фундаментального поглощения α-SBO следует рассматривать как уникальный феномен среди оксидных кристаллов, причем все ближайшие конкуренты по этому параметру являются фторидами, главным образом, с нулевой нелинейной восприимчивостью второго порядка, кроме BMF. Причиной такой уникальности является кристаллическая структура α-SBO, содержащая непрерывную сеть боркислородных тетраэдров. Эта же структурная особенность приводит к чрезвычайно низкому двулучепреломлению α-SBO и к отсутствию фазового согласования для процессов нелинейного оптического преобразования. α-SBO был бы малопригоден для нелинейной оптики, если бы у него не было другой уникальной особенности, а именно, способности формировать чередующиеся противоположно поляризован-

1) e-mail: aleksandrovsky@kirensky.ru

ные доменные структуры в процессе роста кристалла. С точки зрения оптики, такие структуры можно классифицировать как НФК [8, 9]. Формирование таких структур со случайной толщиной отдельных доменов хорошо известно при фазовых переходах из параэлектрической в сегнетоэлектрическую фазу в таких материалах, как KDP (см., например, [10]); однако α-SBO не является сегнетоэлектриком и вообще не претерпевает никаких фазовых переходов. Механизм формирования структуры НФК в α-SBO был открыт в [11] и представляет собой сложный уникальный двухстадийный процесс, чувствительный к особенностям процесса роста кристалла. Подобный механизм не был описан ни в одном другом кристалле. НФК α-SBO характеризуются чрезвычайно сильной рандомизацией толщины доменов [12, 13]. Обзор результатов по применению НФК α-SBO в нелинейной оптике недавно был выполнен в [14]; наиболее заметным достижением является непрерывно перестраиваемая генерация ВУФ в диапазоне 172–121 нм [5], которая была получена с использованием мощной фемтосекундной титан-сапфировой лазерной системы с энергией импульса 3 мДж в качестве источника исходного излучения. Причиной использования мощных источников накачки является высокая степень рандомизации толщины доменов НФК α-SBO, так что НФК приобретают "tunability for the price of efficiency", по словам Юрия Кившаря [15]. Пространственное качество излучения, генерируемого в НФК, не имеет признаков искажений, как это показано в Приложении к [14].

Новые перспективные приложения в ВУФ диапазоне (см., например, [16]) могут потребовать усовершенствованных структур НФК, обеспечивающих эффективную нелинейную оптическую генерацию при более низкой мощности накачки. Необходимо управлять характерной толщиной доменов, или, более определенно, уменьшить характерную толщину доменов, чтобы увеличить вклад структуры НФК в нелинейную оптическую генерацию в ВУФ диапазоне, в отличие от существующих структур НФК, которые обычно обеспечивают максимальную эффективность преобразования из ближнего инфракрасного диапазона в синий и ближний ультрафиолет [14]. В настоящем письме мы сообщаем о непрерывно перестраиваемой генерации ВУФ излучения до 162.5 нм в улучшенном НФК α-SBO при накачке фемтосекундным лазерным источником низшего класса мощности.

Описание эксперимента. Параметрический генератор света AVESTA TOPOL-1050, накачиваемый на 525 нм фемтосекундным иттербиевым волоконным лазером, использовался в качества стартового источника излучения. Диапазон перестройки сигнальной волны составлял 650–1000 нм. Частота излучения параметрического генератора удваивалась в кристалле β-BBO Типа I для получения излучения, перестраиваемого от 500 до 325 нм, которое, в свою очередь, служило накачкой для генерации вакуумного ультрафиолета в НФК α-SBO. Образец НФК α-SBO, выращенный методом Чохральского [11], имел размеры $1 \times 1 \times 1$ см и был полностью заполнен одномерной НФК структурой с сильной рандомизацией доменов, причем доменные стенки были перпендикулярны кристаллографической оси a (в пространственной группе $Pnm21$). Основное излучение распространялось перпендикулярно доменным стенкам в соответствии с геометрией случайного фазового квазисинхронизма (RQPM) [9]. Оно фокусировалось линзой с фокусным расстоянием 15 мм, что позволяло использовать наиболее благоприятную часть структуры НФК в соответствии со стратегией пространственно-селективного RQPM [14]. Поляризация основной волны, входящей в НПК, была направлена вдоль полярной кристаллографической оси c SBO, чтобы использовать максимальный нелинейный коэффициент d_{ccc} (d_{33}). Оптическая схема (рис. 1), начиная от фокусирующей линзы, была погружена в камеру, заполненную аргоном. Основное излучение подавлялось фильтром Acton 172-N, а генерируемое излучение фокусировалось линзой из CaF_2 с фокусным расстоянием 13 мм на входную щель мини-спектрометра Ocean Optics Maya2000Pro с ПЗС-матрицей. Пропускание фильтра Acton 172-N достигает максимума на длине волны 173 нм и уменьшается к 160 нм в 100 раз. В ходе измерений положение фокальной плоскости накачки настраивалось относительно структуры НФК для каждой центральной длины волны.

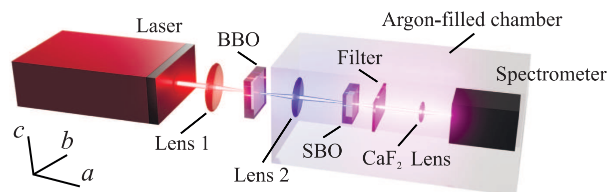

Рис. 1. (Цветной онлайн) Оптическая схема экспериментальной установки

Экспериментальные результаты и их обсуждение. Предварительное тестирование образца NPC α-SBO, исследуемого в данной статье, было проведено с использованием сигнальной волны параметрического генератора. Эти тесты показали, что мощность второй гармоники, генерируемая в НФК, зависит от смещения НФК вдоль всех трех координат. Зависимость от смещения НФК вдоль кристаллографической оси a является ожидаемым эффектом, поскольку оно изменяет набор доменов, вносящих вклад в нелинейную генерацию. Изменение генерируемой мощности при смещении вдоль кристаллографических осей b и c не ожидается в случае идеальной одномерной структуры НФК; наблюдение такого изменения означает, что структура НФК не является идеально однородной в плоскости bc. В наших предыдущих исследованиях визуализация доменной структуры на поверхности грани [001] кристалла помогла определить толщину отдельных доменов с помощью оптической микроскопии. Вставка на рис. 2 в [9] представляет пример

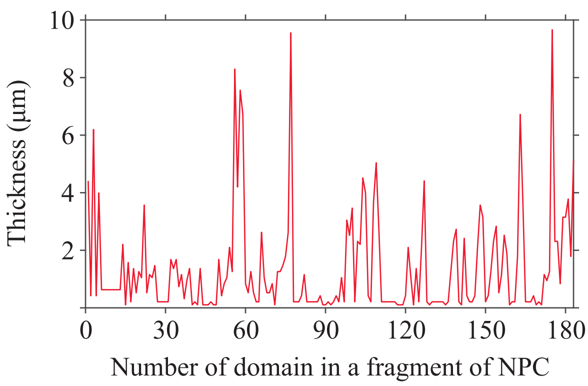

Рис. 2. (Цветной онлайн) Последовательность доменов во фрагменте исследуемого НФК

последовательности доменов в одном из образцов НФК α-SBO, выращенных в более ранних ростовых экспериментах. Для образца, исследуемого в данной статье, мы провели аналогичную процедуру. В исследуемом образце длиной 1 см было предварительно обнаружено не менее 5900 различимых доменов. Последовательность доменов во фрагменте доменной структуры показана на рис. 2. Сравнение доменной структуры на рис. 2 с доменной структурой из [9] показывает, что в исследуемом образце средняя толщина домена и толщина самого толстого домена значительно уменьшены. Тонкие домены толщиной 100–200 нм, как ожидается, измеримы с большой погрешностью с помощью оптической микроскопии. Тем не менее можно предположить, что относительное количество тонких доменов в исследуемом НПК увеличено по сравнению с образцом из [9]. Можно выдвинуть гипотезу, что при благоприятных для образования тонких доменов условиях роста стабильность структуры НПК в плоскости bc снижается, что приводит к описанному выше изменению мощности второй гармоники. Для НФК такого типа единственным надежным неразрушающим методом характеризации НФК являются нелинейнооптические методы.

Подобная характеризация обычно проводилась в предыдущих исследованиях рандомизированных НФК путем измерения спектральных или угловых зависимостей мощности второй гармоники. Структуру НФК можно рассматривать как сверхрешетку над обычной кристаллической решеткой, и можно ввести обратный вектор сверхрешетки $\mathbf{Q}$, который обеспечивает векторное фазовое согласование между нелинейной поляризацией и генерируемой волной второй гармоники: $\mathbf{k}_2 - 2\mathbf{k}_1 = \mathbf{Q}$. Анализ спектральных и угловых зависимостей позволяет извлечь информацию о спектре и сравнить спектры $\mathbf{Q}$ в различных образцах НФК.

Несмотря на возможное отклонение структуры НПК внутри исследуемого образца от структуры, определенной на его грани, перпендикулярной оси c, интересно рассчитать спектральную зависимость вклада НФК в нелинейно-оптическую генерацию, что можно сделать с помощью формулы из работы [9], выведенной для случая плоских волн и монохроматического излучения. Такая зависимость для фрагмента НФК, показанного на рис. 2, представлена на рис. 3.

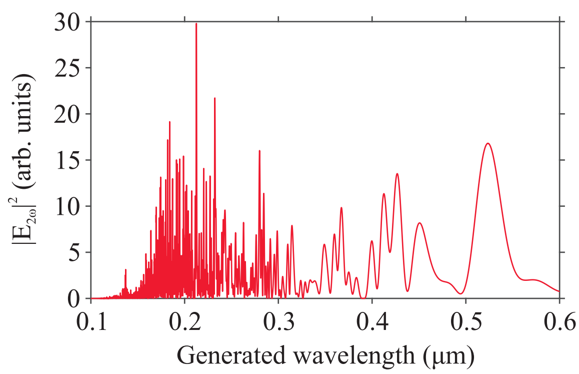

Рис. 3. (Цветной онлайн) Рассчитанный вклад фрагмента исследуемого НФК в генерацию второй гармоники

Зависимость на рис. 3 предсказывает, что, в отличие от структуры НФК, описанной в [9] и исследованной для процесса генерации ДУФ в [17], вклад НФК в нелинейно-оптическую генерацию на выбранном фрагменте исследуемой структуры NPC должен расти по мере приближения генерируемой длины волны к 180 нм, а затем, как ожидается, уменьшаться к 150 нм.

На рисунке 4 представлены спектры ВУФ излучения, полученные путем перестройки центральной длины волны излучения, генерируемого параметрическим генератором.

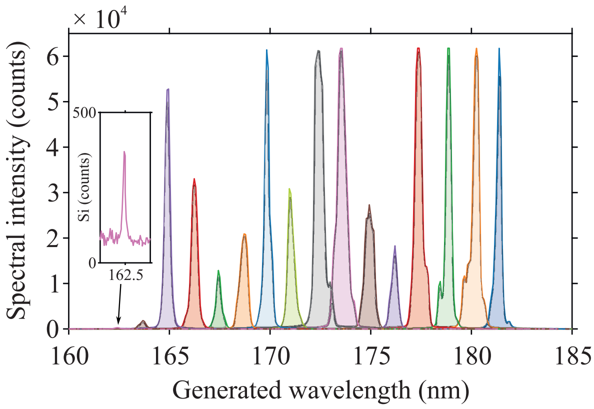

Рис. 4. (Цветной онлайн) Спектры излучения, генерируемого в исследуемом образце НФК α-SBO

Зарегистрированные спектры излучения, генерируемого в НФК α-SBO, представленные на рис. 4, формально согласуются с расчетами, представленными на рис. 3. Однако данные на рис. 4 необходимо скорректировать с учетом пропускания Acton 172-N и перестроечной кривой генератора второй гармоники; последняя испытывает снижение средней мощности с 200 мВт на 400 нм до 12.5 мВт на 325 нм. После указанных корректировок мы получаем спектр квадрата амплитуды вектора обратной сверхрешетки, усредненный по спектру лазерных импульсов ультрафиолетовой накачки (рис. 5). Шум в спектре на 162.5 нм является артефактом, возникающим из-за ложного усиления шума в области низкого пропускания фильтра.

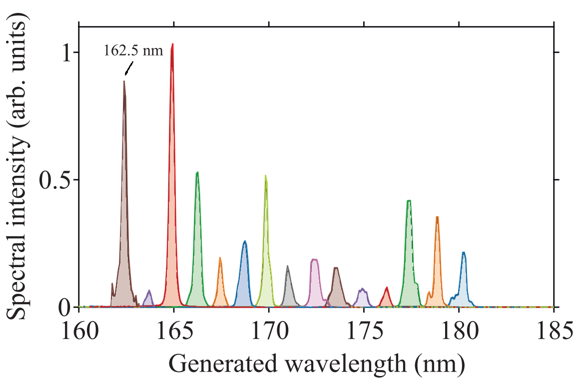

Рис. 5. (Цветной онлайн) Спектры ВУФ излучения, генерируемого в улучшенном образце НФК α-SBO после коррекции на пропускание фильтра и на перестроечную кривую ультрафиолетовой накачки

После коррекции мы видим, что спектр вектора **Q** исследуемого НФК SBO значительно лучше, чем можно было бы ожидать, исходя из картирования доменов. Вклад структуры НФК в нелинейный оптический процесс, в целом, возрастает по мере уменьшения центральной генерируемой длины волны от 182 до 162 нм, хотя на некоторых длинах волн в этом диапазоне наблюдаются заметные провалы в спектре **Q**. Генерируемую мощность в ВУФ диапазоне можно оценить путем экстраполяции от центральной длины волны 190 нм, где ее можно измерить с помощью абсолютного измерителя мощности Newport 918, и где генерируемая мощность равна 16.6 мкВт. Затем, при некоторых разумных предположениях, мощность на 162.5 нм на выходе НФК (до фильтра) составляет 1.6 мкВт, а КПД равен 10^{-4}.

В заключение, мы сообщаем о генерации ВУФ излучения, перестраиваемого от 200 до 162 нм, с КПД выше 10^{-4}, достигнутым с использованием стартового фемтосекундного лазера низшего класса мощности. Улучшение по сравнению с [5] достигается за счет использования улучшенной доменной структуры образца НФК α-SBO.

Авторы выражают благодарность Роману Шендрику (Институт Геохимии СО РАН) за предоставление высококачественной заготовки из фторида кальция и Владимиру Свентицкому за изготовление линзы из этого материала.

Финансирование работы. Данное исследование выполнено в рамках госзаданий FWGU-2026-0013 и FWES-2024-0003.

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

1. F. Zhang, Z. Chen, Ch. Cui, Zhi. Yang, M. Mutailipu, F. Li, X. Hou, X. Long, and Sh. Pan, "Vacuum ultraviolet second-harmonic generation in $NH_4B_4O_6F$ crystal", Nature **650**, 97 (2026); https://doi.org/10.1038/s41586-025-10007-z (2026).
2. Y. Wu, Ch. Cui, G. Han, Y. Wang, F. Li, F. Zhang, Zh. Yang, and Sh. Pan, "Direct Deep-UV Second-Harmonic Generation in Disordered X^2-Modulated Ferroelectric Crystals", Adv. Mater. **37**(47), e10775 (2025); https://doi.org/10.1002/adma.202510775.
3. S. Kurimura, M. Harada, K. Muramatsu, M. Ueda, M. Adachi, T. Yamada, and T. Ueno, "Quartz revisits nonlinear optics: twinned crystal for quasi-phase matching", Opt. Mater. Express **1**(7), 1367 (2011); https://doi.org/10.1364/ome.1.001367.
4. Zh. Zhang, Y. Cheng, F. Liang, H. Yu, H. Zhang, and Y. Wu, "Deepultraviolet second harmonic generation

down to 150 nm in a quartz crystal with chirped dual-periodic superstructure", Opt. Express **33**(7), 15579 (2025);
https://doi.org/10.1364/OE.560518 .

5. P. Trabs, F. Noack, A. S. Aleksandrovsky, A. I. Zaitsev, and V. Petrov, "Generation of coherent radiation in the vacuum ultraviolet using randomly quasi-phase-matched strontium tetraborate", Opt. Lett. **41**(3), 618 (2016);
https://doi.org/10.1364/OL.41.000618.
6. V. Petrov, F. Noack, D. Shen, F. Pan, G. Shen, X. Wang, R. Komatsu, and V. Alex, "Application of the nonlinear crystal SrB_4O_7 for ultrafast diagnostics converting to wavelengths as short as 125 nm", Opt. Lett. **29**(4), 373 (2004);
https://doi.org/10.1364/OL.29.000373.
7. S. N. Krylova and A. S. Aleksandrovsky, "Closer-to-experiment DFT simulation of linear and nonlinear optical properties of MeB_4O_7 crystals ($Me = Sr, Pb, Sn$)", Comput. Mater. Sci. **261**, 114306 (2026);
https://doi.org/10.1016/j.commatsci.2025.114306.
8. V. Berger, "Nonlinear Photonic Crystals", Phys. Rev. Lett. **81**, 4136 (1998);
https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.81.4136.
9. A. S. Aleksandrovsky, A. M. Vyunishev, I. E. Shakhura, A. I. Zaitsev, and A. V. Zamkov, "Random quasi-phase-matching in a nonlinear photonic crystal structure of strontium tetraborate", Physical Review A – Atomic, Molecular, and Optical Physics **78**(3), 031802 (2008);
https://doi.org/10.1103/PhysRevA.78.031802.
10. D. A. Kalashnikov, V. P. Karasev, S. P. Kulik, A. A. Solov'ev, and G. O. Rytikov, "Generation of entangled states in polydomain potassium-dihydrophosphate crystals", JETP Lett. **87**, 60 (2008);
https://doi.org/10.1134/S0021364008010141.
11. A. I. Zaitsev, N. V. Radionov, A. V. Cherepakhin, A. D. Vasiliev, and A. V. Zamkov, "Morphology of the polar twin structure in Czochralski grown α-SrB_4O_7 crystals", J. Cryst. Growth **416**, 17 (2015);
https://doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2015.01.004.
12. A. S. Aleksandrovsky, A. M. Vyunishev, A. I. Zaitsev, A. V. Zamkov, and V. G. Arkhipkin, "Detection of randomized nonlinear photonic crystal structure in a non-ferroelectric crystal", Journal of Optics A: Pure and Applied Optics **9**(9), S334 (2007);
https://doi.org/10.1088/1464-4258/9/9/S08.
13. A. I. Zaitsev, A. S. Aleksandrovsky, A. D. Vasiliev, and A. V. Zamkov, "Domain structure in strontium tetraborate single crystal", J. Cryst. Growth **310**(1), 1 (2008);
https://doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2007.09.037.
14. R. G. Bikbaev, I. V. Timofeev, and A. S. Aleksandrovsky, "Spatially selective enhancement of random quasi phase matched conversion in strontium tetraborate", Opt. Commun. **603**, 132836 (2026);
https://doi.org/10.1016/j.optcom.2025.132836.
15. R. Fischer, S. M. Saltiel, D. N. Neshev, W. Krolikowski, and Y. S. Kivshar, "Broadband femtosecond frequency doubling in random media", Appl. Phys. Lett. **89**(19), 191105 (2006).
16. V. Lal, M. V. Okhapkin, J. Tiedau, N. Irwin, V. Petrov, and E. Peik, "Continuous-wave laser source at the 148 nm nuclear transition of Th-229", Optica **12**(12), 1971 (2025);
https://doi.org/10.1364/OPTICA.574489.
17. A. S. Aleksandrovsky, A. M. Vyunishev, A. I. Zaitsev, and V. V. Slabko, "Random quasi-phasematched conversion of broadband radiation in a nonlinear photonic crystal", Physical Review A – Atomic, Molecular, and Optical Physics **82**(5), 055806 (2010);
https://doi.org/10.1103/PhysRevA.82.055806.