

## НАБЛЮДЕНИЕ НЕРЕЗОНАНСНЫХ ШЕСТИФОТОННЫХ ПРОЦЕССОВ В КРИСТАЛЛЕ КАЛЬЦИТА

С. А. Ахманов, В. А. Жарынов, С. М. Салтиел, В. Г. Тункин

Впервые зарегистрированы нерезонансные шестифотонные процессы в оптическом диапазоне. Измерена величина эффективной нелинейной восприимчивости пятого порядка в кристалле кальцита; компонента тензора шестого ранга  $\chi^{(5)}_{zyyyyy} \approx 10^{-27}$  CGSE. Обсуждается поведение высших нелинейных восприимчивостей  $\chi^{(n)}$ ; приведены данные, показывающие что уменьшение  $\chi^{(n)}$  с ростом  $n$  происходит тем быстрее, чем больше  $n$ .

1. Предметом настоящей статьи является изложение результатов экспериментов, в которых впервые были зарегистрированы нерезонансные шестифотонные процессы (связанные с числом  $P^{(5)} = \chi^{(5)} E^5$  в разложении поляризации по полю) и измерена соответствующая восприимчивость  $\chi^{(5)}$ .

Измерения были сделаны с кристаллом  $\text{CaCO}_3$ , большое двулучепреломление которого позволило получить синхронную генерацию пятой гармоники лазера на стекле с Nd. В эксперименте зарегистрирована пятая гармоника для трех различных направлений синхронизма. Для компоненты  $\chi_{zyyyyy}$  получено значение  $\chi_{zyyyyy} \approx 10^{-27}$  CGSE. Измерения были выполнены при КПД преобразования по энергии  $10^{-16}$ . Полученные результаты (см. также экспериментальные данные [1] и расчеты в [2]) показывают, что уменьшение  $\chi^{(n)}$  с ростом  $n$ , происходит тем быстрее, чем больше  $n$ .

2. Измерение высших нелинейностей конденсированных сред, атомов и молекул представляет значительный интерес для понимания физики нелинейной восприимчивости (см. [1 — 3]), а в некоторых случаях и для приложений [4]. Следует отметить, что если для многих сред, не обладающих центром инверсии, измерены резонансные и нерезонансные восприимчивости  $\chi^{(2)}$ ,  $\chi^{(3)}$  и даже  $\chi^{(4)}$ , для сред с центром инверсии опубликованные к настоящему времени экспериментальные данные относятся к низшей для таких сред нелинейной восприимчивости  $\chi^{(3)}$ . Единственным исключением является работа [3], где была оценена резонансная восприимчивость  $\chi^{(5)}$ , ответственная за когерентное ангармоническое комбинационное рассеяние в молекуле  $\text{H}_2$ .

3. В качестве объекта исследования, нами был выбран кристалл  $\text{CaCO}_3$ . Кальцит обладает центром инверсии и потому измерение  $\chi^{(5)}$  здесь особенно интересно. Большое двулучепреломление кальцита и подходящая область прозрачности позволяют получить в нем синхронную генерацию пятой гармоники ( $\lambda = 0,212 \text{ мк}$ ) неодимового лазера.

4. Экспериментальная установка показана на рис. 1. Лазер работал в режиме самосинхронизации продольных мод; использовалась низшая поперечная мода. Энергия цуга импульсов составляла 0,2 Дж. Для выделения сигнала гармоники были использованы две призмы из кристаллического кварца.

Сигнал с ФЭУ после усиления поступал на вход аналого-цифрового преобразователя, система работала в режиме регистрации одноэлектронных импульсов.

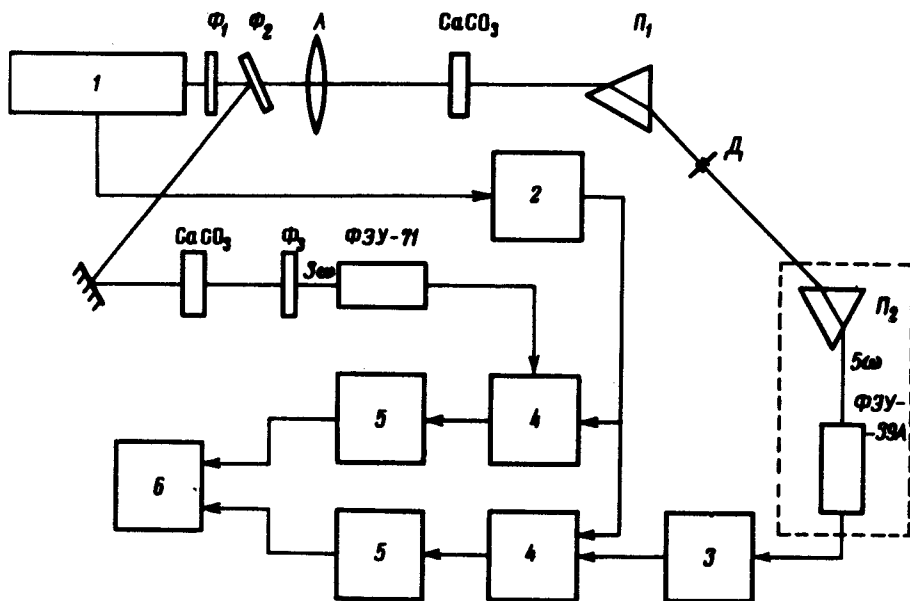


Рис. 1. Экспериментальная установка для получения пятой гармоники: 1. — лазер;  $\Phi_1$ ,  $\Phi_2$  и  $\Phi_3$  — фильтры;  $L$  — линза;  $P_1$ ,  $P_2$  — призмы;  $D$  — диафрагма; 2 — формирователь стробирующего импульса; 3 — усилитель; 4 — блок амплитудно-временного преобразователя; 5 — счетчик; 6 — цифрорпечатающее устройство

Кристалл кальцита толщиной 6 мм был вырезан таким образом, что нормаль к его рабочей поверхности составляла угол  $\theta = 55^\circ$  с осью  $Z$  и угол  $\phi = 0^\circ$  с осью перпендикулярной кристаллографической плоскости отражения. Коэффициент поглощения кристалла на  $\lambda = 0,212 \text{ мкм}$  составлял  $2,5 \text{ см}^{-1}$ . Использовалась слабая фокусировка пучка. (Заметим, что условия оптимальной генерации высших гармоник в сильно фокусированных пучках существенно отличаются от известных для второй гармоники условий оптимальной фокусировки).

5. Генерация пятой гармоники может быть как результатом "прямого" шестифотонного процесса на нелинейности пятого порядка, так и результатом каскадных процессов на кубической нелинейности. Дисперсионные свойства кристалла кальцита допускают согласование фаз для следующих процессов, исследованных в эксперименте.

$$\gamma_e(5\omega) = 5\gamma_o(\omega); \quad k_5^e = 5k_1^o, \quad (\text{I})$$

$$\gamma_e(5\omega) = \gamma_o(3\omega) + \gamma_o(\omega) + \gamma_e(\omega); \quad k_5^e = k_3^o + k_1^o + k_1^e; \quad (\text{II})$$

$$\gamma_e(5\omega) = \gamma_o(3\omega) + 2\gamma_o(\omega); \quad k_5^e = k_3^o + 2k_1^o. \quad (\text{III})$$

Здесь  $k_1, k_3, k_5$  — волновые числа соответствующих гармоник, индексы  $o$  и  $e$  относятся соответственно к обыкновенной и необыкновенной волнам. Во всех случаях на входную грань кристалла падало только излучение основной гармоники; третья гармоника в процессах (II) и (III) возникала в самом кристалле.

Расчетные значения углов синхронизма для перечисленных взаимодействий  $\theta_{I} = 55^{\circ} 6'$ ;  $\theta_{II} = 52^{\circ} 44'$ ;  $\theta_{III} = 48^{\circ} 5'$  и с точностью  $\pm 5'$  соответствуют экспериментально наблюдавшимся углам. Экспериментальная зависимость интенсивности пятой гармоники  $I_5$  от угла  $\theta$  для взаимодействия (I) приведена на рис. 2. Значение угловой ширины синхронизма  $\Delta\theta_3 \approx 3'$ , что почти в шесть раз превышало расчетное значение для плоских монохроматических волн  $\Delta\theta_T = 30'$ . Причина расхождения объясняется влиянием конечной ширины спектра пикосекундных импульсов ( $\Delta\nu = 6 \text{ см}^{-1}$ ).

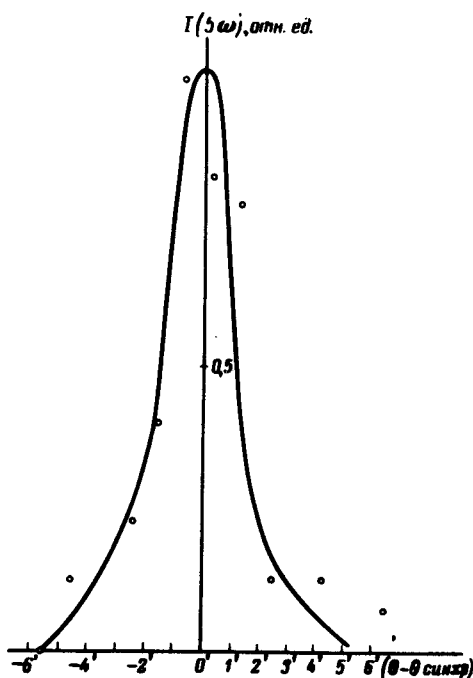


Рис. 2. Угловая зависимость интенсивности пятой гармоники вблизи направления синхронного взаимодействия  $K_5^e = 5K_1^o$  в кристалле  $\text{CaCO}_3$

Сигнал пятой гармоники в максимуме кривой синхронизма соответствовал 100 фотоэлектронам за 200 вспышек лазера. На краях кривой синхронизма за 200 вспышек регистрировалось 20 фотоэлектронов — результат световой засветки. Темновой шум ФЭУ за то же число вспышек давал 1 фотоэлектрон.

Измеренные отношения интенсивностей пятой гармоники в максимумах кривых синхронизмов равен

$$I_5(\theta_I) / I_5(\theta_{III}) = 2,0 \pm 0,8; \quad (1)$$

$$I_5(\theta_{III}) / I_5(\theta_{II}) = 0,2 \pm 0,1. \quad (2)$$

6. Полученные данные могут быть непосредственно использованы для оценки  $\chi^{(5)}$ ; в условиях нашего эксперимента

$$I_5(\theta_i) / I_5(\theta_j) = [\chi_{\text{эфф}}^{(5)}(\theta_i) / \chi_{\text{эфф}}^{(5)}(\theta_j)]^2.$$

Все остальные геометрические и дисперсионные факторы в пределах точности эксперимента для исследованных взаимодействий одинаковы. Пользуясь найденной в [5] связью между компонентами кубической нелинейной восприимчивости кальцита получим для эффективных восприимчивостей  $\chi_{\text{эфф}}^{(5)}$ , измерявшихся в наших экспериментах, следующие теоретические формулы:

$$\chi_{\text{эфф}}^{(5)}(\theta_I) = [\chi_{\text{зууууу}}^{(5)} - 195C_{11}C_{32}] \sin \theta_I \quad (3)$$

(с прямым процессом интерферирует синхронный каскадный процесс, каждый из этапов которого несинхронен)

$$\chi_{\text{эфф}}^{(5)}(\theta_{II}) = 450 C_{11} C_{32}, \quad (4)$$

$$\chi_{\text{эфф}}^{(5)}(\theta_{III}) = 210 C_{11} C_{32} \sin \theta_{III}, \quad (5)$$

где  $C_{11}, C_{32}$  — компоненты тензора кубической восприимчивости.

Заметим прежде всего, что расчетное значение отношения интенсивностей  $I_5(\theta_{III}) / I_5(\theta_{II}) = 0,15$  хорошо согласуется с экспериментальным значением  $- 0,20 \pm 0,1$  (см. (2)).

В соответствии с (1), (3) и (5):

$$\chi_{\text{эфф}}^{(5)}(\theta_I) = (250 \pm 50) C_{11} \cdot C_{32}.$$

Используя значения  $C_{11} = 1,8 \cdot 10^{-14}$  CGSE [6] и  $C_{32} = 4 \times 10^{-16}$  CGSE [5], получим  $\chi_{\text{эфф}}^{(5)}(\theta_I) = 1,8 \cdot 10^{-27}$  CGSE. Соответственно для компоненты  $\chi_{\text{зууууу}}$  получим  $\chi_{\text{зууууу}} = (85 \pm 55) \times C_{11} \cdot C_{32}$ , если  $\chi_{\text{зууууу}} C_{32} < 0$  и  $\chi_{\text{зууууу}} = (475 \pm 55) C_{11} \cdot C_{32}$ , если  $\chi_{\text{зууууу}} C_{32} > 0$ . Подставляя абсолютные значения для  $C_{11}$  и  $C_{32}$  получим для среднего значения в первом случае  $\chi_{\text{зууууу}} = 0,6 \times 10^{-27}$  CGSE и во втором —  $\chi_{\text{зууууу}} = 3,4 \cdot 10^{-27}$  CGSE.

7. Полученные результаты (вместе с данными [1, 2]) позволяют сделать некоторые заключения о характере зависимости оптических нелинейных восприимчивостей  $\chi^{(n)}$  от  $n$ . Согласно [7 — 9] для кристаллов  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{GaAs}$  и  $\text{LiNbO}_3$  —  $\chi^{(3)} / \chi^{(2)} = 10^{-5}$  CGSE.

Экспериментальные данные этой работы, а также [1] и расчеты [2] показывают, что уменьшение  $\chi^{(n)}$  с ростом  $n$  происходит тем быстрее, чем больше  $n$ . Действительно для  $\text{CaCO}_3$   $\chi^{(5)}/\chi^{(3)} = 10^{-12}$  CGSE. Согласно данным [1] для кристалла LFM  $\chi^{(4)}/\chi^{(2)} = 0,7 \cdot 10^{-12}$  CGSE. Согласно расчетам [2] в кристалле  $\text{CdGeAs}_2$ ,  $\chi^{(3)}/\chi^{(2)} = 10^{-4}$  CGSE и  $\chi^{(4)}/\chi^{(3)} = 10^{-7}$ . Разумеется для более детального обсуждения этого вопроса требуется дополнительный экспериментальный материал.

8. (В заключение заметим, что возможности измерения высших нелинейностей методом синхронной генерации гармоник в видимом диапазоне ограничены. Имеются кристаллы пригодные для генерации высших гармоник от  $\text{CO}_2$ -лазера (в частности в  $\text{CdGeAs}_2$ ) — см. [2]). Здесь возникают, однако, затруднения в регистрации слабых ИК сигналов. Поэтому представляет интерес измерение высших нелинейностей в схемах на отражение в средах с большими нелинейностями.

В частности, с помощью установки описанной выше возможно измерение на отражение величин  $\chi^{(4)}$  и  $\chi^{(5)}$  в кристаллах Si, Ge, Ge.

Авторы благодарны И. В. Томову за полезные обсуждения и В. И. Завелишко за помощь в расчетах.

Московский  
государственный университет  
им. М. В. Ломоносова

Поступила в редакцию  
24 июня 1975 г.

### Литература

- [1] С. А. Ахманов, А. Н. Дубовик, С. М. Салтиел, И. В. Томов, В. Г. Тункин. Письма в ЖЭТФ, **20**, 264, 1974.
- [2] R. Begley, R. Byer, D. Chemla, M. Choy, R. Herbst, R. Feigelson, S. Ciraci. "Development of chalcopyrite crystals for nonlinear optical applications". Techn. Report, Stanford University, Stanford, USA, Dec. 1974.
- [3] J. Lukasik, J. Ducuing. Phys. Rev. Lett., **28**, 1155, 1972.
- [4] S. E. Harris. Phys. Rev. Lett., **31**, 341, 1973.
- [5] P. D. Maker, R. W. Terhune. Phys. Rev., **137A**, 801, 1965.
- [6] M. D. Levenson, N. Blombergen. Phys. Rev., **B10**, 4447, 1974.
- [7] J. P. Herrmann. Optics Com., **9**, 74, 1973.
- [8] E. Yablonovich, C. Flytzanis, N. Blombergen. Phys. Rev. Lett., **29**, 865, 1972.
- [9] J. J. Wynne. Phys. Rev. Lett., **29**, 650, 1972.