

Ю.М. Андреев¹, В.В. Бадиков², П.П. Гейко¹, С.Г. Гречин³

Выполнение условий синхронизма и оптические свойства нелинейных кристаллов тинодата лития

¹ *Институт оптического мониторинга СО РАН, г. Томск*

² *Кубанский государственный университет, г. Краснодар*

³ *НИИ радиоэлектроники и лазерной техники МГТУ им. Н.Э. Баумана, г. Москва*

Поступила в редакцию 7.10.2001 г.

Представлены результаты исследования линейных и нелинейно-оптических свойств, лучевой стойкости двухосного монокристалла LiInS_2 . Установлены коэффициенты уравнения Селмейера для диапазона 0,45–11,5 мкм и значения коэффициентов тензора нелинейной восприимчивости.

Проведены расчеты условий фазового синхронизма для различных задач преобразования частоты – угловые и частотные перестроенные характеристики. Показана возможность реализации группового синхронизма в широком диапазоне длин волн при генерации суммарной и разностной частот. Представлены спектральные зависимости группового синхронизма, рассчитанные в направлении фазового синхронизма, из которых следует возможность создания преобразователей частоты фемтосекундных лазеров 3-мкм диапазона.

Общеизвестно, что дистанционное лазерное зондирование атмосферы играет существенную роль в оценке изменений, происходящих в земной атмосфере. В том случае, когда эти изменения сопровождаются появлением следов токсичных газовых компонент, их обнаружение с помощью ИК-излучателей становится крайне желательным. Это связано с тем, что большая часть молекул имеет колебательно-вращательные переходы в среднем ИК-диапазоне спектра (2–12 мкм). Для детектирования газов по поглощению на этих переходах требуется перестраиваемый по частоте источник с узкой линией излучения и возможностью настройки на определенные характеристические линии поглощения.

Создание таких систем было ограничено из-за отсутствия соответствующих ИК нелинейно-оптических материалов для преобразования частоты эффективных лазеров, прежде всего CO_2 -лазера. Разработка эффективных кристаллических преобразователей частоты может не только значительно расширить число решаемых задач, но и улучшить параметры существующих систем. Хорошим примером сказанного являются удвоители 9-мкм полосы излучения, расширяющие список газов, контролируемых лидаром на основе CO_2 -лазеров [1, 2]. Такие кристаллы, как селеногаллат серебра AgGaSe_2 , тиагаллат серебра AgGaS_2 , селенид галлия GaSe , германосфид цинка ZnGeP_2 , германоарсенид кадмия CdGeAs_2 , использовались в среднем ИК-диапазоне для генерации гармоник, комбинационных частот, параметрической генерации и усиления [3]. Выбор наиболее привлекательного кристалла определяется целым рядом параметров, важнейшими из которых являются диапазон прозрачности, нелинейный коэффициент и лучевая стойкость.

Однако выбор нелинейного кристалла даже для конкретной узкой задачи, например генерации второй гармоники CO_2 -лазера, не является очевидным. Если исходить только из величины коэффициента нелинейной восприимчивости, то лидером является CdGeAs_2 , но он обычно требует криогенных температур при эксплуатации и при выращивании трудно получить высококачественные кристаллы большого размера. Другие материалы имеют свои недостатки. В данной статье мы приводим результаты исследования малоизученного перспективного нелинейного кристалла тинодата лития LiInS_2 .

Несмотря на широкий спектр прозрачности, достаточно высокую нелинейную восприимчивость и удовлетворительное двулучепреломление, полупроводниковые нелинейные кристаллы LiInS_2 [4–6] не привлекли внимания специалистов. Уступая оксидным кристаллам видимого и ближнего ИК-диапазонов по лучевой стойкости, а многим кристаллам среднего ИК-диапазона и по величине коэффициента нелинейной восприимчивости, они вряд ли могут претендовать на лидирующее положение хоть в одном участке спектра. Трудности выращивания качественных образцов приемлемых размеров явились дополнительным сдерживающим фактором. Они же не позволили практически оценить преимущества кристаллов LiInS_2 перед кристаллами среднего ИК-диапазона, которые может дать наличие более легких катионов Li. Однако технологические успехи последнего времени [7, 8] стимулируют проведение исследований и позволяют изучить физические свойства, определить роль и место кристаллов LiInS_2 в нелинейной оптике, перспективы создания прикладных устройств на их основе.

В наших исследованиях использовались прозрачные или слегка желтоватые образцы кристаллов, выращенные в Кубанском государственном университете методом Бриджмена–Стокбаргера, размером до 4×4 мм, относительно высокого оптического качества. Двухосные отрицательные кристаллы LiInS₂ относятся к точечной группе симметрии mm2, не гигроскопичны, имеют плотность 3,5 г/см³, температуру плавления 880 °С, твердость по Моосу 3–4 [1].

Для определения спектров прозрачности в видимой и ближней ИК-областях спектра был использован оптический спектрофотометр Shimadzu UV-3101PC с применением диафрагмы Ø2 мм и поляризационной приставки. В среднем ИК-диапазоне спектры определялись с помощью спектрофотометров Specord 75 IR и Specord 80. Область прозрачности неокрашенных 3,6-мм кристаллов по уровню 0,1 лежит в пределах 0,4–12,5 мкм, а по уровню 0,25 находится в диапазоне 0,5–11 мкм (рис. 1).

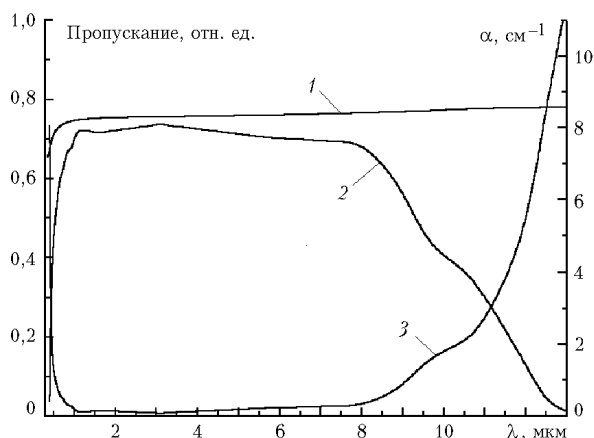


Рис. 1. Уровень френелевских потерь (1), спектр прозрачности (2) и коэффициент поглощения (3) монокристалла LiInS₂ длиной 3,6 мм

В области максимальной прозрачности 1,0–8,0 мкм коэффициент оптических потерь $\alpha \approx 0,1 \pm 0,25 \text{ см}^{-1}$, а на длинах волн СО₂-лазеров 9,2–10,8 мкм – от 1,1 до 2,3 см⁻¹. Коротковолновая граница спектра прозрачности для 3,5-мм кристаллов [7] сравнимого состава и качества по уровню $\alpha = 200 \text{ см}^{-1}$ определена как 330–334 нм при температуре 80 К и 342–343 нм при 300 К для различной поляризации оптического излучения. Длинноволновую границу по тому же уровню можно определить как близкую к 13,2 мкм.

Дисперсионные зависимости показателей преломления определялись методом наименьшего отклонения с помощью призм. На рис. 2 приведен вид экспериментальных дисперсионных кривых $n_x < n_y < n_z$, которые аппроксимировались с точностью не хуже $\leq 10^{-3}$ уравнением Селмейера вида

$$n^2 = A + B / (\lambda^2 - C) - D\lambda^2.$$

Значения коэффициентов Селмейера A, B, C, D представлены в табл. 1 для диапазона 0,45–11,5 мкм в кристаллооптической системе координат.

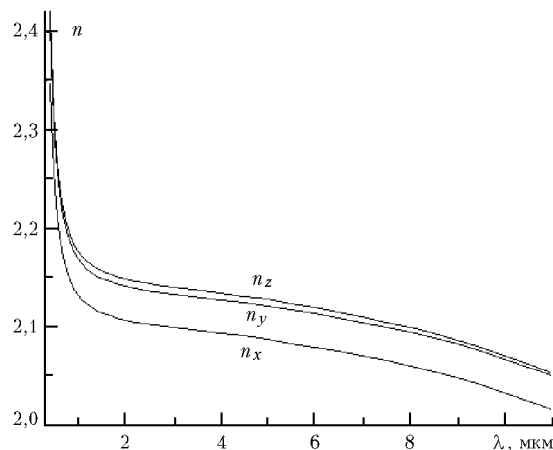


Рис. 2. Дисперсионные зависимости главных значений показателей преломления

Таблица 1

Таблица коэффициентов Селмейера

Коэффициент	Y	X	Z
A	4,418222	4,559534	4,59206
B	0,1254461	0,1403701	0,1410887
C	0,0657432	0,069233	0,069287
D	0,0028850	0,0028731	0,0030589

Существенных различий измеренных и описанных в работе [4] показателей преломления не обнаружено.

Значения коэффициентов тензора нелинейной восприимчивости второго порядка $d_{31} = 6,2$; $d_{32} = 5,4$ и $d_{33} = 9,8 \text{ пм/В}$ (точность определения $\pm 15\%$) ниже соответствующих известных значений на величину до 80% [4, 8]. Они получены из сравнительных измерений эффективности генерации второй гармоники (ГВГ) методом тонкого клина (5°) по процедуре [4] с использованием импульсно-периодического СО-лазера. Коэффициенты $d_{14} = d_{36}$ опорных клиньев из ZnGeP₂ принимались равными 75 пм/В. Отметим, что измеренный и расчетный углы синхронизма совпали с точностью не менее 0,3°, определяемой ошибкой измерений.

Лучевая стойкость определялась для (36 ± 2) нс импульсов излучения ТЕА СО₂-лазера (9,55 мкм) сформированной ТЕМ₀₀ моды, содержащих не менее 85% общей энергии импульса. Порог разрушения составил 120–130 МВт/см².

В соответствии с уже сложившейся практикой классификации типов взаимодействия при преобразовании излучения в двухосных кристаллах могут иметь место типы взаимодействия: ssf (slow-slow-fast), sff (slow-fast-fast), fsf (fast-slow-fast), последняя буква соответствует наименьшей длине волны. Соотношения величин и знаков коэффициентов тензора нелинейной восприимчивости показывают, что для ssf-типа взаимодействия эффективный нелинейный коэффициент отличен от нуля в плоскости xz при $\theta < V_z$ (V_z – угол до оптической оси). Для sff- и fsf-типов эффективный нелинейный коэффициент отличен от нуля в плоскости xz при $\theta > V_z$ и в плоскостях xy и yz .

Максимальное значение коэффициента эффективной нелинейности имеет место для второго типа взаимодействия в направлении оси y .

Фазосинхронные свойства ГВГ для кристалла LiInS_2 удобно представить с помощью диаграммы направлений фазового синхронизма в двухосных кристаллах [9]. В табл. 2 приведены номера, соответствующие переходам с одной проекции на другую по диаграмме [9] (т.е. тем случаям, когда направление фазового синхронизма совпадает с одной из оптических осей), длины волн основного излучения, на которых имеет место этот переход, и названия осей.

Таблица 2

Таблица переходов по диаграмме направлений фазового синхронизма ГВГ			
Переход	Диаграмма	λ , нм	
		ssf	sff
00–10		1573,5 (y)	–
10–30		1731,9 (z)	–
30–31		–	2294,8 (y)
31–33		–	2638,3 (z)
33–31		–	5104,7 (z)
31–30		–	5785,7 (y)
30–10		7945,2 (z)	–
10–00		8498,5 (y)	–

Каждая из стереографических проекций в табл. 2 показывает угловое распределение направлений фазового синхронизма для ssf- (сплошная линия) и sff-типов (штриховые линии) взаимодействия. В зависимости от дисперсии двулучепреломления кристалла (от разности главных значений показателей преломления) и изменения ее при варьировании длины волны основного излучения вид углового распределения изменяется, переходя от одной проекции к другой. При таком переходе меняется положение точки пересечения кривой синхронизма с главными плоскостями кристалла (xy , xz или yz).

Из этих результатов следует, что ни на одной из длин волн не реализуется синхронизм в направлении оси x . «Петлевой» характер переходов по диаграмме направлений фазового синхронизма при изменении длины волны показывает, что в кристалле должны существовать не критичный по длине волны синхронизм и его частный случай – групповой синхронизм.

На рис. 3 представлены расчетные зависимости длин волн λ_1 и λ_2 от λ_3 ($\lambda_3^{-1} = \lambda_1^{-1} + \lambda_2^{-1}$), для которых в направлении фазового синхронизма fsf- и sff-типов

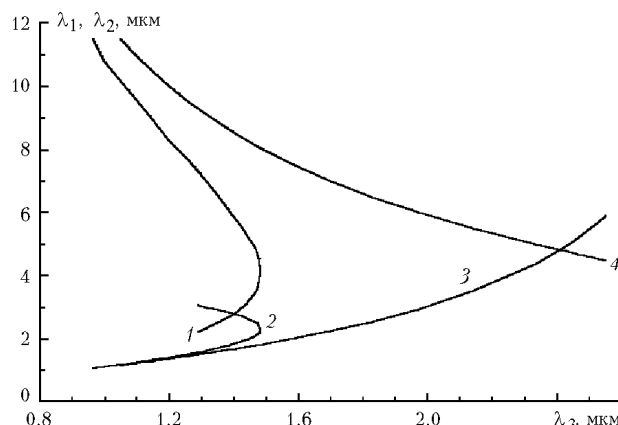


Рис. 3. Спектральная зависимость группового синхронизма волн $s_1 - f_3$ (1), $s_2 - f_3$ (2), $f_1 - f_3$ (3) и $f_2 - f_3$ (4) для ssf- (1, 4) и fsf-типов (2, 3) взаимодействия

в плоскости xy выполняется условие группового синхронизма. Эти результаты показывают, что преобразование частоты (ГВГ, генерации суммарных и разностных частот) фемтосекундных импульсов может быть реализовано в широком диапазоне длин волн. В частности, кристаллы LiInS_2 являются единственными известными кристаллами для преобразования частоты фемтосекундных лазеров 3-мкм диапазона. Перестроенные по длине волны характеристики в плоскости xy при различных значениях угла ϕ (сферической системы координат) представлены на рис. 4. Спектральная зависимость группового синхронизма вдоль направления фазового синхронизма для ssf-типа взаимодействия приведена на рис. 5. На рис. 6 представлены перестроенные по углу ϕ зависимости для sff- и fsf-типов взаимодействия при длине волны накачки $\lambda_3 = 1; 2$ и 3 мкм. Вид перестроенных кривых говорит о возможном преимуществе при генерации второй гармоники лазеров 3-мкм диапазона среди прочих известных кристаллов по совокупности параметров.

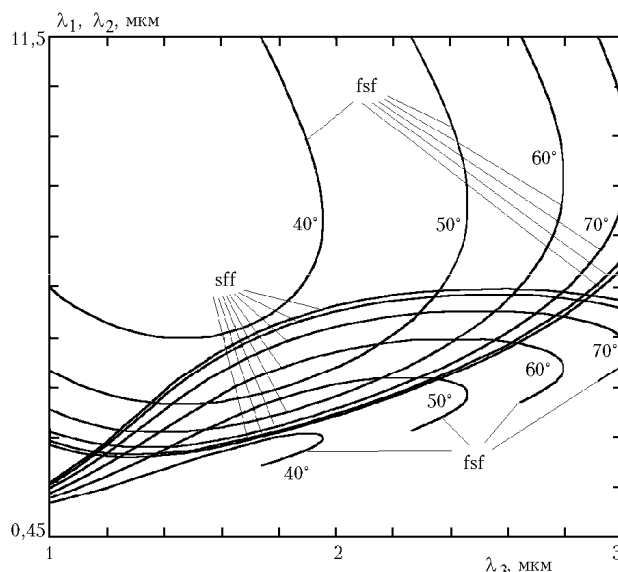


Рис. 4. Перестроенные по длине волны характеристики в плоскости xy

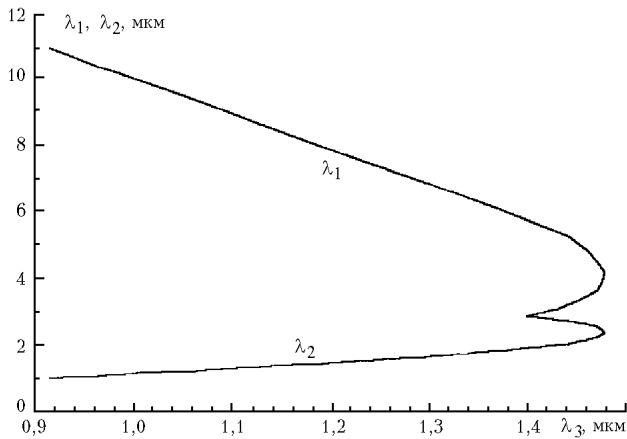


Рис. 5. Спектральная зависимость группового синхронизма $s_1 - f_3$ для ssf-типа взаимодействия (вдоль направления фазового синхронизма)

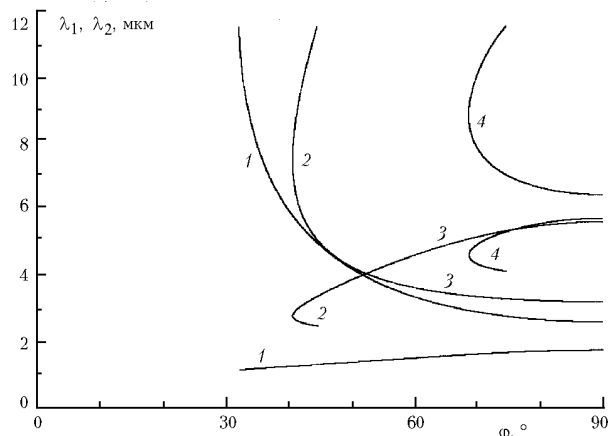


Рис. 6. Перестроечные по углу ϕ характеристики в плоскости xy при $\lambda_3 = 1$ мкм (1), 2 мкм (2, 3) и 3 мкм (4) для fsf- (1, 2, 4) и sff- (3) типов взаимодействия

В заключение следует отметить, что спектр прозрачности, нелинейные свойства и двулучепреломление

Yu.M. Andreev, V.V. Badikov, P.P. Geiko, S.G. Grechin. Fulfillment of phase-matching conditions and optical properties of the nonlinear LiInS₂ crystal.

Results of investigation for linear and non-linear optical properties, and damage threshold for biaxial LiInS₂ crystal are represented.

Selmeier equation's coefficients for spectral band 0,45–11,5 μm are determined. The computation of results for phase-matching conditions for different problems of frequency conversion (angular and spectral tuning curves) are represented. The possibility is shown of group-velocity phase matching realization in wide spectral band for sum- and difference-frequency generation. The spectral dependences for group-velocity phase matching, that take place in phase-matching direction are represented. These properties give possibilities for creation of frequency converters for femtosecond 3 μm lasers.

монокристаллов LiInS₂ позволяют рассматривать их как перспективные кристаллы для преобразования частоты фемтосекундных лазеров, в том числе как единственные известные на сегодняшний день преобразователи частоты фемтосекундных эрбиевых лазеров 3-мкм диапазона. Результаты расчета условий синхронизма получены с использованием справочно-расчетного программного комплекса LID-SHG (www.bmstu.ru/~lid).

1. Menyuk N., Killinger D.K., DeFeo W.E. Remote sensing of NO using a differential absorption lidar // Appl. Opt. 1980. V. 19. N 19. P. 3282–3286.
2. Зуев В.Е., Кабанов М.В., Андреев Ю.М., Воеводин В.Г., Гейко П.П., Грибешоков А.И., Зуев В.В. Эффективные параметрические преобразователи частоты ИК-лазеров и их применение // Изв. АН СССР. Сер. физ. 1988. Т. 52. N 6. С. 51–56.
3. Guzadyan G.G., Dmitriev V.G., Nikogosyan D.N. Handbook on Nonlinear Optical Crystals. New-York; Berlin; Heidelberg: Springer Verlag, 1999. 413 p.
4. Boyd G.D., Kasper H.M., McFee J.H. Linear and nonlinear optical properties of LiInS₂ // Appl. Phys. 1973. V. 44. N 6. P. 2809–2812.
5. Negran T.J., Kasper H.M., Glass A.M. Pyroelectric and electro-optic effects in LiInS₂ and LiInSe₂ // Mater. Res. Bull. 1973. V. 8. P. 743–748.
6. Kamijoh T., Kuriyama K.J. Single crystal growth of LiInS₂ // J. Cryst. Growth. 1979. V. 46. P. 801–803.
7. Knippels G.M.H., van der Meer A.F.G., MacLeod A.M., Yelissev A., Isaenko L., Lobanov S., Thenot I., Zondy J.-J. Mid-Infrared (2,75–6,0- μm) second harmonic generation in LiInS₂ // Opt. Lett. 2001. V. 26. N 9. P. 617–619.
8. Isaenko L., Vasilieva I., Yelissev A., Lobanov S., Malakhov V., Dovlitova L., Zondy J.-J., Kavun I. Growth and characterization of LiInS₂ single crystals // J. Cryst. Growth. 2000. V. 218. P. 313–322.
9. Гречин С.Г., Дмитриев В.Г. Полная классификация типов взаимодействия при генерации второй гармоники в двухосных нелинейных кристаллах // Квант. электрон. 2000. Т. 30. N 5. С. 377–386.