

Комбинационное нестационарное усиление излучения суперлюминесценции в кристаллах

А. Я. Карасик¹⁾, Д. С. Чунаев

Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 25 января 2006 г.

При последовательном возбуждении кристаллов LiF с F_2^- -центрами окраски и $KGd(WO_4)_2$ -лазерными импульсами длительностью 22 пс с длиной волны 1047 нм возникающее во фторидном кристалле широкополосное (275 см^{-1}) стоксово излучение суперлюминесценции испытывает нестационарное комбинационное усиление в оксидном кристалле. Усиленные импульсы со стоксовым сдвигом частотой 767 см^{-1} и длительностью 7 пс, мощностью до $\sim 1.1 \text{ МВт}$ обладают высокой пространственной и временной когерентностью, а также при последовательном уменьшении мощности накачки обнаруживают возрастающую от ~ 1 до 4.5 нс временную задержку. Результаты обсуждаются в рамках процесса кооперативного комбинационного рассеяния.

PACS: 42.50.Fx

Нестационарный характер взаимодействия сверхкоротких световых импульсов со средой представляет интерес при исследовании когерентности отклика, в частности в двухфотонном процессе при неупругом рассеянии возбуждения в кристаллах [1, 2]. Цель данной работы – исследование когерентных свойств нестационарного вынужденного комбинационного излучения в кристалле при усилении как спонтанного шума, так и мощного широкополосного излучения.

Источником накачки служил лазер на кристалле $YLiF_4-Nd$, работающий в режиме пассивной синхронизации мод и излучающий на длине волны 1047 нм цуги пикосекундных ($\tau_p = 22 \text{ пс}$) импульсов с энергией в цуге до 1 мДж. Линейно-поляризованное излучение лазера в TEM_{00} моде ослаблялось нейтральными светофильтрами и фокусировалось сферическим длиннофокусным зеркалом с радиусом $R = 140 \text{ см}$ в кристалл $KGd(WO_4)_2$ длиной 34 мм. Перед кристаллом KGW с зазором 1–3 мм помещался кристалл $LiF:F_2^-$ длиной 60–77 мм. За кристаллом KGW излучение лазера накачки отрезалось дихроичным фильтром, а стоксово излучение попадало в CCD (charge-coupled device) камеру для анализа пространственного распределения поля излучения. С помощью стеклянных пластин лазерные и стоксовы импульсы направлялись на быстродействующие германиевые лавинные фотодиоды, где анализировались цифровым осциллографом TDS-380 или 3052B, на полихроматор PGS-2 и на электронно-оптическую камеру с временным разрешением 1.5 пс IMACON-500, сопряженные с кремниевыми CCD камерами, для измере-

ния спектра и длительности импульсов. Энергия излучения измерялась пироэлектрическим детектором J3-05.

Длина нелинейного взаимодействия L оценивалась как удвоенная длина, на которой сечение пучка накачки из-за дифракции увеличивается в два раза, и для гауссова пучка $L = 4\pi w_0^2 n / \lambda$, где $2w_0$ – диаметр пучка в перетяжке при $I = I_0/e$, n – показатель преломления ($n = 1.9$ для KGW и 1.39 для LiF). Измеренный с помощью CCD камеры профиль лазерного пучка был близок к гауссовому с диаметром $2w_0 = 140 \text{ мкм}$. Таким образом, $L = 8–11 \text{ см}$.

На рис.1 показана осциллограмма излучения на выходе из кристалла KGW, помещенного в центр пе-

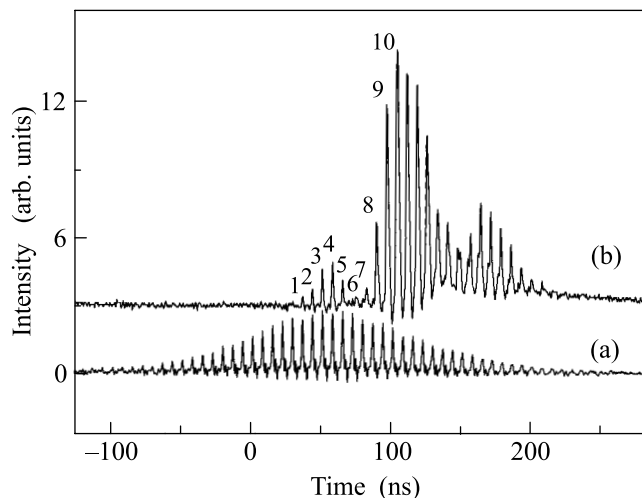


Рис.1. (а) Осциллограмма излучения $YLiF_4-Nd$ лазера накачки. (б) Осциллограмма стоксова излучения на выходе из пары кристаллов $LiF:F_2^- - KGW$

¹⁾e-mail: karasik@lst.gpi.ru

ретьяжки лазерного пучка на расстоянии 70 см от фокусирующего зеркала. Снизу показан цуг лазерных импульсов с периодом 7.3 нс, сверху – цуг стоксовых импульсов. Длительности импульсов определяются разрешением осциллографа. Импульсы 1–5 (рис.1b), соответствующие центру цуга накачки, имеют нулевую задержку τ_0 относительно импульсов накачки. Эти импульсы со стоксовым сдвигом частоты 767 см^{-1} фоновой моды KGW соответствуют вынужденному комбинационному рассеянию (ВКР), развивающемуся из спонтанного шума. Измеренная длительность стоксовых импульсов 1–5 $\tau_s = 7$ пс. Процесс ВКР в данном случае является нестационарным, так как длительность импульса накачки $\tau_p < T_2G$, где $T_2 = 1.96$ пс – время дефазировки оптических фононов, определенное из ширины спектра спонтанного КР [3], а инкремент комбинационного усиления $G > 25$ [2].

Импульсы на рис.1b с номерами больше 5 также имеют стоксов сдвиг частоты 767 см^{-1} . Однако в отличие от импульсов 1–5 с $\tau_0 = 0$ максимум импульса 6 задержан относительно максимума импульса накачки на величину $\tau_0 = 2.5$ нс. Далее импульсы с номерами больше 6 (длительностью $\tau_s = 7$ пс) имеют задержку τ_0 , последовательно увеличивающуюся до 4.5 нс при понижении пиковой мощности импульсов в цуге накачки, с заметным расщеплением импульсов за серединой цуга. Замена кристалла LiF:F_2^- на аналогичный, но прозрачный кристалл без центров окраски, приводит к типичной для ВКР из спонтанного шума в кристаллах осциллограмме [3], в которой остаются только импульсы, соответствующие центру цуга накачки с задержкой $\tau_0 = 0$.

Далее, сдвигая кристалл KGW по оси пучка от центра перетяжки, мы могли подавлять ВКР и наблюдать излучение суперлюминесценции (СЛ) из кристалла LiF:F_2^- . На рис.2b представлена осциллограмма излучения СЛ. Цуг импульсов СЛ задержан относительно цуга накачки, максимумы импульсов СЛ имеют задержку ~ 1.5 –2 нс относительно максимумов импульсов накачки, а длительность импульсов СЛ 3.5–5 нс обеспечивает их хорошее перекрытие во времени с импульсами накачки. Спектр СЛ имел ширину 250 – 275 см^{-1} , соответствующую максимуму интенсивности в простирающемся от 1000 до 1300 нм спектре люминесценции F_2^- -центров окраски со временем жизни 55 нс в LiF [4]. Стоксовы сдвиги частоты ВКР (767 см^{-1}) и СЛ 500 – 800 см^{-1} хорошо перекрываются, что позволяет рассчитывать на комбинационное усиление СЛ в кристалле KGW.

Поставив на выходе за кристаллами дифракционную решетку, мы наблюдали, что при смещении

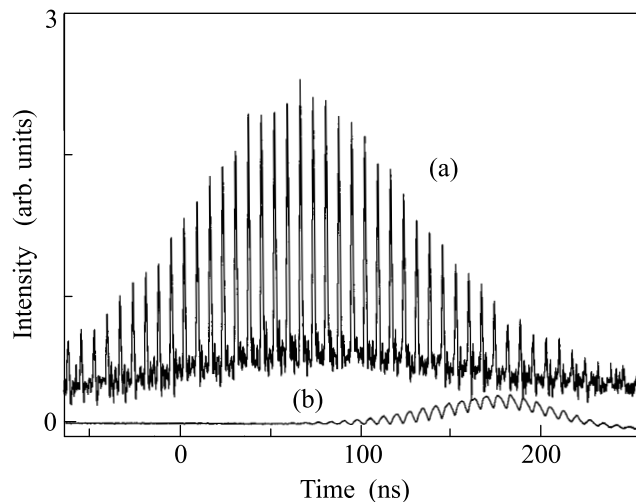


Рис.2. (а) Осциллограмма излучения YLiF_4 -Nd лазера накачки. (б) Осциллограмма излучения суперлюминесценции, генерируемого в кристалле LiF:F_2^-

кристалла KGW к центру перетяжки пучка накачки до начала интенсивной генерации излучения в пятне со стоксовым сдвигом 767 см^{-1} интенсивность всей широкой полосы СЛ резко уменьшалась, преобразовываясь в комбинационное излучение. Помещая между кристаллами LiF:F_2^- и KGW стеклянную пластинку и ослабляя таким образом мощность накачки, нам удавалось подавить ВКР из спонтанного шума. Рис.3b показывает, что в этом случае на стоксовой частоте остается только цуг импульсов с

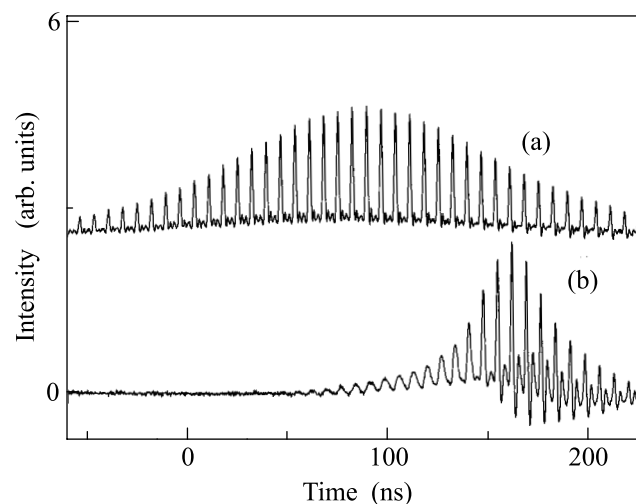


Рис.3. (а) Осциллограмма излучения YLiF_4 -Nd лазера накачки. (б) Осциллограмма стоксова излучения на выходе из пары кристаллов LiF:F_2^- – KGW в отсутствие ВКР из спонтанного шума

задержкой $\tau_0 = 1-1.3$ нс, близкой к временному разрешению осциллографа.

Измеренное значение энергии СЛ варьировалось от 1.66 до 20 мкДж для разных вспышек. Оценка энергии на один импульс СЛ дает значения 0.066–0.8 мкДж (число фотонов $-(0.4-4.6) \cdot 10^{12}$). Даже с учетом широкого непрерывного распределения спектральной плотности энергии излучения СЛ на входе кристалла КGW на много порядков превышает энергию спонтанного КР. Энергия ВКР из спонтанного шума в КGW (без генерации СЛ) варьировалась от 4 до 12 мкДж в цуге из ~ 10 импульсов (0.4–1.2 мкДж на импульс). Полная энергия стоксова излучения, соответствующего осциллограмме на рис.1b, для разных вспышек составляла 36–76 мкДж (в самом интенсивном 7 пс десятом импульсе цуга $E = 7.9$ мкДж и соответствующая мощность ~ 1.1 МВт). Соотношение энергий импульсов, комбинационно усиленных из СЛ и спонтанного шума, легко оценить из рис.1b. Для суммарных энергий это отношение равно 16.6. В другой вспышке, где число импульсов ВКР выросло до семи, отношение стало примерно в два раза меньше.

Мы исследовали поле излучения, поместив CCD камеру на расстоянии 34 см от кристалла КGW. Рис.4а показывает профиль лазерного пучка при

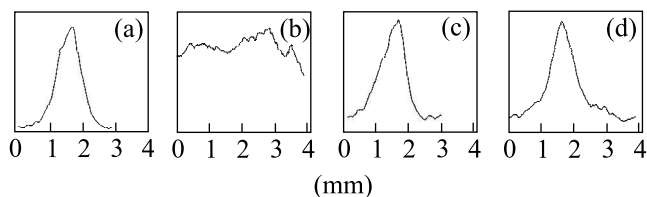


Рис.4. Профили пучков излучения, измеренные с помощью CCD матрицы (с размерами 4.4×4 мм²) на расстоянии 34 см от кристалла КGW. (а) Профиль лазерного пучка. (б) Профиль пучка ВКР, генерируемого из спонтанного шума. (с) Профиль пучка суперлюминесценции, генерируемой в кристалле LiF:F₂⁻. (d) Профиль пучка, усиленного в кристалле КGW стоксова излучения, на выходе из пары кристаллов LiF:F₂⁻ – КGW

сильно ослабленной мощности излучения лазера. Чтобы не менять условия возбуждения, перед кристаллом КGW мы поместили бесцветный кристалл LiF длиной 6 см. Профиль лазерного пучка близок к гауссову и измеренная расходимость $(1/e) - 2.93$ мрад. Затем мы увеличили мощность накачки до возникновения порога ВКР, отрезав при этом фильтром перед камерой излучение лазера. Пучок ВКР из спонтанного шума (рис.4b) имеет неоднородное поле, меняющееся от вспышки

к вспышке, и плохую пространственную когерентность в соответствии с теорией [5]. Большая расходимость стоксова пучка может объясняться неоднородным по поперечному сечению пучка накачки комбинационным усилением, приводящим к фокусировке стоксова пучка в кристалле в пятно меньшего, по сравнению с лазерным, диаметра, и как следствие, к увеличению дифракционной расходимости пучка.

Рис.4с показывает профиль пучка СЛ, когда мы перед кристаллом КGW поместили LiF:F₂⁻ длиной 6 см (порог ВКР не достигался). Профиль пучка СЛ близок к гауссову, и расходимость пучка близка к лазерной (рис.4а). При комбинационном усилении СЛ в кристалле КGW и достижении порога вынужденного излучения профиль стоксова пучка (рис.4d) с энергией, значительно превосходящей энергию СЛ, резко отличается от пучка ВКР из спонтанных шумов (рис.4b). Расходимость пучка на рис.4d, незначительно превышающая расходимость лазерного пучка, свидетельствует о высокой пространственной когерентности стоксова излучения. В профиле пучка также появляются слабовыраженные крылья.

Для оценки степени временной когерентности стоксова излучения наряду с измерением длительности импульсов мы измерили спектры излучения на частоте второй гармоники (569.2 нм), полученной в кристалле КН₂РО₄ (КДР). Полуширины спектров ВКР из спонтанного шума и комбинационно усиленного излучения СЛ были близки, $\delta\nu = 2$ см⁻¹. Длительность стоксовых импульсов для обоих типов стоксова излучения $\tau_s = 7$ пс практически оставалась той же и на частоте второй гармоники. Произведение $\tau_s \cdot \delta\nu = 0.42$ показывает, что в предположении гауссовой формы стоксовы импульсы близки к спектрально-ограниченным.

Рассмотрим причины, которые могут приводить к описанным выше экспериментальным результатам. В работе [6], следуя Дике [7], авторы теоретически рассмотрели процесс кооперативного комбинационного рассеяния (ККР). В частности, акцентировалось, что для успешной реализации ККР необходимо нестационарное импульсное возбуждение и существенно большое число фотонов стоксовой частоты комбинационного усиления на входе нелинейной среды. В процессе ККР должен генерироваться стоксов импульс, более короткий, чем импульс возбуждения с временной задержкой, зависящей от числа возбужденных атомов [8]. В работах [9, 10] сообщалось об экспериментальном наблюдении ККР при наносекундном возбуждении длинной кюветы с газообразным водородом с временной задержкой стоксова

импульса и наличии в нем временной структуры (осцилляций). (Отметим, что в [9,10] пробное стоксово излучение на входе нелинейной среды не использовалось.) В работе [10] было показано, что расходимость пучка ККР близка к расходимости лазерного пучка накачки, а время задержки импульса ККР обратно пропорционально мощности накачки. Данные результаты качественно хорошо согласуются с нашими вышеизложенными экспериментальными результатами.

Приведем некоторые количественные оценки на основе наших экспериментальных данных. Оценка числа равновесных фононов на моду колебания с частотой 767 см^{-1} в кристалле КGW дает величину $2.5 \cdot 10^{20}\text{ см}^{-3}$ [11]. Соответственно, в возбуждаемом лазерным излучением канале КGW объемом $\sim 10^{-3}\text{ см}^3$ число фононов с $\nu = 767\text{ см}^{-1}$ $N = 2.5 \cdot 10^{17}$. Из результатов измерений энергии на выходе кристаллов число генерируемых в LiF:F_2^- фотонов СЛ в импульсе $(0.4\text{--}4.7) \cdot 10^{12}$. Число фотонов в самом интенсивном стоксовом импульсе 10 (рис.1б) после комбинационного усиления СЛ в кристалле КGW $\sim 4.5 \cdot 10^{13}$ (и примерно в 10 раз меньше в мало интенсивном импульсе 7). При генерации из СЛ когерентного стоксова излучения можно оценить число когерентных фононов, равным числу стоксовых фотонов на выходе кристалла КGW, $n_0 \approx 10^{13}$. (Число фононов, генерируемых в процессе ВКР из спонтанного шума, примерно в 8–17 раз меньше.)

Заметим, что в процессе нестационарного ВКР плотность генерируемых когерентных фононов пропорциональна инкременту усиления и отношению длительности импульса накачки к времени дефазировки (τ_p/T_2). Для сравнения заметим, что число когерентных “горячих” фононов, генерируемых при пикосекундной накачке кристаллов кальцита [12] и алмаза [13] (импульсами с $\tau_p = 8\text{ пс}$ и интенсивностью, близкой к нашей), в процессе ВКР из спонтанного шума до 10^{13} раз (в алмазе с $T_2 = 2.9\text{ пс}$) превышало число некогерентных равновесных фононов при комнатной температуре.

Используем формулу для оценки времени задержки импульса ККР [1]:

$$\tau_0 = \tau_c \ln N.$$

Возьмем экспериментальное когерентное время $\tau_c = \tau_s = 7\text{ пс}$. (Отметим, что трехкратное по сравне-

нию с импульсом накачки укорочение стоксова импульса в кристалле КGW недавно объяснялось нами [14] в рамках теории нестационарного ВКР[15].) В результате для числа фононов в возбуждаемом лазерным излучением канале КGW кристалла $N = 2.5 \cdot 10^{17}$ получаем расчетную величину задержки $\tau_0 = 0.28\text{ нс}$. На осциллограммах рис.1 и 3 задержка τ_0 в зависимости от мощности накачки варьируется от ~ 1 до 4.5 нс . Минимальная измеренная задержка $\tau_0 \approx 1\text{ нс}$ могла ограничиваться временным разрешением используемых нами осциллографов. Объяснение больших значений задержек τ_0 с учетом роли комбинационно усиливаемой суперлюминесценции нуждается в дальнейших исследованиях.

Работа поддержана грантом Российского фонда фундаментальных исследований # 04-02-17004.

1. Н. Б. Делоне, *Взаимодействие лазерного излучения с веществом*, М.: Наука, 1989.
2. *Сверхкороткие световые импульсы*, под ред. С. Шапиро, М.: Мир, 1980. (*Ultrashort Light Pulses*, Ed. S. Shapiro, Springer, Heidelberg, 1977).
3. Т. Т. Басиев, П. Г. Зверев, А. Я. Карасик и др., *ЖЭТФ* **126**, 1073 (2004).
4. Т. Т. Басиев, П. Г. Зверев, А. Г. Папашвили и др., *Квантовая электроника* **24**, 591 (1997).
5. S. A. Lobanov and V. G. Bespalov, *Opt. Comm.* **239**, 7 (2004).
6. T. M. Makhviladze and L. A. Shelepin, *Phys. Rev. A* **9**, 538 (1974).
7. R. H. Dicke, *Phys. Rev.* **93**, 99 (1954).
8. С. Г. Раутиан, Б. М. Черноброд, *ЖЭТФ* **72**, 1342 (1977).
9. В. С. Пивцов, С. Г. Раутиан, Б. М. Черноброд и др., *Письма в ЖЭТФ* **30**, 342 (1979).
10. А. А. Заболотский, С. Г. Раутиан, В. П. Сафонов и др., *ЖЭТФ* **86**, 1193 (1984).
11. Ю. К. Воронько, А. А. Соболев, С. Н. Ушаков и др., *Неорганические материалы* **36**, 1190 (2000).
12. R. R. Alfano and S. L. Shapiro, *Phys. Rev. Lett.* **26**, 1247 (1971).
13. A. Laubereau, D. von der Linde, and W. Kaiser, *Phys. Rev. Lett.* **27**, 802 (1971).
14. D. S. Chunaev and A. Ya. Karasik, *Laser Physics* **16**, 1668 (2006).
15. R. L. Carman, F. Shimizu, N. Bloembergen et al., *Phys. Rev. A* **2**, 60 (1970).