

ЧЕТЫРЕХВОЛНОВОЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ ПИКОСЕКУНДНЫХ ИМПУЛЬСОВ В ПОЛЫХ ВОЛНОВОДАХ: СОГЛАСОВАНИЕ ФАЗ И ВЛИЯНИЕ ВЫСШИХ ВОЛНОВОДНЫХ МОД

А. Н. Наумов^а, Д. А. Сидоров-Бирюков^а, Ф. Джамманко^{б*}, А. Б. Федотов^а,
П. Марсили^{б*}, А. Руффини^{б*}, О. А. Колеватова^а, А. М. Желтиков^{а**}

^а *Международный лазерный центр,
Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119899, Москва, Россия*

^б *Dipartimento di Fisica e Unità INFN — Università di Pisa
56127, Pisa, Italy*

Поступила в редакцию 30 января 2001 г.

Экспериментально исследованы процессы генерации третьей гармоники и разностной частоты в результате четырехволнового взаимодействия пикосекундных импульсов в наполненных газом полых волноводах. Улучшение условий фазового согласования путем изменения давления газа и выбора оптимальных параметров полого волновода позволило использовать для генерации разностной частоты полые волноводы большой длины (до 30 см), что привело к существенному увеличению мощности сигнала разностной частоты на выходе волновода. Полученные экспериментальные данные свидетельствуют о заметном влиянии, оказываемом на процессы четырехволнового взаимодействия, волноводными модами высших порядков. Показано, что волноводный режим нелинейно-оптических взаимодействий, реализуемый в полых волноводах, позволяет снять ограничения на эффективность генерации третьей гармоники и суммарной частоты, характерные для режима жесткой фокусировки в средах с нормальной дисперсией и связанные с геометрическим набегом фазы жестко сфокусированных световых пучков.

PACS: 42.65.Ky, 42.65.Wi

1. ВВЕДЕНИЕ

Заполненные газом полые волноводы в последние годы позволили решить ряд важных проблем нелинейной оптики и оптики сверхкоротких лазерных импульсов. Нелинейно-оптические взаимодействия в полых волноводах в настоящее время широко используются для формирования предельно коротких световых импульсов [1, 2] и получения излучения ВУФ и рентгеновского диапазонов (вплоть до области «водяного окна прозрачности») методом генерации оптических гармоник [3–8]. Перспективным также представляется использование полых волноводов для увеличения чувствительности и расшире-

ния возможностей методов когерентной четырехфотонной спектроскопии [9, 10].

Использование полых волноводов в ряде случаев позволяет успешно решить проблему фазового согласования волн накачки и сигнала, генерируемого в результате невырожденного по частоте нелинейно-оптического процесса. За счет выбора параметров полого волновода, давления газа и возбуждения соответствующих волноводных мод удается обеспечить условия, при которых волноводная составляющая фазовой расстройки компенсирует фазовую расстройку, связанную с дисперсией газа [3, 8, 9, 11]. При выполнении этих условий имеется возможность повышения энергии генерируемого в результате нелинейно-оптического процесса сигнала за счет увеличения длины полого волновода. Управление параметрами коротких импульсов ко-

*F. Giammanco, P. Marsili, A. Ruffini.

**E-mail: zheltikov@top.phys.msu.ru

ротковолнового излучения, получаемого в результате нелинейно-оптических процессов в полых волноводах, может осуществляться за счет эффекта фазовой кросс-модуляции [12–14].

Настоящая работа посвящена исследованию свойств нелинейно-оптических взаимодействий в наполненных газом полых волноводах, представляющих, на наш взгляд, значительный интерес с методической точки зрения и открывающих новые возможности для многочисленных практических приложений полых волноводов в нелинейной оптике, оптике сверхкоротких импульсов и нелинейной спектроскопии. В частности, одно из наиболее общих свойств волноводного режима нелинейно-оптических взаимодействий в полых волноводах связано с тем обстоятельством, что при использовании полого волновода имеется возможность достижения высоких плотностей мощности излучения путем фокусировки пучков накачки, аналогично тому, как это делается в режиме жесткой фокусировки. Волноводный режим распространения излучения при этом обеспечивает геометрию взаимодействия, характерную для режима плоских волн, что позволяет существенно повысить эффективность процессов сложения частот по сравнению с режимом жесткой фокусировки пучков в среде с нормальной дисперсией.

Большинство экспериментов, посвященных нелинейно-оптическим процессам в полых волноводах, выполнялись с использованием фемтосекундных импульсов с высокой плотностью мощности (исключение составляет пионерская работа [9], в которой, однако, не рассматриваются процессы генерации суммарной частоты). Запрет на генерацию третьей гармоники (ГТГ) и суммарной частоты в газе с изначально положительной дисперсией при этих условиях может сниматься как за счет ионизации среды (данное явление неоднократно наблюдалось экспериментально), так и за счет самовоздействия лазерных импульсов (которое также наблюдается в эксперименте, см. [15, 16]).

В наших экспериментах удалось получить прямое доказательство возможности генерации суммарных частот и оптического умножения частоты в среде с нормальной дисперсией за счет использования волноводного режима взаимодействия. Для этой цели нами были использованы пикосекундные импульсы умеренной интенсивности (максимальные значения интенсивности лазерных импульсов в наших экспериментах достигали величин порядка 10^{11} Вт/см²). Генерация третьей гармоники при жесткой фокусировке подобных импульсов в

отсутствие волновода не наблюдалась, что свидетельствует о незначительности влияния возмущения среды и самих лазерных импульсов на результат нелинейно-оптического взаимодействия. Такой подход позволил нам исследовать основные свойства четырехволновых взаимодействий (ЧВВ) в волноводном режиме и изучить пути достижения фазового согласования при этих условиях. Одним из важных результатов этого исследования явилось получение экспериментальных данных относительно существенного влияния, оказываемого на процессы ЧВВ, волноводными модами высших порядков. Исследование четырехволновых взаимодействий пикосекундных импульсов представляет также значительный интерес с точки зрения возможности использования полых волноводов для повышения чувствительности методов нелинейно-оптического газового анализа. Пикосекундные импульсы часто оказываются предпочтительными для реализации стационарных спектроскопических схем, широко используемых для различных практических приложений и во многих случаях накладывающих ограничения на длительность импульсов.

Статья построена следующим образом. В разд. 2 в рамках приближения медленно меняющихся амплитуд получены выражения, позволяющие описать процессы ЧВВ в наполненных газом полых волноводах с учетом эффектов фазового рассогласования и влияния высших волноводных мод. Раздел 3 посвящен описанию методики измерений и техники, использовавшейся в наших экспериментах. Результаты экспериментов обсуждаются в разд. 4. В заключении сформулированы основные выводы нашего исследования.

2. ТЕОРИЯ ЧВВ В ПОЛЫХ ВОЛНОВОДАХ

2.1. Амплитуда ЧВВ-сигнала

В этом разделе мы изучим особенности ЧВВ-процессов в наполненных газом полых волноводах с учетом влияния эффектов фазового рассогласования, оптических потерь волноводных мод и волноводных мод высших порядков. Будем рассматривать ЧВВ-процессы генерации третьей гармоники и генерации разностной частоты, приводящие к возникновению сигнала на частоте третьей гармоники в соответствии со следующими схемами ЧВВ:

$$3\omega = \omega + \omega + \omega \quad \text{и} \quad 3\omega = 2\omega + 2\omega - \omega,$$

где ω и 2ω — частоты излучения накачки (излучение основной частоты лазера накачки и его вторая гармоника). Процессы такого типа, как свидетельствуют экспериментальные данные [3], позволяют добиться высоких эффективностей нелинейно-оптического преобразования частоты в полых волноводах. Результаты наших экспериментальных исследований для процессов этого типа будут представлены в разд. 4 настоящей статьи.

Пусть излучение основной частоты и излучение второй гармоники (излучения накачки) распространяются в направлении оси z вдоль полого волновода с внутренним радиусом a . Полый волновод наполнен газом с кубичной нелинейностью и показателем преломления n и имеет оболочку с действительной диэлектрической проницаемостью $\varepsilon > n^2$. Поля накачки и ЧВВ-сигнала при этом могут быть представлены в следующем виде:

$$E_1 = \frac{1}{2} f_1^q(\rho) A_0^q \times \exp[-i\omega t + (iK_1^q - \alpha_1^q/2)z] + \text{c.c.}, \quad (1)$$

$$E_2 = \frac{1}{2} \sum_l f_2^l(\rho) B_0^l \times \exp[-2i\omega t + (iK_2^l - \alpha_2^l/2)z] + \text{c.c.}, \quad (2)$$

$$E_3 = \frac{1}{2} f_3^m(\rho) C^m(z) \exp[-3i\omega t + iK_3^m z] + \text{c.c.}, \quad (3)$$

где $f_1^q(\rho)$, $f_2^l(\rho)$ и $f_3^m(\rho)$ — поперечные распределения полей излучения основной частоты, второй гармоники и ЧВВ-сигнала, соответствующие модам EH_{1q} , EH_{1l} и EH_{1m} полого волновода; ρ — расстояние до оси полого волновода; A_0^q и B_0^l — амплитуды полей излучения основной частоты и излучения второй гармоники на входе в волновод; $C^m(z)$ — медленно меняющаяся амплитуда сигнала ЧВВ; K_1^q , K_2^l и K_3^m — постоянные распространения излучения основной частоты, второй гармоники и ЧВВ-сигнала соответственно; α_1^q и α_2^l — коэффициенты затухания волноводной моды EH_{1q} на основной частоте и волноводной моды EH_{1l} на частоте второй гармоники. Представление поля второй гармоники в выражении (2) в виде суммы мод полого волновода позволяет описывать ЧВВ-процессы генерации разностной частоты, в которых две волны накачки с одинаковой частотой 2ω имеют поперечные распределения поля, соответствующие двум различным волноводным модам $EH_{1l'}$ и $EH_{1l''}$ (т.е. $l = l', l''$).

Предположим, что коэффициент затухания для каждой из рассматриваемых волноводных мод мал,

а длины волн много меньше радиуса сердцевинки волновода а:

$$\frac{\omega a}{c} \gg 1, \quad (4)$$

$$\left| \frac{K_s^m c}{s\omega n(s\omega)} - 1 \right| \ll 1, \quad (5)$$

где $s = 1, 2, 3$ и $n(s\omega)$ — показатель преломления газа в полом волноводе для излучения с частотой $s\omega$. При выполнении условий (4), (5) можно воспользоваться приближенными аналитическими решениями для поперечного распределения поля и постоянных распространения электромагнитного поля в полом волноводе. Для мод EH_{1m} полого волновода имеем [17, 18]

$$f_s^m(\rho) = J_0\left(\frac{u^m \rho}{a}\right), \quad (6)$$

где $J_0(x)$ — функция Бесселя нулевого порядка, u^m — собственное значение моды EH_{1m} . Константы распространения и коэффициенты затухания описываются при этом следующими выражениями [18]:

$$K_s^m \approx \frac{s\omega n(s\omega)}{c} \left[1 - \frac{1}{2} \left(\frac{u^m c}{as\omega n(s\omega)} \right)^2 \right], \quad (7)$$

$$\alpha_s^m \approx \frac{2}{an(s\omega)} \left(\frac{u^m c}{as\omega} \right)^2 \times \frac{\varepsilon(s\omega) + n^2(s\omega)}{2n^2(s\omega) (\varepsilon(s\omega) - n^2(s\omega))^{1/2}}. \quad (8)$$

Используя процедуру, подобную описанной в [19], получим следующее уравнение для медленно меняющейся амплитуды третьей гармоники в волноводе с потерями:

$$\frac{d}{dz} C_{THG}^m + \frac{\alpha_3^m}{2} C_{THG}^m = i\beta_{THG}^{mq} (A_0^q)^3 \exp\left(-i\Delta k_{THG}^{mq} z - \frac{3\alpha_1^q z}{2}\right), \quad (9)$$

где α_3^m — коэффициент затухания моды EH_{1m} излучения третьей гармоники. Фазовую расстройку в этом случае можно записать в следующем виде:

$$\Delta k_{THG}^{mn} = K_3^m - 3K_1^q \approx \Delta k_{THG}^g + \Delta k_{THG}'^{mq}, \quad (10)$$

где

$$\Delta k^g = \frac{3\omega}{c} [n(3\omega) - n(\omega)], \quad (11)$$

$$\Delta k_{THG}'^{mq} = \frac{c}{2\omega a^2} \left[3(u^q)^2 - \frac{(u^m)^2}{3} \right] \quad (12)$$

— компоненты фазовой расстройки соответственно за счет дисперсии газа и волновода (полная фазовая расстройка может быть представлена в виде суммы двух компонент в случае, когда $n(\omega)$, $n(3\omega) \approx 1$). Нелинейный коэффициент β_{THG}^{mq} может быть выражен через соответствующую нелинейно-оптическую кубическую восприимчивость [14]:

$$\beta_{THG}^{mq} = \frac{9\pi\omega^2}{2K_3^m c^2} \chi_{THG}^{(3)} \times \frac{\iint f_3^m(\rho) [f_1^q(\rho)]^3 \rho d\rho d\theta}{\iint [f_3^m(\rho)]^2 \rho d\rho d\theta}, \quad (13)$$

где $\chi_{THG}^{(3)}$ — нелинейная восприимчивость третьего порядка, ответственная за процесс генерации третьей гармоники.

В отличие от приближения плоских волн (см., например, [19]), уравнение (9) учитывает влияние волновода через константы распространения (7) и нелинейный коэффициент (13), записанный с учетом поперечных распределений полей накачки и третьей гармоники для соответствующих мод волновода. В частности, расстройка волновых векторов, входящая в уравнение (9) и определяющая эффективность генерации третьей гармоники, зависит не только от дисперсии газа, но и от дисперсии волноводных мод. Данное обстоятельство, как было отмечено в работах [3, 8, 14], дает возможность улучшения условий фазового согласования для определенной пары волноводных мод излучения накачки и третьей гармоники.

Интегрируя уравнение (9), получим следующее выражение для амплитуды моды EH_{1m} третьей гармоники:

$$C_{THG}^m = i\beta_{THG}^{mq} (A_0^q)^3 \times \frac{\exp\left[-\frac{\alpha_3^m}{2}L\right] - \exp\left[\left(-\frac{3\alpha_1^q}{2} - i\Delta k_{THG}^{mq}\right)L\right]}{\frac{\alpha_3^m - 3\alpha_1^q}{2} - i\Delta k_{THG}^{mq}}, \quad (14)$$

где L — длина полого волновода, заполненного газом. В предельном случае малых потерь при нулевой фазовой расстройке данное выражение можно привести к виду

$$C_{THG}^m = i\beta_{THG}^{mq} (A_0^q)^3 L. \quad (15)$$

Используя выражение (15), получим следующую оценку для мощности сигнала третьей гармоники

$$P_{THG} \sim P_1^3 \frac{L^2}{a^4}, \quad (16)$$

где P_1 — мощность излучения основной частоты.

В случае процесса генерации разностной частоты $3\omega = 2\omega + 2\omega - \omega$ с участием моды EH_{1q} излучения основной частоты и мод $EH_{1l'}$ и $EH_{1l''}$ излучения второй гармоники в полом волноводе с потерями уравнение для медленно меняющейся амплитуды сигнала разностной частоты, возбуждаемого в волноводной моде EH_{1m} , записывается в следующем виде:

$$\frac{d}{dz} C_{DFG}^m + \frac{\alpha_3^m}{2} C_{DFG}^m = i\beta_{DFG}^{ml'l''q} A_0^{q*} B_0^{l'} B_0^{l''} \times \exp\left(-i\Delta k_{DFG}^{ml'l''q} z - \frac{\alpha_1^q + \alpha_2^{l'} + \alpha_2^{l''}}{2} z\right), \quad (17)$$

где фазовая расстройка с учетом дисперсии волноводных мод может быть записана в виде

$$\Delta k_{DFG}^{ml'l''q} = K_3^m - K_2^{l'} - K_2^{l''} + K_1^q \approx \Delta k_{DFG}^g + \Delta k_{DFG}^{ml'l''q}, \quad (18)$$

где

$$\Delta k_{DFG}^g = \frac{\omega}{c} [3n(3\omega) - 4n(2\omega) + n(\omega)], \quad (19)$$

$$\Delta k_{DFG}^{ml'l''q} = \frac{c}{2\omega a^2} \left[\frac{(u^{l'})^2}{2} + \frac{(u^{l''})^2}{2} - \frac{(u^m)^2}{3} - (u^q)^2 \right] \quad (20)$$

— компоненты фазовой расстройки, связанные с дисперсией газа и волноводных мод соответственно. Нелинейный коэффициент может быть выражен через соответствующую нелинейно-оптическую кубическую восприимчивость [14]:

$$\beta_{DFG}^{ml'l''q} = \frac{27\pi\omega^2}{K_3^m c^2} \chi_{DFG}^{(3)} \times \frac{\iint f_3^m(\rho) f_2^{l'}(\rho) f_2^{l''}(\rho) \rho d\rho d\theta}{\iint [f_3^m(\rho)]^2 \rho d\rho d\theta}, \quad (21)$$

где $\chi_{DFG}^{(3)}$ — нелинейная восприимчивость третьего порядка, ответственная за процесс генерации разностной частоты.

Интегрируя уравнение (21), получим следующее выражение для амплитуды сигнала разностной частоты, возбуждаемого в волноводной моде EH_{1m} :

$$C_{DFG}^m = i\beta_{DFG}^{m'l''q} A_0^{q*} B_0' B_0'' \frac{\exp\left[-\frac{\alpha_3^m}{2}L\right] - \exp\left[\left(-\frac{\alpha_1^q + \alpha_2' + \alpha_2''}{2} - i\Delta k_{DFG}^{m'l''q}\right)L\right]}{\frac{\alpha_3^m - \alpha_1^q - \alpha_2' - \alpha_2''}{2} - i\Delta k_{DFG}^{m'l''q}}. \quad (22)$$

В предельном случае малых потерь и при нулевой фазовой расстройке данное выражение можно привести к виду

$$C_{DFG}^m = i\beta_{DFG}^{m'l''q} A_0^{q*} B_0' B_0'' L. \quad (23)$$

Используя (23), получим для мощности сигнала гармоники

$$P_{DFG} \sim P_1 P_2^2 \frac{L^2}{a^4}, \quad (24)$$

где P_2 — мощность излучения накачки на частоте второй гармоники.

Выражения (16) и (24) позволяют установить зависимость мощности ЧВВ-сигнала от геометрических размеров полого волновода. В следующем разделе мы воспользуемся этими формулами для пояснения физических причин увеличения эффективности ЧВВ-процессов за счет использования нелинейных взаимодействий коротких импульсов накачки в полых волноводах.

2.2. Увеличение эффективности ЧВВ в волноводном режиме

Для того чтобы пояснить, как эффективность ЧВВ-процессов может быть увеличена за счет использования нелинейных взаимодействий коротких световых импульсов в полых волноводах, приведем основные выражения элементарной теории ЧВВ. Выражения для мощности сигналов, возникающих в результате ЧВВ-процессов генерации третьей гармоники и генерации разностной частоты (в общем случае $\omega_{DF} = 2\omega_2 - \omega_1$), приведены во многих учебниках по нелинейной оптике [19, 20]. В частности, в режиме слабой фокусировки, когда выполнено условие

$$b \gg L, \quad (25)$$

где b — конфокальный параметр, данные выражения можно записать в следующем виде:

$$P_{THG} \sim P_1^3 \frac{L^2}{b^2} \frac{\sin^2[(\Delta k + 4/b)L/2]}{[(\Delta k + 4/b)L/2]^2} \quad (26)$$

в случае генерации третьей гармоники,

$$P_{DFG} \sim P_1 P_2^2 \frac{L^2}{b^2} \frac{\sin^2[\Delta k L/2]}{[\Delta k L/2]^2} \quad (27)$$

в случае генерации разностной частоты. Здесь использованы следующие обозначения: P_1, P_2 — мощности пучков накачки, Δk — фазовая расстройка для соответствующего ЧВВ-процесса.

Рассмотрим подробнее увеличение эффективности ЧВВ-процессов в полых волноводах относительно геометрии жесткой фокусировки за счет увеличения длины взаимодействия световых пучков. С физической точки зрения эффективность ЧВВ-процесса увеличивается в полом волноводе благодаря тому обстоятельству, что использование полого волновода позволяет достигнуть уровней интенсивности излучения, характерных для режима жесткой фокусировки, а волноводный режим обеспечивает большую длину взаимодействия пучков в режиме, близком к режиму плоских волн. Так как интенсивность ЧВВ-сигнала пропорциональна интенсивностям пучков накачки, мощность ЧВВ-сигнала может увеличиваться путем уменьшения диаметра полого волновода при неизменной мощности пучков накачки до тех пор, пока выполняется условие фазового согласования и мало затухание взаимодействующих волн в волноводе. Роль полого волновода, таким образом, заключается в обеспечении режима взаимодействия коллимированных пучков (ср. формулы (26), (27) и (16), (24)) для световых пучков, имеющих интенсивности жестко сфокусированных пучков, и одновременном увеличении длины взаимодействия этих пучков, в том числе путем решения проблемы фазового согласования.

На рис. 1 приведены рассчитанные по формулам (10)–(12), (18)–(20) зависимости фазовой расстройки для процессов генерации третьей гармоники и генерации разностной частоты с участием различных волноводных мод от радиуса полого волновода, наполненного воздухом при нормальных условиях. Как видно из приведенных зависимостей, при правильном выборе радиуса полого волновода фазовая расстройка для процесса генерации разност-

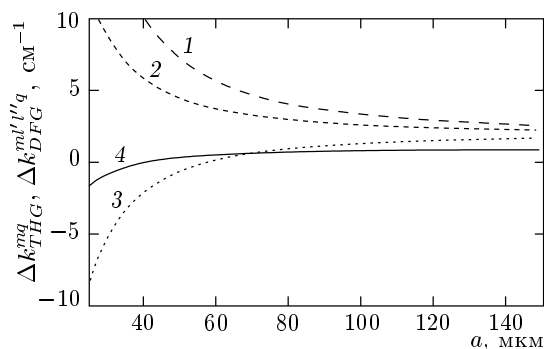


Рис. 1. Зависимости фазовой расстройки для процессов генерации третьей гармоники (1–3) и генерации суммарной частоты (4) в полном волноводе, наполненном воздухом при нормальных условиях, от внутреннего радиуса полого волновода a . Поперечное распределение поля накачки соответствует волноводной моде EH_{11} . Третья гармоника генерируется в волноводных модах EH_{11} (1), EH_{12} (2), EH_{13} (3). Сигнал разностной частоты генерируется в волноводной моде EH_{11}

ной частоты с участием низших волноводных мод излучений накачки и сигнала обращается в нуль. В случае генерации третьей гармоники в поле накачки с поперечным распределением интенсивности, соответствующим основной моде, условие фазового согласования может быть выполнено только для высших мод полого волновода. Проблема фазового согласования в этих условиях может быть решена путем изменения давления газа, выбора параметров волновода и возбуждения соответствующих волноводных мод [3, 8, 14].

Таким образом, имеются два простейших способа увеличения эффективности нелинейно-оптических процессов в полых волноводах: (i) увеличение длины волновода и (ii) уменьшение внутреннего радиуса волновода. Очевидно, имеются пределы для роста фактора увеличения эффективности взаимодействия. Увеличение длины волновода ограничивается потерями, которыми характеризуются моды полых волнопроводов, а уменьшение внутреннего радиуса волновода означает необходимость более жесткой фокусировки излучения накачки, что в конечном итоге приводит к пробоям газа, заполняющего волновод. Уменьшение длительности импульса при этом позволяет повысить эффективность нелинейно-оптических процессов за счет увеличения порога пробоя.

2.3. Снятие запрета на генерацию третьей гармоники

Полые волноводы играют еще более важную роль в случае процессов генерации суммарной частоты и генерации третьей гармоники. В средах с нормальной дисперсией подобные ЧВВ-процессы характеризуются низкой эффективностью в режиме жесткой фокусировки излучения из-за дополнительного набега фазы сфокусированного пучка относительно фазы плоской волны. Вблизи оси гауссового пучка данный сдвиг описывается следующим выражением [20]:

$$\Delta\varphi = -\arctg \frac{2(z - z_0)}{b}, \quad (28)$$

где z_0 — координата перетяжки сфокусированного пучка.

В соответствии с выражением (28), фазовый сдвиг между полем третьей гармоники и нелинейной поляризацией, ответственной за ее генерацию, стремится к $\pm\pi$ при $z \rightarrow \pm\infty$. Таким образом, из-за деструктивной интерференции поля накачки и полей третьей гармоники, генерируемых до и после фокуса, нелинейный сигнал на выходе из среды обращается в нуль.

Ситуация радикальным образом изменяется в случае полых волнопроводов, в которых световые пучки взаимодействуют в режиме коллимированных пучков, и сдвиг фаз равен $\pm\pi$ не возникает, что обеспечивает возможность эффективной генерации третьей гармоники. В разд. 4 будут представлены экспериментальные данные, подтверждающие этот вывод.

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА

Экспериментальная установка для исследования ЧВВ-процессов в наполненных газом полых волноводах (рис. 2) состояла из пикосекундной лазерной системы, генерировавшей излучение на длинах волн 1.06 и 0.53 мкм, полого волновода и системы регистрации на основе фотодетектора, фотоумножителя и ПЗС-камеры. Пикосекундная система включала в себя задающий генератор на кристалле Nd:YAG с пассивной синхронизацией мод и управляемой добротностью резонатора [21], систему выделения одиночных импульсов и усилительные каскады. Пассивная синхронизация мод в задающем генераторе осуществлялась при помощи пленочного насыщающегося поглотителя, помещаемого перед глухим зеркалом резонатора и позволяющего получать импульсы длительностью 35 пс. Отрицательная обрат-

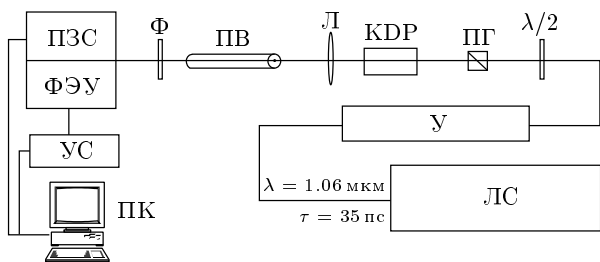


Рис. 2. Экспериментальная установка для исследования ЧВВ-процессов в наполненных газом полых волноводах на основе пикосекундной лазерной системы с пассивной синхронизацией мод: ЛС — пикосекундная лазерная система; У — система усиления; ПГ — призма Глана; Л — ахроматическая линза; ПВ — полый волновод; Ф — фильтр; ФЭУ — фотоумножитель; ПЗС — ПЗС-матрица; УС — система обработки сигнала; ПК — персональный компьютер

ная связь реализовывалась путем внесения в резонатор задающего лазера электрооптического затвора, управляемого быстродействующим фотоумножителем, на вход которого подавался оптический сигнал. Система отрицательной обратной связи позволяла существенно повысить стабильность параметров лазерных импульсов [22] и обеспечивала генерацию цугов пикосекундных импульсов с длительностью огибающей порядка 30–40 мкс. После достижения стационарного режима генерации система отрицательной обратной связи отключалась и лазер переходил в режим генерации коротких цугов пикосекундных импульсов длительностью около 100 нс и энергией около 1.5 мДж.

Для выделения одиночного импульса использовался электрооптический затвор. Энергия выделенного импульса длительностью 35 пс составляла 30–40 мкДж. Система выделения одиночного импульса также служила в качестве оптической развязки, предотвращавшей возникновение паразитной обратной связи между усилительными каскадами и задающим генератором, а также устранявшей влияние излучения, отраженного от оптических элементов усилительной системы, на формирование цуга импульсов в задающем генераторе. Более подробное описание лазерной системы приводится в работах [21, 22].

Одиночный импульс излучения с длиной волны 1.06 мкм проходил через три каскада усиления. Энергия лазерного импульса на выходе третьего каскада достигала 50 мДж. Пространственное распределение интенсивности в сечении пучка усиленного

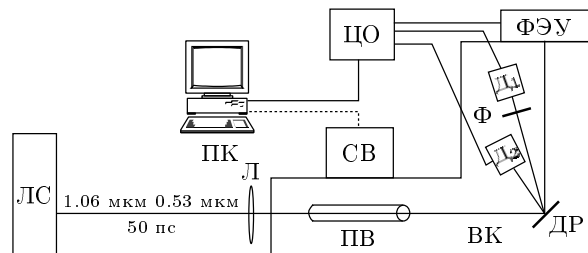


Рис. 3. Экспериментальная установка для исследования влияния давления газа в полых волноводах на ЧВВ-процессы: ЛС — пикосекундная лазерная система; Л — ахроматическая линза; ВК — вакуумная камера; ПВ — полый волновод; ДР — дифракционная решетка; ФЭУ — фотоумножитель; Ф — фильтр для выделения основного излучения; Д₁ и Д₂ — фотодиоды для контроля энергии основного излучения и второй гармоники соответственно; ЦО — цифровой осциллограф; СВ — система напуска газа, управляемая персональным компьютером ПК

излучения было близко к гауссовому. Это излучение использовалось в качестве накачки в схемах генерации третьей гармоники, а также генерации суммарной и разностной частот. В экспериментах с двухчастотной накачкой использовалось также излучение второй гармоники лазера на Nd:YAG, получаемое при помощи кристалла KDP. Пучки накачки заводились в полый волновод при помощи сферической линзы (рис. 2). В наших экспериментах использовались полые оптические волокна с внутренними диаметрами 70, 100, 127, 152 и 203 мкм, с длинами от 1 до 30 см. Коэффициенты ослабления излучения с длиной волны 1.06 мкм, измеренные для этих волноводов, составляли 0.6, 0.2, 0.1, 0.06 и 0.04 дБ/см соответственно. Сигналы, получаемые в результате процессов генерации третьей гармоники, а также генерации суммарной и разностной частот в полых волноводах, выделялись с помощью монохроматора и фильтров и регистрировались при помощи фотоумножителя. Для исследования пространственных профилей пучка накачки, третьей гармоники, а также сигналов суммарной и разностной частот использовалась ПЗС-матрица.

Для измерения зависимостей нелинейно-оптических сигналов от давления газа в волноводе нами использовалась экспериментальная установка (рис. 3), состоявшая из пикосекундного лазера, вакуумной камеры, в которую помещался полый волновод, и системы регистрации на основе фотоумножителя. Лазер на кристалле Nd:YAG позволял получать импульсы излучения с длиной волны 1.06 и

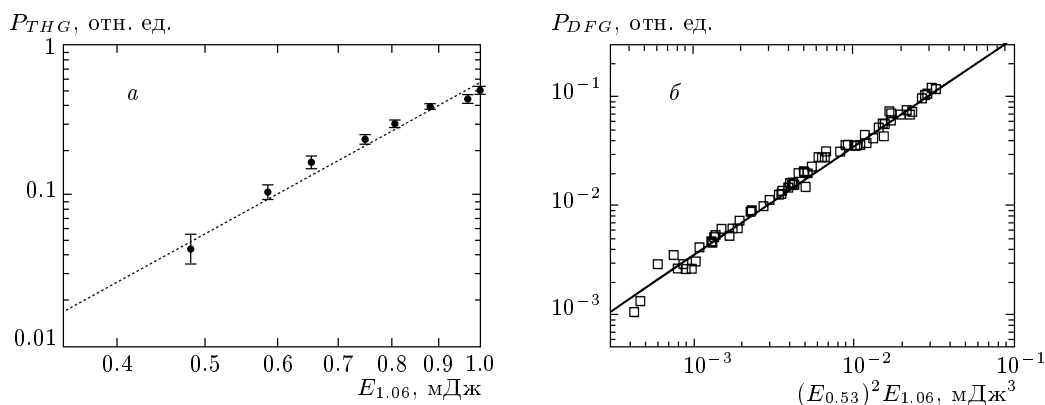


Рис. 4. Зависимости мощности сигнала третьей гармоники (а) и разностной частоты (б) в полном волноводе, наполненном воздухом при нормальных условиях, от энергии основного излучения $E_{1.06}$ (а) и параметра $(E_{0.53})^2 E_{1.06}$ ($E_{0.53}$ — энергия излучения второй гармоники). Диаметр волновода составляет (а) 127, (б) 152 мкм; длина волновода равна 4 (а), 20 см (б). Для сравнения приведены кубическая (а) и линейная (б) зависимости

0.53 мкм длительностью 50 пс. Максимальная энергия излучения с длиной волны 1.06 мкм достигала 100 мДж. Для удвоения частоты использовался кристалл КДР. Излучение накачки вводилось в волновод при помощи ахроматической линзы. Энергии пучков накачки на выходе из волновода контролировались при помощи пары фотодиодов. Энергии импульсов основного излучения и второй гармоники в этих экспериментах составляли 1 и 0.1 мДж соответственно. Сигнал, генерируемый в результате нелинейно-оптического взаимодействия в полном волноводе, регистрировался фотумножителем и обрабатывался при помощи цифрового осциллографа. Результат усреднения сигнала по 30 импульсам сохранялся на персональном компьютере.

4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Результаты экспериментальных исследований подтверждают наши ожидания относительно общего увеличения эффективности ЧВВ-процессов за счет использования полых волноводов, снятия запрета на генерацию третьей гармоники, а также существенного влияния эффектов фазового синхронизма и заметной роли высших волноводных мод. Экспериментальные данные подтверждают также возможность введения в волновод пикосекундных импульсов достаточно высокой интенсивности без заметного возмущения газовой среды и самовоздействия импульсов.

На рис. 4 представлены зависимости мощности сигналов третьей гармоники и разностной частоты

от энергии импульсов накачки. Как видно из представленных на рис. 4а экспериментальных данных, зависимость мощности сигнала третьей гармоники от энергии накачки с высокой точностью аппроксимируется кубической функцией. Мощность сигнала разностной частоты $\omega_{DF} = 2\omega_2 - \omega_1$ (где ω_1 — частота основного излучения Nd:YAG-лазера, $\omega_2 = 2\omega_1$ — частота излучения второй гармоники) увеличивается линейно с ростом мощности излучения основной частоты и квадратично с ростом мощности излучения второй гармоники (см. рис. 4б). Эти результаты свидетельствуют о том, что в исследуемом диапазоне интенсивностей импульсов накачки эффекты, связанные с ионизацией среды, а также самовоздействием импульсов накачки не играют заметной роли в процессах нелинейно-оптического взаимодействия. Этот вывод подтверждается также тем фактом, что при фокусировке пучков накачки с теми же параметрами фокусировки, что и в экспериментах с полыми волноводами, но в отсутствие волновода генерация третьей гармоники, которая легко регистрируется в условиях ионизации среды и связанного с ионизацией самовоздействия импульсов накачки [15, 16], не наблюдалась.

Влияние эффектов фазового синхронизма на ЧВВ-процессы в полых волноводах иллюстрируются экспериментальными данными, представленными на рис. 5. В частности, экспериментальные данные свидетельствуют о том, что зависимости мощности сигнала разностной частоты от давления газа в полном волноводе оказываются качественно схожими для газов, дисперсионные свойства которых в исследуемом частотном диапазоне различаются незна-

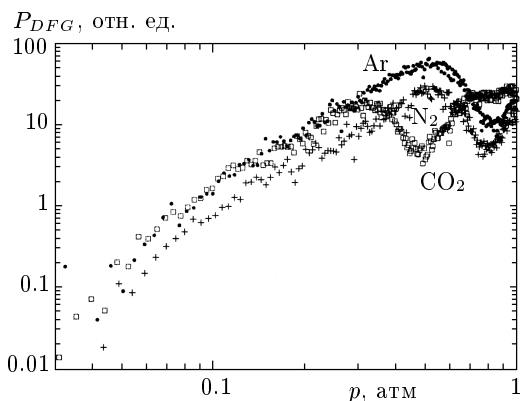


Рис. 5. Зависимости мощности сигнала разностной частоты в полом волноводе, наполненном различными газами (Ag (●), N₂ (+), CO₂ (□)) от давления газа p ; длина волновода 19.3 см, внутренний диаметр волновода 127 мкм

чительно. Так, зависимости мощности сигнала разностной частоты от давления аргона и азота в полом волноводе обнаруживают качественно сходные тенденции (рис. 5). В то же время зависимость мощности сигнала разностной частоты, полученная для углекислого газа, качественно отличается от аналогичных кривых для аргона и азота. Это вызвано существенными отличиями свойств дисперсии углекислого газа от свойств дисперсии аргона и азота. В частности, при атмосферном давлении углекислого газа имеем фазовую расстройку порядка $\Delta k_{DFG}^g = 1.8 \text{ см}^{-1}$, что существенно отличается от фазовой расстройки, соответствующей атмосферному давлению азота и аргона ($\Delta k_{DFG}^g = 1 \text{ см}^{-1}$).

Сравнение экспериментальных данных, приведенных на рис. 6 и 7, с результатами расчетов, выполненных в соответствии с выражениями (18)–(20), (22), указывает на заметную роль высших волноводных мод в процессах нелинейно-оптического взаимодействия в полых волноводах.

Показательными в этом отношении являются результаты, полученные для процесса генерации разностной частоты $\omega_{DF} = 2\omega_2 - \omega_1$ в заполненном аргоном волноводе длиной 17.4 см и внутренним диаметром $a = 100 \text{ мкм}$. Хорошее согласие между экспериментальными данными (квадраты) и результатами расчетов (сплошные линии) достигается при учете вклада высших волноводных мод. В частности, экспериментальная зависимость, представленная на рис. 6, может быть воспроизведена с хорошей точностью на основе выражений (18)–(20), (22), если принять во внимание не только процесс генера-

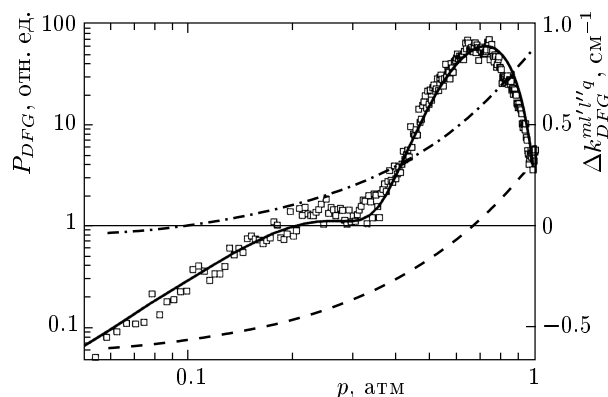


Рис. 6. Зависимости мощности сигнала разностной частоты (точками показаны экспериментальные данные, сплошной линией — результаты расчетов) и фазовой расстройки для процесса генерации разностной частоты в полом волноводе, наполненном аргоном, от давления аргона p . Штриховой линией показана фазовая расстройка для процесса генерации разностной частоты в основной волноводной моде EH_{11} . Штрих-пунктирная линия показывает фазовую расстройку для процесса генерации разностной частоты с участием EH_{12} -моды основного излучения, EH_{11} - и EH_{13} -мод второй гармоники и EH_{12} -моды сигнала разностной частоты. Длина полого волновода 17.4 см, внутренний диаметр полого волновода 100 мкм

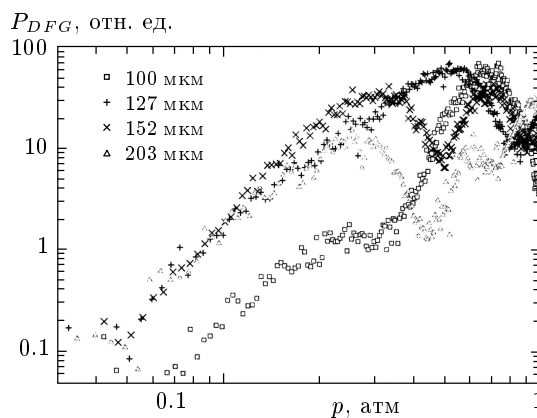


Рис. 7. Зависимости мощности сигнала разностной частоты в наполненных аргоном полых волноводах с различными внутренними диаметрами от давления аргона p . Длина волновода во всех экспериментах составляла примерно 20 см. Внутренний диаметр волновода равен 100 (□), 127 (+), 152 (×), 203 мкм (△)

ции разностной частоты, происходящий в основной волноводной моде (когда излучение основной частоты, вторая гармоника и сигнал разностной частоты имеют пространственный профиль распределения интенсивности, характерный для EH_{11} -мод полого волновода), но и ЧВВ-процесс, идущий с участием EH_{12} -моды основного излучения, EH_{11} - и EH_{13} -мод второй гармоники и EH_{12} -моды сигнала разностной частоты. Максимум сигнала разностной частоты, который наблюдается при давлении аргона около 0.7 атм, при этом соответствует достижению фазового согласования для процесса генерации разностной частоты в основной волноводной моде (штриховая линия на рис. 6 показывает фазовую расстройку для этого процесса). При более низких давлениях возрастает роль процесса генерации разностной частоты с участием EH_{12} -моды основного излучения, EH_{11} - и EH_{13} -мод второй гармоники и EH_{12} -моды сигнала разностной частоты (фазовая расстройка для этого процесса показана штрих-пунктирной линией на рис. 6). Высшие волноводные моды полого волновода, таким образом, могут оказывать заметное влияние на процессы четырехволнового взаимодействия.

На рис. 7 показаны зависимости мощности сигнала разностной частоты, генерируемого в наполненных аргоном полых волноводах с различными внутренними диаметрами и длиной ≈ 20 см, от давления аргона p . Как видно на рис. 7, максимум сигнала разностной частоты, связанный с взаимодействием накачки и сигнала в основной моде полого волновода, смещается при увеличении внутреннего диаметра волновода в область низких давлений, приближаясь в случае больших внутренних радиусов к предельному значению, соответствующему процессу ЧВВ в коллимированных пучках. В этом предельном случае максимальная мощность сигнала разностной частоты в соответствии с выражением (27) достигается при давлении газа в волноводе равном 0.16 атм (при этом давлении когерентная длина $L_{ph} = \pi/\Delta k_{DFG}^g$ становится равной длине волновода). Эти результаты находятся в полном согласии с нашими ожиданиями, основанными на анализе выражений (18)–(20). Максимумы сигнала разностной частоты, которые наблюдаются при давлении аргона около 0.7 атм для волновода диаметром 152 мкм и при давлении 0.9 атм для волновода диаметром 203 мкм, могут быть объяснены, по аналогии с рассмотренным выше случаем, ЧВВ-процессом с участием высших волноводных мод накачки и сигнала.

Заметим, что методически важным аспектом наших экспериментов явилось использование достаточно длинных импульсов, что позволило нам ис-

следовать эффекты фазового синхронизма в условиях, когда влияние групповой задержки импульсов, участвующих в ЧВВ-процессах, пренебрежимо мало (см. оценки, приведенные в работах [12, 14]). Оптимизация условий фазового согласования для ЧВВ-процессов в полых волноводах, достигнутая в наших экспериментах при этих условиях, позволила существенно увеличить длину полых волноводов (эксперименты по генерации разностной частоты выполнялись с использованием полых волноводов длиной до 30 см). Это в свою очередь позволило нам добиться эффективностей ЧВВ-процессов, сравнимых по порядку величины с эффективностями, достигаемыми в экспериментах, выполняемых с использованием фемтосекундных импульсов гораздо более высоких интенсивностей. Данный результат представляется чрезвычайно важным для многочисленных спектроскопических приложений, требующих использования импульсов с ограниченной спектральной шириной.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, выполненное в данной работе экспериментальное исследование ЧВВ-процессов генерации третьей гармоники и разностной частоты в поле пикосекундных импульсов позволило выявить ряд важных свойств нелинейно-оптических взаимодействий в наполненных газом полых волноводах, представляющих интерес с методической точки зрения и открывающих новые возможности для практических приложений полых волноводов в нелинейной оптике, оптике сверхкоротких импульсов и нелинейной спектроскопии. В отличие от экспериментов, выполняемых с использованием импульсов с высокой плотностью мощности, в наших экспериментах удалось реализовать условия, при которых эффекты, связанные с ионизацией среды и самовоздействием импульсов накачки, не оказывают существенного влияния на нелинейно-оптические процессы в полом волноводе, о чем свидетельствует отсутствие генерации оптических гармоник при жесткой фокусировке импульсов накачки в отсутствие волновода. Результаты экспериментальных исследований указывают на возможность введения в волновод пикосекундных импульсов достаточно высокой интенсивности без заметного возмущения газовой среды и самовоздействия импульсов. Экспериментальный подход, основанный на использовании пикосекундных импульсов, позволил нам исследовать основные свойства ЧВВ-процессов в волноводном режиме

и изучить пути достижения фазового согласования при этих условиях.

Улучшение условий фазового согласования путем изменения давления газа и выбора оптимальных параметров полого волновода позволило использовать для генерации разностной частоты полые волноводы большой длины (до 30 см), что привело к существенному увеличению мощности сигнала разностной частоты на выходе волновода. Полученные экспериментальные данные свидетельствуют о существенном влиянии, оказываемом на процессы четырехволнового взаимодействия волноводными модами высших порядков. Данный эффект может быть использован для увеличения энергии коротковолнового излучения, получаемого при нелинейно-оптических взаимодействиях в полых волноводах. Эффекты, связанные с влиянием волноводных мод высших порядков, также необходимо принимать во внимание при оптимизации преобразователей частоты и компрессоров импульсов на основе полых волноводов в условиях, когда возбуждение высших волноводных мод приводит к нежелательным потерям энергии.

Исследования, выполненные в данной работе, показывают, что волноводный режим нелинейно-оптических взаимодействий, реализуемый в полых волноводах, позволяет снять ограничения на эффективность генерации третьей гармоники, характерные для режима жесткой фокусировки в средах с нормальной дисперсией и связанные с геометрическим набегом фазы жестко сфокусированных световых пучков. Данное обстоятельство расширяет возможности использования полых волноводов для преобразования частоты и анализа газов методами нелинейной спектроскопии.

Работа выполнена при поддержке гранта № 00-15-99304 Президента Российской Федерации, гранта РФФИ № 00-02-17567, Федеральной программы «Интеграция» (государственный контракт АО155) и гранта CRDF № RP2-2266.

ЛИТЕРАТУРА

1. M. Nisoli, S. De Silvestri, and O. Svelto, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 2793 (1996).
2. M. Nisoli, S. De Silvestri, O. Svelto et al., *Opt. Lett.* **22**, 522 (1997).
3. C. G. Durfee III, S. Backus, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, *Opt. Lett.* **22**, 1565 (1997).
4. A. Rundquist, C. G. Durfee III, Z. Chang et al., *Science* **5368**, 1412 (1998).
5. Y. Tamaki, K. Midorikawa, and M. Obara, *Appl. Phys. B* **67**, 59 (1998).
6. C. G. Durfee III, A. Rundquist, Z. Chang et al., in *Proc. Int. Quant. Electronics Conf. (IQEC'98)*, San Francisco, CA (1998), QPD5.
7. E. Constant, D. Garzella, P. Breger et al., *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1668 (1999).
8. C. G. Durfee III, A. R. Rundquist, S. Backus et al., *Phys. Rev. Lett.* **83**, 2187 (1999).
9. R. B. Miles, G. Laufer, and G. C. Bjorklund, *Appl. Phys. Lett.* **30**, 417 (1977).
10. A. B. Fedotov, F. Giammanco, A. N. Naumov et al., *Laser Phys.* **11** (2001).
11. A. N. Naumov, A. M. Zheltikov, A. B. Fedotov et al., submitted to *J. Opt. Soc. Amer. B*.
12. N. I. Koroteev and A. M. Zheltikov, *Appl. Phys. B* **67**, 53 (1998).
13. C. G. Durfee III, S. Backus, H. C. Kapteyn, and M. M. Murnane, *Opt. Lett.* **24**, 697 (1999).
14. А. М. Желтиков, Н. И. Коротеев, А. Н. Наумов, *ЖЭТФ* **115**, 1561 (1999).
15. S. Backus, J. Peatross, Z. Zeek et al., *Opt. Lett.* **21**, 665 (1996).
16. A. B. Fedotov, N. I. Koroteev, M. M. T. Loy et al., *Opt. Commun.* **133**, 587 (1997).
17. E. A. J. Marcatili and R. A. Schmeltzer, *Bell Syst. Tech. J.* **43**, 1783 (1964).
18. M. J. Adams, *An Introduction to Optical Waveguides*, J. Wiley and Sons, Chichester (1981).
19. Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*, Wiley, New York (1984).
20. J. F. Reintjes, *Nonlinear Optical Parametric Processes in Liquids and Gases*, Academic, Orlando (1984).
21. A. M. Zheltikov, N. I. Koroteev, and A. B. Fedotov, *Laser Phys.* **4**, 569 (1994).
22. A. B. Fedotov, N. I. Koroteev, A. N. Naumov et al., *J. Nonlinear Opt. Phys. Mater.* **6**, 387 (1997).