

**Femtosekundumos fényimpulzusok terjedésével kapcsolatos
jelenségek**

**Különbségi frekvencia keltése (DFG) AgGaS_2 és AgGaSe_2
kristályban**

PhD értekezés

írta:

Benkő Zsolt István

Témavezető: Dr. Bor Zsolt akadémikus

József Attila Tudományegyetem, Optikai és Kvantumelektronikai Tanszék

Szeged

1998

Tartalomjegyzék

Bevezetés.....	4
<u>I. rész: Femtoszekundumos fényimpulzusok terjedésével kapcsolatos jelenségek..</u>	6
1. Tudományos előzmények.....	7
1.1 Impulzusfront torzulások tanulmányozása különböző optikai elemek esetén.....	7
1.1.1 Impulzusfront dőlése prizmán történő áthaladásnál.....	7
1.1.2 Impulzusfront dőlése rácson történő áthaladásnál.....	8
1.1.3 Impulzusfront torzulása lencsén történő áthaladásnál.....	9
1.2 Szélihullámok.....	11
1.3 Talbot csíkok.....	13
2. Célkitűzések.....	14
3. Tudományos eredmények.....	15
3.1 Impulzusfront dőlésének kimérése repülési idő interferométerrel.....	15
3.1.1 Femtoszekundumos impulzus helyettesíthetősége rövid koherenciahosszúságú lézerimpulzussal.....	15
3.1.2 Kísérleti elrendezés.....	16
3.1.3 Mérési eredmények és összehasonlításuk a számított értékekkel.....	17
3.2 Femtoszekundumos impulzusok terjedésének vizsgálata speciális esetekben.....	19
3.2.1 Femtoszekundumos impulzus áthaladása résen. Szélihullámok.....	19
3.2.2 Talbot csíkok.....	27
3.2.3 Femtoszekundumos impulzus áthaladása kör alakú nyíláson.....	36
<u>II. rész: Különbségi frekvencia keltése AgGaS₂ és AgGaSe₂ kristályban.....</u>	39
4. Tudományos előzmények.....	41
4.1 Infravörös spektroszkópiához használt lézer- és lézerszerű fényforrások.....	41
4.2 Nemlineáris kristályok használata; konverziók (SFG, SHG, DFG, SPE).....	41
4.3 90°-os fázisillesztés előnyei; I és II típusú fázisillesztés.....	45
4.4 Az ezüst-tiogallát (AgGaS ₂) és ezüst-gallium-szelenid (AgGaSe ₂) kristályok tulajdonságai és használatuk a nemlineáris optikában.....	46
5. Célkitűzések.....	48
6. Tudományos eredmények.....	49

6.1 Az ezüst-tiogallát (AgGaS_2) kristály nemlineáris együttthatójának meghatározása.....	49
6.2 Különbségi frekvencia keltése AgGaS_2 kristályban I típusú, 90° -os fázisillesztéssel.....	53
6.2.1 Elméleti modellezés.....	53
6.2.2 Kísérleti elrendezés és eredmények.....	61
6.2.3 A DFG-vel keltett infravörös fény felhasználása spektroszkópiai mérésekhez.....	65
6.3 Különbségi frekvencia keltése AgGaSe_2 kristályban.....	67
7. Összefoglalás.....	71
Summary.....	73
Köszönetnyilvánítás.....	77
Az értekezés alapját képező közlemények.....	78
Irodalomjegyzék.....	79

Bevezetés

Az első lézerműködéstől 37 év telt csak el, s napjainkban már a lézer az élet szinte minden területén jelen van. A tudományos és katonai kutatásokban a kezdetektől fogva alkalmazzák részint, hogy jobban megismerjék a lézerek, a fény tulajdonságait, részint, hogy a lézereket felhasználva új eredményeket érjenek el. Fokozatosan bekerült az orvostudományba, az ipari megmunkálásba, az információtechnikába, a szórakoztató elektronikába. Vonalkódleolvasóként ott van az áruházakban, könyvtárakban, kölcsönzőkben. Még a közutakra is eljutott: sebességmérőként. A jövőben pedig talán optikai számítógépek fogják segíteni munkánkat.

A lézerek fejlesztése, alkalmazási lehetőségeinek megkeresése iparággá vált. Mindezek ellenére a tudományos és katonai kutatásokban továbbra is az egyik főszerep a lézereké. Szerteágazó kutatásokat végeznek a világ minden pontján, hogy minél rövidebb időtartamú, vagy minél nagyobb energiájú, vagy minél keskenyebb sávszélességű lézereket hozzanak létre, hogy ezeket azután más gyakorlati vagy ismereti határok kitágításához használjanak fel.

A dolgozatomban két területet érintek. Az egyik a femtoszekundumos impulzusok viselkedése, a másik a nemlineáris optika egy speciális alkalmazása.

Egy nanoszekundumos (10^{-9} s) lézerimpulzus térbeli hossza vákuumban 0.3 m. Ha a terjedési irányra merőlegesen az impulzus egyes részei között néhány milliméter elcsúszás létrejön a különböző optikai elemeken való áthaladáskor, ez gyakorlatilag nem jelent különösebb változást az impulzus felhasználhatósága tekintetében.

Ma a legrövidebb előállítható lézerimpulzusok 5 fs körüli időtartamúak. Egy ilyen impulzus térbeli kiterjedése a terjedés irányában körülbelül $1.5 \mu\text{m}$, arra merőlegesen pedig általában néhány milliméter. Könnyen belátható, hogy ez a vékony lapocska formájú lézerimpulzus minden optikai elmen áthaladva torzulásokat fog szenvedni, melyek eredményeképpen útja végére akár teljesen "összegyűrődve", s ennek következtében jócskán megnövekedett időtartammal érkezhetsz. Emiatt gyakorlati fontosságúvá vált az ilyen torzulások minél pontosabb megismerése, kiszámítása. Dolgozatom első részében a femtoszekundumos impulzusok néhány egyszerű optikai elemen való áthaladását vizsgálom.

A második részben egy nemlineáris optikai témával foglalkozom. Molekuláris

kutatások, leginkább a szabad gyökök kutatása, valamint környezetvédelmi mérések miatt felerősödött az igény egy megfelelően keskeny sáv szélességű, a közép-infravörös spektrális tartományban ($2\text{ }\mu\text{m}$ - $15\text{ }\mu\text{m}$) elég széles hangolhatóságú fényforrás iránt. Az egyik megoldás lehet különbségi frekvencia keltése (Difference Frequency Generation = DFG) megfelelő nemlineáris optikai kristályok felhasználásával. Ennek elméleti és kísérleti vonatkozásait tárgyalom ezüst-gallium-szulfid (AgGaS_2) és ezüst-tiogallát (AgGaSe_2) kristályokra.

I. RÉSZ

FEMTOSZEKUNDUMOS FÉNYIMPULZUSOK TERJEDÉSÉVEL KAPCSOLATOS JELENSÉGEK

1. Tudományos előzmények

Jelen fejezetben áttekintést nyújtok a femtoszekundumos impulzusok torzulásaival foglalkozó irodalomról a teljesség igénye nélkül, elsősorban az általam is vizsgált jelenségekre, illetve azokhoz közeli jelenségekre koncentrálva.

1.1 Impulzusfront torzulások tanulmányozása különböző optikai elemek esetén

Valamennyi impulzus közös tulajdonsága, hogy nem monokromatikusak. Van valamekkora sáv szélességük, ami fordítottan arányos az időtartamukkal. Diszperzív közegben az impulzus terjedési sebessége különbözni fog a monokromatikus komponensek $c/n(\lambda)$ fázissebességétől [1,2]. Ha ez a sáv szélesség kellőképpen kicsi ($\Delta\lambda/\lambda_0 \ll 1$) [1,2], akkor az impulzus intenzitásának maximuma csoportsebességgel [1,2] terjed, ami a

$$v_g = \left. \frac{\partial \omega}{\partial k} \right|_{\lambda_0} = \frac{c}{n(\lambda_0) - \lambda_0 \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_{\lambda_0}} \quad (1)$$

képlettel számolható, ahol v_g a csoportsebesség, ω a körfrekvencia, k a hullámszám, c a fénysebesség, n a törésmutató az adott közegre, λ_0 a fény központi hullámhossza.

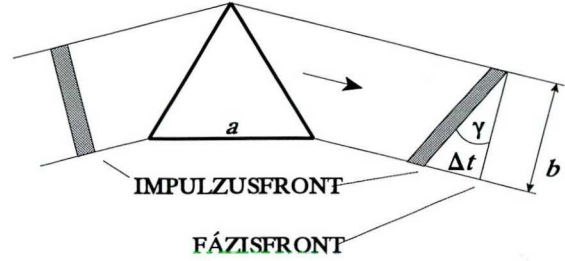
Az impulzusfront az intenzitás maximumok által egy adott időpillanatban kijelölt felület. A fázisfront pedig az azonos fázisú pontok által egy adott időpillanatban kijelölt felület. A fázisfront normálisa a terjedési irány. Piko- vagy femtoszekundumos impulzusok esetén a fázisfront és az impulzusfront egymástól való eltérése már szembetűnő lehet akár egyetlen optikai elemen történő áthaladás után is. A következőkben részletezem egy rövid impulzus áthaladását néhány egyszerűbb optikai elemen. (A továbbiakban rövid impulzus alatt a femtoszekundumos impulzust értem.)

1.1.1 Impulzusfront dőlése prizmán történő áthaladásnál

Haladjon át egy rövid impulzus egy a alapú prizmán az 1. ábrának megfelelően, azaz a prizma teljes felülete legyen kivilágítva [3]. Ekkor a prizma élénél az impulzusfront nem szenved késést a fázisfronthoz képest. Az éltől a prizma alapjáig haladva, az impulzusfront késése a fázisfronthoz képest egyre nagyobb lesz. A prizma alapján áthaladó részre az időkésleltetés mértéke [3]:

$$\Delta t = \frac{a}{v_g} - \frac{a}{c} = -\frac{a}{c} \lambda_0 \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_{\lambda_0} \quad (2)$$

A késleltetés mértéke a csoportsebességen kívül csak a prizmaiban megtett úttól függ. Emiatt a késleltetés a prizmaiban lineáris, azaz a kimenő impulzus impulzusfrontja megdől a fázisfronthoz képest [3]. Ez a dőlés jellemezhető az 1. ábrán látható γ szöggel. A γ szög értéke az 1. ábra alapján egyszerűen számítható (b a prizma elhagyó nyaláb szélessége) [3]:



1. ábra: Impulzusfront dőlése prizmaiban történő áthaladásánál.

$$\operatorname{tg}(\gamma) = -\frac{\Delta t \cdot c}{b} = \frac{a}{b} \lambda_0 \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_{\lambda_0} \quad (3)$$

Figyelembe véve a prizma szögdiszperziójára vonatkozó összefüggést [1,3]:

$$\frac{d\varepsilon}{d\lambda} = \frac{a}{b} \frac{dn}{d\lambda} \quad , \quad (4)$$

ahol $d\varepsilon/d\lambda$ a prizma szögdiszperziója, az alábbi egyenletet kapjuk [3]:

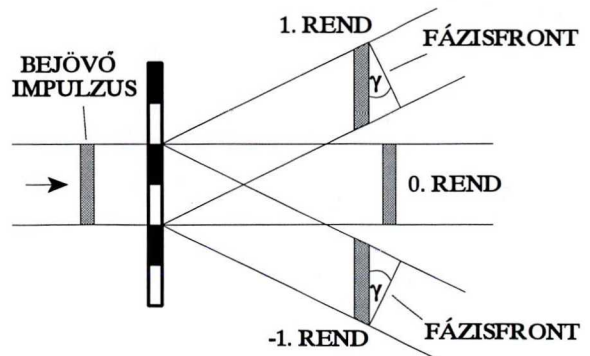
$$\operatorname{tg}(\gamma) = \lambda_0 \left. \frac{d\varepsilon}{d\lambda} \right|_{\lambda_0} \quad (5)$$

Az impulzusfront dőlését kimérték [3] sávkamera (streak camera) használatával. A jelenség felhasználását impulzus összenyomására többen is tárgyalják [3-4].

1.1.2 Impulzusfront dőlése rácson történő áthaladásánál

Ha egy rövid impulzus egy transzmissziós optikai rácson halad át (de akkor is, ha reflexiós rácscról verődik vissza), akkor az elhajló nyalábokban - az előbb tárgyalt prizmaéhoz hasonlóan - szintén tapasztalható impulzusfront-dőlés [5].

A 2. ábrán látható egy egyszerű elrendezés, ahol a beeső impulzus merőlegesen érkezik az optikai rácstra.



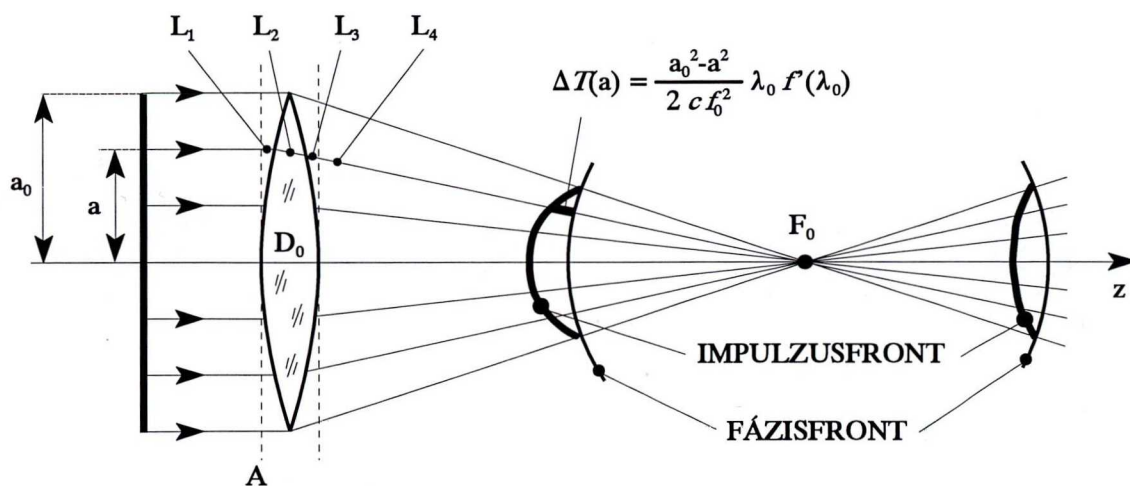
2. ábra: Impulzusfront dőlése rövid impulzus rácson történő áthaladása után.

Az impulzus változás nélkül halad 0. rendben, de az impulzusfront dőlése tapasztalható mindkét 1. rendű elhajlási képnél, természetesen ellenkező előjellel. Bor Zsolt és munkatársai [6] kimutatták, hogy rácsok esetében is érvényes az (5) egyenlet.

Igazolták az (5) egyenlet általános érvényességét is [7-9], ami azt jelenti, hogy egy rövid impulzus esetén az impulzusfront dőlése létrejön, és mértéke az (5) egyenlettel számolható, ha útja során valamely optikai elemnek vagy akár az egész rendszernek van szögdiszperziója, függetlenül attól, hogy a kérdéses elem prizma, optikai rács, Lummer-Gehrcke lemez, Fabry-Perot interferométer, Michelson-echelon vagy bármilyen más, szögdiszperzióval rendelkező eszköz.

1.1.3 Impulzusfront torzulása lencsén történő áthaladásnál

Ha lencsén halad át rövid impulzus, akkor (ha a lencse anyaga rendelkezik diszperzióval) szintén fellép impulzusfront torzulás. Ez a torzulás hasonló jellegű, mint a prizma illetve a rács esetén, azaz az impulzusfront annál inkább kesis a fázisfronthoz képest, minél vastagabb részén halad át a lencsének. A torzulást geometriai optikai modell alapján Bor Zsolt kiszámolta [10] (3. ábra).

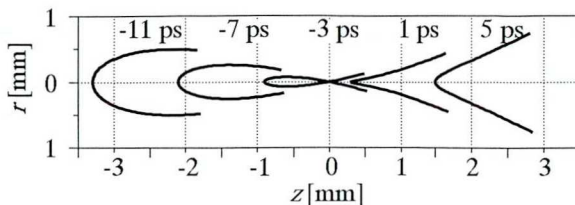


3. ábra: Impulzusfront torzulása rövid impulzus lencsén történő áthaladása után. $f(\lambda)$ a lencse fókusz-távolsága, $f'(\lambda)$ a fókusz-távolság hullámhossz szerinti deriváltja, ΔT az impulzusfront késése, " F_0 " a fókuszpont, " A " a számítás kezdőszíkjá, " L_1, L_2, L_3, L_4 " a számításnál felhasznált szakaszok.

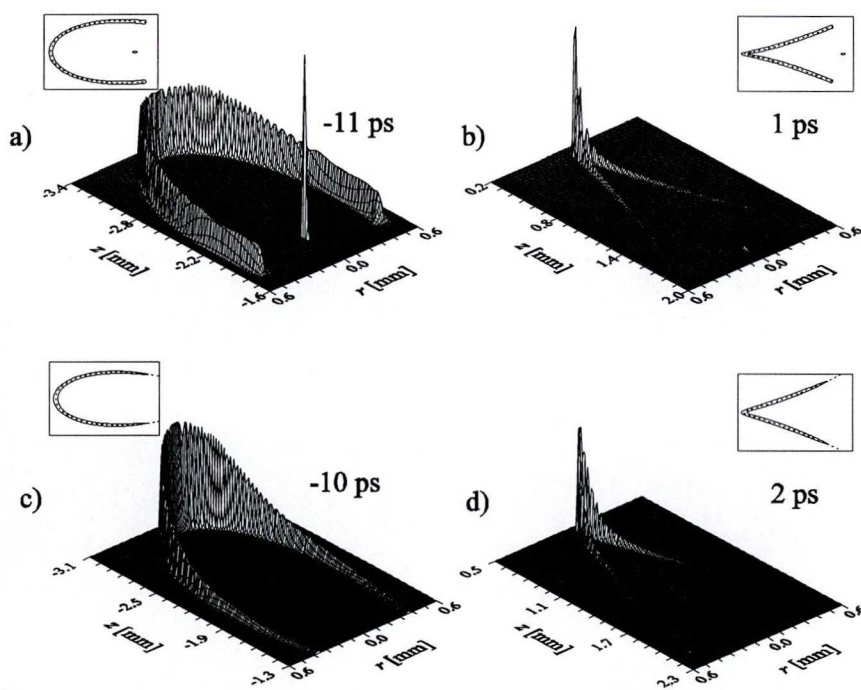
A számolás során a Fermat elvet alkalmazta az optikai tengelytől különböző távolságra haladó fénysugarak 3. ábrán jelölt L_1, L_2, L_3, L_4 szakaszaira, így megkapta az impulzusfront késését a fázisfronthoz képest (ΔT) az adott fénysugárra. (A számítás az 'A' síktól kezdődött.) Kiszámolta a fókuszpont közelében is az impulzusfront viselkedését [10].

Az impulzusfront jellemzően a 4. ábrának megfelelően halad. Az impulzusfront szélekről érkező része sokkal előbb halad át a fókuszponton, mint az optikai tengelyen érkező része. (A 4. ábrán látható esetben ez az eltérés 4.64 ps.)

Az impulzusfront lencse következtében létrejövő torzulását kísérletileg is kimérték, és az elmélettel egyezőnek találták [11].



4. ábra: Impulzusfront áthaladása lencse fókuszpontján. ($t=0$ ps -kor éri el az impulzusfront optikai tengelyen lévő része a $z=0$ mm fókuszpontot.)



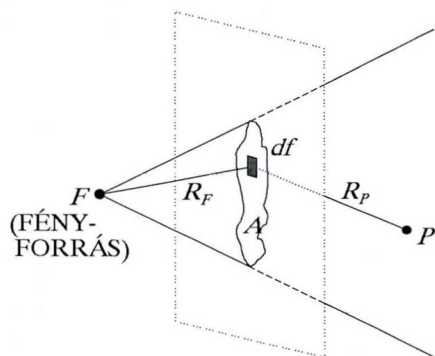
5. ábra: Lencse fókuszpontján áthaladó rövid impulzus intenzitás-eloszlása. Az a) és b) képek a lencse homogén kivilágítása esetére érvényesek, a c) és d) képek pedig radiálisan Gauss intenzitás profilú kivilágítás esetére. A képek feletti bevágások mutatják, hogy a hullámoptikai számítás (folytonos vonal) jó egyezésben van a geometriai optikai számítással (szaggatott vonal). Az a) és b) képeken látszik egy előfutár impulzus is, ami a lencse széleiről keletkező szélihullámokból ered. (A $t=0$ ps megfelel annak az időpillanatnak, amikor az impulzus optikai tengelyen haladó része eléri a fókuszpontot.)

HOMOGEN GAUSS-OS
MEGVILÁGÍTÁS MEGVILÁGÍTÁS

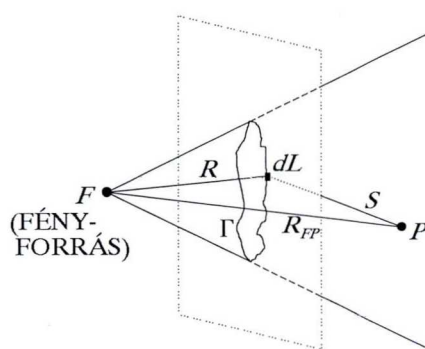
A geometriai optikai leírás tökéletesítése céljából a lencse fókuszpontjának közelében hullámoptikai számítások is történtek [12-14]. A számításokat elvégezték a lencse homogén illetve radiálisan Gauss intenzitás-eloszlású kivilágítására [12,13]. A számolás az 5. ábrán jól mutatja az egyezést a geometriai optikai modellel. Az a) és b) képeken ezenkívül látszódik még egy kis tüskeszerű impulzus, amit a szerzők előfutárnak (precursor) neveztek el. Ennek az impulzusnak az az érdekessége, hogy nem a lencse anyagán áthaladó fény hozza létre, hanem a lencse széleiről keletkező, úgynevezett szélihullámok (boundary waves).

1.2 Szélihullámok

A szélihullám-elméletet Thomas Young [1,15] hozta létre 1802-ben, aki az elhajlási jelenségeket próbálta így megmagyarázni. Az ő elmélete szerint a tárgyak szélein egyfajta "tükrözés" jön létre, és a kialakuló kép az egyenesen továbbhaladó rész és ezen "tükrözött" rész interferenciájából jön létre. Fresnel későbbi elhajlás-elmélete [1,16] Young elgondolását háttérbe szorította. A szélihullám-elméletet Sommerfeld vetette fel újra, aki 1894-ben a félsík elhajlási képét tanulmányozva észrevette, hogy a geometriai árnyéktérben egy hengerhullám halad, mely eredete a félsík széle, sőt a megvilágított részben is az elhajlási kép megegyezik egy síkhullám és egy hengerhullám interferenciájával. Az általánosabb megoldást egymástól függetlenül Maggi [1,17] és Rubinowicz [1,18] is megvizsgálta. Ezt az elméletet fejlesztették tovább a jelenlegi formájába Miyamoto és Wolf [1,19]. Az elmélet matematikailag ekvivalens a Kirchhoff-féle elhajlási elmélettel.



6. ábra: Segédlet pontszerű fényforrás által létrehozott elektromos térerősség számításához a Fresnel-Kirchhoff integrál alapján.



7. ábra: Segédlet pontszerű fényforrás által létrehozott elektromos térerősség számításához a Maggi-Rubinowicz szélihullám-elmélet alapján.

A Kirchhoff-féle elmélet alapján egy pontszerű fényforrás által létrehozott elektromos térerősség egy ernyő mögött elhelyezkedő tetszőleges P pontban (6. ábra):

$$E(P) = C \frac{1}{4\pi} \iint_A \left\{ \frac{e^{ikR_F}}{R_F} \frac{\partial}{\partial n} \left(\frac{e^{ikR_P}}{R_P} \right) - \frac{e^{ikR_P}}{R_P} \frac{\partial}{\partial n} \left(\frac{e^{ikR_F}}{R_F} \right) \right\} df, \quad (6)$$

ahol C tartalmazza a metrikus állandókat, k a hullámszám, A az apertúra, R_F és R_P a df felületelem távolsága a fényforrástól és a P ponttól, n a felület normálisa a df felületelemnél.

A (6) egyenlet hosszadalmas számítások után átvihető a következő alakba:

$$E(P) = E^{(G)}(P) + E^{(D)}(P), \quad (7)$$

ahol

$$E^{(G)}(P) = \begin{cases} C \frac{e^{ikR_{FP}}}{R_{FP}} & \text{ha } P \text{ a direkt nyalábban van} \\ 0 & \text{egyébként} \end{cases} \quad (8)$$

a geometriai tag (R_{FP} a fényforrás és a P pont távolsága), és

$$E^{(D)}(P) = C \frac{1}{4\pi} \oint_{\Gamma} \frac{e^{ik(R+S)}}{R \cdot S} \frac{\cos(n, S)}{1 + \cos(S, R)} \sin(R, dL) dL \quad (9)$$

a diffrakciós tag, ahol R a fényforrás és a dL ívelem távolsága, S a P pont és a dL ívelem távolsága, Γ az apertúra határológörbéje (értelmezéshez lásd: 7. ábra). Az elmélet szerint tehát az elhajlási kép mindig a direkt fénynyaláb és a diffraktáló tárgy széleiről kiinduló szélihullámok interferenciájának eredménye. (A legújabb formájában [19] a szélihullám-elmélet már a diffraktáló tárgy anyagi minőségéről is számot tud adni.) Az elhajlási kép kiszámolása ezen elmélet alapján azonban nagyon bonyolult, ezért általában nem használatos. De magát az elgondolást szemléletes modellezésre nagyon jól lehet alkalmazni.

1.3 Talbot csíkok

A Talbot csíkok 1837 óta ismertek, mikor H. F. Talbot felfedezte [20], hogy fehér fény spektrumában interferencia sávok láthatók, ha egy vékony üveglemezen át engedi a spektroszkópba az érkező nyaláb felét. (Így késlelteti a nyaláb egyik felét a másikhoz viszonyítva, ezért a dolgozat további részében ezt a lemezt késleltető lemeznek fogom hívni.) Brewster [21] Talbot megfigyeléseihez hozzátette, hogy a sávok láthatósága erősen függ a lemez vastagságától, illetve, hogy a lemeznek a nyaláb azon oldalán kell elhelyezkednie, amelyik oldalon a spektrum vörös része van, mert a lemezt a másik félnyalábba helyezve, a jelenség nem látható. (A dolgozat további részében a megfelelő oldalt a spektrum vörös oldali felének, a másik felét pedig a kék oldali felének fogom nevezni.) A jelenséget ez ideig többen próbálták megmagyarázni [22-28].

2. Célkitűzések

1. Célul tűzöm ki egy prizma által létrehozott impulzusfront-dőlés kimérését megfelelően nagy felbontást biztosító, de viszonylag egyszerű felépítésű mérőberendezéssel, valamint a mért értékek összehasonlítását az (5) egyenlet által elméletileg jósolt értékekkel [3,9].
2. Célul tűzöm ki femtoszekundumos impulzus fehér fénnel ,illetve rövid koherencia-hosszúságú impulzussal való helyettesíthetőségének vizsgálatát.
3. Célul tűzöm ki egy femtoszekundumos impulzus résen történő áthaladásának elméleti és gyakorlati vizsgálatát egy egyszerűen megvalósítható kísérleti elrendezéssel, valamint a jelenség szemléletes modellezését a szélihullám-elmélet segítségével.
4. Célul tűzöm ki, hogy a Talbot csíkok keletkezésére teljes értékű magyarázatot adjak.
5. Célul tűzöm ki egy femtoszekundumos impulzus kördiafragmán történő áthaladásának elméleti vizsgálatát.

3. Tudományos eredmények

3.1 Impulzusfront dőlésének kimérése repülési idő interferométerrel

Prizma által létrehozott impulzusfront-dőlést kimértek már sávkamera (streak camera) használatával [3], de a mérési pontosság limitálva volt a kamera feloldóképességével (2 ps). A kísérletet újra elvégeztem egy repülési idő interferométer [11] segítségével. A módszer előnye, hogy nem igényel drága és bonyolult berendezést, mint a sávkamera. A módszer lényege, hogy egy kétsugaras interferométerben az egyik (a referencia) kar hosszát változtatva, időben le lehet tapogatni a másik karban repülő impulzust.

3.1.1 Femtoszekundumos impulzus helyettesíthetősége rövid koherenciahosszúságú lézerimpulzussal

A vizsgálat során egy kétsugaras interferométert, a Michelson interferométert használtam. A mérések során a következtetéseimet a létrejövő interferenciás képből olvastam le.

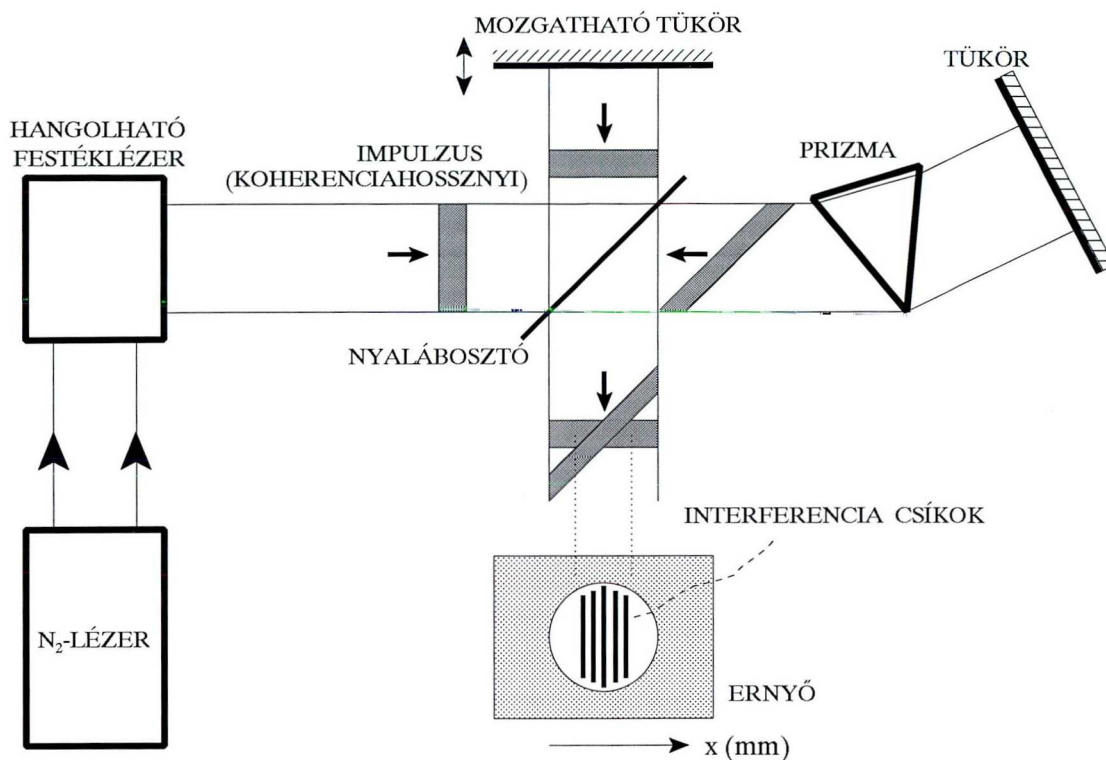
Egy fénynyaláb interferáló képességét a koherenciahossz és a koherencia szélesség jellemzi. A koherenciahossz megmondja, hogy egy fénynyaláb milyen hosszúsággal eltolva képes még saját magával interferálni, azaz ez a fénynyaláb időbeli jellemzőivel van összefüggésben. A koherencia szélesség megmondja, hogy a fénynyalábban a terjedésre merőlegesen mekkora távolságra lévő két pont képes még egymással interferálni, azaz ez a fénynyaláb térbeli jellemzőivel van összefüggésben.

A repülési idő interferométer használatának két feltétele van. Az egyik, hogy a használt nyaláb koherencia szélessége nagyobb legyen, mint a vizsgált terület. A másik, hogy a két impulzus által létrehozott interferencia kisebb legyen, mint a vizsgált terület, azaz a két impulzus alakbeli különbsége nagyobb legyen, mint a koherenciahossz.

A méréseknél nincs szükség rövid (femtoszekundumos) impulzusra, csak olyan impulzusra, melynek rövid a koherenciahossza, ugyanis a mérés szempontjából (mivel csak az interferenciás képet használom) a kettő egyenértékű.

3.1.2 Kísérleti elrendezés

A kísérleti elrendezés vázlata a 8. ábrán található.



8. ábra: Kísérleti elrendezés impulzusfront-dőlés kiméréséhez.

Az elrendezés fő egysége egy Michelson interferométer volt. Az egyik kar (a referencia kar) tükre egy mikroeltolóra volt szerelve, a kar hosszának változtatásával lehetett biztosítani, hogy az ott repülő impulzus különböző idők elteltével érkezzon vissza a nyalábosztóra. Az interferométer másik karjában egy prizma volt elhelyezve, ami létrehozta az impulzusfront-dőlést. Ennek a karnak a hossza a mérés során állandó volt. Érdeemes megjegyezni, hogy ebben az elrendezésben a fény a prizmán kétszer halad át. A Michelson interferométert egy hangolható festéklézer világította ki, melyet egy 6 ns impulzusidejű N_2 -lézer ($\lambda=337.1$ nm) pumpált. A festéklézer impulzusideje körülbelül 3 ns volt, a sáv szélesség 4-6 nm, így a koherencia ideje (hullámhossztól függően) 133-200 fs volt. A mérés pontosságát az eltoló, illetve az ernyőről történő leolvasás pontossága 30 fs körül limitálta. A két tükrökhöz képest úgy állt, hogy az ernyőn az elrendezés síkjára merőleges interferencia csíkok legyenek láthatók.

A referencia kar tükrének mozgásával a két karból származó impulzus az ernyőre érkeve, más és más helyen fedett át egymással, azaz az interferencia csíkok az ernyő más

és más részén voltak láthatóak. Az interferencia csíkok láthatósága a legmagasabb ott volt, ahol a két impulzus teljesen átfedte egymást, és mindjobban lecsökkent, ahogy az impulzusok egyre kevésbé fedtek át.

3.1.3 Mérési eredmények és összehasonlításuk a számított értékekkel

A mérési eredmények kiértékeléséhez szükségem volt az általam használt prizmak szögdiszperziójának ismeretére, hogy az (5) egyenlet alapján meg tudjam határozni az impulzusfront dőlését. Prizma szögdiszperzióját közvetlenül meghatározni hosszadalmas és pontatlan is lehet. Sokkal egyszerűbb és pontosabb a prizma geometriai és anyagi tulajdonságai alapján kiszámolni. A (3) és (2) egyenleteket használva és figyelembe véve azt, hogy a mérési elrendezésemben a prizmán a fény kétszer halad át, elemi geometriai számításokkal a következő eredményekre jutottam: ha a prizmat minimális deviációban használom, akkor:

$$\tan(\gamma) = \frac{4 \sin\left(\frac{\varphi}{2}\right)}{\sqrt{1 - n^2 \sin^2\left(\frac{\varphi}{2}\right)}} \lambda \frac{dn}{d\lambda}, \quad (10)$$

ahol φ a prizma törőszöge; ha a prizmára a fény tetszőleges szög alatt esik, akkor:

$$\tan(\gamma) = \frac{2 \frac{\sin \varphi}{\cos \alpha}}{\cos \varphi \sqrt{1 - \frac{\sin^2 \alpha}{n^2} + \sin \varphi \frac{\sin \alpha}{n}}} \lambda \frac{dn}{d\lambda}, \quad (11)$$

ahol α a fénynyaláb beesési szöge a prizmára.

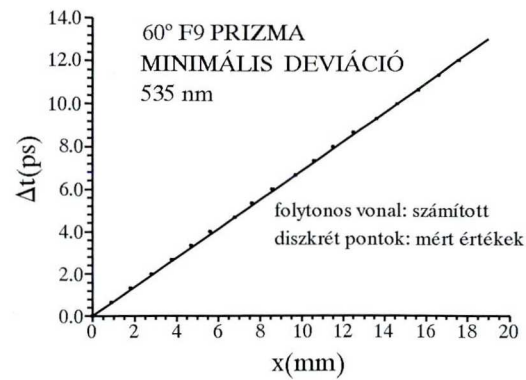
A prizma törőszöge (és nem minimális deviáció esetén a beesési szög is) viszonylag egyszerűen és pontosan mérhető. A prizma anyagának ismeretében pedig a törésmutató és a diszperzió is könnyen számolható Malitson formulája alapján [29]. (Az adatokat a Schott katalógusból vettem [30].)

A méréseket három hullámhosszon (400 nm, 535 nm, 600 nm) végeztem, négy különböző prizmat használva.

Egy SF10-es 60°-os törőszögű prizmával és egy F9-es 60°-os törőszögű prizmával mértem mindhárom hullámhosszon. Egy 30°-os törőszögű kvarc prizmával 400 nm-en mértem. Ezenkívül végeztem mérést egy KRS-5 anyagú 28.445°-os törőszögű prizmával

600 nm-en.

A 9. ábrán egy tipikus méréssorozatot ábrázoltam. A mérés során távolságtávolság adatokat használtam, de a referencia kar elmozdulása c -vel való osztással átkonvertálható időkésléltetésre. Jól látható, hogy a mérési pontok szórása igen kicsi. A minimális deviációban végzett mérések átlagait az 1. táblázat tartalmazza:



9. ábra: Prizma által előidéztet impulsusfront-késés az ernyőn mérhető távolság (8. ábra) függvényében.

1. táblázat: Prizmával minimális deviációban létrehozott impulsusfront-dőlés mérési eredményei

Prizma	hullámhossz (nm)	$\text{tg}(\gamma)$ (mért)	$\text{tg}(\gamma)$ (számított)	eltérés (%)
SF10	400	-0.9230	-0.9385	-1.652
SF10	535	-0.3742	-0.3820	-2.042
SF10	600	-0.2842	-0.2858	-0.560
F9	400	-0.4740	-0.4527	4.705
F9	535	-0.2049	-0.2060	-0.534
F9	600	-0.1570	-0.1585	-0.946
KRS-5	600	-0.7252	-0.7678	-5.548
kvarc	400	-0.0455	-0.0490	-7.143

Végeztem mérést tetszőleges beesési szögre is:

Az SF10-es prizmat használtam 400 nm-en, a beesési szög 51° volt.

$\text{tg}(\gamma)$ (mért) = -0.6953 $\text{tg}(\gamma)$ (számolt) = -0.7154 eltérés = -2.810%

(Az eltérés a mért értékek százalékos eltérése a (10) illetve (11) egyenletekkel kiszámolt értékektől.)

A számolt és a mért értékek nagyon jó egyezést mutatnak. A kvarcnál a viszonylag nagy relatív eltérés oka az, hogy a $\text{tg}(\gamma)$ értéke abszolút értékben jóval kisebb volt, mint

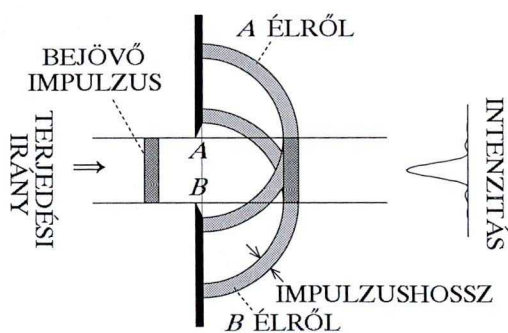
az SF10-es vagy F9-es prizma esetében. A KRS-5 -nél mutatkozó hiba oka valószínűleg magasabb rendű deriváltak megjelenése, vagy az $n(\lambda)$ függvény nem pontos ismerete.

3.2 Femtoszekundumos impulzusok terjedésének vizsgálata speciális esetekben

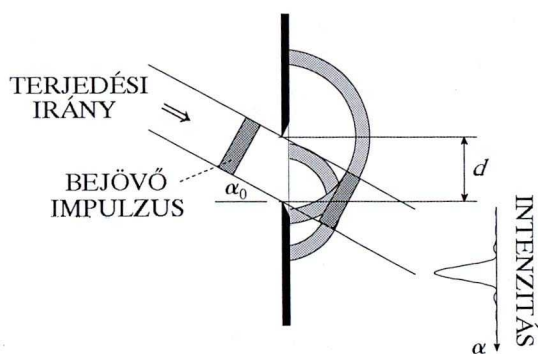
Nagyon rövid folyamatok vizsgálatához gyakran használnak rövid lézerimpulzusokat. A rövid lézerimpulzusok tanulmányozásához, terjedési jelenségeik vizsgálatához viszont nincs feltétlenül szükség rövid impulzusokra. Ezt a látszólagos ellentmondást a fehér fény tulajdonságainak tanulmányozásával lehet feloldani. Egyrészt a fehér fény nem más, mint folytonos monokromatikus komponensek összessége, melyek kezdőfázisa egymáshoz képest véletlenszerű. Egy Fourier-transzformáció segítségével azonban kiderül, hogy a fehér fény másrészt nagyon rövid fényimpulzusok (ha a fehér fény sávszélessége $\Delta\nu$, akkor ezen impulzusok időtartama $\tau = \Delta\nu^{-1}$) egymáshoz képest véletlen időzítésű sorozata. A két leírás matematikailag teljesen egyenértékű. Azaz rövid impulzusok terjedési jelenségeinek vizsgálatához fel lehet használni a közönséges folytonos fehér fényt, a fehér fény jelenségeinek magyarázatához pedig fel lehet használni a rövid impulzusok tulajdonságait.

3.2.1 Femtoszekundumos impulzus áthaladása résen. Szélihullámok

A szélihullám-elmélet szerint ha egy rövid impulzus egy résen halad át, akkor az impulzus középső része háborítatlanul továbbhalad, a rés széleiről pedig hengerhullámok indulnak el (10. ábra).



10. ábra: Merőlegesen érkező rövid impulzus áthaladása résen a szélihullám-elmélet szerint.



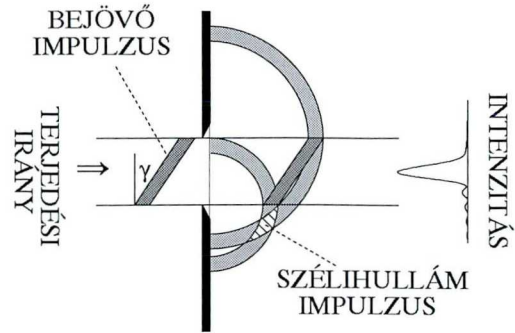
11. ábra: Ferdén érkező rövid impulzus áthaladása résen a szélihullám-elmélet szerint.

Az elhajlási képet a két hengerhullám és a továbbrepülő főimpulzus interferenciája hozza létre. Ha a rövid impulzus ferdén esik a résre, akkor a réstől távol (Fraunhofer

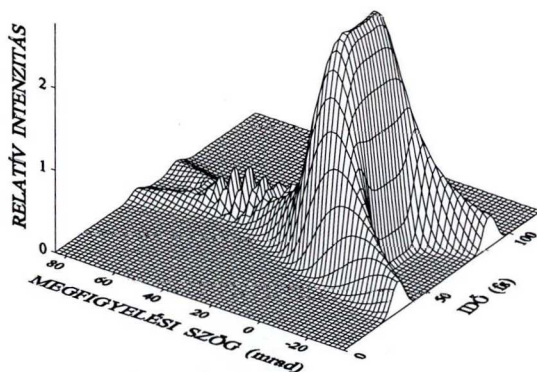
közelítésben) az elhajlási kép hasonló lesz a merőleges beesésnél tapasztaltnak (11. ábra).

Ha azonban egy ferde impulzusfrontú rövid impulzus érkezik a résre, akkor a két hengerhullám nem azonos időben indul el, s így ezek interferenciája nem az impulzus fő részével halad együtt, hanem a távoli zónában attól γ szöggel eltér (12. ábra). Létrejön egy **szélihullám impulzus**. Ugyanekkor az impulzus fő részén nem lesznek láthatóak interferencia sávok.

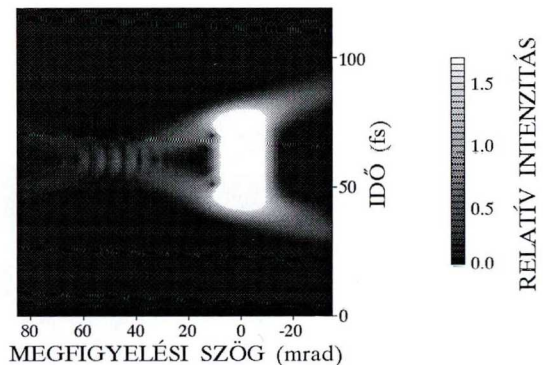
Modellszámításokat végeztem egy 6 fs -os döntött impulzusfrontú, 600 nm központi hullámhosszú impulzus résen való áthaladására Fraunhofer-féle közelítést használva (13-14. ábra). A résszélesség 0.2 mm, az impulzusfront dőlése 54 mrad volt.



12. ábra: Ferde impulzusfrontú rövid impulzus merőleges áthaladása résen a szélihullám-elmélet alapján. A két hengerhullám interferenciája létrehoz egy szélihullám impulzust, a főimpulzus pedig nem tartalmaz interferenciás képet.



13. ábra: Intenzitás a megfigyelési szög és az idő függvényében résen áthaladó döntött impulzusfrontú rövid impulzus esetén. Az intenzitás logaritmikus léptékű. 3 dimenziós ábrázolás.



14. ábra: Intenzitás a megfigyelési szög és az idő függvényében résen áthaladó döntött impulzusfrontú rövid impulzus esetén. Az intenzitás logaritmikus léptékű. Topológikus ábrázolás.

Az impulzus a résen merőlegesen haladt át. A 0 mrad megfigyelési szög megfelel a résre merőleges iránynak, ez egyben a fő impulzus továbbhaladási iránya. Mindkét ábrázolás esetén jól látható a néhány sávból álló szélihullám impulzus. Az interferencia a maximális láthatóságát a γ szögnek megfelelő irányban éri el. A kísérleti ellenőrzéshez szükséges 6 fs -os impulzus nem állt rendelkezésre.

Az előzőekben tárgyaltak alapján hasonló jelenséget tapasztalhatunk, ha a rövid impulzust fehér fénnel helyettesítjük. Azaz megfelelő paraméterek mellett azt tapasztalhatjuk, hogy az intenzitás maximuma és az interferencia centruma nem esik egybe.

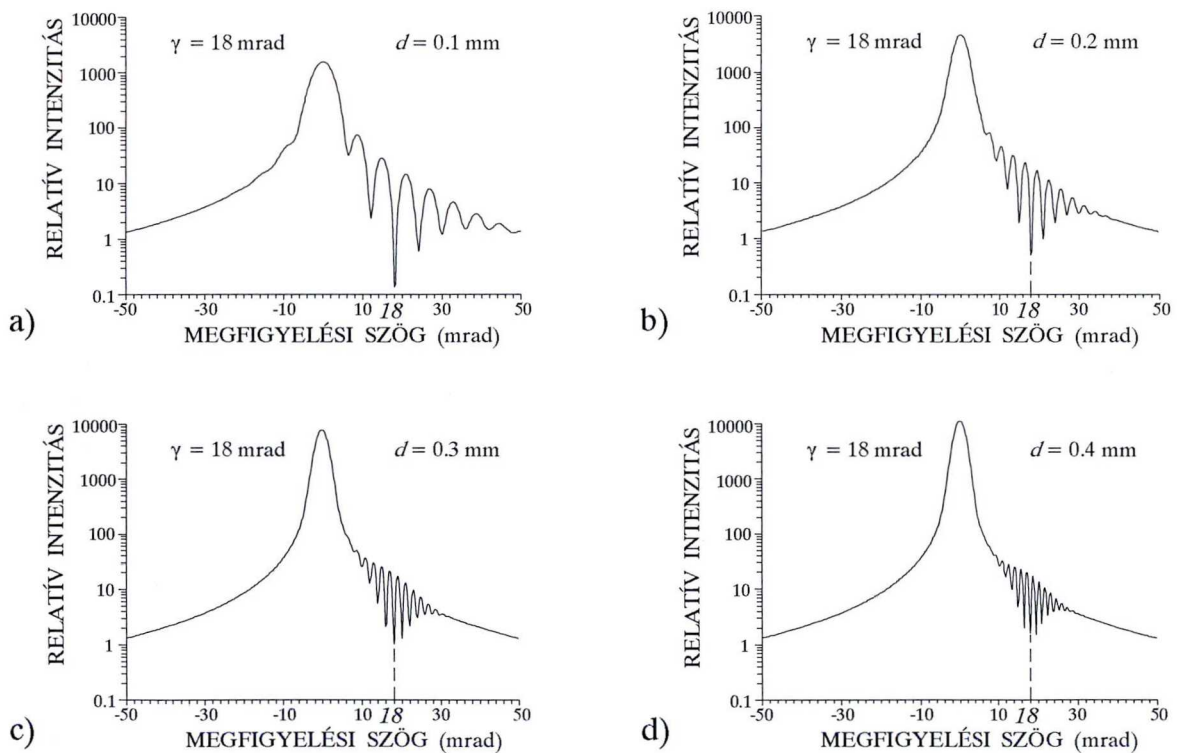
Modellszámításokat végeztem fehér fény esetére is. Ha egy k hullámszámú monokromatikus síkhullám áthalad egy d szélességű résen, akkor a hullám komplex elektromos térerőssége az alábbiak szerint változik meg Fraunhofer közelítést alkalmazva (ld. 11. ábra):

$$E^{(t)} = E \frac{1 - e^{-ikd(\sin\alpha - \sin\alpha_0)}}{ik(\sin\alpha - \sin\alpha_0)}, \quad (12)$$

ahol α a megfigyelési irány és a rés normálisa közötti szög, α_0 pedig a síkhullám beesési szöge. Az (5) egyenlet alapján az impulzusfront dőlése fehér fényre azt jelenti, hogy a monokromatikus komponensek egymástól különböző irányokba haladnak. Az intenzitás egymáshoz képest véletlen kezdőfázisú monokromatikus komponensek esetén az

$$I = \text{const} \int_{\nu} E(\nu) E^*(\nu) d\nu \quad (13)$$

képlettel számolható (ν a frekvencia). A számítások eredményeit a 15. ábra tartalmazza.



15. ábra: Relatív intenzitás a megfigyelési szög függvényében döntött impulzusfrontú fehér fény résen való áthaladása után különböző rés szélességeknél. Az impulzusfront dőlése $\gamma=18$ mrad.

Fehér fényre a kísérleti ellenőrzés viszonylag egyszerű. Figyelembe kell azonban venni egy fontos kritériumot a jelenség megfigyeléséhez. Fontos, hogy ne legyen túl sok

interferencia sáv, ugyanis ha vannak interferencia sávok az intenzitás maximumánál is, akkor a nagy intenzitásbeli különbség miatt már nem lehet megállapítani, hogy hol maximális ezen sávok láthatósága. Az interferencia ott tűnik el, ahol egy spektrális komponens maximuma egybeesik egy másik minimumával. Egy d szélességű résen áthaladó fényre

$$\frac{\pi d \beta}{\lambda} = (m + 1/2) \pi \quad (14)$$

a λ hullámhosszú komponens m . maximuma. Ha ez egybeesik a $\lambda + \Delta\lambda$ komponens m . minimumával, ami

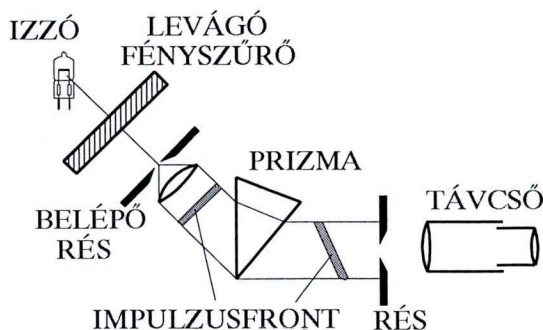
$$\frac{\pi d \beta}{\lambda + \Delta\lambda} = m \pi, \quad (15)$$

akkor éppen m darab interferencia sáv fog látszódni, ami a két fönti egyenletből

$$m = \frac{\lambda}{2 \Delta\lambda} \quad (16)$$

Az általam végzett kísérletekben halogén izzó fényét használtam levágó fényszűrőn keresztül. Így a fény központi hullámhossza kb. 600 nm, sáv szélessége 50-100 nm volt. Szintén a megfigyelhetőség érdekében szükséges, hogy az impulzusfront dőlése ne legyen túl nagy, mert akkor az interferencia sávok intenzitása túl kicsi lesz.

A méréseknél a halogén izzó fényét egy goniométer kollimátorán vezettem keresztül, hogy párhuzamos és térben koherens fényt kapjak. Az impulzusfront döntésére használt 45°-os kvarcprizma a goniométer asztalán volt minimális deviációba állítva. Közvetlenül a prizma mellett helyeztem el a gonimotértől függtelen rögzítésű szabályozható rést, melyen a fényelhajlást a goniométer távcsövével figyeltem meg.



16. ábra: Kísérleti elrendezés döntött impulzusfrontú fény résen való áthaladásának tanulmányozására.

A (10) egyenlet és [30] adatai alapján a 45°-os kvarcprizma minimális deviációban a $\lambda_0=600$ nm központi hullámhosszú fény impulzusfrontját $\gamma=18.431$ mrad -nal dönti meg.

A mérések során OG 590 és OG 530 levágó fényszűrőket használtam.

Különböző résszélességeknél az alábbi értékeket mértem:

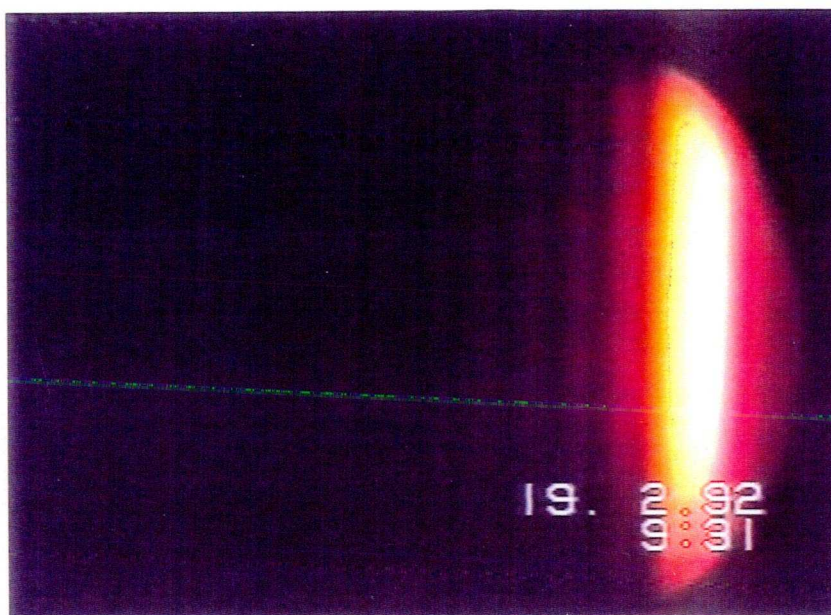
2. táblázat: Döntött impulzusfrontú fehér fény résen való áthaladása után az intenzitás maximumának és az interferencia centrumának szétválása (δ)

d (mm)	δ (mrad)
0.1	21.017 ± 2.410
0.2	20.453 ± 2.978
0.3	19.042 ± 3.336
0.4	19.580 ± 3.088
0.5	20.035 ± 3.337
0.6	19.853 ± 3.435

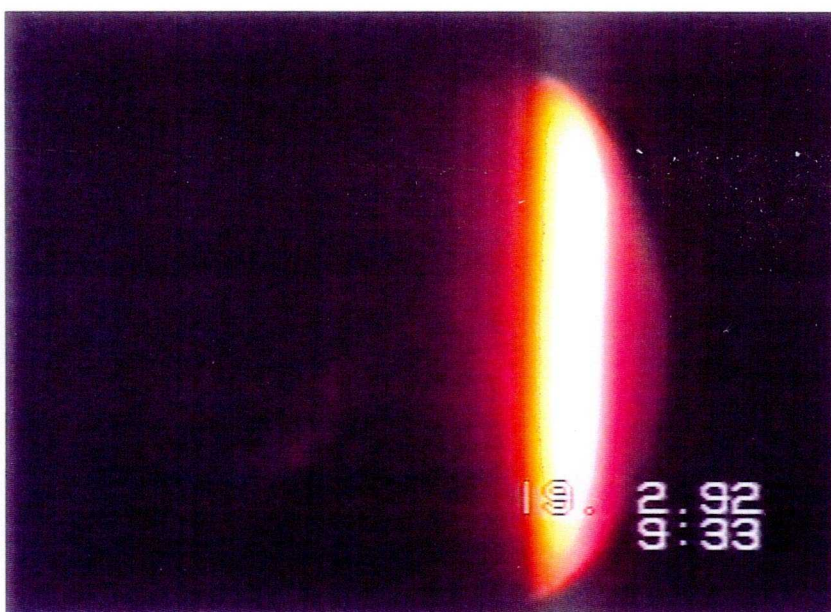
Ezek átlaga: **20 mrad $\pm$ 3 mrad** .

Az elmélet szerint $\delta = \gamma$ a távoli zónában (Fraunhofer-féle közelítés). Az eltérés legfőbb oka valószínűleg az lehet, hogy a levágó fényszűrőn keresztül érkező fénynek nem lehet pontosan megadni a központi hullámhosszát, valamint az, hogy vizuálisan nehéz pontosan meghatározni, hogy az interferencia sávok láthatósága hol maximális.

A kísérletről videofilm, illetve a filmről fényképek is készültek (17-19. ábra).

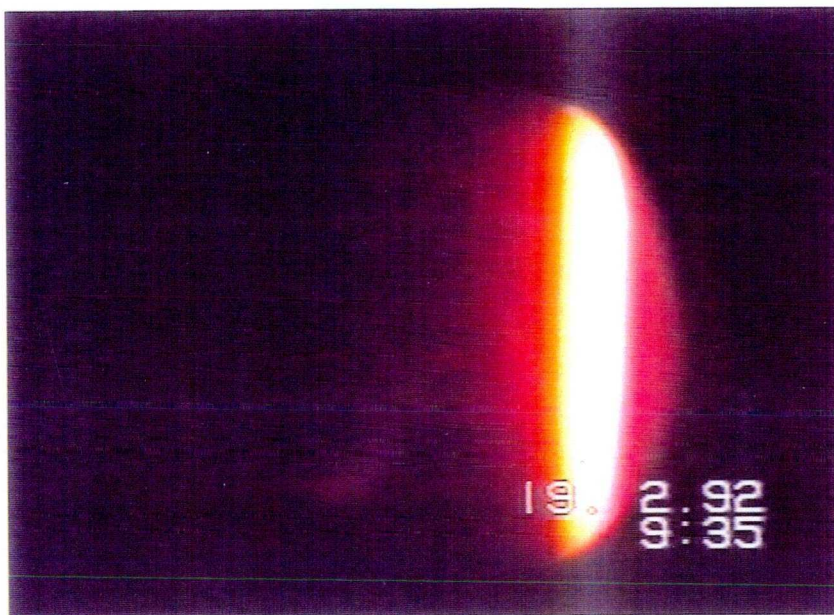


a

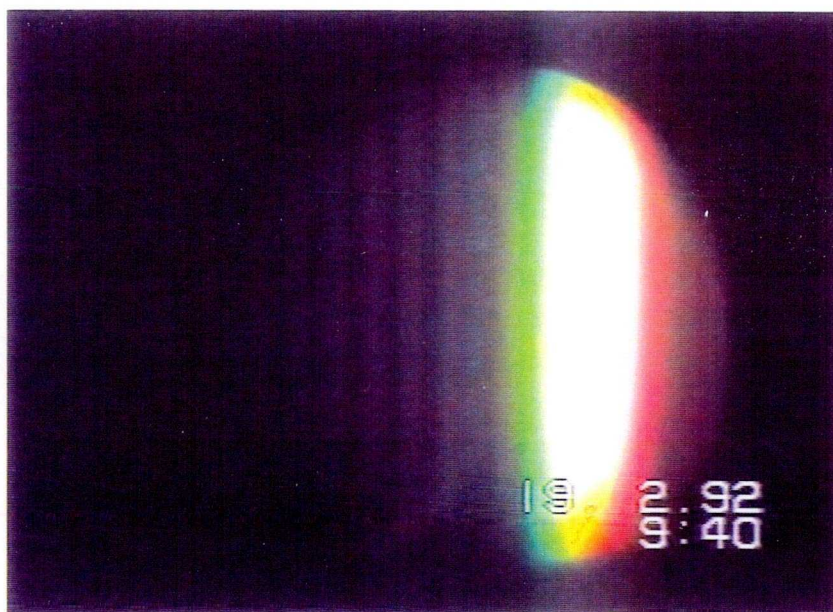


b

17. ábra: Döntött impulzusfrontú fény áthaladása 0.2 mm (a) és, 0.3 mm (b) szélességű résen OG 590 fényszűrőt használva.

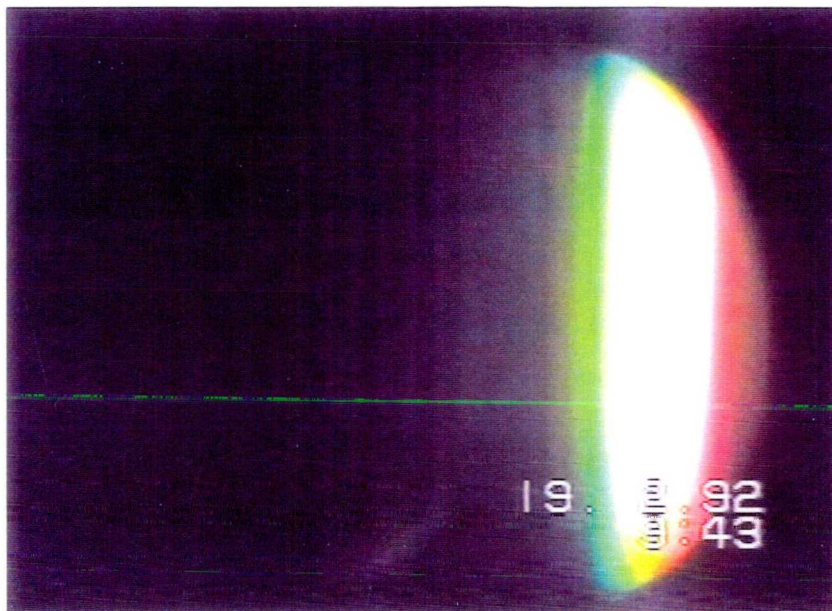


a

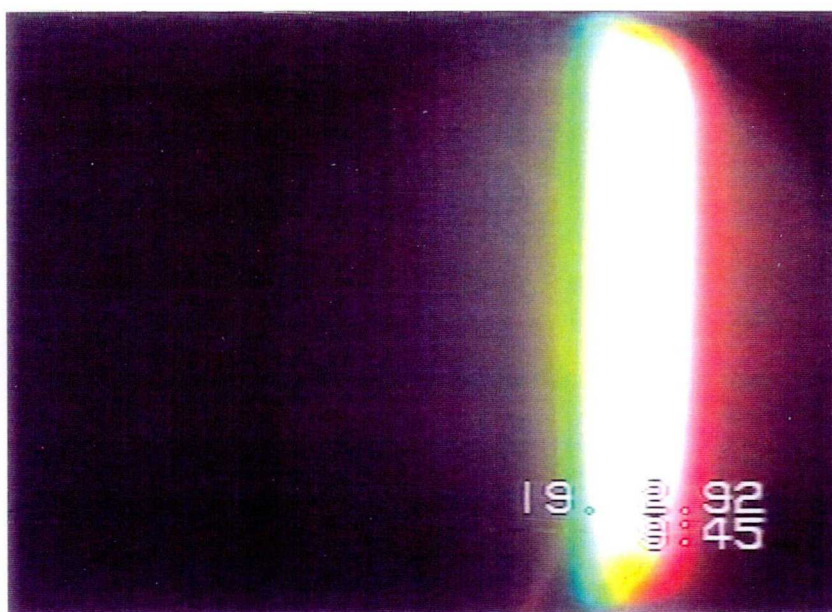


b

18. ábra: Döntött impulzusfrontú fény áthaladása 0.4 mm szélességű résen OG 590 fényszűrőt használva (a), illetve 0.2 mm szélességű résen OG 530 fényszűrőt használva (b).



a



b

19. ábra: Döntött impulzusfrontú fény áthaladása 0.3 mm (a) és 0.4 mm (b) szélességű résen OG 530 fényszűrőt használva.

3.2.2 Talbot csíkok

A Talbot csíkok megfigyelésére Hilbert Margit végzett kísérleteket (20. ábra).

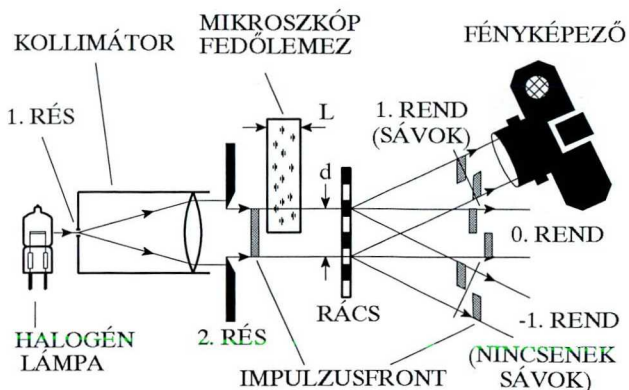
A kísérletek során többféle anyagú és vastagságú késleltető lemezt használt, ezek közül a legjobban a mikroszkóp fedőlemez vált be. Az általa készített fényképeken jól látható, hogy az 1. rendnél vannak Talbot csíkok, a -1. és 0. rendnél nincsenek.

Talbot eredeti (1837) cikkéből nem derül ki egyértelműen, hogy a

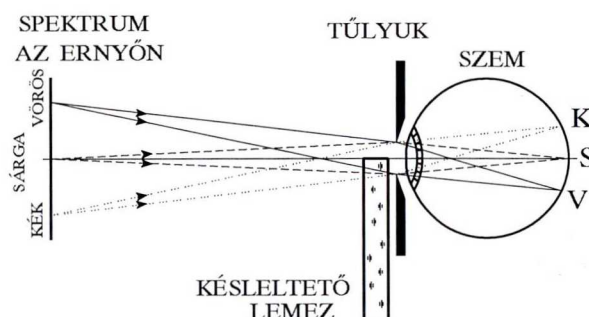
Talbot csíkok megfigyeléséhez közvetlenül a bontóelembe kell-e nézni (20. ábra) vagy pedig a spektrumot előbb egy ernyőre kell kivetíteni, és úgy végezni a megfigyelést.

Ez utóbbira végeztem kísérletet (21.

ábra): A tűlyuk átmérője kb. 2 mm volt, a késleltetéshez mikroszkóp fedőlemez használtam. A látás fiziológiája következtében a lemezt a spektrum kék oldalához kell helyezni ahhoz, hogy a vörös oldalt késleltesse. A Talbot csíkok ebben az elrendezésben is jól láthatóak voltak. A 22. ábrán látható egy CCD-kamerával készült felvétel.



20. ábra: Kísérleti elrendezés a Talbot csíkok megfigyelésére.



21. ábra: Kísérleti elrendezés vázlata a Talbot csíkok megfigyeléséhez a spektrum ernyőre vetítése után.

A jelenségre a magyarázatot a fehér fény mindkét értelmezése alapján meg fogom adni. A fényt síkhullámnak fogom tekinteni.

Itt jegyzem meg, hogy bár a 20. ábrán látható kísérletnél a fény először a résen haladt át, majd a késleltető lemezen és utána a spektrális bontóelemen, elvileg nem jelent különbséget, ha ezt a

bontóelem – késleltető lemez – rés sorrendre cseréljük. Az elméleti magyarázathoz ez utóbbi sorrendet fogom használni.

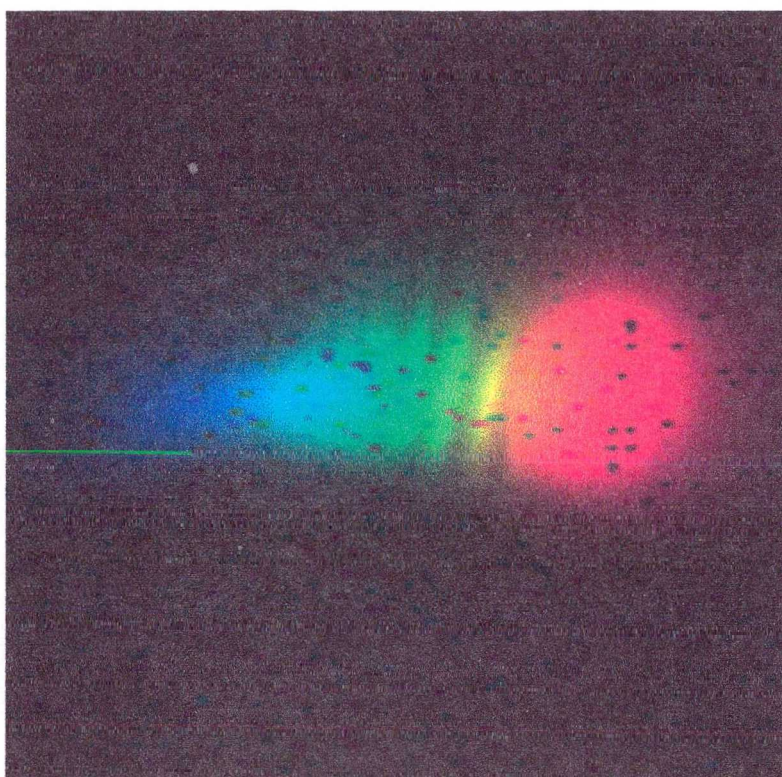
Ha a fehér fényt egymáshoz képest véletlen fázisú monokromatikus komponensek összegének tekintjük, akkor ha egy ilyen nyaláb áthalad egy spektrális bontóelemen, akkor a különböző komponensek különböző irányokba haladnak tovább:

$$\varepsilon = (\lambda - \lambda_0) \cdot d\varepsilon/d\lambda \quad , \quad (17)$$

ahol ε a továbbhaladás iránya, λ a hullámhossz, λ_0 a központi spektrális komponens hullámhossza, $d\varepsilon/d\lambda$ a bontóelem szögdiszperziója. A központi spektrális komponens (λ_0) továbbhaladási irányát önkényesen $\varepsilon=0$ -nak választottam.

Fraunhofer-féle közelítésben egy d szélességű résen áthaladó monokromatikus komponens elektromos térerőssége az alábbiak szerint változik:

$$E(\lambda, \alpha) = E_0(\lambda) \frac{1 - e^{-ikd(\sin\alpha - \sin\varepsilon)}}{ik(\sin\alpha - \sin\varepsilon)} \quad , \quad (18)$$



22. ábra: Talbot csíkok képe a spektrum ernyőre történő vetítése után. A felvétel CCD-kamerával készült.

ahol $E_0(\lambda)$ az elektromos tér spektruma a rés előtt, α a megfigyelési irány, ε a beesési szög. (A továbbiakban felteszem, hogy α és ε kicsi.) Az intenzitás a (13) egyenlet alapján:

$$I(\alpha) = \text{const} \int_{\nu} E(\lambda, \alpha) E^*(\lambda, \alpha) d\nu \quad . \quad (19)$$

Ha a nyaláb felét egy lemez késlelteti, akkor az elrendezés felfogható egy olyan kettős rés kísérletnek, ahol az egyes rések szélessége $d/2$, a rések egymással érintkeznek és fáziskülönbség van a két félnyaláb között. Erre az esetre Fraunhofer-féle közelítést használva, kiszámoltam a diffrakciós intergrált:

$$E(\lambda, \alpha) E^*(\lambda, \alpha) = E_0^2(\lambda) d^2 \cos^2 \left(\Theta(\lambda) - \frac{\varphi(\lambda)}{2} \right) \left(\frac{\sin(\Theta(\lambda))}{\Theta(\lambda)} \right)^2, \quad (20)$$

ahol

$$\Theta(\lambda) = kd \frac{\sin \alpha - \sin \varepsilon}{4} \quad (21)$$

és $\varphi(\lambda)$ a két nyaláb közötti fáziskülönbség. A teljes intenzitás a (19) egyenlettel számolható.

Ha a késleltető lemez vastagsága D , akkor

$$\varphi(\lambda) = D(n - n_s) \frac{2\pi}{\lambda} = kD(n - n_s) \quad , \quad (22)$$

ahol n a lemez, n_s a környezete törésmutatója (ezt a továbbiakban 1 -nek tekintem). Most meghatározom a lemez optimális vastagságát (D_{opt}).

A Talbot csíkok láthatósága akkor a legnagyobb, ha a (20) egyenletben a koszinusz tényező minden hullámhosszra ugyanaz. Ez csak akkor történhet meg, ha az argumentum is azonos:

$$kd \frac{\sin \alpha - \sin \varepsilon}{4} - kD_{opt} \frac{n - 1}{2} = \text{const} \quad . \quad (23)$$

Innen:

$$d \frac{\sin \alpha - \sin \varepsilon}{\lambda} - 2D_{opt} \frac{n-1}{\lambda} = const \quad . \quad (24)$$

Azaz adott megfigyelési irányra (α) a (24) egyenlet minden hullámhosszra ugyanazt a konstans értéket adja. Ez azt jelenti, hogy a (24) egyenletet λ szerint deriválva, az egyenlet jobb oldalára 0-t kapunk:

$$-\frac{d}{\lambda^2} (\sin \alpha - \sin \varepsilon) - \frac{d}{\lambda} \cos \varepsilon \frac{d\varepsilon}{d\lambda} + \frac{2D_{opt}}{\lambda^2} (n-1) - \frac{2D_{opt}}{\lambda} \frac{dn}{d\lambda} = 0 \quad . \quad (25)$$

Innen a Talbot csíkok láthatósága szempontjából optimális lemezzvastagság:

$$D_{opt} = \frac{d (\sin \alpha - \sin \varepsilon) + d \cos \varepsilon \lambda \frac{d\varepsilon}{d\lambda}}{2(n - \lambda \frac{dn}{d\lambda} - 1)} \quad . \quad (26)$$

Ha a központi komponens terjedési iránya a megfigyelés iránya ($\alpha=0$) és ε kicsi, akkor:

$$D_{opt} = \frac{d \lambda \frac{d\varepsilon}{d\lambda}}{2(n - \lambda \frac{dn}{d\lambda} - 1)} \quad . \quad (27)$$

A modellszámításoknál a fáziskülönbséget a két nyaláb között a T idővel jellemeztem, amit úgy definiáltam, hogy $T/2$ késleltetésnél legyen a Talbot csíkok láthatósága maximális. Mivel a fény csoportsebességgel halad át a késleltető lemezen (lásd: (1) egyenlet), és a csoport törésmutató

$$n_g = n - \lambda \frac{dn}{d\lambda} \quad , \quad (28)$$

ezért a kapcsolat T és D_{opt} között a következő:

$$\frac{T}{2} = D_{opt} \frac{n_g - 1}{c} \quad . \quad (29)$$

A (27) egyenletben a spektrális bontóelemnek csak egyetlen jellemzője szerepel: a szögdiszperzió, azaz az elem lehet prizma is, rács is. A szögdiszperzió az egyetlen feltétel a beeső fényre, emiatt lehet látni a Talbot csíkokat a 21. ábrán látható kísérleti elrendezésben is.

A modellszámításokat 200 vonal/mm -es rácstra és $d=0.543$ mm résszélességre végeztem különböző késleltetésekkel $\lambda_0=550$ nm központi hullámhosszú 140 nm sávzélességű gausszos intenzitás eloszlású fehér fényt feltételezve. A számítások eredményét a 23. ábra mutatja.

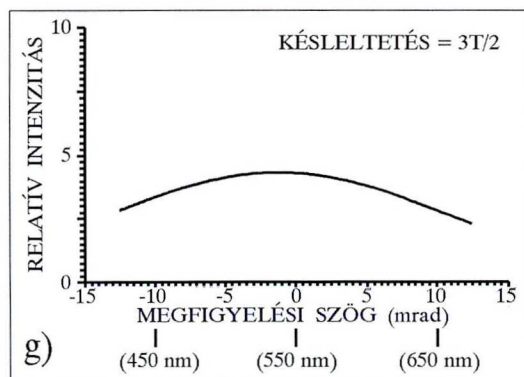
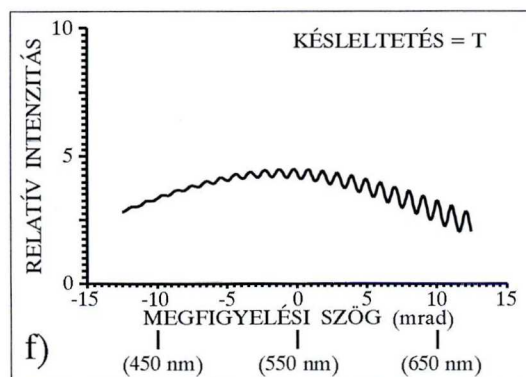
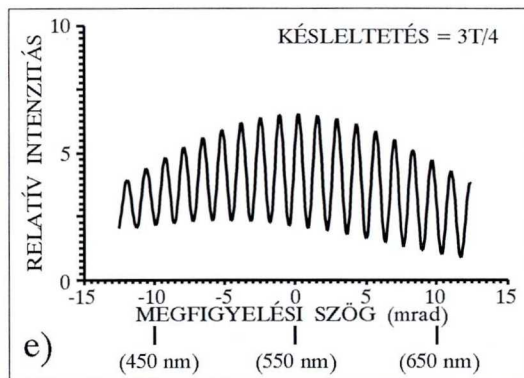
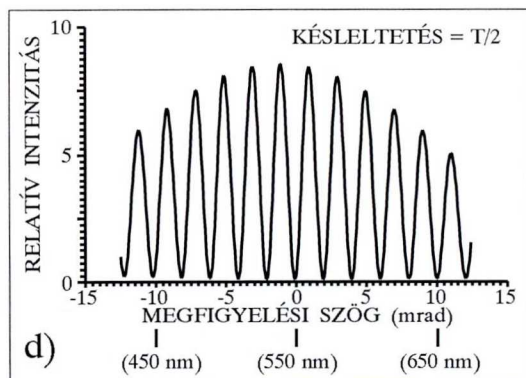
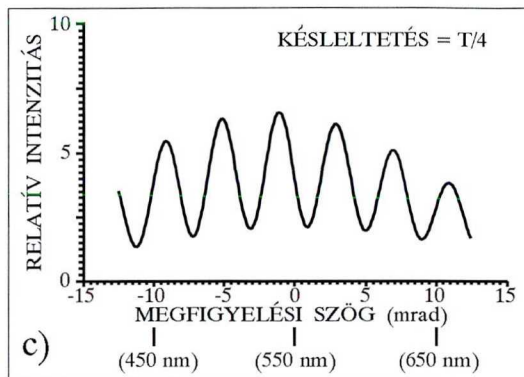
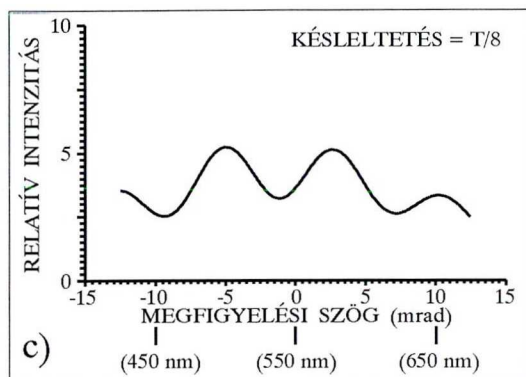
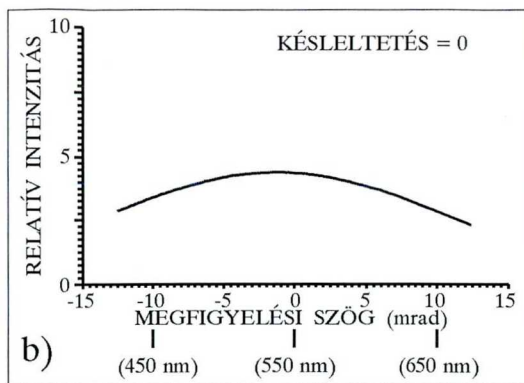
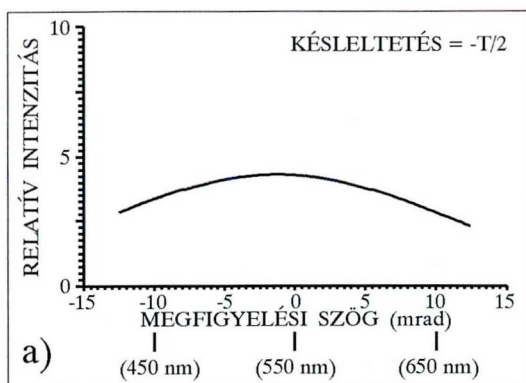
Érdemes megjegyezni, hogy T késleltetésnél még vannak Talbot csíkok, bár az előző magyarázatok [20-28] szerint már nem lehetnének.

Tekintsük most a Δv sávzélességű fehér fényt egymáshoz képest véletlen időzítésű $\tau=(\Delta v)^{-1}$ időtartamú femtoszekundumos impulzusok sorozataként. Egy ilyen rövid impulzus, miután áthalad egy prizmán vagy egy rácson, az 1. ábrának és az (5) egyenletnek megfelelően impulzusfront-dőlést szenved. Az így megdőlt impulzus a terjedési irányára nézve időben kiszélesedik, ennek mértéke:

$$\Delta t = \frac{d}{c} \text{tg}(\gamma) \quad , \quad (30)$$

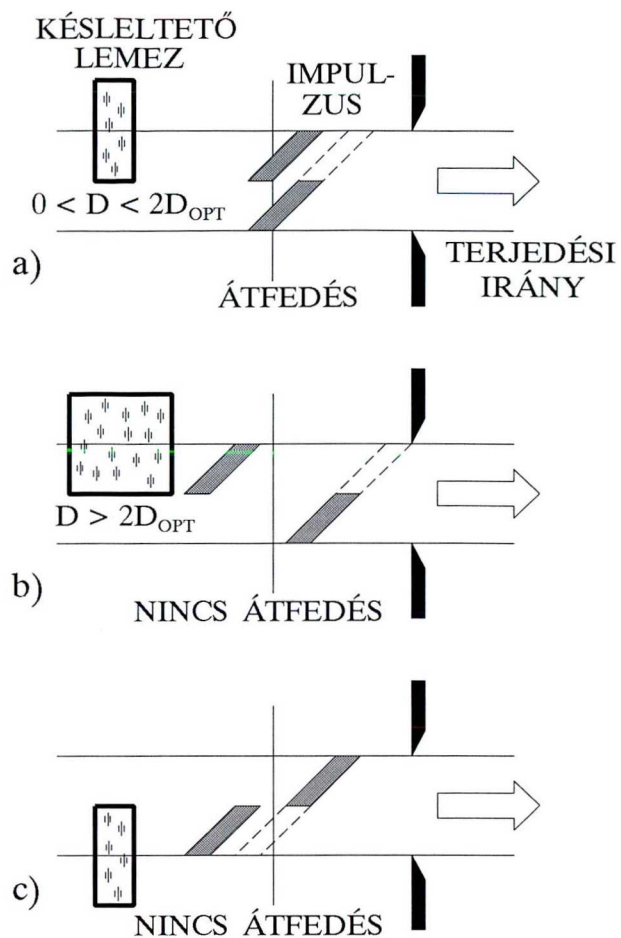
ami hozzáadódik az eredeti τ időtartamhoz.

Impulzusfront dőlése esetén mindig a spektrum kék oldala késik jobban.



23. ábra: Talbot csíkok kialakulása fehér fény spektrumán különböző késleltetéseknél. A fehér fény diszperzív elemén, a spektrum vörös oldali felébe helyezett késleltető lemezen és résen halad át. A negatív késleltetés azt jelenti, hogy a késleltető lemez a nyaláb kék oldalába lett helyezve.

Ha egy késleltető lemezt helyezünk a spektrum vörös részébe, akkor azon az oldalon fellép egy plusz késleltetés (24a,b ábra). Ha a lemez vastagsága kisebb késleltetést okoz, mint a (30) egyenlettel leírt időbeli kiszélesedés, akkor a két fél impulzus időben átfed. Ez alatt azt értem, hogy van olyan, a terjedési irányra merőleges sík, ami egyidejűleg metszi mindkét fél impulzust (24a ábra). Ilyenkor láthatóak a Talbot csíkok. Ha a lemez a vörös oldalon van, de az általa okozott késleltetés nagyobb, mint amit a (30) egyenlet megenged, akkor a két fél impulzus között nincs időbeli átfedés, ekkor nem keletkeznek Talbot csíkok (24b ábra). Ha a lemez a kék oldalon van, akkor az egyébként is késésben lévő fél impulzus még jobban lemarad; nincs időbeli átfedés, nem keletkeznek Talbot csíkok (24c ábra).



24. ábra: Döntött impulzus felének késleltetése lemezzel.

- a) A lemez a vörös oldalon van, és a megadott méreteken belül; létrejönnek a Talbot csíkok.
- b) A lemez a vörös oldalon van, de vastagabb a megadott méretnél; nincsenek Talbot csíkok.
- c) A lemez a kék oldalon van; nincsenek Talbot csíkok.

Ha a lemez a vörös oldalon van és a késleltetés éppen $\Delta t/2$ (ld. 30. egyenlet), akkor a két fél impulzus időben teljesen átfedi egymást (nincs olyan, a terjedési irányra merőleges sík, amelyik adott időpillanatban csak az egyik fél impulzust metszené), vagyis a Talbot csíkok láthatósága ekkor maximális. Azaz ez az időkésleltetés felel meg az optimális vastagságnak (D_{opt}). Az előzőekben ezt az időkésleltetést jelöltem $T/2$ -vel. Így:

$$\frac{T}{2} = \frac{d}{2c} \operatorname{tg}(\gamma) \quad , \quad (31)$$

azaz

$$T = \frac{d}{c} \operatorname{tg}(\gamma) = \Delta t \quad . \quad (32)$$

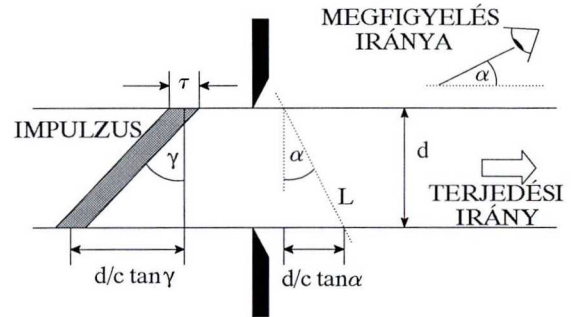
T és D_{opt} között érvényes a (29) egyenlet.

Modellszámítást végeztem egyetlen 550 nm vivőhullámhosszú, 7.33 fs időtartamú (4 optikai ciklus) gausszos időbeli eloszlású rövid impulzusra különböző késleltetésekre közvetlenül kiszámítva a diffrakciós integrált. Diszperzív elemként egy 200 v/mm -es rácsot használtam, a résszélesség $d=0.543$ mm volt. A számítások eredményét a 26. ábra mutatja be.

Érdemes megjegyezni, hogy T késleltetésnél még vannak Talbot csíkok. Erre egy valószínű magyarázat lehet egy résen áthaladt rövid impulzus intenzitás eloszlása, ami az idő és a megfigyelési szög függvényében a 14. ábrán láthatóan kereszt alakú, ahol a metszéspont megfigyelési szöge egyenlő a γ impulzusfront-dőléssel. Vagyis az impulzus vörös oldala időben hosszabb, mint a kék oldala, tehát T késleltetésnél a vörös oldalon még átfed a két fél impulzus.

Résen áthaladó impulzusnak erre a kereszt alakjára egyszerű magyarázatot kaphatunk a megfigyelési iránytól függő virtuális időtartam bevezetésével.

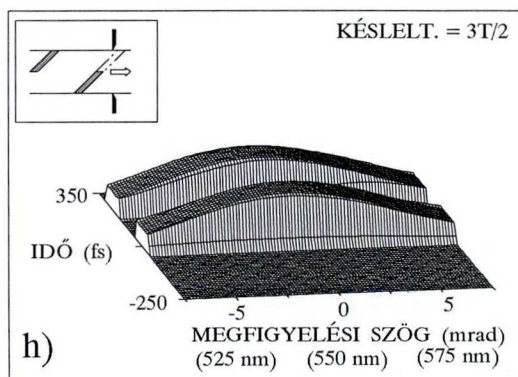
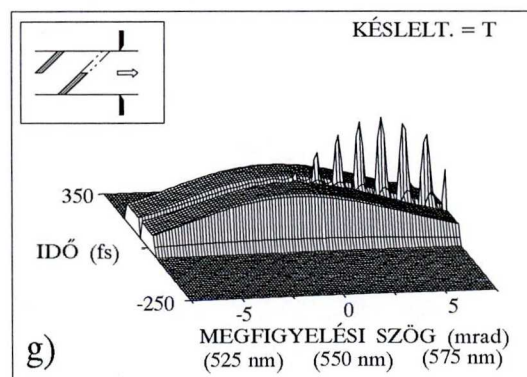
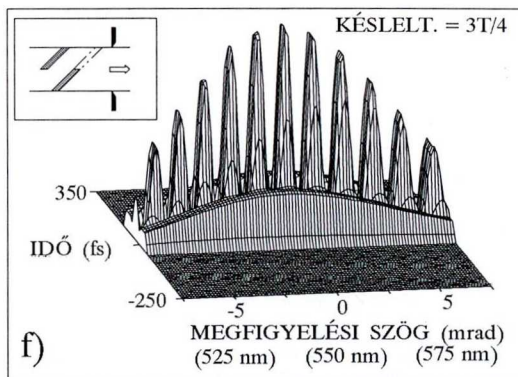
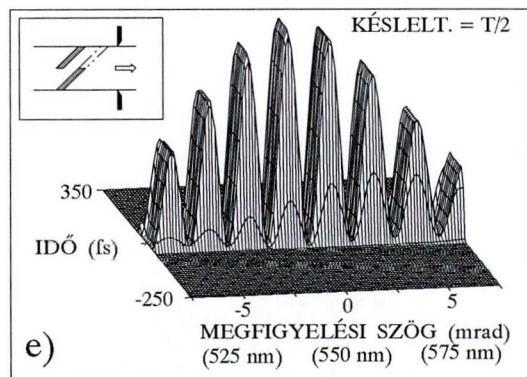
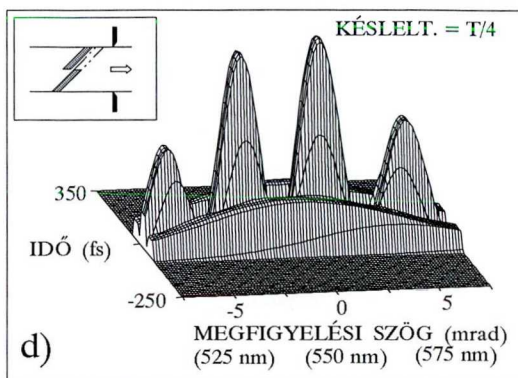
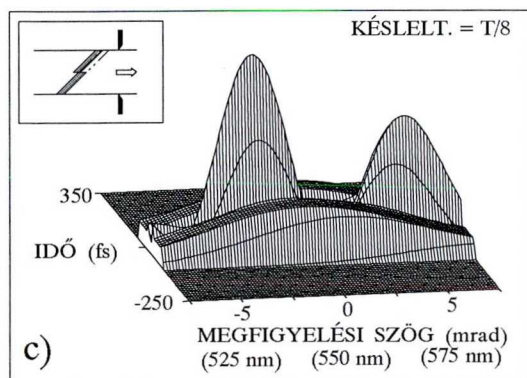
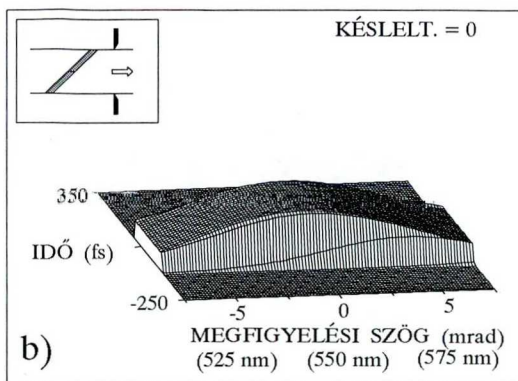
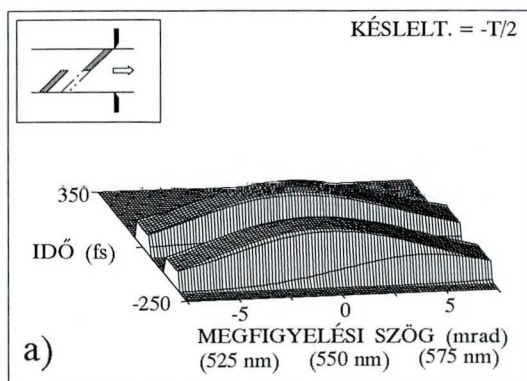
Ha α irányból tekintünk egy résen áthaladó döntött impulzusfrontú (γ) rövid impulzusra, akkor a megfigyelési irányból az impulzus időtartama a 25. ábra jelöléseivel



25. ábra: Segédlet impulzus virtuális időtartamának kiszámításához.

$$t_{\text{vir}} = \tau + \frac{d}{c} \operatorname{tg}(\gamma) + \frac{d}{c} \operatorname{tg}(\alpha) \quad (33)$$

értékű lesz. A virtuális időtartam a legkisebb az $\alpha=-\gamma$ irányban lesz, azaz pont merőlegesen az impulzusfrontra.

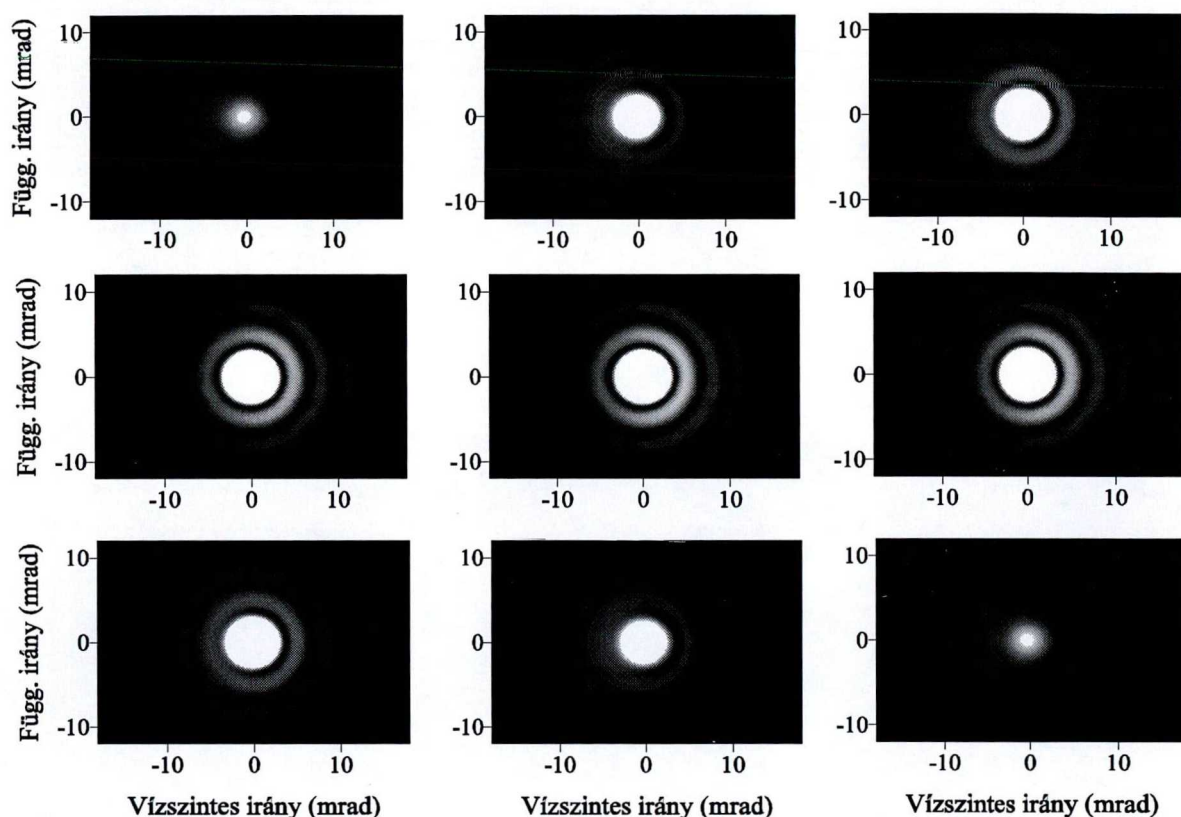


26. ábra: Talbot csíkok kialakulása egyetlen rövid impulzuson különböző késleltetéseknél. Az impulzus diszperzív elemén, az impulzus vörös oldali felébe helyezett késleltető lemezen és résen halad át. A negatív késleltetés azt jelenti, hogy a késleltető lemez a nyaláb kék oldalába lett helyezve.

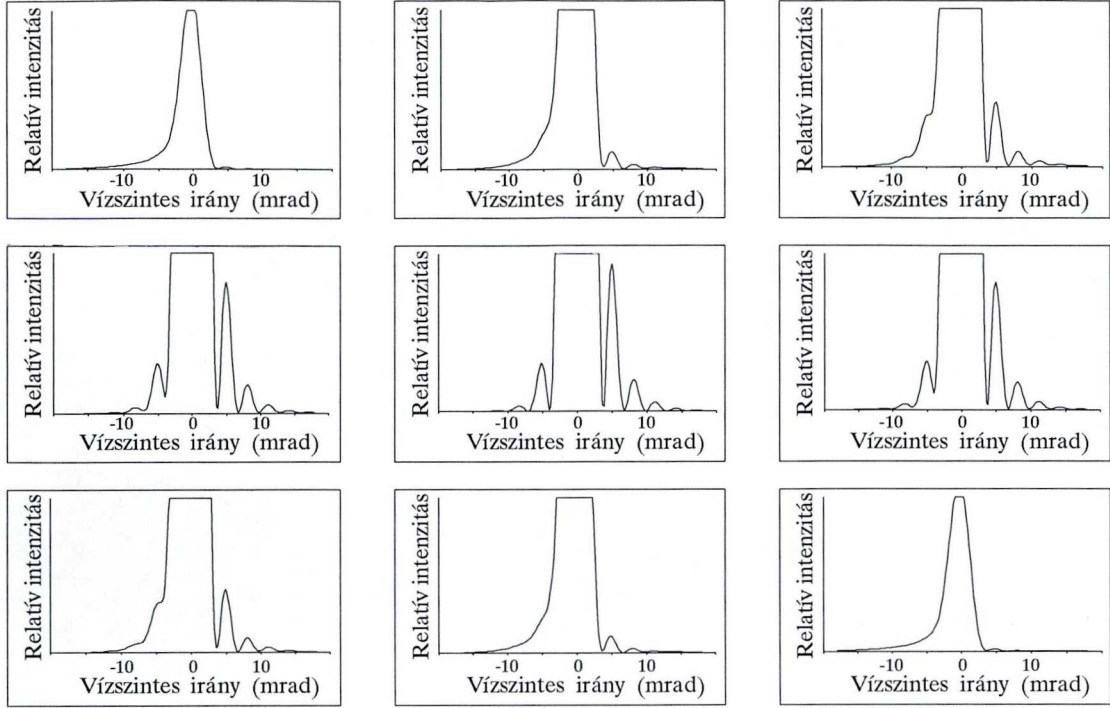
3.2.3 Femtoszekundumos impulzus áthaladása kör alakú nyíláson

A szélihullám-elmélet alapján megvizsgálva egy döntött impulzusfrontú rövid impulzus áthaladását kör alakú nyíláson, a 12. ábra alapján az várható, hogy az impulzus fő része zavartalanul továbbhalad, interferencia görbéket csak a szélihullámok hoznak létre az impulzusfront normálisának irányában.

A 3.2.1 pontban leírtakkal analóg módon modellszámításokat végeztem ferde impulzusfrontú femtoszekundumos impulzus áthaladására kör alakú nyíláson Fraunhofer-féle közelítést használva. A számításoknál feltételeztem, hogy az impulzusfront dőlése kis mértékű, és a nyaláb a környílást homogén módon világítja ki. A számítások eredményeit a 27. és 28. ábrán lehet látni.



27. ábra: Egy döntött impulzusfrontú (5 mrad) 6 fs félértékszélességű impulzus ($\lambda_0=600$ nm) intenzitás-eloszlása a megfigyelési irány szerint, kör alakú nyíláson ($r=0.1$ mm) történő áthaladás után Fraunhofer-féle közelítésben. Az intenzitás logaritmikus léptékben van ábrázolva, a képek azonosan vannak skálázva (emiat néhány képnél az intenzitás telítésbe megy). A képek balról jobbra és felülről lefelé a következő sorrendben láthatók: -6.445 fs; -4.688 fs; -2.930 fs; -1.172 fs; 0.000 fs; 1.172 fs; 2.930 fs; 4.688 fs; 6.445 fs. A 0.0 fs-nak megfelel az az időpont, amikor az intenzitás maximuma eléri a megfigyelt. A képeken jól nyomonkövethető, hogy a +5 mrad környékén éles interferencia-gyűrűdarab jelenik meg: a szélihullám impulzus. A -5 mrad környékén a gyűrűdarab erősen elmosódott.



28. ábra: A 27. ábrán látható intenzitás-eloszlások függőleges irány = 0 mrad -nál vett metszetei. Jól látható, hogy az interferencia maximális láthatósága valamennyi esetben a vízszintes irány = 5 mrad (= γ) környékén található.

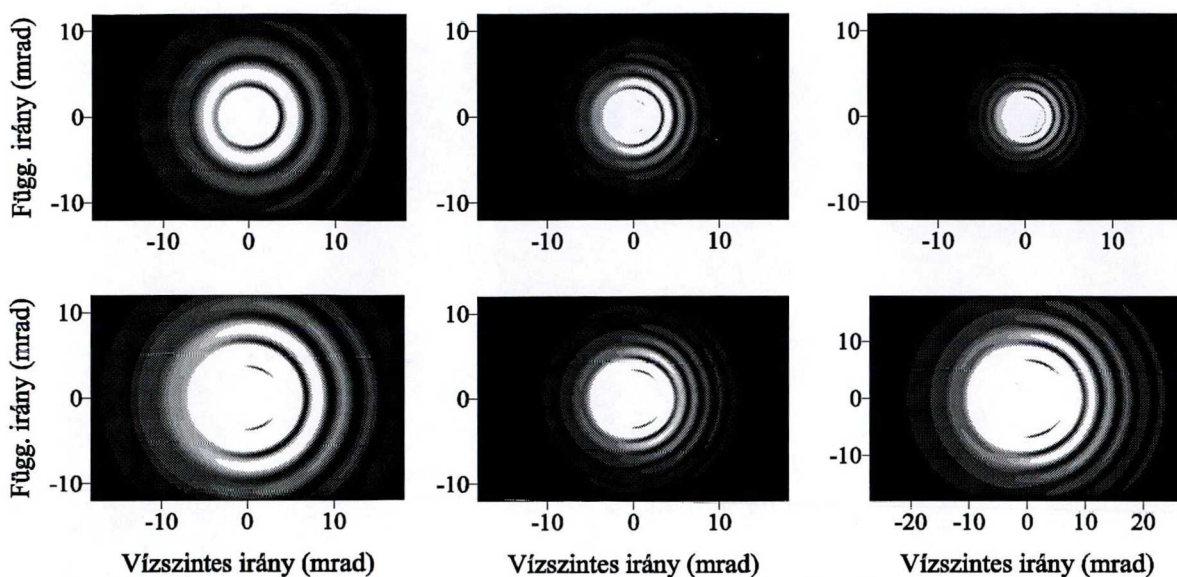
A modellszámítást elvégeztem folytonos fehér fénnel történő kivilágítás esetére is. Egyetlen monokromatikus komponens komplex elektromos térerőssége az R sugarú környíláson áthaladva a következőképpen transzformálódik Fraunhofer-féle közelítésben:

$$E^{(t)} = E \pi R^2 \frac{2J_1(\varrho)}{\varrho} \quad , \quad (34)$$

ahol

$$\varrho = kR \sin \alpha \quad . \quad (35)$$

α a megfigyelési irány és a környílás normálisa közötti szög, k a hullámszám, J_1 az elsőrendű elsőfajú Bessel-függvény. Az eredő intenzitás a (13) egyenlettel számítható. A 29. ábrán látható néhány eredmény.



29. ábra: Döntött impulzusfrontú folytonos fehér fény intenzitás-eloszlása R sugarú környíláson történő áthaladás után Fraunhofer-féle közelítésben. A felső három kép esetén az impulzusfront dőlése $\gamma=5$ mrad, a környílások sugarai rendre: $R=0.1$ mm, $R=0.2$ mm és $R=0.3$ mm. Az alsó három képen balról jobbra: $R=0.1$ mm és $\gamma=10$ mrad ; $R=0.2$ mm és $\gamma=10$ mrad ; $R=0.1$ mm és $\gamma=18$ mrad. A képek logaritmikus léptékűek, és úgy vannak skálázva, hogy jól látszódjon az, hogy az interferencia gyűrűdarabok a γ szögnek megfelelő irányban maximális láthatósággal látszódnak, míg a többi irányban elmosódtak.

A résnél megfigyeltékkel összevetve megállapítom, hogy ha döntött impulzusfrontú fehér fénnel végzünk diffrakciós kísérletet résen vagy környíláson, akkor a diffrakciós képen megfigyelhető az impulzusfront dőlésével megegyező szétválás az elhajlási görbék láthatósági maximuma és az intenzitás maximuma között. Ugyanez érvényes rövid impulzusokra is.

II. RÉSZ

KÜLÖNBSÉGI FREKVENCIA KÉLTÉSE AgGaS_2 ÉS AgGaSe_2 KRISTÁLYBAN

E részben olyan eredményekről számolok be, amelyeket a Rice Egyetemen (Houston, Texas) dolgozva értem el. Az összes kísérleti eredmény egy francia kollégámmal, Patrick Canarelli-vel közösen végzett munkából származik. A kísérleti elrendezések végleges kidolgozását is közösen végeztük. Az elméleti számítások mindegyikében részt vettem, a legtöbbjük kizárólag a saját eredményem. A kettőnk munkáját Dr. Robert F. Curl és Dr. Frank K. Tittel irányította. (Dr. Curl 1997-ben Kémiai Nobel díjat kapott a fullerének felfedezéséért.)

4. Tudományos előzmények

Jelen fejezetben igyekszem egy rövid áttekintést nyújtani - a teljesség igénye nélkül - a különbségi frekvencia keltés (DFG) és az AgGaS_2 és AgGaSe_2 irodalmáról, és viszonyukról más nemlineáris optikai jelenségekhez, más nemlineáris optikai anyagokhoz.

4.1 Infravörös spektroszkópiához használt lézer- és lézerszerű fényforrások

A molekuláknak és molekuláris ionoknak gyakorlatilag az összes alapvető rezgési szintje a 2-20 μm hullámhosszú infravörös tartományban található. Ezt a területet szokás 'ujjlenyomat régió' is nevezni emiatt. Nagy érzékenységgű, nagy felbontású és időben bontott spektroszkópiához keskeny sáv szélességű (≤ 1 MHz), megfelelően nagy teljesítményű (> 1 μW), lehetőleg széles sávban hangolható lézer- vagy lézerszerű fényforrássra van szükség. Ezen az optikai tartományon a gyakorlatban használható fényforrások a színcentrumos lézerek (color center laser) [31], az ólomsó diódalézerek, a CO és CO_2 oldalsávú lézerek (sideband lasers) [32] és a különbségi frekvencia keltésén (Difference Frequency Generation=DFG) alapuló fényforrások.

A színcentrumos lézerek nagy teljesítményűek (≈ 100 mW), keskeny sáv szélességűek, folytonosan hangolhatók, de a folytonos hangolási tartományuk csupán az 1.4-3.5 μm hullámhosszakra korlátozódik, és csak kriogenikus hőmérsékleten működnek.

A diódalézerekkel a félvezető összetételétől függően lefedhető a 3-30 μm tartomány, de az egyes diódák hangolási tartománya nagyon kicsi (≈ 100 cm^{-1}). Ezenkívül a kereskedelemben kapható diódalézerek nem folytonosan fedik le a névleges hangolási tartományukat és szintén alacsony működési hőmérsékleteket kívánnak (< 100 K).

A CO és CO_2 oldalsávú lézerek az 5-6 μm illetve a 9-11 μm tartományon tudnak nyújtani egy csupán 0.5 cm^{-1} nagyságú folytonosan hangolható tartományt.

A különbségi frekvencia keltésen alapuló eszközök nagyon hasznosnak bizonyultak a nagyfelbontású infravörös spektroszkópia számára; sáv szélességük a két bemenő lézer sáv szélességétől függ, folytonos hangolhatósági tartományukat csak a nemlineáris kristály optikai transzmissziója korlátozza [33,34].

4.2 Nemlineáris kristályok használata; konverziók (SFG, SHG, DFG, SPE)

A nemlineáris optika születését 1961-re teszik: ekkor sikerült először fény frekvenciáját megkettőzni [35]. Alacsony frekvenciájú elektromágneses hullámok

felharmonikusainak keltése régóta ismert volt. A jelenségek optikai tartományon történő megismétléséhez azonban a hagyományos fényforrások túl gyengék voltak. Észlelhető jelenséghez kb. 2.5 kW/cm² intenzitású nyalábra lett volna szükség [36], s ezek a lézerek felfedezéséig nem voltak elérhetőek. Az ezt követő időkben sorban felfedezték a többi nemlineáris jelenséget is.

Mindezen jelenségek a közeg polarizációjával függnek össze. Ha a bemenő elektromos térerősség leírható monokromatikus síkhullámok összegeként:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \sum_i \mathbf{E}(\mathbf{k}_i, \omega_i) \quad , \quad (36)$$

akkor a polarizáció leírható a következő formában [36]:

$$\Pi(\mathbf{k}, \omega) = \Pi^{(1)}(\mathbf{k}, \omega) + \Pi^{(2)}(\mathbf{k}, \omega) + \Pi^{(3)}(\mathbf{k}, \omega) + \dots \quad , \quad (37)$$

ahol

$$\begin{aligned} \Pi^{(1)}(\mathbf{k}, \omega) &= \chi^{(1)}(\mathbf{k}, \omega) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega) \quad , \\ \Pi^{(2)}(\mathbf{k}, \omega) &= \chi^{(2)}(\mathbf{k} = \mathbf{k}_i + \mathbf{k}_j, \omega = \omega_i + \omega_j) \times \mathbf{E}(\mathbf{k}_i, \omega_i) \mathbf{E}(\mathbf{k}_j, \omega_j) \quad , \\ \Pi^{(3)}(\mathbf{k}, \omega) &= \chi^{(3)}(\mathbf{k} = \mathbf{k}_i + \mathbf{k}_j + \mathbf{k}_l, \omega = \omega_i + \omega_j + \omega_l) \\ &\quad \times \mathbf{E}(\mathbf{k}_i, \omega_i) \mathbf{E}(\mathbf{k}_j, \omega_j) \mathbf{E}(\mathbf{k}_l, \omega_l) \quad . \end{aligned} \quad (38)$$

A háromhullám keverésekhez a közeg másodrendű szuszceptibilitás tenzorát ($\chi^{(2)}$) kell használni, a négyhullám keverésekhez a harmadrendű szuszceptibilitás tenzort ($\chi^{(3)}$).

A harmadrendű szuszceptibilitás tenzor általában jóval kisebb értékű, mint a másodrendű, emiatt a négyhullám keverés határfoka sokkal kisebb szokott lenni a háromhullám keverésénél. A háromhullám keverés nem valósítható meg minden közegben, csak olyanokban, melyek rendelkeznek inverziós szimmetriával [36]. A négyhullám keverés mindig létrehozható, és például fémgözőkben elég jelentős határfokkal alkalmazható [36]. Valamennyi keverés megvalósítható folytonos és impulzus lézerekkel is.

A továbbiakban kitérek a háromhullám keverés néhány speciális esetére. Nemlineáris közegként csak kristályokat fogok használni.

Az összegfrekvencia keltés (Sum Frequency Generation=SFG) alapelve a következő: a kristályba két, ω_1 és ω_2 frekvenciájú lézerefény hatol be. Ahol a nyalábok

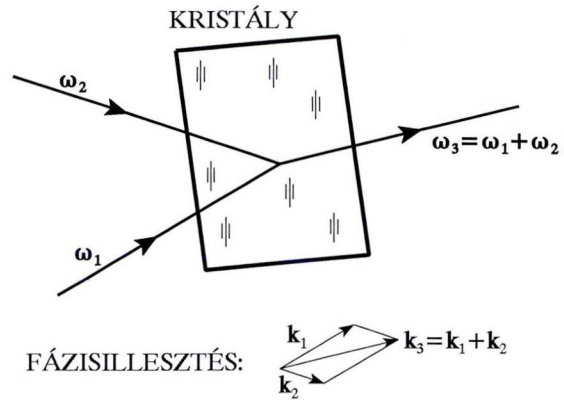
átfedik egymást, ott létrejön egy $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ frekvenciájú sugárzás is (29. ábra). Ez a sugárzás minden irányú, de rendkívül gyenge. Komoly erősítés abban az irányban tapasztalható, amelyre teljesül a fázisillesztési feltétel (30. ábra), vagyis az összegfrekvenciájú fény hullámszám vektora megegyezik a két összetevő fénynyaláb hullámszám vektorainak összegével. Ez esetben a három hullámra teljesül az energia- és az impulzusmegmaradás is. (Ez utóbbit fejezi ki a hullámszám vektorok összegzése.) A keletkező fény intenzitása bizonyos határok között egyenesen arányos a két bemenő nyaláb intenzitásával, függ a bemenő nyalábok átfedési tulajdonságaitól, a kristály másodrendű szuszeptibilitás tenzorától (továbbiakban: nemlineáris együttható) és az átfedési tartomány L hosszától. Ha ez véges hosszúságú, akkor a fázisillesztési feltételnél megengedett egy $\Delta \mathbf{k}$ bizonytalanság[37]:

$$|\Delta \mathbf{k}| = \frac{\pi}{L} \quad . \quad (39)$$

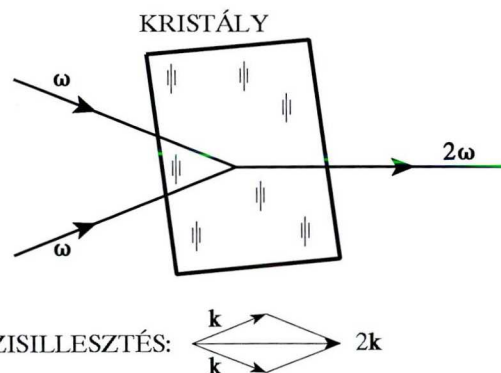
Az átfedési tartomány L hosszának csökkenése rontja a konverzió hatásfokát, de ugyanekkor nagyobb térszögből érkező sugárzás tud hasznosulni.

Keskeny sáv szélességű (single frequency) folytonos lézereknél a legjobb hatásfokkal a konverzió akkor történik, ha a bemenő nyalábok a kristály teljes hosszában teljesen átfedik egymást, azaz kollineárisak.

A következő konverzió az előzőnek egy speciális esete: a második felharmonikus keltés (31. ábra). Ekkor mindkét bemenő nyaláb azonos frekvenciájú, a végeredmény pedig ennek kétszerese. Itt nagyon gyakran



30. ábra: Összegfrekvencia keltés (SFG) elvi vázlata.



31. ábra: Második felharmonikus keltés (SHG) elvi vázlata.

kollineáris elrendezést használnak, ami tulajdonképpen csak egyetlen bemenő nyalábot jelent.

Különbégi frekvencia keltés (DFG) esetén a kimenő nyaláb frekvenciája a két bemenő nyaláb frekvenciájának különbsége (32. ábra). Ez esetben is teljesülnie kell a fázisillesztési feltételnek.

Általánosan azt mondhatjuk, hogy háromhullám keverés esetén van egy legmagasabb frekvencia, ezt szokás pumpáló (pump= p) frekvenciának nevezni, vagy egy közbűső, amit általában jelnek vagy szignálnak (signal= s) hívnak, és van egy legkisebb, amit idlernek (idler= i). Ezek között érvényesek az alábbi egyenletek:

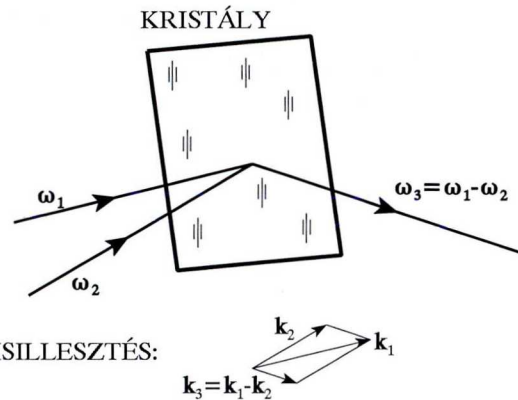
$$\omega_p = \omega_s + \omega_i \quad ; \quad \mathbf{k}_p = \mathbf{k}_s + \mathbf{k}_i \quad . \quad (40)$$

Ha a bemenő nyalábok az i és az s , akkor összegfrekvencia keltés történik; ha ráadásul i és s megegyezik, akkor felharmonikus keltés; ha a bemenő nyalábok valamelyike a p , akkor pedig különbségi frekvencia keltés.

Van még egy jelenség, amelyet fontos röviden ismertetnem. Ez a spontán parametrikus emisszió (Spontaneous Parametric Emission=SPE). Ha egy fénynyaláb érkezik egy nemlineáris kristályba, akkor van bizonyos kvantummechanikai valószínűsége annak, hogy a beérkező foton (ω_p) 'szétváljon' két fotonra ($\omega_p = \omega_s + \omega_i$). A jelenség akkor lesz mérhető nagyságú, ha teljesül a (40) egyenlet szerinti fázisillesztési feltétel is.

A nemlinearitás leírására kétféle konvenció van [36]. Az egyik a szuszceptibilitás tenzorokat használja, a másik leírási mód pedig leválasztja a szokásos hullámfaktort (azaz $e^{(j\mathbf{k}\mathbf{r}-j\omega t)} - t$), és a d nemlineáris együtttható tenzorokat használja. Másodrendű tenzorok esetén $d_{psi} = \chi_{psi} / 2$ [36]. A továbbiakban a d nemlineáris együtttható tenzorral fogok számolni.

Háromhullám keverésnél szokás használni a Miller-féle deltát[38, 36], melynek



32. ábra: Különbégi frekvencia keltés (DFG) elvi vázlata.

definíciója:

$$d^{(2)}(\omega_p = \omega_s + \omega_i) = \chi_p \chi_s \chi_i \delta_{psi} \quad , \quad (41)$$

ahol $\chi_x = n_x^2 - 1$, az elsőrendű szuszceptibilitás, δ a Miller-féle delta. δ a tapasztalatok szerint csaknem frekvencia-független a legtöbb kristályra, és csak az anyagra jellemző. A képlet azt sugallja, hogy a nagyobb törésmutatójú kristály egyben nagyobb nemlineáris együttthatóval is rendelkezik.

4.3 90°-os fázisillesztés előnyei; I és II típusú fázisillesztés

Ha szeretnénk kiszámolni a nemlineáris konverzióval létrehozott új nyaláb teljesítményét, akkor szükségünk van a két gerjesztő nyaláb átfedési hosszára (L). Minél nagyobb L , annál nagyobb a nyert teljesítmény. Ebből következően ahol csak lehet, célszerű kollineáris fázisillesztést létrehozni.

A nemlineáris kristályok kettőtörőek. Bennük az extraordinárius (rendellenes) sugár esetén a hullám- és az energiaterjedés iránya különböző. Emiatt a kezdetben még kollineáris nyalábok nem fognak átfedni, csak egy bizonyos hosszon. Ez a 'walk-off' jelenség. Ez a jelenség csak abban az esetben kerülhető ki, ha a kristály egy optikai tengellyel rendelkezik és az extraordinárius nyaláb terjedési iránya erre a tengelyre merőleges. Ez a 90°-os fázisillesztés.

Ez esetben nem jön létre a walk-off, és a gerjesztő nyalábok nemlineáris konverzió szempontjából hatásos átfedését csak a kristály tényleges hossza, illetve a nyalábok fókuszálása és teljesítménye korlátozza. Ha a nyalábok túlságosan fókuszáltak, akkor egyrészt megnő a térszög, ami a (39) egyenlet alapján azzal jár, hogy a bemenő nyaláboknak kisebb része vehet részt a nemlineáris folyamatban, másrészt általában nehézkes a tényleges elrendezést úgy felépíteni, hogy a két bemenő nyaláb pontosan azonos mértékben fókuszálódjon, azaz erős fókuszálásnál a tényleges átfedési tartomány lerövidülhet. A bemenő nyalábok teljesítményétől és fókuszálásától függően pedig megváltoztatható a törésmutató, s ezzel a fázisillesztés; illetve magát a kristályt is meg lehet rongálni.

Kollineáris fázisillesztésnél ω_p -t szokás extraordináriusnak venni. Általában kétféle fázisillesztést használnak: I típusú akkor, ha ω_s , ω_i mindkettő vagy ordinárius (rendes)

vagy extraordinárius; II típusú akkor, ha az alacsonyabb frekvenciájúak közül az egyik ordinárius, a másik extraordinárius.

Folytonos bemenő lézereket alkalmazva impulzus lézerek helyett, végeredményként kisebb spektrális sáv szélességet, jobb frekvencia-stabilitást és a spektrum folytonos letapogatásának lehetőségét kapjuk, de valamivel kisebb konverziós hatásfokkal.

4.4 Az ezüst-tiogallát (AgGaS_2) és ezüst-gallium-szelenid (AgGaSe_2) kristályok tulajdonságai és használatuk a nemlineáris optikában

A háromhullám keveréshez alkalmazott nemlineáris kristállyal szemben van néhány követelmény támasztva. A kristály átlátszó kell legyen mind a három frekvencián. A nagy teljesítmény elérése érdekében fontos, hogy a teljes használandó tartományon lehetőség legyen 90° -os kollineáris fázisillesztésre, mindhárom frekvencián alacsony legyen az abszorpciója és a két bemenő frekvencián magas legyen a roncsolási küszöb. Legyen magas a nemlineáris együtthatója, legyen kémiaiilag stabil. Ha ezeken kívül még a kereskedelemben is kapható, akkor valószínűsíthető, hogy a kristályokat már nagy optikai tisztasággal tudják készíteni.

Az ezüst-tiogallát (AgGaS_2) és az ezüst-gallium-szelenid (AgGaSe_2) is $\bar{4}2m$ pontszimmetriájú, negatív egytengelyű kristály. Az ebbe az osztályba tartozó kristályoknál a másodrendű nemlineáris együttható tenzor d_{14} és d_{36} eleme nem nulla és egymással egyenlő.

Az AgGaS_2 jól átlátszó a $0.5\text{--}12\ \mu\text{m}$ tartományon, az abszorpciója $0.04\ \text{cm}^{-1}$ vagy kisebb, és kollineáris 90° -os fázisillesztést lehet benne megvalósítani a $2\text{--}11\ \mu\text{m}$ (ω_i) tartományon [39, 40]. Nagy nemlineáris együtthatóval rendelkezik [41–45], ami vonzóvá teszi nemlineáris alkalmazásokra (SHG, DFG, OPO=optical parametric oscillator=optikai parametrikus oszcillátor) [41, 42, 46, 47]. A roncsolási küszöbe kb. $25\ \text{MW/cm}^2$ $10\ \text{ns}$ -os lézerfényre [40]. A kristályt az eddigi alkalmazásokban túlnyomórészt impulzus lézerekkel használták.

Az AgGaSe_2 jól átlátszó a $0.71\text{--}18\ \mu\text{m}$ tartományon, az abszorpciója hasonló, mint az AgGaS_2 -é, és kollineáris 90° -os fázisillesztést lehet benne megvalósítani a $4\text{--}18\ \mu\text{m}$ (ω_i) tartományon [48, 39, 40]. Az AgGaS_2 -énél nagyobb nemlineáris együtthatóval rendelkezik ($d_{36}=33\ \text{pm/V} \pm 10\%$) [49], a roncsolási küszöbe kb. ugyanakkora ($20\text{--}30\ \text{MW/cm}^2$) [40, 50]. Az eddigi alkalmazásoknál a fő nehézséget az jelentette, hogy a teljes tartományú

DFG-hez a 0.9-2.5 μm tartományon kellett volna pumpáló lézereket találni.

Mindkét kristály csak rövid ideje kapható nagy (>40 mm) méretekben és megfelelő optikai tisztaságban.

A DFG szempontjából kritikus paramétert (d^2/n^3) tekintve a 3. táblázat tartalmaz egy összefoglalót a leggyakrabban használt nemlineáris kristályokról valamint az AgGaS_2 -ről és az AgGaSe_2 -ről. A kritikus paraméter értékei a [51]-ből valók. (A keltett infravörös teljesítmény lineárisan skálázódik ezzel a paraméterrel.)

3. táblázat: Nemlineáris kristályok DFG szempontjából kritikus paramétere (d^2/n^3) és transzmissziós tartománya

anyag	transzmissziós tartomány (μm) [40, 48]	kritikus paraméter
AgGaS_2	0.5-13	42.3
AgGaSe_2	0.71-18	242
ZnGeP_2	0.74-12	625
LiNbO_3	0.35-4.5	3.5
LiIO_3	0.31-5.5	1.5

A táblázat alapján a legnagyobb hatásfokkal a ZnGeP_2 -ot lehetne alkalmazni, de ez az anyag erősen abszorbeál a 0.74-2 μm tartományon [52], és a megadott Sellmeier együtthatókkal [52] kiszámítható, hogy 2 μm feletti pumpálással nem lehet benne 90°-os kollineáris fázisillesztést megvalósítani.

5. Célkitűzések

1. Célul tűzöm ki az ezüst-tiogallát (AgGaS_2) kristály nemlineáris együttthatójának meghatározását.
2. Célul tűzöm ki az AgGaS_2 kristály fázisillesztési karakterisztikájának vizsgálatát 90° -os I típusú fázisillesztést alkalmazva.
3. Célul tűzöm ki az AgGaS_2 kristályban különbségi frekvencia keltését (DFG) 90° -os I típusú fázisillesztést alkalmazva, a keletkező infravörös fény teljesítményének kiszámolását és megmérést.
4. Célul tűzöm ki az így összeállított infravörös lézerspektrométer gyakorlati tesztelését.
5. Célul tűzöm ki az ezüst-gallium-szelenid (AgGaSe_2) kristály vizsgálatát különbségi frekvencia keltésre (DFG) való alkalmasság szempontjából.

6. Tudományos eredmények

6.1 Az ezüst-tiogallát (AgGaS₂) kristály nemlineáris együttthatójának meghatározása

A mérésünk a spontán parametrikus emisszió (SPE) keltésén alapul. Byer és Harris [53] tanulmányozták kísérletileg és elméletileg is a SPE-t. Megállapították, hogy ha a pumpálás a legmagasabb frekvencián (ω_p) történik, akkor a középső frekvencián (ω_s) a Θ szögben kisugárzott fénytéljesítmény a következő formulával számítható ki:

$$P_s = \frac{2\hbar\omega_s^4\omega_i n_s L}{4\pi\epsilon_0 c^5 n_i n_p B} d_{36}^2 \pi \Theta^2 P_p, \quad (42)$$

ahol p,s,i alsóindexek a pumpáló, a szignál és az idler nyálábra utalnak, $\hbar$ a Planck-állandó, n a törésmutató, L a kristály hossza, ϵ_0 a vákuum permittivitása, c a fénysebesség, d_{36} a kristály nemlineáris együttthatója, P_p a bemenő lézer teljesítménye,

$$B = \frac{\partial k_s}{\partial \omega_s} - \frac{\partial k_i}{\partial \omega_i} \quad (43)$$

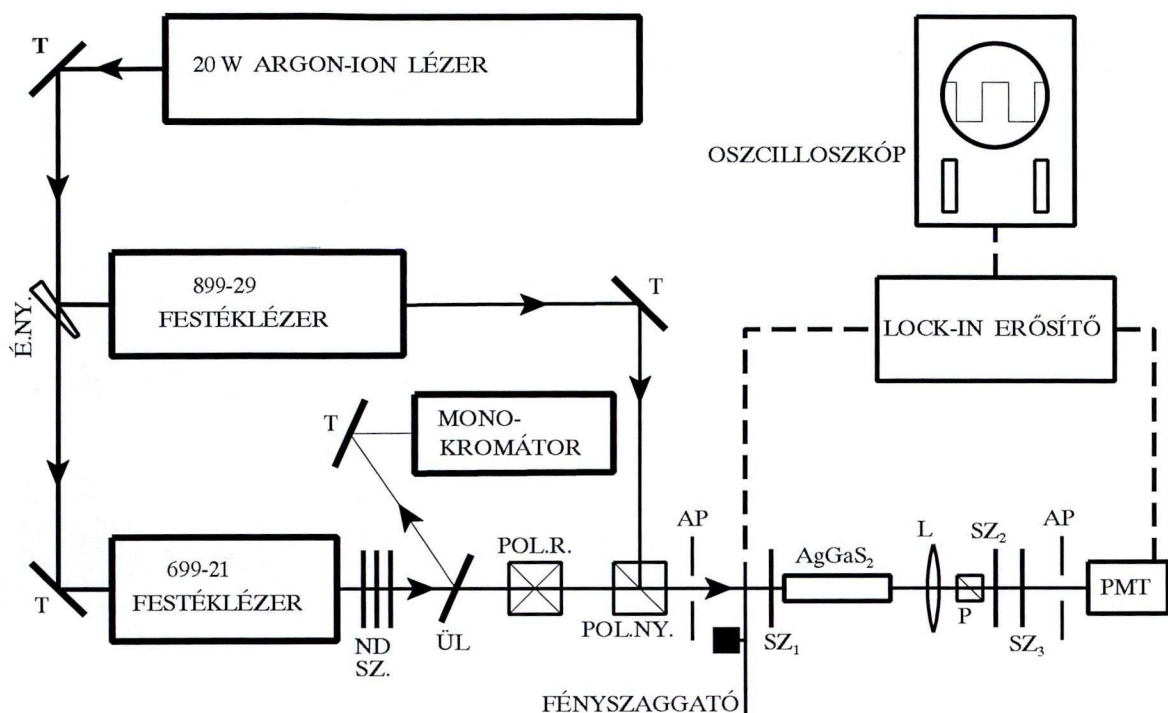
a diszperziós faktor (k a hullámszám).

Az általunk tanulmányozott irodalomban az AgGaS₂ nemlineáris együttthatóját (d_{36}) SHG, illetve DFG konverziós hatékonyság alapján határozták meg [41-45].

A választásunk azért esett a SPE-t alkalmazó módszerre, mert így biztosítva van automatikusan a fázisillesztési feltétel, valamint a jelenség sokkal inkább hasonlít a DFG-re, mint a SHG-re. További előnye, hogy - megfelelő frekvenciák kiválasztásával - csak két, a látható tartományon lévő sugárzás teljesítményének hányadosát kell meghatározni; nincs szükség infravörös detektálásra. Nincs szükség a bemenő nyáláb keresztmetszetének pontos ismeretére, és a kristály beállítása és hőmérséklete is sokkal kevésbé kritikus. A módszer nem függ a bemenő nyáláb módusától, sem fókuszálásától.

A kísérleti elrendezés vázlata a 33. ábrán látható. Egy ringlézer (Coherent 899-29 festéklézer rodamin 6G-vel) 600 nm hullámhosszon működve volt a pumpáló forrás. A függőlegesen polarizált nyáláb szaggatás után lépett be a 4x4x20 mm³-es AgGaS₂ kristályba. A kristály bemeneti oldalán antireflexiós (AR) réteg volt kialakítva a 600-900

nm tartományra; a kimeneti oldalán szintén volt AR réteg, de a 3.8-9.1 μm tartományra.



33. ábra: Kísérleti elrendezés AgGaS₂ nemlineáris együtthatójának méréséhez. A két ring festéklézert egy 20 W-os Argon-ion lézer pumpálta. A 899-29 festéklézer $\lambda_p=600$ nm-en, a 699-21 festéklézer $\lambda_s\approx 650$ nm-en működött. A 600 nm-es fény SPE-t generált a kristályban (≈ 650 nm), s ezt összehasonlítottuk a 650 nm-es lézer megfelelően gyengített fényével. Az összehasonlításhoz fotoelektron sokszorozót (Photo Multiplier Tube=PMT) használtunk, melybe a fényt egy 10 cm-es fókuszu lencse (L) gyűjtötte be. A zavaró tényezők kiküszöbölésére a fényt megszagattuk, és a fényszaggató és a PMT jelét egy lock-in erősítő után oszcilloszkópon néztük. A fényútba interferencia-szűrők (SZ₁: $\lambda=600\pm 5$ nm ; SZ₃: $\lambda=650\pm 5$ nm), levágó szűrő (SZ₂: $\lambda<630$ nm), polarizátor (P) lett még behelyezve. A referencia nyaláb fényét szürke (Neutral Density=ND) szűrőkkel gyengítettük és egy polarizáció rotátorral (POL.R.) forgattuk be a megfelelő irányba. (É.NY.=ékes nyalábosztó ; POL.NY.=polarizációs nyalábosztó kocka ; T=tükör ; ÜL=üveglemez ; AP=apertúra)

90°-os I típusú ($e\rightarrow o+o$) fázisillesztést alkalmaztunk. Ennek megfelelően az SPE polarizációja horizontális volt. A keltett fényt egy 10 cm-es fókuszu lencse gyűjtötte be egy szárazjég hűtésű fotoelektron sokszorozóba (Photo Multiplier Tube=PMT). A kristály után elhelyezett polarizátor és levágó szűrő ($\lambda<630$ nm) gondoskodott a pumpáló nyaláb teljes eliminálásáról. Az utánuk következő interferencia-szűrő ($\lambda=650\pm 5$ nm) az egyéb optikai zajokat küszöbölte ki. A kristály előtt lévő interferencia-szűrő ($\lambda=600\pm 5$ nm) volt hivatott kizárni a pumpáláson kívüli frekvenciákat.

A fényteljesítmény megállapítása egy referencianyalábbal való összehasonlítással

történt, ami egy másik ringlézernek (Coherent 699-21 festéklézer, DCM Special festékkel) a fázisillesztésre beállított ($\lambda \approx 650$ nm) nyalábja volt. Ez a lézer szűrkeszűrőkkel (Neutral Density=ND) volt gyengítve. A függőlegesen polarizált nyaláb egy polarizációs rotátorral horizontálissá lett forgatva. A referencianyaláb mérésekor a 600 nm-es interferencia-szűrő ki volt véve a fényútból. A referencianyalábbal való kollineáris beállításról két apertúra gondoskodott, hogy mind a kristályon, mind a PMT-n azonos helyre essen az SPE, illetve a DCM festéklézer fénye. A DCM lézer gyengítetlen nyalábjával meg lett mérve a kristály után elhelyezett elemek (lencse, polarizátor, levágó szűrő, interferencia-szűrő) együttes transzmissziója, hogy az SPE esetén vissza lehessen számolni a kristályból kilépő teljesítményt a PMT jeléből. A PMT előtt lévő apertúra r sugara határozta meg a sugárzás Θ nyílásszögét:

$$\Theta = \frac{r}{n_s F} \quad , \quad (44)$$

ahol F a lencse fókusz távolsága.

A PMT és a fényszagató egy lock-in erősítőre voltak kötve, melynek jele egy oszcilloszkópon látszódott.

Több mérést végeztünk különböző bemenő teljesítményekkel (P_p) és különböző szögekkel (Θ). A tipikus P_p/P_s arány $\sim 10^9$ volt. A mérések reprodukálhatósága kb. 30%-os volt. A fő hibaforrások: az apertúránál a sugár (r) megállapítása, a szűrkeszűrők kalibrálása és kis ingadozások a bemenő teljesítményben. Az így kapott értékeket korrigáltuk a kristály veszteségeivel: kalorimetrikus mérésekből meghatározott abszorpció $\sim 0.04 \text{ cm}^{-1}$ $\lambda=600$ nm és $\lambda=650$ nm-nél is, a kristály hátsó falán a reflexió ~ 0.17 .

(A kristályt 90° -kal elforgatva megállapítottuk, hogy a fluoreszcenciából származó zaj kisebb 1.3% -nál.)

Az AgGaS_2 általunk SPE segítségével megmért nemlineáris együtthatója:

$$d_{36} = 31 \pm 5 \text{ pm/V} \quad .$$

A (41) egyenlet alapján a Miller-féle delta:

$$\delta_{36} = 0.23 \pm 0.04 \text{ pm/V} \quad .$$

A 4. táblázat tartalmaz egy összehasonlítást az általunk mért értékről és a korábban mért értékekről. A korábbi méréseknél sok esetben nem is direktben történt a d_{36} mérése,

hanem más anyagok nemlineáris együtthatóihoz való viszonyítással (GaAs, SiO₂). Ez esetben előfordulhat, hogy ha a viszonyítási alapul szolgáló anyag nemlineáris együtthatóját pontosítják, akkor meg kell változtatni a AgGaS₂-ét is. (A táblázatnál figyelembe kell venni, hogy SHG esetén $\lambda_s = \lambda_i$; ez a bemenő nyaláb, és λ_p a keltett SHG.)

4. táblázat: Publikált eredmények az AgGaS₂ nemlineáris együtthatójáról (d_{36})

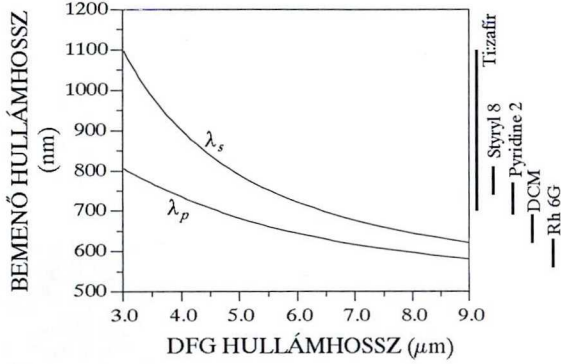
λ_p (n_p)	λ_s (n_s)	λ_i (n_i)	d_{36} (pm/V)	δ_{36} (pm/V)	módszer	hiv.
5.30 μ m (2.341)	10.6 μ m (2.347)	10.6 μ m (2.347)	57 $\pm$ 17	0.62 $\pm$ 0.19	SHG (relatív a GaAs-hoz)	[43]
5.30 μ m (2.341)	10.6 μ m (2.346)	10.6 μ m (2.346)	18 $\pm$ 6	0.20 $\pm$ 0.07	SHG (relatív a GaAs-hoz)	[41]
530 nm (2.606)	1.06 μ m (2.451)	1.06 μ m (2.451)	34 $\pm$ 5	0.23 $\pm$ 0.04	SHG (relatív a SiO ₂ -höz)	[44]
5.30 μ m (2.341)	10.6 μ m (2.347)	10.6 μ m (2.347)	20 $\pm$ 4	0.22 $\pm$ 0.05	SHG (relatív a SiO ₂ -höz)	[44]
1.06 μ m (2.378)	1.30 μ m (2.436)	6.0 μ m (2.337)	14	0.13	DFG	[42]
880 nm (2.412)	1.06 μ m (2.451)	5.1 μ m (2.396)	9 $\pm$ 2	0.08 $\pm$ 0.02	DFG	[45]
600 nm (2.531)	650 nm (2.544)	7.8 μ m (2.377)	31 $\pm$ 5	0.23 $\pm$ 0.04	SPE	ez a munka

Az általunk mért érték jó egyezést mutat Boyd és társai [41] és Kupecek és társai [44] eredményével, de kb. kétszer nagyobb, mint amit Kato [42] , illetve Yodh és társai [45] mértek DFG-vel.

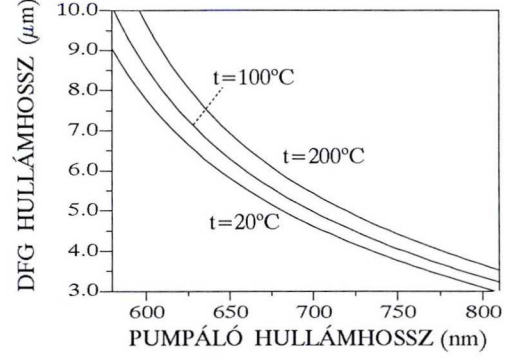
6.2 Különbségi frekvencia keltése AgGaS₂ kristályban I típusú, 90°-os fázisillesztéssel

6.2.1 Elméleti modellezés

A DFG fázisillesztési karakterisztikájának kiszámításához a [47] és [54] -ben megadott törésmutató adatokat, illetve Sellmeier-féle törésmutató konstansokat használtam fel.



34. ábra: Számított fázisillesztési karakterisztika az infravörös fény hullámhosszáinak függvényében AgGaS₂ kristályra. (A grafikon mellett fel van tüntetve néhány lézer hangolási tartománya.)



35. ábra: Számított fázisillesztési karakterisztika az AgGaS₂ kristály különböző hőmérséklet értékeinél.

A 34. ábrán az elérhető infravörös hullámhossz függvényében ábrázoltam a bemenő lézerek hullámhosszát I típusú 90°-os fázisillesztést feltételezve 20°C-os AgGaS₂ kristályra. Az ábrán feltüntettem a lehetséges bemenő lézerek hangolási tartományát is. A 35. ábrán három különböző kristályhőmérséklet mellett tüntettem fel az adott pumpáló lézerhez tartozó kimeneti (infravörös) hullámhosszat. A számítás alapján hőmérsékleti hangolással is lehet a DFG hullámhosszát változtatni.

A keltett infravörös teljesítmény kiszámítása a [33, 51, 55] alapján nem tűnt számunkra egyértelműnek. Ezért [51, 55] alapján újra kiszámoltuk 90°-os (walk-off nélküli) kollineáris fázisillesztésre.

A hullámegyenlet [51]:

$$\nabla^2 E - \mu \sigma \dot{E} - \mu \varepsilon \ddot{E} = \mu \ddot{\Pi} \quad , \quad (45)$$

ahol E az elektromos térerősség, Π a közegben keltett polarizáció, σ a közeg vezetőképessége, ε és μ pedig a közeg permittivitása és permeabilitása. Mivel az AgGaS₂ kristályban szeretnénk kiszámítani a keltett infravörös teljesítményt, ezért a következő feltevésekkel élünk: $\sigma \approx 0$; $\mu \approx \mu_0$, amiből következik $\varepsilon \approx n^2 \varepsilon_0$.

A (45) egyenletbe E -t a következő formában keressük:

$$E = \xi(x,y,z)e^{j(kz - \omega t)} \quad . \quad (46)$$

Ekkor:

$$\begin{aligned} \nabla^2 E &= \left(\frac{\partial^2 E}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 E}{\partial y^2} - k^2 E + 2jk \frac{\partial E}{\partial z} \right) e^{j(kz - \omega t)} \quad \left(\frac{\partial^2 E}{\partial z^2} \approx 0 \right) , \\ \dot{E} &= j\omega E \quad (\sigma \approx 0) , \\ \ddot{E} &= -\omega^2 E . \end{aligned} \quad (47)$$

és teljesül:

$$\mu \varepsilon \omega^2 = k^2 \quad . \quad (48)$$

Behelyettesítve a (45) egyenletbe:

$$\left(\frac{\partial^2 E}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 E}{\partial y^2} + 2jk \frac{\partial E}{\partial z} \right) e^{j(kz - \omega t)} = \mu_0 \ddot{\Pi} \quad . \quad (49)$$

Az általunk keresett polarizáció:

$$\Pi_i = \varepsilon_0 \chi_{psi} E_p E_s^* = 2\varepsilon_0 d_{psi} E_p E_s^* \quad (50)$$

alakú. Hengerszimmetriát feltételezve:

$$\begin{aligned} E_s &= \xi_s(r,z) e^{j(k_s z - \omega_s t)} , \\ E_p &= \xi_p(r,z) e^{j(k_p z - \omega_p t)} . \end{aligned} \quad (51)$$

Ekkor:

$$\Pi = 2\varepsilon_0 d \xi_s^*(r,z) \xi_p(r,z) e^{j[(k_p - k_s)z - (\omega_p - \omega_s)t]} \quad . \quad (52)$$

Felhasználva a (40) egyenletet (a fázisillesztést):

$$\Pi = 2\varepsilon_0 d \xi_s^*(r,z) \xi_p(r,z) e^{j(k_i z - \omega_i t)} \quad . \quad (53)$$

Ezt behelyettesítve a (49) egyenletbe:

$$\left(\frac{\partial^2 \xi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \xi}{\partial y^2} + 2jk_i \frac{\partial \xi}{\partial z} \right) = -2\omega_i^2 d \varepsilon_0 \mu_0 \xi_s^*(r,z) \xi_p(r,z) \quad , \quad (54)$$

innen

$$\frac{\partial \xi}{\partial z} - \frac{j}{2k_i} \left(\frac{\partial^2 \xi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \xi}{\partial y^2} \right) = \frac{j\omega_i^2 d}{c^2 k_i} \xi_s^*(r,z) \xi_p(r,z) \quad . \quad (55)$$

Ha bevezetjük

$$\gamma = \frac{\omega_i^2 d}{c^2 k_i} = \frac{\omega_i d}{n_i c} \quad , \quad (56)$$

akkor

$$\frac{\partial \xi}{\partial z} - \frac{j}{2k_i} \left(\frac{\partial^2 \xi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \xi}{\partial y^2} \right) = j\gamma \xi_s^*(r,z) \xi_p(r,z) \quad . \quad (57)$$

Az (57) egyenlet megegyezik Chu és Broyer [55] (5) egyenletével.

Legyen a két bemenő lézer Gauss-nyaláb:

$$\begin{aligned} \xi_p &= \xi_{0p} \frac{1}{1+j\tau_p} \exp\left(-\frac{r^2}{w_{0p}^2(1+j\tau_p)}\right) \quad ; \quad \tau_p = \frac{2z}{k_p w_{0p}^2} \quad ; \\ \xi_s &= \xi_{0s} \frac{1}{1+j\tau_s} \exp\left(-\frac{r^2}{w_{0s}^2(1+j\tau_s)}\right) \quad ; \quad \tau_s = \frac{2z}{k_s w_{0s}^2} \quad . \end{aligned} \quad (58)$$

w_0 a lézer nyalábnyaka (beam waist).

Ilyen típusú nyaláb P teljesítménye:

$$P = \int_0^{\infty} \int_0^{2\pi} r I(r) d\varphi dr \quad , \quad (59)$$

ahol

$$I(r) = nc\epsilon_0 \frac{|\xi|^2}{2} \quad . \quad (60)$$

Azaz a teljesítmény:

$$P = \pi nc\epsilon_0 \int_0^{\infty} |\xi_0|^2 \frac{r}{1+\tau^2} \exp\left(-\frac{r^2}{w_0^2(1+\tau^2)}\right) dr \quad (61)$$

Ezt kiszámolva:

$$P = \frac{\pi nc\epsilon_0 w_0^2 |\xi_0|^2}{4} \quad , \quad (62)$$

s innen:

$$|\xi_0|^2 = \frac{4P}{\pi nc\epsilon_0 w_0^2} \quad . \quad (63)$$

Behelyettesítve az (57) egyenletbe az (58) egyenlettel megadott nyalábokat, és feltételezve, hogy $\tau_p = \tau_s = \tau$, kapjuk a következő hullámegyenletet:

$$\frac{\partial \xi}{\partial z} - \frac{j}{2k_i} \left(\frac{\partial^2 \xi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \xi}{\partial y^2} \right) = j\gamma \frac{\xi_{0s}^* \xi_{0p}}{1+\tau^2} \exp\left(\frac{-r^2}{w_{0p}^2(1+j\tau)} + \frac{-r^2}{w_{0s}^2(1-j\tau)}\right) \quad , \quad (64)$$

azaz

$$\frac{\partial \xi}{\partial z} - \frac{j}{2k_i} \left(\frac{\partial^2 \xi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \xi}{\partial y^2} \right) = j\gamma \frac{\xi_{0s}^* \xi_{0p}}{1+\tau^2} \exp\left(\frac{-r^2}{w_{0p}^2} \frac{\mu+1+j(\mu-1)\tau}{(1+\tau^2)}\right) \quad . \quad (65)$$

Chu és Broyer [55] a következő megoldást találta a fenti alakú egyenletre:

$$\xi_i = j \gamma \xi_{0s}^* \xi_{0p} \frac{b}{2} \int_{-\zeta}^{\frac{2z}{b}} \frac{e^{-\alpha r^2}}{\beta} d\tau' \quad , \quad (66)$$

ahol

$$\alpha = \frac{j(1-\mu)}{w_{0p}^2(\tau-\tau')} \left(-1 + \frac{1+\tau'^2}{1+j\frac{1+\mu}{1-\mu}(\tau-\tau')+\tau\tau'} \right) \quad , \quad (67)$$

$$\beta = 1 + j\frac{1+\mu}{1-\mu}(\tau-\tau') + \tau\tau' \quad , \quad (68)$$

$$\zeta = \frac{L}{b} \quad ; \quad b = k_s w_{0s}^2 = k_p w_{0p}^2 \quad . \quad (69)$$

Hosszadalmas számítással igazolható, hogy a (66) egyenlettel megadott ξ_i valóban megoldása a (65) egyenletnek.

A kimenő infravörös teljesítmény az (59) és (60) egyenletek alapján:

$$P = \pi n c \varepsilon_0 \int_0^\infty |\xi_i|^2 r dr \quad . \quad (70)$$

Behelyettesítve a (66) egyenlettel adott megoldást, a teljesítményre

$$P = A \int_0^\infty \left(\int_{-\zeta}^{\frac{2z}{b}} \frac{e^{-\alpha^* r^2}}{\beta^*} d\tau'' \right) \left(\int_{-\zeta}^{\frac{2z}{b}} \frac{e^{-\alpha r^2}}{\beta} d\tau' \right) r dr \quad (71)$$

alakú kifejezést kapunk, ahol

$$A = \pi n c \varepsilon_0 \gamma^2 |\xi_{0s}|^2 |\xi_{0p}|^2 \frac{b^2}{4} . \quad (72)$$

A (71) egyenletnél az integrálási sorrendek felcserélhetők:

$$P = A \int_{-\zeta}^{\frac{2z}{b}} \int_{-\zeta}^{\frac{2z}{b}} \left(\int_0^{\infty} \frac{e^{-(\alpha^* + \alpha)r^2}}{\beta^* \beta} r dr \right) d\tau' d\tau'' ; \quad (73)$$

a belső integrál könnyen kifejezhető:

$$P = A \int_{-\zeta}^{\frac{2z}{b}} \int_{-\zeta}^{\frac{2z}{b}} \frac{1}{2\beta^* \beta (\alpha^* + \alpha)} d\tau' d\tau'' . \quad (74)$$

α és β értékének behelyettesítésével a (74) egyenlet átalakítható a

$$P = A \frac{w_{0p}^2}{2} \int_{-\zeta}^{\frac{2z}{b}} \int_{-\zeta}^{\frac{2z}{b}} \frac{1}{2(1+\mu) \left(1 - \frac{j}{2} \left(\frac{1-\mu}{1+\mu} + \frac{1+\mu}{1-\mu} \right) (\tau' - \tau'') + \tau' \tau'' \right)} d\tau' d\tau'' . \quad (75)$$

formára.

A kristály teljes hosszán keletkezett infravörös teljesítmény kiszámításához az integrálást $z = L/2$ -ig kell végezni. Ekkor az integrálás felső határa is ζ lesz. A teljesítmény

$$P = A \frac{w_{0p}^2}{1+\mu} \zeta h(\mu, \zeta) \quad (76)$$

alakú lesz. A $h(\mu, \zeta)$ a fókuszálási függvény, melynek alakja hosszas átalakítások után:

$$h(\mu, \zeta) = \frac{1}{2\zeta} \int_0^\zeta \int_{-\zeta}^\zeta \frac{1 + \tau' \tau''}{(1 + \tau' \tau'')^2 + \frac{1}{4} \left(\frac{1-\mu}{1+\mu} + \frac{1+\mu}{1-\mu} \right)^2 (\tau' - \tau'')^2} d\tau' d\tau'' \quad . \quad (77)$$

A (76) egyenletbe behelyettesítve μ , ζ , A és ezen belül ξ_{0s} és ξ_{0p} (63) egyenlettel és γ (56) egyenlettel megadott értékét, megkapjuk a keltett infravörös teljesítményt:

$$P_i = \frac{(2\omega_i d)^2}{n_p n_s n_i c^3 \pi \epsilon_0} \frac{h(\mu, \zeta)}{\frac{1}{k_s} + \frac{1}{k_p}} L P_p P_s \quad . \quad (78)$$

A (78) egyenletet CGS egységekbe átszámolva, a teljesítmény

$$P_i = \frac{(16\pi \omega_i d)^2}{n_p n_s n_i c^3} \frac{h(\mu, \zeta)}{\frac{1}{k_s} + \frac{1}{k_p}} L P_p P_s \quad (79)$$

alakú lesz. Ez az eredmény megegyezik a Chu és Broyer [55] által közölt végképlettel.

Tartson $\zeta = L/b \rightarrow 0$ -hoz; ezt nevezik közeli zóna megoldásnak. Ez esetben $h(\mu, \xi) \rightarrow \xi$, s így az infravörös teljesítmény:

$$P_i = \frac{(2\omega_i d)^2}{n_p n_s n_i c^3 \pi \epsilon_0} \frac{L^2}{w_{0s}^2 + w_{0p}^2} P_p P_s \quad . \quad (80)$$

A (80) egyenlet CGS egységekben:

$$P_i = \frac{(16\pi \omega_i d)^2}{n_p n_s n_i c^3} \frac{L^2}{w_{0s}^2 + w_{0p}^2} P_p P_s \quad . \quad (81)$$

Ez utóbbi szerepel Pine [33] cikkében.

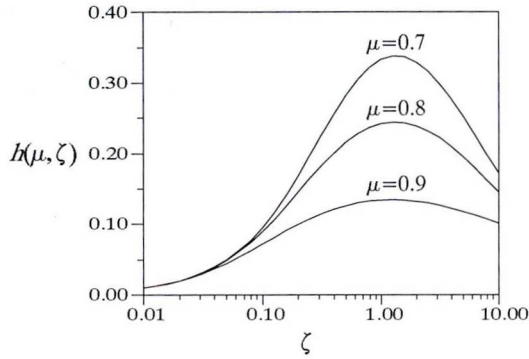
Kiszámítottuk a síkhullám-közelítést is; ekkor $w_0 \rightarrow \infty$, és a teljesítmények helyett intenzitások (I) szerepelnek (az átalakítás a (60) és (62) egyenletek alapján történik). Az infravörös intenzitás:

$$I_i = \frac{2(\omega_i d L)^2}{n_p n_s n_i c^3 \epsilon_0 (1+\mu)} I_s I_p \quad ; \quad (82)$$

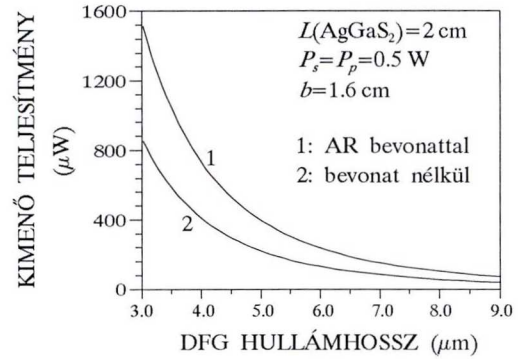
ugyanez CGS egységekben:

$$I_i = \frac{(16 \pi \omega_i d L)^2}{n_p n_s n_i c^3 (1+\mu)} \frac{\pi}{2} I_s I_p \quad . \quad (83)$$

A $h(\mu, \zeta)$ fókuszálási függvény menete a 36. ábrán látható. A függvénynek maximuma van $\zeta=1$ környékén. Az így beállított rendszer optimálisan fókuszált.



36. ábra: A fókuszálási függvény menete néhány $\mu=k_s/k_p$ esetén. $\zeta=L/b$; $b=k_s w_{0s}^2 = k_p w_{0p}^2$.

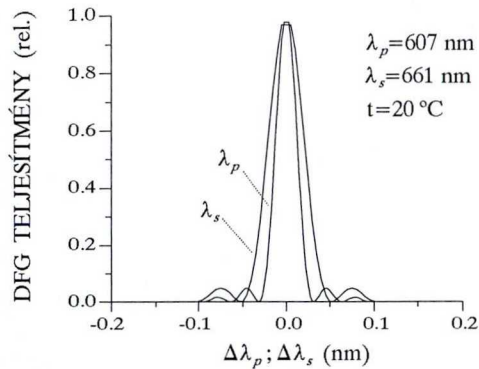


37. ábra: A keltett infravörös fény várható teljesítménye a keltett fény hullámhosszáinak függvényében. A felső görbe antireflexiós réteggel bevont kristályra vonatkozik, az alsó bevonat nélküli.

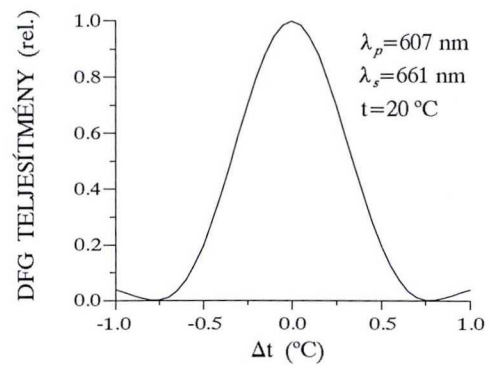
A 37. ábrán látható a várható infravörös teljesítmény $L=2$ cm hosszúságú AgGaS_2 kristályra és közel optimálisan fókuszált $P_s=P_p=0.5$ W teljesítményű bemenő nyalábokra. A felső görbe olyan kristályra lett kiszámolva, melynek első lapján a bemenő hullámhosszakra vonatkozó antireflexiós (AR) réteg van, a hátsó lapján pedig a kimenő hullámhosszakra vonatkozó AR réteg. Az alsó görbe AR bevonat nélküli kristályra. (Mindkét esetben 0.04 cm^{-1} abszorpcióval számoltam a teljes tartományon.)

Ha a fázisillesztés nem teljesül pontosan, akkor az (57) egyenlet jobb oldali kifejezése kiegészül egy $e^{j\Delta k z}$ szorzó-tényezővel. Ennek a hatásait is megvizsgáltam a nyalábok elhangolására (38. ábra), a kristály hőmérsékletének megváltoztatására (39. ábra) illetve a kristály nyalábokhoz képest történő elforgatására (Φ) (40. ábra) vonatkozóan. A

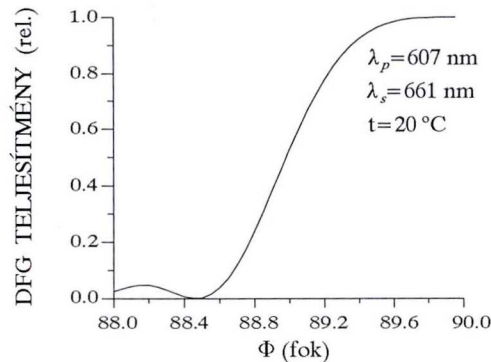
számításokhoz a [47] és [54] -ben megadott adatokat használtam.



38. ábra: A két bemenő nyaláb elhangolásának hatása a keltett infravörös teljesítményre. (Jobb oldalt felül a kezdeti értékek vannak.) λ_p jelöli, amikor λ_s rögzített és λ_p hangolódik; λ_s jelöli, amikor λ_p rögzített és λ_s hangolódik.



39. ábra: A kristály hőmérséklet-változásának hatása a keltett infravörös teljesítményre. (Jobb oldalt felül a kezdeti értékek vannak.)

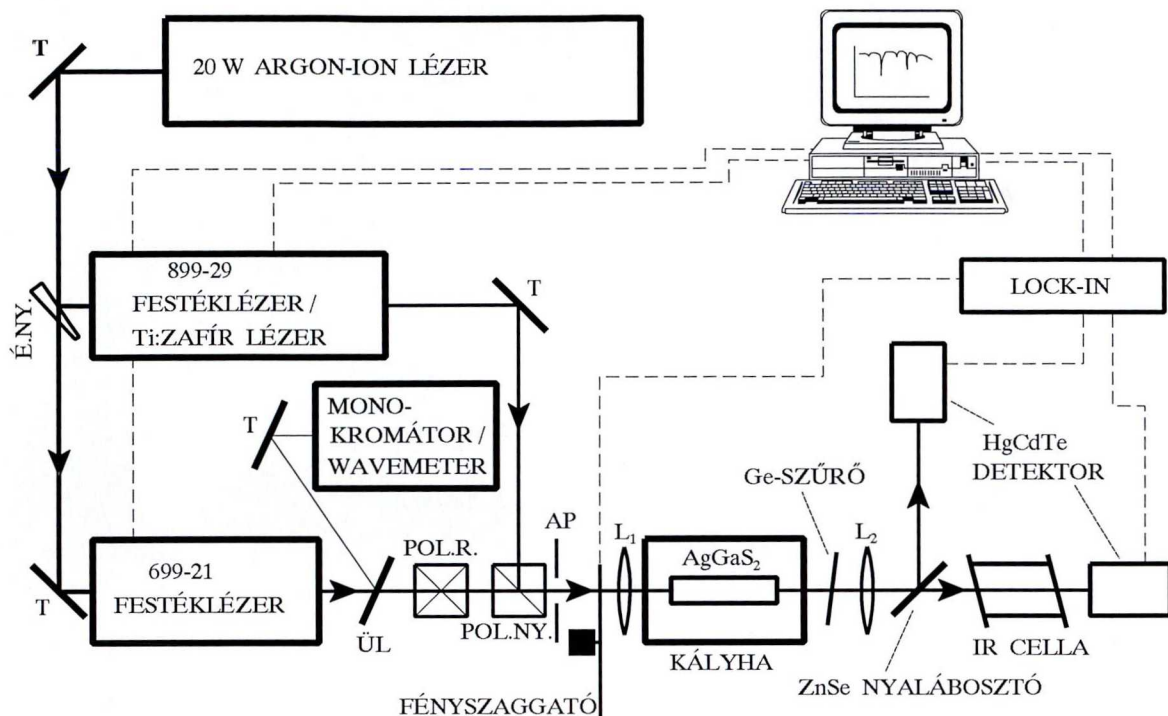


40. ábra: A kristály optikai tengelye elforgatásának hatása a keltett infravörös teljesítményre. Az alapállapotban a kristály optikai tengelye merőleges a bemenő nyalábokra ($\Phi=90^\circ$). (Jobb oldalt felül az egyéb kezdeti értékek vannak.)

6.2.2 Kísérleti elrendezés és eredmények

A kísérleti elrendezés (41. ábra) alapja ugyanaz volt, mint a nemlineáris együtttható mérésénél. Egy Argon-ion lézer pumpált egy Coherent 899-29 ringlézert, ami először rodamin 6G festékkel, majd később Ti:zafír kristállyal működött az 570 nm - 630 nm, illetve a 700 nm - 825 nm tartományon; és egy Coherent 699-21 ringlézert, ami DCM Special festékkel működött a 622.5 nm - 690 nm tartományon. A 899-29 lézer beépített frekvenciamérővel rendelkezett és számítógéppel volt vezérelhető. A beépített frekvenciamérő abszolút pontossága kb. 200 MHz volt, amit I_2 abszorpciós vonalain

végzett mérésekkel ellenőriztünk. A lézer vezérlése ezenkívül megengedett maximálisan 30 GHz nagyságú 'letapogatást' (szkennelést) 0.5 MHz-es lépésekben.



41. ábra: Kísérleti elrendezés AgGaS_2 kristályban történő különbségi frekvencia keltéshez (DFG). A két ringlézert egy 20 W-os Argon-ion lézer pumpálta. A 899-29 lézer először rodamin 6G festékekkel, majd Ti:zafír kristállyal működött, a 699-21 lézer pedig DCM Special festékekkel. Mindkét lézer fénye vertikálisan polarizált. A DFG érdekében a 699-21 lézer fényének polarizációja 90° -kal el lett forgatva (POL.R.). A két lézer egyesítése egy polarizációs nyalábosztó kocka (POL.NY.) és egy apertúra (AP) segítségével történt. Ezután a fény szaggatva volt, és fókuszálva ($L_1 : f=25 \text{ cm}$) az AgGaS_2 kristályra. A kristály kristálykályhában volt elhelyezve, részben, hogy lehessen hőmérsékleti hangolást is végzni a fázisillesztésen, részben, hogy egyenletes és stabil legyen a kristály belső hőmérsékleti eloszlása. A kristály után elhelyezett Ge-szűrő blokkolta a látható fényt és átengedte az infravöröset. Az infravörös fényt egy 10 cm fókuszu BaF_2 lencse (L_2) gyűjtötte össze. A nyalábot egy ZnSe nyalábosztó kétfelé osztotta: az egyik rész a mintát tartalmazó cellán (IR CELLA) keresztül jutott egy HgCdTe detektorra, a másik rész pedig referenciaként került egy ugyanolyan HgCdTe detektorra. A detektorok jelét egy lock-in erősítőn keresztül az a számítógép fogadta, amelyik a 899-29 lézert vezérelte. (É.NY.=ékes nyalábosztó ; T=tükör ; ÜL=üveglemez)

A 699-21 lézer frekvenciáját először monokromátorral, majd később egy Michelson wavemeter-rel [56] határoztuk meg. Ez utóbbi abszolút pontossága kb. 500 MHz volt. A lézer hangolásáról egy külső léptetőmotor gondoskodott, melyet a 899-29 számítógépe vezérelt addig, amíg monokromátort használtunk; utána pedig a 699-21 vezérlésére beállítottunk egy másik számítógépet: ez olvasta le a Michelson wavemeter-t, és állította be a kívánt hullámhosszat a léptetőmotor segítségével.

A 699-21 lézer fényének polarizációja horizontálisra lett forgatva. A két lézer fényét egy polarizációs nyalábosztó kockával és egy apertúrával tettük kollinearissá. Utána a fényt megszaggtuk, és fókuszáltuk egy 25 cm fókuszu lencsével a kristálykályhában elhelyezett $2 \times 0.4 \times 0.4 \text{ cm}^3$ méretű AgGaS_2 kristályra. (Közel optimális a fókuszálás.) A kristály előlapján antireflexiós réteg volt a 600-900 nm-es tartományra, a hátsó lapján pedig a 3.8-9.1 μm -es tartományra. A kristály után a látható lézereket blokkoltuk egy Ge-szűrővel, ami átengedte az infravörös fényt. A fázisillesztési karakterisztikák kiméréséhez ezt az infravörös fényt egy HgCdTe detektorral mértük meg egy lock-in erősítőt felhasználva. (A detektor folyékony N_2 hűtést igényelt.) Infravörös spektroszkópiai mérésekhez a Ge-szűrő után a nyalábot egy ZnSe nyaláb-osztóval kétfelé osztottuk. Az egyik részt vezettük át a mintát tartalmazó cellán egy HgCdTe detektorba, a másik részt pedig referenciaként használva egy ugyanolyan HgCdTe detektorba. A lock-in erősítő mindkét detektor jelét a 899-29 lézert vezérlő számítógépbe juttatta. A program és az elektronika képes volt a letapogatást (szkennelést) összekötni az adatgyűjtéssel. A későbbiek folyamán a kristályt kicseréltük egy $L=4.5 \text{ cm}$ hosszúságú antireflexiós réteg nélküli kristályra, de a mérések zöme a 2 cm-es kristállyal történt.

Sok figyelmet fordítottunk az interferenciás és reflexiós hatásokra. Az Argon-ion lézer fényét ékes nyalábosztó osztotta meg. Lehetőség szerint minden elemet (polarizációs rotátor, polarizáció nyalábosztó kocka, AgGaS_2 kristály, L_1 lencse, Ge-szűrő) nagyon kicsit kifordítottunk az optikai tengelyből; épp csak annyira, hogy a reflexió ne essen az optikai tengelyre. A reflexiók ugyanis instabillá tették a pumpáló lézereket. A Ge-szűrő esetén a másik ok a kiforgatásra az volt, hogy elkerüljük azt, hogy a visszaverődő lézerek megégessek a kristály kimenetén az infravörös antireflexiós bevonatot, illetve ne legyen a kristályban a szükségesnél nagyobb abszorpció. Ezenfelül a bevonatos kristály esetén a bemenő összteljesítmény limitálva volt 300 mW-ban, hogy a bemenő nyalábok ne égessék meg a kimeneti infravörös antireflexiós bevonatot. A lézerek kb. 1-1 W folytonos teljesítményre voltak képesek, emiatt került beszerzésre egy hosszabb és bevonat nélküli kristály is. A kristálynak ugyanis jóval magasabb a roncsolási küszöbe, mint a bevonatnak, s így ki lehetett használni a lézerek teljesítményét. Ha a kristály hosszabb, akkor az optimális DFG-hez ($\zeta \approx 1$) elég a bemenő nyalábokat gyengébben fókuszálni, s így még kevésbe kell terhelni a kristályt.

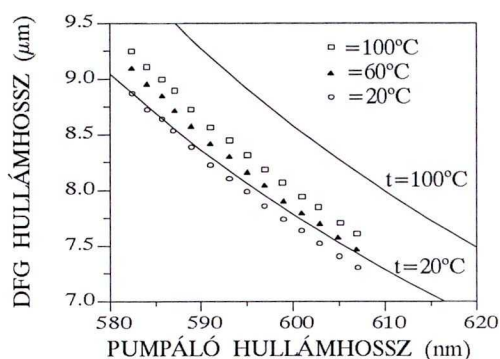
A bemenő lézerek kollinearitását, illetve az egyes lézerek nyalábprofilját az optikai

tengely mentén több helyen ellenőriztük nagyfelbontású CCD-kamerával. A lézerek profilja kis mértékben eltért a TEM_{00} módustól, vertikális ellipszoidok voltak kb. 4:3 arányban.

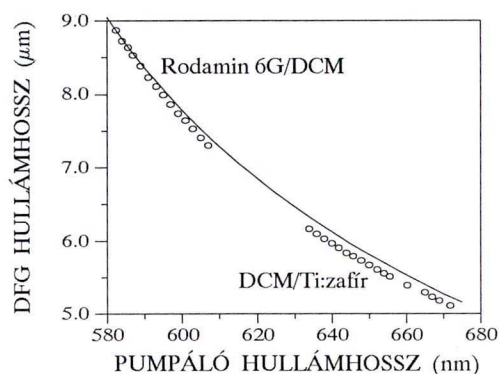
A kristály abszorpcióját a látható tartományon kalorimetrikus módszerrel mértük meg 600 és 650 nm-en, és $\sim 0.04 \text{ cm}^{-1}$ értékűnek találtuk. A 4 - 8.5 μm infravörös tartományon Fourier transzformációs infravörös spektrofotométerrel $< 0.04 \text{ cm}^{-1}$ értéket mértünk.

A kristálykályha (Chromatix Model 400) 450 °C-ig képes fűteni a kristályt ± 0.03 °C rövid idejű drifttel és ± 0.1 °C/nap stabilitással.

Méréseket végeztünk a fázisillesztési görbék, illetve a várható infravörös teljesítmény ellenőrzésére. A 42. ábrán a különböző hőmérsékletre tartozó elméleti fázisillesztési görbék és a ténylegesen mért adatok láthatók.



42. ábra: 20 °C és 100 °C-hoz tartozó elméleti fázisillesztési görbék és a mért értékek. A hőmérséklet hatása a fázisillesztésre az [54] alapján várható értéknél kisebb.



43. ábra: 20 °C-hoz tartozó elméleti fázisillesztési görbe és a kétféle lézerrendszerrel mért értékek. Az egyik esetben a Rodamin 6G lézer a pumpáló, a DCM lézer a szignál, a másik esetben a DCM lézer a pumpáló és a Ti:zafír lézer a szignál.

Jól látható, hogy az [54] alapján kiszámítottnál sokkal kisebb a hőmérséklet hatása. 600 nm pumpáló hullámhossznál az [54] alapján kiszámított $\sim 1.5 \text{ cm}^{-1} \text{ °C}^{-1}$ helyett az általunk mért értékekből $\sim 0.65 \text{ cm}^{-1} \text{ °C}^{-1}$ következik, ami több, mint egy nagyságrenddel kisebb, mint a LiNbO_3 kristályra ($\sim 9.5 \text{ cm}^{-1} \text{ °C}^{-1}$) [53].

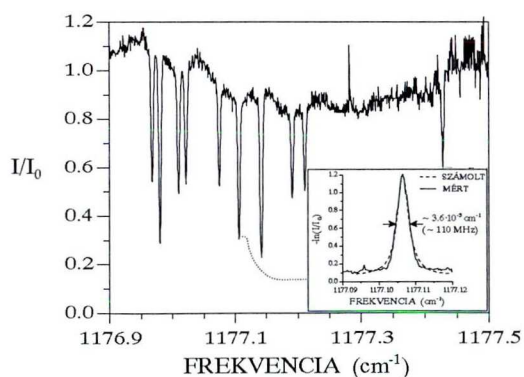
A 43. ábrán a szobahőmérsékletű (20 °C) elméleti fázisillesztési görbe és a mért értékek láthatók. A két méréssorozat Rodamin 6G (pumpáló) és DCM Special (szignál), illetve DCM Special (pumpáló) és Ti:zafír (szignál) lézerek felhasználásával készült. (A 899-29 ring festéklézer átalakítható volt Ti:zafír lézerré.) A fázisillesztési görbe esetén mutatkozó eltérés (ami csak az ábrázolt infravörös (DFG) hullámhossz esetén ilyen nagy)

oka lehet a [47] és [54] törésmutató konstansainak nem eléggé pontos értéke (bár a látható tartományon nagyon pontosan visszaadják az AgGaS_2 közvetlenül mért törésmutató értékeit); illetve nem lehet kizárni kis eltéréseket az egyes kristályok között sem.

Az antireflexiós bevonatok miatt a 2 cm-es AgGaS_2 kristály esetén a teljes bemenő teljesítmény 300 mW értékben limitálva volt. A 4.5 cm-es kristálnál ilyen típusú limitáció nem volt. A kristály roncsolási küszöbe optimális fókuszálás esetén magasabb volt, mint az elérhető teljes lézerteljesítmény (kb. 3 W a Ti:zafír lézerből és a DCM Special lézerből együttesen kb. 100 μm sugárra lefókuszálva: $\sim 10 \text{ kW/cm}^2$). A 2 cm-es kristály esetén 150 mW - 150 mW bemenő teljesítmények esetén 0.5 -1.0 μW körüli infravörös teljesítményeket mértünk a hangolási tartomány csaknem teljes hosszán. Ez a teljesítmény már felhasználható spektroszkópai célokra. A könnyebb összehasonlíthatóság miatt a 4.5 cm-es kristály esetén is végeztünk 150 mW - 150 mW bemenő teljesítmények esetén infravörös teljesítmény mérést: 15-20 μW körüli értékeket kaptunk. A konverzió hatásfoka kb. 1/6-a az elméletileg jósolt értéknek. Az eltérés egy részéért okolható a bemenő nyalábok TEM_{00} -tól eltérő profilja, de ez csak kb. az eltérés 15%-t teszi ki. A legnagyobb hibaforrás valószínűleg a d_{36} nemlineáris együttható értékének nagy szórása (4. táblázat : $d_{36} = 9 - 57 \text{ pm/V}$). Ha [45] értékeit vesszük a számításokhoz alapul, akkor jó egyezést találunk a mért és számított DFG teljesítmények között.

6.2.3 A DFG-vel keltett infravörös fény felhasználása spektroszkópai mérésekhez

A DFG-vel keltett infravörös fény spektroszkópai alkalmasságát egy 30 cm hosszú, a két végén BaF_2 ablakkal lezárt, két kivezető csővel ellátott üveg vákuumcella segítségével teszteltük (IR cella a 41. ábrán). A teszteléshez az ammónia (NH_3) molekula ν_2 sávja egy részét választottuk ki az 1177 cm^{-1} frekvencia ($\sim 8.5 \mu\text{m}$) környezetében. (A továbbiakban a spektroszkópiában szokásos hullámszám egységekben (cm^{-1}) megadott frekvenciát is használni fogom.)



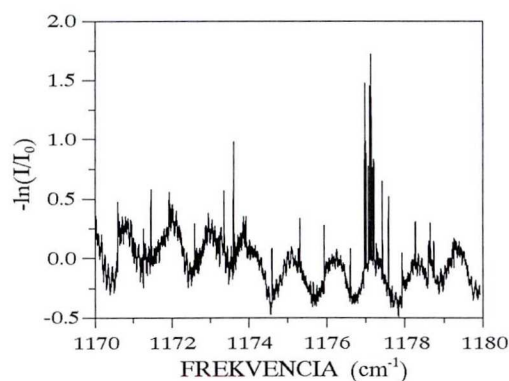
44. ábra: Nagyfelbontású abszorpciós spektrum az NH_3 ν_2 sávjáról az 1177 cm^{-1} környékén. A beszűrt kép egy kiválasztott vonal alakját mutatja összehasonlítva az elméletileg számolt vonalkiszéleléssel (Doppler-kiszélelés + nyomás okozta kiszélelés).

A választásunk azért esett erre a frekvenciára illetve erre az anyagra, mert az ammónia könnyen elérhető nagy tisztaságban, ezen a frekvencián egy jellegzetes vonalcsoporttal rendelkezik, míg a levegőnek ezen a részen nincs erős abszorpciós vonala.

Az üvegcsőből a levegőt kiszivattyúztuk, és a helyébe 0.5 , 1 , 2 , 5 torr (667.1 , 1334.2 , 2668.3 , 6670.8 Pa) nyomású NH_3 -at engedtünk. A 44. ábrán látható infravörös spektrum 1 torr nyomású ammóniával készült. A szignál (699-21:DCM lézer) 634,4 nm hullámhosszon működött. A pumpáló (899-29:Rodamin 6G lézer) pedig az 590.35 nm hullámhossztól szkennelt 30 GHz tartományt 10 MHz-es lépésekben (a lehetségesnél 20-szor kisebb felbontást használtunk). Felhasználtuk a hőmérsékleti fázisillesztést is: az AgGaS₂ kristály 63.5 °C-os volt. A mért vonalhelyek nagyon jól egyeznek az NH_3 ν_2 sávjának Fourier spektroszkópiából ismert vonalhelyeivel.

A beszúrt kép az egyik vonal alakját mutatja, amit összevetettünk az elméletileg jósolt Doppler- és nyomás okozta kiszélesedéssel. A mért görbe nagy pontossággal adta vissza a számolt ~ 110 MHz vonalszélességet.

A 45. ábrán látható spektrum 300 GHz tartományt ölel fel. A DCM lézer 634.4 nm hullámhosszon működött, a Rodamin 6G lézer pedig 15, egyenként 20 GHz hosszúságú szkennelést végzett 20 MHz-es lépésekkel. A folyamatos fázisillesztés fenntartása érdekében az AgGaS₂ kristály hőmérsékletét 79.5 °C-ról kiindulva 1.6 °C-onként csökkentettük az



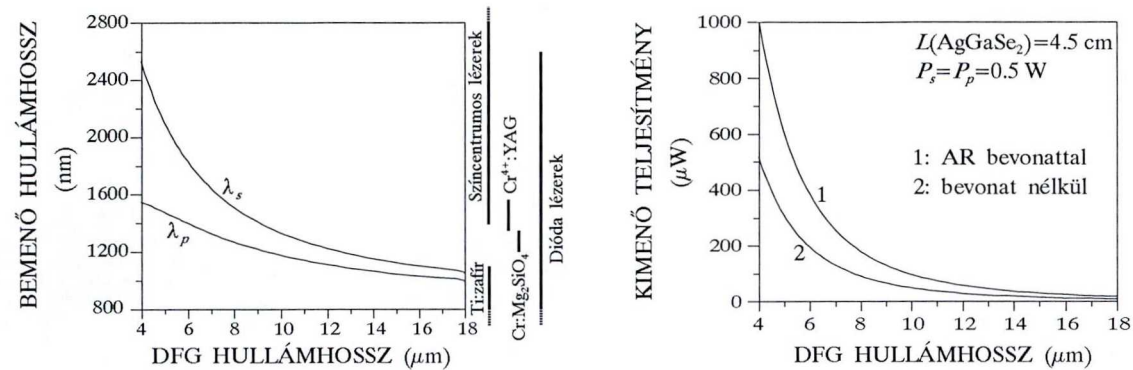
45. ábra: Áttekintő spektrum az NH_3 molekula ν_2 sávjáról az 1170-1180 cm^{-1} tartományon.

egyek szkennelések között. (Az ammónia nyomása 2 torr volt.) Az ábrán látható nagy periódusú hullámzások okozója az AgGaS₂ kristály plánpárhuzal véglapjai által létrehozott etalon-jelenség. Ez a jelenség ékes véglapú kristállyal nem jön létre.

A berendezést a későbbiekben továbbfejlesztették. A teszteléshez használt vákuumcella ki lett cserélve egy 1 m hosszúságú vákuumkamrával, melyet az infravörös fény 50-szer jár körbe. A kamrába oldalról nagy teljesítményű excimer lézernyaláb lép be, és kelt szabad gyököket a bent lévő molekulákból. A 899-29 lézer hullámhossz szkennelése össze lett kapcsolva a jel időbeli lefutásának mérésével is.

6.3 Különbségi frekvencia keltése AgGaSe₂ kristályban

Az ezüst-gallium-szelenid kristály (AgGaSe₂) nagyon hasonló tulajdonságokkal bír, mint az ezüst-tiogallát (AgGaS₂). Optikailag átlátszó a 0.71-18 μm tartományon [48] és nagy nemlineáris együttthatóval rendelkezik ($d_{36}=33\text{ pm/V} \pm 10\%$) [49]. Kiszámoltam a kollineáris, I típusú 90°-os fázisillesztési karakterisztikáját (46.ábra) és a várható infravörös teljesítményt (47. ábra), felhasználva [57, 49] adatait.



46. ábra: Számított fázisillesztési karakterisztika az infravörös fény hullámhosszának függvényében AgGaSe₂ kristályra. (A grafikon mellett látható néhány szilárdtest lézer hangolási tartománya.)

47. ábra: A keltett infravörös fény várható teljesítménye a keltett fény hullámhosszának függvényében. A felső görbe antireflexiós réteggel bevont kristályra vonatkozik, az alsó bevonat nélkülire.

A teljesítmény kiszámolásánál 0.04 cm⁻¹ abszorpciót feltételeztem. A 46. ábrán feltüntettem néhány kereskedelmi forgalomban kapható szilárdtest lézer hangolási tartományát is. A forszterit (Cr⁴⁺:Mg₂SiO₄) [58], a Cr⁴⁺:YAG [59] és a színcentrumos lézerek csak alacsony hőmérsékleten működnek. A lézerek teljesítményét, hangolási tartományát és a pumpáló illetve szignál tartomány lefedését az 5. táblázat tartalmazza.

5.táblázat: AgGaSe₂-ben 90°-os fázisillesztéshez felhasználható szilárdtest lézerek főbb jellemzői

lézer	hangolási tartomány (nm)	teljesítmény (W)	%-os lefedése a pumpáló/szignál tartománynak
Ti:zafír	660-1100	3	40/13
Cr4+:Mg2SiO4	1200-1350	1.8	21/19
Cr4+:YAG	1350-1560	1	18/14
színcentrumos	1400-3500	0.1	14/36
dióda (erősítővel)	630-2600	3	100/100

Különösen vonzónak tűnnek a keskeny sáv szélességű, folytonosan hangolható, teljesítmény erősített lézergyűzők [60-62]. A diódalézerek nagyon gyors ütemben fejlődnek működési hullámhossz, teljesítmény, sáv szélesség és hangolhatóság tekintetében, a felhasználásuk pedig a nemlineáris optikában is igen sokrétű [63-67].

A dióda lézerekkel az AgGaSe_2 teljes hangolási tartomány lefedhető. A megfelelő külső rezonátorokkal, optikai visszacsatolásokkal, teljesítmény erősítőkkel, elektronikus szervo berendezésekkel viszonylag könnyen kezelhető, nagy megbízhatóságú rendszert lehet elérni. Így van lehetőség egy csak szilárdtestekre épülő, kompakt, hordozható, akár környezetvédelmi mérésekre is felhasználható, nagyfelbontású infravörös lézerspektrométer megépítésére.

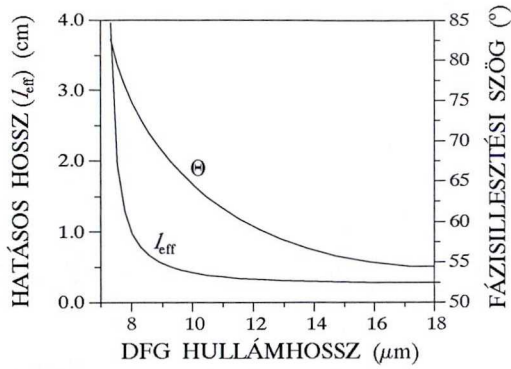
Másik lehetőségként felmerül a DFG tartomány előállítására a kristály forgatása (a fázisillesztési szög hangolása) és az egyik lézer hangolása, miközben a másik lézer fix frekvenciájú. A hangolható lézer lehet dióda lézer. Néhány szóba jöhető fix frekvenciájú csak szilárdtest (all-solid-state) lézert és a hangolási adatokat a 6. táblázat tartalmazza kollineáris bemenő nyálábok esetére. A Nd:YAG lézer az elterjedt 1064 nm hullámhosszán nem felel meg a célnak, de a kevésbé ismert 1.32 μm -en nagyon jól alkalmazható.

6. táblázat: Lézerek és elérhető DFG tartományok I típusú kritikus (szög-hangolású) fázisillesztéshez

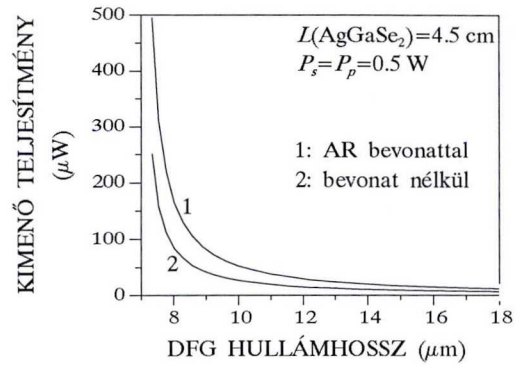
lézer	hullámhossz (μm)	működése a DFG-ben	DFG tart. (μm)	dióda tart. (μm)	szög tart. ($^\circ$)
Nd:YAG	1.32	szignál	10.3-18	1.17-1.23	84.7-57.7
		pumpáló	7.32-18	1.61-1.42	82.6-54.5
Tm:YAG	2.01	szignál	5.33-18	1.46-1.81	83.4-47.8
		pumpáló	8.86-18	2.60-2.26	45.7-47.3
Tm,Ho:YAG	2.09	szignál	5.07-18	1.48-1.87	83.7-47.3
		pumpáló	10.6-18	2.60-2.36	43.9-47.5
Er:YAG	2.94	szignál	3.41-18	1.58-2.53	85.8-48.3

Az Er:YAG lézer kollineáris nyálábok esetén nem tud pumpálóként működni.

A 48. ábrán példaként megadom kollineáris nyalábok esetére a fázisillesztési szöget a DFG hullámhosszának függvényében. Fix pumpáló forrásként Nd:YAG lézert tételezek fel 1.32 μm hullámhosszal, szignálként pedig hangolható dióda lézert.



48. ábra: Fázisillesztési szög (Θ) és hatásos hossz (l_{eff}) I típusú kritikus fázisillesztésre kollineáris Nd:YAG (1.32 μm) és dióda lézerek (1.61-1.42 μm) esetén a DFG hullámhossz függvényében AgGaSe₂ kristályban.



49. ábra: DFG teljesítmény hullámhossz függése I típusú kritikus fázisillesztésnél $L = 45$ mm hosszú AgGaSe₂ kristályban Nd:YAG (1.32 μm ; 500 mW) és dióda lézerek (1.61-1.42 μm ; 500 mW) esetén optimális fókuszálásra. ($d_{36} = 33$ pm/V)

Nem 90°-os fázisillesztés esetén az extraordinárius nyalábnál a kettőtörés miatt a fázis és az energia terjedési iránya nem egyezik meg (Poynting vector walk-off [51]). Emiatt a két bemenő nyaláb csak egy hatásos hosszig ($l_{\text{eff}} = \text{effective length}$) fog átfedni [51]. A teljesítmény számolásához a (78) egyenletben a $h(\mu, \zeta)$ függvény helyett a [51]

$$h_M(B) = \frac{h_M(0)}{1 + \frac{4B^2}{\pi} h_M(0)} \quad (84)$$

függvény kell használni, ahol $h_M(0) = 1.068$,

$$B = \frac{1}{2} \varrho \sqrt{kL} \quad (85)$$

a kettőtörési paraméter. (ϱ a kettőtörés szöge, k a hullámszám, L a kristály hossza.) A hatásos hossz (l_{eff}) [51]:

$$l_{\text{eff}} = \frac{\pi}{k \varrho^2 h_M(0)} \quad (86)$$

s így a (84) egyenlet átírható a

$$h_M(B) = \frac{h_M(0)}{1 + L/l_{\text{eff}}} \quad (87)$$

alakra. A (78) és (87) egyenleteket felhasználva kiszámítottam az $L = 45$ mm hosszúságú AgGaSe_2 kristályban szög-hangolással (I típusú kritikus fázisillesztéssel) keltett DFG teljesítményt 0.5 - 0.5 W bemenő lézer teljesítményekkel és 0.04 cm^{-1} abszorpcióval számolva antireflexiós réteggel bevont illetve réteg nélküli kristályra a 48. ábra bemenő lézereit használva (49. ábra).

Ezek alapján lehetséges I típusú kritikus fázisillesztéssel is létrehozni csak szilárdtest alapú kompakt építésű infravörös lézerspektrométert, ahol csak az egyik bemenő lézert kell hangolni.

Egy ilyen rendszer kiválóan alkalmazható lenne pl. légszennyezési mérésekre.

7. Összefoglalás

Nagy pontossággal kimértem rövid impulzus prizma által létrehozott impulzusfront-dőlését (12-13 ps időtartományon 30 fs pontossággal), és azt az elméletileg [3, 9] megjósolt értékkel megegyezőnek találtam.

Megvizsgáltam a femtoszekundumos impulzusok helyettesíthetőségének lehetőségét egyes jelenségekre vonatkozóan, és azt találtam, hogy nagyon sok optikai jelenség esetén a femtoszekundumos impulzusok viselkedését jól lehet megjósolni, ha közönséges fehér fényt használunk helyettük. Interferenciás jelenségek tekintetében a femtoszekundumos impulzusok helyettesíthetők nagyobb időtartamú, de megfelelően rövid koherenciahosszú impulzusokkal.

Megvizsgáltam egy döntött impulzusfrontú femtoszekundumos impulzus áthaladását résen. A jelenséget a szélihullám-elmélet alapján modelleztem, a Fraunhofer-féle elmélet alapján kiszámoltam, és az impulzusokat fehér fénnel helyettesítve, a jelenséget kimértem. Megvizsgáltam a szélihullám-elmélet és a Fraunhofer-féle elmélet alapján is egy döntött impulzusfrontú femtoszekundumos impulzus áthaladását kör alakú nyíláson. Az előzőek alapján megállapítottam, hogy ha döntött impulzusfrontú fénnel végzünk diffrakciós kísérletet résen vagy környíláson, akkor a diffrakciós képen megfigyelhető az impulzusfront dőlésével megegyező szétválás az elhajlási görbék láthatósági maximuma és az intenzitás maximuma között.

Kétféleképpen is magyarázatot adtam a Talbot csíkok kialakulására: a döntött impulzusfrontok modelljét, illetve a monokromatikus komponensek összegének modelljét felhasználva. A döntött impulzusfrontok modelljét felhasználó magyarázat saját eredményem, a monokromatikus komponensek összegét felhasználó magyarázat pedig egy továbbfejlesztett változat. Ezen kívül bemutattam egy eddig még nem közölt kísérletei elrendezést.

Meghatároztam az ezüst-tiogallát (AgGaS_2) kristály nemlineáris együtthatóját ($d_{36} = 31 \pm 5$ pm/V) és a frekvenciafüggetlen Miller-féle deltát ($\delta_{36} = 0.23 \pm 0.04$ pm/V). Elméletileg és kísérletileg is megvizsgáltam különbségi frekvencia keltését (DFG) AgGaS_2 kristályban: kiszámoltam és kimértem a 90° -os I típusú fázisillesztési görbéket több különböző hőmérsékleten és az elmélet és a gyakorlat között viszonylag jó egyezést találtam.

Kiszámoltam a DFG infravörös teljesítményét és összevetettem a mért értékekkel. Nagyon jónak tekinthető hatásfokkal, az elméletileg kiszámolt érték kb. 1/6-át mértem.

Összeállítottam egy DFG-n alapuló infravörös lézerspektrométert, amivel az NH_3 1177 cm^{-1} körüli ν_2 sávját pontosan kimértem (a berendezés feloldóképessége sokkal nagyobb volt, mint a vonalszélesség).

Megvizsgáltam egy csak szilárdtest alapú infravörös lézerspektrométer megépítésének lehetőségét ezüst-gallium-szelenid (AgGaSe_2) kristályban történő DFG-vel.

Summary

This work is divided into two major parts. In the first part I have examined many aspects of the propagation of ultrashort (femtosecond) pulses. In the second part I have studied a nonlinear optical process, the difference frequency generation (DFG; mixing) in two type of crystals.

In the first major part of this work I have examined whether an ultrashort pulse could be replaced in certain experimental conditions by a longer pulse or even white light. On the one hand if only the interference pattern generated by the ultrashort pulse is studied then the pulse can be replaced by a longer (e.g. nanosecond) pulse if it has an appropriately short coherence length, because the interference pattern is determined only by the coherence length.

On the other hand if the time resolution of a femtosecond pulse is not an issue then the pulse can be replaced by white light having appropriate spectral bandwidth. White light can be dealt with by two ways: either considering it as a superposition of randomly phased monochromatic waves, or as a series of randomly timed femtosecond pulses. The two descriptions are mathematically interchangeable.

I have checked experimentally the pulse front tilt caused by a prism given in Ref. [3, 9]. The experimental setup consisted of relatively simple and cheap elements, I have not used e.g. a streak camera. A simple N_2 -laser pumped tunable dye laser provided nanosecond pulses with short coherence length for a Michelson interferometer (Fig. 8). A prism as pulse front distorting element was placed in one arm of the interferometer. There was a movable mirror in the other arm. By moving this mirror the Michelson interferometer acted as a time-of-flight interferometer, and I could scan the distorted pulse by watching the interference stripes move on the screen. Although the arrangement was simple, the accuracy of the measurement was high, about 30 fs, over the full 12-13 ps range. All the measurements I made by prisms of different type at different wavelengths agreed precisely with the theoretical values.

I have modelled the propagation of a pulse with tilted pulse front through a slit by using the boundary wave theory. This theory divides the light into two parts: the

geometrical part (eq. 8) which is the direct illumination and the diffractive part (eq. 9) which originates from the boundaries of the diffracting obstacle. (Fig. 7 is a little help.) The final pattern is formed by the interference of these two parts. This theory suggested that the maximum of the visibility of the interference stripes could be found away from the maximum of the intensity by the angle of the pulse front tilt (γ) (Fig. 12). I have carried out calculations by using the Fraunhofer diffraction theory for a 6 fs pulse with pulse front tilt of 54 mrad and slitwidth of 0.2 mm (Fig. 13-14). This calculation agreed well with the assumption made by using the boundary wave theory. I have made calculations for the case of white light illumination, too (Fig. 15, $\gamma=18$ mrad).

I implemented an experiment to check these calculations (Fig. 16). The spatially coherent light propagated through a prism causing pulse front tilt, then the beam passed through a slit. Behind the slit the beam was examined by utilizing a telescope. I have detected the deviation of the maximum of the visibility of the interference stripes from the maximum of the intensity and found to be equal to the pulse front tilt of the beam. (Fig. 17-19 show some photos from these results.)

I have made calculations for the intensity distribution when a femtosecond pulse (or white light) with tilted pulse front passes through a circular aperture (Fig. 27-29). I have concluded that the pulse front tilt causes to shift only the maximum of the visibility of the interference pattern away from the maximum of the intensity by the angle γ , not the interference pattern itself.

Talbot's bands are known since 1837 (Ref. [20]). If half of a spectrum is covered by a thin plate then dark bands could be seen in the spectrum. The bands are seen only if the plate is in the "red half" of the spectrum, there are no bands if the plate is in the opposite place.

The spectrum always means angular dispersion. The angular dispersion always means pulse front tilt (Ref. [3]). This tilt always causes the blue side of the beam delay to the red side. If a plate covers the "red half" of the beam, then that part suffers a delay. By using the appropriate delaying plate the two halves of the beam can temporally overlap. (There can be found a plane perpendicular to the translation of the pulse at a given moment which intersects both of the half pulses.) In this case Talbot's bands can be seen.

Two types of experiment were carried out. The literature so far has written about what I call "direct-view setup" (Fig. 20) when one should view directly to the angularly dispersed beam. I have made a "screen-view setup" (Fig. 21): a perfect spectrum is formed on a screen and this spectrum is viewed through a half-covered aperture. Talbot's bands can be seen in this setup, too, though this setup has never been published before. Fig. 22 shows a CCD camera shot in the "screen-view setup". I have also made calculations for different delays for white light (Fig. 23) and for an ultrashort pulse (Fig. 26).

In the second major part of this work I have examined the theoretical and practical possibilities of new, tunable, continuous wave, narrow bandwidth, high power, mid-infrared light sources suitable for infrared spectroscopy by difference frequency generation (DFG or mixing) using two visible lasers to generate the infrared beam.

The mid-infrared (2-15 μm) portion of the spectrum is very important: virtually all of the main absorption lines of the molecules are in this optical region.

Two crystals are examined: AgGaS_2 (theoretically and experimentally) and AgGaSe_2 (theoretically). For an easy alignment and high power efficiency type I, 90° collinear phase matching is used. (The shortest wavelength is extraordinary beam in the crystal, the other two are ordinaries.)

I have measured the nonlinear coefficient (d_{36}) of the AgGaS_2 from spontaneous parametric emission (SPE) (experimental setup: Fig. 33) using visible lights. From my measurements: $d_{36} = 31 \pm 5 \text{ pm/V}$. From this value the Miller's delta of the crystal: $\delta_{36} = 0.23 \pm 0.04 \text{ pm/V}$. (Miller's delta does not depend on the frequency, it depends only on the quality of the materia.)

I have calculated the theoretical tuning curves for DFG by using the refractive index data given in Ref. [47, 54] (Fig. 34-35) and the expected infrared power (Fig. 37). I have also calculated the effect of wavelength misalignment (Fig. 38), temperature shift (Fig. 39) and rotation of the crystal (Fig. 40).

Fig. 41 shows the experimental setup for DFG measurements. (The temperature of the crystal was controlled by an oven.) I have made experiments to check the tuning curves (Fig. 42-43) and found good agreement at room temperature and about 1/3 of the theoretically predicted temperature dependence. The experimental tuning curve covered the 5-9 μm infrared region by only exchanging one of the mixing visible lasers.

A well-known absorption band of NH_3 at 1177 cm^{-1} ($\sim 8.5 \mu\text{m}$) was chosen for testing the spectroscopic performance of the system. The system aquired a very precise spectrum (Fig. 44-45) proving the usefulness of a DFG based infrared spectrometer.

AgGaSe_2 was investigated as an other promising crystal for a DFG based all-solid-state infrared monitoring system. Such a system could be efficiently used for environmental monitoring of the air.

I have examined the type I, 90° collinear phase matching and output power characteristic of AgGaSe_2 (Fig. 46-47) and the possibility of covering the pumping regions by all-solid-state lasers.

I have also calculated the possibilities of angle tuning if one of the two input frequencies is fixed. A sample can be seen in Fig. 48 showing the necessary phase matching angle and the effective length (l_{eff}) in the crystal. Fig. 49 shows the expected infrared power for the appropriate values of Fig. 48.

Köszönetnyilvánítás

Ezúton mondok köszönetet Dr. Bor Zsolt akadémikusnak, a JATE Optikai és Kvantumelektronikai Tanszék vezetőjének a témaválasztásért és mindazért a figyelemért, segítségért, irányításért, jó tanácsért, amit egyetemi hallgató korom óta megkaptam tőle.

Köszönetet mondok Dr. Szabó Gábor egyetemi tanárnak, akitől sok jó tanácsot és segítséget kaptam pályakezdésemkor, és akihez azóta is bizalommal fordulhatok.

Köszönetemet fejezem ki Frank K. Tittel és Robert F. Curl professzoroknak, akik a Rice Egyetemen irányították a lépéseimet, valamint barátomnak, Patrick Canarelli-nek, akivel a dolgozat második részének eredményeit közösen értük el.

Köszönetet mondok az Optikai és Kvantumelektronikai Tanszék minden kedves dolgozójának, hiszen így vagy úgy mindenkivel kapcsolatba kerültem, és mindenkiről jó emlékem van. Közülük külön megemlíteném Horváth Zoltánt és Kovács Attilát, akiktől sokat tanultam a matematikai és programozási módszereket illetően.

Legfőképpen pedig szeretném köszönetemet kifejezni feleségemnek és gyermekeimnek azért a végtelen türelemért és szeretetért, melyet irántam tanúsítanak.

Az értekezés alapját képező közlemények

1. Zs. Benkő, Z. Gogolák, Zs. Bor and G. Szabó:
Pulse Front Distorsion Measurements in Prisms Measured by Time-of-Flight Interferometry
Experimentelle Technik der Physik, Vol. **39** (1991), No. 4/5, pp. 447–449
2. P. Canarelli, Z. Benko, R. Curl, F. K. Tittel
Measurement of Nonlinear Coefficient and Phase Matching Characteristics of AgGaS₂
IEEE J. Quant. Electron., Vol. **9** (1992), No. 1, pp. 52–55
3. P. Canarelli, Z. Benko, R. Curl, F. K. Tittel
A Continuous Wave Infrared Laser Spectrometer Based on Difference Frequency Generation in AgGaS₂ for High Resolution Spectroscopy
J. Opt. Soc. Am. B, Vol. **28** (1992), No. 2, pp. 197–202
4. Z. L. Horváth, Zs. Benkő, A. P. Kovács, H. A. Hazim, Zs. Bor:
Propagation of femtosecond pulses through lenses, gratings and slits
Optical Engineering, Vol. **32** (1993), No. 10, pp. 2491–2500
5. Ulrich Simon, Zsolt Benko, Markus W. Sigrist, Robert F. Curl, and Frank K. Tittel:
Design considerations of an infrared spectrometer based on difference-frequency generation in AgGaSe₂
Applied Optics, Vol. **32** (1993), No. 33, pp. 6650–6655

Irodalomjegyzék

- [1] M. Born, E. Wolf: **Principles of Optics**, 6th ed., *Pergamon Press*, Oxford, 1989
- [2] J. D. Jackson: **Classical Electrodynamics**, 2nd ed. *John Wiley & Sons*, New York, 1975
- [3] Zs. Bor, B. Rácz : "Group velocity dispersion in prisms and its application to pulse compression and travelling-wave excitation", *Opt. Comm.*, **(54)**, pp. 165-170, 1985
- [4] O. E. Martinez, J. P. Gordon, R. L. Fork: "Negative group-velocity dispersion using refraction", *J. Opt. Soc. Am. A*, **(1)**, pp. 1003-1006, 1984
- [5] N. H. Schiller, R. R. Alfano: "Picosecond characteristics of a spectrograph measured by a streak camera/video readout system", *Opt. Comm.*, **(35)**, pp. 451-454, 1980
- [6] Zs. Bor, B. Rácz, G. Szabó. M. Hilbert, H. A. Hazim: "Femtosecond pulse front tilt caused by angular dispersion", *Optical Eng.*, **(32)**, pp. 2501-2504, 1993
- [7] J. Hebling: "Spectral resolving power", *J. Opt. Soc. Am. A*, **(11)**, pp. 2900-2904, 1994
- [8] O. E. Martinez: "Pulse distortions in tilted pulse schemes for ultrashort pulses", *Opt. Comm.*, **(59)**, pp. 229-232, 1996
- [9] J. Hebling: "Derivation of the pulse front tilt caused by angular dispersion", *Opt. and Quant. Electr.*, **(28)**, pp. 1759-1763, 1996
- [10] Z. Bor: "Distortion of femtosecond laser pulses in lenses and lens systems", *Journal of Modern Optics*, **(35)**, pp. 1907-1918, 1988
- [11] Z. Bor, Z. Gogolák, G. Szabó: "Femtosecond-resolution pulse-front distortion measurement by time-of-flight interferometry", *Opt. Lett.*, **(14)**, pp. 862-864, 1989
- [12] Z. Bor, Z. L. Horváth: "Distortion of Femtosecond Pulse Fronts in Lenses", **Topics in Appl. Phys.**, **(70)**, ed. M. Stuke (*Springer, Berlin*), 1992
- [13] Zs. Bor, Z. L. Horváth: "Distortion of femtosecond pulses in lenses. Wave optical description", *Opt. Comm.*, **(94)**, pp. 249-258, 1992
- [14] M. Kempe, U. Stamm, B. Wilhelmi: "Spatial and temporal transformation of femtosecond laser pulses by lenses with annular aperture", *Opt. Comm.*, **(89)**, pp. 119-125, 1992
- [15] Th. Young, *Phil. Trans. Roy. Soc.*, **(92)**, pp. 26-, 1802

- [16] Fresnel
- [17] G. A. Maggi, *Annali di Matem.* (2), (16), pp. 21-, 1888
- [18] A. Rubinowicz, *Ann. d. Physik* (4), (53), pp. 257-, 1917
- [19] K. Miyamoto, E. Wolf: "Generalization of the Maggi-Rubinowicz Theory of the Boundary Diffraction Wave - Part I", *J. Opt. Soc. Am.*, (52), pp. 615-625, 1962 ;
K. Miyamoto, E. Wolf: "Generalization of the Maggi-Rubinowicz Theory of the Boundary Diffraction Wave - Part II", *J. Opt. Soc. Am.*, (52), pp. 626-637, 1962
- [20] H. F. Talbot: "An Experiment on the Interference of Light", *Phil. Mag.*, (10), pp. 364 (1837)
- [21] D. Brewster: "On a new Property of Light", *Brit. Ass. Rep. Notice and abstracts*, (12), 1837
- [22] G. B. Airy: "The Bakerian Lecture. – On the Theoretical Explanation of an apparent new Polarity in Light.", *Phil. Trans.*, (130), pp. 225–244, 1840
- [23] G. B. Airy: "Supplement to a Paper 'On the Theoretical Explanation of an apparent new Polarity in Light.' ", *Phil. Trans.*, (130), pp. 1–10, 1840
- [24] Lord Rayleigh, *Encyclopedia Britannica*, pp. 123–127, 1888
- [25] Arthur Schuster: "A Simple Explanation of Talbot's Bands.", *Philosophical Magazine and Journal of Science*, (6), pp. 1–8, 1904
- [26] James Walker: "A Note on Talbot's Lines.", *Philosophical Magazine and Journal of Science*, (6), pp. 531–534, 1906
- [27] F. B. Pidduck: "Talbot's Bands", *J. Opt. Soc. Am.*, (37), pp. 55–58, 1947
- [28] M. Parker Givens: "Talbot's bands", *Am. J. Phys.*, (61), pp. 601–605, 1993
- [29] I. H. Malitson: "Interspecimen Comparison of the Refractive Index of Fused Silica", *J. Opt. Soc. Am.*, (55), pp. 1205-1209, 1965
- [30] Schott Catalogue
- [31] L. F. Mollenauer: "Color center lasers", **Tunable Lasers**, ed. L. F. Mollenauer and J. C. White (Springer-Verlag, New York), 1987
- [32] S. C. Hsu, R. H. Schwendeman, G. Magerl: "Infrared microwave sideband laser spectroscopy in the CO laser region", *IEEE J. Quantum Electron.*, (24), pp. 2294-2301, 1988

- [33] A. S. Pine: "Doppler-limited molecular spectroscopy by difference-frequency mixing", *J. Opt. Soc. Am.*, (64), pp. 1683-1690, 1974
- [34] M. G. Bawendi, B. D. Reh fuss, T. Oka: "Laboratory observation of hot bands of H_3^+ ", *J. Chem. Phys.*, (93), pp. 6200-6205, 1990 ; L. W. Xu, C. Gabrys, T. Oka: "Observation of the $2\nu_2(I=2) \leftarrow$ overtone band of H_3^+ ", *J. Chem. Phys.*, (93), pp. 6210-6215, 1990
- [35] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, G. Weinreich: "Generation of Optical Harmonics", *Phys. Rev. Lett.*, (7), pp. 118-119, 1961
- [36] Y. R. Shen: **The Principles of Nonlinear Optics**, *John Wiley & Sons*, New York, 1984
- [37] A. Nussbaum, R. A. Phillips: **Modern optika mérnököknek és kutatóknak**, *Műszaki Könyvkiadó*, 1982
- [38] R. C. Miller: "Optical second harmonic generation in piezoelectric crystals", *Appl. Phys. Lett.*, (5), pp. 17-19, 1964
- [39] R. S. Feigelson, R. K. Route: "Recent developements in growth of chalcopyrite crystals for nonlinear infrared applications", *Opt. Eng.*, (26), pp. 113-119, 1987
- [40] G. Catella, **Cleveland Crystal Inc.**, Cleveland, Ohio (személyes beszélgetés)
- [41] G. D. Boyd, H. Kasper, J. H. McFee: "Linear and nonlinear optical properties of $AgGaS_2$, $CuGaS_2$, and $CuInS_2$, and theory of the wedge technique for the measurement of nonlinear coefficients", *IEEE J. Quantum Electron.*, (QE-7), pp. 563-573, 1971
- [42] K. Kato: "High-power difference frequency generation at 5-11 μm in $AgGaS_2$ ", *IEEE J. Quantum Electron.*, (QE-20), pp. 698-699, 1984
- [43] D. S. Chemla, P. J. Kupecek, D. S. Robertson, R. C. Smith: "Silver thiogallate, a new material with potential for infrared devices", *Opt. Comm.*, (3), pp. 29-31, 1971
- [44] P. J. Kupecek, C. A. Schwartz, D. S. Chemla: "Silver thiogallate ($AgGaS_2$). Part I: Nonlinear optical properties", *IEEE J. Quantum Electron.*, (QE-10), pp. 540-545, 1974
- [45] A. G. Yodh, H. W. K. Tom, G. D. Aumiller, R. S. Miranda: "Generation of tunable mid-infrared picosecond pulses at 76 MHz", *J. Opt. Soc. Am. B*, (8), pp. 1663-1666, 1991

- [46] G. C. Bahr, S. Das, D. K. Ghosh, L. K. Samanta: "Phase matching of infrared nonlinear laser devices using AgGaS_2 ", *IEEE J. Quantum Electron.*, (24), pp. 1492-1494, 1988
- [47] Y. X. Fan, R. C. Eckhardt, R. L. Byer, R. K. Route, R. S. Feigelson: "AgGaS₂ infrared parametric oscillator", *Appl. Phys. Lett.*, (45), pp. 313-315, 1984
- [48] D. N. Nikogosyan: "Nonlinear optics crystals (review and summary of data)", *Sov. J. Quantum Electron.*, (7), pp. 1-13, 1977
- [49] G. D. Boyd, H. M. Kasper, J. H. McFee, F. G. Storz: "Linear and nonlinear optical properties of some ternary selenides", *IEEE J. Quantum Electron.*, (QE-8), pp. 900-908, 1972
- [50] B. C. Ziegler, K. L. Schepler: "Transmission and damage-threshold measurement in AgGaSe_2 at 2.1 μm ", *Appl. Opt.*, (30), pp. 5077-5080, 1991 ; H. Kildal, G. W. Iseler: "Laser-induced surface damage of infrared nonlinear materials", *Appl. Opt. Lett.*, (15), pp. 3062-3065, 1976
- [51] R. L. Byer, R. L. Herbst: "Parametric oscillation and mixing", **Nonlinear Infrared Generation**, ed. V. R. Shen (Springer-Verlag, New York), 1977
- [52] G. C. Bahr, L. K. Samanta, D. K. Ghosh, S. Das: "Tunable parametric ZnGeP_2 crystal oscillator", *Sov. J. Quantum Electron.*, (17), pp. 860-861, 1987
- [53] R. L. Byer, S. E. Harris: "Power and bandwidth of spontaneous parametric emission", *Phys. Rev.*, (168), pp. 1064-1068, 1968
- [54] G. C. Bahr, D. K. Ghosh, P. S. Ghosh, D. Schmitt: "Temperature effects in AgGaS_2 nonlinear devices", *Appl. Opt.*, (22), pp. 2492-2494, 1983
- [55] T.-B. Chu, M. Broyer: "Intracavity cw difference frequency generation by mixing three photons and using Gaussian laser beams", *J. Phys. (Paris)*, (46), pp. 523-533, 1985
- [56] J. L. Hall, S. A. Lee: "Interferometric real-time display of cw dye laser wavelength with sub-Doppler accuracy", *Appl. Phys. Lett.*, (29), pp. 367-369, 1976
- [57] H. Kildal, J. C. Mikkelsen: "The nonlinear optical coefficient, phasematching, and optical damage in the chalcopyrite AgGaSe_2 ", *Opt. Comm.*, (9), pp. 315-318, 1973

- [58] V. Petricevic, S. K. Gayen, R. R. Alfano: "Continuous-wave laser operation of chromium-doped forsterite", *Opt. Lett.*, **(14)**, pp. 612-614, 1989 ; T. J. Carrig, C. R. Pollock: "Tunable cw operation of a multiwatt forsterite laser", *Opt. Lett.*, **(16)**, pp. 1662-1664, 1992
- [59] A. V. Shestakov, N. I. Borodin, V. A. Zhitnyuk, A. G. Ohrimtchuk, V. P. Gapontev: "Tunable Cr⁴⁺:YAG lasers", in *Conference on Lasers and Electro-Optics* Vol. 10 of 1991 Technical Digest Series (Optical Society of America, Washington D.C., 1991), pp. 592-593
- [60] K. Nakagawa, M. Ohutsu, C. H. Shin, M. Kourogi, Y. Kikunaga: "Semiconductor lasers for highly coherent optical optical sweep generator", in *Proceedings of the Tenth International Conference on Laser Spectroscopy, Tenicols '91*, eds.: M. Ducloy, G. Camy (World Scientific, Singapore, 1992) pp. 353-358
- [61] C. E. Wieman, L. W. Hollberg: "Using diode lasers in atomic physics", *Rev. Sci. Instrum.*, **(62)**, pp. 1-20, 1991 ; W. Fuhrmann, W. Demtröder: "A continuously tunable GaAs diode laser with an external resonator", *Appl. Phys. B*, **(49)**, pp. 29-32, 1989
- [62] S. Q. Shang, H. J. Metcalf: "Narrow, high-power light from diode lasers", *Appl. Opt.*, **(28)**, pp. 1618-1623, 1989 ; J. R. Andrews, G. L. Schuster: "High-power and high-spatial-coherence broad-area power amplifier", *Opt. Lett.*, **(16)**, pp. 913-915, 1991 ; L. Goldberg, D. Mehuys, D. C. Hall: "3.3 W cw diffraction-limited broad area semiconductor amplifier", *Electron. Lett.*, **(28)**, pp. 1082-1083, 1992
- [63] G. J. Dixon, C. E. Tanner, C. E. Wieman: "432 nm source based on efficient second-harmonic generation of GaAlAs diode-laser radiation in a self-locking external resonant cavity", *Opt. Lett.*, **(14)**, pp. 731-733, 1989 ; W. J. Kozlovsky, W. Lenth, E. E. Latta, A. Moser, G. L. Bona: "Generation of 41 mW blue radiation by frequency doubling of a GaAlAs diode laser", *Appl. Phys. Lett.*, **(56)**, pp. 2291-2292, 1989
- [64] L. Goldberg, M. K. Chun, I. N. Duling, III, T. F. Carruthers: "Blue light generation by nonlinear mixing of Nd:YAG and GaAlAs laser emission in a KNbO₃ resonant cavity", *Appl. Phys. Lett.*, **(56)**, pp. 2071-2073, 1990

- [65] W. P. Risk, W. J. Kozlovsky: "Efficient generation of blue light by doubly resonant sum-frequency mixing in a monolithic KTP resonator", *Opt. Lett.*, **(17)**, pp. 707-709, 1992
- [66] K. Sugiyama, J. Yoda, T. Sakurai: "Generation of continuous-wave ultraviolet light by sum-frequency mixing of diode-laser and argon-ion-laser radiation in β -BaB₂O₄", *Opt. Lett.*, **(16)**, pp. 449-451, 1991
- [67] U. Simon, C. E. Miller, C. C. Bradley, R. G. Hulet, R. F. Curl, F. K. Tittel: "Difference-frequency generation in AgGaS₂ by using single-mode diode-laser pump sources", *Opt. Lett.*, **(18)**, pp. 1062-1064, 1993