

Министерство образования и науки Российской Федерации
Федеральное государственное бюджетное образовательное
учреждение
высшего профессионального образования
«Томский государственный университет систем управления и
радиоэлектроники»

Кафедра электронных приборов

ВВЕДЕНИЕ В НЕЛИНЕЙНУЮ ОПТИКУ

Учебное пособие
для студентов направлений подготовки
«Фотоника и оптоинформатика», «Электроника и наноэлектроника»,
«Электроника и микроэлектроника»

2012

Шандаров, Станислав Михайлович

Введение в нелинейную оптику : учебное пособие для студентов направлений подготовки «Фотоника и оптоинформатика», «Электроника и наноэлектроника», «Электроника и микроэлектроника» / С.М. Шандаров; Министерство образования и науки Российской Федерации, Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего профессионального образования Томский государственный университет систем управления и радиоэлектроники, Кафедра электронных приборов. - Томск : ТУСУР, 2012. – 41 с.

В пособии изложены физические основы нелинейной оптики – нелинейная поляризация среды, электромагнитная теория эффектов второго порядка, генерация волны суммарной частоты и второй гармоники, параметрическое усиление и генерация света, преобразование частоты при квазисинхронном взаимодействии.

Предназначено для студентов очной, очно-заочной и заочной форм, обучающихся по направлениям подготовки «Фотоника и оптоинформатика», «Электроника и наноэлектроника», «Электроника и микроэлектроника».

Министерство образования и науки Российской Федерации
Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение
высшего профессионального образования
«Томский государственный университет систем управления и
радиоэлектроники»

Кафедра электронных приборов

УТВЕРЖДАЮ
Зав.кафедрой ЭП
_____ С.М. Шандаров
«__» _____ 2012 г.

ВВЕДЕНИЕ В НЕЛИНЕЙНУЮ ОПТИКУ

Учебное пособие
для студентов направлений подготовки
«Фотоника и оптоинформатика», «Электроника и наноэлектроника»,
«Электроника и микроэлектроника»

Разработчик
докт. физ.-мат. наук, проф.
каф.ЭП
_____ С.М. Шандаров
«__» _____ 2012 г.

Содержание

Введение.....	5
1. Нелинейная поляризация среды при мгновенном отклике	5
2. Общий подход к описанию нелинейных явлений второго порядка	6
3. Электромагнитная теория нелинейных эффектов второго порядка	9
4. Генерация волны суммарной частоты при коллинеарном взаимодействии в ниобате лития.....	12
5. Генерация второй гармоники.....	15
6. Фазовый синхронизм при генерации второй гармоники.....	16
7. Генерация второй гармоники при наличии обратного воздействия.....	19
8. Параметрическое усиление	21
9. Параметрическая генерация.....	23
10. Преобразование частоты при квазисинхронном взаимодействии.....	25
11. Периодические доменные структуры в сегнетоэлектриках	27
12. Методы формирования индуцированных доменов и РДС	29
Список использованной литературы.....	39

Введение

Нелинейная оптика изучает распространение светового излучения в твердых телах, жидкостях и газах в условиях, когда оно изменяет оптические характеристики среды (показатель преломления, коэффициент поглощения), и приложения таких эффектов к преобразованию спектральных и пространственных характеристик светового поля. К эффектам нелинейной оптики относятся генерация гармоник светового излучения, параметрическое усиление и генерация света, АП-конверсия, оптическое выпрямление, вынужденное рассеяние света, двухфотонное и многофотонное поглощение, самофокусировка и самодефокусировка световых пучков, генерация и взаимодействие пространственных и временных солитонов, оптическая бистабильность, и многие другие явления, известные к настоящему времени.

В настоящем учебном пособии, ориентированном на студентов и аспирантов, излагаются сведения по основам нелинейной оптики, нелинейным материалам и структурам, опубликованные в некоторых учебных пособиях, монографиях, обзорных и оригинальных статьях [1-16]. Основное внимание уделяется таким вопросам, как нелинейная поляризация среды, электромагнитная теория эффектов второго порядка, генерация волны суммарной частоты и второй гармоники, параметрическое усиление и генерация света, преобразование частоты при квазисинхронном взаимодействии.

1. Нелинейная поляризация среды при мгновенном отклике

В реальной среде увеличение напряженности светового поля приводит к нелинейной связи с наведенной им электрической поляризацией. Такая нелинейная связь во многих случаях может быть представлена в виде разложения в ряд Тейлора:

$$P_i = \varepsilon_0 (\chi_{ij} E_j + 2d_{ijk} E_j E_k + 4\chi_{ijkl} E_j E_k E_l + \dots), \quad (1)$$

где P_i – компонента мгновенной поляризации; E_j – компонента электрической напряженности мгновенного светового поля; χ_{ij} – линейная восприимчивость среды; d_{ijk} и χ_{ijkl} – нелинейные оптические восприимчивости второго и третьего порядков соответственно. В выражении (1) предполагается, что система не имеет потерь и отклик

является мгновенным. В этом случае можно показать, что коэффициенты тензоров χ_{ij} , d_{ijk} и χ_{ijkl} симметричны по перестановкам любых индексов; например, $\chi_{ijkl} = \chi_{jilk}$.

Нелинейный оптический отклик, характеризуемый параметрами d_{ijk} и χ_{ijkl} , приводит к многочисленным нелинейным явлениям и интересным приложениям. Нелинейность второго порядка $P_i = 2\varepsilon_0 d_{ijk} E_j E_k$ ответственна за генерацию второй гармоники, суммарных и разностных частот, за параметрическое усиление и генерацию света. Член третьего порядка $P_i = 4\varepsilon_0 \chi_{ijkl} E_j E_k E_l$ связан с описанием различных явлений, таких как генерация третьей гармоники, комбинационное рассеяние света и рассеяние Мандельштама-Бриллюэна, самофокусировка и обращение волнового фронта.

2. Общий подход к описанию нелинейных явлений второго порядка

Рассмотрим связь монохроматических оптических полей с частотами ω_1 и ω_2 в нелинейной среде. Запишем их в виде

$$E_j^{\omega_1}(t) = \frac{1}{2} \dot{E}_j^{\omega_1} \exp(i\omega_1 t) + \text{к.с.}, \quad (2)$$

$$E_j^{\omega_2}(t) = \frac{1}{2} \dot{E}_j^{\omega_2} \exp(i\omega_2 t) + \text{к.с.} \quad (3)$$

В нелинейной среде эти поля наводят электрическую поляризацию на частотах $n\omega_1 + m\omega_2$, где n и m – целые числа. Представляя составляющие вектора поляризации на частоте $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$, как

$$P_i^{\omega_3}(t) = \frac{1}{2} \dot{P}_i^{\omega_3} \exp(i\omega_3 t) + \text{к.с.} \quad (4)$$

и ограничиваясь рассмотрением в (1) членов второго порядка, получаем для члена, соответствующего суммарной частоте, следующее выражение:

$$P_i^{\omega_1+\omega_2}(t) = \frac{1}{2} \varepsilon_0 d_{ijk} \dot{E}_j^{\omega_1} \dot{E}_k^{\omega_2} \exp[i(\omega_1 + \omega_2)t] + \frac{1}{2} \varepsilon_0 d_{ikj} \dot{E}_k^{\omega_2} \dot{E}_j^{\omega_1} \exp[i(\omega_2 + \omega_1)t] + \text{к.с.} \quad (5)$$

В среде с мгновенным откликом и в отсутствие потерь, где $d_{ikj} = d_{ijk}$, имеем

$$P_i^{\omega_1+\omega_2}(t) = \frac{1}{2} \dot{P}_i^{\omega_3} \exp(i\omega_3 t) + \text{к.с.} = \varepsilon_0 d_{ijk} \dot{E}_j^{\omega_1} \dot{E}_k^{\omega_2} \exp[i(\omega_1 + \omega_2)t] + \text{к.с.},$$

или, для комплексных амплитуд,

$$\dot{P}_i^{\omega_3} = 2\varepsilon_0 d_{ijk} \dot{E}_j^{\omega_1} \dot{E}_k^{\omega_2}. \quad (6)$$

Некоторая инерционность отклика, которой мы пренебрегаем, приводит к зависимости коэффициентов нелинейной восприимчивости от частот ω_1 и ω_2 . Кроме того, из полученных выше соотношений можно найти и электрическую поляризацию, создаваемую на разностной частоте $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$. С учетом частотной зависимости выразим комплексные амплитуды электрической поляризации на суммарной и разностной частоте в следующем виде:

$$\dot{P}_i^{\omega_3=\omega_1+\omega_2} = 2\varepsilon_0 d_{ijk}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2) \dot{E}_j^{\omega_1} \dot{E}_k^{\omega_2}, \quad (7)$$

$$\dot{P}_i^{\omega_3=\omega_1-\omega_2} = 2\varepsilon_0 d_{ijk}(-\omega_3, \omega_1, -\omega_2) \dot{E}_j^{\omega_1} \dot{E}_k^{\omega_2*}. \quad (8)$$

Отметим, что в общем случае

$$d_{ijk}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2) \neq d_{ijk}(-\omega_3, \omega_2, \omega_1),$$

поскольку два этих коэффициента относятся к случаям, когда поля электрической напряженности с частотами ω_1 и ω_2 имеют различные направления, так что результирующая поляризация $P_i^{\omega_3=\omega_1+\omega_2}$ для них не обязательно одна и та же. Однако имеет место следующее неравенство:

$$d_{ijk}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2) = d_{ikj}(-\omega_3, \omega_2, \omega_1). \quad (9)$$

Далее мы будем рассматривать главным образом прозрачные кристаллы с мгновенным откликом, когда коэффициенты d_{ijk} не зависят от частоты или от того, какую поляризацию мы анализируем - на суммарной или разностной частоте. Поэтому будем опускать ниже любые их обозначения, связанные с частотой.

Тензор нелинейной оптической восприимчивости третьего ранга с коэффициентами d_{ijk} отличен от нуля только в кристаллах без центра симметрии. Коэффициенты d_{ijk} измеряют чаще всего в экспериментах по генерации второй гармоники, когда $\omega_1 = \omega_2 = \omega$, а $\omega_3 = 2\omega$. В этом вырожденном случае имеем

$$\dot{P}_i^{2\omega} = \varepsilon_0 d_{ijk} \dot{E}_j^\omega \dot{E}_k^\omega, \quad (10)$$

то есть выражения (10) и (7) различаются множителем 2. Это легко показать из (1), где в квадратичный член нужно подставлять не суперпозицию полей с частотами ω_1 и ω_2 , а только поле с частотой ω .

Используя симметрию коэффициентов d_{ijk} по перестановке двух последних индексов, заменим их на один по известным правилам: $11 \leftrightarrow 1$; $22 \leftrightarrow 2$; $33 \leftrightarrow 3$; $23, 32 \leftrightarrow 4$; $13, 31 \leftrightarrow 5$ и $12, 21 \leftrightarrow 6$, представим коэффициенты тензора \mathbf{d} в виде матрицы 3×6 :

$$\mathbf{d} = \begin{vmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{vmatrix}. \quad (11)$$

Как известно, симметрия кристалла приводит к уменьшению независимых компонент тензоров, описывающих их физические свойства. В качестве примера приведем вид тензора \mathbf{d} в кубических кристаллах симметрии 23 и $\bar{4}3m$:

$$\mathbf{d} = \begin{vmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} \end{vmatrix}. \quad (12)$$

К кубическим нецентросимметричным кристаллам принадлежат GaAs, GaP, InAs, CdTe, и другие. На длине волны накачки 1,06 мкм в арсениде галлия описывающий генерацию второй гармоники коэффициент $d_{14} = 140$ пм/В.

Другим важным классом нелинейных материалов являются тригональные кристаллы симметрии $3m$, к которым относятся ниобат лития (LiNbO_3), танталат лития (LiTaO_3) и бета-борат бария (BBO , $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$). Для них тензор \mathbf{d} имеет следующий вид:

$$\mathbf{d} = \begin{vmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{vmatrix}. \quad (13)$$

Для ниобата лития на длине волны накачки 1,058 мкм описывающие генерацию второй гармоники коэффициенты имеют следующие значения: $d_{22} = 3,07$ пм/В; $d_{31} = 5,82$ пм/В; $d_{33} = 40,68$ пм/В.

Тетрагональные кристаллы класса симметрии $\bar{4}2m$, к которым принадлежат дигидрофосфат калия (KDP, KH_2PO_4), дидейтерофосфат калия (DKDP, $\text{KH}_{2-x}\text{D}_x\text{PO}_4$), дигидрофосфат аммония (ADP, $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$), фосфид цинка-германия (ZnGeP_2) и некоторые другие, имеют следующий вид тензора \mathbf{d} :

$$\mathbf{d} = \begin{vmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{36} \end{vmatrix}. \quad (14)$$

Используемый в широкоапертурных нелинейных устройствах кристалл KDP на длине волны накачки 1,058 мкм имеет значение коэффициентов $d_{36} = d_{14} = 0,47$ пм/В.

В кристаллах класса симметрии $6mm$, к которому принадлежат, в частности, селенид кадмия (CdSe), нитрид галлия (GaN), нитрид алюминия (AlN), тензор \mathbf{d} имеет вид

$$\mathbf{d} = \begin{vmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{vmatrix}. \quad (15)$$

3. Электромагнитная теория нелинейных эффектов второго порядка

Рассмотрим нелинейную поляризацию, возникающую в нелинейной среде при воздействии на нее двух плоских монохроматических световых волн

$$E_j^{\omega_1}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \dot{E}_j^{\omega_1} \exp[i(\omega_1 t - \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r})] + \text{к.с.}, \quad (16)$$

$$E_k^{\omega_2}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \dot{E}_k^{\omega_2} \exp[i(\omega_2 t - \mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r})] + \text{к.с.} \quad (17)$$

Ограничиваясь здесь рассмотрением эффектов второго порядка, найдем из соотношения (6) нелинейную поляризацию на суммарной и разностной частотах

$$P_i^{\omega_1+\omega_2}(t) = \varepsilon_0 d_{ijk} \dot{E}_j^{\omega_1} \dot{E}_k^{\omega_2} \exp\{i[(\omega_1 + \omega_2)t - (\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r}]\} + \text{к.с.}, \quad (18)$$

$$P_i^{\omega_1-\omega_2}(t) = \varepsilon_0 d_{ijk} \dot{E}_j^{\omega_1} \dot{E}_k^{\omega_2} \exp\{i[(\omega_1 - \omega_2)t - (\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r}]\} + \text{к.с.} \quad (19)$$

Наличие в среде нелинейной поляризации на суммарной и разностной частоте еще не означает, что на выходе данной среды мы получим световое поле с соответствующими характеристиками, имеющее заметную амплитуду. Рассмотрим уравнения Максвелла, которые справедливы и в этом случае, записывая их в виде

$$\text{rot } \mathbf{H} = \varepsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t}, \quad (20)$$

$$\text{rot } \mathbf{E} = -\mu_0 \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t}, \quad (21)$$

где вектор поляризации может быть представлен в виде суммы линейного и нелинейного членов:

$$\mathbf{P} = \varepsilon_0 \chi_{lin} \cdot \mathbf{E} + \mathbf{P}_{nl}. \quad (22)$$

Используя стандартный подход, найдем из (20)-(22) волновое уравнение в следующем виде:

$$\text{rot rot } \mathbf{E} + \mu_0 \frac{\partial^2 (\boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{E})}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{nl}}{\partial t^2}. \quad (23)$$

Из последнего уравнения следует, что нелинейная поляризация играет роль вынуждающей силы. Слева записано обычное волновое уравнение (линейное), решением которого является, в частности, плоская монохроматическая волна. Если вынуждающая сила (нелинейная поляризация) находится в резонансе с полем этой волны, то ее амплитуда будет заметной на выходе среды (рис. 1).

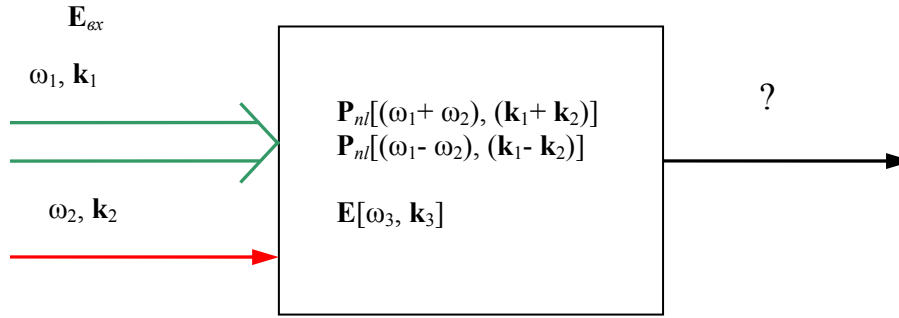


Рис. 1. Нелинейная поляризация среды на суммарной и разностной частотах и результирующее поле распространяющейся в ней световой волны с частотой ω_3 и волновым вектором \mathbf{k}_3

Очевидно, что если одновременно выполняются условия

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2, \quad (24)$$

$$\mathbf{k}_3 = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2, \quad (25)$$

то будет генерироваться волна с суммарной частотой. В случае выполнения условий

$$\omega_3 = \omega_1 - \omega_2, \quad (26)$$

$$\mathbf{k}_3 = \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2, \quad (27)$$

в среде происходит эффективная генерация на разностной частоте. Отметим, что условия синхронизма такого же вида, как и (24)-(25) или (26)-(27), широко используются при описании многих явлений взаимодействия световых волн. Например, подобные условия синхронизма являются ключевыми при анализе дифракции света на акустических волнах и на объемных голограммах.

Эти условия выражают законы сохранения энергии ((24) и (26)) и квазиимпульса ((25) и (27)). То есть, взаимодействие двух фотонов с энергиями $\hbar\omega_1$ и $\hbar\omega_2$ и квазиимпульсом $\hbar\mathbf{k}_1$ и $\hbar\mathbf{k}_2$ порождает фотон с энергией $\hbar\omega_3 = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2$ (или с энергией $\hbar\omega_3 = \hbar\omega_1 - \hbar\omega_2$) и квазиимпульсом $\hbar\mathbf{k}_3 = \hbar\mathbf{k}_1 + \hbar\mathbf{k}_2$ (или $\hbar\mathbf{k}_3 = \hbar\mathbf{k}_1 - \hbar\mathbf{k}_2$). Закон

сохранения энергии всегда выполняется точно, а условие синхронизма для квазиимпульса может выполняться с некоторой расстройкой:

$$\Delta \mathbf{k}_{\pm} = \mathbf{k}_3 - (\mathbf{k}_1 \pm \mathbf{k}_2) \neq 0. \quad (28)$$

В общем случае условия синхронизма, налагаемые на волновые векторы взаимодействующих волн, являются векторными. Однако в большинстве случаев наиболее эффективным является коллинеарное взаимодействие, которое и будет рассмотрено ниже.

4. Генерация волны суммарной частоты при коллинеарном взаимодействии в ниобате лития

Как следует из (15), в кристалле ниобата лития отличны от нуля 8 коэффициентов тензора \mathbf{d} , то есть существует достаточно много вариантов нелинейного взаимодействия. По причинам, которые станут ясны в дальнейшем, рассмотрим взаимодействие, основанное на использовании нелинейной восприимчивости $d_{31} = d_{311}$. В этом случае световые волны с частотами ω_1 и ω_2 должны быть поляризованы по оси x , а волна суммарной частоты – по оси z . Таким образом, взаимодействие должно быть между двумя обыкновенно поляризованными волнами (oo) и необыкновенной волной (e), распространяющейся вдоль оси y (рис. 2).

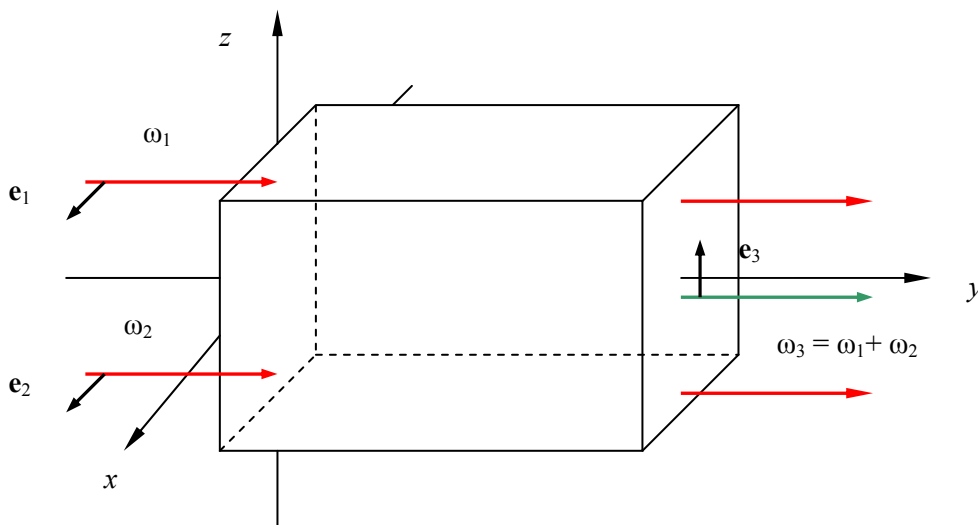


Рис. 2. Коллинеарное взаимодействие волн типа $oo - e$ в кристалле ниобата лития

Запишем поля для всех трех волн:

$$E_1^{(1)}(y, t) = \frac{1}{2} \dot{E}_1^{m1}(y) \exp[i(\omega_1 t - k_1 y)] + \text{к.с.}, \quad (29)$$

$$E_1^{(2)}(y, t) = \frac{1}{2} \dot{E}_1^{m2}(y) \exp[i(\omega_2 t - k_2 y)] + \text{к.с.}, \quad (30)$$

$$E_3^{(3)}(y, t) = \frac{1}{2} \dot{E}_3^{m3}(y) \exp\{i[(\omega_1 + \omega_2)t - k_3 y]\} + \text{к.с.}, \quad (31)$$

где мы учли условие синхронизма $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$.

Найдем нелинейную поляризацию на частоте ω_3 :

$$P_3^{nl}(t, y) = \varepsilon_0 d_{31} \dot{E}_1^{m1}(y) \dot{E}_1^{m2}(y) \exp\{i[(\omega_1 + \omega_2)t - (k_1 + k_2)y]\} + \text{к.с.} \quad (32)$$

Будем использовать далее волновое уравнение (23), упростив его следующим образом:

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \mu_0 \frac{\partial^2 (\boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{E})}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{nl}}{\partial t^2}. \quad (33)$$

Здесь мы отбросили малый член $\text{grad}(\text{div} \mathbf{E})$, который не равен нулю только при распространении под углом к оптической оси, отличным от 0° и 90° .

Подставляя $E_3^{(3)}$ и P_3^{nl} в (33), получаем

$$\begin{aligned} & \frac{1}{2} \left\{ \frac{d^2 \dot{E}_3^{m3}}{dy^2} - 2ik_3 \frac{d\dot{E}_3^{m3}}{dy} - \left[k_3^2 - \mu_0 \varepsilon_0 (n_e^{\omega_1 + \omega_2})^2 (\omega_1 + \omega_2)^2 \right] \dot{E}_3^{m3} \right\} \exp[i(\omega_1 + \omega_2)t - k_3 y] = \\ & = -\mu_0 (\omega_1 + \omega_2)^2 \varepsilon_0 d_{31} \dot{E}_1^{m1} \dot{E}_1^{m2} \exp\{i[(\omega_1 + \omega_2)t - (k_1 + k_2)y]\}. \end{aligned} \quad (34)$$

Точно такое же уравнение можно записать и для комплексно-сопряженных членов, которые будут в резонансе друг с другом. Воспользуемся далее известным соотношением для k_3 и ω_3 :

$$k_3 = \sqrt{\mu_0 \varepsilon_0} n_e^{\omega_3} \omega_3 = \frac{\omega_3}{c} n_e^{\omega_3}. \quad (35)$$

В этом случае член $\left[k_3^2 - \mu_0 \varepsilon_0 \left(n_e^{\omega_1 + \omega_2} \right)^2 (\omega_1 + \omega_2)^2 \right] \dot{E}_3^{m3}$ в уравнении (34) обращается в ноль. Воспользуемся также приближением медленно меняющихся амплитуд

$$\frac{d^2 \dot{E}_3^{m3}}{dy^2} \ll 2k_3 \frac{d\dot{E}_3^{m3}}{dy}, \quad (36)$$

и приведем уравнение (34) к виду

$$\frac{d\dot{E}_3^{m3}}{dy} = -i\mu_0 \varepsilon_0 \frac{(\omega_3)^2}{k_3} d_{311} \dot{E}_1^{m1} \dot{E}_1^{m2} \exp(i\Delta ky), \quad (37)$$

или

$$\frac{d\dot{E}_3^{m3}}{dy} = -i \frac{\omega_3}{cn_e^{\omega_3}} d_{311} \dot{E}_1^{m1} \dot{E}_1^{m2} \exp(i\Delta ky). \quad (38)$$

По аналогии запишем уравнения для \dot{E}_1^{m1} и \dot{E}_1^{m2} :

$$\frac{d\dot{E}_1^{m1}}{dy} = -i \frac{\omega_1}{cn_o^{\omega_1}} d_{131} \dot{E}_3^{m3} \left(\dot{E}_1^{m2} \right)^* \exp(-i\Delta ky), \quad (39)$$

$$\frac{d\left(\dot{E}_1^{m2} \right)^*}{dy} = i \frac{\omega_2}{cn_o^{\omega_2}} d_{131} \left(\dot{E}_3^{m3} \right)^* \dot{E}_1^{m1} \exp(i\Delta ky). \quad (40)$$

Уравнения (38)-(40) описывают связь амплитуд волн с частотами ω_1 , ω_2 и $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ и их взаимное влияние друг на друга. При отсутствии нелинейности, $d_{311} = d_{131} = 0$, имеем $d\dot{E}_1^{m1}/dy = d\dot{E}_1^{m2}/dy = 0$, а также $d\dot{E}_3^{m3}/dy = 0$, то есть амплитуды входных волн \dot{E}_1^{m1} и \dot{E}_1^{m2} не изменяются в кристалле, а волны на суммарной частоте не возникает ($\dot{E}_3^{m3} = 0$).

5. Генерация второй гармоники

Первый эксперимент по генерации второй гармоники выполнили в 1961 году Франкен, Хилл, Петерс и Вейнрейх (рис. 3).

558

Глава 12

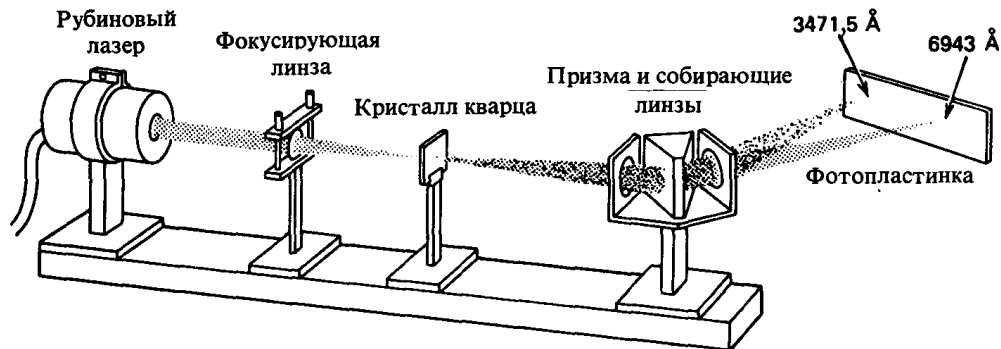


РИС. 12.1. Установка, использованная в первом эксперименте, в котором была получена генерация второй гармоники [1]. Пучок рубинового лазера ($\lambda = 0,694$ мкм) фокусируется на кристалле кварца, что приводит к генерации (слабого) пучка при $\lambda/2 = 0,347$ мкм. Затем два пучка разделяются призмой и регистрируются на фотопленке.

Рис. 3. Рисунок из книги Ярив А., Юх П. Оптические волны в кристаллах: Пер. с англ. – М.: Мир, 1987.

В эксперименте было обнаружено, что наряду с основным излучением на выходе кристалла существует вторая гармоника с длиной волны $\lambda = 347,15$ нм (ультрафиолетовое излучение). Эффективность преобразования по мощности составила в данном эксперименте 10^{-8} . В настоящее время при генерации второй гармоники достигаются значения эффективности, близкие к единице.

Проведем далее анализ эффективности генерации второй гармоники на основе уравнений (38)-(40). В случае генерации второй гармоники $\omega_1 = \omega_2$ и $\omega_3 = 2\omega_1$. Поэтому нам понадобятся лишь два уравнения:

$$\frac{d\dot{E}_3^{m3}}{dy} = -i \frac{\omega_1}{cn_e^{2\omega_1}} d_{311} (\dot{E}_1^{m1})^2 \exp(i\Delta ky), \quad (41)$$

$$\frac{d\dot{E}_1^{m1}}{dy} = -i \frac{\omega_1}{cn_o^{\omega_1}} d_{131} \dot{E}_3^{m3} (\dot{E}_1^{m1})^* \exp(-i\Delta ky). \quad (42)$$

где учтено, что в случае генерации второй гармоники нелинейная поляризация определяется соотношением (10), а не (7).

Рассмотрим далее приближение *неустойчивой накачки*, при котором лишь малая часть основной волны преобразуется во вторую гармонику. В этом случае можно считать, что $(\dot{E}_1^{m1})^2$ не зависит от координаты y , и уравнение (41) сразу интегрируется.

Для граничного условия $\dot{E}_3^{m3}(0) = 0$ на входной грани кристалла (при $y = 0$) получаем

$$\dot{E}_3^{m3}(y) = -i \frac{\omega_1}{c n_e^{2\omega_1}} d_{31} (\dot{E}_1^{m1})^2 \frac{\exp(i\Delta ky) - 1}{i\Delta k}. \quad (43)$$

Выразим интенсивность второй гармоники, используя соотношения

$$I^{(2\omega)} = \frac{1}{2} n_e^{2\omega} \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} |\dot{E}_3^{m3}|^2,$$

$$I^{(\omega)} = \frac{1}{2} n_o^\omega \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} |\dot{E}_1^{m1}|^2.$$

В результате получаем

$$I^{(2\omega)}(L) = 2 \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}} \frac{\omega^2 d_{31}^2 L^2}{c^2 (n_o^\omega)^2 n_e^{2\omega}} (I^{(\omega)})^2 \frac{\sin^2(\Delta k L / 2)}{(\Delta k L / 2)^2}. \quad (44)$$

Таким образом, интенсивность второй гармоники пропорциональна квадрату интенсивности основного излучения. Поэтому использование фокусирующей линзы, такой, которая использовалась в эксперименте, иллюстрируемом рис. 3, приводит к увеличению эффективности преобразования основного излучения во вторую гармонику.

6. Фазовый синхронизм при генерации второй гармоники

Очевидно, что эффективность генерации второй гармоники (ГВГ) максимальна при точном выполнении условия фазового синхронизма ($\Delta k = 0$):

$$k_3 - k_2 - k_1 = 0, \quad (45)$$

причем для ГВГ имеем, при рассмотренном выше процессе $oo - e$:

$$\frac{2\omega_1}{c} n_e(2\omega_1) - \frac{\omega_1}{c} n_o(\omega_1) - \frac{\omega_1}{c} n_o(\omega_1) = 0,$$

или

$$n_e(2\omega_1) = n_o(\omega_1). \quad (46)$$

Это условие, как правило, не выполняется. Например, в кристалле KN_2PO_4 (дигидрофосфат калия, сокращенно – KDP), часто используемом для различных нелинейных устройств, при комнатной температуре для $\lambda_3 = 0.5$ мкм $n_o = 1.5149$ и $n_e = 1.4725$, а для $\lambda_1 = 1.0$ мкм $n_o = 1.4960$ и $n_e = 1.4610$. Чтобы определить, как это скажется на эффективности ГВГ, рассмотрим присутствующий в (44) множитель

$$\frac{\sin^2(\Delta k L / 2)}{(\Delta k L / 2)^2},$$

экстремумы которого обеспечивают экстремумы в выходной интенсивности 2-й гармоники. Условие экстремума определяется, как

$$\frac{\Delta k}{2} L_p = \frac{\pi}{2} (2p + 1), \quad p = 0, 1, 2, \dots, \quad (47)$$

а расстояние между соседними максимумами в выходной интенсивности равно

$$2L_c = \frac{2\pi}{\Delta k} = \frac{2\pi}{(2\pi/\lambda_3)n_e(\lambda_3) - 2(2\pi/\lambda_1)n_o(\lambda_1)} = \frac{\lambda_1}{2(n_e^{2\omega} - n_o^\omega)}. \quad (48)$$

Расстояние L_c называется длиной когерентности, поскольку в ее пределах нелинейная поляризация находится в фазе с полем плоской волны, соответствующей второй гармонике. При $\lambda_1 = 1.0$ мкм и $n_e^{2\omega} - n_o^\omega \approx 0.025$ получаем, что $L_c = 10$ мкм.

Обычно толщина нелинейного кристалла составляет 10 мм и более. Если удастся увеличить L_c до этих значений, то выигрыш в интенсивности 2-й гармоники составит 10^6 раз. Как это можно сделать?

Условию $n_e(2\omega_1) = n_o(\omega_1)$ можно удовлетворить, если взаимодействие волн осуществлять не при их распространении перпендикулярно оптической оси, а под некоторым углом θ . В этом случае необыкновенная волна характеризуется показателем преломления

$$(n^{2\omega})' = \frac{n_o^{2\omega} n_e^{2\omega}}{\sqrt{(n_e^{2\omega})^2 \cos^2 \theta + (n_o^{2\omega})^2 \sin^2 \theta}},$$

а обыкновенная – $n_o(\omega)$. Если первая поверхность представляет эллипсоид вращения, а ее сечение любой плоскостью, проходящей через оптическую ось – эллипс, то вторая поверхность является сферой (ее сечение такой же плоскостью – окружность). Для одноосных кристаллов, таких как KDP и ниобат лития, имеются точки пересечения окружности $n_o(\omega_1 = \omega)$ с эллипсом $n'(2\omega)$ (рис. 4), где $\Delta k = 0$, а $L_c \rightarrow \infty$.

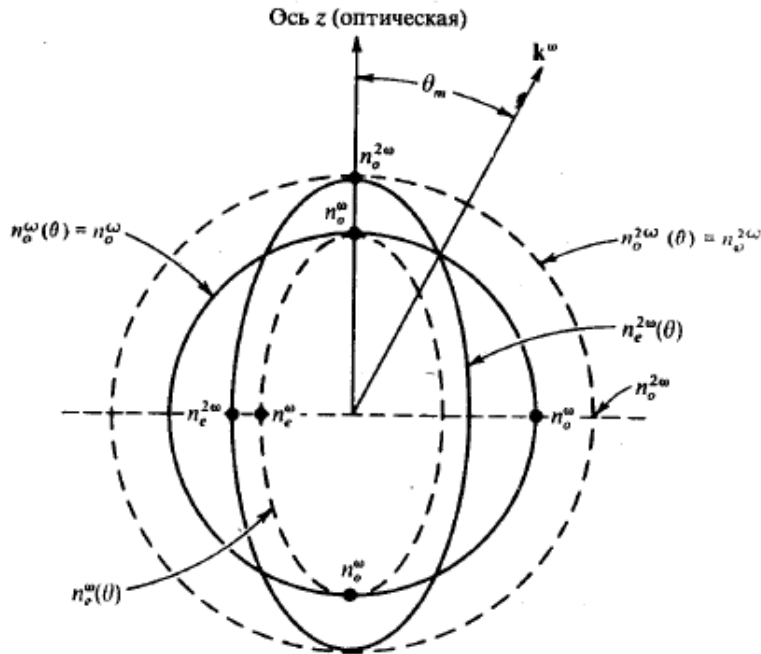


Рис. 4. Поверхности показателей преломления для обыкновенной и необыкновенной волн в отрицательном одноосном кристалле ($n_o > n_e$).

Отметим, что показатели преломления кристаллов зависят от температуры. Поэтому другой способ достижения фазового синхронизма заключается в нагреве кристалла до температуры, при которой $n_e(2\omega_1) = n_o(\omega_1)$. Для ниобата лития, выращенного из расплава с соотношением Li/Nb, близким к стехиометрическому, при генерации второй гармоники излучением неодимового лазера ($\lambda_1 = 1064$ нм), эта температура может составлять около 150°C . Достоинство этого подхода в том, что при такой температуре исчезает фоторефрактивный эффект (optical damage), и структура выходного пучка не искажается с течением времени.

7. Генерация второй гармоники при наличии обратного воздействия

Рассмотрим самосогласованную задачу о генерации второй оптической гармоники, то есть учтем эффект истощения (уменьшения мощности) волны накачки. Воспользуемся уравнением (41) и уравнением, комплексно сопряженным к (42), полагая в них для простоты $\Delta k = 0$ и учитывая, что в случае мгновенного отклика $d_{311} = d_{131} = d_{31}$. В результате получаем

$$\frac{d\dot{E}_3^{m3}}{dy} = -i \frac{\omega_1}{cn_e^{2\omega_1}} d_{31} (\dot{E}_1^{m1})^2, \quad (49)$$

$$\frac{d(\dot{E}_1^{m1})^*}{dy} = i \frac{\omega_1}{cn_o^{\omega_1}} d_{31} (\dot{E}_3^{m3})^* \dot{E}_1^{m1}. \quad (50)$$

Рассматриваемая система уравнений для двух комплексных функций (то есть в целом для четырех функций, определяющих действительные и мнимые части $\dot{E}_1^{m1}(y)$ и $\dot{E}_3^{m3}(y)$) является нелинейной. Как найти ее решение?

Обратим внимание, что если первое уравнение умножить на $n_e^{2\omega_1} \sqrt{\varepsilon_0/\mu_0} (\dot{E}_3^{m3})^*$, а второе на $n_o^{\omega_1} \sqrt{\varepsilon_0/\mu_0} \dot{E}_1^{m1}$ и сложить полученные результаты, то члены в правой части итогового уравнения взаимно уничтожаются:

$$n_e \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} (\dot{E}_3^{m3})^* \frac{d\dot{E}_3^{m3}}{dy} + n_o \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} \dot{E}_1^{m1} \frac{d(\dot{E}_1^{m1})^*}{dy} = 0. \quad (51)$$

Складывая (51) с комплексно-сопряженным к нему уравнением, получаем *первый интеграл* нелинейной системы уравнений (49)-(50) в следующем виде:

$$\frac{d}{dy} \left(\frac{1}{2} n_e \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} |\dot{E}_3^{m3}|^2 + \frac{1}{2} n_o \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} |\dot{E}_1^{m1}|^2 \right) = 0, \quad (52)$$

или, с учетом соотношений для интенсивностей волны накачки и ее второй гармоники (см. раздел 5), в другом виде:

$$\frac{d}{dy} [I^{2\omega}(y) + I^\omega(y)] = 0. \quad (53)$$

Решение данного уравнения, с учетом граничного условия $I^{2\omega}(0) = 0$, имеет вид

$$I^{2\omega}(y) + I^\omega(y) = I^\omega(0), \quad (54)$$

и выражает закон сохранения энергии – два кванта с энергией $\hbar\omega_1$ рождают квант с энергией $\hbar\omega_3 = 2\hbar\omega_1$. Соответственно, число рожденных квантов второй гармоники в два раза меньше числа исчезнувших квантов основной частоты.

Выразим из (54) квадраты модулей амплитуд:

$$|\dot{E}_1^{m1}(y)|^2 = |\dot{E}_1^{m1}(0)|^2 - \frac{n_e^{2\omega_1}}{n_o^{\omega_1}} |\dot{E}_3^{m3}(y)|^2. \quad (55)$$

Если входную амплитуду основной волны выбрать вещественной, $\dot{E}_1^{m1}(0) = E_1^{m1}(0)$, то ее амплитуда в кристалле также будет вещественной, $\dot{E}_1^{m1}(y) = E_1^{m1}(y)$, а амплитуда второй гармоники $\dot{E}_3^{m3}(y)$ (см. уравнение (49)) – чисто мнимой величиной. Делая замену $\dot{E}_3^{m3}(y) = -iE_3^{m3i}(y)$ и используя интеграл сохранения в виде (55), из (49) получаем

$$\frac{dE_3^{m3i}}{dy} = \frac{\omega_1}{cn_e^{2\omega_1}} d_{31} [E_1^{m1}(0)]^2 - \frac{\omega_1}{cn_o^{\omega_1}} d_{31} [E_3^{m3i}]^2. \quad (56)$$

Решение этого уравнения может быть записано в виде

$$E_3^{m3i}(y) = \sqrt{\frac{n_o^{\omega_1}}{n_e^{2\omega_1}}} E_1^{m1}(0) \operatorname{th} \left[\sqrt{\frac{1}{n_e^{2\omega_1} n_o^{\omega_1}}} \frac{\omega_1}{c} d_{31} E_1^{m1}(0) y \right]. \quad (57)$$

В результате интенсивность второй гармоники на выходе кристалла выражается через входную интенсивность волны накачки, с учетом её истощения, в следующем виде:

$$I^{2\omega}(L) = I^\omega(0) \operatorname{th}^2 \left[\sqrt{\frac{2I^\omega(0)}{n_e^{2\omega_1} (n_o^{\omega_1})^2}} \left(\frac{\mu_0}{\varepsilon_0} \right)^{1/4} \frac{\omega_1}{c} d_{31} L \right]. \quad (58)$$

Отметим, что для малых аргументов функции $\operatorname{th}(\alpha)$ (при $\alpha \ll 1$) данное выражение совпадает с соотношением (44), выведенным для случая неистощимой накачки, если в нем положить $\Delta k = 0$. При высокой эффективности нелинейного преобразования, определяемой в основном значением коэффициента квадратичной восприимчивости d_{31} и величиной $\sqrt{I^\omega(0)}$, с увеличением длины кристалла L происходит полная перекачка интенсивности волны накачки во вторую гармонику.

8. Параметрическое усиление

При параметрическом усилении слабая волна с частотой ω_1 усиливается за счет перекачки мощности от сильной волны накачки с частотой $\omega_3 > \omega_1$. При этом рождается и холостая волна с частотой $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$. Для описания таких процессов, когда в одноосном кристалле, таком как ниобат лития, накачка является необыкновенной волной, а сигнальная и холостая волны имеют обыкновенную поляризацию, можно воспользоваться системой уравнений (38)-(40). Для случая неистощимой накачки и присутствия на входе только волн сигнала и накачки анализ приводит к следующему решению для комплексных амплитуд сигнальной и холостой волн:

$$\dot{E}_1^{m1}(y) = E_1^{m1}(0) \left\{ \operatorname{ch}(\kappa y) + i \frac{\Delta k}{2\kappa} \operatorname{sh}(\kappa y) \right\} \exp\left(-i \frac{\Delta k}{2} y\right), \quad (59)$$

$$\left(\dot{E}_1^{m2}(y)\right)^* = iE_1^{m1}(0) \frac{\omega_2}{cn_o^{\omega_2}} \frac{d_{31}E_3^{m3}(0)}{2\kappa} \text{sh}(\kappa y) \exp\left(i \frac{\Delta k}{2} y\right), \quad (60)$$

где коэффициент нелинейной связи определяется выражением

$$\kappa = \frac{1}{2} \sqrt{4 \frac{\omega_1 \omega_2}{c^2 n_o^{\omega_1} n_o^{\omega_2}} d_{31}^2 \left|\dot{E}_3^{m3}(0)\right|^2 - \Delta k^2}. \quad (61)$$

Рост амплитуд для сигнальной и холостой волн максимален для случая фазового синхронизма, когда выполняется условие $\Delta k = 0$. В этом случае соотношения (59)-(60) принимают вид

$$\dot{E}_1^{m1}(y) = E_1^{m1}(0) \text{ch}\left(\sqrt{\frac{\omega_1 \omega_2}{c^2 n_o^{\omega_1} n_o^{\omega_2}}} d_{31} E_3^{m3}(0) y\right), \quad (62)$$

$$\left(\dot{E}_1^{m2}(y)\right)^* = i \sqrt{\frac{\omega_2 n_o^{\omega_1}}{\omega_1 n_o^{\omega_2}}} E_1^{m1}(0) \text{sh}\left(\sqrt{\frac{\omega_1 \omega_2}{c^2 n_o^{\omega_1} n_o^{\omega_2}}} d_{31} E_3^{m3}(0) y\right). \quad (63)$$

Полученные уравнения не учитывают истощения волны накачки, за счет которой мощности сигнальной и холостой волн увеличиваются. При точном выполнении условия синхронизма $\Delta k = 0$ из системы уравнений (38)-(40) можно получить следующие интегралы:

$$\frac{d}{dy} \left[\frac{1}{\omega_1} I^{\omega_1}(y) + \frac{1}{\omega_3} I^{\omega_3}(y) \right] = 0, \quad (64)$$

$$\frac{d}{dy} \left[\frac{1}{\omega_2} I^{\omega_2}(y) + \frac{1}{\omega_3} I^{\omega_3}(y) \right] = 0, \quad (65)$$

которые можно переписать, как

$$\frac{d}{dy} \left[\frac{1}{\omega_1} I^{\omega_1}(y) \right] = \frac{d}{dy} \left[\frac{1}{\omega_2} I^{\omega_2}(y) \right] = -\frac{d}{dy} \left[\frac{1}{\omega_3} I^{\omega_3}(y) \right]. \quad (66)$$

Соотношения (66) характеризуют изменения числа фотонов во взаимодействующих волнах и имеют простой физический смысл: на каждый фотон,

отбираемый от волны накачки, прибавляется по одному фотону, как в сигнальную волну, так и в холостую. Через них легко выражаются изменения интенсивности волн в кристалле в процессе параметрического взаимодействия:

$$-\frac{\Delta I^{\omega_3}(y)}{\omega_3} = \frac{\Delta I^{\omega_1}(y)}{\omega_1} = \frac{\Delta I^{\omega_2}(y)}{\omega_2}. \quad (67)$$

Выражение (1.65) известно как соотношение Мэнли – Роу.

9. Параметрическая генерация

При воздействии на нелинейный кристалл мощной волной накачки на частоте ω_3 в нем может происходить параметрическая генерация пучков с частотами ω_1 и ω_2 , причем $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$. Для создания генератора нужно обеспечить положительную обратную связь и усиление. Как происходит параметрическое усиление, мы рассмотрели выше. В оптическом диапазоне положительная обратная связь обычно обеспечивается открытым оптическим резонатором (рис. 5).

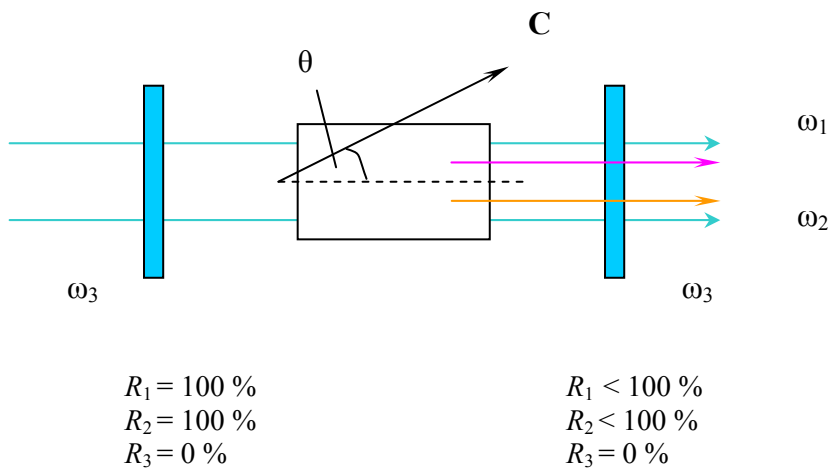


Рис. 5. Схема оптического параметрического генератора

Сигнал с частотой ω_1 и холостая волна с частотой ω_2 рождаются из шумов. Эти три волны удовлетворяют условиям синхронизма ($\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$, $k_1 + k_2 = k_3$), для чего

кристалл поворачивается относительно оптической оси C на угол θ , при котором именно для ω_1 и k_1 удовлетворяются эти условия.

В генераторе усиление должно быть равно потерям в состоянии порога генерации. Потери происходят на зеркалах и являются сосредоточенными, однако для анализа удобно их перенести в вещество и считать распределенными:

$$\alpha_1 = \frac{1}{2L_R} [1 - R_1(0)R_1(L_R)], \quad \alpha_2 = \frac{1}{2L_R} [1 - R_2(0)R_2(L_R)], \quad (68)$$

где индексы у коэффициентов поглощения α_i и коэффициентов отражения зеркал резонатора R_i соответствуют сигнальной (1) и холостой (2) волнам. Эти потери нужно учесть в уравнениях (39) и (40):

$$\frac{d\dot{E}_1^{m1}}{dy} = -\frac{\alpha_1}{2} \dot{E}_1^{m1} - i \frac{\omega_1}{cn_o^{\omega_1}} d_{131} \dot{E}_3^{m3} (\dot{E}_1^{m2})^*, \quad (69)$$

$$\frac{d(\dot{E}_1^{m2})^*}{dy} = -\frac{\alpha_2}{2} (\dot{E}_1^{m2})^* + i \frac{\omega_2}{cn_o^{\omega_2}} d_{131} (\dot{E}_3^{m3})^* \dot{E}_1^{m1}, \quad (70)$$

где мы также учли, что условие синхронизма автоматически выполняется точно при генерации.

В установившемся режиме $d\dot{E}_1^{m1}/dy = 0$ и $d(\dot{E}_1^{m2})^*/dy = 0$, и уравнения принимают вид

$$-\frac{\alpha_1}{2} \dot{E}_1^{m1} - i \frac{\omega_1}{cn_o^{\omega_1}} d_{131} \dot{E}_3^{m3} (\dot{E}_1^{m2})^* = 0, \quad (71)$$

$$-\frac{\alpha_2}{2} (\dot{E}_1^{m2})^* + i \frac{\omega_2}{cn_o^{\omega_2}} d_{131} (\dot{E}_3^{m3})^* \dot{E}_1^{m1} = 0. \quad (72)$$

В приближении заданной (неистошимой) накачки из условия равенства нулю определителя однородной системы уравнений (71)-(72) получаем уравнение для её пороговой амплитуды:

$$\left| \dot{E}_3^{m3} \right|^2 = \frac{\alpha_1 \alpha_2}{4 \frac{\omega_1 \omega_2}{c^2 n_o^{\omega_1} n_o^{\omega_2}} d_{31}^2}. \quad (73)$$

10. Преобразование частоты при квазисинхронном взаимодействии

В приближении неистоцимой накачки зависимость (43) для комплексной амплитуды второй гармоники от координаты y может быть представлена в виде

$$\dot{E}_3^{m3}(y) = -i \frac{\omega_1}{cn_e^2 \omega_1} d_{31} (\dot{E}_1^{m1})^2 \exp\left(i \frac{\Delta k}{2} y\right) \frac{\sin(\Delta k y / 2)}{\Delta k / 2}. \quad (74)$$

Для $\Delta k \neq 0$ зависимость модуля этой амплитуды $|\dot{E}_3^{m3}(y)|$ носит осциллирующий характер, с пространственным периодом, равным длине когерентности $L_c = \pi/\Delta k$ (см. формулу (48)). Кривая 1 на рис. 6 иллюстрирует такую зависимость для $L_c = 20$ мкм.

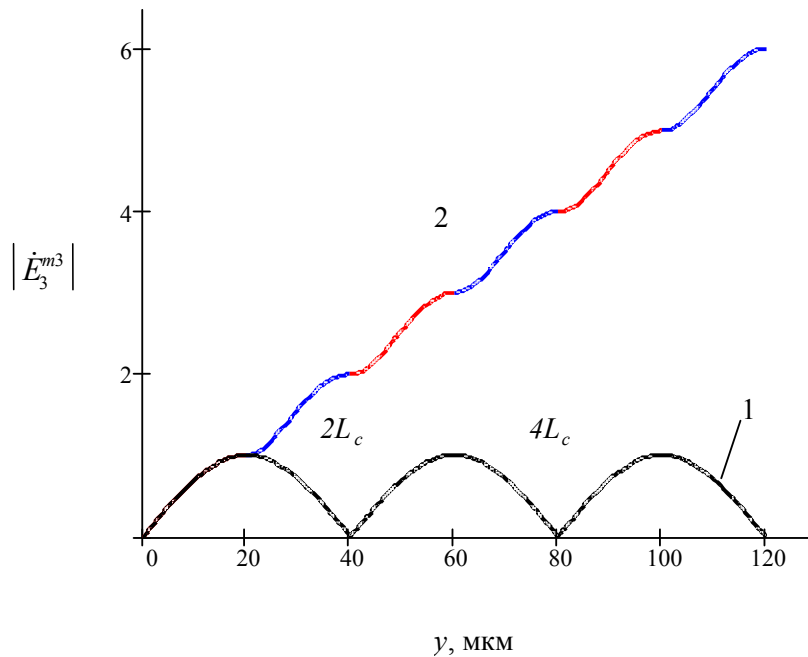


Рис. 6. Зависимость модуля амплитуды второй гармоники от длины взаимодействия в условиях отсутствия фазового синхронизма (1) и при квазифазовом синхронизме (2)

Из формулы (44) легко находится зависимость для интенсивности второй гармоники от толщины нелинейного одноосного кристалла в случае взаимодействия типа $oo - e$ для волн, распространяющихся ортогонально к оптической оси. С учетом соотношения (48) можно получить

$$I^{(2\omega)}(L) \sim \frac{(d_{31})^2}{(\Delta k)^2} \sin^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) \sim (d_{31})^2 (L_c)^2 \sin^2\left(\frac{\pi L}{L_c}\right). \quad (75)$$

Таким образом, как уже отмечалось выше, эффективное преобразование во вторую гармонику может быть реализовано в условиях фазового синхронизма, когда длина когерентности примерно равна размеру кристалла L .

Однако есть и другой способ обеспечения высокой эффективности нелинейного взаимодействия световых волн, предложенный группой Н. Бломбергена ещё в 1962 году. Суть этого способа состоит в использовании фазового сдвига на 180° между нелинейной поляризацией на требуемой частоте и световым полем с этой же частотой всякий раз, когда они пройдут расстояние, равное длине когерентности L_c . С этой целью можно использовать, например, стопку пластин, имеющих толщину L_c , вырезанных из нецентросимметричного кристалла. Каждая из них имеет противоположную ориентацию кристаллографических осей (или одной из них) относительно предыдущей. В этом случае отсутствие центра симметрии приводит к тому, что знак нелинейного коэффициента меняется на противоположный при переходе от пластинки к пластинке. Смена этого знака (например, d_{311} в уравнении (41) заменяется на $-d_{311}$) приводит к тому, что нелинейная поляризация меняет знак на противоположный, и амплитуда генерируемой волны снова начинает возрастать, а не убывать. Поведение модуля комплексной амплитуды второй гармоники $|\dot{E}_3^{m3}(y)|$ в этом случае иллюстрируется кривой 2. Такой способ коррекции фазовой расстройки, когда она реализуется скачком фазы, называется *квазифазовым синхронизмом*.

Квазифазовый синхронизм имеет ряд преимуществ по сравнению с обычным фазовым синхронизмом (см. раздел 6), реализуемым только в двулучепреломляющих кристаллах. К таким преимуществам можно отнести следующие:

1. Квазифазовый синхронизм не определяется поляризацией волн, поэтому её можно выбрать так, чтобы нелинейная поляризация определялась наибольшим коэффициентом квадратичной восприимчивости.
2. Такой синхронизм достигается при комнатной температуре для широкого диапазона генерируемых длин волн и для различных типов нелинейных процессов.
3. Для реализации квазифазового синхронизма можно использовать более широкий круг материалов, так как могут быть использованы материалы с малым двулучепреломлением или вообще не имеющие двулучепреломления.

4. Кроме квадратичной нелинейной восприимчивости в рассматриваемых периодических структурах модулируется и линейные электрооптические свойства, что в некоторых случаях позволяет снизить нежелательное влияние на оптические пучки фоторефрактивного эффекта.

Следует отметить, что квазифазовый синхронизм возможен и в случае, когда толщина используемых пластинок равна нечетному числу $(2m - 1)L_c$, где целое число $m = 1, 2, 3, \dots$ называют порядком квазифазового синхронизма. Например, квазифазовый синхронизм 2-го порядка достигается в стопке пластин толщиной $3L_c$. Как в этом случае изменится зависимость амплитуды генерируемой волны от координаты вдоль направления взаимодействия, для квазифазового синхронизма первого порядка иллюстрируемая кривой 2 на рис. 6? Очевидно, скачок фазы будет происходить в этом случае при $y = 60$ мкм, $y = 120$ мкм, и т.д. Соответственно, модуль амплитуды второй гармоники увеличится для $y = 120$ мкм относительно его значения при $y = 20$ мкм только в два раза, а не в шесть раз, как при квазифазовом синхронизме 1-го порядка.

Изготовление механическим способом модулированных структур с периодом, равным нескольким микронам или десяткам микрон, технологически представляет большую проблему. В этом случае число пластинок обычно невелико (от нескольких единиц до десятков), а толщина каждой пластинки составляет нечетное число $L_c/2$. Поэтому приходится использовать высокие порядки квазифазового синхронизма, что снижает эффективность передачи энергии накачки генерируемому излучению. Однако такие эксперименты проводились; в них использовались стопки пластин, вырезанных из кристаллов CdTe, GaAs, LiNbO₃ и кварца.

Наиболее перспективными для практической реализации квазифазового синхронизма являются периодические доменные структуры, сформированные в сегнетоэлектрических кристаллах.

11. Периодические доменные структуры в сегнетоэлектриках

Первые эксперименты по нелинейному частотному преобразованию лазерного излучения были выполнены на естественных доменных структурах, получаемых в процессе роста сегнетоэлектрического кристалла. Обычно такой кристалл вырастает полидоменным, а дальше проводится его монодоменизация, путем приложения к нему внешнего электрического поля. Однако использование ростовых доменных структур оказалось малоэффективным вследствие разброса их параметров. Более того, было

установлено, что ростовые доменные структуры приводят к дополнительному рассеянию оптических пучков.

Во второй половине 80-х годов были разработаны и осуществлены новые способы формирования достаточно совершенных распределенных доменных структур (РДС), в том числе и периодических доменных структур (ПДС), в ряде оксидных сегнетоэлектриков (LiNbO_3 , LiTaO_3 , KTiOPO_4 , BaTiO_3 , и некоторых других подобных материалах). Обычно формируется один из двух типов РДС с так называемой ориентацией доменов «голова к хвосту» (рис. 7, а) и «голова к голове» (рис. 7, б).

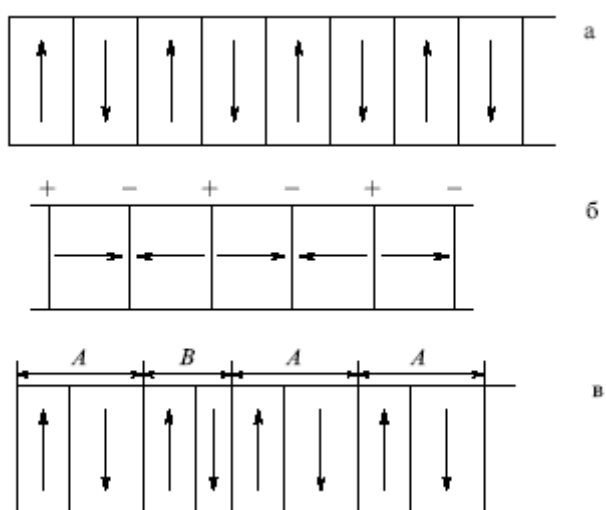


Рис. 7. Периодические (а, б) и распределенные (в) доменные структуры в сегнетоэлектрическом кристалле

Очевидно, что структуры, изображенные на рис. 7, а и б, относятся к ПДС, в то время как квазипериодическая структура на рис. 7, в, имеет тип РДС. Существует несколько способов индуцирования доменных структур в монокристаллах посредством внешних воздействий, которые будут кратко рассмотрены ниже. Индуцированные домены и РДС на их основе могут иметь и динамический характер, то есть обладать возможностью пространственной или временной перестройки в зависимости от интенсивности или природы внешних воздействий.

12. Методы формирования индуцированных доменов и РДС

Спонтанно возникшая доменная структура в сегнетоэлектриках, как правило, является равновесной и соответствует минимуму энергии кристалла. Во внешнем поле происходит изменение доменной структуры за счет роста доменов, ориентированных вдоль поля. При некотором критическом значении поля сегнетоэлектрик переходит в монодоменное состояние. Эволюция доменной структуры под действием внутренних и внешних полей лежит в основе большинства методов формирования доменов и доменных структур с заданными параметрами.

Образование 180° -ных доменов в оксидных сегнетоэлектриках связано с нецентросимметричным расположением ионов металлов (например, Li и Nb в ниобате лития) относительно подрешетки анионов кислорода, причем направление смещения катионов определяет направление вектора электрической поляризации в домене (рис. 8).

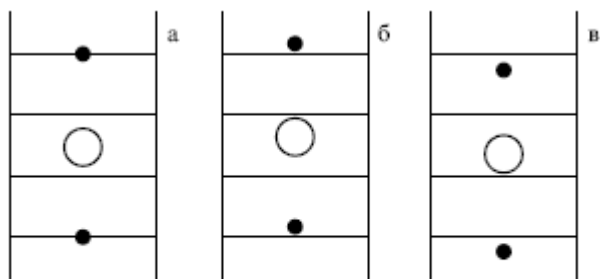


Рис. 2. Фрагмент структуры монокристалла ниобата лития: (а) парафаза; (б) положительный домен; (в) отрицательный домен; ○ — ионы ниобия, ● — ионы лития.

Рис. 8. Из статьи А.В. Голенищева-Кутузова, В.А. Голенищева-Кутузова, Р.И. Калимуллина [УФН, 2000, т. 170, с. 697-712].

Таким образом, переполяризация возникает при смещении ионов из одного нецентросимметричного положения вдоль оси спонтанной поляризации в другое нецентросимметричное расположение. Поэтому все известные к настоящему времени методы по переполяризации отдельных участков кристалла можно разделить на две группы: использующие внешние электрические поля и использующие градиенты внутренних электрических полей.

Приложение внешних полей. Изменение направления спонтанной поляризации в монокристаллах ниобата лития было обнаружено в 1978 году, причем при комнатной температуре для этого требовалась напряженность поля, составляющая 10^6 В/см. При температуре 150°C для переполяризации достаточно было наличие электрического поля с напряженностью 10^4 В/см. Методика формирования ПДС состояла в нанесении на поверхности тонких образцов (толщина $d < 1$ мм), перпендикулярные оси спонтанной поляризации C , периодически расположенных металлических электродов (рис. 9).

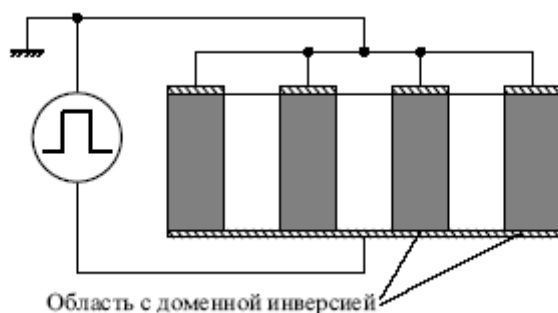


Рис. 9. Формирование ПДС в импульсном электрическом поле.

Тогда при приложении к электродам электрического поля, обратного по знаку полю спонтанной поляризации и превышающего его по величине, возникала структура инвертированных доменов типа «голова к хвосту», глубина которых была пропорциональна времени воздействия и напряженности приложенного поля. Границы доменов были параллельны оси C . Подобным образом ПДС были сформированы в кристаллах ниобата и танталата лития, титаната бария. Поскольку для переполяризации таких «жестких» структур, как ниобат и танталат лития, при комнатной температуре необходимы поля с $E_0 \sim 10^6$ В/см, в ряде работ переполяризация была осуществлена при более низких полях за счет нагревания кристаллов, в частности, импульсами лазера.

Минимальные размеры доменов типа «голова к хвосту», создаваемых приложением импульсных электрических полей, составляют порядка 2 – 10 мкм в пластинах толщиной до 0.5 мм.

Образование ПДС во внутренних полях. Первые распределенные доменные структуры были получены в процессе выполнения обычных технологических операций по монокристаллизации образцов. Например, непосредственно в процессе выращивания кристаллов ниобата лития по методу Чохральского доменная структура формировалась при охлаждении до температуры Кюри расплава, содержащего пространственные

градиенты концентрации примесных ионов (например, иттрия), причем период структуры определялся градиентным распределением примеси.

Другой метод состоял в использовании диффузии ионов титана или протонов в кристалл, одновременно с его нагревом до температур, близких к температуре Кюри. Считается, что в этом случае возникает большое количество электронов, которые формируют область пространственного заряда. Образующееся при этом поле, направленное навстречу полю спонтанной поляризации, приводит к её инверсии, особенно эффективную при высоких температурах. Различия в зарядовых состояниях диффундировавших ионов по отношению к структурным и примесным ионам приводит к генерации свободных электронов из вакансионных центров, которые создают зарядовую компенсацию при таких процессах замещения. Электроны, имеющие максимальную концентрацию вблизи поверхности, затем диффундируют вглубь кристалла, формируя поле пространственного заряда с напряженностью E_d . При двухсторонней диффузии в пластину Z-среза поле E_d будет антипараллельно полю спонтанной поляризации вблизи её +С полярной поверхности, где и происходит переключение поляризации.

Качественные оценки значений E_d , исходящие из экспериментальных данных по профилю концентрации заряженных центров вдоль полярной оси, показали, что индуцированные электрические поля при температуре 1100 °С могут достигать значений от 200 до 300 В/см. Это достаточно для реполяризации даже в случае сегнетоэлектриков с большим коэрцитивным полем. Например, для ниобата лития при такой температуре поле реполяризации составляет около 5 В/см. Глубина созданных таким способом инвертированных доменов может достигать 500 мкм.

Формирование ПДС электронным пучком. Описанное в работе [10] формирование планарных периодических доменных решеток с периодом в 7 мкм в образцах LiNbO_3 и Ti:LiNbO_3 проводилось в растровом электронном микроскопе (РЭМ) JSM-840А с дополнительно встроенной программой NanoMaker, позволяющей управлять электронным лучом при рисовании по поверхности и контролировать дозы облучения. Доза облучений $D=q/S_{irr}$ (q - заряд внедряемых электронов, S_{irr} - облучаемая электронным пучком площадь поверхности) варьировалась в диапазоне 450-2500 мкКл/см² при энергии пучка электронов $E= 25$ кэВ и токе $I \sim 100$ пА. Основным мотивом рисования были квадраты размером $S_{irr}= (1 \times 1)$ мкм², последовательно наносимые параллельно кристаллографическим направлениям X и Z . Противоположная, не облучаемая электронами сторона кристаллов, покрывалась слоем Al и заземлялась. Подобная методика формирования планарных доменных решеток

электронным лучом в Y -срезах танталата лития использовалась в [11]. Расстояния между участками облучения вдоль кристаллографической оси X составляли $\Lambda=7$ мкм, а вдоль направления Z соответствовали $L=15-20$ мкм. Перемещение луча при нанесении локальных облучений параллельно оси Z происходило либо в сторону полярной стороны кристалла $-Z$, либо в сторону $+Z$. Схема рисования в РЭМ представлена на рис. 10.

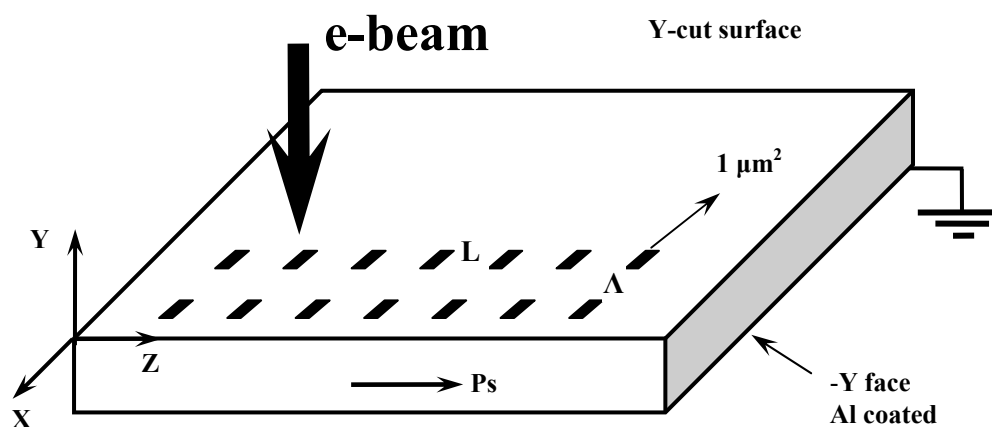


Рис. 10. Схема рисования электронным лучом по поверхности Y -среза LiNbO_3 и Ti:LiNbO_3 в РЭМ

На поверхности нелегированного образца ниобата лития и одного из волноводов Ti:LiNbO_3 при разных дозах облучения формировалось несколько доменных структур. Домены и доменные решетки, сформированные при облучении электронами, выявлялись в результате селективного химического травления образцов в кипящем растворе кислот $\text{HF}+2\text{HNO}_3$. После травления полученные структуры исследовались в оптическом микроскопе Neophot 21 и в интерференционном оптическом микроскопе Zeiss AxioPlan 2. При найденных из анализа полученных структур оптимальных условиях переключения и роста доменов были созданы серии планарных ПДС с периодом 7 мкм, с поперечными размерами 700×700 мкм², как в нелегированных кристаллах ниобата лития Y -среза, так и в планарных волноводах Ti:LiNbO_3 . Сформированные ПДС использовались для осуществления на них нелинейных

оптических преобразований и оптических исследований особенностей таких доменных структур.

Планарные доменные решетки в LiNbO_3 . Вектор спонтанной поляризации в Y -срезе ниобата лития расположен параллельно поверхности образца. При облучении одного локального участка такого образца, при пороговой дозе в 450 мкКл/см^2 , формировался одиночный домен, растущий из зоны облучения в сторону полярной оси $+Z$ параллельно поверхности. В отличие от кристаллов танталата лития, где в подобных условиях формировались домены иглообразной формы с более широким концом в области облучения [11], в кристаллах ниобата лития росли домены с параллельными доменными стенками, и только в завершающей стадии роста наблюдался резко сужающийся конец треугольной формы (рис. 11, а).

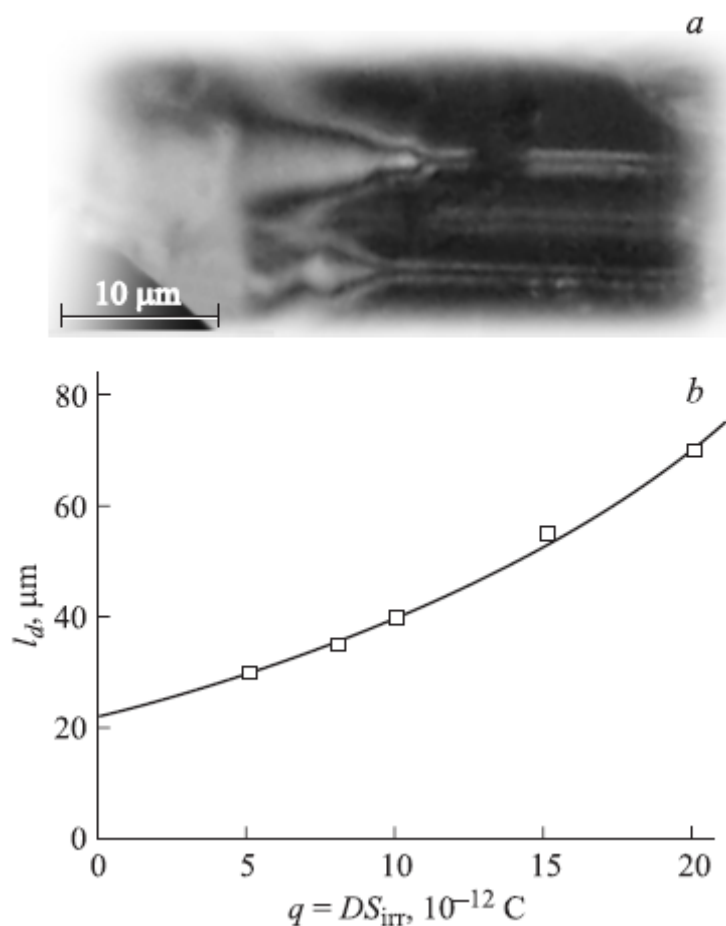


Рис. 11. Оптическое изображение индивидуального домена на Y -срезе ниобате лития после химического травления (а) и зависимость длины индивидуальных доменов

l_d от дозы облучения (б)

На рис. 11, б представлена точками экспериментальная зависимость длины растущих доменов от величины внедряемого заряда на исходной площадке с размерами 1×1 мкм², который рассчитывался из значений использованных доз облучения, без учета количества вылетающих из образца отраженных и вторичных электронов. Сплошная линия на этом рисунке соответствует экспоненциальной зависимости $l_d = l_0 \exp(q/q_0)$ с параметрами $l_0 = 22.6$ мкм и $q_0 = 17.5$ пКл. Таким образом, длина индивидуальных доменов при пороговой дозе составляет около 30 мкм и после порога, с увеличением количества внедренных зарядов, возрастает экспоненциально.

Подобное поведение не согласуется с моделью переполяризации, предполагающей, что она определяется величиной электрического поля, создаваемого внедряемым зарядом точечной природы [12]. Действительно, относительное количество покидающих образец электронов, при энергии первичных электронов в 25 кэВ, для ниобата лития может быть значительно меньше, чем число электронов, проникающих в образец на глубину в несколько микрон и захваченных глубокими энергетическими ловушками [13]. Ниобат лития является диэлектрическим материалом с большим числом дефектов разного типа [14], поэтому можно принять для него коэффициент эмиссии электронов имеющим порядок 0.5-0.6 [15]. С учетом этого в рамках модели [12] можно оценить величину критического электрического поля, которое создают захваченные отрицательные заряды при пороговой дозе формирования доменов в РЭМ, и которое способствует переключению спонтанной поляризации и дальнейшему росту формирующихся доменов. Такие оценки показывают, что на расстоянии в 3-4 микрона от зоны облучения поле внедренных зарядов сохраняет значения, близкие к коэрцитивному полю для конгруэнтного ниобата лития ($E_c = 2.1 \times 10^7$ В/м [14]). Однако в экспериментах получено, что домены успешно прорастают в направлении оси $+Z$ на расстояния в несколько десятков микрон, когда величина поля уже значительно ниже коэрцитивного. Кроме того, если длина индивидуального домена определяется некоторым значением электрического поля, создаваемым точечным зарядом, то ее зависимость от величины внедряемого заряда должна иметь вид $l_d \sim \sqrt{q}$.

Боковой рост, или тангенциальное расширение индивидуальных доменов практически не менялось при увеличении числа внедряемых зарядов. При облучении участка в (1×1) мкм² домены почти сразу имели ширину в несколько микрон.

Периодические доменные структуры формировались в результате стыковки отдельных доменов после нанесения серии локальных облучений, расположенных

вдоль направления Z , и параллельно оси X . Результат рисования электронным лучом доменных решеток такого типа показал, что в начале процесса рисования формируется достаточно нарушенная доменная структура с четкими стыковочными рядами между отдельными доменами. Постепенно, с увеличением числа облученных участков, доменная структура становится более совершенной. Типичный пример такой доменной решетки представлен на рис. 12. Относительные размеры участка с совершенной доменной структурой увеличивались с дозой облучения, а также при увеличении числа локальных зарядов, выстраиваемых в ряд по оси X .

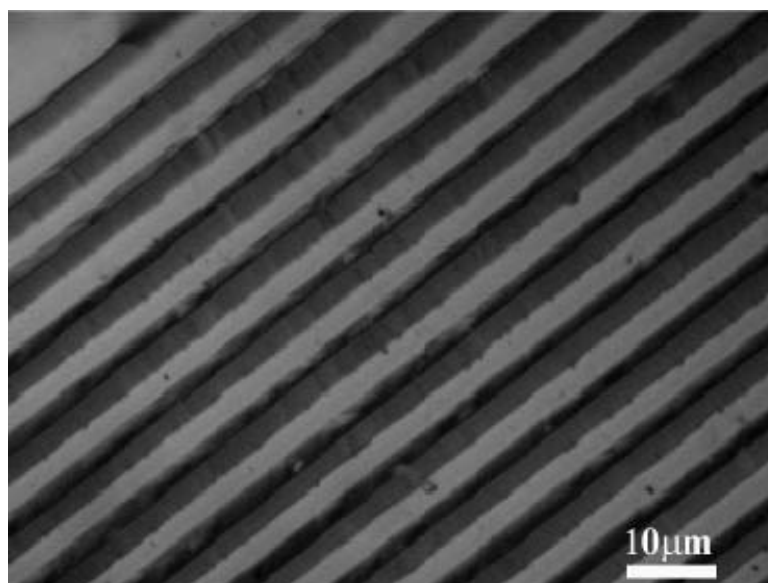


Рис. 12. Изображение типичной совершенной части сформированной на Y -срезе кристалла LiNbO_3 планарной доменной решетки с пространственным периодом $\Lambda=7$ мкм, полученное после селективного химического травления. Отношение поперечных размеров противоположно направленных доменов близко к 1

Совершенство формируемых электронным лучом ПДС существенно зависело также от направления его перемещения по оси Z . Перемещение луча при нанесении локальных облучений осуществлялось либо в сторону полярной стороны кристалла $+Z$, либо в сторону $-Z$. В последнем случае относительная длина совершенной части структуры при тех же параметрах облучения снижалась почти в два раза. Это объясняется тем, что из зоны облучения домены растут в направлении $+Z$. При движении луча в сторону $-Z$ на пути каждого нового домена уже есть домен от предыдущего облучения, затрудняющий рост последующего. Следует отметить, что в

кристаллах танталата лития Y -среза это влияние предыдущих доменов приводило к значительно более резкому сокращению длины последующих [11].

Как уже отмечалось, наиболее совершенные планарные ПДС были сформированы при перемещении луча в направлении $+Z$. Типичные латеральные размеры таких структур обычно больше размеров зоны облучения и представлены на рис. 13. Данное потенциальное изображение получено при ускоряющем напряжении в 2 кэВ еще до химического травления поверхности образца. Форма конечной части планарной решетки состоит из доменов, свободно растущих после нанесения последнего ряда локальных облучений. Как видно из рисунка, эта конечная часть имеет полуовальную форму. Домены, растущие из центральной зоны облучаемого квадрата, имели максимальную длину, которая возрастала с величиной использованной при рисовании дозы облучения.

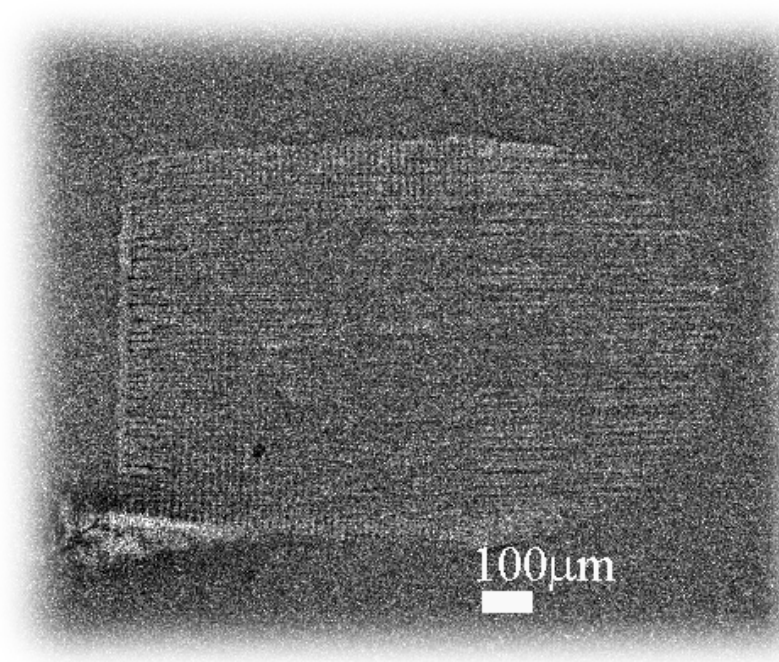


Рис. 13. Потенциальное изображение планарной доменной решетки на Y -срезе ниобата лития, сформированное при облучении участка поверхности с размерами 700×700 мкм² (доза $D_{irr} = q/S_{irr} = 800$ мкКл/см²)

Для оптических исследований в образцах ниобата лития были сформированы доменные решетки двух типов - при движении электронного луча по направлению к $+Z$, и при его обратном движении к $-Z$. При этом использовались дозы $D = 800-1100$ мкКл/см², являющиеся оптимальными для формирования структур такого типа.

Оптическая характеристика планарных ПДС. Планарные ПДС в нелегированном ниобате лития визуализировались методом микроскопии ГВГ [16] при засветке Y -поверхности образца пучком лазерного излучения ($\lambda = 1053$ нм) с длительностью импульсов 10 нс и энергией 200 мкДж. Изображение ПДС наблюдалось на длине волны 526.5 нм с противоположной стороны образца с помощью микроскопической системы. Пример такого изображения для всех сформированных на подложке 15-ти ПДС на фоне несинхронной ГВГ в объеме кристалла, полученного при засветке всей его поверхности, представлен на рис. 14.

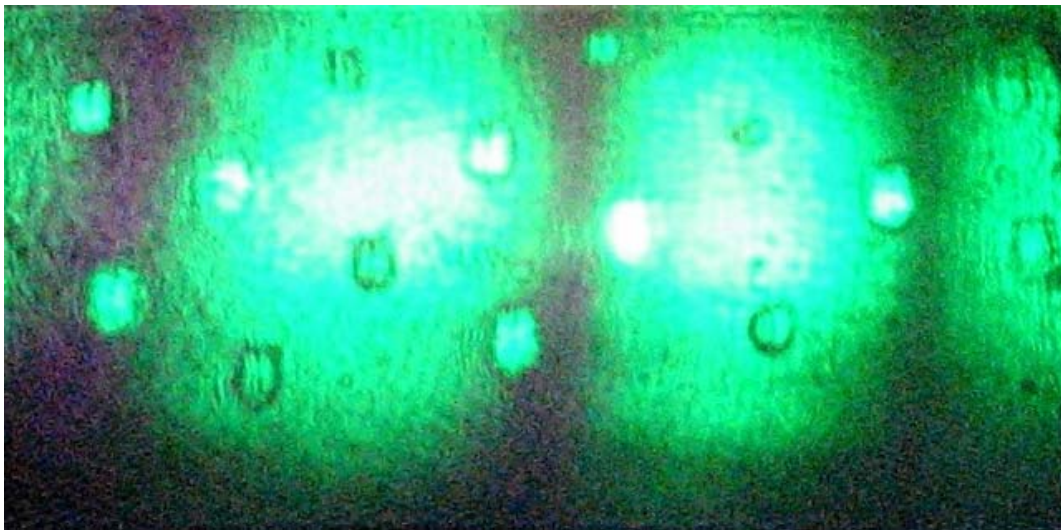


Рис. 14. Изображение 15-ти планарных ПДС в нелегированной подложке LiNbO_3 , полученное при засветке всей поверхности образца

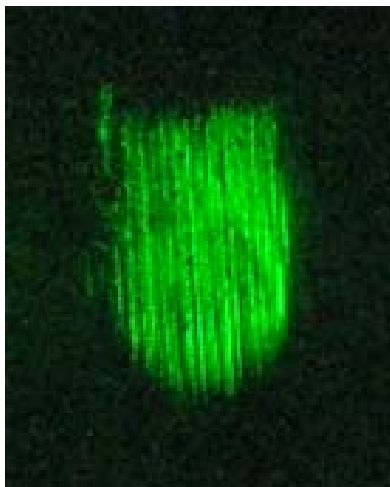


Рис. 15. Изображение отдельной ПДС, сформированной в нелегированной подложке LiNbO_3 электронным пучком

Картина ГВГ на отдельной ППДС, снятая с более высоким пространственным разрешением и показанная на рис. 15, отображает форму созданной электронным лучом планарной доменной решетки. Как видно, она аналогична наблюдаемой по потенциальному изображению, представленному на рис. 13.

Список использованной литературы

1. Ярив А., Юх П. Оптические волны в кристаллах. – М.: Мир, 1987. – 468 с.
2. Дмитриев В.Г., Тарасов Л.В. Прикладная нелинейная оптика. – М.: ФИЗМАТЛИТ, 2004. – 512 с.
3. Шен И.Р. Принципы нелинейной оптики. – М.: Мир, 1989. – 557 с.
4. Прикладная нелинейная оптика: учебное пособие / П. П. Гейко. – Томск: ТУСУР, 2007. – 109 с.
5. Блистанов А.А. Кристаллы квантовой и нелинейной оптики. Учебное пособие для студентов. – М.: МИСИС, 2000. – 232 с.
6. Справочник по лазерам. / Под ред. акад. А.М. Прохорова. В 2-х томах. Т. II. – М.: Сов. радио, 1978. – 400 с.
7. Dmitriev V.G., Gurzadyan G.G., Nikogosyan D.N. Handbook of Nonlinear Optical Crystals. – N.Y.; B.: Springer-Verlag. 3-rd Revised Edition, 1999. – 413 p.
8. Fejer M.M., Magel G.A., Jundt D.H., Byer R.L. Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerances // IEEE J. Quantum Electron. – 1992. – V. 28, No 11. – P. 2631-2654.
9. Голенищев-Кутузов А.В., Голенищева-Кутузов В.А., Калимуллин Р.И. Индуцированные домены и периодические доменные структуры в электро- и магнитоупорядоченных веществах // УФН. – 2000. – Т. 170, № 7. – С. 697-712.
10. Коханчик Л.С., Бородин М.В., Шандаров С.М., Буримов Н.И., Волк Т.Р., Щербина В.В. Периодические доменные структуры, сформированные электронным лучом в пластинах LiNbO_3 и планарных волноводах $\text{Ti}:\text{LiNbO}_3$ Y-ориентации // ФТТ. – 2010. – Т. 52, вып. 8. – С. 1602-1609.
11. Kokhanchik L.S., Punegov D.V. Micro-scale domain structure formation by e-beam point writing on the Y cut surfaces of LiTaO_3 crystals // Proc. SPIE. – 2008. – V. 7025. – P. 70250J1-8.
12. Nutt A.C.G., Gopalan V., Gupta M.C. Domain inversion in LiNbO_3 using direct electron-beam writing // Appl. Phys. Lett. – 1992. – V. 60. – P. 2828-2830.
13. Cazaux J. Some consideration on the electric field induced in insulators by electron bombardment // J. Appl. Phys. – 1986. – V. 59. – P. 1418-1430.
14. Volk T., Wöhlecke M. Lithium Niobate: Defects, Photorefraction and Ferroelectric Switching. – Berlin; Heidelberg: Springer-Verlag, 2008. – 247 p.

15. Li D.B., Strachan D.R., Ferris J.H., Bonnell D.A.. Polarization reorientation in ferroelectric lead zirconate titanate thin films with electron beams // *J. Mater. Res.* – 2006. – V. 21. – P. 935-940.
16. Soergel E. Visualization of ferroelectric domains in bulk single crystals // *Appl. Phys. B.* – 2005. – V. 81. – P. 729-752.

Учебное пособие

Шандаров Станислав Михайлович

Введение в нелинейную оптику

Усл. печ. л. Препринт
Томский государственный университет
систем управления и радиоэлектроники
634050, г.Томск, пр.Ленина, 40