

**ТВЕРДОТЕЛЬНЫЕ ЛАЗЕРЫ
И НЕЛИНЕЙНОЕ ПРЕОБРАЗОВАНИЕ ЧАСТОТЫ**

УДК 535.32/58

**НЕЛИНЕЙНО-ОПТИЧЕСКИЕ ПРОЦЕССЫ
В ДОМЕННЫХ СТРУКТУРАХ ТЕТРАБОРАТА СТРОНЦИЯ**

© 2009 г. А. С. Александровский*, **, А. М. Вьюнышев*,
И. Е. Шахура**, А. И. Зайцев*, **, А. В. Замков*

*Институт физики им. Л.В. Киренского Сибирского отделения РАН, 660036 Красноярск, Россия

**Сибирский федеральный университет, 660041 Красноярск, Россия

E-mail: aleksandrovsky@kirensky.ru

Поступила в редакцию 22.01.2009 г.

Исследован случайный квазисинхронизм в нерегулярной доменной структуре тетрабората стронция при нелинейно-оптической генерации излучения на 266 нм. Определен фактор увеличения эффективности генерации второй гармоники за счет случайного квазифазового синхронизма. Рассчитаны спектральные зависимости генерации второй гармоники и показана возможность оптимизации ее эффективности при фиксированной длине волны накачки за счет поворота доменной структуры.

PACS: 42.70.Mp, 42.25.Dd, 42.65.Ky, 77.80.Dj

Известные способы эффективной генерации излучения предполагают выполнение условия фазового синхронизма, которое заключается в равенстве фазовых скоростей взаимодействующих волн в нелинейной среде. Однако в силу определенных ограничений последнее не всегда возможно. Эффективное преобразование также может быть достигнуто посредством квазифазового синхронизма [1] в регулярных доменных структурах, представляющих собой чередующиеся области с противоположно ориентированным вектором статической поляризации. Однако изготовление структур со строгой периодичностью сопряжено с определенными трудностями. Вопрос об отклонении реальных доменных структур от совершенных, в которых реализуется квазифазовый синхронизм, был рассмотрен в [2]. Анализ показал, что различного рода отклонения приводят к фазовому рассогласованию, что критически сказывается на эффективности преобразования. В работе [3] было предсказано, что в достаточно сильно разупорядоченных доменных структурах эффективность преобразования линейно растет с толщиной образца в отличие от квадратичного роста, характерного для структур, в которых реализован точный квазифазовый синхронизм. Подтверждение этого факта было экспериментально продемонстрировано на примере поликристаллического образца ZnSe с доменами, толщины которых несколько отличались от среднего значения, равного длине когерентности [4]. Теоретическое рассмотрение структур с высокой степенью разупорядоченности, когда размер отдельных доменов отличался в соответствии с распределением Гаусса на 1, 10 и 32% от среднего, в общем

случае равной длине когерентности, также приводит к аналогичным выводам [5]. Тип синхронизма, реализуемый в таких нерегулярных доменных структурах, получил название случайного квазифазового синхронизма.

Обнаруженные недавно доменные структуры в кристаллах тетрабората стронция (SBO) [6] характеризуются более высокой степенью разупорядоченности в сравнении со структурами, рассмотренными в работах [4, 5]. В данной работе приводятся результаты экспериментальных исследований коллинеарной генерации второй гармоники (ГВГ) с помощью нерегулярных доменных структур SBO, а также их расчетные спектральные характеристики.

Тетраборат стронция привлекает внимание в качестве нелинейно-оптического материала благодаря уникальному сочетанию свойств — его область прозрачности ограничена 125 нм в ультрафиолетовой области спектра [7] на фоне относительно высоких значений нелинейной восприимчивости [7, 8]. Кроме того, SBO имеет высокий порог оптического пробоя [9], что делает его пригодным для нелинейно-оптического преобразования фемтосекундных импульсов. Несмотря на весьма малое двупреломление, в SBO была реализована ГВГ фемтосекундных импульсов [7] в отсутствие фазового синхронизма. Для создания регулярных доменных структур используются сегнетоэлектрические кристаллы. На сегодняшний день отсутствуют данные, подтверждающие наличие сегнетоэлектрических свойств у SBO. Несмотря на это, в процессе роста в кристаллах SBO образуются нерегулярные доменные структуры, пригодные для нелинейно-оптического преобра-

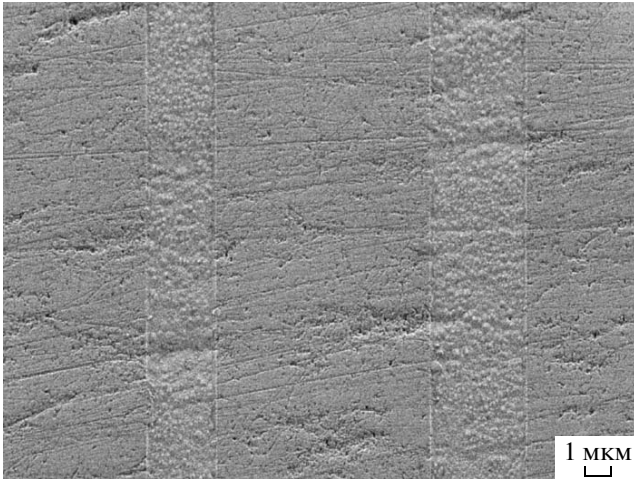


Рис. 1. Участок доменной структуры SBO после химического травления (электронный микроскоп JEOL JSM 7001).

зования [8]. Исследуемый образец содержит доменные структуры с высокой степенью упорядоченности вдоль кристаллографических осей *b* и *c*, но сильно разупорядоченные вдоль кристаллографической оси *a*. Участок доменной структуры, выявленный с помощью химического травления, представлен на рис. 1.

Явление случайного квазифазового синхронизма наблюдается при распространении излучения накачки через нерегулярную доменную структуру исследуемого образца SBO в направлении кристаллографической оси *a*. Используя подход, развитый в работах [4, 5], суммарную амплитуду поля, генерируемого отдельными доменами, можно вычислить с помощью выражения

$$E_{2\omega} = \sum_{n=1}^N \left[\frac{2\omega^2 \chi_n^{(2)}}{k_{2\omega}(\theta) \Delta k(\theta)} E_{\omega}^2 \{ \exp[i\Delta k(\theta) d_n] - 1 \} \times \exp \left(i\Delta k(\theta) \sum_{r=n+1}^N d_r \right) \right], \quad (1)$$

где d_n – толщина отдельного домена, $\chi_n^{(2)} = (-1)^n |\chi^{(2)}|$ – его нелинейная восприимчивость второго порядка, θ – внутренний угол поворота доменной структуры, $\Delta k(\theta)$ – волновой вектор фазового рассогласования, учитывающий анизотропию показателей преломления.

При преобразовании излучения с фиксированной длиной волны может оказаться, что интерференция вкладов всех доменов в генерируемое поле является полностью деструктивной, как показано на рису. 2 при соответствующей длине

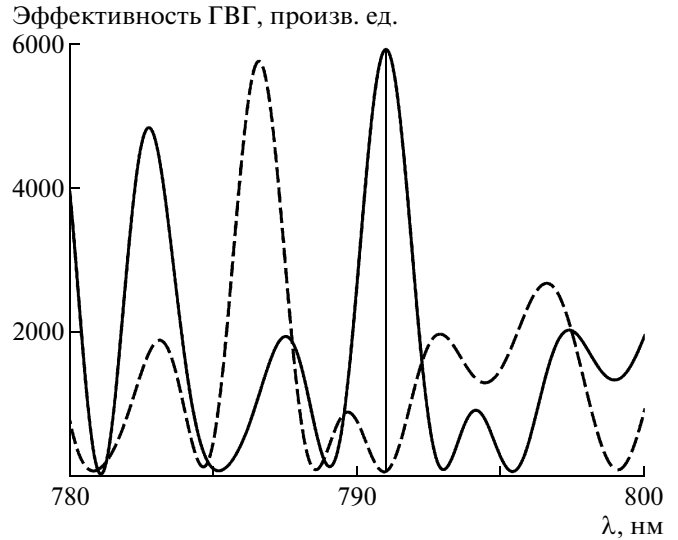


Рис. 2. Эффективность ГВГ вблизи максимума перестроечной кривой титан-сапфирового лазера при падении излучения под разными углами. Штриховая кривая соответствует распространению излучения вдоль кристаллографической оси *a* ($\theta = 0^\circ$). Сплошная кривая соответствует повороту кристалла на угол $\theta = 9.6^\circ$.

волны 791 нм. В этом случае поворотом кристалла можно модифицировать спектральную зависимость так, что на требуемой длине волны появится максимум.

Теоретически это преобразование можно описать с использованием модифицированной формулы (1):

$$E_{2\omega} = \sum_{n=1}^N \left[\frac{2\omega^2 \chi_n^{(2)}}{k_{2\omega}(\theta) \Delta k(\theta)} E_{\omega}^2 \left\{ \exp \left[i\Delta k(\theta) \frac{d_n}{\cos \theta} \right] - 1 \right\} \times \exp \left[i\Delta k(\theta) \sum_{r=n+1}^N \frac{d_r}{\cos \theta} \right] \right] \sqrt{F(\theta_{\text{ext}})}, \quad (2)$$

где θ – внутренний угол, $\sqrt{F(\theta_{\text{ext}})}$ – фактор огибающей, который для SBO вычисляется по формуле

$$F(\theta_{\text{ext}}) = \frac{|P_2^{\text{NL}}|^2 w^{(2\omega)} (w^{(\omega)} + \cos \theta_{\text{ext}})}{(w^{(2\omega)} - w^{(\omega)})^2 (w^{(2\omega)} + w^{(\omega)}) (w^{(2\omega)} + \cos \theta_{\text{ext}})^3}, \quad (3)$$

где θ_{ext} – внешний угол, $P_2^{\text{NL}} = \cos^2 \theta_{\text{ext}} / (w^{(\omega)} + \cos \theta_{\text{ext}})^2$, $w^{(2\omega)} = (n_2^{(2\omega)})^2 - \sin^2 \theta_{\text{ext}})^{1/2}$, $w^{(\omega)} = (n_2^{(\omega)})^2 - \sin^2 \theta_{\text{ext}})^{1/2}$.

Фактор огибающей (3) учитывает угловую зависимость коэффициентов преломления в анизотропном кристалле, угловое изменение нелинейных коэффициентов и угловую зависимость коэффициентов френелевского отражения. В

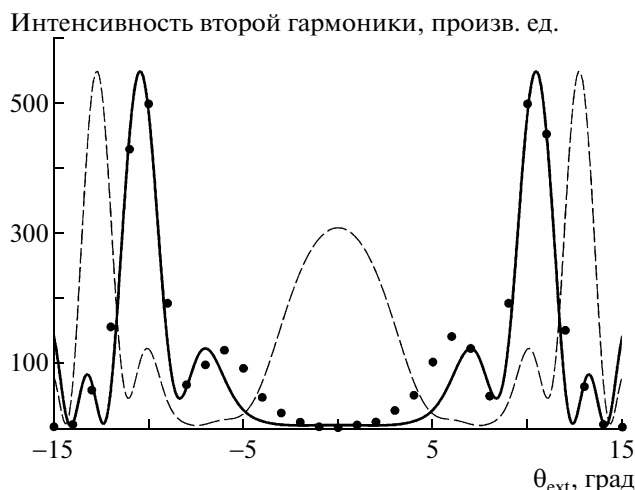


Рис. 3. Угловая зависимость ГВГ в условиях случайного квазифазового синхронизма в нерегулярной доменной структуре SBO. Точками показаны экспериментальные данные. Штриховая линия — теоретическая кривая при расчетном Δk , сплошная линия — теоретическая кривая при $\Delta k = 1.0035\Delta k_{\text{calc}}$, точки — эксперимент.

общем случае вычисление этого фактора представляет собой весьма сложную задачу. Однако мы воспользовались тем, что по нашим данным доменные стенки являются весьма тонкими (рис. 1), и с точки зрения линейных оптических коэффициентов доменную структуру можно считать однородной. В таком случае мы воспользовались формулой для фактора огибающей, полученной для однородного кристалла класса симметрии $mm2$ [10].

На рис. 2 приведены результаты расчета ГВГ излучения, лежащего вблизи максимума перестроечной кривой титан-сапфирового лазера. Из рисунка видно, что при соответствующем подборе угла поворота интерференция вкладов доменов может смениться с полностью деструктивной на более конструктивную. При малых углах поворота наблюдается, как правило, сдвиг спектральной зависимости, но в общем случае возможны одновременный сдвиг и изменение формы спектральной кривой [11]. Таким образом, представляет интерес изучение угловых зависимостей случайного квазифазового синхронизма.

Экспериментальное исследование этой зависимости выполнено при использовании излучения накачки на длине волны 532 нм для процесса ГВГ этого излучения с длиной волны 266 нм. Теоретическая и экспериментальная угловые зависимости сигнала на удвоенной частоте при повороте кристалла вокруг оси, совпадающей с направлением поляризации накачки, представлены на рис. 3. Данные зависимости хорошо согласуются с результатами теоретических расчетов по формуле (2) в диапазоне углов поворота от -15° до 15° .

Первоначально для построения теоретической кривой использовалось расчетное значение волновой расстройки, полученное с использованием показателей преломления, вычисленных по формуле Зельмайера с коэффициентами из [9]. При этом согласие расчетной зависимости с экспериментом оказалось невысоким. Расчетная кривая очень чувствительна к изменению величины Δk . В связи с этим для сопоставления экспериментальных и расчетных данных использовался метод наименьших квадратов. В качестве варьируемой величины была взята волновая расстройка, поскольку точность ее определения определяется точностью аппроксимации показателей преломления. Наилучшее согласие наблюдается при $\Delta k = 1.0035\Delta k_{\text{calc}}$. Для определения фактора увеличения эффективности ГВГ за счет случайного квазисинхронизма в качестве образца сравнения использовался монодоменный образец толщиной 432 мкм. Фактор увеличения эффективности ГВГ при случайном квазисинхронизме в нерегулярной доменной структуре, соответствующей углу поворота 10° , составил 501 по отношению к эффективности ГВГ в монодоменном образце при нормальном падении излучения. Экспериментальное значение данного фактора практически совпадает с расчетным, равным 500.

Наибольший практический интерес представляет ГВГ излучения ближнего УФ диапазона, в частности, излучения на длине волны 354.7 нм, поскольку вторая гармоника этого излучения попадает в полосы интенсивного поглощения большинства известных нелинейных кристаллов, кроме SBO. На рис. 4 приведен результат расчета эффективности ГВГ вблизи указанной длины волны. Расчеты показывают, что для достижения максимальной эффективности ГВГ в исследуемом образце на данной длине волны необходим поворот доменной структуры на 3.1° . При этом увеличение эффективности ГВГ в условиях случайного квазифазового синхронизма по сравнению с несинхронной генерацией составляет 1600 раз. Для сравнения показана эффективность ГВГ в идеальной регулярной доменной структуре той же толщины, что и нерегулярная структура в исследуемом образце. Эта эффективность в 8000 раз выше, чем в исследуемом образце, однако, как уже отмечалось, в настоящее время технологии создания таких регулярных структур в SBO не существует. Из вышесказанного следует важность разработки такой технологии. Отметим, что спектральная ширина пика случайного квазисинхронизма на длине волны в области 355 нм в исследуемой доменной структуре составляет порядка 100 ГГц. Такую же ширину имеет пик квазисинхронизма в идеальной регулярной доменной структуре. Это означает, что ограничения на ширину спектра в случае регулярной доменной

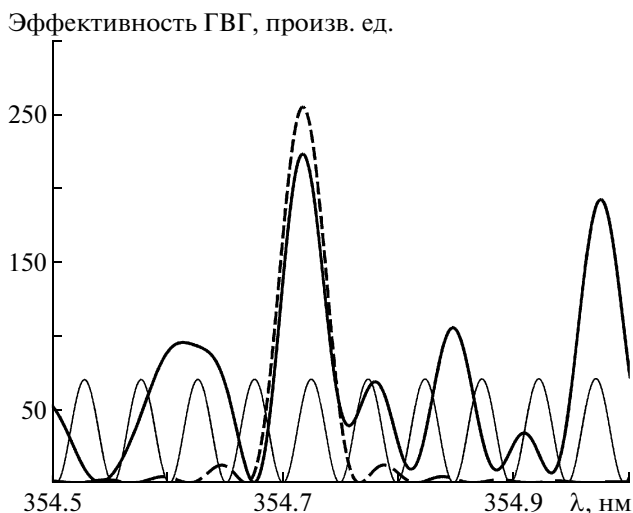


Рис. 4. Спектральная зависимость эффективности ГВГ в области длин волн вблизи 354.7 нм. Тонкая сплошная кривая соответствует монокристаллическому образцу. Толстая сплошная кривая соответствует нерегулярной доменной структуре в исследуемом образце, повернутом на 3.1° . Пунктирная линия – кривая синхронизма для регулярной доменной структуры.

структуры и рандомизированного образца, исследуемого в нашей работе, практически одинаковы.

Работа выполнена при поддержке РФФИ, проекты 07-02-00497 и 09-02-00690, грантов Президента РФ в поддержку ведущих научных школ НШ-1011.2008.2, НШ-3818.2008.3, гранта

РНП.2.1.1.1814 и Междисциплинарного интеграционного проекта СО РАН № 33.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Armstrong J.A., Bloembergen N., Ducuing J., Pershan P.S.* // *Phys. Rev.* 1962. V. 127. P. 1918–1939.
2. *Fejer M.M., Magel G.A., Jundt D.H., Byer R.L.* // *J. Quant. Electron.* 1992. V. 28. P. 2631–2654.
3. *Морозов Е.Ю., Каминский А.А., Чиркин А.С., Юсупов Д.Б.* // *Письма в ЖЭТФ.* 2001. Т. 73. В. 12. С. 731–734.
4. *Baudrier-Raybaut M., Haidar R., Kupecek Ph., Lemasson Ph., Rosencher E.* // *Nature.* 2004. V. 432. P. 374–376.
5. *Vidal X., Martorell J.* // *Phys. Rev. Lett.* 2006. V. 97. P. 013902.
6. *Zaitsev A.I., Aleksandrovsky A.S., Vasiliev A.D., Zamkov A.V.* // *J. Crystal Growth.* 2008. V. 310. P. 1–4.
7. *Petrov V., Noack F., Dezhong Shen, Feng Pan, Guangqui Shen, Xiaoqing Wang, Komatsu R., Alex V.* // *Opt. Lett.* 2004. V. 29. P. 373.
8. *Aleksandrovsky A.S., Vyunishev A.M., Zaitsev A.I., Zamkov A.V., Arkhipkin V.G.* // *J. Opt. A.* 2007. V. 9. P. 334–338.
9. *Oseledchik Yu.S., Prosvirnin A.I., Starshenko V.V., Osadchuk V., Pisarevsky A.I., Belokryz S.P., Korol A.S., Svitanko N.V., Krikunov S.A., Selevich A.F.* // *Opt. Mater.* 1977. V. 4. P. 669–674.
10. *Bechthold P.S., Haussuhl S.* // *Appl. Phys.* 1977. V. 14. P. 403–410.
11. *Aleksandrovsky A.S., Vyunishev A.M., Shakhura I.E., Zaitsev A.I., Zamkov A.V.* // *Phys. Rev. A.* 2008. V. 78. P. 031802.