

УДК 535.32/58

*А.С. АЛЕКСАНДРОВСКИЙ\**, *\*\**, *А.М. ВЬЮНЫШЕВ\**, *\*\**, *Г.И. ПОСПЕЛОВ\*\**, *В.Е. РОВСКИЙ\*\**, *В.В. СЛАБКО\*\****РАСЧЕТ СПЕКТРАЛЬНЫХ ЗАВИСИМОСТЕЙ ПАРАМЕТРИЧЕСКОГО УСИЛЕНИЯ ИЗЛУЧЕНИЯ В НЕЛИНЕЙНОМ ФОТОННОМ КРИСТАЛЛЕ ТЕТРАБОРАТА СТРОНЦИЯ<sup>1</sup>**

Расчитаны спектральные зависимости параметрического усиления сигнальной волны в нерегулярной доменной структуре кристалла тетрабората стронция. Выявлено влияние дисперсии коэффициентов нелинейной связи на форму спектра. Форма спектральной зависимости сигнала от длины волны излучения накачки определяется соотношением волновой расстройки для текущего процесса и распределением размеров доменов в структуре. Максимальная ширина центральной части спектра достигается при значениях длины волны накачки вблизи 532 нм и составляет 0,9 единиц относительной частотной шкалы, что значительно превышает результат, полученный другими авторами в рандомизированной структуре. Ширина корреляционной функции определяется полной шириной спектра и составляет 2,5 фс при накачке на длине волны 527 нм.

*Ключевые слова:* нелинейный фотонный кристалл, тетраборат стронция, бифотоны.

Более 40 лет процессы преобразования частоты и параметрическое усиление излучения известны, как способы, позволяющие значительно расширить спектральный диапазон перестройки лазеров. Сегодня функционирующие на этих принципах параметрические усилители и генераторы света находят широкое применение в различных областях науки и техники как компактные коммерческие источники перестраиваемого лазерного излучения. В 1986 г., когда Хонг, Оу и Мандел в своей работе обнаружили, что два фотона (бифотоны), рожденные в результате спонтанного параметрического рассеяния (СПР), имеют также сильную взаимную корреляцию [1], параметрический распад света вновь обратил на себя внимание исследователей. Стандартной методикой реализации СПР является генерация сигнала в условиях углового синхронизма, который накладывает ограничения на длительность генерируемых импульсов из-за конечной спектральной ширины синхронизма, в то время как современные тенденции диктуют укорочение длительности передаваемых сигналов и повышение информационной емкости каналов. Решение данной проблемы заключается в поиске путей создания нелинейно-оптического преобразователя с экстремально широкой полосой синхронизма. Недавно в работе Харриса предсказано, что широкий спектральный континуум бифотонов может быть получен посредством спонтанного параметрического рассеяния излучения в нелинейной среде с линейно-зависимым вектором обратной сверхрешетки доменной структуры (чирпированная структура) [2]. Как показано в этой работе, наличие доменов различной толщины в упорядоченной чирпированной доменной структуре позволяет получать волновые пакеты бифотонов с соотношением граничных частот порядка 10. В работе [3] докладывалось об экспериментальной генерации ультраширокого двухфотонного волнового пакета протяженностью около 300 нм, полученного в результате спонтанного параметрического рассеяния излучения в кристалле танталата лития с периодически поляризованными доменами и линейной зависимостью вектора обратной сверхрешетки. Использование модулированных нелинейных структур позволяет также манипулировать временными характеристиками бифотонных состояний, такими, как время взаимной корреляции и др. [3, 4]. Это может быть полезным при решении ряда задач квантовой оптики, при проведении экспериментов в области квантовой информатики и метрологии, а также при спектроскопических исследованиях. С другой стороны, СПР может быть осуществлено в кристаллах, содержащих домены, рандомизированные по толщине [5]. В этом случае обмен энергией между взаимодействующими волнами реализуется в условиях стохастического фазового квазисинхронизма [6]. Эффективность преобразования в рандомизированных доменных структурах значительно ниже, чем в упорядоченных, однако спектр векторов обратной решетки типичной рандомизированной среды позволяет осуществлять нелинейно-оптическое преобразование в достаточно широком спектральном диапазоне [7].

<sup>1</sup> Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки РФ (контракт 16.740.11.0150 и грант 2.1.1/3455), РФФИ (грант 12-02-31167), РАН (проекты 24.29 и 24.31), Отделения физических наук РАН (проекты 2.5.2 и 3.9.5), СО РАН (проекты 43 и 101), Сибирского федерального университета (грант СФУ Ф12).

Упомянутые выше работы [2, 4, 5] посвящены теоретическому исследованию процесса спонтанного параметрического распада в модельных чирпированных и рандомизированных структурах. В используемых в этих работах методиках, например в работе [2], процессы усиления генерируемых бифотонов при распространении излучения не учитываются, что является вполне корректным в силу малости амплитуды бифотонного поля. При использовании этих методик корректно учитывается частотная зависимость амплитуды поля вакуумного состояния, которое является затравочным для процесса спонтанного параметрического рассеяния. В рамках этих методик затруднительно выполнить расчёт для конкретной рандомизированной структуры с известными толщинами доменов, если её нельзя описать модельной статистической функцией гауссовского типа. Отметим, однако, что механизм формирования спектра бифотонов обусловлен интерференцией полей, генерируемых разными доменами на протяжении доменной структуры. Тот же самый механизм имеет место и при формировании спектральных зависимостей генерации второй гармоники, которые могут быть рассчитаны для реальных доменных структур с использованием известных решений уравнений распространения полей в классическом приближении. В связи с этим представляет интерес рассмотрение процесса параметрического усиления излучения в реальной рандомизированной доменной структуре, в качестве которой может выступать нелинейный фотонный кристалл (НФК) тетрабората стронция (SBO). Тетраборат стронция привлекает внимание в качестве нелинейно-оптического материала, благодаря уникальному сочетанию свойств; его область прозрачности ограничена 125 нм, при этом его нелинейные коэффициенты самые высокие среди кристаллов, прозрачных в дальней ультрафиолетовой области спектра. Кроме того, SBO имеет высокий порог оптического пробоя, что делает его пригодным для нелинейно-оптического преобразования интенсивных, в том числе фемтосекундных импульсов. В качестве материала для создания регулярных доменных структур используются сегнетоэлектрические кристаллы. На сегодняшний день отсутствуют данные, подтверждающие наличие сегнетоэлектрических свойств у SBO. Несмотря на это, известно, что в процессе роста в кристаллах SBO образуются нерегулярные доменные структуры, пригодные для нелинейно-оптического преобразования частоты. Доменные структуры, типичные для SBO, характеризуются высокой степенью рандомизации, так что распределение доменов не может быть достаточно хорошо описано модельными функциями, скажем, гауссовского типа (см. например, [7]). Проведённые ранее расчёты спектральных зависимостей генерации второй гармоники в таких структурах показали, что эти зависимости состоят из большого числа перекрывающихся пиков, распределённых по широкому диапазону спектра. Подобное поведение спектральных зависимостей может оказаться негативным для такой задачи, как упоминавшаяся выше генерация спектрального континуума бифотонов. В нашей работе мы сочли также интересным затронуть вопрос о влиянии дисперсии коэффициента нелинейной связи на форму спектров генерируемых излучений и общем виде спектральных зависимостей спектра усиления при произвольной длине волны накачки.

Для вычисления амплитуд полей сигнальной и холостой волны воспользуемся подходом, описанным в монографии [8]. В приближении медленно меняющихся амплитуд и в условиях пренебрежения истощением накачки  $A_3$  система трех связанных уравнений имеет решения для искомым полей сигнальной и холостой волны:

$$\begin{aligned} A_1(z) &= \left[ A_1(0) \left( \operatorname{ch} gz - \frac{i\Delta k}{2g} \operatorname{sh} gz \right) + \frac{K_1}{g} A_2^*(0) \sin gz \right] e^{i\Delta kz/2} \\ A_2(z) &= \left[ A_2(0) \left( \operatorname{ch} gz - \frac{i\Delta k}{2g} \operatorname{sh} gz \right) + \frac{K_2}{g} A_1^*(0) \sin gz \right] e^{-i\Delta kz/2}, \end{aligned} \quad (1)$$

где  $\Delta k = k_3 - k_1 - k_2$  – волновая расстройка, а выражения для  $g$  и  $K$  имеют следующий вид:

$$g = \left[ K_1 K_2^* - (\Delta k / 2)^2 \right]^{1/2}; \quad (2)$$

$$K_j = \frac{8\pi i \omega_j^2 d A_3}{k_j c^2} = \frac{8\pi i \omega_j d A_3}{n_j(\omega) c} \quad (3)$$

– коэффициент нелинейной связи, где

$$k_j = \omega_j n(\omega_j) / c, \quad j = 1, 2, 3, \quad (4)$$

– модуль волновых векторов сигнальной, холостой и волны накачки соответственно. Зависимость коэффициентов преломления от частоты излучения вычислена с использованием уравнений Зельмайера с коэффициентами [9] в предположении, что используется максимальный нелинейный коэффициент  $d_{33}$  тетрабората стронция.

В расчете предполагалось, что показатель преломления и его дисперсия одинаковы во всех доменах, а также считалось, что знак нелинейной восприимчивости второго порядка изменяется периодически от домена к домену. В таком случае вычислим амплитуды полей на выходе одного домена толщиной  $d$ . Для вычисления полей в следующем домене необходимо учесть изменение знака нелинейной восприимчивости второго порядка, а также принять в качестве начальных значений полей  $A_1(0)$  и  $A_2(0)$  значения полей сигнальной и холостой волн на выходе из предыдущего домена. Вычисляя (1) последовательно для всех доменов, получаем значения полей на выходе из доменной структуры. Проведенные нами модельные расчёты с использованием описанной методики для чирпированных и рандомизированных структур в КТР и ниобате лития, аналогичных теоретически изученным структурам в [4, 5] показали, что спектральные зависимости, полученные этим методом, хорошо согласуются с результатами [4, 5], если в уравнениях (1) не учитывается дисперсия коэффициента связи.

Информация о доменах была получена путем визуализации реальной доменной структуры оптическими методами после химического травления полярных граней. Поверхность образца была обработана 5 %-м раствором азотной кислоты в течение 10 мин при температуре 95 °С. В результате травления образовался неоднородный профиль поверхности образца. Фотография поверхности кристалла после химического травления позволяет убедиться в том, что кристалл содержит два сорта областей (доменов), характерная скорость травления которых различна. Совокупность данных областей представляет собой доменные структуры. Структуры имеют ростовую природу и рандомизированы по толщине. С помощью оптического микроскопа Carl Zeiss Axio Observer.A1m получены микрофотографии доменной структуры в плоскости [001], по которым были измерены толщины отдельных доменов. Исследуемый образец содержал домены, характеризующиеся высокой степенью упорядоченности вдоль осей  $b$  и  $c$ , но сильно разупорядоченные вдоль оси  $a$ , образуя, таким образом, одномерную структуру. Доменная структура, содержащая 262 домена, имеет размер порядка 2 мм. Среднеквадратичное отклонение толщины домена составляет 4 мкм при среднем значении 8 мкм. Явление параметрического усиления излучения в условиях стохастического фазового квазисинхронизма должно наблюдаться при распространении излучения накачки через доменную структуру исследуемого образца в направлении кристаллографической оси  $a$ .

С помощью полученных данных о доменной структуре кристалла были получены значения полей сигнальной и холостой волн на выходе из кристалла SBO. На рис. 1 приведены примеры спектральных зависимостей усиления сигнала в нерегулярной доменной структуре кристалла тетрабората стронция при накачке на длинах волн 800 нм (а) и 532 нм (б).

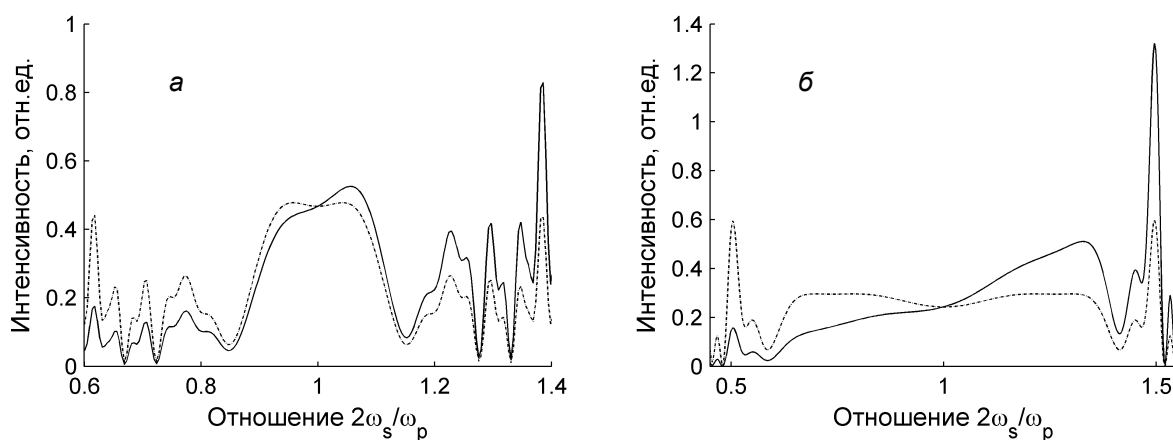


Рис. 1. Спектральная зависимость сигнала, усиливаемого в нерегулярной доменной структуре кристалла тетрабората стронция при накачке на длинах волн 800 нм (а) и 532 нм (б), пунктирная линия – без учета дисперсии коэффициентов нелинейной связи, сплошная – с учетом

Первоначально полученные спектральные зависимости имели ярко выраженную асимметричность – с увеличением частоты усиливаемого излучения увеличивалась его интенсивность.

В связи с этим представляло интерес объяснение данной зависимости. Анализируя систему уравнений (1), можно заметить, что коэффициенты  $K_j$  имеют смысл коэффициентов нелинейной связи. Из выражения (3) видно, что величина этих коэффициентов прямо пропорциональна частоте усиливаемого излучения, кроме того, обратно пропорциональна значению волнового вектора (4), который, в свою очередь, также зависит от частоты. Чтобы избавиться от зависимости коэффициентов  $K_j$  от частоты, они были вычислены для случая  $\omega_j = \omega_s = \omega_p / 2$ , в результате полученные спектральные зависимости оказались симметричными по интенсивности относительно точки  $2\omega_s / \omega_p = 1$ , которая соответствует случаю вырожденного параметрического распада излучения накачки. Спектральные зависимости без учета дисперсии коэффициентов нелинейной связи приведены на рис. 1 штриховыми линиями. Спектр сигнальной волны представляет собой набор локальных пиков, что типично для спектра излучения, генерируемого в рандомизированной структуре, однако имеется центральная часть спектра, эквивалентная континууму бифотонов в чирпированных структурах. Для рассматриваемой структуры центральная часть спектра занимает сплошную область шириной соответственно 0,2 и 0,7 отн. ед. частотной шкалы, что в случае накачки на 532 нм значительно превышает аналогичную ширину спектра, генерируемого в рандомизированной структуре, рассмотренной в работе [5].

На рис. 2 приведена трёхмерная зависимость спектра сигнала, усиленного в нелинейном фотонном кристалле тетрабората стронция, в зависимости от длины волны накачки. Для упрощения анализа дисперсия коэффициентов связи в данных расчётах исключена.

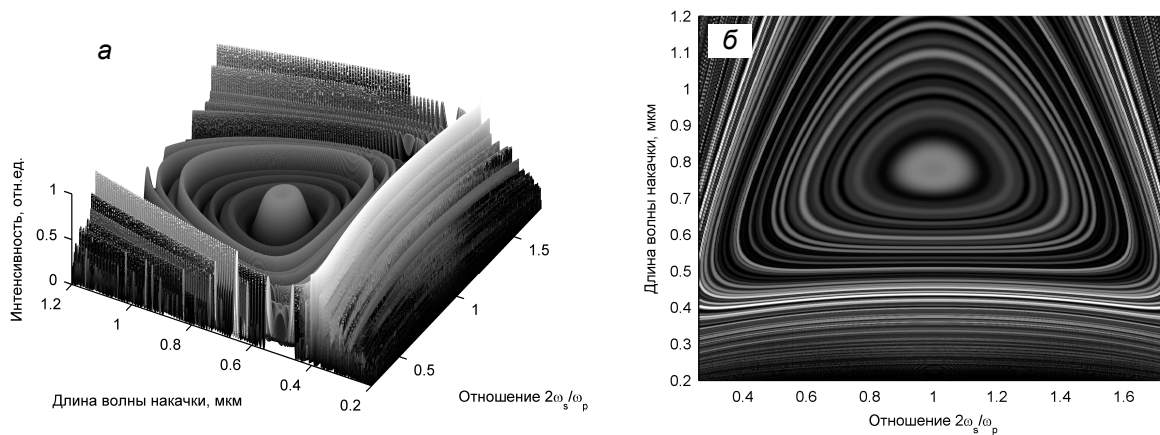


Рис. 2. Спектральная зависимость коэффициента усиления сигнальной волны в зависимости от длины волны накачки в кристалле SBO

Из рис. 2 видно, что имеется центральная область с полюсом, расположенная вблизи длины волны накачки на 800 нм, в которой ширина центральной части спектра сравнительно невелика. Наличие этого полюса объясняется поведением зависимости  $\Delta k$ . Для указанной области первая производная волновой расстройки по длине волны накачки мало отличается от нуля. Концентрические области вокруг полюса соответствуют процессам распада, для которых величина  $\Delta k$  одинакова для данного набора длин волн. Каждая отдельная изолиния вокруг полюса соответствует максимуму в спектре векторов обратной решётки НФК. Наибольшая ширина центральной части спектра усиления достигается при накачке на длине волны 527 нм, где кривизна концентрической поверхности минимальна (рис. 3). При дальнейшем уменьшении длины волны кривизна меняет знак и ширина центральной части спектра начинает уменьшаться.

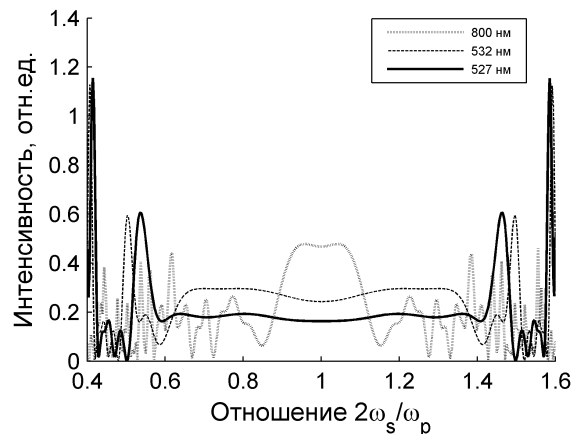


Рис. 3. Спектральная зависимость сигнала, усиливаемого в нерегулярной доменной структуре кристалла тетрабората стронция при накачке на длинах волн 800, 532 и 527 нм

Ширина центральной части данной спектральной зависимости равняется 0,9 единиц относительной частотной шкалы, что эквивалентно 1,4 мкм в шкале длин волн.

Вблизи длины волны накачки 400 нм имеется область («стенка»), в которой процессы параметрического распада происходят с большей эффективностью. Это объясняется тем, что эффективность преобразования в периодически поляризованных нелинейных структурах определяется величиной длины когерентности для данного процесса равной  $\pi/\Delta k$ . Наибольшая эффективность параметрического распада излучения наблюдается для процессов, соответствующая длина когерентности которых равна среднему размеру домена в структуре. Область построения данной зависимости ограничивается длинами волн, при которых уравнения Зельмайера дают некорректный результат, а именно, комплексный показатель преломления.

Среди имеющихся у нас образцов SBO отсутствуют структуры, в которых положения минимума дисперсии и максимума вклада доменной структуры совпадали бы по длине волны накачки. Для того чтобы исследовать спектральные зависимости для этого случая, мы с помощью компьютерного моделирования сгенерировали соответствующую рандомизированную НФК-структуру SBO, в которой средний размер домена был равен 19,47 мкм, что соответствует длине когерентности для процессов параметрического распада вблизи полюса. Построенные спектральные зависимости сигнальной волны в кристалле тетрабората стронция от длины волны накачки для двух произвольных рандомизаций приведены на рис. 4. На графиках имеется область длин волн вблизи длины волны накачки 800 нм, соответствующая полюсу на предыдущем графике, в которой наблюдается максимум эффективности преобразования излучения, кроме того, вокруг центрального пика имеются концентрические поверхности меньшей амплитуды, соответствующие процессам распада с одинаковым значением волновой расстройки. Другими словами, в данной структуре с наибольшей эффективностью протекают процессы распада в области длин волн, где величина  $\Delta k$  для кристалла SBO имеет свой минимум. Анализируя полученные результаты, можно заметить, что, несмотря на одинаковые параметры рандомизации, спектральные зависимости заметно отличаются друг от друга в каждом отдельном случае случайной структуры. Исходя из этого, можно сделать вывод, что форма спектра сигнальной волны определяется не только средним размером и среднеквадратичным отклонением величины доменов, но также их случайным распределением.

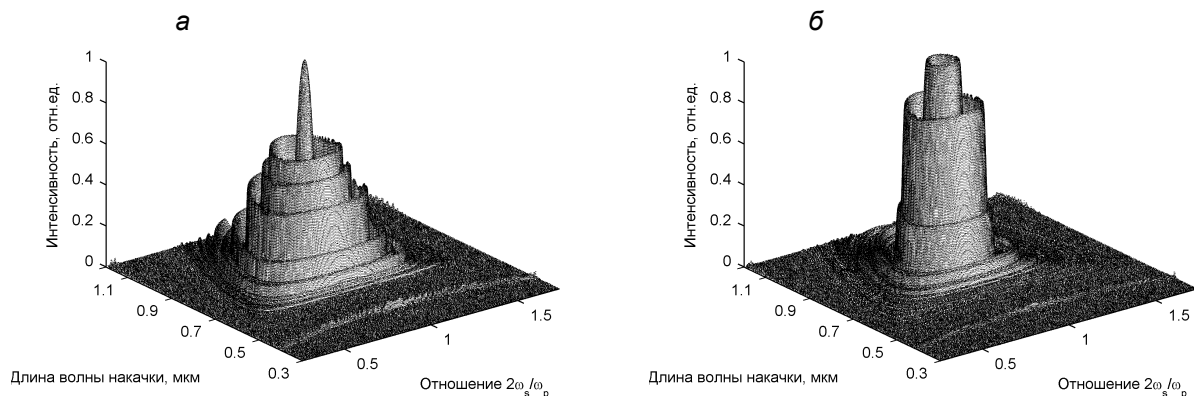


Рис. 4. Зависимость спектра сигнальной волны в зависимости от длины волны накачки в модельной структуре в кристалле SBO при совпадении «полюса» и «стенки». Зависимости *а* и *б* соответствуют двум реализациям случайной структуры при одинаковом среднем размере и среднеквадратичном отклонении

Основными величинами, характеризующими бифотонные поля, являются спектр бифотонов и корреляционная функция второго порядка (зависимость счета совпадений от временной задержки). В экспериментах с бифотонами, как правило, проводят исследования зависимости счета совместного фотодетектирования в двух каналах интерферометра Брауна – Твисса от временной задержки между сигнальным и холостым фотоном. Другими словами, измеряется не интенсивность бифотонного излучения, а степень его парной корреляции. Корреляционная функция второго порядка для случая непрерывной накачки может быть представлена следующим образом [10]:

$$G^{(2)}(\tau) \sim \left| \int d\omega F(\omega) \exp(-i\omega\tau) \right|^2, \quad (5)$$

где  $\tau$  – временная задержка между сигнальным и холостым фотоном;  $\omega$  – циклическая частота;  $F(\omega)$  – спектральная амплитуда бифотонов. Таким образом, временная амплитуда бифотонов представляет собой квадрат модуля фурье-образа спектральной амплитуды бифотонного поля.  $G^{(2)}(\tau) \sim |F(\tau)|^2$ .

Аналогичным образом по формуле (5) были вычислены корреляционные функции второго порядка как фурье-образ спектральной амплитуды бифотонного поля и построены соответствующие зависимости от величины временной задержки между сигнальным и холостым фотоном с учетом и без учета дисперсии коэффициентов нелинейной связи.

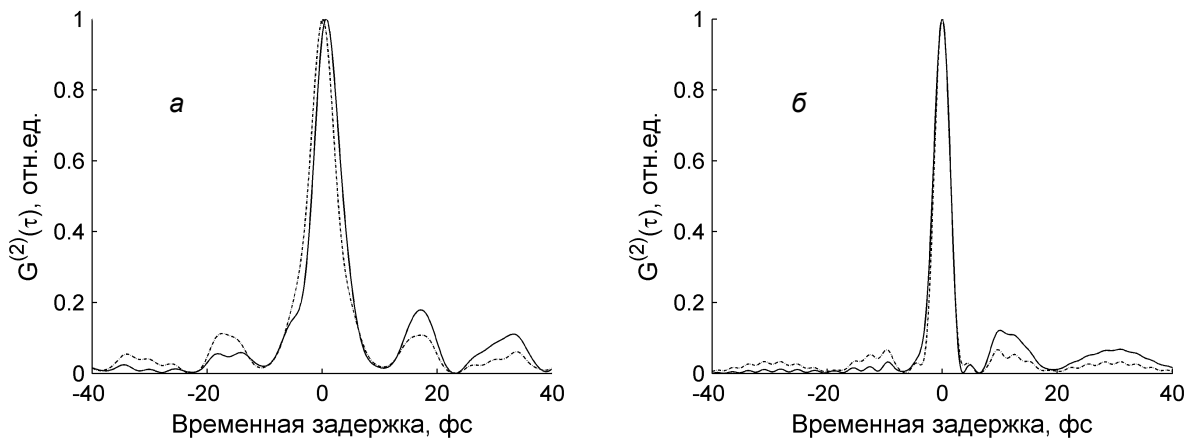


Рис. 5. Корреляционная функция второго порядка при накачке на длинах волн 800 нм (а) и 532 нм (б), пунктирная линия – без учета дисперсии коэффициентов нелинейной связи, сплошная – с учетом

Дисперсия коэффициентов нелинейной связи влияет на форму и ширину корреляционной функции второго порядка незначительно. На рис. 6 представлены корреляционные функции второго порядка при накачке на длинах волн 800, 532 и 527 нм, что соответствует случаю наибольшей ширины центральной части усиливаемого спектра.

Из рисунка видно, что наименьшая ширина корреляционной функции соответствует самому широкому спектру усиливаемого излучения; измеренная ширина центрального пика на полувысоте составила 5,8 фс при накачке на длине волны 800 нм и 2,5 фс при накачке на 532 и 527 нм соответственно. Ожидается, что для типичных НФК-структур в SBO имеется потенциальная возможность генерировать фотонные пары с длительностью волновых пакетов порядка нескольких фемтосекунд. Совместный анализ спектров усиления в нерегулярных НФК SBO и соответствующих им корреляционных функций показывает, что основным фактором, стимулирующим получение узкой корреляционной функции, является ширина спектра бифотонов в частотной шкале, в то время как наличие широкой центральной части в спектре имеет второстепенное значение. Поэтому НФК SBO потенциально позволяют получить более узкие корреляционные функции за счёт прозрачности тетрабората стронция в коротковолновой области, так как в этом случае возможно использование более коротких длин волн накачки. Влияние дисперсии при распространении излучения в тетраборате стронция может быть скомпенсировано дисперсионными элементами, вносящими отрицательную дисперсию.

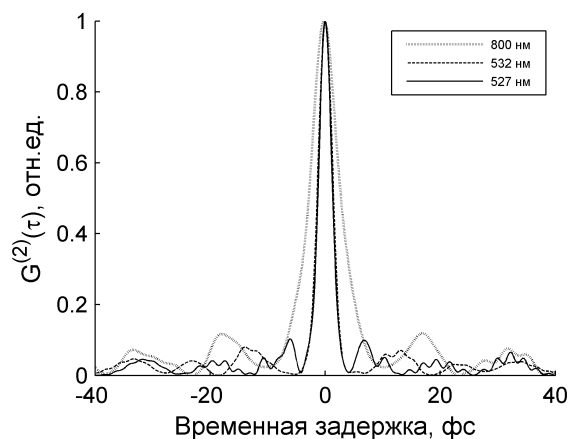


Рис. 6. Корреляционная функция второго порядка при накачке на длинах волн 800, 532 и 527 нм

Таким образом, в работе рассчитаны спектральные зависимости параметрического усиления сигнальной и холостой волн в нерегулярных НФК. Для расчёта использовались известные анали-

тические решения. Полученные спектральные зависимости в целом совпадают с результатами, полученными другими авторами с использованием более сложных методов. Наилучшее совпадение имеет место в случае, когда в аналитических решениях исключена дисперсия коэффициентов связи. В общем случае трёхмерная зависимость параметрического усиления в координатах «частота накачки – частота сигнальной волны» имеет характерный вид с двумя особенностями – «поллюсом» и «стенкой», обусловленными соответственно малостью изменения волновой расстройки в материале НФК и максимумом в распределении толщин доменов. Максимальная ширина центральной части спектра имеет место при значениях длины волны накачки в промежутке между полюсом и стенкой. Ширина корреляционных функций определяется в основном полной шириной спектра и в целом сужается при укорочении длины волны накачки, однако при этом сужение может быть немонотонным, а корреляционные функции могут испытывать искажения при изменении длины волны накачки.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ghosh R., Hong C.K., Ou Z.Y., and Mandel L. // *Phys. Rev. A.* – 1986. – V. 34. – P. 3962.
2. Harris S.E. // *Phys. Rev. Lett.* – 2007. – V. 98. – P. 063602.
3. Nasr M.B., Carrasco S., Saleh Bahaa E.A., et al. // *Phys. Rev. Lett.* – 2008. – V. 100. – P. 183601.
4. Brida G., Chekhova M.V., Degiovanni I.P., et al. // *Phys. Rev. A.* – 2010. – V. 81. – P. 053828.
5. Perina J. Jr. and Svozilik J. // *Phys. Rev. A.* – 2011. – V. 83. – P. 033808.
6. Morozov E.Y. and Chirkin A.S. // *Quantum Electron.* – 2004. – V. 34. – P. 227–232.
7. Aleksandrovsky A.S., Vyunishev A.M., Shakhura I.E., et al. // *Phys. Rev. A.* – 2008. – V. 78. – P. 031802.
8. Шен И.Р. Принципы нелинейной оптики. – М.: Наука, 1989. – 560 с.
9. Oseledchik Yu.S., Prosvirnin A.I., Starshenko V.V., et al. // *Opt. Mater.* – 1995. – V. 4. – P. 669.
10. Латыпов И.З., Калинин А.А., Шкаликов А.В. и др. // *Известия РАН. Сер. физич.* – 2009. – Т. 73. – С. 1774.

\*Институт физики им. Л.В. Киренского СО РАН, г. Красноярск, Россия

Поступила в редакцию 17.07.13.

\*\*Сибирский федеральный университет, г. Красноярск, Россия

E-mail: alexandrovsky@kirensky.ru

---

Александровский Александр Сергеевич, ст. науч. сотр. Института физики им. Л.В. Киренского, доцент Сибирского федерального университета;

Вьюнышев Андрей Михайлович, науч. сотр. Института физики им. Л.В. Киренского, науч. сотр. Сибирского федерального университета;

Поспелов Геннадий Игоревич, аспирант;

Ровский Владимир Евгеньевич, аспирант.

Слабко Виталий Васильевич, зав. кафедрой.