

Е.А. Анфимова^{1,2}, П.П. Гейко², С.М. Шандаров¹

Нелинейные кристаллы с доменной структурой для параметрической генерации света

¹Томский университет систем управления и радиоэлектроники,²Институт мониторинга климатических и экологических систем СО РАН, г. Томск

Поступила в редакцию 31.07.2006 г.

Нелинейные кристаллы с регулярной доменной структурой (РДС-кристаллы), в которых реализуется режим квазисинхронизма, позволяют эффективно получать перестраиваемое по частоте излучение в ИК-области. Ключевым свойством РДС-кристаллов является снятие любых ограничений на поляризации взаимодействующих волн. Кроме того, возможна реализация квазисинхронизма в любом направлении относительно оптических осей кристалла, что позволяет осуществить максимизацию эффективной нелинейности и подстраивать длину домена под оптимальное значение. Представлены результаты расчетов по реализации квазисинхронного взаимодействия волн в кристаллах GaAs, LiNbO₃, KNbO₃, CsTiOAsO₄, LiTaO₃ и др., проведены расчеты периодов модуляции нелинейной восприимчивости.

Введение

Использование нелинейных кристаллов с наведенной периодической структурой в аппаратуре спектроскопического дистанционного зондирования атмосферы позволяет значительно повысить ее функциональные возможности. Так, нелинейные кристаллы с регулярной доменной структурой (РДС), в которых реализуется режим квазисинхронизма, позволяют эффективно получать перестраиваемое по частоте излучение в областях спектра, где расположены характерные спектры поглощения молекул-загрязнителей [1]. В последние годы традиционно используются кристаллы с регулярной доменной структурой, такие как LiNbO₃, KNbO₃, CsTiOAsO₄, LiTaO₃ и др., с целью получения перестраиваемого по частоте излучения в окне прозрачности атмосферы 3–5 мкм для решения задач спектроскопии и дистанционного газодиагностики [2].

В 1962 г. Н. Бломберген с сотр. предложили идею использования периодической модуляции квадратичной восприимчивости для компенсации расстройки волновых векторов взаимодействующих волн. Первоначально фазовый синхронизм достигался за счет использования стопки пластинок из нелинейно-оптического материала, направление оптической оси которых от пластины к пластине меняет свой знак [3]. Толщина каждой пластины должна быть равна длине когерентности, на которой амплитуда генерируемого излучения не убывает. Поскольку согласование фаз происходит скачком, то такое взаимодействие называют квазисинхронным. Волновая расстройка между взаимодействующими волнами компенсируется за счет вектора обратной нелинейной решетки, созданной модуляцией знака нелинейной восприимчивости. Для реализации условия квазисинхронизма важно, что-

бы длина каждого домена была равна четному числу длин когерентности [4].

В дальнейшем эта идея была существенно дополнена и развита, что привело к разработке современной технологии создания высокоэффективных кристаллов с регулярной и нерегулярной доменной структурой. Такие структуры можно создать, например, периодическим вводом примесей по мере роста кристалла или подачей напряжения на периодически расположенные электроды, а также ростовыми методами [5].

Физические принципы

Прежде всего, отметим, что в отличие от фотонных кристаллов, в которых в пространстве периодически изменяются линейные и нелинейные свойства, РДС-кристаллы являются однородными по линейным оптическим свойствам.

На рис. 1 приведена схема РДС-кристалла с ориентацией доменов типа «голова к хвосту», поляризация излучения накачки и генерируемого излучения здесь одинакова и направлена вдоль оси z .

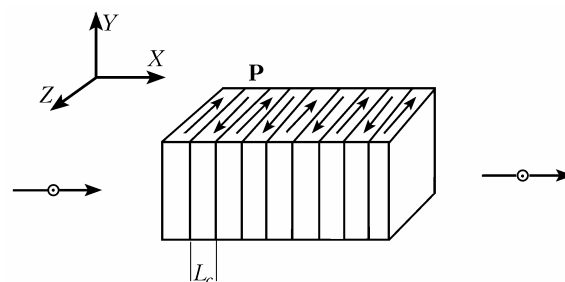


Рис. 1. Нелинейный кристалл с регулярной доменной структурой, \mathbf{P} — вектор поляризации, все пучки поляризованы вдоль оси Z и распространяются вдоль X

Принцип реализации режима квазисинхронизма наиболее понятен на примере генерации второй гармоники. При наличии фазовой расстройки $\Delta k_2 = k_2 - 2k_1$, k_j – волновое число накачки и второй гармоники, комплексная амплитуда второй гармоники в приближении заданного поля изменяется по закону [6]:

$$\frac{dA_2}{dx} = -i\sigma' A_{10}^2 \exp(i\Delta k_2 x), \quad (1)$$

где σ' – коэффициент нелинейной связи волн; A_{10} – комплексная амплитуда волны накачки. Интегрируя уравнение (1), получаем

$$A_2(x) = i\sigma' A_{10}^2 \frac{\sin(\Delta k_2 x / 2)}{\Delta k_2 x / 2} \exp(-i\Delta k_2 x / 2). \quad (2)$$

На длине $x = L_c$ интенсивность второй гармоники $I^2 \sim |A_2|^2$ достигает максимума. Здесь $L_c = \pi / |\Delta k_2|$ – длина когерентности, при этом фазовый набег, возникающий за счет волновой расстройки, будет равен π . Расположим за первым кристаллом второй нелинейный кристалл длиной L_c , создающий в направлении распространения взаимодействующих волн такую же волновую расстройку Δk_2 , тогда амплитуда второй гармоники на выходе этого второго кристалла будет равна

$$A_2(x) = -(\sigma' - \sigma'') A_{10}^2 \frac{\sin(\Delta k_2 x / 2)}{\Delta k_2 x / 2}. \quad (3)$$

Здесь σ'' – коэффициент нелинейной связи волн для второго кристалла. Очевидно, что если выполнено условие $\sigma' = \sigma''$, то амплитуда второй гармоники будет максимальна. Итак, путем изменения знака нелинейности второго кристалла можно компенсировать фазовую расстройку, возникшую при распространении в первом кристалле. Амплитуду и интенсивность второй гармоники можно переписать в следующем виде:

$$A_2 = -\frac{2}{\pi} \sigma' (2L_c) A_{10}^2; \quad I_2 = \left[\frac{2}{\pi} \sigma' (2L_c) \right]^2 I_{10}^2. \quad (4)$$

То есть при квазисинхронном взаимодействии волн интенсивность второй гармоники изменяется, так же как и в однородной среде с эффективным нелинейным коэффициентом $\sigma_{\text{эф}} = 2\sigma' / \pi$. Фаза второй гармоники изменяется от слоя к слою, в отличие от однородной среды, где в отсутствие на входе второй гармоники фаза принимает установившееся значение сразу. Приведенные здесь рассуждения справедливы для генерации второй гармоники и квазисинхронизма первого порядка, но легко могут быть обобщены как на квазисинхронизм высших порядков, когда $\Delta k_2 = m\pi / L_c$ (m – порядок квазисинхронизма), так и на другие типы трехчастотных взаимодействий.

Результаты расчетов

Принципиальным положительным свойством РДС-кристаллов является снятие любых ограничений на поляризации взаимодействующих волн, т.е.

в них возможны все типы взаимодействия, в частности шесть типов для одноосных кристаллов: $oo-o$, $oo-e$, $oe-e$, $eo-e$, $ee-o$, $ee-e$, и шесть типов для двуосных: $ss-s$, $sf-s$, $sf-f$, $ss-f$, $ff-f$, $ff-s$. Кроме того, в них достижима реализация квазисинхронизма в любом направлении относительно оптических осей кристалла, что позволяет осуществить максимизацию эффективной нелинейности и при необходимости подстроить длину домена под оптимальное значение.

Однако наиболее важным с практической точки зрения является то, что при квазисинхронных взаимодействиях можно использовать наиболее высокий коэффициент нелинейности, выбрав соответствующим образом поляризации взаимодействующих волн.

Например, в периодически поляризованном кристалле ниобата лития используют $ee-e$ -взаимодействие (все волны необыкновенные), за которое ответственна компонента нелинейной восприимчивости d_{33} , превышающая на порядок другие компоненты этого кристалла. То есть при использовании доменных структур коэффициент d_{33} становится пригодным для фазового согласования и коэффициент преобразования возрастает в $(2d_{33} / \pi d_{15})^2$ раз.

Применение доменных структур также позволило снять большинство ограничений на частотный и температурный интервалы преобразования. В таблице приведены сравнительные характеристики нелинейных свойств наиболее распространенных монокристаллов и полидоменных кристаллов.

Характеристики ряда нелинейных кристаллов

Кристалл	Область прозрачности, мкм	Однородно нелинейные материалы		Периодические нелинейные материалы	
		d_{ij} , пм/В, $d_{\text{эф}}$	d^2/n^3 , (пм/В) ²	d_{ij} ; $d_{\text{эф}}$, пм/В	$d_{\text{эф}}^2/n^3$, (пм/В) ²
LiNbO ₃	0,33–5,5	$d_{31} = -4,64$ $d_{22} = 2,46$ $d_{oo-e} = d_{31} \sin \theta - d_{22} \cos \theta \sin \phi$	1,95	$d_{33} = 30$; 16	26
KTiOPO ₄	0,35–4,5	$d_{24} = 3,7$ $d_{oe-o} = d_{24} \sin \theta$ (плоскость XZ)	2,6	$d_{33} = 16$; 9,8	18,2
LiTaO ₃	0,28–5,5	$d_{31} = 3$ $d_{22} = 0,85$ $d_{oo-e} = d_{31} \sin \theta - d_{22} \cos \theta \sin \phi$	0,9	$d_{33} = 19$; 11	12,5
CsTiOAsO ₄	0,35–5,3	$d_{32} = 3,4$ $d_{31} = 2,1$ $d_{oe-o} = d_{32} \sin \theta$ (плоскость XZ)	1,7	$d_{33} = 18,1$; 11,5	19,3
KNbO ₃	0,4–5,6	$d_{31} = -11,9$ $d_{oo-e} = d_{31} \sin \theta$ (плоскость XZ)	13,3	$d_{33} = -20,6$; 11	39
KTiOAsO ₄	0,35–5,3	$d_{32} = 4,2$ $d_{31} = 2,8$ $d_{oe-o} = d_{32} \sin \theta$ (плоскость XZ)	3,0	$d_{33} = 16,2$; 9,9	17
RbTiOAsO ₄	0,35–5,8	$d_{32} = 4,6$ $d_{31} = 1,4$ $d_{oe-o} = d_{32} \sin \theta$ (плоскость XZ)	3,6	$d_{33} = 15,9$; 10,1	17,5
RbTiOPO ₄	0,35–4,5	$d_{32} = 3,8$ $d_{31} = 2,0$ $d_{oe-o} = d_{32} \sin \theta$ (плоскость XZ)	2,6	$d_{33} = 15,6$; 9,9	17,7
GaAs	0,9–17	–	–	$d_{36} = 150$; 96	220

Как следует из таблицы, по коэффициенту нелинейного качества, пропорционального эффективности преобразования, полидоменные модификации кристаллов значительно превосходят монодоменные кристаллы.

В качестве источников накачки для параметрических генераторов света рассматривались твердотельные лазеры на Nd:YAG и $Ti^{3+}:Al_2O_3$. Результаты расчетов периодов доменной структуры для 8 кристаллов приведены на рис. 2.

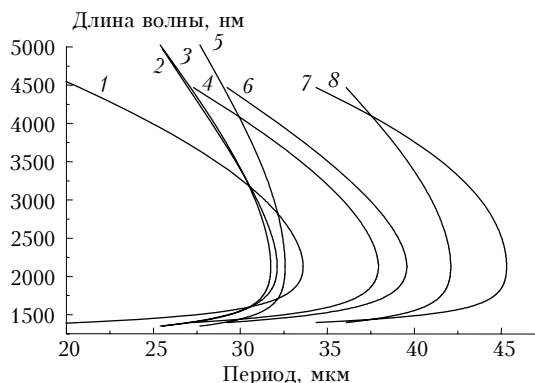


Рис. 2. Зависимость длин генерируемых сигнальной и холостой волн от периода доменов при накачке излучением Nd:YAG-лазера ($\lambda = 1,064$ мкм) в кристаллах CsTiOAsO₄ (кривая 1), LiTaO₃ (2), LiNbO₃ (3), RbTiOPO₄ (4), KNbO₃ (5), KTiOPO₄ (6), KTiOAsO₄ (7), RbTiOAsO₄ (8)

Видно, что период структуры должен составлять от 20 до 45 мкм. В принципе, можно получать структуры под заранее заданные длины волн. Другой особенностью РДС-кристаллов является возможность осуществления в них последовательных взаимодействий с кратными частотами, например одновременной генерации второй, третьей гармоник и параметрической генерации света [7].

Можно также осуществить плавную перестройку частоты, выбирая подходящий период структуры и изменяя температуру кристалла. Результаты таких расчетов приведены на рис. 3.

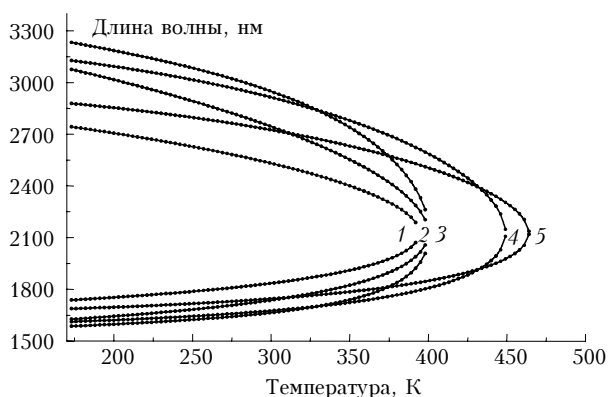


Рис. 3. Зависимость длин сигнальной и холостой волн от температуры при накачке излучением Nd:YAG-лазера ($\lambda = 1,064$ мкм) в кристаллах KTiOPO₄, период 39 мкм (кривая 1); RbTiOAsO₄, период 41,5 мкм (2); KNbO₃, период 32 мкм (3); LiNbO₃, период 31 мкм (4); LiTaO₃, период 31,5 мкм (5)

Температурные зависимости показателей преломления взяты из [8], для кристаллов RbTiOPO₄ и KTiOAsO₄ такие зависимости неизвестны. В расчетах выбирался реалистичный температурный диапазон от -100 до 200 °С.

Для накачки параметрических генераторов света также представляет интерес использование плавного перестраиваемого по частоте излучения, например лазера на сапфире с титаном. В качестве примера на рис. 4 приведены результаты расчетов для кристалла CsTiOAsO₄ при различных периодах доменов (от 20 до 25 мкм). Даже при фиксированном периоде доменной структуры, например 20 мкм, путем изменения длины волны излучения накачки от 770 до 1000 нм можно получить излучение в области 1,04–4,45 мкм.

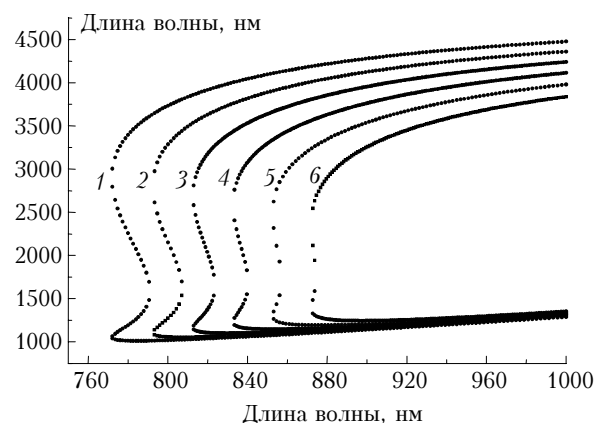


Рис. 4. Зависимость длин генерируемых сигнальной и холостой волн от длины волны перестраиваемого излучения накачки ($Ti^{3+}:Al_2O_3$ -лазер) в кристалле CsTiOAsO₄ при периоде доменной структуры 20 мкм (кривая 1), 21 (2), 22 (3), 23 (4), 24 (5), 25 (6)

Длинноволновая ИК-область спектра 8–12 мкм недоступна для традиционных РДС-кристаллов вследствие сильного многофотонного поглощения излучения. Арсенид галлия — один из наиболее привлекательных нелинейных кристаллов, к сожалению, непригоден для использования в качестве преобразователя частоты с традиционным, основанным на использовании двулучепреломления синхронизме. Область его прозрачности составляет 0,9–17 мкм, нелинейно-оптический коэффициент $d_{14} = 94 \div 150$ пм/В, что превышает соответствующий коэффициент $d_{14} = 75$ пм/В для ZnGeP₂ — наиболее эффективного двулучепреломляющего кристалла среднего ИК-диапазона. Большая теплопроводность в сочетании с высокими механическими свойствами делают GaAs привлекательным для преобразования частоты мощного лазерного излучения. Нами определены условия реализации квазисинхронного взаимодействия волн в кристаллах GaAs. На рис. 5 представлены зависимости длин волн сигнальной и холостой от периода структуры для параметрических генераторов с накачкой излучением с длинами волн 1,7; 2,1; 2,8 мкм.

При накачке же излучением Nd:YAG-лазера при использовании квазисинхронизма первого порядка период должен изменяться от 15 до 21 мкм.

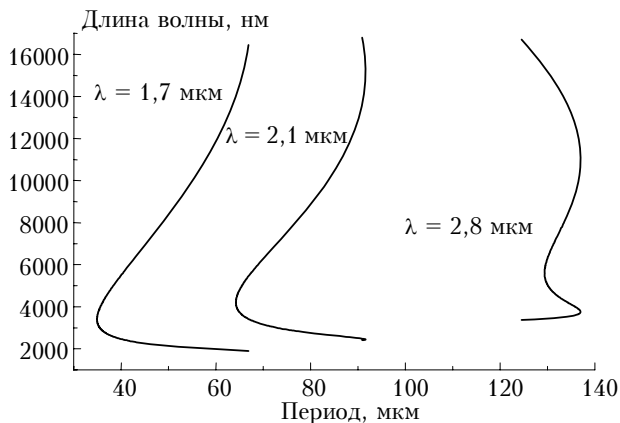


Рис. 5. Зависимость длины волны генерируемого излучения от периода доменов GaAs при различных длинах волн накачки

Для случая параметрической генерации рассчитаны фотонные эффективности преобразования излучения накачки в область 3–12 мкм (они составляют десятки процентов), также оценен порог генерации (единицы мкДж) при использовании импульсов накачки наносекундной длительности. Спектральные ширины синхронизма для кристалла длиной 1 см составляют 2–3 см⁻¹, а температурные ширины синхронизма ≈ 2,5 К.

Заключение

Итак, кристаллы с регулярной доменной структурой представляются весьма перспективными материалами для получения перестраиваемого по частоте излучения, в них возможна реализация принципиально не осуществимых в кристаллах, использующих традиционные методы фазового согласования, типов взаимодействия. Современный уровень развития технологии позволяет без особого

труда получать периодические структуры с периодом в десятки мкм.

Работа выполнена при поддержке программы «Развитие научного потенциала высшей школы (2006–2008 гг.)» и в рамках проекта СО РАН 28.2.3 «Разработка новых методов, технологий и приборов на основе оптических, радиоволновых и акустических эффектов для контроля природных и техногенных систем, а также решения специальных задач».

1. Petrov V., Rotermund F., Noack F. Generation of high-power femtosecond light pulses at 1 kHz in the mid-infrared spectral range between 3 and 12 μm by second-order nonlinear processes in optical crystals // J. of Optics. Pure and Appl. Opt. A. 2001. V. 3. P. R1–R19.
2. Kulp T.J., Bisson S.E., Bambha R.P. et al. The application of quasi-phase-matched parametric light sources to practical infrared chemical sensing systems // Appl. Phys. B. 2002. V. 75. P. 317–327.
3. Armstrong J.A., Bloembergen N., Ducuing J., Pershan P.S. Interactions between light waves in a nonlinear dielectrics // Phys. Rev. 1962. V. 127. P. 1918–1964.
4. Чиркин А.С., Волков В.В., Лантнев Г.Д., Морозов Е.Ю. Последовательные трехчастотные волновые взаимодействия в нелинейной оптике периодически неоднородных сред // Квант. электрон. 2000. Т. 30. № 10. С. 847–858.
5. Блистанов А.А. Кристаллы квантовой и нелинейной оптики. М.: МИСИС, 2000. 431 с.
6. Дмитриев В.Г., Тарасов М.В. Прикладная нелинейная оптика. М.: Сов. радио, 2004. 512 с.
7. Грецин С.Г., Дмитриев В.Г. Одновременная генерация второй гармоники лазерного излучения на трех типах взаимодействия в нелинейных кристаллах с регулярной доменной структурой // Квант. электрон. 1999. Т. 26. № 2. С. 151–154.
8. Dmitriev V.G., Gurzadyan G.G., Nikogosyan D.N. Handbook of Nonlinear Optical Crystals. New York; Berlin: Springer-Verlag, 1999. P. 413.

E.A. Anfimova, P.P. Geiko, S.M. Shandarov. Periodically poled nonlinear crystals for parametrical light generation.

Periodically poled nonlinear crystals (PPNC crystals) with quasi-phase-matching allow the generation of spectroscopically useful infrared radiation in an efficient and broadly tunable format. An important peculiarity of PPNC crystals is a removing of any restrictions on the type of polarization of interacting waves. Besides, it is possible to realize a quasi-phase-matching in any direction relative to crystal optical axes, that allows reaching the efficient nonlinearity maximization and if required fitting the domain period to optimal value. The result of calculations on realization of quasi-phase-matching wave interaction in GaAs, LiNbO₃, KNbO₃, CsTiOAsO₄ and LiTaO₃ crystals are presented. The values of the modulation nonlinear susceptibility period were found.