

Генерация второй гармоники в кристалле ниобата бария-стронция со стохастической доменной структурой

К. А. Кузнецов, Г. Х. Китаева¹⁾, А. В. Шевлюга, Л. И. Ивлева⁺, Т. Р. Волк*

Физический факультет МГУ им. М.В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

⁺Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН, 119991 Москва, Россия

**Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова РАН, 119333 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 20 ноября 2007 г.

Экспериментально исследована генерация второй гармоники в кристалле ниобата бария-стронция в направлениях, не удовлетворяющих условиям фазового синхронизма для пространственно-однородных сред. Появление сигнала второй гармоники интерпретируется как результат квазисинхронного нелинейного взаимодействия волн за счет стохастической доменной структуры кристалла, содержащей иглообразные микродомены. Предложена теоретическая модель, описывающая генерацию второй гармоники в двумерных пространственно-неоднородных нелинейно-оптических структурах. В результате анализа диаграмм направленности второй гармоники показано, что основной вклад в генерацию второй гармоники в ниобате бария-стронция дают приповерхностные домены с глубиной прорастания до нескольких десятков микрон.

PACS: 42.65.Ky, 42.70.Mr, 78.20.Bh

В последнее время исследования различных схем стохастического квазисинхронизма, реализуемого в кристаллах с нерегулярными доменными структурами, все чаще перерастают в перспективные прикладные направления нелинейной оптики [1–7]. Среды со случайным распределением доменов могут служить эффективными преобразователями частоты лазерного излучения [8]. Последовательное теоретическое описание нелинейно-оптических процессов в таких неупорядоченных средах вызывает значительный интерес [9,10]. Представляются заслуживающими внимания и проблемы исследования самих доменных систем. Помимо прикладных аспектов при разработке устройств, базирующихся на основе стохастического квазисинхронизма, эти проблемы актуальны и для физики сегнетоэлектриков. Неразрушающие методы спектроскопии, основанные на нелинейно-оптических параметрических процессах, могут давать важную информацию о внутреннем строении доменных систем. В данной работе представлены результаты измерений диаграмм направленности (угловых спектров) излучения второй гармоники (ВГ) в кристаллах ниобата бария-стронция (НБС) со случайно-распределенными сегнетоэлектрическими микродоменами, а также предложена интерпретация полученных угловых распределений интенсивности ВГ.

В работе [11] наблюдалась неколлинеарная генерация второй гармоники (ВГ) в кристалле НБС. Спецификой доменов в этих кристаллах является нерегулярность распределения по объему образца. Домены естественным путем возникают в НБС и преимущественно локализируются в приповерхностных слоях, имеют разную глубину прорастания и характерную иглообразную форму [12–14]. Излучение ВГ представляло собой пространственный “конус”, ось симметрии которого совпадала с волновым вектором накачки. Авторы [11] выдвинули гипотезу, что наблюдаемая генерация ВГ обусловлена вкладами антипараллельных 180-градусных доменов. Однако как последовательной количественной интерпретации наблюдаемых спектров ВГ в НБС, так и прецизионных измерений угловых распределений интенсивности ВГ до настоящего времени, по-видимому, сделано не было.

Целью данных исследований являлась интерпретация образования квазисинхронной ВГ и решение обратной задачи – определения характерных параметров доменной структуры. Объектом исследования служил кристалл $\text{Sr}_{0.61}\text{Ba}_{0.39}\text{Nb}_2\text{O}_6$ (НБС-0.61), выращенный по модифицированной методике Степанова [15]. Образец представлял собой параллелепипед с размерами $3 \times 4 \times 5$ мм. Для проверки наличия микродоменов образец был подвергнут процедуре травления в смеси кислот $\text{HF}:\text{HNO}_3$. В результате за счет неодинаковой скорости травления доменов с раз-

¹⁾e-mail: kirill@qopt.phys.msu.ru

ным направлением спонтанной поляризации (и, соответственно, разными по знаку зарядами на поверхности образца) образуется неоднородный пространственный профиль поверхности. Полученная топография поверхности исследовалась с помощью атомно-силового микроскопа (АСМ). По результатам АСМ-топографии для поперечных размеров доменов были получены значения в диапазоне от 2 до 4 мкм. Перед измерениями ВГ травленный образец тщательно полировался. При смене направления спонтанной поляризации от домена к домену эти компоненты меняют знак.

В экспериментах по k -спектроскопии ВГ реализовалось квазисинхронное eoo -взаимодействие. Вклад во вторую гармонику должен был наблюдаться за счет компонент тензора $\chi_{zxx}^{(2)}$ и $\chi_{zyy}^{(2)}$. Использовался YAG:Nd³⁺-лазер с длительностью импульса 20 нс, частотой повторения 10 Гц, длиной волны 1.064 мкм. Непосредственно на образец попадало одномодовое излучение с пиковой мощностью 2 МВт, поперечное сечение пучка составляло около 2 мм. Волновой вектор накачки был направлен вдоль оптической оси кристалла параллельно спонтанной поляризации доменов (рис.1). В полидоменном кристалле генериро-

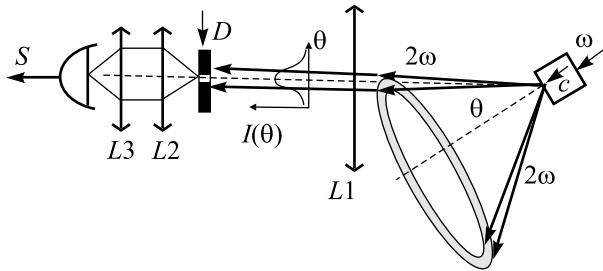


Рис.1. Схема эксперимента по неколлинеарной генерации второй гармоники: c – полярная ось кристалла; $L1$ – $L3$ – линзы; D – диафрагма; S – фототок

вался расходящийся осесимметричный “конус” второй гармоники с полным углом при вершине, примерно равным 90° . Далее часть “конуса” ВГ направлялась линзой $L1$ на подвижную диафрагму D . Диафрагма перемещалась в фокальной плоскости линзы и выделяла излучение ВГ, соответствовавшее определенному направлению распространения под углом θ . Прошедшее сквозь диафрагму излучение ВГ регистрировалось фотозлектронным умножителем, работающим в аналоговом режиме. Импульсы фототока S поступали на аналогово-цифровой преобразователь, информация от которого далее обрабатывалась компьютером. В каждой точке углового спектра проводились измерения интенсивности ВГ, затем вычис-

лялись средняя интенсивность и случайная ошибка измерений по выборке из 600 измерений.

На рис.2а представлен пример одного из измеренных угловых спектров. Максимум интенсивности

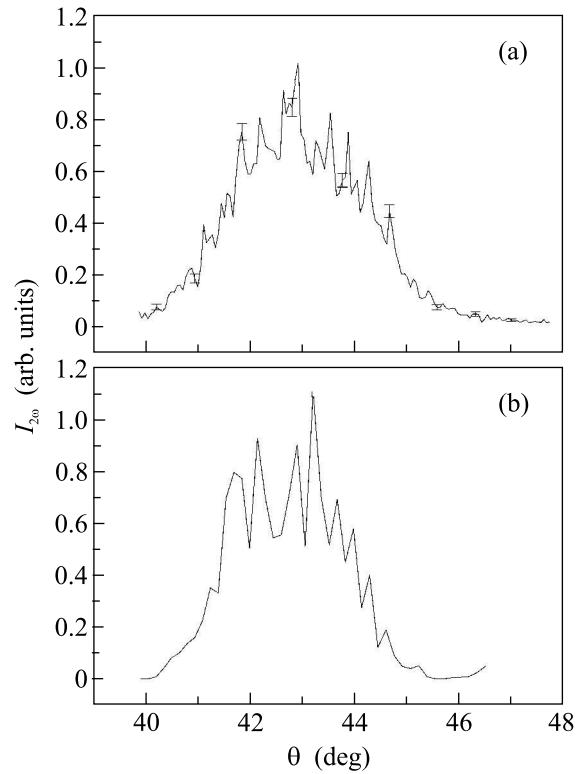


Рис.2. Угловое распределение интенсивности неколлинеарной ГВГ в полидоменном кристалле НБС-0.61: а – экспериментальные данные; б – численный расчет

наблюдался при угле примерно $\theta = 43^\circ$. Эффективная угловая ширина спектра ВГ составляла $\Delta\theta \approx 3^\circ$. Отчетливо видна тонкая структура спектра с модуляцией интенсивности, превышающей ошибку измерений.

Известно [14], что домены прорастают в глубь кристалла на глубину до 0.2–1 мм. Небольшое число игл прорастает на всю длину образца и образует сквозные домены. Наибольшее число доменов наблюдается в приповерхностном слое (рис.3а). Учитывая эти данные, мы рассмотрели простейшую модель, описывающую неколлинеарную ГВГ в системе антипараллельных доменов. Поскольку поперечные размеры доменов много меньше их длин, можно пренебречь иглообразной формой доменов, считая их боковые стенки параллельными друг другу в каждом продольном сечении образца (по отношению к накачке). Приповерхностная полидоменная часть кристалла в продольном сечении вдоль полярной оси Z (рис.3б) рассматривалась как последовательность вытянутых

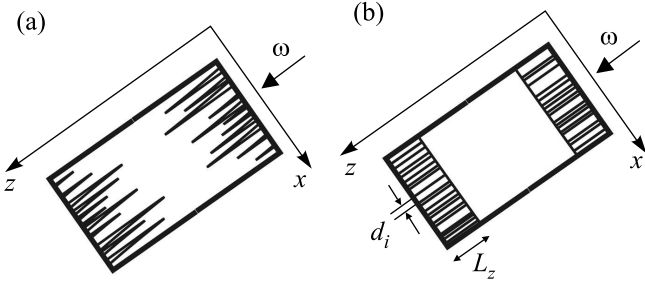


Рис. 3. (а) – Схематическое изображение полидоменного кристалла НБС; (б) – упрощенная модель доменной структуры

вдоль Z доменных слоев, имеющих разную толщину d_i в поперечном направлении X одинаковую длину L_z . Данная модель основывалась на предположении, что в функции распределения доменов от их длины есть ярко выраженный максимум. Домены с длинами вблизи максимума функции распределения дают основной вклад в генерацию второй гармоники, поэтому вкладами во ВГ от всех остальных доменов с длинами, существенно отличающимися от L_z , в сделанном приближении можно пренебречь. При переходе от одного домена к другому в поперечном направлении X знак эффективной величины квадратичной оптической восприимчивости меняется на противоположный. В модели также предполагалось, что толщины доменов $\{d_i\}$ распределены по нормальному закону. Учитывалось, что излучение накачки распространяется вдоль оси Z . Нелинейная восприимчивость при этих условиях является произведением двух пространственных вкладов, изменяющихся вдоль оси x и z :

$$\chi^{(2)}(z, x) = \chi f_{\perp}(x) f_{\parallel}(z), \quad (1)$$

где $f_{\parallel}(z) = 1$ в приповерхностном слое толщиной L_z , $f_{\parallel}(z) = 0$ – вне этого слоя; $f_{\perp}(x)$ дискретно изменяется от -1 до $+1$ в каждой из пластин; χ – квадратичная восприимчивость однородного кристалла для реализованного в эксперименте типа взаимодействия.

Апериодическую функцию $f_{\perp}(x)$, заданную на отрезке $\{-L_x/2, L_x/2\}$, можно разложить в ряд Фурье, рассматривая весь кристалл вдоль направления x как один период нелинейной сверхрешетки (периодический продолжив его при $|x| > L_x/2$ [9, 16]):

$$f_{\perp}(x) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} f_{\perp m} e^{imq_x x}, \quad (2)$$

где $f_{\perp m}$ – амплитуда m -й пространственной фурье-гармоники:

$$f_{\perp m} = \frac{1}{L_x} \int_{-L_x/2}^{L_x/2} f_{\perp}(x) \cdot e^{-imq_x x} dx, \quad (3)$$

и $q_x = 2\pi/L_x$ – модуль вектора обратной решетки с периодом L_x . В эксперименте L_x соответствует характерному поперечному размеру пучка накачки. При условии, что известны все толщины доменов $\{d_i\}$, для амплитуд фурье-гармоник можно получить следующее выражение:

$$f_{\perp m} = \frac{i(-1)^{m+1}}{2\pi m} \sum_{k=1}^N (-1)^k \left[\exp\left(-im \frac{2\pi}{L_x} d_k\right) - 1 \right] \times \exp\left(-im \frac{2\pi}{L_x} \sum_{s=1}^{k-1} d_s\right). \quad (4)$$

Поле второй гармоники связано с нелинейной поляризацией среды через функции Грина для уравнений Максвелла. В пренебрежении слабой анизотропией диэлектрической проницаемости для поля ВГ в дальней зоне справедливо следующее выражение [17]:

$$E(2\omega R) = \frac{4\omega^2}{c^2 R} e^{ikR} \int_V d\mathbf{r} e^{-ik\mathbf{r}} P_{\perp}(\omega\mathbf{r}), \quad (5)$$

где P_{\perp} – перпендикулярная к направлению волнового вектора \mathbf{k} составляющая вектора нелинейной поляризации, R – расстояние от кристалла до точки наблюдения, а интегрирование ведется по всему объему среды. Следствием этого является соотношение для интенсивности второй гармоники:

$$I_{2\omega} \propto \int_{-L_x/2}^{L_x/2} dx \int_{-L_z/2}^{L_z/2} dz \chi^{(2)}(x, z) e^{i(\Delta k_x x + \Delta k_z z)}, \quad (6)$$

где $\Delta k_x \equiv k_{2\omega} \sin \theta_{\text{in}}$ и $\Delta k_z \equiv k_{2\omega} \cos \theta_{\text{in}} - 2k_{\omega}$ – волновые расстройки фазового синхронизма, θ_{in} – угол распространения ВГ по отношению к накачке внутри кристалла. Подставляя (2) в (6), учитывая факторизованную функцию распределения квадратичной восприимчивости (1), получим:

$$I_{2\omega} \propto F_{\perp} F_{\parallel},$$

$$F_{\parallel} = \text{sinc}^2[(2k_1 - k_{2z})L_z/2], \quad (7)$$

$$F_{\perp} \equiv \left[\sum_{m=-\infty}^{\infty} [f_{\perp m} \cdot \text{sinc}(mq_x - k_{2x})L_x/2] \right]^2.$$

Угловое распределение интенсивности ВГ может быть описано как произведение двух факторов F_{\perp} и F_{\parallel} , зависящих от компонент волновых векторов k_x и k_z . Множитель F_{\parallel} задает огибающую углового распределения интенсивности. Ее ширина определяется длиной объема взаимодействия (длиной доменов) вдоль направления распространения накачки. Функция F_{\perp} представляет собой набор очень узких пиков с амплитудами, зависящими от соответствующих амплитуд фурье-гармоник $f_{\perp m}$. Можно ожидать, что, поскольку $L_x \gg L_z$, угловая ширина этих пиков должна быть гораздо меньше ширины огибающей F_{\parallel} .

В численных расчетах использовалась компьютерная программа со встроенной процедурой, реализующей случайный набор доменов с нормальным распределением толщин. С использованием формул (4), (7) рассчитывалась интенсивность ВГ для конкретной выборки толщин доменов. Показатели преломления НБС были взяты из работы [18]. Учитывалось преломление ВГ на границе среды. Также учитывалось усреднение сигнала ВГ по апертуре детектора. На рис.2b приведен один из результатов моделирования. В расчетах учитывалось 3000 гармоник, описываемых формулой (4), и полагалось, что поперечный размер кристалла (равный диаметру пучка накачки) $L_x = 0.2$ см; средние толщины доменов противоположного знака $\langle d^- \rangle = 2$ мкм, $\langle d^+ \rangle = 3$ мкм; эффективная длина доменов $L_z = 47$ мкм. Число гармоник, достаточное для корректного расчета, оценивалось как $N \approx (k_2^{\max})_x / q_x$, $(k_2^{\max})_x$ – максимальное значение проекции волнового вектора ВГ в исследуемом угловом диапазоне. Средние поперечные размеры доменов определялись путем обработки изображений топографии поверхности. Видно неплохое согласие расчетной кривой $I_{2\omega}(\theta)$ с экспериментом, что свидетельствует в пользу выбранной модели. Следует отметить, что воспроизводимости распределений $I_{2\omega}(\theta)$ с точностью до тонкой угловой структуры при переходе от эксперимента на одном участке поверхности образца к эксперименту на другом участке, не наблюдалось. Это легко понять из простых соображений: каждой конкретной области кристалла, освещаемой накачкой, соответствует определенная выборка доменов. Для разных областей кристалла, вообще говоря, пространственные распределения квадратичной восприимчивости разные, и поэтому разные наборы пространственных гармоник $\{f_{\perp m}\}$, а следовательно, и угловые распределения интенсивности ВГ.

Полностью аналогичная ситуация наблюдалась и при расчетах. Каждой конкретной случайной выборке из распределения доменов соответствовал свой собственный спектр.

Основным параметром, который влияет на ширину углового распределения интенсивности ВГ, является эффективная глубина прорастания доменов в глубь образца – параметр модели L_z . Выбирая L_z в пределах 35–50 мкм, удается получить хорошее согласие расчетных и экспериментальных кривых, полученных для разных участков поверхности образца. Отметим, что этот параметр характеризует не когерентную длину, характерную для несинхронных параметрических процессов (и составляющую около 3 мкм для генерации ВГ в НБС), а именно длину нелинейной среды, поскольку исследуемый процесс ВГ – *квазисинхронный*. Применительно к нашей модели, это – продольный (вдоль Z) размер приповерхностной полидоменной части кристалла, дающей основной вклад в интенсивность ВГ.

Для того чтобы оценить среднее значение L_z , требуется усреднить угловые распределения интенсивности ВГ. В этом случае усредненное угловое распределение может быть описано только функцией F_{\parallel} , поскольку усреднение функции F_{\perp} должно приводить к появлению некоторого слабо меняющегося мультипликативного вклада в распределение интенсивности ВГ в пределах наблюдаемых углов. На рис.4 приведены вместе четыре угловых спектра ВГ и их

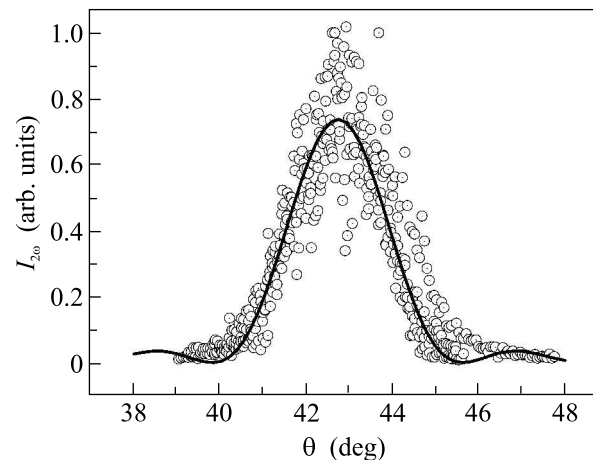


Рис.4. Усреднение углового распределения интенсивности ВГ

аппроксимация функцией $\psi = \beta F_{\parallel}(L_z)$, где β и L_z – подгоночные параметры. Полученное значение $\langle L_z \rangle$ составило 47 ± 1 мкм.

По всей видимости, $\langle L_z \rangle$ характеризует именно среднюю длину приповерхностных иглообразных доменов, вне зависимости от того, на какой из поверхностей, входной или выходной, они локализованы. Действительно, в предположении об одинаковом характере распределения стохастических доменов на

обеих поверхностях, учет не одной, а двух полидоменных областей, локализованных на входной и выходной поверхности кристалла, приводит к аддитивному сложению интенсивностей сигналов ВГ от каждой из областей и не влияет на ширину углового распределения измеренного сигнала.

Таким образом, показано, что главный вклад в неколлинеарную генерацию второй гармоники в кристаллах ниобата бария-стронция дают приповерхностные домены, локализованные в слоях толщиной порядка нескольких десятков микрон. Анализ угловых распределений ВГ с помощью разработанной упрощенной модели позволяет оценить характерную глубину прорастания доменов, участвующих в процессе неколлинеарной генерации ВГ, в толщу кристалла. Предложенный в работе подход базируется на фурье-анализе пространственно-неоднородных нелинейных структур. Дальнейшее развитие данного метода может быть эффективно для неразрушающей нелинейно-оптической диагностики пространственного распределения сегнетоэлектрических микродоменов и других микроструктур.

Авторы благодарны А.Н.Пенину за многочисленные и исключительно плодотворные дискуссии, А.А.Ежову и Д.В.Музыченко за выполненные измерения топографии поверхности на атомно-силовом микроскопе, а также В.А.Дьякову, выполнившему химическое травление образца. Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты # 05-02-16278-а) и гранта поддержки ведущих научных школ РФ (# НШ-4589.2006.2).

1. M. Baudier-Raybaut, R. Haïdar, Ph. Kupecsek et al., *Nature* **432**, 374 (2004).
2. S. N. Zhu, Y. Y. Zhu, and N. B. Ming, *Science* **278**, 843 (1997).
3. X. Liu, Z. Wang, J. Wu, and N. Ming, *Phys. Rev. A* **58**, 4956 (1998).
4. C. Sibilila, F. Tropea, and M. Bertolotti, *J. Mod. Opt.* **45**, 2255 (1998).
5. G. Imeshev, M. A. Arbore, M. Fejer et al., *J. Opt. Soc. Am. B* **17**, 304 (2000).
6. P. Loza-Alvarez, M. Ebrahimzadeh, V. Sibbett et al., *J. Opt. Soc. Am. B* **18**, 1212 (2001).
7. H. Guo, S. H. Tang, Y. Qin, and Y. Y. Zhu, *Phys. Rev. E* **71**, 066615 (2005).
8. X. Vidal and J. Martorell, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 013902 (2006).
9. G. Kh. Kitaeva, *Phys. Rev. A* **76**, 043741-1 (2007).
10. Е. Ю. Морозов, А. С. Чиркин, *Квантовая электроника* **34**, 227 (2004).
11. A. R. Tunyagi, M. Ulex, and K. Betzler, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 243901 (2003).
12. G. Fogarty, B. Steiner, M. Cronin-Golomb et al., *J. Opt. Soc. Am. B* **13**, 2636 (1996).
13. M. Wesner, L. Wischmeyer, E. Krätzig et al., *Trends in Optics and Photonics* **87**, 22 (2003).
14. Н. Р. Иванов, Т. Р. Волк, Л. И. Ивлева и др., *Кристаллография* **47**, 1065 (2002).
15. L. I. Ivleva, N. V. Bogodaev, N. M. Polozkov et al., *Opt. Matter.* **4**, 168 (1995).
16. Г. Х. Китаева, А. Н. Пенин, *Квантовая электроника* **34**, 597 (2004).
17. Д. Н. Клышко, *Фотоны и нелинейная оптика*, М.: Наука, 1980.
18. T. Woike, T. Granzow, U. Dörfler et al., *Phys. Status Solidi (a)* **186**, R13 (2001).