

Особенности генерации второй оптической гармоники в нелинейных кристаллах с разупорядоченной доменной структурой

Е. Ю. Морозов, А. А. Каминский⁺, А. С. Чиркин¹⁾, Д. Б. Юсупов*

Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова, 119899 Москва, Россия

⁺ Институт кристаллографии им. А. В. Шубникова РАН, 117333 Москва, Россия

* Ташкентский государственный авиационный институт, 702132 Ташкент, Узбекистан

Поступила в редакцию 29 мая 2001 г.

Развита теория ГВГ в нелинейно-оптических кристаллах со случайными доменами. Учитываются флуктуации фазовой расстройки и коэффициента нелинейной связи взаимодействующих волн. Показано, что в таких кристаллах максимальная эффективность преобразования основного излучения во вторую гармонику мала, а зависимость средней интенсивности ВГ от интенсивности основного излучения существенно отличается от квадратичной.

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

Предметом настоящего письма является изложение результатов теории генерации второй оптической гармоники (ГВГ) в разупорядоченных полидоменных структурах и интерпретация на ее основе особенностей зависимости интенсивности второй гармоники (ВГ), полученных в последнее время в ряде сегнетоэлектрических кристаллов со случайными игольчатыми доменами (микродоменами) [1–3], таких как $\text{Sr}_x\text{Ba}_{1-x}(\text{NbO}_3)_2 : \text{Nd}^{3+}$ ($x \cong 0,6$) и $\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15} : \text{Nd}^{3+}$. Было установлено, что в подобных кристаллах зависимость интенсивности ВГ от интенсивности возбуждающего лазерного излучения может значительно отличаться от квадратичной и быть близка к линейной [1] при малой эффективности преобразования. В [1–3] не дано объяснения столь неожиданному поведению интенсивности ВГ. Следует отметить, что в ранее выполненных экспериментах по ГВГ в неоднородных оптически нелинейных средах (см., например, [4]) отклонение зависимости интенсивности ВГ от интенсивности основного излучения от квадратичной, характерной для малой эффективности преобразования в однородных кристаллах, не наблюдалось. При этом данные экспериментов находили объяснения в рамках теории ГВГ, развитой в приближении заданного поля [4] или приближении заданной интенсивности [5].

Ниже развивается теория ГВГ в статистически неоднородных нелинейных средах вне рамок указанных приближений. Учитываются флуктуации волновой расстройки и флуктуации коэффициента нелинейной связи волн. Установлено, что существует

область параметров задачи, для которых практически имеет место линейная зависимость интенсивности ВГ от интенсивности основного излучения. Качественно суть эффекта можно объяснить следующим образом. В стохастически неоднородных нелинейных средах при малых эффективностях преобразования основного излучения во ВГ ее интенсивность пропорциональна квадрату интенсивности основного излучения, длине среды и так называемой когерентной длине. Последняя оказывается зависящей от интенсивности основного излучения. Вследствие этого зависимость интенсивности ВГ от интенсивности накачки отличается от квадратичной.

Процесс ГВГ будем описывать следующей системой укороченных уравнений (ср. с [4]):

$$\begin{aligned} dA_2/dz &= -ig(z)\beta A_1^2(z) \exp[-i\Phi(z)], \\ dA_1/dz &= -ig(z)\beta A_2(z)A_1^*(z) \exp[i\Phi(z)], \end{aligned} \quad (1)$$

где $A_1(z)$ и $A_2(z)$ – комплексные амплитуды основного излучения и второй гармоники, соответственно, β – абсолютное значение коэффициента нелинейной связи волн. Функция $g(z)$ описывает модуляцию нелинейного коэффициента; мы будем считать, что она представляет собой случайный телеграфный процесс, который с равной вероятностью принимает значения $+1$ и -1 ($g^2(z) \equiv 1$). Такая модель соответствует кристаллу со 180° случайными доменами.

Функция $\Phi(z)$ учитывает фазовый набег за счет фазовой расстройки взаимодействующих волн:

$$\Phi(z) = \int_0^z (2k_1(x) - k_2(x)) dx = \Delta_0 z + \int_0^z \Delta(x) dx, \quad (2)$$

¹⁾e-mail: chirkin@squeeze.phys.msu.su

где $k_j(z)$ – волновое число на соответствующей частоте, Δ_0 – регулярная, а $\Delta(z)$ – флуктуационная части фазовой расстройки. Будем полагать, что $\Delta(z)$ – δ -коррелированный гауссовский процесс, причем

$$\langle \Delta(z) \rangle = 0, \quad \langle \Delta(z) \Delta(z') \rangle = B(z, z') = 2K\delta(z - z'). \quad (3)$$

Систему уравнений (1) можно преобразовать к виду

$$\begin{aligned} \frac{dI_2}{dz} &= ig(z)\beta U_-, & \frac{dI_1}{dz} &= -ig(z)\beta U_-, \\ \frac{dU_-}{dz} &= i \frac{d\Phi(z)}{dz} U_+(z) + i4\beta g(z) I_1 I_2 - i2\beta g(z) I_1^2, & (4) \\ \frac{dU_+}{dz} &= i \frac{d\Phi(z)}{dz} U_-(z), \end{aligned}$$

где I_1 и I_2 – интенсивности основного излучения и второй гармоники, $I_j = |A_j|^2$. В (4) обозначено

$$U_-(z) = A_2 A_1^{*2} \exp[i\Phi(z)] - \text{к.с.},$$

$$U_+(z) = A_2 A_1^{*2} \exp[i\Phi(z)] + \text{к.с.}$$

Усредним уравнения (4) по реализациям случайных процессов $g(z)$ и $\Delta(z)$, полагая их некоррелированными между собой. Для этого необходимо найти корреляторы типа $\langle g(z) U_{\mp}(z) \rangle$ и $\langle \Delta(z) U_{\mp}(z) \rangle$. Для случайного телеграфного процесса $g(z)$ имеет место следующее соотношение [6]:

$$\frac{d}{dz} \langle g(z) U_{\mp}(z) \rangle = -2\nu \langle g(z) U_{\mp}(z) \rangle + \left\langle g(z) \frac{dU_{\mp}(z)}{dz} \right\rangle, \quad (5)$$

где величина ν^{-1} имеет смысл “среднего масштаба модуляции”, то есть среднего размера домена.

Для гауссовского случайного процесса $\Delta(z)$ справедлива формула Фуруцу-Новикова [6]

$$\langle \Delta(z) F(z) \rangle = \int_0^z B(z, z') \left\langle \frac{\delta F(z')}{\delta \Delta(z')} \right\rangle dz'. \quad (6)$$

Учитывая (3), имеем

$$\langle \Delta(z) F(z) \rangle = K \left\langle \frac{\delta F(z)}{\delta \Delta(z)} \right\rangle. \quad (7)$$

Используя соотношения (4), (5), получим

$$\begin{aligned} \frac{d}{dz} \langle g(z) U_- \rangle &= -2\nu \langle g(z) U_- \rangle + \\ &+ \langle ig(z) [\Delta_0 + \Delta(z)] U_+ + i4\beta I_1 I_2 - i2\beta I_1^2 \rangle, \\ \frac{d}{dz} \langle g(z) U_+ \rangle &= -2\nu \langle g(z) U_+ \rangle + \langle ig(z) [\Delta_0 + \Delta(z)] U_- \rangle. \end{aligned} \quad (8)$$

В соответствии с (7) и (8) для коррелятора $\langle \Delta(z) g(z) U_{\pm} \rangle$ имеем

$$\begin{aligned} \langle \Delta(z) g(z) U_{\pm}(z) \rangle &= \\ &= K \left\langle \frac{\delta \langle g(z) U_{\pm}(z) \rangle}{\delta \Delta(z)} \right\rangle = iK \langle g(z) U_{\mp}(z) \rangle. \end{aligned} \quad (9)$$

Вводя обозначения $\langle g(z) U_-(z) \rangle = i\psi_1$, $\langle g(z) U_+(z) \rangle = \psi_2$ и $2\nu + K = \alpha$, для усредненной системы окончательно получим (ср. с [5])

$$\begin{aligned} \frac{d\bar{I}_2}{dz} &= -\beta\psi_1, & \frac{d\bar{I}_1}{dz} &= \beta\psi_1, \\ \frac{d\psi_1}{dz} &= -\alpha\psi_1 + \Delta_0\psi_2 + 4\beta_1 \langle I_1 I_2 \rangle - 2\beta_2 \langle I_1^2 \rangle, & (10) \\ \frac{d\psi_2}{dz} &= -\alpha\psi_2 - \Delta_0\psi_1. \end{aligned}$$

Статистику поля ВГ, возбуждаемой в разупорядоченной нелинейной среде, разумно считать гауссовской. Тогда, принимая во внимание соотношение $I_1(z) + I_2(z) = I_{10}$ (I_{10} — значение интенсивности основного излучения на входе в среду), имеем

$$\begin{aligned} \langle I_1 I_2 \rangle &= I_{10} \bar{I}_2 - 2\bar{I}_2^2, \\ \langle I_1^2 \rangle &= I_{10}^2 - 2I_{10} \bar{I}_2 + 2\bar{I}_2^2. \end{aligned} \quad (11)$$

Подставив (11) в (10), получим замкнутую систему уравнений.

Для численного решения уравнений (10) перейдем к безразмерным величинам

$$x = \frac{\bar{I}_2}{I_{10}}, \quad y_i = \frac{\psi_i}{I_{10}^{3/2}}, \quad \zeta = \frac{z}{L_{nl}}, \quad \alpha' = \alpha L_{nl}, \quad \Delta'_0 = \Delta_0 L_{nl},$$

где $L_{nl} = 1/\beta\sqrt{I_{10}}$ – так называемая характерная нелинейная длина. В результате систему уравнений (10) преобразуем к виду

$$\begin{aligned} \frac{dx}{d\zeta} &= -y_1, \\ \frac{dy_1}{d\zeta} &= -\alpha' y_1 + \Delta'_0 y_2 + (8x - 12x^2 - 2), & (12) \\ \frac{dy_2}{d\zeta} &= -\alpha' y_2 - \Delta'_0 y_1. \end{aligned}$$

Заметим, что параметр α' характеризует степень разупорядоченности структуры кристалла на нелинейной длине, а параметр Δ'_0 – фазовое рассогласование на этой длине.

Система уравнений (12) решалась численно для разных значений параметров α' , Δ'_0 и интенсивностей основного излучения I_{10} . Результаты расчетов представлены на рис.1–3. Из рис.1 следует, что мак-

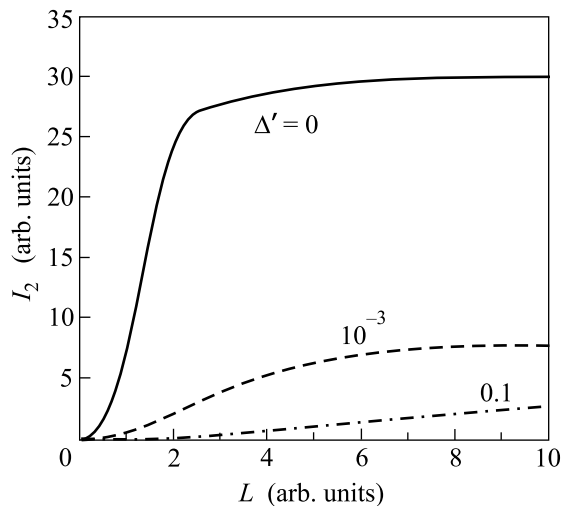


Рис.1. Относительная интенсивность ВГ, нормированная на интенсивность основного излучения $I_0 = 10 \text{ МВт/см}^2$, в зависимости от приведенной длины взаимодействия $L = z/L_{nl}$ для $\alpha' = 0,1$ и различных значений Δ' , указанных на рисунке

симальная эффективность преобразования основного излучения во ВГ в кристаллах с разупорядоченной доменной структурой мала и достигает насыщения на нескольких нелинейных длинах взаимодействия. На рис.2 изображены зависимости интенсивности ВГ от интенсивности основного излучения. Такие зависимости изучались в экспериментах [1–3]. Кривые рис.2 построены при значениях параметра α' , для которых зависимость средней интенсивности ВГ от интенсивности накачки близка к линейной.

Дифференциальная степень нелинейной зависимости между I_2 и I_{10} ($\eta = d \ln I_2 / d \ln I_0$) представлена на рис.3. Видно, что в области больших значений интенсивности накачки указанная зависимость близка к квадратичной, как в случае однородных кристаллов при малой эффективности преобразования во ВГ. В то же время имеется диапазон значений интенсивности основного излучения, где зависимость средней интенсивности ВГ от интенсивности основного излучения близка к линейной. Таким образом, рис.3 позволяет интерпретировать наблюдаемую в эксперименте [1] линейную зависимость интенсивности ВГ от интенсивности основного излучения в кристаллах с разупорядоченной доменной структурой.

В заключение отметим, что основным результатом настоящей работы является развитие стохастической

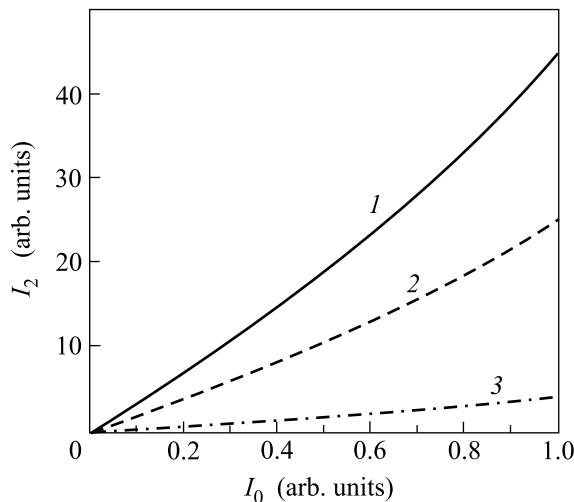


Рис.2. Относительная интенсивность ВГ в зависимости от интенсивности основного излучения, нормированных на интенсивность $I_0 = 10 \text{ МВт/см}^2$, для $\alpha' = 0,1$ и различных значений Δ' : 0 (1); $1 \cdot 10^{-3}$ (2); 0,1 (3)

ческой теории ГВГ в статистически неоднородных средах. В частности, обнаружено существенное отклонение зависимости интенсивности ВГ от интенсивности лазерного излучения от квадратичной при малой эффективности преобразования, что согласуется с результатами экспериментов [1–3]. Изложенный подход можно обобщить на случаи квазисинхронного преобразования оптических частот в активных нелинейных средах и в сверхрешетках.

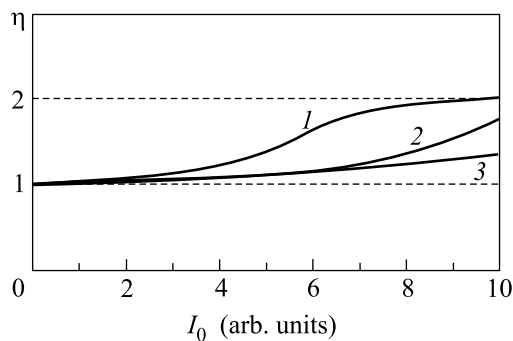


Рис.3. Показатель степени в зависимости интенсивности ВГ от интенсивности основного излучения как функция интенсивности основного излучения. Кривые рассчитаны для интенсивностей, нормированных на $I_0 = 100 \text{ МВт/см}^2$ с параметрами α' , и значений Δ' , соответствующим кривым на рис. 2

Полученные результаты и развитый подход может также представить интерес для акустически не-

линейных неоднородных сред, неоднородной плазмы и т.п.

Авторы признательны Г. Д. Лаптеву и А. А. Новикову за полезные обсуждения результатов работы. Работа выполнена при частичной финансовой поддержке грантов Российского фонда фундаментальных исследований и программ Минпромнауки “Фундаментальная метрология” и “Фундаментальная спектроскопия”.

1. S. Kawai, T. Ogawa, H.S. Lee et al., *Appl. Phys. Lett.* **73**, 768 (1998).
2. А. А. Каминский, Х. Гарсиа-Золе, С. Н. Багаев и др., *Квантовая электроника* **25**, 1059 (1998).
3. А. А. Каминский, Д. Хаке, Г. Н. Багаев и др., *Квантовая электроника* **26**, 95 (1999).
4. С. А. Ахманов, А. С. Чиркин, *Статистические явления в нелинейной оптике*, М.: МГУ, 1971.
5. А. С. Чиркин, Д. Б. Юсупов, *Радиотехника и электроника* **23**, 636 (1978).
6. В. И. Кляцкин, *Стохастические уравнения и волны в случайно-неоднородных средах*, М.: Наука, 1980.