

Об изменениях нелинейно-оптических свойств кристалла DKDP под влиянием высокотемпературной фоторефракции

Б.В.Аникеев, С.А.Купченко, Т.В.Самойленко

Исследовано изменение условий синхронизма при ГВГ в кристаллах DKDP под действием возникающей при дополнительном облучении образца фоторефракции. Сопоставление результатов выполненного по феноменологической модели расчета с полученными в эксперименте данными выявило их принципиальное расхождение. Напрямую измерено внутреннее поле в образце, индуцированное при фоторефракции. Обнаружена связь условий синхронизма со спектроскопическими свойствами фоторефракции, поскольку облучение образца обеспечивало возбуждение как фоторефракции, так и нелинейно-оптических эффектов. Полученная напряженность внутреннего электрического поля до 0.5 кВ/см при плотности энергии импульсного облучения среды 10–20 Дж/см² указывает на необходимость учета внутреннего поля в большинстве ситуаций, когда возбуждаются нелинейно-оптические эффекты.

Ключевые слова: кристалл DKDP, высокотемпературная фоторефракция, спектроскопия.

Введение

Фоторефрактивный эффект (ФРЭ) в кристаллах DKDP был исследован ранее [1] при температурах ниже точки Кюри и сравнительно недавно – выше нее [2–4]. Согласно модельным представлениям, в обоих случаях он связан с возникновением электрических полей фоторефрактивной (ФР) природы. Известно, что внешнее электрическое поле вызывает соответствующее изменение нелинейных свойств среды, что должно отражаться на условиях фазового синхронизма при ГВГ [5]. Этот факт описывается в феноменологической модели процесса, которая дает монотонную зависимость угла синхронизма от напряженности возникающего электрического поля.

ФРЭ в водородсодержащих сегнетоэлектриках обусловлен элементарными квантовыми процессами [6]. Сопутствующая ему генерация внутренних полей с соответствующим изменением нелинейных свойств среды ранее не обсуждалась. Ниже в экспериментах мы по изменению угла синхронизма определяем возникающее внутреннее поле в кристалле, сравнивая его с изменением угла синхронизма при подаче соответствующего внешнего поля. Ожидается, что эффективность нелинейно-оптических процессов в среде должна существенно зависеть как от энергетических параметров импульса света на основной гармонике, так и от свойств среды, причем последние, в свою очередь, в совокупности также зависят от энергетических параметров этих импульсов [7]. Другими словами, в данном случае возбуждение второй гармоники можно считать параметрическим, в отличие от его интерпретации по феноменологической модели [6].

Цель настоящей работы – продемонстрировать зависимость эффективности нелинейного преобразования ча-

стоты и его угловых характеристик от интенсивности ФРЭ. Эксперименты проводились в стандартных условиях возбуждения ФРЭ при комнатной температуре (см., напр., [4]). Полученные результаты не только впервые обнаружили явный сдвиг угла синхронизма при ФРЭ, но также позволили получить количественные данные о возникающем в среде электрическом поле ФР происхождения. В этих условиях взаимосвязь эффективности ГВГ с угловыми и энергетическими характеристиками импульса основного излучения является существенно немонотонной. Последнее и указывает на параметрический характер ГВГ в условиях ФРЭ.

1. Экспериментальная установка

ФРЭ возбуждался в кристалле DKDP при комнатной температуре под действием излучения лазера, работающего в режиме свободной генерации [1]. Одновременно излучение другого лазера, работающего в режиме генерации гигантского импульса, преобразовывалось в образце в излучение второй гармоники. По измерениям зависимости мощности этого излучения от угла падения основного излучения на кристалл определялся угол синхронизма, соответствующий максимуму интенсивности второй гармоники. Будучи связанным с возбуждением в среде электрической поляризации, ФРЭ должен приводить к соответствующим изменениям угловых зависимостей мощностей и самого угла синхронизма. Отслеживая угол синхронизма при двух различных воздействиях на нелинейную среду (ФР поля и внешнего электрического поля), мы определяли изменения угла синхронизма непосредственно за счет ФРЭ.

Полная схема экспериментальной установки представлена на рис. 1. ФРЭ в кристалле возбуждался YAP: Nd³⁺-лазером 21, работавшим в режиме свободной генерации. Плотность энергии генерации лазера изменялась в диапазоне 3–15 Дж/см² при помощи вносящих дополнительные потери плоскопараллельных пластин 24. Ее контроль производился через калиброванную пластину 9

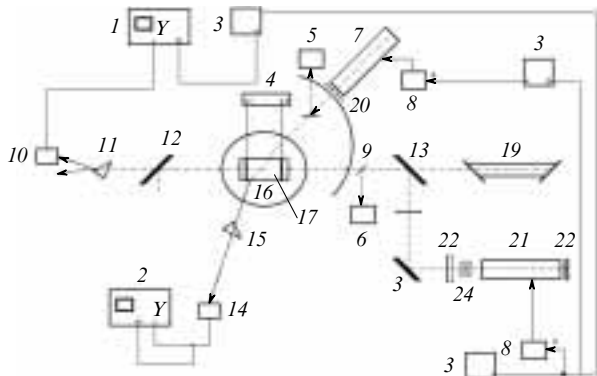


Рис.1. Схема экспериментальной установки для исследования влияния ФР эффекта в кристалле DKDP на условия фазового синхронизма:

1, 2 – запоминающие осциллографы С9-8; 3 – генератор импульсов Г5-63; 4 – источник постоянного напряжения ИВН-5; 5, 6 – измерители мощности ИМО-2Н; 7 – YAG:Nd³⁺-лазер; 8 – блоки накачки лазеров; 9 – делительная пластина; 10 – фотоприемник ФЭУ-14Б; 11 – поляризационная призма из KDP; 12, 13 – интерференционные зеркала; 14 – фотоприемник ЛФДП-2; 15 – дисперсионная призма прямого видения; 16 – предметный столик гониометра; 17 – кристалл DKDP; 18 – алидада гониометра; 19 – He-Ne-лазер; 20 – диафрагма; 21 – YAP:Nd-лазер; 22 – выходное и глухое зеркала лазера; 23 – собирающая линза; 24 – плоскопараллельные стеклянные пластины.

измерителем ИМО-2Н 6. Плоскость поляризации излучения этого лазера ориентировалась в плоскости XY кристаллографической системы координат под углом 45° к направлению поляризатора 11, скрещенного с поляризацией He-Ne-лазера 19, что соответствует максимальной вероятности возбуждения ФРЭ [8]. Механически свободный кристалл DKDP 17, представляющий собой параллелепипед размером 3.6 × 2 × 8.5 см, помещался в оправу гониометра Г5, расположенную на предметном столике 16 и позволяющую как производить дополнительное облучение кристалла импульсом основной гармоники в контролируемых условиях, так и прикладывать к образцу вдоль оптической оси кристалла (ось Z) регулируемое электрическое поле. Это давало возможность идентичным способом измерять сдвиги угла синхронизма за счет внешнего поля в среде в отсутствие ФРЭ и за счет внутреннего поля при ФРЭ.

Фотоиндуцированное поле в установке контролировалось по стандартной для этого случая оптической поляризационной методике [9]. Возбуждающее ФРЭ излучение через зеркала 13 длиннофокусной линзой формировалось в пучок \varnothing 4 мм и направлялось вдоль оптической оси кристалла. Тестирующий канал в рассматриваемой схеме образован малошумящим лазером 21 ЛГН-214 и анализатором 11. Его излучение было поляризовано под углом 45° к кристаллографической оси X или Y. Диаметр пучка (2 мм) гарантировал его взаимодействие с центральной зоной ФР изменений в среде.

Регистрация ФР отклика производилась осциллографом 1 с системой регистрации 10 на базе ФЭУ-14Б с согласующим каскадом на высокочастотном транзисторе КТ973А. При регистрации обеспечивалась пропорциональность выходного электрического сигнала сигналу со входа фотоприемника. Контроль последнего позволял измерить ФР поле $E_3^{pr}(t)$ в кристалле. Использование в каналах накачки и тестирования излучений с разными длинами волн совместно с интерференционным зеркалом 12 обеспечивало эффективную оптическую развязку каналов.

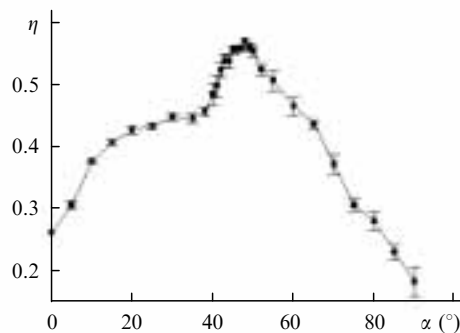


Рис.2. Зависимость эффективности преобразования η излучения YAG:Nd³⁺-лазера во вторую гармонику от угла α поляризации преобразуемого излучения.

В качестве источника преобразуемого излучения использовался YAG : Nd³⁺-лазер 7, работающий в режиме гигантского импульса. Энергия отдельного импульса измерялась с помощью измерителя ИМО-2Н 5. Лазер 7 был закреплен на алидаде гониометра Г5 18 в оправе, позволяющей поворачивать плоскость поляризации излучения. После прохождения диафрагмы 20, ограничивающей пучок почти до дифракционного предела, излучение попадало в образец 17, жестко закрепленный на предметном столике гониометра 16. После прохождения кристалла излучения первой и второй гармоник разделялись при помощи дисперсионной призмы прямого видения 15.

Для регистрации энергии излучения второй гармоники использовался фотоприемник ЛФДП-2 14 совместно с запоминающим осциллографом 2. Выбранный динамический диапазон сигналов гарантировал прямую пропорциональность амплитуды электрического импульса его мощности. Для исследования влияния ФРЭ на условия фазового синхронизма генерация обоих лазеров была синхронизирована с учетом времени задержки ФР отклика относительно импульса накачки.

На рис.2 представлена типичная зависимость эффективности генерации на частоте 2ω от угла ориентации поляризации α излучения первой гармоники при выполнении условий фазового синхронизма. Данная зависимость, максимум которой соответствует 48°, вполне согласуется с направлением максимума ФРЭ, полученного ранее в работе [8]. Таким образом, становится ясно, что при постоянной мощности накачки мощность пучка $P_{2\omega}$ явно связана с направлением поляризации, а максимум $P_{2\omega}$ явно связан с максимумом ФРЭ. Определение угла синхронизма при вариации параметров воздействия на нелинейную среду можно, помимо прочего, признать весьма эффективной методикой нахождения количественных характеристик этих воздействий при отсутствии о них априорной информации. В настоящей работе это осуществляется в отношении ФР электрических полей.

2. Влияние ФР возмущений в среде на условия фазового синхронизма

По феноменологической модели [5] был произведен расчет зависимости сдвига угла синхронизма от напряженности прикладываемого к кристаллу поля и индуцированного внутреннего ФР поля. Эффективность преобразования η излучения во вторую гармонику определялась как отношение мощности $P(2\omega)$ преобразованного излучения к мощности $P(\omega)$ падающего излучения:

$$\eta = \frac{P(2\omega)}{P(\omega)} = \frac{2\pi^2 d^2 L^2 P(\omega)}{\varepsilon n_{1o} c n_{2e}^2 \lambda_2^2 A} \left(\text{sinc} \frac{|\delta k| L}{2} \right)^2, \quad (1)$$

где ε – диэлектрическая проницаемость кристалла; n_{1o} – показатель преломления обыкновенного луча на основной частоте; L – длина пути преобразуемого излучения в кристалле; n_{2e} – показатель преломления необыкновенного луча на частоте 2ω ; λ_2 – длина волны излучения второй гармоники; A – площадь поперечного сечения пучка; $d = d_{36} \sin \theta$ – параметр эффективной нелинейности; $d_{36} = 4.02 \cdot 10^{-12}$ м/В – компонента тензора нелинейной восприимчивости кристалла DKDP [10].

При облучении кристалла мощным лазерным излучением вследствие эффекта Пококельса под действием внутреннего ФР поля изменяется показатель преломления обыкновенного луча, а при распространении преобразуемого излучения под углом θ к оптической оси кристалла – и необыкновенного:

$$n_o(E) = n_o(0) + n_o^3 r_{63} E, \quad (2)$$

$$n_e(E, \theta) = n_o(E) \left[\frac{1 + \tan^2 \theta}{1 + [n_o(E) \tan \theta / n_e]^2} \right]^{1/2}, \quad (3)$$

где E – напряженность электрического поля в кристалле; $r_{63} = 26.4 \cdot 10^{-12}$ м/В – компонента тензора линейного электрооптического эффекта в кристалле DKDP. Изменение температуры также приводит к изменению двулучепреломления кристалла, которое можно вычислить из соотношений [10]

$$\Delta n_o = (298\text{K} - T)(n_o^2 - 1.047)2.28 \cdot 10^{-5},$$

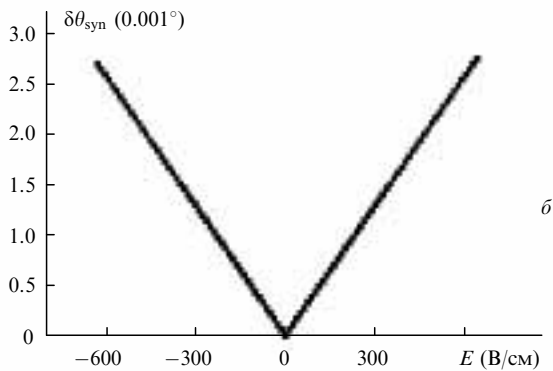
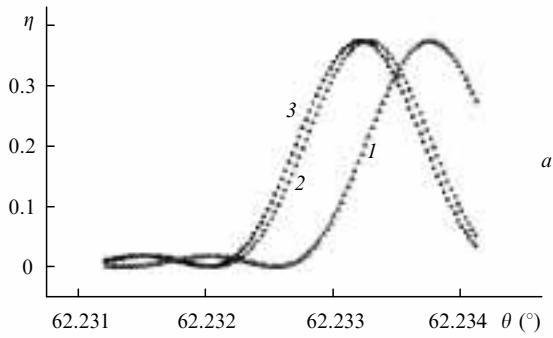


Рис.3. Расчетные зависимости эффективности преобразования η излучения YAG:Nd³⁺-лазера во вторую гармонику от угла к оптической оси кристалла θ при напряженности внутреннего поля $E = 0$ (1), 110 (2), 125 В/см (3) (а) и сдвига угла синхронизма $\delta\theta_{\text{syn}}$ от напряженности электрического поля в кристалле E (б).

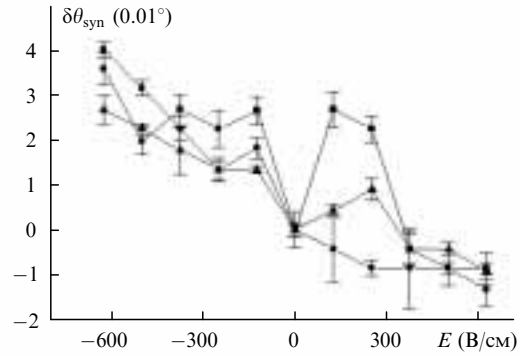


Рис.4. Зависимости $\delta\theta_{\text{syn}}$ от напряженности внутреннего поля в кристалле E при плотности энергии преобразуемого излучения 20.5 (■), 17.5 (▲) и 15.5 мДж/см² (●).

$$\Delta n_e = (298\text{K} - T)n_e^2 9.55 \cdot 10^{-6}, \quad (4)$$

где T – температура; Δn_o и Δn_e – изменение обыкновенного и необыкновенного показателей преломления.

Все это вызывает фазовое рассогласование

$$\Delta k = \frac{4\pi}{\lambda_1} [n_{1o}(T, E) + n_{1e}(T, E, \theta) - n_{2e}(T, E, \theta)]. \quad (5)$$

Соотношение (1) позволяет оценить изменение зависимости η от угла θ между волновым вектором преобразуемого излучения и оптической осью кристалла при помещении его во внешнее поле в предположении $d_{36} = \text{const}$. Угол, соответствующий максимумам таких зависимостей, и принимался за угол синхронизма θ_{syn} . На рис.3,а представлена зависимость $\eta(\theta)$, которая является гладкой в довольно широком диапазоне углов и демонстрирует монотонный сдвиг максимума при изменении напряженности поля. Соответственно строились зависимости $\delta\theta_{\text{syn}}(E) = \theta_{\text{syn}}(E) - \theta_{\text{syn}}(0)$. Построенная по зависимостям на рис.3,а зависимость $\theta_{\text{syn}}(E)$ является линейной (рис.3,б). Расчет проводился в рамках описанной выше феноменологической модели нелинейного эффекта; при этом вклад в ФР состояние энергии преобразуемого импульса не учитывался.

По измеренным $\eta(\theta)$ определялись зависимости сдвига угла синхронизма от энергии W импульса YAG:Nd³⁺-лазера 7 и от напряженности поля E : $\delta\theta_{\text{syn}}(W) = \theta_{\text{syn}}(E, W) - \theta_{\text{syn}}(E, W = 0)$ и $\delta\theta_{\text{syn}}(E) = \theta_{\text{syn}}(E, W = 0) - \theta_{\text{syn}}(E = 0, W = 0)$. Все полученные здесь и далее зависимости рассчитывались по результатам 5–8-кратных измерений. Зависимости на рис.4 обнаруживают связанный с энергией импульса лазера 7 нелинейный отклик среды на комплексное воздействие импульсной накачки.

Основное, что бросается в глаза, – существование в области $E \approx \pm 150$ В/см псевдопараболической зависимости с центром при $E = 0$. Этот результат согласуется с полученными ранее данными по электрическому гистерезису для рассматриваемой среды [3], позволившими установить факт навязывания внешним полем знака внутреннему ФР полю, начиная с именно таких напряженностей (ср. зависимость на рис.2 с зависимостями на рис.3 из работы [3]).

Аналогичные расчетным зависимостям (рис.3,а) экспериментальные зависимости (рис.5) обнаружили существенные отличия от построенных по феноменологической модели зависимостей даже при малых вариациях температур в диапазоне 18.5–22.5°C. Форма зависимостей существенно изменяется: от несимметричной в ниж-

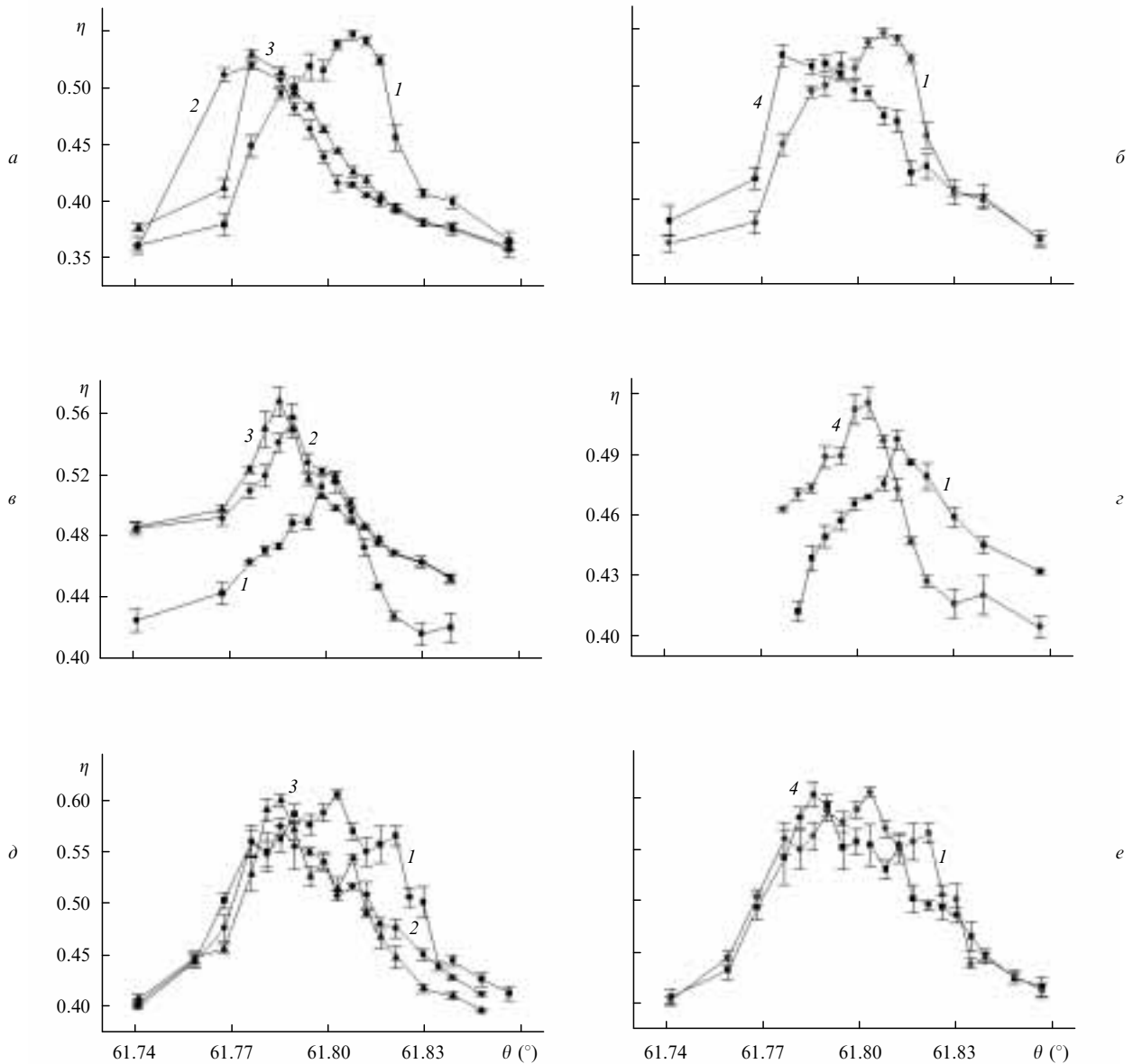


Рис.5. Экспериментальные зависимости эффективности преобразования η от угла θ к оптической оси кристалла при $T = 18.5^\circ\text{C}$, $W = 0$ ($E_c = 0$ (1), -125 (2), 125 В/см (3)) (a), $T = 18.5^\circ\text{C}$, $E_c = 0$ ($W = 0$ (1), 15 Дж/см² (4)) (б), $T = 21.5^\circ\text{C}$, $W = 0$ ($E_c = 0$ (1), -110 (2), 110 В/см (3)) (в), $T = 21.5^\circ\text{C}$, $E_c = 0$ ($W = 0$ (1), 10 Дж/см² (4)) (г), $T = 22.5^\circ\text{C}$, $W = 0$ ($E_c = 0$ (1), -125 (2), 125 В/см (3)) (д) и $T = 22.5^\circ\text{C}$, $E_c = 0$ ($W = 0$ (1) и 15 Дж/см² (4)) (е).

нем пределе (это имеет место как при внешнем поле E_c , так и при ФР поле E (рис.5,а,б)) до симметричной с расширенным профилем при несколько больших температурах (рис.5,д,е). При средней температуре зависимости приобретают четкий центральный пик (рис.5,в,г). Обращает на себя внимание подтверждение в эксперименте повторяемости зависимостей рис.3,б при различных полярностях поля.

Для зависимостей на рис.5,б,г,е W подбиралось таким, чтобы $\delta\theta_{\text{syn}}$ был равен такому же сдвигу при определенном E на кристалле. В результате получены зависящий от температуры сдвиг угла синхронизма $\delta\theta_{\text{syn}}$ и соответствующее ФР поле (таблица). Таким образом, по-

T (°C)	W (Дж/см ²)	$\delta\theta_{\text{syn}}$ (')	E (В/см)
18.5	15	3.5	90
21.5	10	1.5	65
22.5	15	2	72

вышение температуры в целом вызывает понижение ФР поля. Наконец, зависимости типа представленных на рис.5 позволили получить зависимость ФР поля от энергии импульсов накачки, которая, по данным оптических поляризационных измерений, за пределами ФР порога [2] имеет гладкую форму. С ней были совмещены данные измерений по развиваемой здесь методике – с помощью регистрации углов синхронизма. Видно, что эти две (рис.6) зависимости различаются не слишком сильно.

3. Обсуждение результатов

Представленные выше результаты демонстрируют возможность прямых, почти локальных измерений ФР полей в кристаллах группы КДР. Обычная оптическая поляризационная методика является косвенной и дает интегральный как по сечению тестирующего пучка ($\varnothing 2$ мм), так и по всей длине кристалла (около 8 см) результат (кривая 1, рис.6). Проведенные нами измерения ФР поля

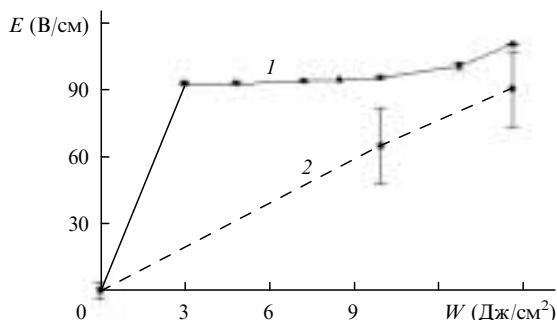


Рис.6. Зависимости внутреннего поля E от плотности энергии возбуждающего излучения W , полученные по поляризационно-оптической методике (1) и по сдвигу угла синхронизма (2).

по сдвигу угла синхронизма имеют почти локальный характер (длина нелинейного взаимодействия излучения с ФР зоной имеет порядок 5 мм при апертуре около 1 мм) и неплохо согласуются с результатами оптических поляризационных измерений (рис.6). При этом мы исходим из того, что определяющая параметр d нелинейная восприимчивость остается неизменной при изменениях n_o и n_e . Дальнейшие исследования в этом направлении позволят с помощью экспериментальных данных найти нелинейную восприимчивость ФР происхождения и ее изменения.

Анализ рис.5 показывает, что экспериментальная ширина угловой зависимости коэффициента преобразования почти на порядок превышает расчетную (рис.3,а) и что малая вариация температуры образца вызывает существенные изменения структуры угловой зависимости коэффициента преобразования с появлением тонких ее деталей (рис.5,д,е). Увеличение диапазона углов пучка второй гармоники при небольшом повышении T в области комнатных температур указывает на преимущественную роль примесных процессов при водородных связях в соответствии с ранее принятой моделью ФРЭ [6]. Поскольку типичная температура разрыва водородных связей составляет примерно 100 °С, приведенные выше данные можно считать обусловленными именно процессами в протонной подсистеме сегнетоэлектрика.

Обнаруженная взаимозависимость ФРЭ и нелинейно-оптического процесса в конкретных ситуациях требует, по-видимому, дополнительного анализа применительно к режиму работы устройства. Это важно, поскольку такая задача должна включать в себя как обеспечение необходимой эффективности преобразования, так и учет

временного и углового аспектов взаимодействия; анализа только на основе упрощенных моделей процессов здесь явно недостаточно. Этот вопрос будет предметом следующей публикации, основой которой станет модель, учитывающая влияние преобразуемого излучения и изменения эффективной нелинейности кристалла на условия фазового синхронизма.

Отметим, что появление данной работы было существенно стимулировано замечаниями к нашему докладу по ФР полям на конференции ICONO-98, сделанными В.Г.Дмитриевым; мы приносим ему свою благодарность. Также считаем необходимым поблагодарить за очень плодотворные дискуссии нашего коллегу М.Б.Белоненко.

1. Фридкин В.М. *Фотосегнетоэлектрики* (М, Наука, 1979).
2. Anikeev V.V., Gurkin O.A., Belonenko M.B. *Proc.SPIE*, **1859**, 324 (1991).
3. Гуркин О.А., Аникеев Б.В. *Изв. РАН. Сер.физич.*, **56**, № 12, 65 (1992).
4. Sin'ko D.V., Anikeev B.V. *Proc.SPIE*, **2795**, 314 (1996).
5. Дмитриев В. Г., Тарасов Л.В. *Прикладная нелинейная оптика* (М, Радио и связь, 1982).
6. Anikeev B.V., Belonenko M.B., Sin'ko D.V., Kutsenko S.A. *Laser Physics*, **9**, № 2, 451 (1999).
7. Бломберген Н. *Нелинейная оптика* (М, Мир, 1966).
8. Anikeev V.V., Kutsenko S.A., Sin'ko D.V., Sukhorukov V.S. *Proc. SPIE*, **3488**, 206 (1998).
9. Аникеев Б.В., Гуркин О.А., Крутяков В.В. *Тез.докл.VI Всес. конф. по голографии* (Витебск, 1990, с.119).
10. Гурздян Г.Г., Дмитриев В.Г., Никогосян Д.Н. *Нелинейно-оптические кристаллы. Свойства и применения в квантовой электронике (Справочник)* (М, Радио и связь, 1991).

B.V.Anikeev, S.A.Kutsenko, T.V.Samoilenko. Changes in the nonlinear optical properties of a DKDP crystal under the influence of high-temperature photorefraction.

The change in phase-matching conditions in second-harmonic generation in DKDP crystals under the influence of the photorefraction appearing because of additional illumination of a sample was investigated. Comparison of the results of a calculation carried out on the basis of a phenomenological model with experimental data revealed their fundamental disagreement. Direct measurements were made of the internal field in the sample induced on photorefraction. A relationship was observed between the phase-matching conditions and the spectroscopic properties of the photorefraction, because irradiation of the sample ensured the excitation of both the photorefraction and of nonlinear optical effects. The internal electric field strength up to 0.5 kV cm⁻¹, obtained for an energy density of the pulsed irradiation of the medium of 10–20 J cm⁻² indicates the necessity to take into account the internal field in the majority of situations when nonlinear optical effects are excited.