

Исследование генерации второй гармоники и оптического выпрямления в кристалле cBN*

К.Доу, Х.Ма, Г.Жиа, Ж.Чен, К.Цао, Т.Жанг

Исследован кубический нитрид бора (cBN) – разновидность искусственного (синтетического) кристалла с шириной запрещенной зоны порядка 6.3 эВ, который обладает структурой цинковой обманки и принадлежит точечной группе симметрии 43m. Впервые при использовании импульсного Nd: YAG-лазера с длиной волны 1064 нм на кристалле cBN наблюдался эффект оптического выпрямления, а также была получена генерация второй гармоники. Зеленое излучение на длине волны 532 нм было видно невооруженным глазом.

Ключевые слова: cBN, оптическое выпрямление, генерация второй гармоники.

1. Введение

Кубический нитрид бора (cBN) является разновидностью искусственного (синтетического) кристалла с шириной запрещенной зоны порядка 6.3 эВ. Теплопроводность этого кристалла составляет 13 Вт·см⁻¹·К⁻¹, а его теплостойкость чрезвычайно высока и может достигать 2000 °С [1]. Диапазон прозрачности cBN перекрывает весь видимый спектр и большие участки ИК и УФ областей спектра. Таким образом, широкозонный полупроводниковый кристалл cBN может найти широкое применение в мощных высокочастотных и теплостойких электронных приборах, а также в оптоэлектронных устройствах, работающих в УФ области.

Благодаря тому, что кристалл cBN имеет структуру цинковой обманки и точечную группу симметрии 43m, он должен обладать линейным электрооптическим (ЭО) эффектом. С помощью поперечного электрооптического модулятора мы изучили ЭО эффект кристалла, а также вычислили его ЭО коэффициент [2]. Однако нам не удалось обнаружить в литературе каких бы то ни было работ, посвященных нелинейно-оптическим свойствам cBN-кристалла.

В 1961 г. Франкен с соавторами [3] впервые наблюдали удвоение оптической частоты. Это явление было названо генерацией второй гармоники (ГВГ). В 1962 г. Армстронг с соавторами [4] предсказали эффект оптического выпрямления, в том же году экспериментально обнаруженный Бассом с соавторами [5].

* Перевод с англ. В.В.Кошечкиной.

Qingping Dou, Haitao Ma, Gang Jia, Zhanguo Chen, Kun Cao. College of Electronic Science and Engineering, State Key Laboratory on Integrated Optoelectronics, Jilin, University, Changchun 130023, China
Qingping Dou. Mudanjiang Normal Institute, Mudanjiang, Heilongjiang 157012, China; e-mail: jiagang@jlu.edu.cn
Haitao Ma. Institute No.25 of the Second Academy, China Aerospace Science & Industry Corp., Beijing 100854, China
Tiechen Zhang. State Key Laboratory of Superhard Materials, Jilin University, Changchun, Jilin 130012, China

Поступила в редакцию 17 ноября 2005 г., после доработки – 15 января 2006 г..

В настоящей работе впервые представлены результаты по ГВГ и оптическому выпрямлению для кристалла cBN.

2. Вывод уравнений для ГВГ и оптического выпрямления кристалла cBN в плоскости <111>

Благодаря структуре цинковой обманки и точечной группе симметрии 43m кристалла cBN, его тензор нелинейной восприимчивости второго ранга имеет следующий вид в главной системе координат кубического кристалла [6]:

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & xyz & xyz & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & xyz & xyz & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & xyz & xyz \end{pmatrix}. \quad (1)$$

Только один элемент тензора является независимым. Положим $\chi = \chi_{xyz}$ и запишем для поля основной частоты ω

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_0 \cos(\omega t - \varphi) + \frac{1}{2} \mathbf{E} \exp[-i(\omega t - \varphi)] \\ + \frac{1}{2} \mathbf{E} \exp[i(\omega t - \varphi)], \end{aligned} \quad (2)$$

где $\mathbf{E}(\omega) = \frac{1}{2} \mathbf{E}_0 \exp(i\varphi)$.

Соотношение между нелинейной поляризуемостью второго порядка $\mathbf{P}^{(2)}(t)$ и \mathbf{E} имеет вид

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{(2)}(t) = \sum_{m,n} \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_m, \omega_n) : \mathbf{E}(\omega_m) \mathbf{E}(\omega_n) \\ \times \exp[-i(\omega_m + \omega_n)t]. \end{aligned} \quad (3)$$

Тогда для оптического выпрямления имеем

$$\mathbf{P}^{(2)}(0) = 2\epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega, -\omega) : \mathbf{E}(\omega) \mathbf{E}^*(\omega), \quad (4)$$

а для второй гармоники –

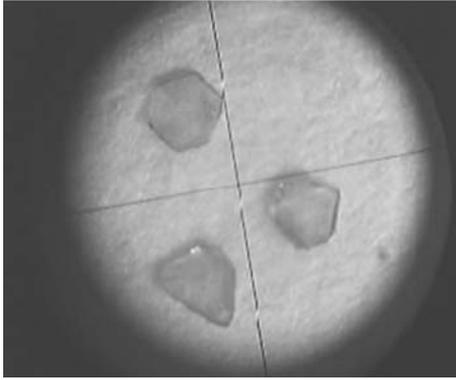


Рис.1. Фотография образцов кристалла сBN под микроскопом. В эксперименте использовался верхний образец площадью $S = 0.1429 \text{ мм}^2$ с длиной грани $L = 0.06 \text{ мм}$.

$$\mathbf{P}^{(2)}(2\omega) = \varepsilon_0 \chi^{(2)}(\omega, \omega) : \mathbf{E}(\omega) \mathbf{E}(\omega). \quad (5)$$

Согласно этим соотношениям процессы ГВГ и оптического выпрямления происходят одновременно. При этом интенсивность волны оптического выпрямления в два раза выше интенсивности волны второй гармоники.

Идеальный кристалл сBN обладает изотропной октаэдрической структурой, однако большинство синтезированных нами кристаллов имеют анизотропную октаэдрическую структуру, все внешние грани которой являются плоскостями $\langle 111 \rangle$. В этих кристаллах верхняя и нижняя плоскости больше, чем боковые плоскости, и они не могут пересекаться под прямыми углами. Форма кристалла сBN, использовавшегося в эксперименте, показана на рис.1. Для исследований был взят верхний из показанных на рис.1 образец кристалла, у которого противоположные грани были параллельными и имели примерно один размер. В соответствии с формой кристалла падающий луч может быть либо перпендикулярен, либо параллелен плоскости $\langle 111 \rangle$.

2.1. Излучение падает ортогонально плоскости $\langle 111 \rangle$

В главной системе координат обозначим через угол θ угол между направлением поляризации падающего излучения и ориентацией $[11\bar{2}]$ в плоскости $\langle 111 \rangle$. В плоскости $\langle 111 \rangle$ направления $[11\bar{2}]$ и $[\bar{1}\bar{1}0]$ ортогональны друг другу, поэтому справедливы соотношения

$$E_{[11\bar{2}]} = E_0 \cos \theta, \quad (6)$$

$$E_{[\bar{1}\bar{1}0]} = E_0 \sin \theta.$$

Три составляющие вектора $\mathbf{P}^{(2)}(t)$ в главной системе координат имеют вид

$$P_x^{(2)}(0) = -\frac{\sqrt{3}}{6} \varepsilon_0 \chi \left(\frac{\sqrt{3}}{3} \cos^2 \theta - \sin \theta \cos \theta \right) E_0^2,$$

$$P_y^{(2)}(0) = -\frac{\sqrt{3}}{6} \varepsilon_0 \chi \left(\frac{\sqrt{3}}{3} \cos^2 \theta + \sin \theta \cos \theta \right) E_0^2, \quad (7)$$

$$P_z^{(2)}(0) = \frac{1}{4} \varepsilon_0 \chi \left(\frac{1}{3} \cos^2 \theta - \sin^2 \theta \right) E_0^2.$$

Разложим $\mathbf{P}^{(2)}(0)$ на составляющие \mathbf{P}_{\parallel} и \mathbf{P}_{\perp} в плоскости $\langle 111 \rangle$, причем составляющая \mathbf{P}_{\parallel} параллельна плоскости $\langle 111 \rangle$, а \mathbf{P}_{\perp} ортогональна ей. Расположим в плоскости

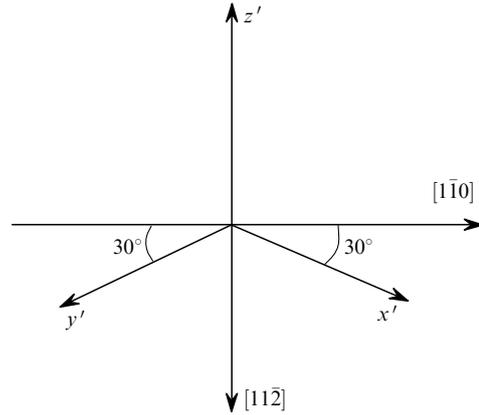


Рис.2. Ориентация поляризаций в плоскости $\langle 111 \rangle$.

$\langle 111 \rangle$ систему координат с осями, соответствующими направлениям $[11\bar{2}]$ и $[\bar{1}\bar{1}0]$ (рис.2). Проекциями осей x, y, z на плоскость $\langle 111 \rangle$ будут соответственно оси x', y', z' . Проекции составляющих $P_x^{(2)}(0), P_y^{(2)}(0), P_z^{(2)}(0)$ на плоскость $\langle 111 \rangle$ обозначим как $P_{x'}^{(2)}(0), P_{y'}^{(2)}(0), P_{z'}^{(2)}(0)$.

Выражения для последних имеют следующий вид:

$$P_{x'}^{(2)}(0) = -\frac{\sqrt{2}}{6} \varepsilon_0 \chi \left(\frac{\sqrt{3}}{3} \cos^2 \theta - \sin \theta \cos \theta \right) E_0^2,$$

$$P_{y'}^{(2)}(0) = -\frac{\sqrt{2}}{6} \varepsilon_0 \chi \left(\frac{\sqrt{3}}{3} \cos^2 \theta + \sin \theta \cos \theta \right) E_0^2, \quad (8)$$

$$P_{z'}^{(2)}(0) = \frac{\sqrt{6}}{12} \varepsilon_0 \chi \left(\frac{1}{3} \cos^2 \theta - \sin^2 \theta \right) E_0^2.$$

Таким образом,

$$P_{[\bar{1}\bar{1}0]}^{(2)}(0) = P_{x'}^{(2)}(0) \cos 30^\circ - P_{y'}^{(2)}(0) \cos 30^\circ$$

$$= \frac{\sqrt{6}}{6} \varepsilon_0 \chi E_0^2 \sin \theta \cos \theta, \quad (9)$$

$$P_{[11\bar{2}]}^{(2)}(0) = P_{x'}^{(2)}(0) \sin 30^\circ + P_{y'}^{(2)}(0) \sin 30^\circ - P_{z'}^{(2)}(0)$$

$$= -\frac{\sqrt{6}}{12} \varepsilon_0 \chi E_0^2 \left(\frac{2}{3} \cos^2 \theta - \sin^2 \theta \right). \quad (10)$$

Модули компонент вектора поляризуемости, параллельных и перпендикулярных плоскости $\langle 111 \rangle$, выражаются как

$$P_{\parallel}^{(2)}(0) = \left[\left(P_{[\bar{1}\bar{1}0]}^{(2)}(0) \right)^2 + \left(P_{[11\bar{2}]}^{(2)}(0) \right)^2 \right]^{1/2}$$

$$= \frac{\sqrt{6}}{72} \varepsilon_0 \chi E_0^2 \left[\frac{432}{11} - 11 \left(\cos 2\theta + \frac{5}{11} \right)^2 \right]^{1/2}, \quad (11)$$

$$P_{\perp}^{(2)}(0) = \frac{\sqrt{3}}{3} P_x^{(2)}(0) + \frac{\sqrt{3}}{3} P_y^{(2)}(0) + \frac{\sqrt{3}}{3} P_z^{(2)}(0)$$

$$= -\frac{\sqrt{3}}{12} \varepsilon_0 \chi E_0^2. \quad (12)$$

Когда падающий луч перпендикулярен плоскости $\langle 111 \rangle$, то составляющие поляризуемости, возбуждающей волну второй гармоники, можно получить с помощью формулы (5):

$$P_{\parallel}^{(2)}(2\omega) = \frac{\sqrt{6}}{144} \epsilon_0 \chi E_0^2 \left[\frac{432}{11} - 11 \left(\cos 2\theta + \frac{5}{11} \right)^2 \right]^{1/2}, \quad (13)$$

$$P_{\perp}^{(2)}(2\omega) = -\frac{\sqrt{3}}{24} \epsilon_0 \chi E_0^2. \quad (14)$$

2.2. Излучение падает параллельно плоскости $\langle 111 \rangle$

Пусть падающий луч параллелен плоскости $\langle 111 \rangle$; обозначим через угол α угол между вектором поляризации падающего луча и направлением $[111]$ в плоскости $\langle 111 \rangle$, а через угол β – угол между направлением распространения падающего луча и направлением $[11\bar{2}]$. В этом случае

$$E_{[111]} = E_0 \cos \alpha, \\ E_{[1\bar{1}0]} = E_0 \sin \alpha \cos \beta, \quad (15)$$

$$E_{[11\bar{2}]} = E_0 \sin \alpha \sin \beta.$$

В данном случае компоненты поляризуемости вектора оптического выпрямления получаются при помощи формулы (4):

$$P_x^{(2)}(0) = \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi E_0^2 \left[\frac{1}{3} \cos^2 \alpha - \frac{\sqrt{2}}{6} \sin \alpha \cos \alpha (\sin \beta + \sqrt{3} \cos \beta) - \frac{\sqrt{3}}{3} \sin^2 \alpha \sin \beta \left(\frac{\sqrt{3}}{3} \sin \beta - \cos \beta \right) \right], \quad (16)$$

$$P_y^{(2)}(0) = \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi E_0^2 \left[\frac{1}{3} \cos^2 \alpha - \frac{\sqrt{2}}{6} \sin \alpha \cos \alpha (\sin \beta - \sqrt{3} \cos \beta) - \frac{\sqrt{3}}{3} \sin^2 \alpha \sin \beta \left(\frac{\sqrt{3}}{3} \sin \beta + \cos \beta \right) \right], \quad (17)$$

$$P_z^{(2)}(0) = \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi E_0^2 \left[\frac{1}{3} \cos^2 \alpha + \frac{\sqrt{2}}{3} \sin \alpha \cos \alpha \sin \beta + \frac{1}{3} \sin^2 \alpha \left(\frac{1}{3} \sin^2 \beta - \cos^2 \beta \right) \right]. \quad (18)$$

Тогда поляризуемость для оптического выпрямления в направлении $[111]$ есть

$$P_{[111]}^{(2)}(0) = \frac{\sqrt{3}}{3} [P_x^{(2)}(0) + P_y^{(2)}(0) + P_z^{(2)}(0)] \\ = \frac{\sqrt{3}}{72} \epsilon_0 \chi E_0^2 (5 \cos 2\alpha - 1). \quad (19)$$

Когда падающий луч параллелен плоскости $\langle 111 \rangle$, поляризуемость для второй гармоники также можно получить с помощью формулы (5):

$$P_x^{(2)}(2\omega) = \frac{1}{4} \epsilon_0 \chi E_0^2 \left[\frac{1}{3} \cos^2 \alpha - \frac{\sqrt{2}}{6} \sin \alpha \cos \alpha (\sin \beta + \sqrt{3} \cos \beta) - \frac{\sqrt{3}}{3} \sin^2 \alpha \sin \beta \left(\frac{\sqrt{3}}{3} \sin \beta - \cos \beta \right) \right], \quad (20)$$

$$P_y^{(2)}(2\omega) = \frac{1}{4} \epsilon_0 \chi E_0^2 \left[\frac{1}{3} \cos^2 \alpha - \frac{\sqrt{2}}{6} \sin \alpha \cos \alpha (\sin \beta - \sqrt{3} \cos \beta) - \frac{\sqrt{3}}{3} \sin^2 \alpha \sin \beta \left(\frac{\sqrt{3}}{3} \sin \beta + \cos \beta \right) \right], \quad (21)$$

$$P_z^{(2)}(2\omega) = \frac{1}{4} \epsilon_0 \chi E_0^2 \left[\frac{1}{3} \cos^2 \alpha + \frac{\sqrt{2}}{3} \sin \alpha \cos \alpha \sin \beta + \frac{1}{2} \sin^2 \alpha \left(\frac{1}{3} \sin^2 \beta - \cos^2 \beta \right) \right]. \quad (22)$$

Таким образом, процессы ГВГ и оптического выпрямления имеют место независимо от того, перпендикулярен или параллелен падающий луч плоскости $\langle 111 \rangle$.

3. Экспериментальные измерения ГВГ и оптического выпрямления в плоскости $\langle 111 \rangle$ кристалла сBN

Согласно теоретическим выкладкам, поляризуемости второй гармоники и оптического выпрямления отличны от нуля независимо от того, перпендикулярен или параллелен падающий луч плоскости $\langle 111 \rangle$. Поэтому при воздействии мощного лазерного излучения в кристалле сBN могут иметь место процессы ГВГ и оптического выпрямления. В эксперименте наблюдалась генерация второй гармоники и был измерен сигнал оптического выпрямления.

Ввиду малых размеров кристалла была разработана специальная конструкция, в которой образец сBN помещался между двумя пластинами из токопроводящего стекла (ТПС). Последние использовались в качестве электродов и соединялись друг с другом изолирующим компаундом (рис.3).

В эксперименте использовался Nd:YAG-лазер с модуляцией добротности, длиной волны 1064 нм, пиковой мощностью свыше 700 Вт, частотой следования импульсов 2 кГц и длительностью импульса менее 20 нс.

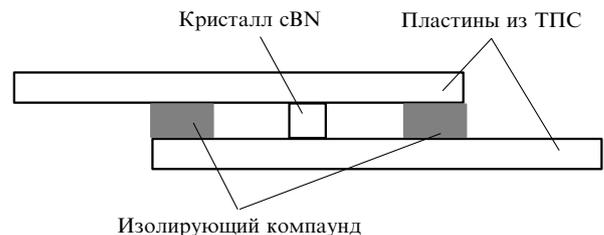


Рис.3. Устройство отправки для исследуемого образца.

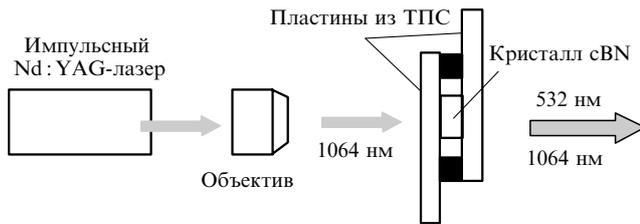


Рис.4. Схема экспериментальной установки для ГВГ.

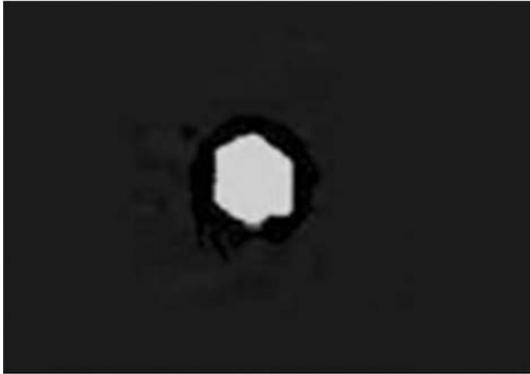


Рис.5. Фотография пятна излучения второй гармоники.

3.1. ГВГ кристалла cBN

Экспериментальная установка показана на рис.4. Падающий пучок был перпендикулярен плоскости $\langle 111 \rangle$, выходное излучение содержало компоненты с длиной волны как 1064 нм, так и 532 нм. Фотография излучения второй гармоники представлена на рис.5.

В этом эксперименте из-за возможности повреждения электродов мощным лазерным излучением оптическое выпрямление в чистом виде получено не было.

3.2. Оптическое выпрямление в кристалле cBN

Экспериментальная установка показана на рис.6. Падающий пучок параллелен плоскости $\langle 111 \rangle$. Часть пучка, прошедшая через делитель, используется в качестве опорного сигнала для синхронного усилителя. Основная часть

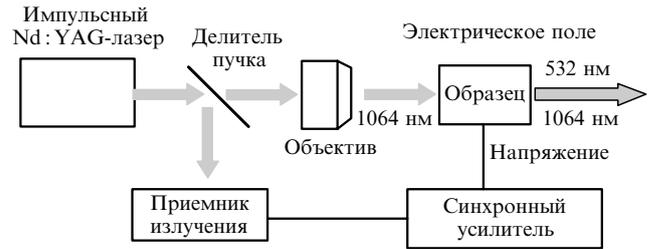


Рис.6. Схема экспериментальной установки для исследования оптического выпрямления.

излучения фокусируется объективом, проходит через кристалл cBN и удваивается по частоте (см рис.5). Напряжение сигнала оптического выпрямления, зарегистрированное синхронным усилителем, составило ~ 1 мкВ.

4. Заключение

Теоретически показано, что в кристалле cBN возможны процессы ГВГ и оптического выпрямления. В эксперименте впервые наблюдались оба этих процесса. Благодаря прозрачности кристалла cBN во всем видимом и в большей части УФ диапазона можно создать ультрафиолетовый лазер, используя ГВГ лазера видимого диапазона. При подаче на кристалл фемтосекундной последовательности импульсов возможно получение терагерцовых волн за счет эффекта оптического выпрямления. В настоящее время ведутся исследования в обоих направлениях.

1. Yang Shu-ren, Yin Jing-zhi. *Properties of Advanced Semiconductor Materials* (Beijing: Chemical Industry Press, 2003, p. 94–96).
2. Dou Qing-ping, Ma Hai-tao, Jia Gang, et al. *Science in China, Ser. E*, **48** (2), 233 (2005).
3. Franken P.A., Hill A.E., Peters C.W., et al. *Phys. Rev. Lett.*, **7** (8), 118 (1961).
4. Armstrong J.A., Bloembergen N., Ducuing J., et al. *Phys. Rev.*, **127** (9), 1918 (1962).
5. Bass M., Franken P., Ward J.F., et al. *Phys. Rev. Lett.*, **9** (11), 446 (1962).
6. Guo Si-ji. *Nonlinear Optics* (Xi'an: Northwestern Telecommunication Engineering College Publishing House, 1986, p. 118).