

06

Локализованная вторая оптическая гармоника в нелинейно-оптической керамике при фемтосекундном лазерном возбуждении

© С.О. Леонов¹, М.А. Бастамова¹, Н.В. Сидоров³, М.Н. Палатников³, В.С. Горелик^{1,2}

¹ МГТУ им. Н.Э. Баумана,
105005 Москва, Россия

² Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН,
119991 Москва, Россия

³ Институт химии и технологии редких элементов и минерального сырья им. И.В. Тананаева Кольского НЦ РАН,
184209 Апатиты, Россия

e-mail:gorelik@sci.lebedev.ru

Поступила в редакцию 04.06.2019 г.

В окончательной редакции 04.06.2019 г.

Принята к публикации 11.06.2019 г.

Проведены исследования генерации второй гармоники в образцах порошковой керамики LiTaO_3 с различным содержанием лития (48.8 и 49.3%) при возбуждении излучением фемтосекундного лазера на длине волны 1.026 мкм. Измерена зависимость интегральной мощности излучения второй оптической гармоники от мощности падающего излучения, а также предложена методика оценки коэффициента нелинейности и его однородности на этапе „green body“ керамики.

Ключевые слова: генерация второй гармоники, нелинейные оптические материалы, керамика, фемтосекундное излучение.

DOI: 10.21883/OS.2019.10.48360.175-19

Введение

За последние несколько десятков лет много внимания уделяется исследованию нелинейных свойств различных сред, в частности, нелинейности второго порядка. Нелинейность второго порядка является ключевым фактором в процессах генерации второй гармоники (ГВГ) [1]. Нецентросимметричные кристаллы являются основными материалами, используемыми для генерации второй гармоники, тем не менее такие кристаллы сложно изготовить [2,3]. В настоящее время ведутся работы по поиску и изучению свойств керамических материалов [4–7], которые могут быть использованы как аналог кристаллических сред. Интерес к таким материалам объясняется тем, что требования на выполнение условия волнового синхронизма могут быть снижены. Это связано с тем, что размеры зерен, из которых изготовлен материал, могут быть сопоставимы с длиной когерентности возбуждающего излучения. Еще одной особенностью керамических материалов является то, что для генерации второй гармоники нет необходимости в пространственной ориентации или структурировании образца, но разноупорядоченность ориентации осей кристалла в зернах приводит к снижению интегральной эффективности преобразования [8].

При генерации второй гармоники в порошках и керамике формируется рассеянное излучение [9], что затрудняет использование такого излучения в дальнейшем, а для измерения его интегральной мощности требуются

специальные устройства [10]. Также эффективность преобразования в порошках и керамике может быть невысокой, но с появлением фемтосекундных лазеров можно получать пиковую интенсивность лазерного излучения, превышающую значение 10^9 W/cm^2 , и при этом не наблюдать разрушения образца [7].

В настоящей работе исследована генерация второй оптической гармоники в образцах танталата лития в виде керамики. Предложена методика, позволяющая измерить интегральную мощность рассеянного сигнала второй гармоники, а также измерена эффективность преобразования излучения во вторую оптическую гармонику. Проведена оценка коэффициента эффективной нелинейности d_{ef} для имеющихся образцов керамики.

Подготовка образцов и их характеристики

В качестве образцов для исследования использовалась керамика LiTaO_3 с разным содержанием лития. Исходная шихта для получения образцов керамики LiTaO_3 была синтезирована методами твердофазного синтеза. Процессы синтеза LiTaO_3 носят сложный многостадийный характер и сопровождаются протеканием целого ряда последовательно-параллельных химических реакций [11]. Синтез проводился при температуре 1050°C в течение 2 h и заканчивался формированием монофазного продукта — LiTaO_3 . Керамику LiTaO_3 получали



Рис. 1. Фотография керамических образцов LiTaO_3 (49.3% — образец I, слева, 48.8% — образец II, справа).

по традиционной керамической технологии. Порошок LiTaO_3 смешивали с пластификатором — поливиниловым спиртом и затем в закаленных пресс-формах при комнатной температуре компактировали таблетки под давлением 1300 kgf/cm^2 (I образец) и 1700 kgf/cm^2 (II образец). Затем проводили спекание таблеток при температуре 1150°C в течение 2 h (I образец) и 1250°C в течение 1 h (II образец), в результате чего получали керамическую структуру. Внешний вид керамических таблеток LiTaO_3 показан на рис. 1.

Микроструктуру керамики LiTaO_3 исследовали методом сканирующей электронной микроскопии с помощью СЭМ Hitachi S-4100 и анализатора изображений Tixomet R, оснащенного программным модулем „Размер зерна“ (рис. 2).

Из рис. 2 видно, что распределения зерен по размерам в образцах имеют следующие параметры: образец I — среднее значение размера зерна $35.7 \mu\text{m}$, дисперсия по размерам зерен $11.970 \mu\text{m}^2$; образец II — среднее значение размера зерна $21.4 \mu\text{m}$, дисперсия по размерам зерен $16.088 \mu\text{m}^2$.

Экспериментальная установка

Для исследования генерации второй оптической гармоники в двух образцах керамики LiTaO_3 была разработана экспериментальная установка, схема которой приведена на рис. 3.

В качестве источника излучения использовался фемтосекундный Yb:KGW -лазер (PHAROS) с длительностью импульса $\approx 250 \text{ fs}$, центральной длиной волны 1.026 nm , частотой повторения 200 kHz и средней мощностью до 3 W . Диаметр лазерного луча составил 3 mm , а параметр качества пучка $M^2 = 1.05$. Лазерный луч, отражаясь от двух зеркал, фокусировался линзой (LA1509-B, $f = 100 \text{ mm}$) на образец, который был расположен в центре интегрирующей сферы (RTC-060-SF). Минимальное фокусное расстояние линзы должно быть больше, чем половина внутреннего диаметра сферы,

который составляет 152.4 mm . Диаметр сфокусированного в центре образца пятна составил $63 \mu\text{m}$, что соответствует максимальной плотности пиковой мощности 2.2 TW/cm^2 . Излучение второй гармоники на длине волны 513 nm собиралось интегрирующей сферой и через интерференционный фильтр (FB500-40) направлялось в приемник излучения (DET 10A). Применение интегрирующей сферы позволяет собрать рассеянное излучение на длине волны второй гармоники и направить его на приемник излучения, за счет чего измерить интегральную мощность второй гармоники ($P_{2\omega}$).

Интегральное значение мощности второй гармоники ($P_{2\omega}$) измерялось в диапазоне значений пиковой мощности накачки (P_ω) от 1 до 50 MW . Зарегистрированное напряжение пересчитывалось в значение интегральной мощности второй гармоники с помощью коэффициента, значение которого было определено в результате калибровки интегрирующей сферы. Калибровка заключалась в регистрации напряжения на приемнике излучения, установленном в выходном порту интегрирующей сферы, при направлении в сферу излучения на длине волны 513 nm от опорного источника с заданной мощностью. В сфере был установлен специальный рассеивающий элемент с покрытием Spectrafect, таким же, как и внутренняя поверхность самой сферы.

Для измерения спектра генерации второй гармоники использовался оптический спектрометр (CCS200) со спектральным разрешением $< 2 \text{ nm}$, который был подсоединен к выходному порту интегрирующей сферы через волоконный кабель (рис. 3).

Результаты эксперимента

Спектр излучения второй гармоники был измерен для двух исследуемых образцов керамики (рис. 4).

Полученный спектр имеет выраженный максимум на длине волны 513 nm , что согласуется с длиной волны лазера накачки (1.026 nm).

Измерения зависимости мощности излучения второй гармоники от мощности накачки были проведены на различных участках двух образцов (рис. 5). Для каждого образца наблюдалось увеличение интенсивности второй гармоники до определенного значения мощности накачки ($P_\omega^{\text{кр}}$).

Снижение мощности излучения второй гармоники при подаче мощности накачки более $P_\omega^{\text{кр}} = 40 \text{ MW}$ может быть обусловлено локальным разрушением образца, о чем свидетельствуют характерные остаточные повреждения на обоих образцах (рис. 6). Отклонение от параболической аппроксимации может быть связано с различной ориентацией осей кристалла для отдельных зерен и также с возможной сменой знака $d_{\text{эф}}$.

Для обоих образцов было проведено измерение мощности второй гармоники при последовательном увеличении и затем последовательном уменьшении мощности накачки (рис. 7).

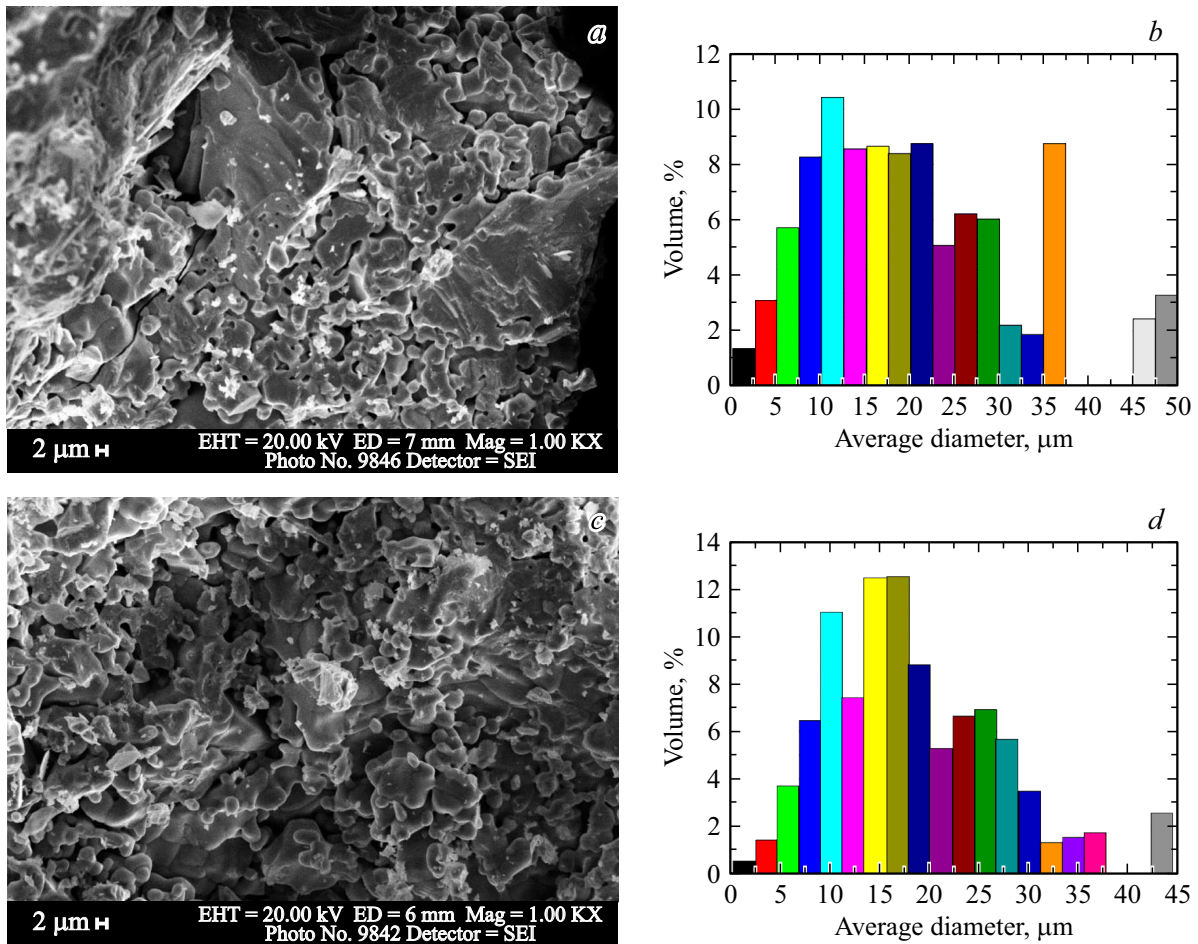


Рис. 2. Микроструктура и распределение зерен по размерам керамики LiTaO₃: a, b — образец I; c, d — образец II.

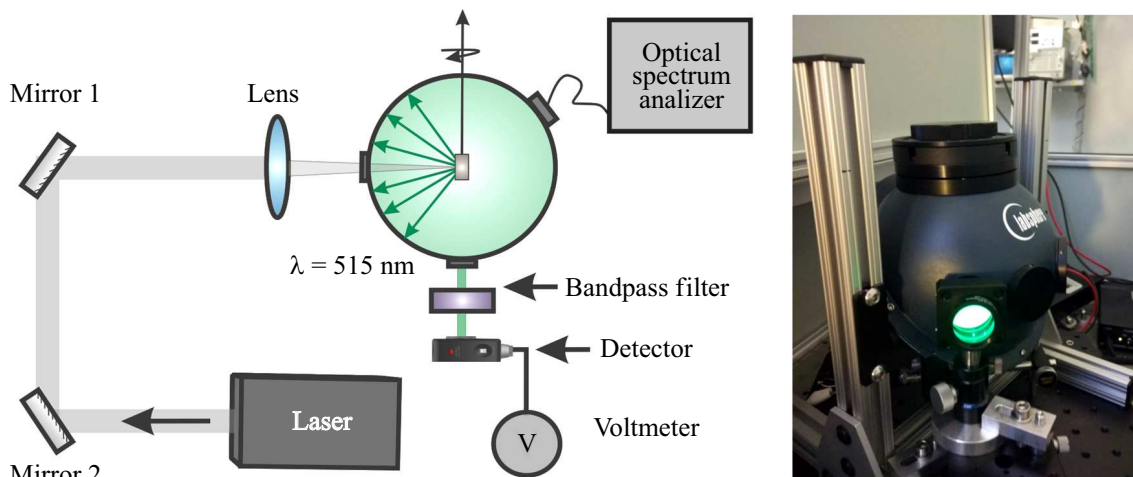


Рис. 3. Схема экспериментальной установки.

Следует отметить, что при увеличении мощности не более чем на $0.5P_{\omega}^{kp}$ от критической мощности при последовательном обратном уменьшении мощности накачки удастся получить значения $P_{2\omega}$, совпадающие с

полученными при увеличении мощности (рис. 7, b), что позволяет говорить о том, что разрушение образца не снижает эффективности его работы. Однако при превышении P_{ω}^{kp} более чем на $0.5P_{\omega}^{kp}$ не удастся получить

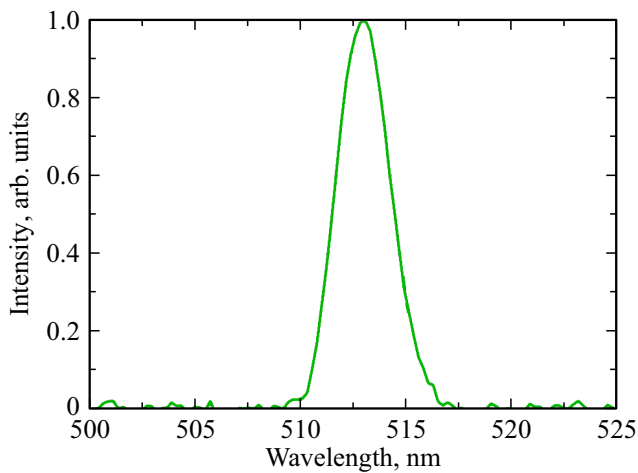


Рис. 4. Спектр ГВГ.

повторения мощности второй гармоники при обратном уменьшении мощности накачки (рис. 7, а), что указывает на полное разрушение образца.

Обсуждение результатов

Для образца I критическая пиковая мощность накачки P_{ω}^{kp} составляла 37.5 MW, а для образца II — 45 MW. Измеренные значения интегральной мощности второй гармоники для образца II хорошо совпадают с аппроксимацией квадратичной функцией, в то время как зависимости для образца I имеют сильное отклонение от квадратичной аппроксимации, что может быть связано с наличием неоднородностей в образце I, а также из-за большего размера зерен, чем у образца II. Максимальное значение интегральной мощности второй гармоники для образца I достигает 85 kW при мощности накачки 35 MW, что существенно выше, чем для образца II —

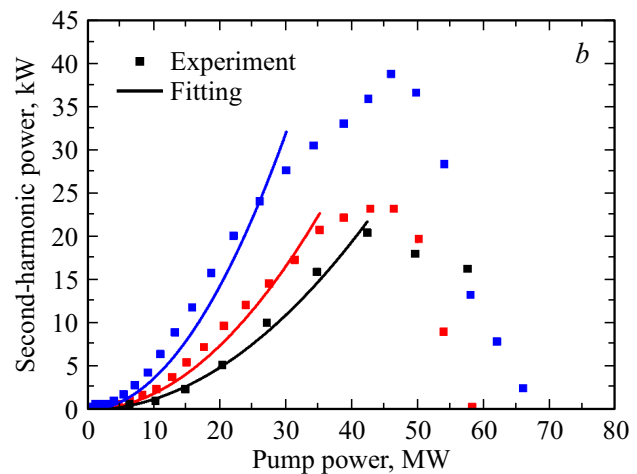
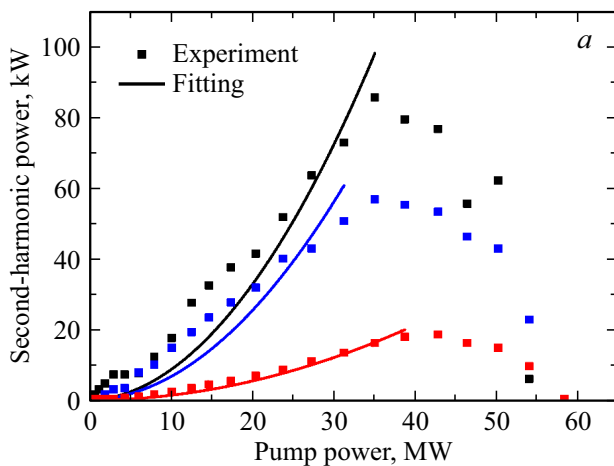


Рис. 5. Зависимость мощности второй гармоники для образца I с содержанием лития 49% (а); зависимость мощности второй гармоники для образца II с содержанием лития 48.8% (b).

38 kW при мощности накачки 45 MW, эффективность генерации второй гармоники в данных точках составила 0.242 и 0.084% для образцов I и II соответственно.

Полученные экспериментальные данные (рис. 5) в диапазоне от 0.1 W до значения P_{ω}^{kp} были аппроксимированы зависимостью

$$P_{2\omega} = G(d_{\text{ef}}, \hat{r})P_{\omega}^2,$$

где $G(d_{\text{ef}}, \hat{r})$ — функция, отражающая влияние коэффициентов восприимчивости второго порядка d_{ef} и среднего размера частиц \hat{r} [9]. Согласно общей теории генерации второй гармоники, можно записать выражение, которое определяет мощность второй гармоники [14]:

$$P_{2\omega} = \frac{2\pi^2 d_{\text{ef}}^2 L^2}{\varepsilon_0 c n_{2\omega}^2 \lambda_{2\omega}^2 A} \left[\text{sinc}^2 \left(\frac{|\Delta k L|}{2} \right) \right] P_{\omega}^2,$$

где L — длина взаимодействия, n_{ω} — показатель преломления для основной длины волны, $n_{2\omega}$ — показатель преломления для длины волны второй гармоники, $\lambda_{2\omega}$ — длина волны второй гармоники, A — площадь пятна на образце, Δk — волновая расстройка. Если рассматривать случай генерации второй гармоники в керамике, то множитель, учитывающий влияние фазового синхронизма

$$\left[\text{sinc}^2 \left(\frac{|\Delta k L|}{2} \right) \right],$$

можно считать равным 1 [12], а длина взаимодействия определяется средним значением размера зерна \hat{r} , тогда выражение для мощности второй гармоники можно записать в виде

$$P_{2\omega} = \frac{2\pi^2 d_{\text{ef}}^2 \hat{r}^2}{\varepsilon_0 c n_{2\omega}^2 \lambda_{2\omega}^2 A} P_{\omega}^2 = G(d_{\text{ef}}, \hat{r})P_{\omega}^2.$$

Из анализа экспериментальных результатов имеем среднее значение функции $G(d_{\text{ef}}, \hat{r}) = (7.4 \pm 0.4) \cdot 10^{-4} 1/W$,

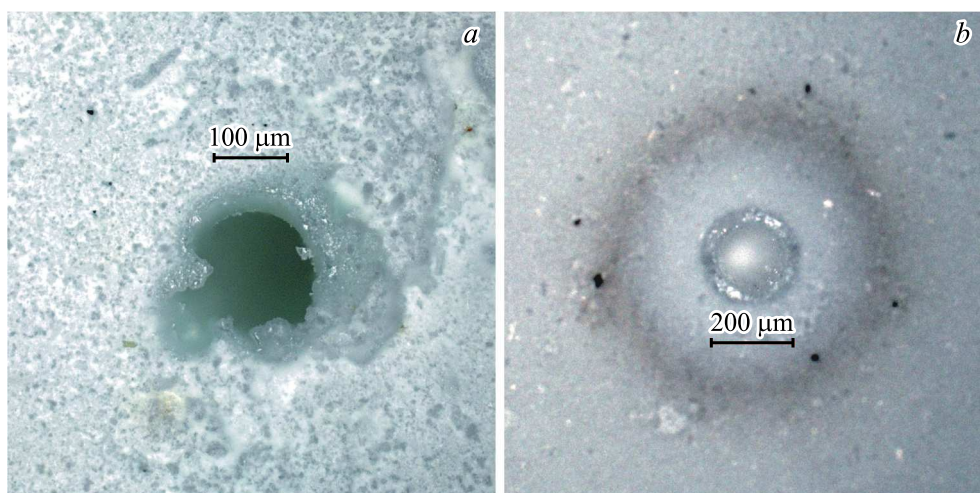


Рис. 6. Изображение локального разрушения поверхности (а) образца I и (b) образца II.

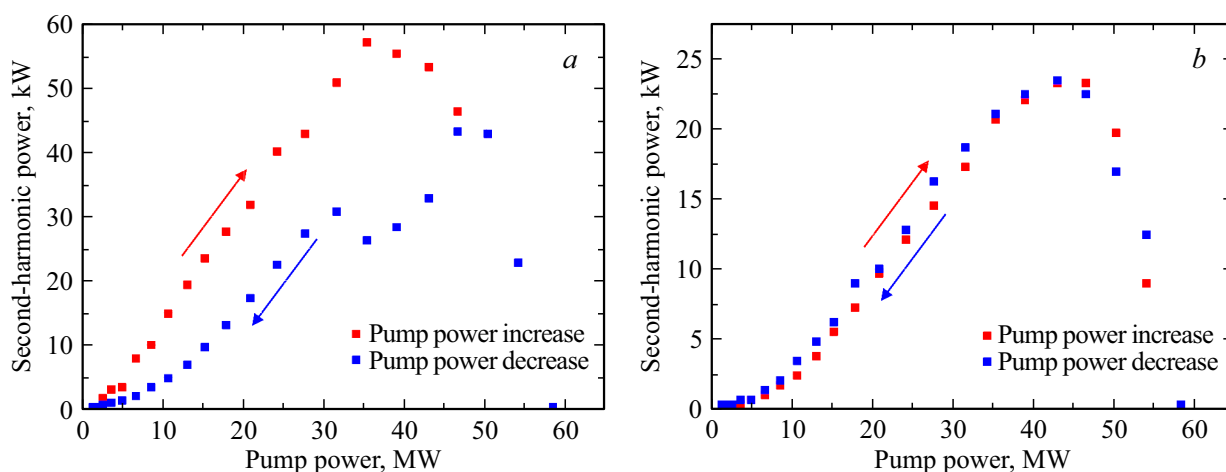


Рис. 7. Зависимость мощности второй гармоники при последовательном увеличении и уменьшении мощности накачки для образца I (а) и для образца II (b).

а для всех экспериментов с образцами I и II, таким образом, величина коэффициента эффективной нелинейности будет $d_{\text{ef}} = (5.8 \pm 1.3) \cdot 10^{-10}$ м/В, что хорошо согласуется со справочными данными по материалу LiTaO_3 [13].

Заключение

В настоящей работе изучены особенности процесса ГВГ высокоинтенсивного излучения фемтосекундного лазера в двух образцах керамики LiTaO_3 с содержанием лития 48.8 и 49.3%. Измерена интегральная мощность излучения ГВГ и определена эффективность преобразования, которая составила 0.242 и 0.084% для двух образцов соответственно. На основе экспериментальных данных проведен анализ коэффициента эффективной нелинейности d_{ef} , среднее значение которого составило

$(5.8 \pm 1.3) \cdot 10^{-10}$ м/В, что хорошо согласуется с литературными данными.

Финансирование работы

Работа выполнена за счет средств Российского научного фонда, проект № 19-12-00242.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] Franken P, Hill A, Peters C, Weinreich G. // Phys. Rev. Lett. 1961. V. 7. N 4. P. 118. doi 10.1103/PhysRevLett.7.118
- [2] Zernike F, John E. Midwinter. Applied Nonlinear Optics. John Wiley and Sons, 1973. 414 p.

- [3] *Byer R.L.* // Annual Review of Materials Science. 1974. V. 4. N 1. P. 147.
- [4] *Gorelik V.S., Zhabotinskii E.V., Mitin G.G.* // Quantum Electronics. 1994. V. 24. N 4. P. 338.
- [5] *Kim E., Steinbruck A., Buscaglia M.T., Buscaglia V., Pertsch T., Grange R.* // ACS Nano. 2013. V. 7. N 6. P. 5343.
- [6] *Voinov Yu.P., Gorelik V.S., Zaitsev K.I., Zlobina L.I., Sverbil P.P., Yurchenko S.O.* // Phys. Solid State. 2015. V. 57. N 3. P. 453.
- [7] *Gorelik V.S.* et al. // J. Rus. Laser Research. 2016. V. 37. N 3. P. 254.
- [8] *Sánchez-Dena O.* et al. // Materials Research Express. 2017. V. 4. N 3. P. 035022.
- [9] *Aramburu I.* et al. // Appl. Phys. Lett. 2014. V. 104. N 7. P. 071107.
- [10] *Carr K.F.* Labsphere Technical Guide. Labsphere Inc. 1997.
- [11] *Палатников М.Н., Сидоров Н.В., Калинин В.Т.* Сегнетоэлектрические твердые растворы на основе оксидных соединений ниобия и тантала. Синтез, исследование структурного упорядочения и физических характеристик. СПб.: Наука, 2001.
- [12] *Kurtz S.K., Perry T.T.* // J. Appl. Phys. 1968. V. 39. N 8. P. 3798.
- [13] *Гурзадян Г.Г., Дмитриев В.Г., Никогосян Д.Н.* Нелинейно-оптические кристаллы: Свойства и применение в квантовой электронике. Справочник. М.: Радио и связь, 1991. 160 с.