

ГЕНЕРАЦИЯ ВТОРОЙ ОПТИЧЕСКОЙ ГАРМОНИКИ В НЕОДНОРОДНЫХ КРИСТАЛЛАХ НИОБАТА ЛИТИЯ И КОНТРОЛЬ КАЧЕСТВА КРИСТАЛЛА

А. И. Ковергин, В. Г. Тункин, А. И. Холодных и А. С. Чиркин

Приведены параметры установки, использующей генерацию второй гармоники для анализа оптического качества кристаллов. Исследовано оптическое качество нестехиометрированных кристаллов LiNbO_3 . Обнаружены сильные изменения интенсивности гармоники, температуры 90-градусного синхронизма и температурной ширины синхронизма по поперечному сечению кристаллов. Экспериментально установлено, что площадь под кривой зависимости мощности гармоники от температуры кристалла является постоянной величиной для различных кристаллов. Это обстоятельство дает однозначный количественный критерий однородности нелинейного кристалла.

1. Широкое использование кристаллов в нелинейной оптике связано с проблемой выращивания кристаллов высокого оптического качества.

Особенно высокие требования предъявляются к качеству кристаллов при создании параметрических генераторов света непрерывного действия. В настоящее время наиболее подходящим кристаллом для непрерывной параметрической генерации от источника накачки в видимом диапазоне является кристалл LiNbO_3 . Этот кристалл обладает хорошими нелинейными свойствами и допускает с помощью изменения температуры получение 90-градусного синхронизма взаимодействующих волн и позволяет, таким образом, эффективно использовать «оптимальную фокусировку пучка накачки» [1]. Применение кристаллов LiNbO_3 с молярным отношением $\text{Li/Nb} \cong R \geq 1$ позволяет поднять температуру 90-градусного синхронизма кристалла выше 170°C , при которой уже не возникают наведенные оптические неоднородности (optical damage).

Однако кристаллы LiNbO_3 с параметром $R \neq 1$ обладают худшей однородностью по сравнению с кристаллами, выращенными из равновесного расплава, и поэтому необходим специальный отбор и контроль оптического качества таких кристаллов.

Наличие неоднородностей в кристалле может быть связано с качеством обработки поверхностей кристалла, характером расположения доменов, изменением концентрации компонент кристалла, флуктуацией нелинейной восприимчивости и т. п.

Существуют хорошо разработанные методы контроля «нелинейных» оптических свойств кристаллов: интерференционный — по остаточному просветлению вдоль оптической оси в скрещенных поляроидах, по величине электрооптического эффекта, дефектоскопия с помощью микрофотографии.

Однако даже измерив все указанные выше параметры реального кристалла, трудно оценить, как они будут в совокупности влиять на величину нелинейного эффекта. В связи с этим желательно иметь такой метод определения оптического качества кристаллов, который бы оценивал суммарное воздействие, как нелинейных, так и «линейных» свойств на протекание нелинейных процессов. Удобным методом, дающим такую «интегральную» характеристику кристалла, является метод, основанный на генерации

2-й гармоники в исследуемом кристалле. С одной стороны, этот нелинейный эффект является наиболее изученным и сравнительно легко реализуемым, с другой стороны, знание особенностей генерации 2-й гармоники в исследуемом кристалле позволяет сделать выводы об особенностях поведения других нелинейных явлений в этом же кристалле.

Именно этот метод исследования качества кристаллов применяется в настоящей работе,¹ недавно он был применен и другими авторами [4, 5].

Ниже приведено описание используемой нами установки и представлены результаты экспериментального исследования удвоения частоты в неоднородном кристалле.

2. Блок-схема установки изображена на рис. 1. Здесь 1) He—Ne лазер, работающий на длине волны $\lambda=1.15$ мкм в режиме одной поперечной моды, мощность излучения $P=0.5$ мвт; 2) системы контроля стабильности излучения лазера (точность 4%) и модовой структуры излучения;

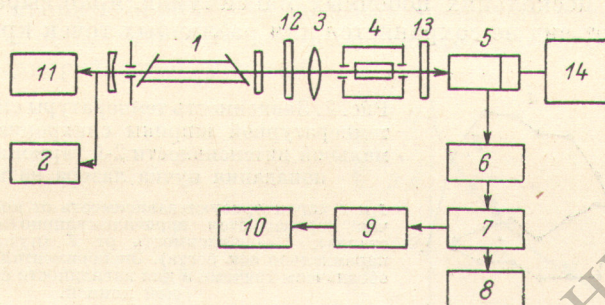


Рис. 1. Экспериментальная установка

1 — He—Ne лазер ($\lambda=1.15$ мкм); 2 — блок контроля мощности лазера; 3 — линза, $f=10$ см; 4 — печь для нагрева кристалла LiNbO_3 ; 5 — ФЭУ; 6 — формирователь импульсов; 7 — удлинитель импульсов; 8 — счетчик; 9 — детектор; 10 — самописец; 11 — ЭОП; 12 — ИК фильтр; 13 — фильтр СЭС; 14 — блок контроля чувствительности ФЭУ.

фокусирующая линза ($f=10$ см), формирующая в фокусе пучок диаметром 100 мкм; 4) печь для нагрева кристалла (точность контроля изменения температуры 0.05°C); 5—10) система регистрации излучения 2-й гармоники.

Для регистрации излучения гармоники был применен счет фотонов. Импульсы с ФЭУ длительностью $\tau=10$ нсек. поступали на формирователь, где дискриминировались по амплитуде и затем стандартизовались.² Далее импульсы поступали на удлинитель, затягивающий длительность импульса до $50\div 300$ нсек. с целью увеличения постоянной составляющей после детектора. Сигналы с детектора поступали на самописец. Одновременно сигнал можно было регистрировать счетчиком. Число шумовых импульсов с ФЭУ равнялось 200 имп./сек. а вместе с подсветкой от лазера — 1800 имп./сек. Чувствительность установки повышалась за счет интегрирования сигнала в течение 1 сек. и составила $6 \cdot 10^{-15}$ вт. Контроль чувствительности установки осуществлялся с помощью эталонного сигнала на длине волны 2-й гармоники от стабилизированного теплового источника (точность 3%).

3. Нами проводились измерения зависимости мощности 2-й гармоники, генерируемой в кристаллах LiNbO_3 , от температуры.

Кристаллы длиной 1 см и сечением 0.5×0.5 см, выращенные вдоль оптической оси, помещались в печь и температура печи изменялась около температуры 90-градусного синхронизма (около 280°C). Место попадания пучка излучения лазера на кристалл изменялось с шагом 0.5 мм в главной плоскости кристалла и в плоскости, перпендикулярной оптической оси.

Все регистрируемые величины: мощность 2-й гармоники ($P_{2\omega}$), температура 90-градусного синхронизма (T_c) и температурная ширина синхронизма

¹ Результаты работы были доложены на V Всесоюзной конференции по нелинейной оптике [3].

² Подробнее описание схемы регистрации приведено в нашей работе [6].

(ΔT_c) зависили от места попадания луча лазера на кристалл (рис. 2). Изменение $P_{2\omega}$ и ΔT_c свидетельствуют о различной степени неоднородности и по длине кристалла, а изменения T_c — по поперечному сечению кристалла.

Температурная ширина синхронизма определялась из выражения

$$\Delta T_c = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} P_{2\omega}(T) dT}{P_{2\omega, \text{ макс.}}} \quad (1)$$

Определять температурную ширину синхронизма как разность температур между уровнями половинной мощности 2-й гармоники, не представляется возможным, так как зависимость $P_{2\omega}(T)$ часто имеет сложный вид (наличие нескольких побочных максимумов, ярко выраженная асимметрия), и этот вид не сохраняется для различных точек кристалла.

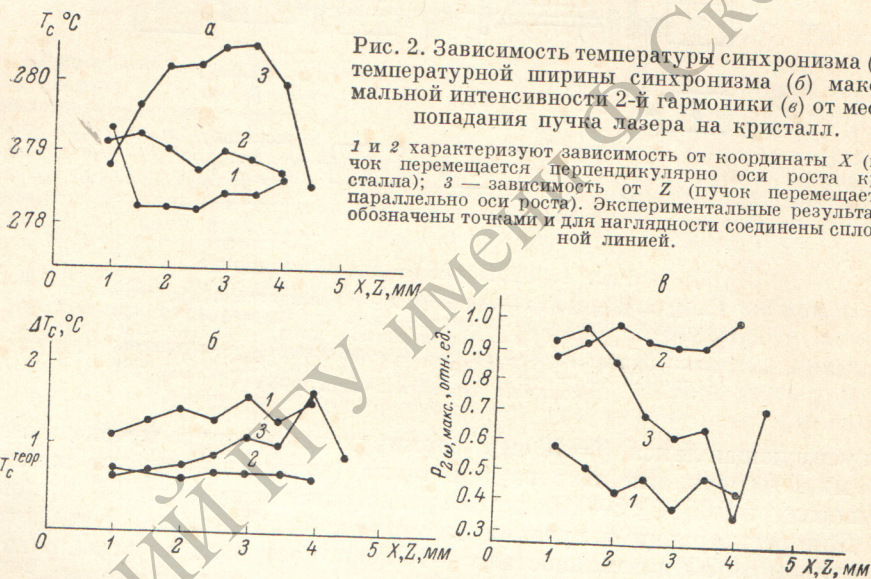


Рис. 2. Зависимость температуры синхронизма (а), температурной ширины синхронизма (б) максимальной интенсивности 2-й гармоники (в) от места попадания пучка лазера на кристалл.

1 и 2 характеризуют зависимость от координаты X (пучок перемещается перпендикулярно оси роста кристалла); 3 — зависимость от Z (пучок перемещается параллельно оси роста). Экспериментальные результаты обозначены точками и для наглядности соединены сплошной линией.

На рис. 2, а видно, что температура 90-градусного синхронизма в случае перемещения пучка перпендикулярно оси роста кристалла меняется незначительно для одной области кристалла (кривая 2) и довольно сильно изменяется около некоторого среднего значения для другой области (кривая 1). В случае перемещения пучка вдоль оси роста кристалла изменения T_c максимальны. Аналогичным образом изменяются величины ΔT_c (рис. 2, б) и $P_{2\omega, \text{ макс.}}$ (рис. 2, в), причем при увеличении ΔT_c -интенсивность 2-й гармоники падает и наибольшие изменения происходят, как и для T_c , при перемещении пучка излучения лазера вдоль оси роста кристалла.

Форма температурной зависимости $P_{2\omega}(T)$ качественно меняется при перемещении луча в плоскости оси роста и не меняется при перемещении в перпендикулярном направлении. Следовательно, кристалл можно представить состоящим из слоев с одинаковыми нелинейными свойствами, ориентированных перпендикулярно оси роста. Очевидно, это происходит из-за изменения стехиометрии кристалла по мере вытягивания его из расплава, на что указывали Байер и др. [7].

Характерные зависимости $P_{2\omega}(T)$ для областей кристалла с различной степенью неоднородностей приведены на рис. 3. Для оценки степени однородности нелинейных кристаллов Мидвинтером [8] предложено рассматривать температурную ширину синхронизма, определенную по половинному уровню максимальной интенсивности 2-й гармоники.

Однако, как уже отмечалось выше, такой критерий не позволяет количественно сравнить качество кристаллов, для которых формы зависимостей мощности 2-й гармоники от температуры существенно отличаются.

Нэш и др. [5] предложили за критерий качества кристаллов принять эффективную ширину синхронизма, определяемую следующим выражением:

$$\Delta\varphi_{\text{эфф.}} \equiv \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} P_{2\omega}(\varphi) d\varphi}{B_{2\omega, \text{ макс.}}}, \quad (2)$$

где $\varphi \equiv 2\Delta kl$ — фазовая расстройка, Δk — волновая расстройка, l — длина кристалла.

Введение такого критерия качества кристалла оказывается возможным, вследствие того что, как показано теоретически в работе [5], мощность 2-й гармоники, проинтегрированная по всему диапазону изменений фазовой расстройки φ , остается постоянной независимо от характера и величины внутренних неоднородностей кристалла.

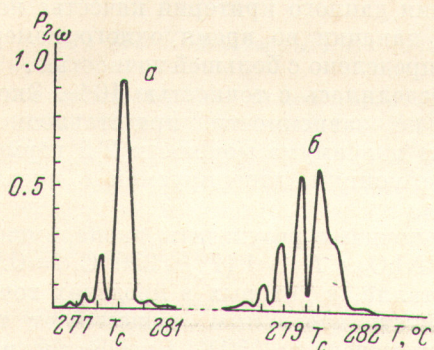


Рис. 3. Характерные зависимости интенсивности 2-й гармоники от температуры.

a — область малых неоднородностей, *b* — область больших неоднородностей.

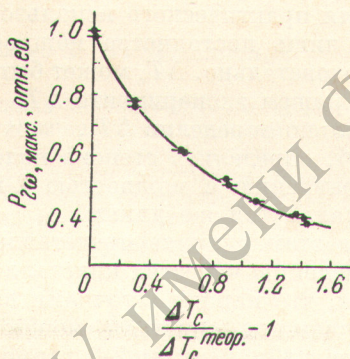


Рис. 4. Зависимость максимальной интенсивности 2-й гармоники от температурной ширины синхронизма ΔT_c .

Сплошная кривая — теоретическая зависимость, точки — результаты эксперимента.

Для проверки этого предположения во время нашего эксперимента мы постоянно контролировали стабильность мощности накачки с точностью до 4%.

Экспериментально определяемая нами температурная ширина синхронизма связана с предлагаемой в работе [5] эффективной шириной синхронизма соотношением

$$\Delta T_c = \frac{\lambda_n}{\pi l \frac{\partial (n_2^e - n_1^o)}{\partial T}} \Delta\varphi_{\text{эфф.}}, \quad (3)$$

где λ_n — длина волны накачки, n_1^o , n_2^e — показатели преломления обыкновенной и необыкновенной волн на частотах накачки и 2-й гармонике соответственно.

Эффективная ширина синхронизма для идеального кристалла $\Delta\varphi_{\text{эфф.}}^{\text{теор.}} = \pi$ и

$$\partial (n_2^e - n_1^o) / \partial T = 8.06 \cdot 10^{-5} \text{ град.}^{-1} [9] \text{ для LiNbO}_3 \text{ при } R = 1.$$

Предполагаемая независимость $\partial (n_2^e - n_1^o) / \partial T$ от R для $R > 1$ (для $0.94 < R \leq 1$) это обстоятельство установлено Байером [7]), получаем для идеального кристалла LiNbO_3 длиной 1 см $\Delta T_c^{\text{теор.}} = 0.64^\circ \text{C}$.

Зависимость максимальной мощности 2-й гармоники от ΔT_c и $\Delta\varphi_{\text{эфф.}}$ после нормировки на $\Delta T_c^{\text{теор.}}$ и $\Delta\varphi_{\text{эфф.}}^{\text{теор.}}$ для идеального кристалла выражаются одной зависимостью, представленной на рис. 4.

Из рис. 3 следует, что параметры 2-й гармоники существенно меняются для различных точек кристалла, однако величина $\int_{-\infty}^{+\infty} P_{2\omega}(T) dT$ остается постоянной в пределах ошибки эксперимента. Ошибка эксперимента в определении этой величины была менее 15% для уширенных кривой синхронизма до 50% от теоретической ширины и возросла до 20% при больших уширениях.

Ошибка эксперимента определялась в основном следующими параметрами:

- 1) точностью контроля стабильности мощности накачки (4%);
- 2) точностью определения нулевого уровня мощности 2-й гармоники при записи на самописце (2% от максимальной мощности 2-й гармоники, зарегистрированной в кристалле);
- 3) систематической ошибкой (порядка 10%), связанной с тем, что интеграл (1) в действительности борется в конечных пределах (интегрирование проводилось с помощью планиметра).

Для практического использования данного критерия качества необходимо лишь постоянство мощности накачки во время одного измерения и, следовательно, ΔT_c может быть определено с большей точностью.

В нашем эксперименте ΔT_c определялось с точностью 10%. Экспериментально определив ΔT_c , можно по зависимости, представленной на рис. 4, определить степень падения максимума мощности 2-й гармоники по сравнению с мощностью 2-й гармоники, генерируемой в идеальном кристалле той же длины.

На этом рисунке представлены точками результаты эксперимента по определению качества кристалла LiNbO_3 с $R > 1$ ($T_c \approx 280^\circ \text{C}$, $l = 0.9$ см). Видно, что наряду с точками кристалла, в которых в пределах точности эксперимента кристалл можно считать идеальным, существуют точки, в которых максимум 2-й гармоники падает до 50%. Следовательно, эффективная длина кристалла [7], определяемая как длина идеального кристалла, в котором генерируется та же мощность гармоники, что и в реальном кристалле длиной l , в этих точках кристалла равна $l_{\text{эфф.}} = 0.7 l$.

Эксперимент, проведенный специально для определения качества стехиометрированного кристалла LiNbO_3 ($R=1$, $T_c=210^\circ \text{C}$, $l=1,1$ см) дал в среднем по кристаллу $l_{\text{эфф.}} = (0.93 \pm 0.05)$ см, т. е. этот кристалл существенно более однороден и по своим качествам близок к идеальному по всей апертуре кристалла.

Таким образом, в данной работе экспериментально исследованы некоторые особенности генерации 2-й гармоники в неоднородных кристаллах ниобата лития и показано, что генерация 2-й гармоники является эффективным методом контроля качества нелинейных кристаллов.

Авторы выражают благодарность С. А. Ахманову за интерес к работе и обсуждение ее результатов, Е. И. Ширкову и С. М. Аракелянцу за помощь в проведении эксперимента.

Литература

- [1] G. D. Boyd, D. A. Kleinman. J. Appl. Phys., 39, 3597, 1968.
- [2] A. Ashkin, G. D. Boyd, I. M. Dziedzic, R. G. Smith, A. A. Ballman, I. I. Levinstein, K. Nassau. Appl. Phys. Lett., 972, 1966.
- [3] А. И. Ковригин, В. Г. Тункин, А. И. Холодных, А. С. Чиркин. Тез. докл. V Всес. конф. по нелинейной оптике (Кишинев, ноябрь, 1970 г.). Изд. МГУ, 1970.
- [4] M. Tsuya, Y. Fujino, K. Sugibuchi. J. Appl. Phys., 41, 2557, 1970.
- [5] F. R. Nash, G. D. Boyd, M. Sargent, P. M. Bridenbaugh. J. Appl. Phys., 41, 2564, 1970.
- [6] А. И. Ковригин, В. Г. Тункин, А. И. Холодных. ПТЭ, № 2, 241, 1971.
- [7] R. L. Byer, I. E. Young, R. S. Feigelson. J. Appl. Phys., 41, 6, 1970.
- [8] I. E. Midwinter. Appl. Phys. Lett., 11, 128, 1967.
- [9] M. V. Hobben, I. Warner. Appl. Phys. Lett., 22, 243, 1966.

Поступило в Редакцию 5 апреля 1971 г.