

Санкт-Петербургский государственный университет

**Генерация второй
гармоники в нелинейном
кристалле КДР импульсами
фемтосекундного лазера**

Санкт-Петербург

2022

Содержание одобрено Учебно-методической комиссией по УГСН 03.00.00 Физика и астрономия и УГСН 14.00.00 Ядерная энергетика и технологии. Протокол № 05/2.1/03-03-8 от 27 мая 2022 г.
Оригинал-макет подготовлен авторами.

В.Ф. Агекян, М.В. Бутурлимова, А.Ю. Серов. Генерация второй гармоники в нелинейном кристалле KDP импульсами фемтосекундного лазера . Описание лабораторной работы.

Учебно-методическое пособие является описанием лабораторной работы третьего модуля «Лаборатория экспериментальной физики» блока «Оптические приборы для исследования», выполняемой студентами бакалавриата по направлению «Физика», «Прикладная математика и физика», «Инженерно-ориентированная физика» СПбГУ в 5-ом семестре. В работе изучается нелинейное оптическое явление — генерация второй гармоники в кристалле дигидрофосфата калия с использованием спектрального прибора S2000 Fiber Optic Spectrometers фирмы Ocean Optics. Источником основной гармоники служит импульсный фемтосекундный лазер Пульсар-2.

Рецензенты: канд. физ.-мат. наук, доцент Р.В. Чербунин, канд. физ.-мат. наук, доцент Р.Е. Асфин.

Введение

В оптике вплоть до середины двадцатого столетия считалось, что оптические свойства сред линейны, в частности, в них выполняются следующие условия:

- оптические свойства материалов, такие как показатель преломления и коэффициент поглощения, не зависят от интенсивности света;
- справедлив принцип суперпозиции: два пучка света в одной и той же области среды распространяются независимо и не взаимодействуют друг с другом;
- частота света не изменяется при прохождении светового луча через среду.

Применение мощных лазерных источников, которое началось с 60-х годов двадцатого столетия, показало, что свойства среды линейны только в слабых световых полях. При больших интенсивностях света среды проявляют нелинейные свойства:

- показатель преломления зависит от интенсивности света, следовательно, в нелинейной оптической среде нарушается принцип суперпозиции, то есть пучки света взаимодействуют между собой;
- частота света может изменяться при его прохождении через нелинейную среду.

Оптическая нелинейность среды приводит к целому ряду явлений, в числе которых генерации суммарных и разностных частот в оптическом диапазоне, самофокусировка света, просветление или затемнение оптической среды и т.д.

Целью настоящей работы является знакомство с одним из важнейших явлений нелинейной оптики — генерацией высших гармоник оптического излучения, а именно, второй гармоники.

Феноменологическое описание генерации второй гармоники

Генерация суммарных частот заключается в возникновении в среде волны с частотой ω_3 при распространении в ней двух волн с частотами ω_1 и ω_2 , при этом

$$\omega_1 + \omega_2 = \omega_3.$$

В случае, когда в среде распространяется одна волна с частотой ω , реализуется частный случай — генерация второй гармоники

$$\omega + \omega = 2\omega.$$

Нелинейная оптическая восприимчивость

Под действием поля \mathbf{E} световой волны, распространяющейся в прозрачной конденсированной среде, происходит поляризация среды. Для световой волны оптического диапазона основной вклад в поляризуемость вносят электронные оболочки атомов. Характер взаимодействия внешнего поля \mathbf{E} и среды определяется соотношением напряженностей внешнего поля и внутриатомного поля E_a .

Величина внутриатомного поля E_a для атома водорода определяется напряженностью поля элементарного заряда на расстоянии боровского радиуса r_b

$$E_a = \frac{e}{4\pi\epsilon_0 r_b^2} = \frac{1,602 \cdot 10^{-19}}{4 \cdot \pi \cdot 8,854 \cdot 10^{-12} \cdot (0,529 \cdot 10^{-10})^2} \approx 5 \cdot 10^{11} \left(\frac{\mathbf{B}}{\mathbf{м}} \right),$$

где e — заряд электрона, ϵ_0 — диэлектрическая постоянная. Для более тяжелых атомов внутриатомное поле слабее, порядок его величины составляет 10^{10} В/м.

Для характеристики взаимодействия этих полей можно выбрать безразмерный параметр

$$N = \frac{E}{E_a}.$$

В слабых полях, характерных для нелазерных источников, $E < 10^3$ В/м, $N \ll 1$, и поляризация среды P пропорциональна напряженности поля E (линейное приближение). В этом случае

$$P = \epsilon_0 \chi^{(1)} E, \quad (1)$$

где $\chi^{(1)}$ — линейная восприимчивость. При написании уравнения (1), для простоты, мы не учитывали векторный характер как приложенного поля так и поляризации среды.

В сильных электрических полях, характерных для мощных лазерных пучков, соотношение (1) уже не является хорошим приближением, несмотря на то, что $N < 1$. Существенна нелинейная зависимость *поляризуемости среды от напряженности поля световой волны*, которая может быть представлена в виде разложения P в ряд по степеням E

$$P(E) = \epsilon_0 (\chi^{(1)} E + \chi^{(2)} E^2 + \chi^{(3)} E^3 + \dots) = P^{(1)} + P^{(2)} + P^{(3)} + \dots, \quad (2)$$

где $\chi^{(n)}$ — восприимчивость (n -го) порядка. Здесь $P^{(1)}$ отвечает за однофотонное поглощение и преломление, $P^{(2)}$ — за оптическое выпрямление и генерацию второй гармоники, $P^{(3)}$ — за самофокусировку и т.д. Естественно предположить, что если E сравнимо с E_a , то и $P^{(2)}$ сравнимо с $P^{(1)}$, откуда следует, что $\chi^{(2)}$ сравнимо с $\chi^{(1)}/E_a$. Таким образом, если для прозрачных кристаллов $\chi^{(1)} \sim 1$, то

$$\begin{aligned} \chi^{(2)} &\sim 2 \cdot 10^{-12} \text{ м/В}, \\ \chi^{(3)} &\sim 4 \cdot 10^{-24} \text{ м}^2/\text{В}^2. \end{aligned}$$

Лазерное излучение обычно характеризуют плотностью мощности I — отношением мощности излучения к площади пучка, выраженной в Вт/м². Чтобы

связать эту величину с напряженностью электрического поля световой волны в единицах В/м, используем оценочную формулу

$$I = EH = \sqrt{\frac{\varepsilon\varepsilon_0}{\mu\mu_0}} \frac{1}{2} E^2 \approx \frac{1}{400} E^2, \quad (3)$$

где μ_0 – магнитная восприимчивость (для немагнитных сред можно считать $\mu = 1$), для простоты оценки ε будем считать равным 4.

Используя это выражение, оценим плотность мощности лазерного пучка для достижения необходимой величины светового поля. Подставляя в выражение (3) величину внутриатомного поля $E = 10^{10}$ В/м, получим величину $2,5 \cdot 10^{17}$ Вт/м² ($25 \cdot 10^3$ ГВт/см²). Такую плотность мощности лазерного пучка надо иметь для наблюдения нелинейных явлений.

Плотность мощности излучения в фокусе непрерывного неодимового лазера имеет величину порядка 5 Вт/см², что на много порядков меньше необходимого значения. Для достижения достаточной величины плотности мощности лазерного пучка, в работе используется лазер, который работает в импульсном режиме и передаёт кристаллу энергию в 5 Дж за время порядка нескольких десятков фемтосекунд. Это позволяет достичь требуемой пиковой плотности мощности волны, падающей на кристалл, одновременно увеличивая спектральную ширину полосы лазерного излучения.

Соотношение между шириной полосы частот $\Delta\omega$ и длительностью импульса лазерного излучения τ_u определяется простым выражением

$$\Delta\omega = \frac{1}{\tau_u}.$$

Измерив спектральную ширину лазерного импульса, можно оценить его длительность по формуле

$$\tau_u = \frac{\lambda^2}{c\Delta\lambda}, \quad (4)$$

где λ — длина волны максимума полосы лазерного импульса, $\Delta\lambda$ — спектральная полуширина полосы лазерного импульса, c — скорость света.

Генерация второй гармоники

Появление генерации второй гармоники связано с квадратичным членом $\chi^{(2)}E^2$ в разложении (2) для поляризации P . Пусть на кристалл падает гармоническая монохроматическая электромагнитная волна

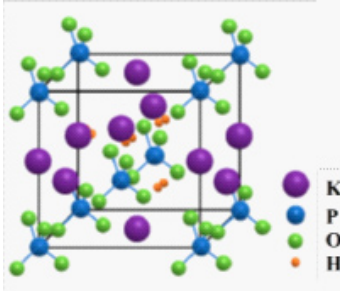
$$E = E_0 \cos(k_\omega z - \omega t),$$

где $k_\omega = 2\pi/\lambda = n_\omega\omega/c$ — волновое число на частоте ω , n_ω — показатель преломления на частоте ω . Тогда нелинейная поляризация второго порядка будет пропорциональна напряженности поля во второй степени

$$P^{(2)} = \chi^{(2)}E^2 = \chi^{(2)}E_0^2 \cos^2(k_\omega z - \omega t) = \frac{1}{2}\chi^{(2)}E_0^2 + \frac{1}{2}\chi^{(2)}E_0^2 \cos(2k_\omega z - 2\omega t). \quad (5)$$

Это значит, что поляризация будет иметь постоянную составляющую $0,5\chi^{(2)}E_0^2$ и переменную $0,5\chi^{(2)}E_0^2 \cos(2k_0z - 2\omega t)$ на удвоенной частоте 2ω . Первое слагаемое в (5) соответствует нелинейному процессу, который называется оптическим выпрямлением, второе соответствует генерации второй гармоники.

Необходимым условием генерации второй гармоники является отличие $\chi^{(2)}$ от нуля. Это условие может быть выполнено только в анизотропных средах, не имеющих центра инверсии. Действительно, при изменении направления приложенного поля E поляризация P должна менять знак. Если вещество



изотропно или имеет центр инверсии, то, чтобы удовлетворить этому требованию, члены, содержащие четные степени в разложении (2), должны отсутствовать, т.е. величина $\chi^{(2)}$ в изотропных средах и в кристаллических средах с центром инверсии должна быть равна нулю.

Рис. 1. Структурная ячейка кристалла KDP — дигидрофосфата калия.

На рис. 1 приведена структура одного из кристаллов, в котором наблюдается генерация второй гармоники. Это тетрагональный кристалл KDP — дигидрофосфат калия (химическая формула KH_2PO_4). При операции инверсии через центр симметрии структур-

ной ячейки кристалла все декартовы координаты атомов инвертируются, т.е. меняют знак. Видно, что при операции инверсии структурная ячейка кристалла KDP сама в себя не переходит т.е. центра инверсии у нее нет.

Другим очевидным условием должно быть отсутствие поглощения для всех взаимодействующих волн.

С квантовой точки зрения процесс генерации второй гармоники выглядит следующим образом. Можно считать, что два фотона падающей волны частоты ω одновременно поглощаются в среде, переводя систему на виртуальный уровень с энергией $2\hbar\omega$, после чего система релаксирует с этого уровня в основное состояние с излучением фотона частотой 2ω (см. рис. 2.).



Рис. 2. Схематическое представление генерации второй гармоники.

Фазовый синхронизм

В 1961 г. вскоре после создания лазера излучение на второй гармонике зарегистрировала группа ученых под руководством Питера Франкена в Университете Мичигана, сфокусировав излучение рубинового лазера на кристалл кварца. Эффективность преобразования (относительная мощность

гармоник) была порядка 10^{-8} . Однако уже к началу 1963 г. эта величина достигла уровня 20–30%. Основную роль в этом сыграло соблюдение условия фазового синхронизма. Это условие имеет интерференционную природу.

Рассмотрим подробнее процесс генерации второй гармоники. На поверхность нелинейной среды падает волна напряженностью

$$E_{\omega} = A_{\omega} \cos(k_{\omega}z - \omega t),$$

которая возбуждает колебания нелинейной поляризации на удвоенной частоте (см. выражение 5)

$$P_{2\omega} = \chi^{(2)} E_{\omega}^2 = \frac{1}{2} \chi^{(2)} A_{\omega}^2 \cos(2k_{\omega}z - 2\omega t).$$

Волна поляризации порождает волну второй гармоники, напряженность которой можно записать как

$$E_{2\omega} = A_{2\omega} \cos(k_{2\omega}z - 2\omega t).$$

Важно, чтобы волна на частоте 2ω распространялась с той же фазовой скоростью $v_{2\omega} = c/n(2\omega)$, что и основная волна, фазовая скорость которой $v_{\omega} = c/n(\omega)$.

В этом случае в каждый момент времени волна второй гармоники, создаваемая волной первой гармоники, будет всегда в фазе с ранее созданной волной второй гармоники. Следовательно волна второй гармоники будет постоянно увеличивать интенсивность. Если фазовые скорости этих волн будут слегка отличаться друг от друга, то волна второй гармоники, создаваемая волной первой гармоники, будет то усиливать, то ослаблять ранее созданную волну второй гармоники. В этом случае будут наблюдаться биения (см. рис. 3.).

В оптических средах с нормальной дисперсией показателя преломления выполнение равенства $n(\omega) = n(2\omega)$ невозможно, т.к. функция $n(\omega)$ растёт с увеличением частоты. Однако в некоторых оптически анизотропных (двулучепреломляющих) кристаллах можно выбрать такое направление распространения света, для

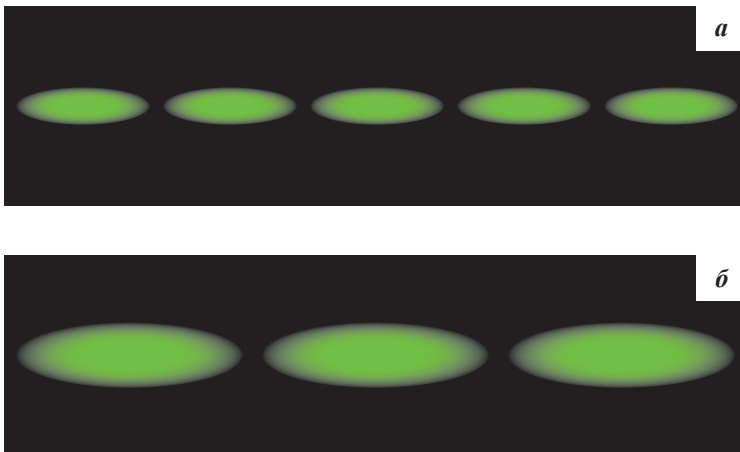


Рис. 3. Рассеянный в образце свет второй гармоники. Наблюдаются биения генерации второй гармоники из-за отсутствия фазового синхронизма. Различие в фазовых скоростях в случае (а) больше, чем в случае (б).

которого показатель преломления обыкновенного луча основной частоты равен показателю преломления необыкновенного луча второй гармоники.

Световая волна, распространяющаяся в одноосных оптических кристаллах под углом θ к оптической оси кристалла, может быть разложена на две взаимно перпендикулярные поляризации: перпендикулярную (обыкновенный луч n_o) и параллельную (необыкновенный луч n_e) оптической оси. Коэффициент преломления обыкновенного луча n_o не зависит от угла θ . Коэффициент преломления необыкновенного луча n_e зависит от угла, причем наибольшая разница в коэффициентах преломления между n_e и n_o наблюдается для направления распространения луча перпендикулярно оптической оси кристалла. Зависимость n_e от θ и ω определяется выражением

$$n_e(\theta, \omega) = \left(\frac{\cos^2 \theta}{n_o^2(\omega)} + \frac{\sin^2 \theta}{n_e^2(90^\circ, \omega)} \right)^{-1}.$$

На рис. 4 схематически показаны частотные зависимости показателей преломления обыкновенного луча и необыкновенных лучей, распространяющихся под разными углами к оптической оси в отрицательном одноосном кристалле, для которого на любой частоте $n_e(\theta, \omega) < n_o(\omega)$. Из рисунка видно, что в кристалле можно выбрать такое направление θ_c , для которого $n(\omega_1) = n(2\omega_1)$. Угол θ_c называется углом фазового синхронизма. Интенсивность генерации второй гармоники в этом направлении на несколько порядков выше, чем в других направлениях.

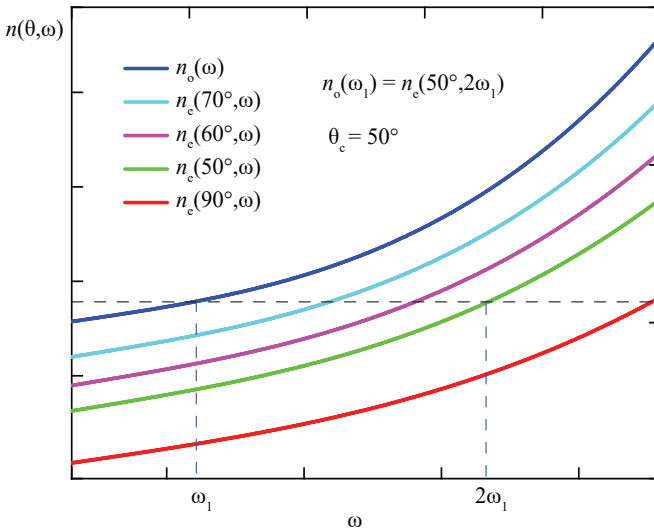


Рис. 4. Характер частотных зависимостей показателей преломления обыкновенного луча n_o и необыкновенных лучей n_e , распространяющихся под разными углами к оптической оси в отрицательном одноосном кристалле. θ_c — угол фазового синхронизма.

На рис. 5 изображено сечение поверхностей показателей преломления для отрицательного одноосного кристалла. Для направлений OA, OB, OC, OD, образующих углы θ_c , $\pi + \theta_c$, $2\pi - \theta_c$ и $\pi - \theta_c$ с оптической осью кристалла, $n_e(\theta_c, 2\omega) = n_o(\omega)$, т.е. выполняется условие фазового синхронизма для волны возбуждения и волны второй гармоники. Угол θ_c на рис. 5 — угол фазового синхронизма.

Таким образом, направив возбуждающее излучение, как обыкновенную волну под углом θ_c , в нелинейном кристалле можно реализовать эффективную генерацию второй гармоники как необыкновенной волны, распространяющейся вдоль этого же направления.

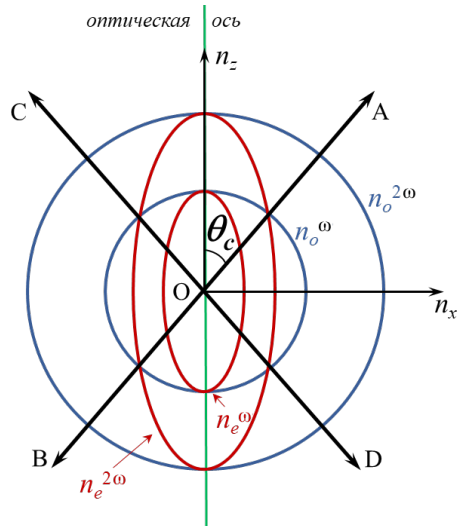


Рис. 5. Схема сечения поверхностей показателей преломления для отрицательного одноосного кристалла.

Экспериментальная установка

На рис. 6 представлен вид экспериментальной установки. Луч фемтосекундного лазера падает на нелинейный кристалл 1, закреплённый в держателе 2, который позволяет плавно поворачивать кристалл относительно лазерного луча вращением винта 3. Один оборот винта 3 соответствует повороту кристалла на 0,5 градуса. Отсчёт угла можно сделать по шкале держателя 4.

Лучи основной и второй гармоники, выходя из кристалла, попадают на рассеиватель 5, расположенный перед входным отверстием световода, который передаёт их на вход спектрального прибора.

В работе используется спектральный прибор S2000 Fiber Optic Spectrometers фирмы

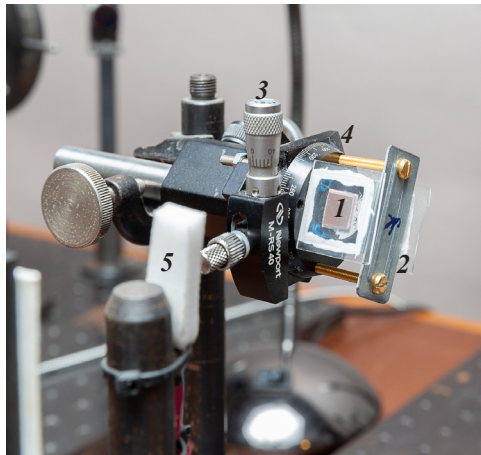


Рис. 6. Вид экспериментальной установки. 1 — кристалл KDP. 2 — держатель кристалла. 3 — винт угла поворота. 4 — шкала угла поворота. 5 — рассеиватель.

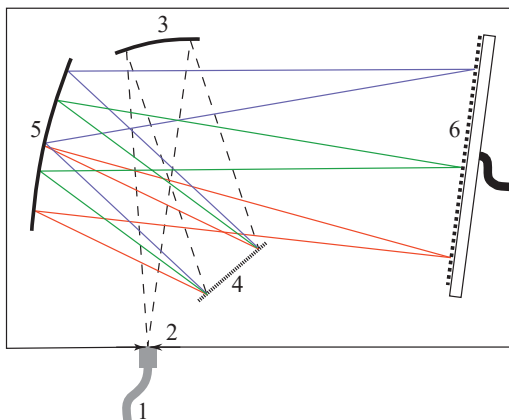


Рис. 7. Оптическая схема спектрального прибора S2000 Fiber Optic Spectrometers. 1 — световод. 2 — входная щель. 3, 5 — параболические зеркала. 4 — дифракционная решетка. 6 — светочувствительная линейка.

Оcean Optics оптическая схема которого представлена на рис. 7. Световой поток, прошедший через световод 1, освещает щель спектрального прибора 2, которая помещена в фокус параболического зеркала 3. Параллельный пучок света от зеркала 3 попадает на дифракционную решетку 4. Далее свет, дифрагированный на решетке 4, отражается от параболического зеркала 5, в фокусе которого помещена светочувствительная линейка 6. Аналоговый преобразователь с контролером формируют сигнал, передаваемый в компьютер.

Порядок выполнения работы

Включите компьютер, запустите программу Ocean Optics, ярлык которой расположен на рабочем столе. Изучите необходимые элементы управления программой (см. рис. 8.).

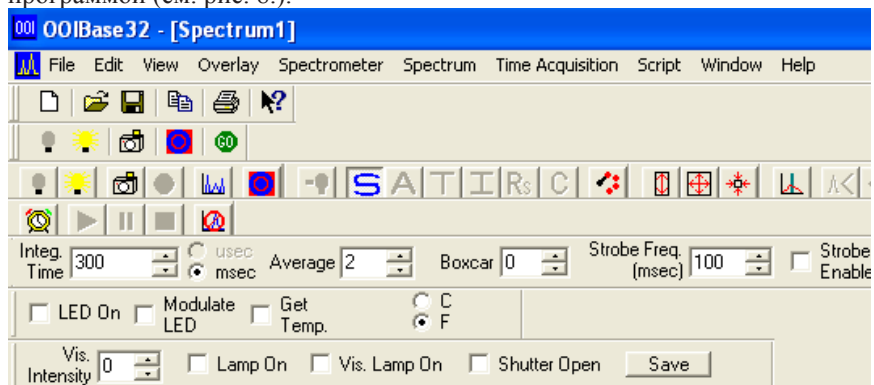


Рис. 8. Общий вид окна программы управления спектральным прибором.

S — режим мониторинга («осциллограф»). Этот режим позволяет наблюдать спектр в реальном времени.

■ — быстрая перезагрузка прибора. Возвращение к установкам по умолчанию. Эту кнопку следует нажать, если программа начинает подвисать.

+ — ручная установка диапазонов по координатным осям. Позволяет выбрать необходимый диапазон интенсивности сигнала и спектрального интер-

вала. Не следует выбирать параметр шкалы интенсивности более 3600, т.к. сигнал с амплитудой выше 4000 переводит приемник в режим насыщения.

— время интегрирования (мсек) следует выбирать таким, чтобы амплитуда исследуемых линий спектра не превосходила значений 3600.

— количество усредняемых спектров позволяет улучшить соотношение сигнал / шум, не изменяя амплитуду сигнала. Общее время накопления сигнала (произведение значения времени интегрирования на количество усредняемых спектров) не должно превосходить 5 сек. В противном случае программа начинает зависать.

— ширина окна сглаживания. Позволяет сгладить шум спектра. При этом происходит сглаживание максимумов узких линий.

Попросите инженера включить спектральный прибор. После включения прибора на экране компьютера появится спектр, включающий первую и вторую гармоники. Настройте режимы наблюдения спектров.

Для выполнения первого задания следует, вращая ручку 3 держателя кристалла, добиться минимальной амплитуды второй гармоники и гладкой формы контура полосы первой гармоники. Добившись спектра, подобного изображенному на рис. 9, сохраните его в памяти компьютера. Спектр № 1 используется для оценки ширины импульса (τ) первой гармоники.

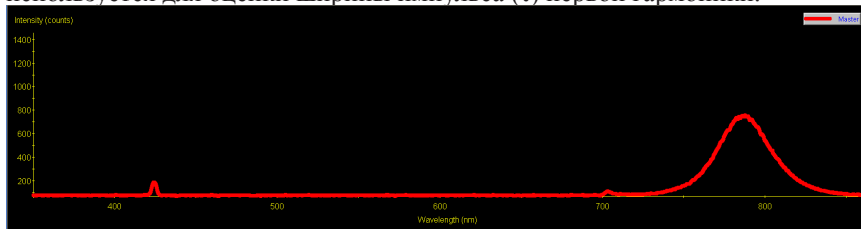


Рис. 9. Вид спектра для оценки ширины импульса первой гармоники.

Второе задание лабораторной работы — нахождение оптимального угла для генерации второй гармоники. Вращая ручку 3 держателя кристалла, следует добиться максимальной амплитуды второй гармоники и записать значение угла и спектр в память компьютера. Спектр № 2 следует использовать для оценки ширины импульса второй гармоники. Обратите внимание на образование провала на полосе первой гармоники при достижении оптимального угла для генерации второй гармоники (см. рис. 10.).

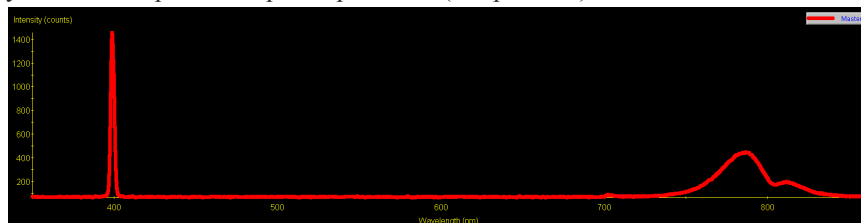


Рис. 10. Образование провала на полосе первой гармоники при достижении оптимального угла для генерации второй гармоники.

Далее следует провести исследование зависимости спектрального положения максимума второй гармоники и провала на полосе первой гармоники в зависимости от отклонения от оптимального угла для генерации второй гармоники. Для этого необходимо записать не менее 7 спектров вблизи от оптимального угла для генерации второй гармоники. Обратите внимание на то, чтобы на всех записанных спектрах наблюдался провал на полосе первой гармоники.

Порядок обработки спектров

Полученные спектры представляют собой две колонки чисел. Первая колонка — длина волны, вторая колонка — интенсивность. Определим погрешность измерений этих величин. Погрешность интенсивности сигнала по умолчанию равна единице последнего разряда. Что касается погрешности в определении длины волны, она не может быть меньше спектрального расстояния между соседними точками спектра (разность между соседними числами в первой колонке данных).

Оценка длительности импульса первой гармоники

1. Построить спектр № 1, определить величину фонового сигнала и вычесть его из спектра.
2. Определить длину волны максимума интенсивности первой гармоники.
3. Оценить погрешность определения длины волны максимума интенсивности первой гармоники.
4. Определить ширину полосы первой гармоники на полувысоте её контура ($\Delta\lambda$) и точность, с которой определяется эта величина.
5. Используя выражение (4), вычислить длительность импульса первой гармоники и её погрешность.

Оценка длительности импульса второй гармоники при выполнении условия фазового синхронизма

1. Построить спектр № 2, определить величину фонового сигнала и вычесть его из спектра.
2. Определить длину волны максимума интенсивности второй гармоники.
3. Оценить погрешность определения длины волны максимума контура второй гармоники.
4. Определить ширину полосы второй гармоники на полувысоте её контура ($\Delta\lambda$) и точность, с которой определяется эта величина.
5. Используя выражение (4), вычислить длительность импульса второй гармоники и её погрешность.

Исследование спектрального положения особенностей в спектрах первой и второй гармоник

1. Создать таблицу зависимости длины волны максимума второй гармоники от отклонения от оптимального угла для генерации второй гармоники.
2. Создать таблицу зависимости длины волны провала на полосе первой гармоники от отклонения от оптимального угла для генерации второй гармоники.
3. Построить на одном графике зависимость длины волны максимума второй гармоники и зависимость длины волны провала на полосе первой гармоники от отклонения от оптимального угла для генерации второй гармоники. Обратит внимание на синхронность изменения длин волн для этих особенностей.
4. Объяснить причину генерации второй гармоники в широком диапазоне длин волн.
5. Объяснить причину возникновения провала на полосе первой гармоники.

Отчет должен содержать:

- оптическую схему установки;
- формулы, по которым производились расчеты τ и их погрешностей;
- спектр первой гармоники (№1), оценку длительности импульса первой гармоники с погрешностью;
- спектр второй гармоники (№2), оценку длительности импульса второй гармоники с погрешностью;
- значение угла фазового синхронизма, полученное в эксперименте;
- графики зависимость длины волны максимума второй гармоники и зависимость длины волны провала на полосе первой гармоники от отклонения от оптимального угла для генерации второй гармоники;
- объяснение причины генерации второй гармоники в широком диапазоне длин волн;
- объяснение причины возникновения провала на полосе первой гармоники.

Контрольные вопросы

1. Какой из членов формулы, описывающей поляризацию среды, соответствует генерации второй гармоники?
2. В чём заключается условие фазового синхронизма?
3. Какими свойствами должна обладать среда, чтобы в ней была возможна генерация второй гармоники?
4. Как влияет на спектральную полуширину ($\Delta\lambda$) полосы лазерного импульса увеличение его длительности (τ)?

Литература

1. Агравал Г. Нелинейная волоконная оптика. — М.: Мир, 1996. —323 с.
2. Беспалов В.И., Пасманик Г.А. Нелинейная оптика. — М.: Наука, 1980. — 282 с.
3. Физическая энциклопедия, гл. редактор А.М.Прохоров, — М.: Советская энциклопедия, 1988.
4. Дмитриев В.Г., Тарасов Л.В. Прикладная нелинейная оптика, — М.: Физматлит, 2004 г. 512 с.
5. Программная платформа для спектроскопии SpectraSuite. Руководство пользователя. ООО «Сенс-Оптик». <http://www.oceanopticsrussia.com>
6. Boyd R.W. Nonlinear Optics. — NY.: Academic Press, 2008. —640 p. eBook ISBN: 9780080485966