

Неколлинеарная генерация второй оптической гармоники в кристаллах ниобата бария–стронция с игольчатыми микродоменами

К. А. Кузнецов^а, А. А. Ежов, А. Н. Пенин

Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова, физический факультет, кафедра квантовой электроники. Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 2.

E-mail: ^а kirill-spdc@yandex.ru

Статья поступила 04.09.2014, подписана в печать 28.11.2014.

Исследована структура пространственных спектров второй гармоники (ВГ) излучения неодимового лазера на алюмо-иттриевом гранате при квазисинхронной генерации в пространственно неоднородной нелинейной среде. На примере образования доменной структуры кристалла ниобата бария–стронция (НБС) предложена теоретическая модель, описывающая угловое распределение интенсивности неколлинеарной ВГ, генерируемой в полидоменном кристалле со стохастически распределенными доменами. Показано, что характерные пространственные размеры доменов могут быть найдены из распределений интенсивности излучения второй гармоники, а плотность распределения доменов может быть описана распределением Вейбулла–Гнеденко.

Ключевые слова: ниобат бария–стронция, микродомены, генерация второй гармоники.

УДК: 538.911, 538.958. PACS: 42.65.Ky, 42.70.Mr, 78.20.Bh.

Введение

Известно [1–7], что в микроструктурированных полидоменных средах возможны квазисинхронные параметрические взаимодействия (как-то: параметрическое рассеяние, генерация суммарных и разностных частот, генерация гармоник), реализуемые за счет периодической или квазипериодической модуляции квадратичной восприимчивости. Модуляция нелинейных, а зачастую и линейных оптических параметров среды необходима для компенсации волновой расстройки взаимодействующих в параметрических процессах волн. Из-за схожести упомянутого процесса с обычной дифракцией квазисинхронные процессы взаимодействия полей в нелинейных средах часто называют нелинейной дифракцией [8].

Нелинейная дифракция находит все более широкое применение в устройствах преобразования оптических частот, так как технологические возможности изготовления сред с периодическим распределением нелинейно-оптических свойств существенно развились за последние десятилетия. В настоящее время большой интерес с этой точки зрения вызывают кристаллы ниобата и танталата лития, на оптические свойства которых можно влиять при помощи легирования соответствующими примесями.

В расплавы, из которых выращиваются кристаллы, добавляют примеси различных химических элементов. Вращение в несимметричном тепловом поле или наличие переменного тока модулирует скорость вхождения ионов примеси, что приводит к периодическому изменению концентрации примеси. При остывании ниже температуры Кюри возникают сегнетоэлектрические домены, форма которых повторяет пространственное распределение примеси в кристалле [9]. Также широко распространены и послеростовые методы получения доменных структур, например, переполяризация образца во внешнем электростатическом поле. На одну из поверхностей образца наносится сетка электродов, повторяющая требуемое распределение доменов. При

подаче к электродам, нанесенным на противоположные друг другу поверхности кристалла, электрического импульса с напряженностью поля, превышающей коэрцитивную силу, на границе раздела зарождаются домены; за время действия импульса они прорастают внутрь кристалла.

Наряду с простейшими периодическими доменными структурами, которым соответствуют однопараметрические множества векторов обратной решетки, применяют также более сложные аперриодические структуры, обладающие более богатым набором векторов обратной решетки, например решетки Фибоначчи [10]. Использование широкого множества векторов обратной решетки дает возможность одновременно выполнить условия синхронизма для нескольких нелинейно-оптических взаимодействий, в частности можно одновременно реализовать процессы генерации третьей и четвертой гармоник в квадратично-нелинейном кристалле. Расширение области применения квазисинхронных взаимодействий делает актуальным не только совершенствование технологий получения микроструктурированных кристаллов с непериодической (и даже стохастической) доменной структурой, но и дальнейшее развитие теории нелинейно-оптических взаимодействий в таких средах и методов анализа полученных структур [11, 12]. Так, работа [13] посвящена теории и интерпретации экспериментальных данных при генерации второй гармоники в нелинейных кристаллах с разупорядоченной доменной структурой. В работе [14] предложена теория нелинейной дифракции фемтосекундных лазерных импульсов в регулярных доменных структурах и проведены экспериментальные исследования угловых характеристик второй гармоники в полидоменных кристаллах ниобата лития. В статье [15] экспериментально и теоретически изучена нелинейная дифракция в одномерных стохастических доменных структурах в кристаллах тетрабората стронция.

В настоящей работе предпринята попытка исследования распределения иглообразных доменов в припо-

верхностном слое изначально полидоменного образца кристалла ниобата бария–стронция (НБС). Методом исследования являлся метод генерации второй гармоники излучения неодимового лазера на алюмо-иттриевом гранате. Появление неколлинеарной второй гармоники в кристалле НБС непосредственно связано с возникновением ниже точки Кюри хаотической доменной структуры, локализованной, практически, вблизи поверхности.

По всей видимости, впервые генерация второй гармоники в кристаллах ниобата бария–стронция (НБС) со стохастически распределенными микродоменами наблюдалась в работе [16], а более детально исследовалась в [17]. В статье [18] исследовалась нелинейная дифракция при ГВГ в кристаллах НБС от фемтосекундного титан-сапфирового лазера, а также впервые было отмечено, что этот процесс аналогичен ГВГ в ультратонких нелинейных кристаллах. Ниобат бария–стронция обладает малым двулучепреломлением, что делает невозможным реализацию параметрического преобразования частот оптического излучения в режиме обычного фазового синхронизма. Однако кристаллы НБС потенциально пригодны для преобразования частот в режиме квазисинхронизма за счет наличия естественных доменных структур обеспечивающих пространственную модуляцию нелинейной восприимчивости. НБС характеризуются очень низким коэрцитивным полем (на три порядка меньшим, чем в ниобате лития), что делает его более простым материалом для формирования регулярных доменных структур, чем обычно используемый для этой цели LiNbO_3 . Интерес к ниобату бария–стронция во многом обусловлен специфичностью его доменной структуры, так как поверхностная и объемная плотности иглообразных доменов существенно различаются. Известно, что домены имеют характерную иглообразную форму, прорастают внутрь кристалла на глубину до 1 мм и преимущественно локализованы в тонком приповерхностном слое [19]. Неоднородность распределения доменов должна сказываться на частотно-угловых спектрах неколлинеарной второй гармоники. Отсюда возникает и возможная обратная задача — нахождение параметров доменной структуры на основе угловых распределений интенсивности второй гармоники.

Образцы и техника эксперимента

Эксперименты по генерации ВГ проводились с кристаллом ниобата бария–стронция $\text{Sr}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Nb}_2\text{O}_6$ ($x = 0.61$), выращенного модифицированным методом Степанова [19]. Образец представлял собой параллелепипед размерами $3 \times 4 \times 5$ мм. С целью исследования доменной структуры в приповерхностном слое кристалл НБС подвергался процедуре химического травления в смеси кислот $\text{HF}:\text{HNO}_3$ в течение 1 ч 20 мин. Исследования топографии поверхности проводились в атомно-силовом микроскопе Solver PRO NT-MDT в полуконтактном режиме с применением кремниевого кантилевера NGS10 NT-MDT. Поскольку скорость травления зависит от знака заряда на поверхности образца (который определяется направлением спонтанной поляризации в домене), после травления наблюдалась значительная модификация поверхности кристалла. На рис. 1 приведено изображение поверхно-

сти кристалла, перпендикулярной полярной оси Z , местами отчетливо видна четырехугольная структура доменов. Данная структура непосредственно определена пространственной группой тетрагональной симметрии кристалла. Типовые поперечные размеры доменов лежат в диапазоне 2–4 мкм. Ранее в расчетах мы полагали, что функция распределения толщин доменов может, с некоторым приближением, быть аппроксимирована распределением Гаусса [18].

Однако, как показал опыт, статистическое распределение толщин доменов вблизи поверхности кристалла имеет отчетливую асимметричную форму [20]. На рис. 1 также приведены распределения доменов по размерам: $d^{(+)}$ обозначает размер самих иглообразных доменов, а $d^{(-)}$ — это расстояния между этими доменами (по сути поперечные размеры доменов другого знака). Для объяснения асимметричного вида этих зависимостей аппроксимация проводилась с использованием формулы, известной как двухпараметрическое распределение Вейбулла–Гнеденко:

$$\begin{aligned} f(d^{(+)}) &= \frac{s^{(+)}}{(p^{(+)})^s} (d^{(+)})^{s-1} \exp \left(- \left(\frac{d^{(+)}}{p^{(+)}} \right)^s \right), \\ f(d^{(-)}) &= \frac{s^{(-)}}{(p^{(-)})^s} (d^{(-)})^{s-1} \exp \left(- \left(\frac{d^{(-)}}{p^{(-)}} \right)^s \right), \end{aligned} \quad (1)$$

где параметр p задает пространственный масштаб, а параметр s влияет на форму зависимости; индексы $(+)$ и $(-)$ относятся к доменам разных знаков. Данное распределение широко используется в задачах о разрушении материалов и анализе надежности различных систем. Однако есть примеры, когда это распределение хорошо описывает и пространственные статистические распределения. Так, распределение Вейбулла–Гнеденко использовалось для описания распределения расстояний от хромосом до центров ядер фибробластов, применялось для статистического описания диаметров деревьев и характерных размеров геологических пород [21–23].

Нелинейно-оптические свойства кристаллов НБС определяются их пространственной группой тетрагональной симметрии $P4bm$. Тензор квадратичной восприимчивости выглядит следующим образом:

$$\chi_{ijk}^{(2)} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{113}^{(2)} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \chi_{223}^{(2)} & 0 & 0 \\ \chi_{311}^{(2)} & \chi_{322}^{(2)} & \chi_{333}^{(2)} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad (2)$$

где $\chi_{311}^{(2)} = \chi_{322}^{(2)}$ и $\chi_{113}^{(2)} = \chi_{223}^{(2)}$. Из (2) следует, что генерация второй гармоники возможна только в геометрии, в которой по крайней мере одна из трех волн имеет компоненту поляризации, параллельную полярной оси кристалла. За счет компонент $\chi_{311}^{(2)}$ и $\chi_{322}^{(2)}$ реализовывалось квазисинхронное ooe -взаимодействие.

В эксперименте проводились измерения углового распределения интенсивности излучения второй гармоники в кристалле НБС. Схема установки представлена на рис. 2. Накачкой служило излучение импульсного неодимового лазера на алюмо-иттриевом гранате (АИГ) на длине волны 1064 нм. Внутри резонатора путем помещения в него диафрагмы выделялась одна по-

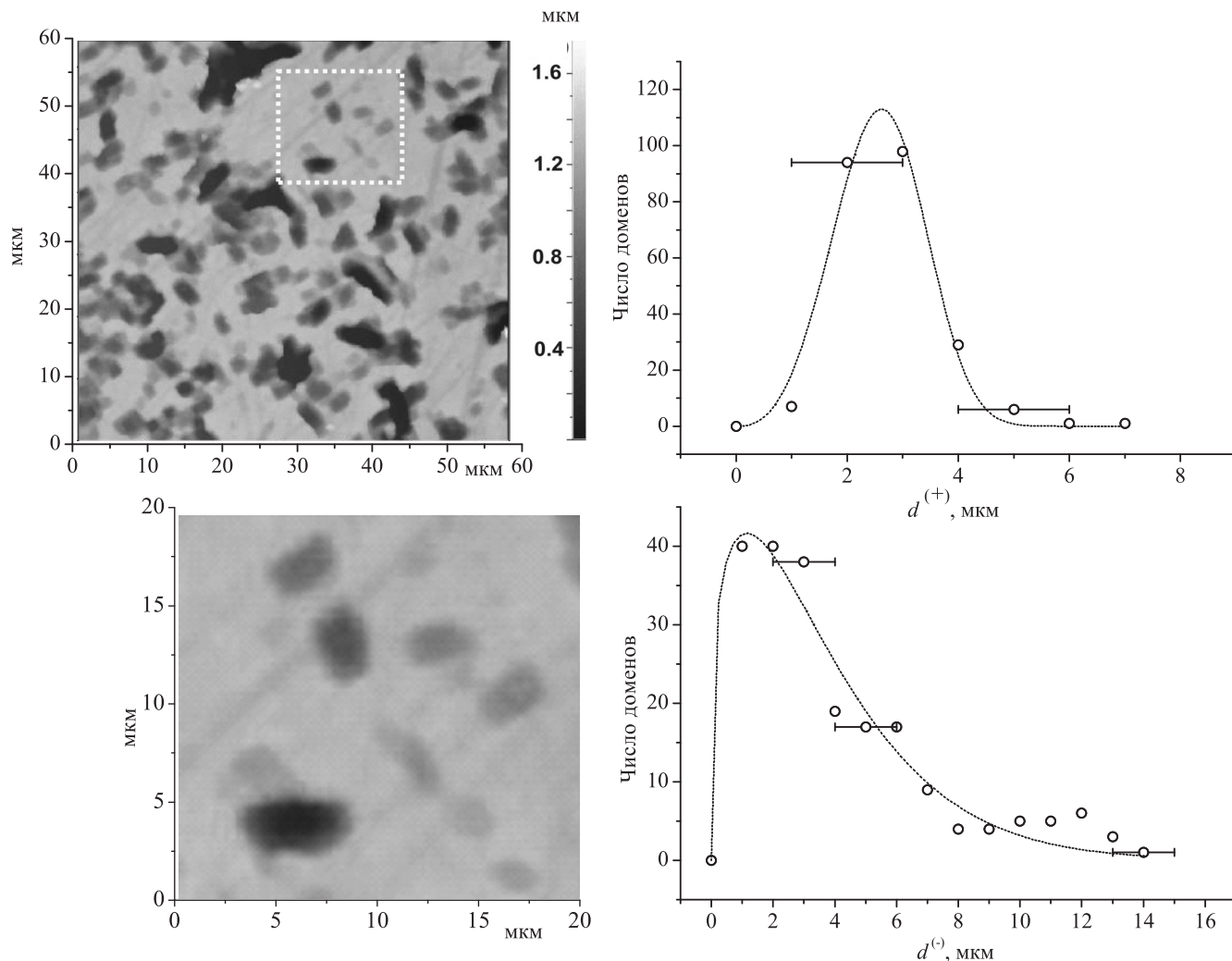


Рис. 1. Топографическое изображение поверхности кристалла ниобата бария–стронция, полученное с помощью атомно-силового микроскопа, распределения чисел доменов с толщинами $d^{(+)}$ (игольчатых доменов) и $d^{(-)}$ (междоменных расстояний)

перечная TEM_{00} -мода. Пиковая мощность составляла 600 кВт, длительность импульса 20 нс, частота повторения импульсов 10 Гц. Далее излучение усиливалось до 2 МВт с помощью однопроходного усилителя (У) также на алюмо-иттриевом гранате. Затем с помощью зеркал (З1, З3) накачка заводилась на исследуемый кристалл (К) вдоль направления оптической оси образца С, совпадающей с нормалью к поверхности. Излучение второй гармоники образовывало конус с углом раствора примерно 86 град. Образующая конуса была направлена под углом около 43 град к волновому вектору накачки, совпадающему по направлению с полярной осью кристалла. Сигнал ВГ проходил через линзу Л3, в фокальной плоскости которой располагался исследуемый образец. Затем излучение ВГ проходило через диафрагму шириной порядка 100 мкм (Д), положение которой могло изменяться с помощью шагового механизма фирмы Standa за счет сдвига в вертикальной плоскости; тем самым осуществлялось сканирование углового распределения интенсивности второй гармоники. В процессе измерений использовалась диафрагма с размерами 100 мкм $\times$ 0.5 мм. Эти параметры рассчитывались из соображений обеспечения точности измерений не

хуже 0.1 град. Системой линз Л1, Л3 излучение ВГ фокусировалось на фотоэлектронный умножитель Ф1. Сигнал с Ф1 через усилитель тока, подавался на АЦП, входящий в крейт КАМАК, и затем обрабатывался на компьютере ПК. Для учета флуктуаций мощности излучения накачки был предусмотрен нормировочный канал, с этой целью излучение накачки отводилось зеркалом З2 на вспомогательный фотодетектор Ф2. В ходе экспериментальных исследований в каждом пространственном положении измерялась мощность второй гармоники, прошедшей через диафрагму. Сдвиг диафрагмы выбирался равным 100 мкм. В каждом положении диафрагмы проводилось несколько сотен измерений. На основании накопленного массива данных вычислялись средняя интенсивность и ошибка измерения. В процессе обработки экспериментальных данных элементарный сдвиг щели пересчитывался во внешний угол рассеяния θ (рис. 2). За нулевой угол было принято направление распространения луча накачки. На рис. 3 представлены результаты измерений углового распределения интенсивности второй гармоники. Были произведены измерения распределений ВГ для четырех различных областей засветки на поверхности кристалла.

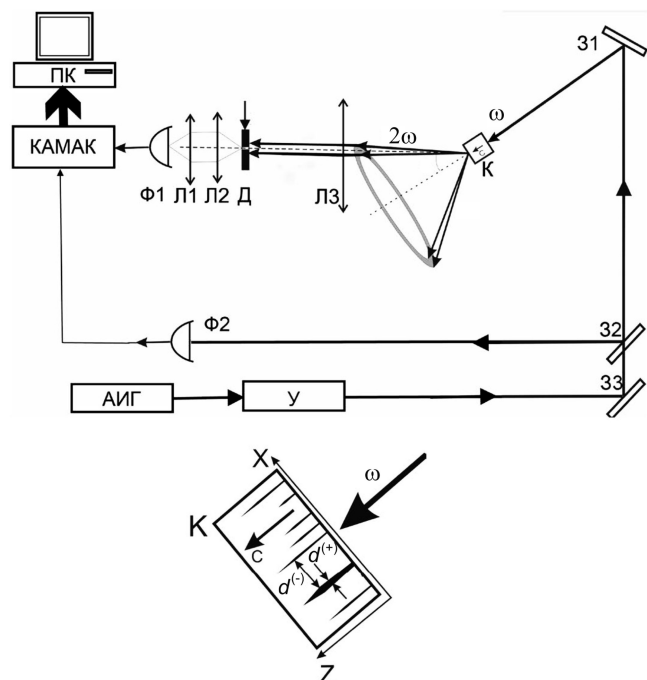


Рис. 2. Схема экспериментальной установки для регистрации угловых спектров неcollinearной второй гармоники и геометрия рассеяния

Этим областям соответствовали различные выборки микродоменов, попадающие в сечение пучка. Несмотря на то что все домены на поверхности конкретного

выращенного кристалла, по-видимому, распределены по одним и тем же законам вида (1), произвольные выборки доменов из этих распределений могут приводить к различным пространственным фурье-спектрам нелинейной восприимчивости. Этим могут объясняться тонкие различия между результатами измерений. Измеренная полуширина углового распределения интенсивности второй гармоники составила около 2.6 град, а положение максимума для всех полученных кривых приблизительно равнялось 43 град.

Теория и анализ экспериментальных результатов

Предварительные измерения показали, что измеренные распределения толщин доменов могут быть описаны распределением Вейбулла-Гнеденко с вероятностью ошибки менее 0.05. Распределение узких иглообразных доменов с прямоугольным поперечным сечением вблизи поверхности может быть описано функцией (1) с параметрами $s^{(+)} = 3.4$, $p^{(+)} = 3$. Более широкое и асимметричное распределение междоменных расстояний хорошо описывается распределением с параметрами $s^{(-)} = 1.2$, $p^{(-)} = 4$.

Для определения применимости развиваемого в статье метода описания случайного распределения доменов в образце была использована методика генерации второй гармоники АИГ-лазера на ионах неодима в пространственно-неоднородной среде. Как говорилось выше, в исследуемом кристалле генерация второй гармоники в монодоменном образце невозможна из-за малого двулучепреломления. Наличие пространственной

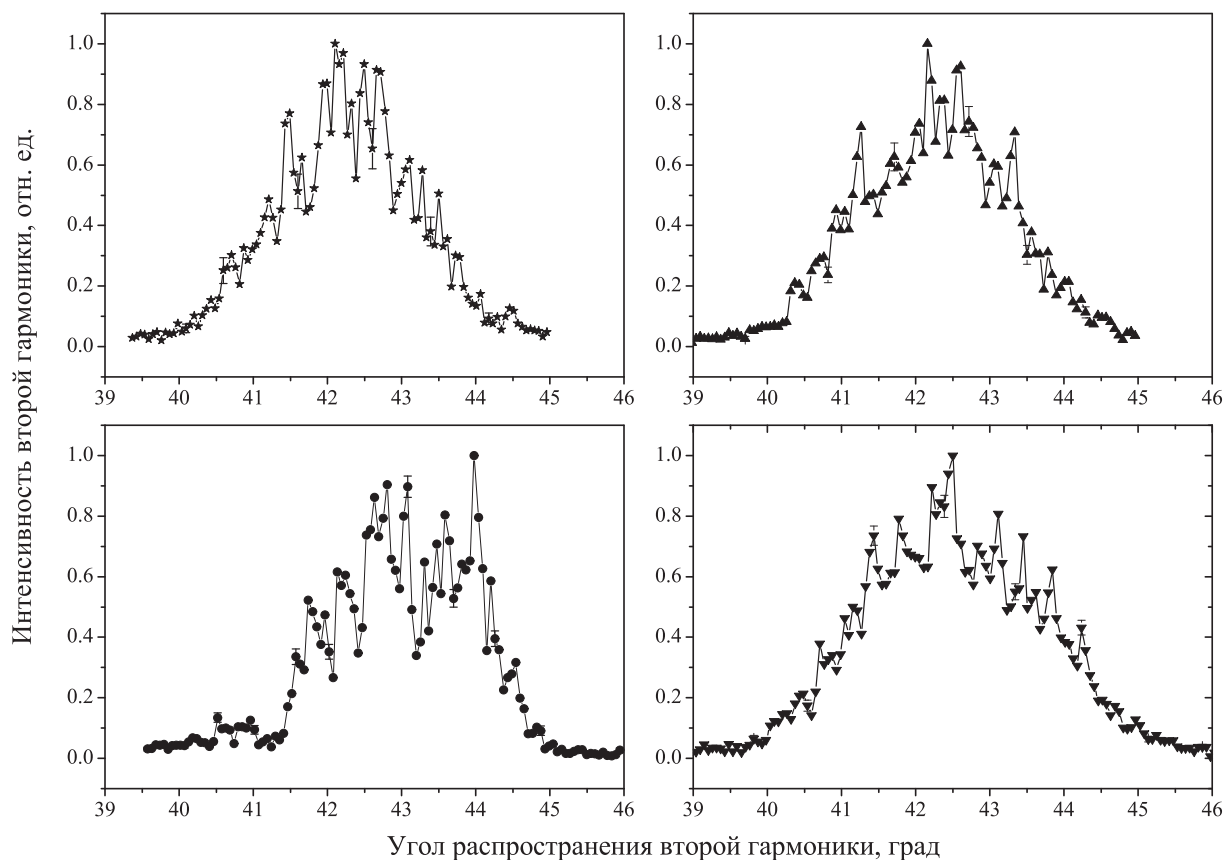


Рис. 3. Примеры зарегистрированных угловых спектров неcollinearной второй гармоники в кристалле ниобата бария-стронция

неоднородности в распределении квадратичной восприимчивости, связанной с доменной структурой, приводит к реализации квазисинхронной генерации второй гармоники. Естественно, имеет место и обратная связь, а именно пространственный спектр второй гармоники несет на себе информацию о структуре неоднородностей. Именно эта связь в дальнейшем и используется.

Конкретно предложена теоретическая модель, описывающая пространственное распределение интенсивности второй гармоники в процессе генерации в стохастических полидоменных средах. В основе модели лежит вполне обоснованное предположение о том, что локализация доменов происходит в приповерхностной области кристалла, а его внутренний объем монодоменен. Согласно литературным данным [19, 24, 25], при переходе в сегнетофазу возникают домены «игольчатой» формы — четырехгранные пирамиды с основанием на поверхности кристалла.

Мы исходим из того положения, что все домены локализованы в приповерхностном слое. Тогда естественно предположить, что процесс неколлинеарной генерации ВГ происходит в слое антипараллельных доменов одинаковой эффективной длины L_z (возникшие домены одной поляризации и остатки монокристалла с противоположной поляризацией чередуют друг друга в пределах этого слоя). Но размеры этих доменов по поперечной координате X вдоль поверхности кристалла существенно различаются.

Поскольку длины доменов много больше поперечных размеров на поверхности кристалла, геометрической формой (пирамидой) в первом приближении можно пренебречь, считать доменные стенки параллельными друг другу и представлять домены в виде прямоугольных параллелепипедов. Таким образом, можно исключить сложную зависимость эффективной квадратичной нелинейности от координаты Z .

Для описания генерации неколлинеарной ВГ будет достаточно рассмотрения двумерной задачи, поскольку сканирование углового распределения интенсивности проводится вдоль направления, лежащего в главной плоскости кристалла. Поперечные размеры рабочей области кристалла L_x определяются размерами области засветки кристалла (диаметром пучка). При этих условиях квадратичную восприимчивость можно факторизовать и представить в виде произведения двух пространственных вкладов, зависящих от x и z следующим образом:

$$\chi^{(2)}(x, z) = \chi_0 \tau_{\perp}(x) \tau_{\parallel}(z) = \chi_0 \tau_{\perp}(x) \begin{cases} 1, & |z| < L_z/2, \\ 0, & |z| > L_z/2. \end{cases} \quad (3)$$

Функция $\tau_{\perp}(x)$, вообще говоря, аperiодическая (рис. 4). Ее можно разложить в ряд Фурье, если рассматривать весь кристалл в поперечном направлении X как один период решетки и периодически продолжить его при $|x| > L_x/2$ [11]:

$$\tau_{\perp}(x) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} \tau_{\perp m} e^{imq_x x}, \quad (4)$$

где $q_x = 2\pi/L_x$ — модуль вектора обратной сверхрешетки с периодом L_x , где L_x — поперечное сечение пучка

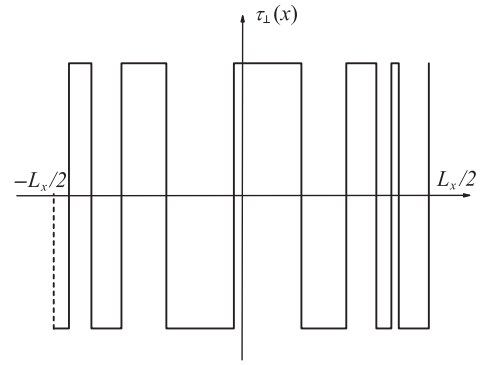


Рис. 4. График функции $\tau_{\perp}(x)$, иллюстрирующий распределение квадратичной восприимчивости в кристалле с нерегулярной доменной структурой

накачки. Выражение для амплитуд пространственных фурье-гармоник выглядит следующим образом:

$$\tau_{\perp m} = \frac{1}{L_x} \int_{-L_x/2}^{L_x/2} \tau_{\perp}(x) \cdot e^{-imq_x x} dx. \quad (5)$$

Если на входной грани кристалла заданы размеры оснований всех доменов d_{2g} и d_{2g+1} , где $d_{2g} \in \{d^{(+)}\}$ и $d_{2g+1} \in \{d^{(-)}\}$ (т.е. четные и нечетные индексы (номера доменов) соответствуют чередующимся доменам с различным направлением спонтанной поляризации, g — натуральные числа), то для фурье-амплитуд можно получить выражение

$$\tau_{\perp m} = \frac{i(-1)^{m+1}}{2\pi m} \sum_{k=1}^N (-1)^k \left[\exp \left\{ -im \frac{2\pi}{L_x} d_k \right\} - 1 \right] \times \exp \left\{ -im \frac{2\pi}{L_x} \sum_{s=1}^{k-1} d_s \right\}, \quad (6)$$

где N — общее число доменов. На рис. 5 приведены рассчитанные действительная и мнимая части фурье-амплитуд, соответствующих распределениям доменов, описываемых формулой (1). Из графиков видно, что в рамках этого подхода для корректного расчета поля на частоте ВГ должны учитываться высшие гармоники с номерами вплоть до нескольких тысяч.

Для поляризации среды на частоте второй гармоники следует выражение

$$P^{(2)}(2\omega, x, z) = \chi_0 \tau_{\perp}(x) \tau_{\parallel}(z) E_1 E_1 e^{-i2\omega t} e^{i2k_1 z}. \quad (7)$$

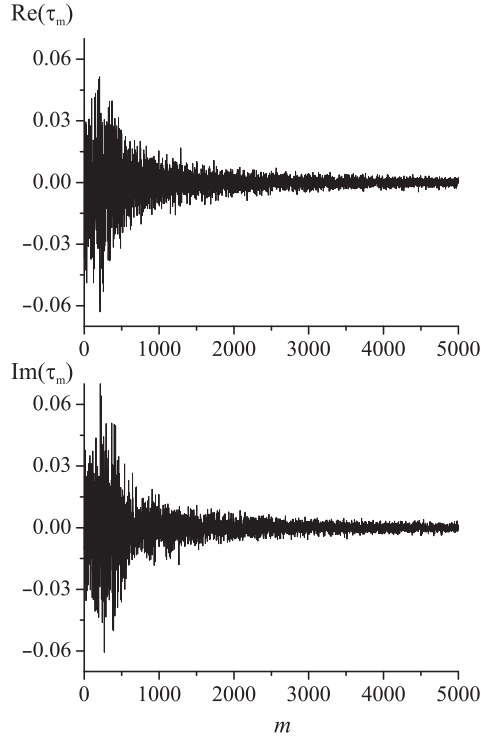
Поле волны второй гармоники в дальней зоне может быть представлено в виде [26]

$$E(2\omega, R) = \frac{\omega^2}{c^2 R} e^{ikR} \int_V e^{-ikr} P(2\omega, r) \cos(\theta) dr, \quad (8)$$

где θ — угол между волновыми векторами накачки и второй гармоники, R — расстояние от кристалла до точки измерения. После подстановки (7) в (8) и разделения переменных получим

$$E(2\omega, R) \propto \int_{-L_z/2}^{L_z/2} e^{i(2k_1 - k_z)z} dz \cdot \int_{-L_x/2}^{L_x/2} \tau_{\perp}(x) e^{-ik_x x} dx, \quad (9)$$

где k_1 — волновой вектор накачки. Результирующая интенсивность второй гармоники с учетом разложения


 Рис. 5. Фурье-гармоники функции $\tau_{\perp}(x)$

в ряд Фурье (4) представляет собой произведение двух факторов

$$I(2\omega) \propto F_{\parallel} \cdot F_{\perp}, \quad (10)$$

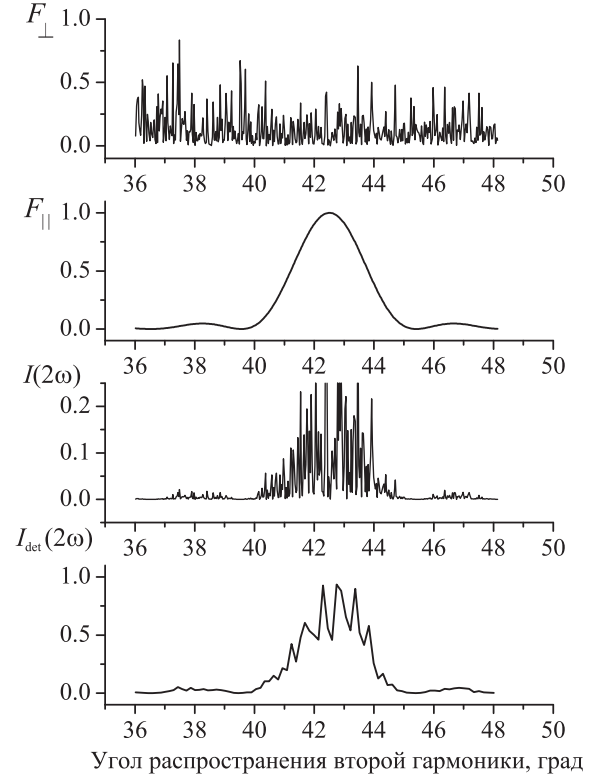
$$F_{\parallel} = \text{sinc}^2 \left[\frac{2k_1 - k_{2z}}{2} L_z \right],$$

$$F_{\perp} = \left[\sum_{m=-\infty}^{\infty} \left[\tau_{\perp m} \text{sinc} \frac{m q_x - k_{2x}}{2} L_x \right] \right]^2,$$

где k_x и k_z — компоненты волнового вектора второй гармоники. Функция $F_{\perp}$ представляет собой набор узких пиков с амплитудами, пропорциональными произведениям фурье-амплитуд $\tau_{\perp m} \tau_{\perp m'}$ (рис. 6). Фактор $F_{\parallel}$ представляет собой один широкий пик. Ширина этого пика гораздо больше ширины отдельных пиков функции $F_{\perp}$, поскольку $L_z \ll L_x$ (типичные размеры $L_z \approx 100$ мкм, $L_x \approx 2$ мм). Таким образом, функция $F_{\parallel}$ является огибающей углового распределения интенсивности ВГ, и эта огибающая «заполнена набивкой» значений функции $F_{\perp}$; рассчитанная результирующая интенсивность ВГ $I(2\omega)$ также приведена на рис. 6. Однако детектор может «не видеть» столь тонкую угловую структуру, поскольку обладает собственной угловой апертурой и конечным размером входной площадки. В результате измеряемое угловое распределение ВГ $I_{\text{det}}(2\omega)$ будет сглажено, а точность измерений будет определяться размерами диафрагмы, приведенной на рис. 2.

Для того чтобы определить эффективную длину доменов L_z , требуется усреднить угловые распределения ВГ по числу измерений N , соответствующих засветкам различных областей поверхности кристалла:

$$\langle I(2\omega) \rangle \propto F_{\parallel} \langle F_{\perp} \rangle. \quad (11)$$


 Рис. 6. Графики форм-факторов $F_{\perp}$ и $F_{\parallel}$, а также угловых распределений интенсивности второй гармоники: на выходе кристалла $I(2\omega)$ и усредненной по апертуре детектора $I_{\text{det}}(2\omega)$

Так как домены на поверхности кристалла распределены случайно, усреднение функции $F_{\perp}$ должно приводить к появлению слабо зависящего от угла множителя, который можно считать постоянным в исследуемом угловом диапазоне. Таким образом, для аппроксимации серии экспериментов можно использовать функцию, зависящую от двух параметров: β (определяет максимум интенсивности) и L_z (параметр, определяющий полуширину углового распределения ВГ):

$$\langle I(2\omega) \rangle = \beta F_{\parallel}(L_z). \quad (12)$$

Усредняя измеренные угловые распределения интенсивности ВГ, приведенные на рис. 3 (соответствующие четырем различным областям засветки кристалла) для эффективной длины доменов (глубины прорастания доменов), нами получена оценка 47 мкм, что неплохо согласуется с литературными данными. Так, в работе [27] методом микроскопии пьезоотклика исследовались сколы кристаллов ниобата-бария стронция, длины доменов оказались равны нескольким десяткам микрометров. Другой метод — микроскопии ближнего поля второй гармоники — также дает аналогичные результаты [28].

Отметим, что в ряде случаев для определения размеров доменов могут быть информативными и методы малоугловой линейной дифракции света на доменных стенках. Однако поскольку в сегнетоэлектриках вариации показателя преломления на границах доменов обычно крайне малы (например, в полидоменных кристаллах ниобата лития вблизи границ доменов показатель преломления скачкообразно изменяется на величину порядка 10^{-5} – 10^{-4} [29]), можно ожидать, что эффективность линейной дифракции будет невысока.

К тому же в случае ниобата бария–стронция домены локализованы вблизи поверхности, поэтому дифракция на краю кристалла может существенно усложнять итоговую дифракционную картину.

Также представляет большой интерес получение информации о поперечном распределении доменов. Предполагается, что размеры иглообразных доменов $d^{(+)}$ не должны сильно варьироваться и могут быть описаны распределением Вейбулла–Гнеденко с одними и теми же параметрами $s^{(+)} = 3.4$, $p^{(+)} = 3$. А междоменные расстояния $d^{(-)}$ в зависимости от условий роста, напротив, могут сильно варьироваться от образца к образцу, что должно проявляться прежде всего в изменении параметра пространственного масштаба $p^{(-)}$ (возможным изменением формы распределений мы пренебрегаем). По сути при варьировании параметра $p^{(-)}$ меняется плотность иглообразных доменов. Можно ожидать, что при уменьшении плотности доменов пространственные гармоники квадратичной восприимчивости будут «прореживаться», что должно проявиться в уменьшении интегральной мощности ВГ.

С этой целью нами был проведен моделирующий численный эксперимент. На компьютере были получены случайные выборки размеров доменов, подчиняющихся статистике Вейбулла–Гнеденко. Для междоменных

расстояний варьировался параметр $p^{(-)}$ от 2 до 20, при этом осуществлялся контроль суммы толщин доменов; с точностью до нескольких микрометров она выбиралась равной 2 мм, что соответствовало гипотетическому размеру засветки кристалла накачкой, который во всех расчетах полагался постоянным. Полученные распределения интенсивности второй гармоники интегрировались по всем углам и площади, таким образом рассчитывалась интегральная мощность:

$$W = \int I(2\omega) d\theta dS. \quad (13)$$

Результаты расчетов приведены на рис. 7, а. С увеличением параметра масштаба $p^{(-)}$ мощность ВГ экспоненциально падает и может быть хорошо описана функцией вида $W(p^{(-)}) = Ae^{-p^{(-)}/G}$, где $A = 22.6$, $G = 10$. Подобные графики могут быть полезны при экстраполяции данных в область любых значений параметра масштаба. Так, измерив мощность ВГ в одном кристалле с полностью известными распределениями доменов и затем взяв любой другой кристалл с неизвестным распределением междоменных расстояний, можно измерить мощность ВГ в этом не охарактеризованном образце. Тогда из графика на рис. 7, а можно определить параметр $p^{(-)}$, соответствующий мощности ВГ во втором кристалле с изначально неизвестным статистическим распределением доменов. Однако для практического применения эта методика нуждается в строгой экспериментальной проверке с набором кристаллов, подвергнутых процедуре тщательной характеристики доменной структуры.

Заключение

Изучена угловая форма линии неколлинеарной второй гармоники в кристаллах ниобата бария–стронция. Определена ширина линии и положение максимума второй гармоники. Предложена приближенная модель для расчета интенсивности ВГ в кристаллах ниобата бария–стронция. Показано, что основной вклад в интенсивность ВГ дают приповерхностные домены. Получено эффективное значение длины доменов, участвующих в процессе генерации неколлинеарной второй гармоники. Методом атомно-силовой микроскопии проведен анализ топографии травленной поверхности НБС. Показано, что плотность распределения доменов может быть описана распределением Вейбулла–Гнеденко. На основе численного эксперимента предложен метод определения параметров функции плотности распределения доменов путем измерений интегральной мощности ВГ. Разработанный подход может быть использован для диагностики и характеристики полидоменных микроструктур в нелинейно-оптических средах.

Авторы благодарны В. А. Дьякову, выполнившему химическое травление образца, а также П. А. Прудковскому за плодотворные дискуссии.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты 11-02-01074, 14-22-02091, 14-22-02091), а также гранта Минобрнауки РФ № 8393. Работа частично поддержана государственными грантами Минобрнауки РФ.

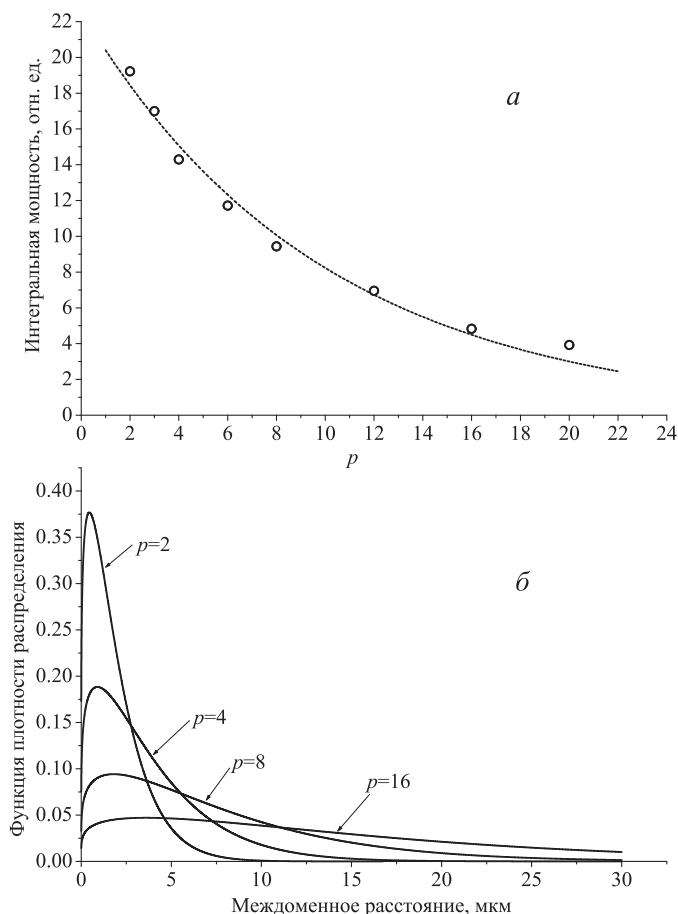


Рис. 7. Интегральная мощность ВГ в зависимости от параметра $p^{(-)}$, задающего пространственный масштаб распределения Вейбулла–Гнеденко (а). Примеры распределений Вейбулла–Гнеденко, соответствующие различным параметрам $p^{(-)}$ (б)

Список литературы

1. Baudier-Raybaut M., Haïdar R., Kupecsek Ph. et al. // *Nature*. 2004. **432**. P. 374.
2. Zhu S.N., Zhu Y.Y., Ming N.B. // *Science*. 1997. **278**. P. 843.
3. Liu X., Wang Z., Wu J., Ming N. // *Phys. Rev. A*. 1998. **58**. P. 4956.
4. Sibilis C., Tropea F., Bertolotti M. // *J. Mod. Opt.* 1998. **45**. P. 2255.
5. Imeshev G., Arbore M.A., Fejer M.M. et al. // *J. Opt. Soc. Amer. B*. 2000. **17**. P. 304.
6. Loza-Alvarez P., Ebrahimzadeh M., Sibbett W. et al. // *J. Opt. Soc. Amer. B*. 2001. **18**. P. 1212.
7. Guo H., Tang S.H., Qin Y., Zhu Y.Y. // *Phys. Rev. E*. 2005. **71**, 066615.
8. Freund I. // *Phys. Rev. Lett.* 1968. **21**. P. 1404.
9. Евланова Н.Ф., Наумова И.И., Чаплина Т.О. и др. // *ФТТ*. 2000. **42**. С. 1678.
10. Fujiwara T., Kohmoto M., Kokihito T. // *Phys. Rev. B*. 1989. **40**. P. 7413.
11. Kitaeva G.Kh. // *Phys. Rev. A*. 2007. **76**. 043841.
12. Морозов Е.Ю., Чиркин А.С. // *Квантовая электроника*. 2004. **34**. С. 227.
13. Морозов Е.Ю., Каминский А.А., Чиркин А.С., Юсупов Д.Б. // *Письма в ЖЭТФ*. 2001. **73**, № 12. С. 731.
14. Шутков И.В., Ожерелов И.А., Шумицкий А.В., Чиркин А.С. // *Оптика и спектроскопия*. 2008. **105**. С. 87.
15. Vyunishchev A.M., Aleksandrovsky A.S., Zaitsev A.I., Slabko V.V. // *Appl. Phys. Lett.* 2012. **101**. 211114.
16. Tunyagi A.R., Ulex M., Betzler K. // *Phys. Rev. Lett.* 2003. **90**. 243901.
17. Кузнецов К.А., Кутаева Г.Х., Шевлюга А.В. и др. // *Письма в ЖЭТФ*. 2008. **87**. С. 105.
18. Fischer R., Saltiel S.M., Neshev D.N. et al. // *Appl. Phys. Lett.* 2006. **89**. 191105.
19. Ivanov N.R., Volk T.R., Ivleva L.I. // *Kristallografiya*. 2002. **47**. 1065.
20. Kuznetsov K.A., Kitaeva G.Kh., Ezhov A.A. et al. // *Ferroelectrics*. 2012. **398**. P. 85.
21. Sun H.B., Shen J., Yokota H. // *Biophys. J.* 2000. **79**. P. 184.
22. Rennolds K., Geary D.N., Rollinson T.J.D. // *Forestry*. 1985. **58**. P. 57.
23. Millan H. et al. // *Geoderma*. 2003. **117**. P. 117.
24. Bursill L.A., Lin P.J. // *Phil. Mag. B*. 1986. **54**. P. 57.
25. Fogarty G. et al. // *J. Opt. Soc. Amer. B*. 1996. **13**. 2636.
26. Клышко Д.Н. *Фотоны и нелинейная оптика*. М., 1980.
27. Shvartsman V.V., Kleemann W., Lukasiewicz T., Dec J. // *Phys. Rev. B*. 2008. **77**. 054105.
28. Wesner M., Wischmeier L., Krätzig E. et al. // *Proc. of Conf. «Photorefractive Effects, Materials, and Devices» (OSA/PEMD)*. 2003.
29. Александровский А.Л., Глико О.А., Наумова И.И., Прялкин В.И. // *Квант. электроника*. 1996. **23**. С. 657.

Non-collinear generation of the second optical harmonic in strontium–barium niobate crystals with needle-like microdomains

K. A. Kuznetsov^a, A. A. Ezhov, A. N. Penin

Department of Quantum Electronics, Faculty of Physics, M. V. Lomonosov Moscow State University, Moscow 119991, Russia.

E-mail: ^a kirill-spdc@yandex.ru.

The structure of the spatial spectra from the second harmonic (SH) of yttrium–aluminum–garnet neodymium laser radiation during quasi-phase-matched generation is studied in a spatially inhomogeneous nonlinear medium. Based on the example of the formation of the strontium–barium niobate (SBN) domain structure a theoretical model that describes the angular distribution of the intensity of the noncollinear SH generated in the polydomain crystal with stochastically distributed domains is proposed. It is shown that the characteristic spatial domain sizes can be found from the second-harmonic intensities and that the density of the domain distribution is described by the Weibull–Gnedenko distribution.

Keywords: strontium–barium niobate, microdomains, second-harmonic generation.

PACS: 42.65.Ky, 42.70.Mp, 78.20.Bh.

Received 4 September 2014.

English version: *Moscow University Physics Bulletin* 2(2015).

Сведения об авторах

1. Кузнецов Кирилл Андреевич — канд. физ.-мат. наук, науч. сотрудник; тел.: (495) 939-43-72, e-mail: kirill-spdc@yandex.ru.
2. Ежов Александр Александрович — канд. физ.-мат. наук, ст. науч. сотрудник; тел.: (495) 939-43-72, e-mail: alexander-ezhov@yandex.ru.
3. Пенин Александр Николаевич — докт. физ.-мат. наук, профессор; тел.: (495) 939-43-72, e-mail: aleksandrpenin@mail.ru.