

Оптика твердого тела и наноструктур



Гончар Кирилл Александрович
Тимошенко Виктор Юрьевич

**Московский Государственный Университет
им. М. В. Ломоносова, Физический факультет**

Лекция 20

Нелинейная оптика твердотельных наноструктур и нанокомпозитов.

Нелинейная поляризуемость среды. Генерация гармоник. Рост эффективной нелинейности в наноструктурированных материалах. Фазовый синхронизм в анизотропных нанокомпозитах и фотонных кристаллах. Вынужденное комбинационное рассеяние света и генерация суперконтинуума.

Нелинейная поляризуемость среды

В общем случае произвольных световых полей вектор поляризации единицы объема среды может быть записан в виде:

$$\vec{P} = \vec{P}^{(1)} + \vec{P}^{(2)} + \vec{P}^{(3)} + \dots$$

Где величина нелинейная поляризации зависит от нелинейных поляризуемостей :

$$\vec{P}^{NL} = \vec{P}^{(2)} + \vec{P}^{(3)} + \dots = \hat{\chi}^{(2)} : \vec{E}\vec{E} + \hat{\chi}^{(3)} : \vec{E}\vec{E}\vec{E} + \hat{\chi}^{(4)} : \vec{E}\vec{E}\vec{E}\vec{E} + \dots$$

$$P_i^{(2)} = \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k$$

$\hat{\chi}^{(2)}$ - квадратичная поляризуемость

$$P_i^{(3)} = \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l$$

$\hat{\chi}^{(3)}$ - кубичная поляризуемость

$$i, j, k, l = x, y, z$$

Разложение поляризации по степеням напряженности электрического поля:

$$\left| \frac{P^{(n+1)}}{P^{(n)}} \right| \propto \left| \frac{E}{E_a} \right|$$

Квадратичные нелинейно-оптические эффекты

Нелинейная поляризация среды второго порядка зависит от свойств симметрии среды:

$$\vec{P}_{NL}^{(2)} = \chi^{(2)} \vec{E}\vec{E}$$

Операция инверсии:

$$\chi^{(2)} \rightarrow \chi^{(2)}$$

$$\vec{E} \rightarrow -\vec{E}$$

$$\vec{P} \rightarrow -\vec{P}$$

$$\vec{P}_{NL}^{(2)} = \chi^{(2)} \vec{E}\vec{E} = \chi^{(2)} (-\vec{E})(-\vec{E}) = -\vec{P}_{NL}^{(2)}$$

В центросимметричных средах (Si, Ge, алмаз, аморфные вещества, газы и жидкости), а значит и эффективность генерации второй и других четных гармоник $\rightarrow 0$ в дипольном приближении.

Однако данный процесс возможен в квадрупольном приближении.

$$\chi^{(2)} = 0$$

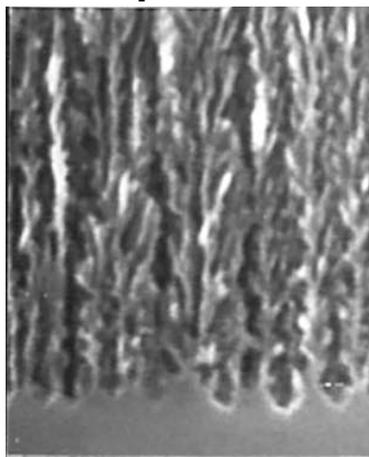
$$\chi^{(2n)} = 0, n = 1, 2, 3, \dots$$

$$\chi_Q^{(2n)} \neq 0$$

Пористый кремний как эффективная оптическая среда

Пористый кремний может быть получен электрохимическим травлением (анодированием) монокристаллов кремния в растворах плавиковой кислоты (HF)

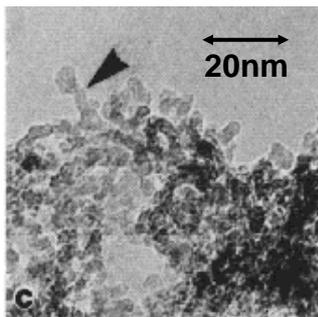
Mesoporous Si



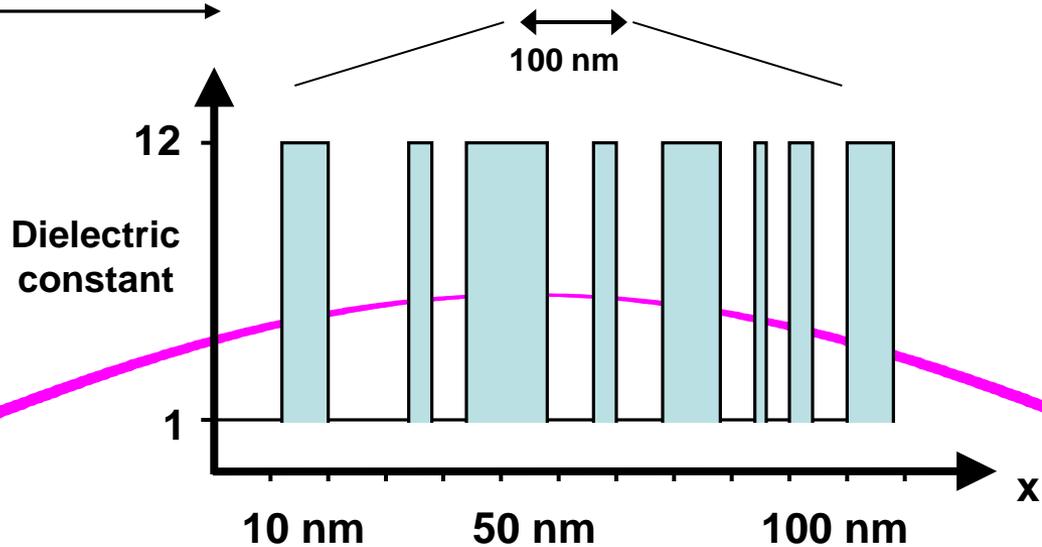
300 nm

Пористый кремний с размерами нанокристаллов кремния от 1 до 5 нм (микропористый кремний) и 5-50 нм (мезопористый кремний) может быть рассмотрен как эффективная оптическая среда для света видимого и ИК диапазонов спектра $\lambda > 400$ нм

Microporous Silicon



20nm

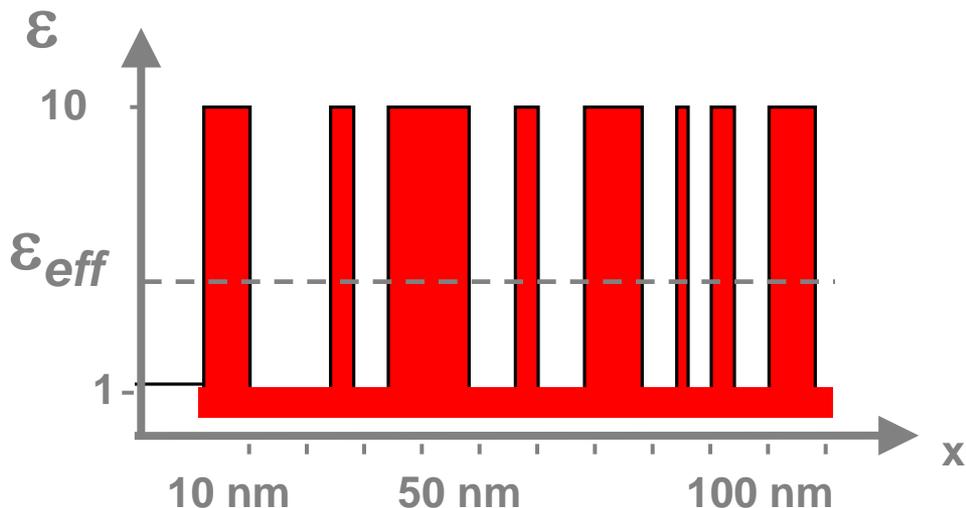


$\lambda_{\text{visible light}} \gg d_{\text{Si}}, d_{\text{pores}}$



$\epsilon_{\text{eff}} (\epsilon_{\text{Si}}, \epsilon_{\text{Pores}}, P)$

Флуктуации локального поля как причина роста эффективной оптической нелинейности в наноструктурированных средах



$$E(r) = [1 + \delta(r)] E_a$$

Среднее (эффективное) поле:

$$E_a = \langle E(r) \rangle = E_{ext} / \epsilon_{eff}$$

Отклонения (флуктуации) от E_a :

$$\langle \delta \rangle = 0, \quad \langle \delta^2 \rangle \neq 0$$

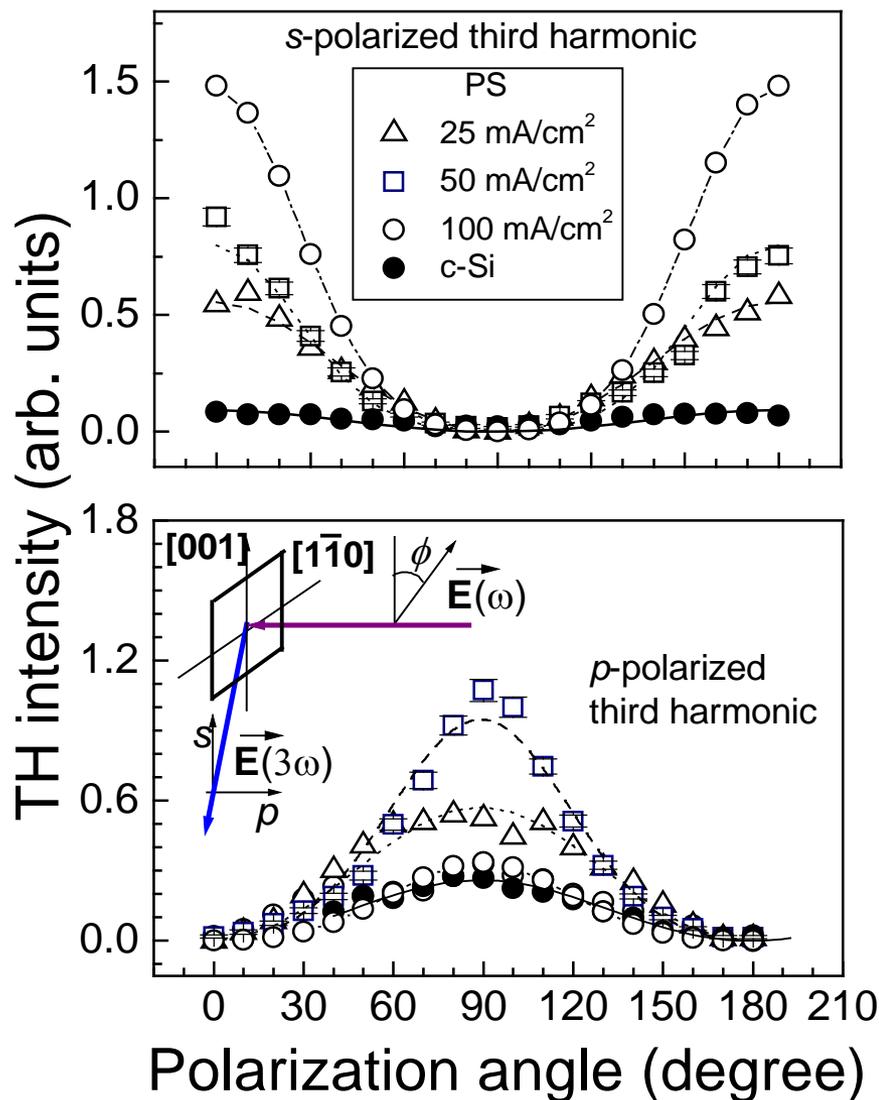
Для ГВГ : $\langle P(2\omega) \rangle \sim \chi^{(2)} \langle E^2 \rangle = \chi^{(2)} [1 + 2 \langle \delta(r)^2 \rangle] E_a^2$

N -я гармоника: $\langle P(N\omega) \rangle \sim \langle E^N \rangle = [1 + N \langle \delta(r)^2 \rangle] E_a^N$

$$\chi_{eff}^{(N)} = \chi^{(N)} \left[1 + N \langle \delta^2 \rangle \right]$$

Эффективная нелинейная восприимчивость возрастает вследствие флуктуаций локального электрического поля в наноструктурах тем больше, чем выше порядок нелинейности.

Генерация третьей гармоники в слоях пористого кремния



Sample	Porosity %	Refractive index $(n_o+n_e)/2$	Birefringence $\Delta n = n_o - n_e$	Nonlinear-optical anisotropy $\zeta / \chi_{1111}^{(3)}$
c-Si	0	3.4	10^{-5}	0.05
PS 25 mA/cm ²	65	1.74	0.08	0.14
PS 50 mA/cm ²	75	1.54	0.13	0.65
PS 100 mA/cm ²	82	1.50	0.15	0.68

$$P_i^{(3)} = \zeta E_i^3 + (\chi_{1111}^{(3)} - \zeta) E_i |E|^2$$

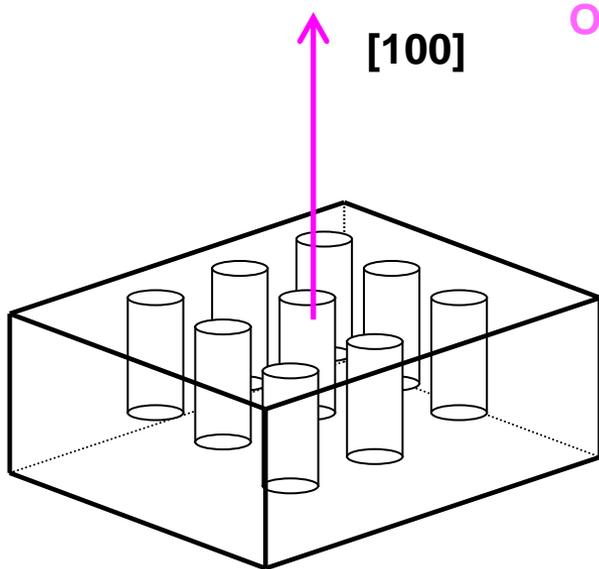
$$\zeta = \chi_{1111}^{(3)} - (\chi_{1212}^{(3)} + \chi_{1221}^{(3)} + \chi_{1122}^{(3)})$$

$$I_{THG} \propto (\zeta \cos^3 \phi + (\chi_{1111}^{(3)} - \zeta) \cos \phi)^2$$

Рост эффективности ГТГ и изменение анизотропии тензора коррелируют с величиной двулучепреломления при изменении пористости слоя

Оптическая анизотропия пленок пористого кремния с ориентацией поверхности (100) и (110)

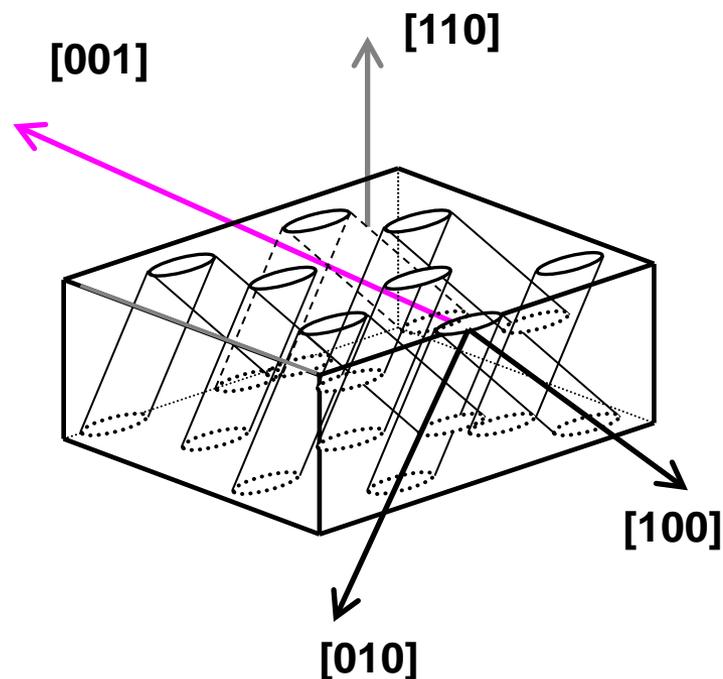
c-Si (100)



Optical axis

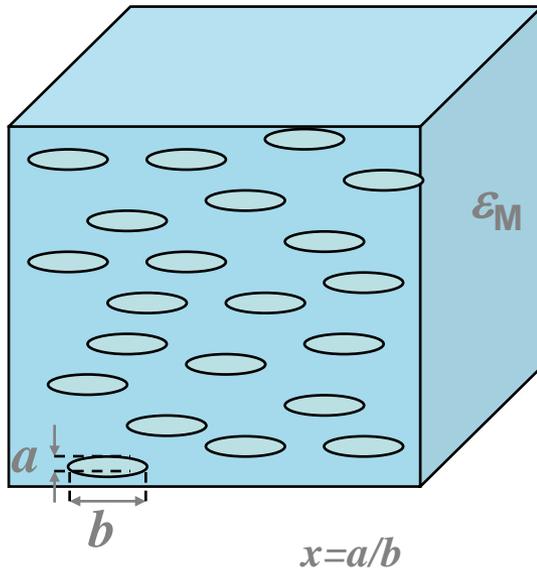
Positive crystal ($n_e > n_o$)

c-Si (110)



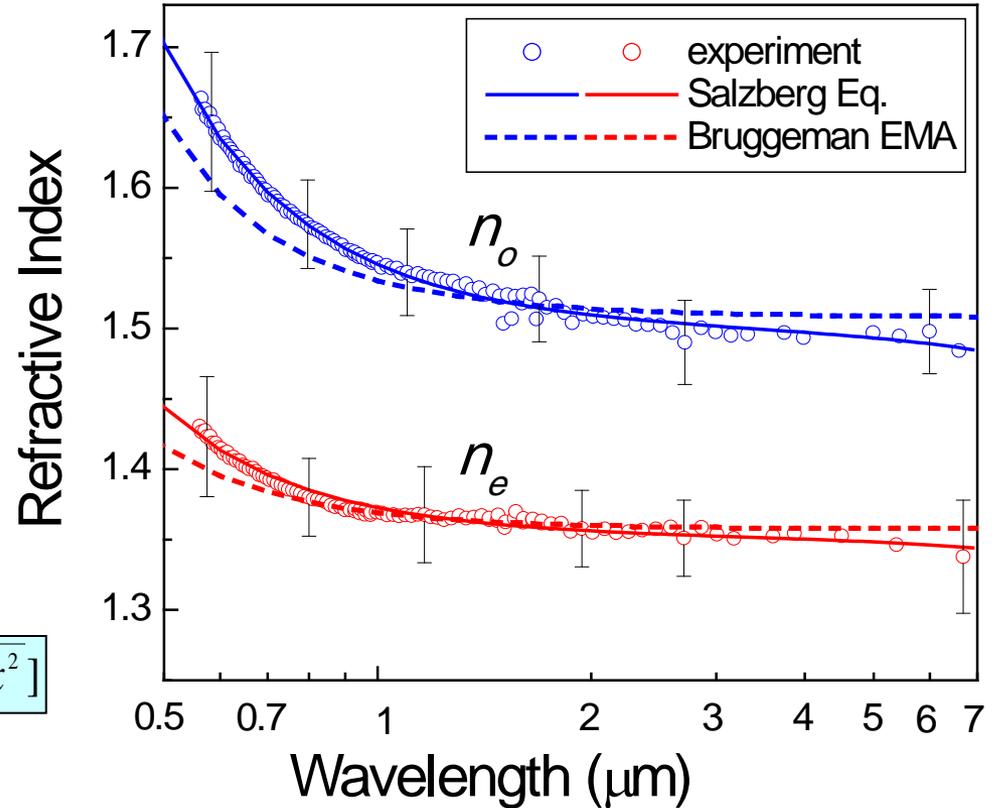
Negative crystal ($n_o > n_e$)

Дисперсия показателя преломления света в por-Si



$$L_{\parallel} = 1/(1-x^2) \cdot [((1-x) \cdot \arcsin(\sqrt{1-x^2}))/\sqrt{1-x^2}]$$

$$2L_{\perp} + L_{\parallel} = 1$$



Generalized Bruggeman model (EMA):

$$P \frac{\epsilon_M - \epsilon_{eff}^{o,e}}{\epsilon_{eff}^{o,e} + L_{o,e}(\epsilon_M - \epsilon_{eff}^{o,e})} + (1-P) \frac{\epsilon_{Si} - \epsilon_{eff}^{o,e}}{\epsilon_{eff}^{o,e} + L_{o,e}(\epsilon_{Si} - \epsilon_{eff}^{o,e})} = 0$$

For c-Si :

$$n_{o,e}^2 = A_{o,e} + K_{o,e} / (\lambda^2 - B_{o,e}) + C_{o,e} \lambda^2$$

Волновое уравнение для генерации второй гармоники

$$\Delta \vec{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} - \frac{4\pi}{c} \frac{\partial^2 \vec{P}^{(1)}}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c} \frac{\partial^2 \vec{P}^{(2)}}{\partial t^2}$$

Решение волнового уравнения в одномерном случае распространения волн по оси z :

$$I_{2\omega} \propto \frac{|\chi^{(2)} I_\omega|^2}{n_{2\omega}^2} \cdot \frac{\sin^2 \frac{\omega(n_\omega - n_{2\omega})z}{c}}{\left[\frac{\omega(n_\omega - n_{2\omega})}{c} \right]^2} = \frac{|\chi^{(2)} I_\omega|^2}{n_{2\omega}^2} z^2 \text{sinc}^2\left(\frac{1}{2} \Delta k z\right)$$

Для нецентросимметричной среды:

$$\chi^{(2)} \neq 0 \Rightarrow I_{2\omega} \propto |\chi^{(2)}|^2 I_\omega^2 z^2 \text{sinc}^2(\Delta k z / 2)$$

Разность волновых векторов:

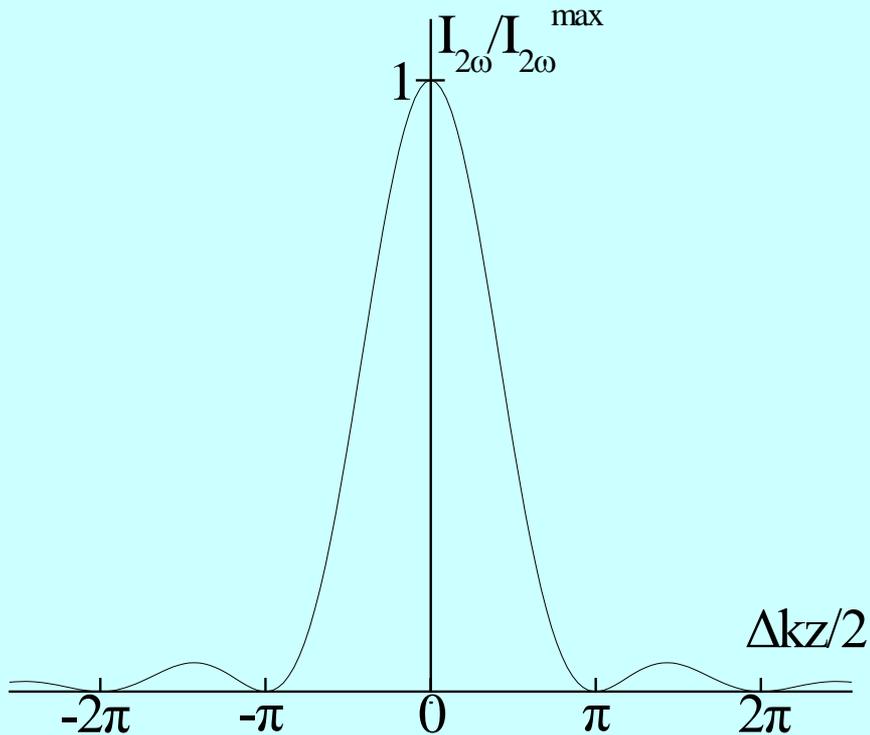
$$\Delta k = k_{2\omega} - k_\omega = 2\omega(n_\omega - n_{2\omega})/c$$

Условие фазового синхронизма:

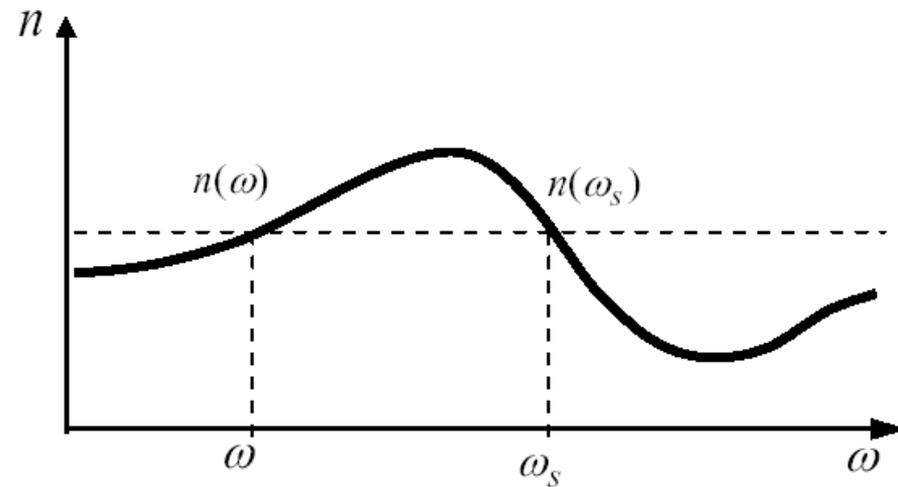
$$\Delta k = 0$$

Фазовый синхронизм:

$$\Delta k = 2k_{\omega} - k_{2\omega} = \frac{2\omega}{c} (n_{\omega} - n_{2\omega}) = 0$$



Может реализоваться для сред с аномальной дисперсией:



Или для анизотропных (двулучепреломляющих) сред:

$$n_{2\omega}^e = n_{\omega}^o$$

или

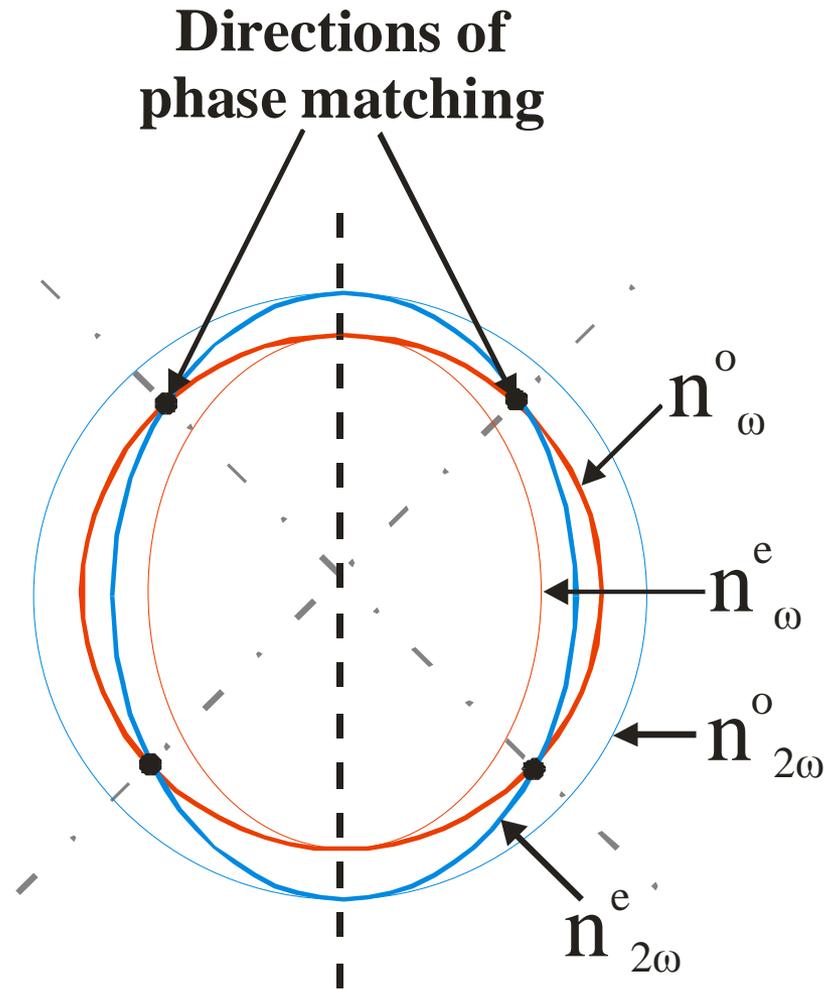
$$n_{2\omega}^e = \frac{1}{2} (n_{\omega}^o + n_{\omega}^e)$$

Фазовый синхронизм в отрицательном одноосном кристалле

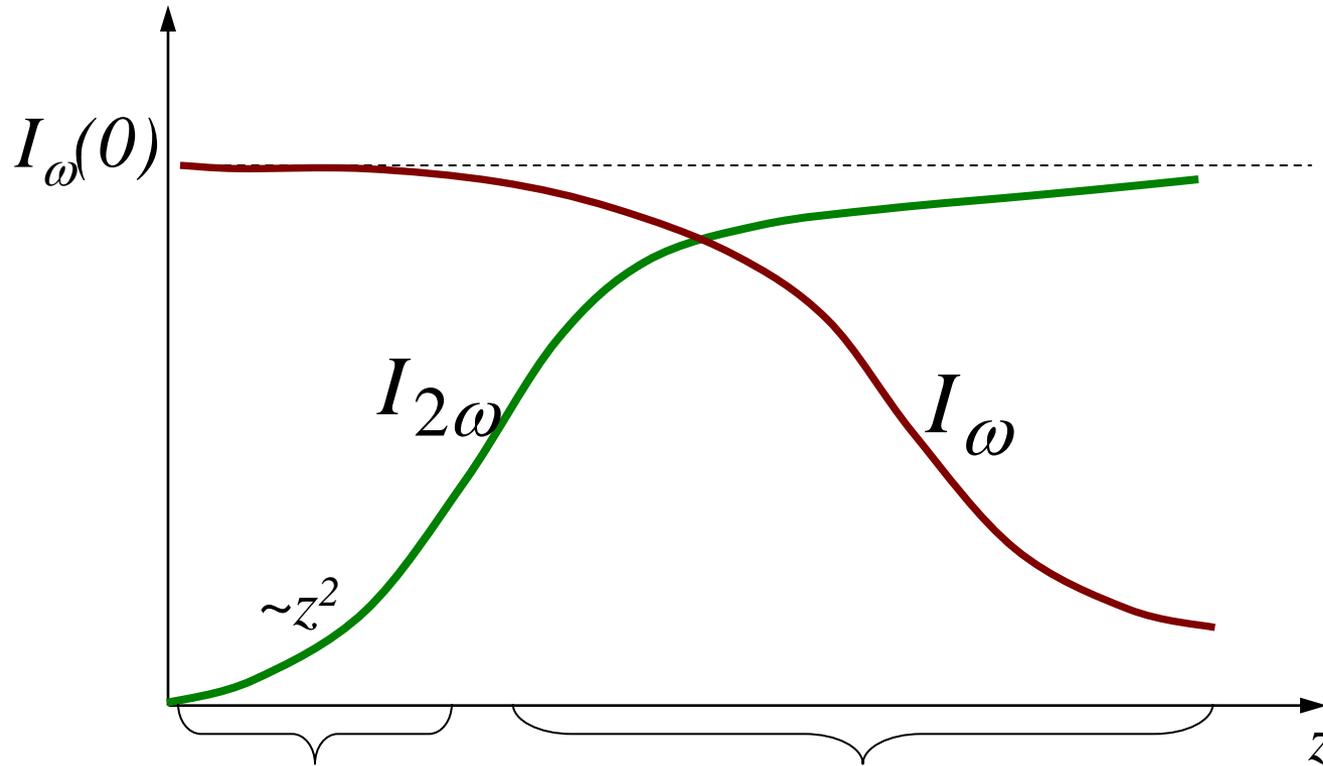
$$\Delta k = 2k_{\omega} - k_{2\omega} = 0$$

$$n_{\omega} - n_{2\omega} = 0$$

$$n_{\omega}^o = n_{2\omega}^e$$



Перекачка энергии из основной во вторую гармонику в условиях фазового синхронизма



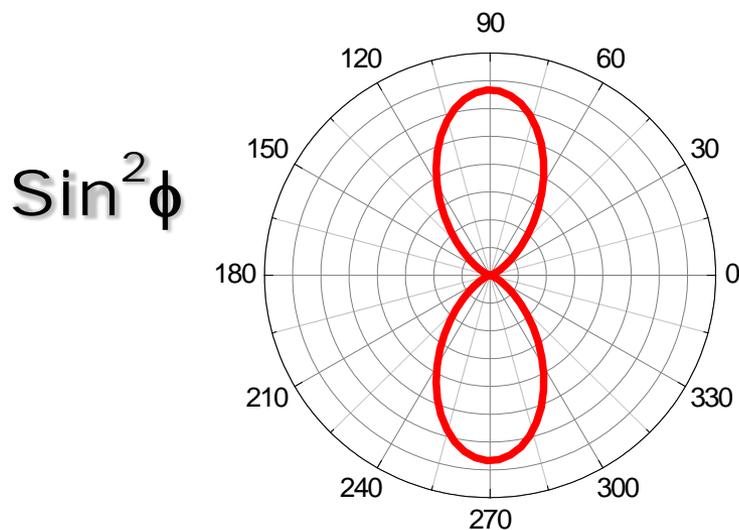
Постоянство
поля накачки:

Обеднение поля накачки

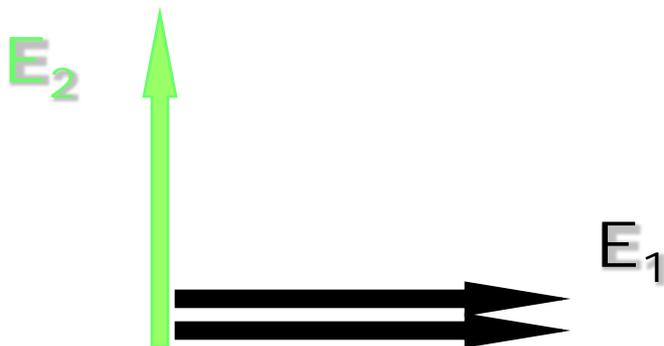
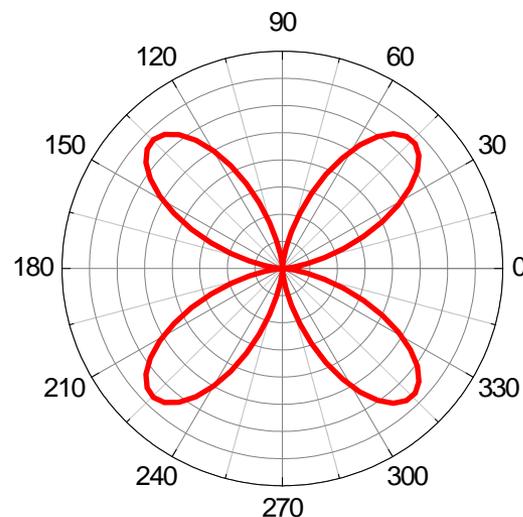
$$\Delta k = 0, \quad I_\omega = \text{const}$$

$$I_{2\omega} \propto I_\omega^2 |\chi^{(2)}|^2 z^2 \text{sinc}^2\left(\frac{1}{2} \Delta k z\right) \approx I_\omega^2 |\chi^{(2)}|^2 z^2$$

Два типа синхронизма в отрицательном двулучепреломляющем кристалле

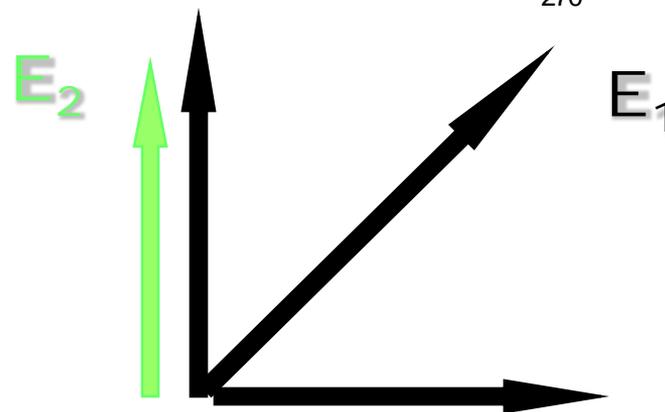


$\text{Sin}^4 2\phi$



1 type (ooe):

$$n_e(2\omega) = n_o(\omega)$$

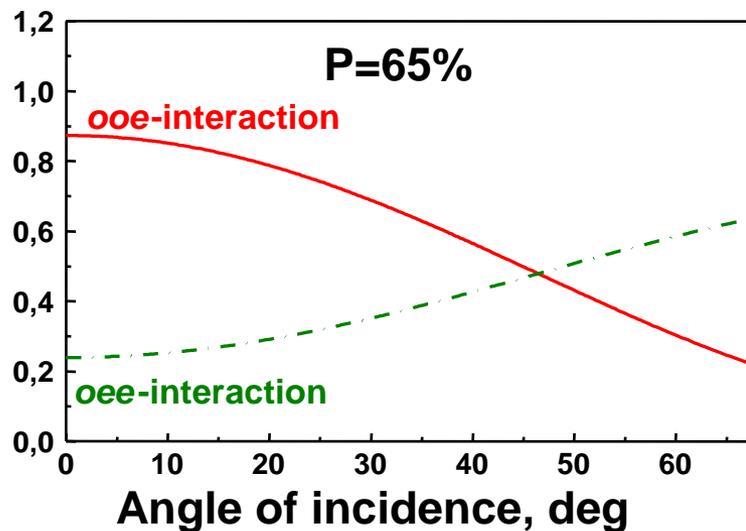
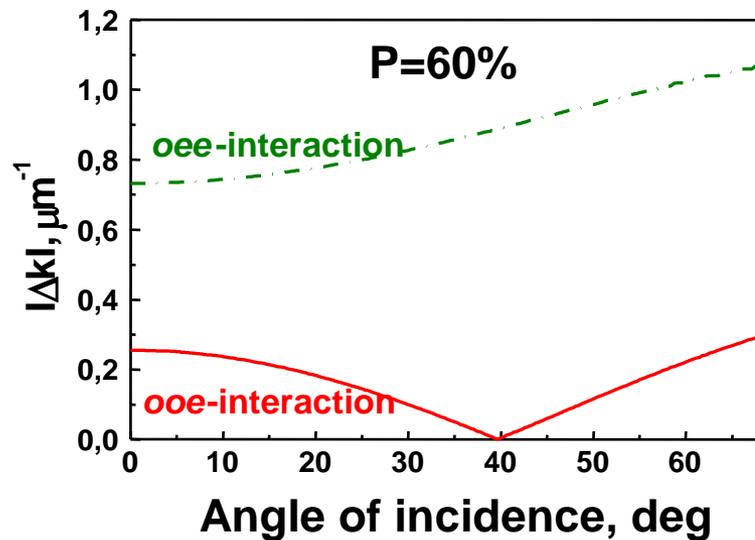


2 type (oee):

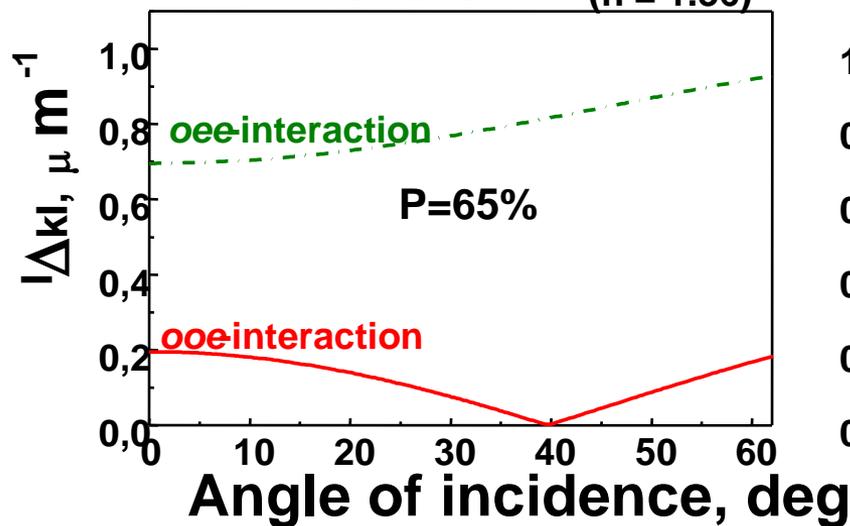
$$n_e(2\omega) = 1/2(n_o(\omega) + n_e(\omega))$$

Угловые зависимости фазовой расстройки для ГВГ в слоях por-Si

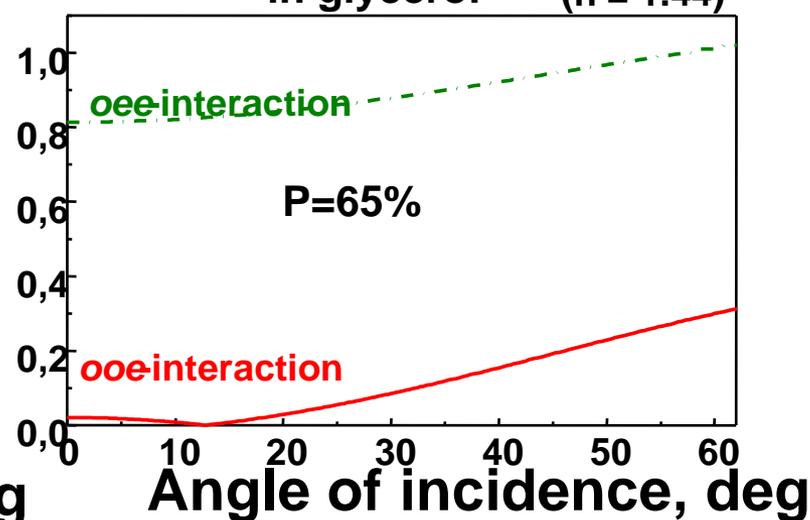
Porous Si (110) in vacuum



in ethanol ($n = 1.36$)



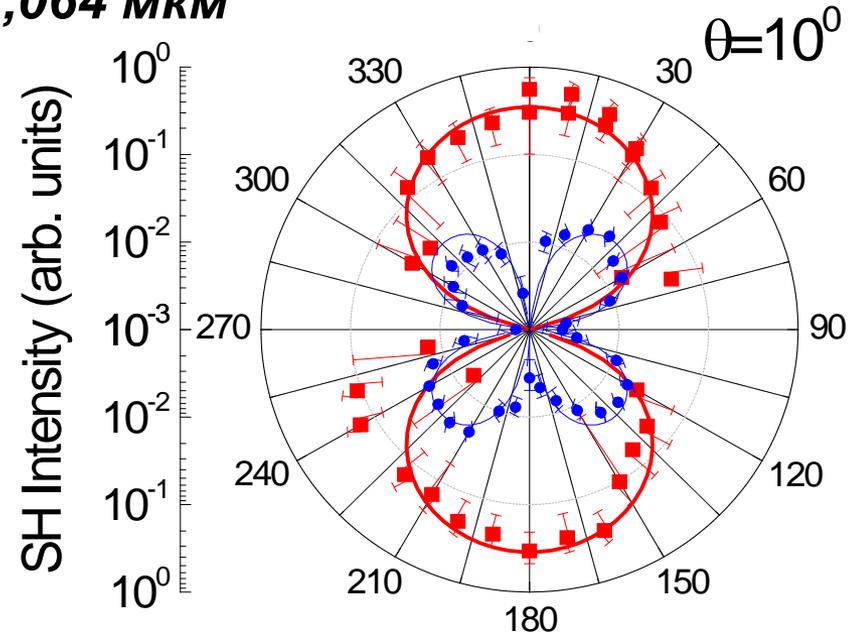
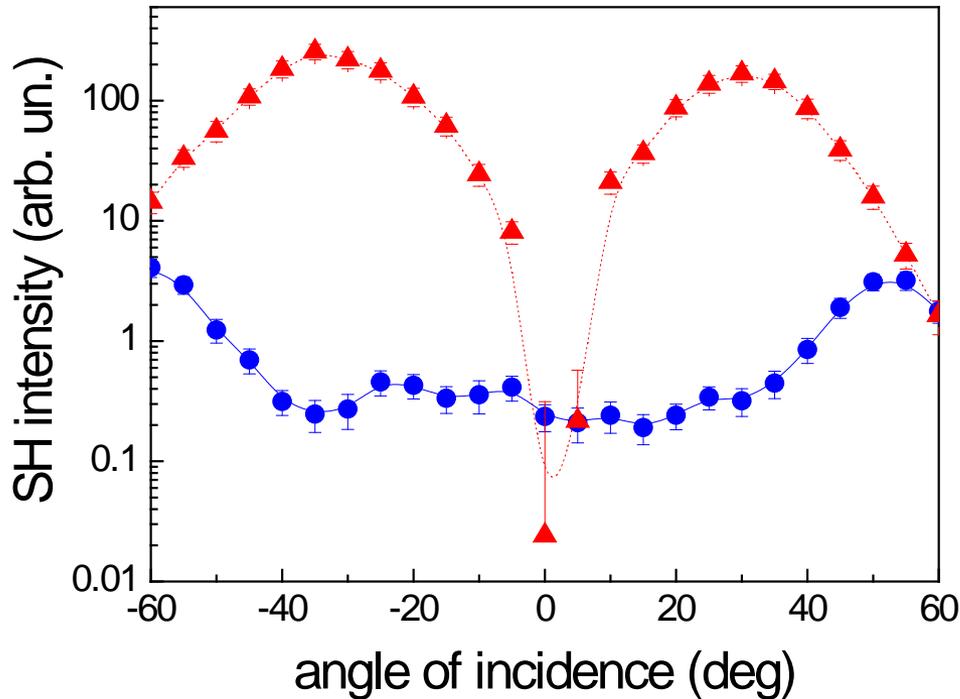
in glycerol ($n = 1.44$)



Управление эффективностью генерации второй гармоники путем заполнения пор диэлектрическими жидкостями

$$ГВГ : \omega = 2\omega_0$$

$$\lambda_0 = 1,064 \text{ мкм}$$



Вследствие реализации условий фазового синхронизма для определенных углов падения света в пористых матрицах, заполненных молекулами воздуха или другим веществом (глицерином), интенсивность сигнала второй гармоники возрастает

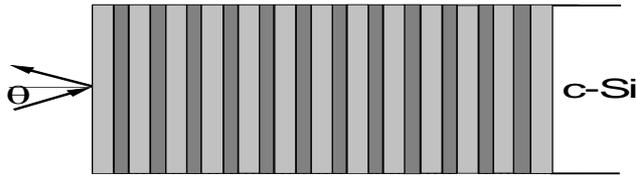
Поры заполнены:



глицерином

воздухом

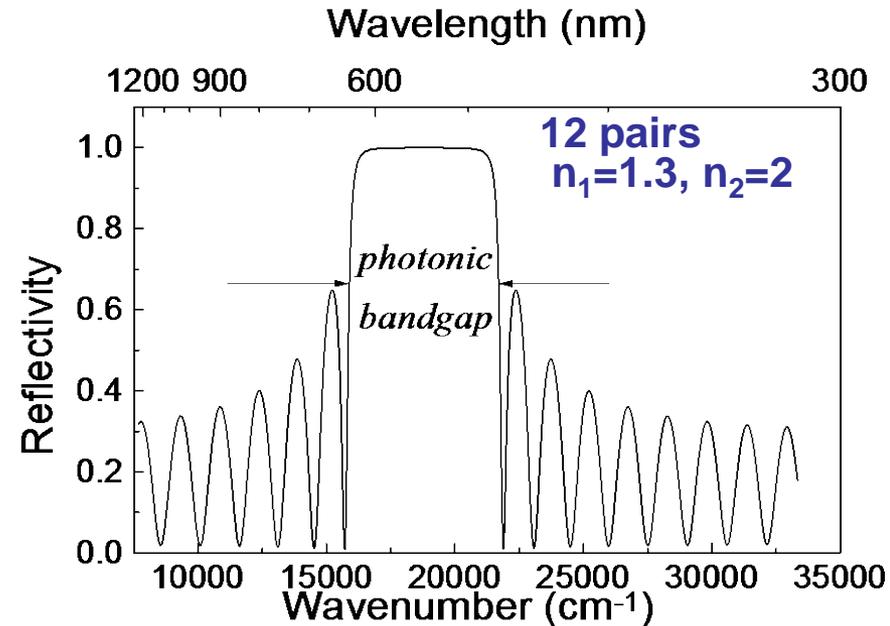
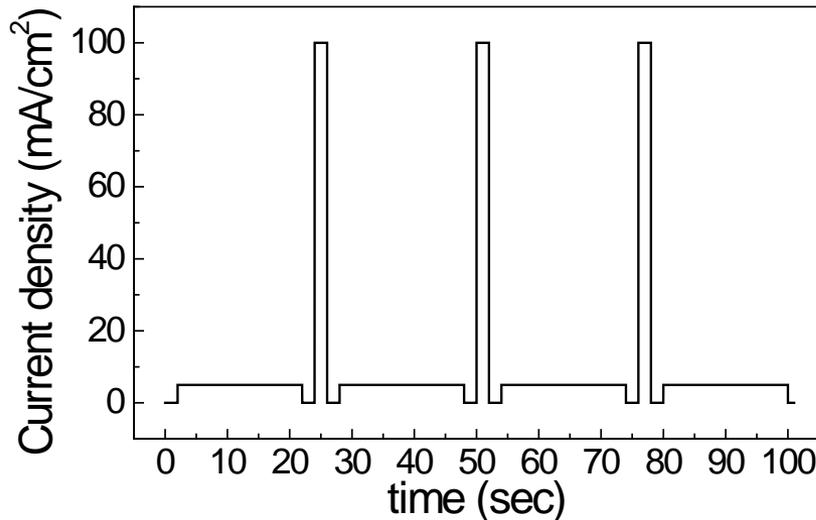
Одномерные фотонные кристаллы на основе пористого кремния как оптическая среда с заданной дисперсией



Идеальное брэгговское зеркало

Условие Брэгга:

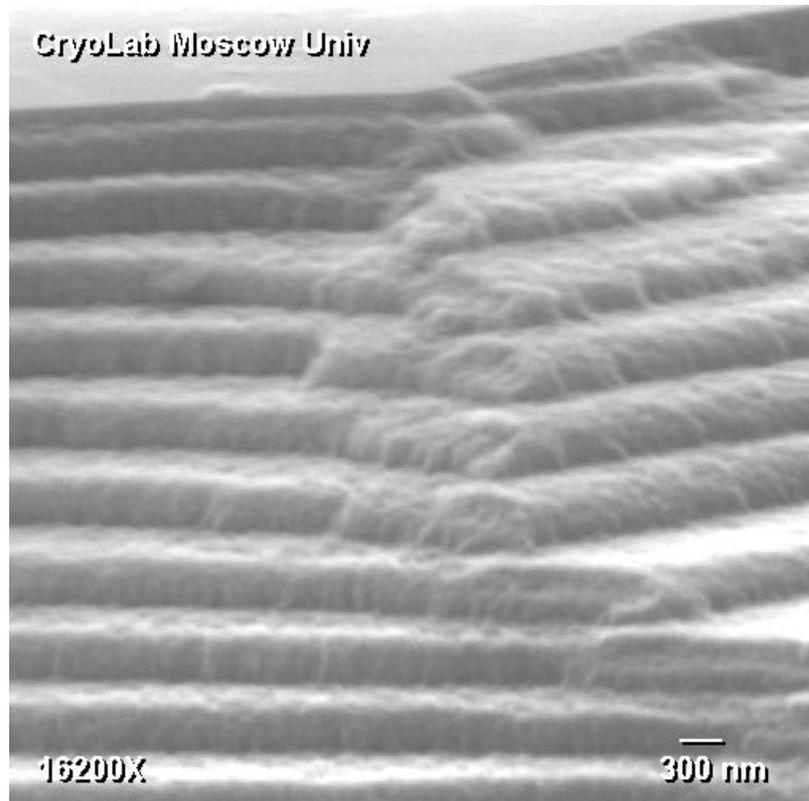
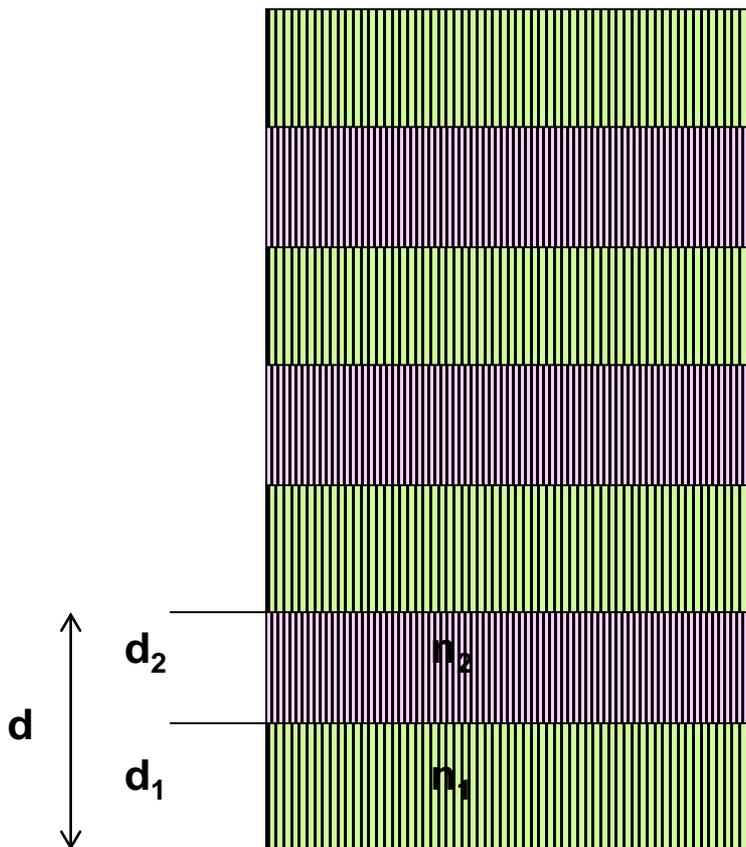
$$n_1 d_1 + n_2 d_2 = \lambda/2$$



Реальные одномерные фотонные кристаллы на основе пористого кремния

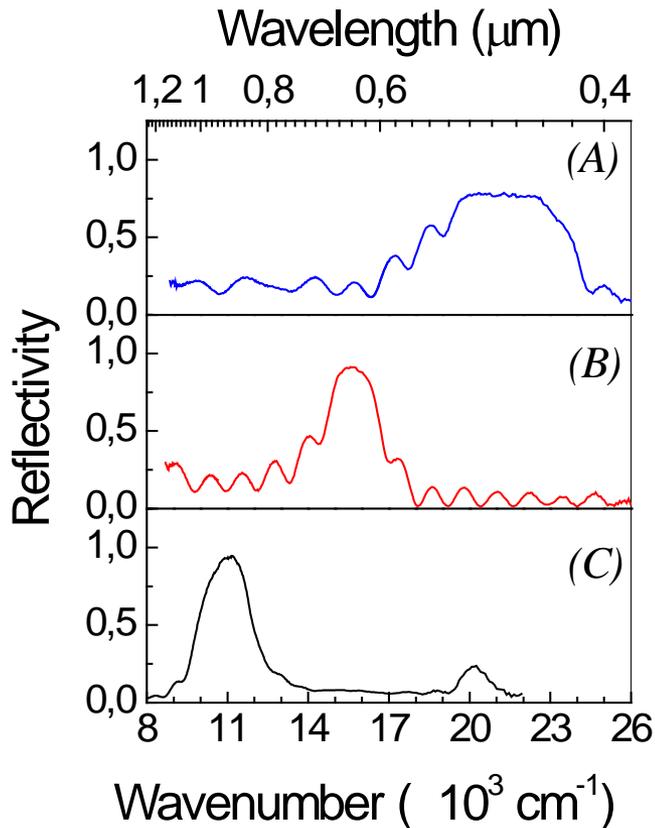
Положение фотонных запрещенных зон зависит от толщин слоев и показателей преломления:

$$2(d_1 n_1 + d_2 n_2) = m\lambda, \quad m = 1, 2, 3, \dots$$



Общий вид бокового скола 1D-фотонного кристалла из слоев пористого кремния В сканирующем электронном микроскопе

Спектры отражения и дисперсия эффективного показателя преломления 1D-фотонных кристаллов на основе слоев пористого кремния



Положение фотонной запрещенной зоны зависит от периода структуры, который различен для показанных выше образцов А, В и С.

При достаточно слабом поглощении, когда $\tilde{n} \approx n$ для коэффициента отражения при нормальном падении можно записать:

$$R = \left(\frac{n_{eff} - 1}{n_{eff} + 1} \right)^2$$

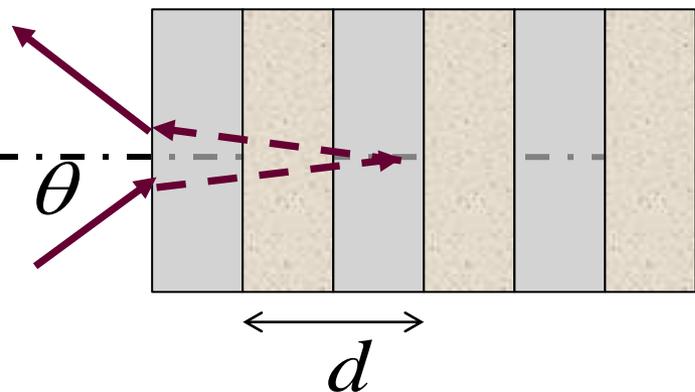
Эффективный показатель преломления для области вне фотонной запрещенной зоны :

$$n_{eff} = \frac{1 + \sqrt{R}}{1 - \sqrt{R}}$$

Величина волнового вектора будет зависеть как от частоты света (частотная дисперсия), так и от направления :

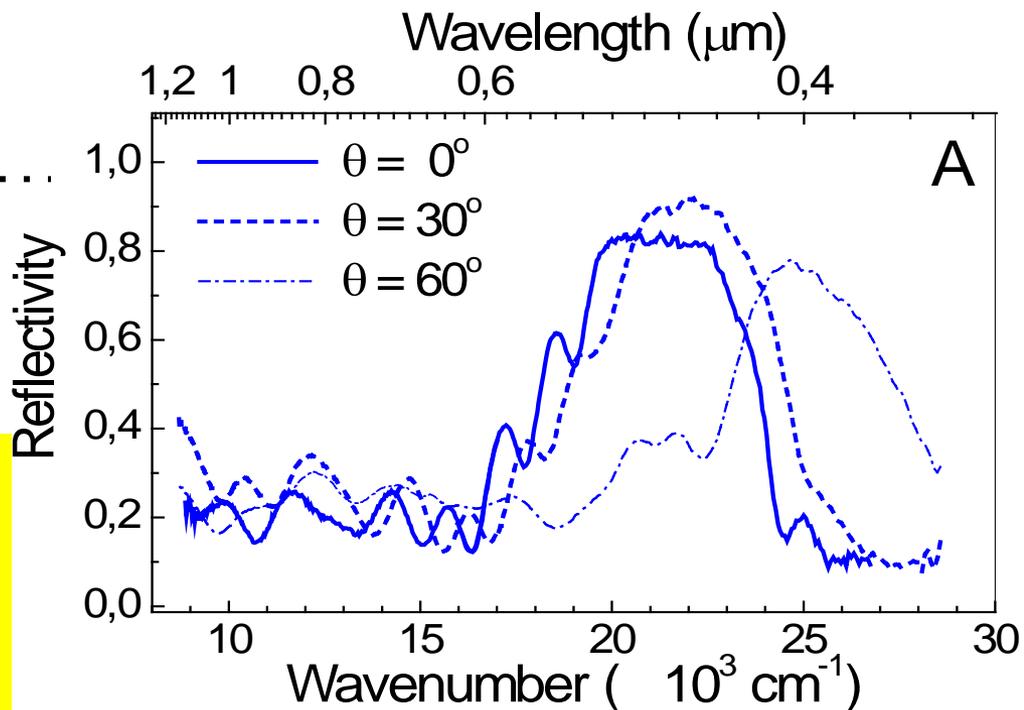
$$k = \frac{\omega}{c} n_{eff}$$

Угловые зависимости спектров отражения одномерных фотонных кристаллов на основе пористого кремния



При увеличении угла падения уменьшается проекция периода структуры на направления светового луча, что приводит к сдвигу фотонной запрещенной зоны в коротковолновую область спектра.

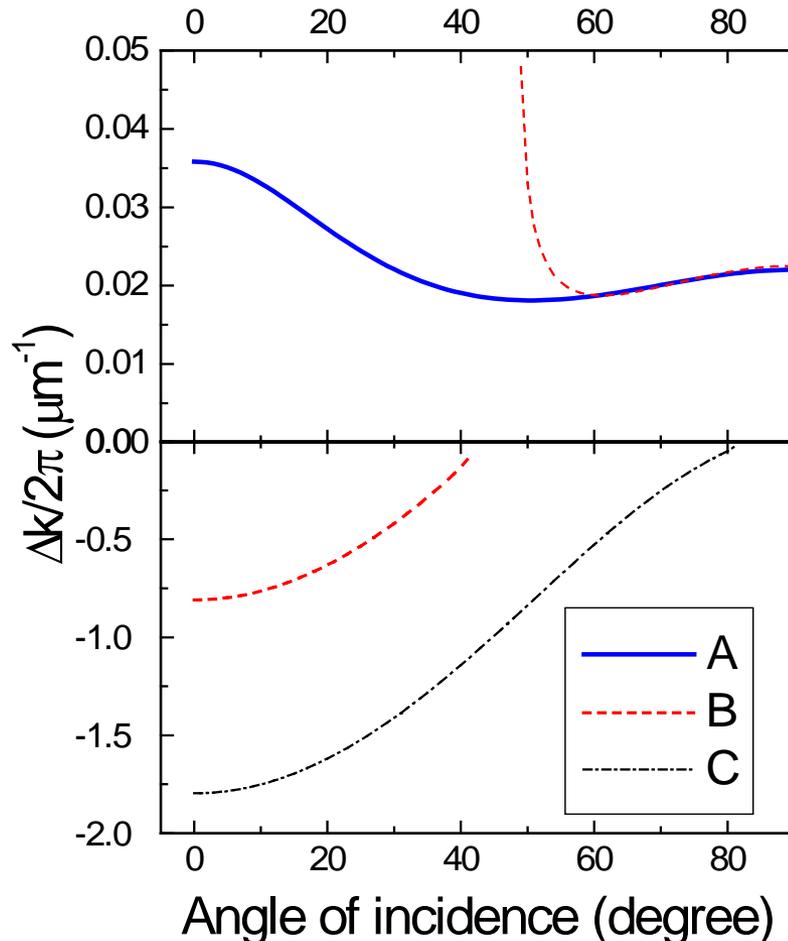
Изменяя угол падения излучения можно управлять дисперсией и значением величины волнового вектора.



$$k(\theta) = \frac{\omega}{c} n_{eff}(\theta) = \frac{\omega}{c} \frac{1 + \sqrt{R(\theta)}}{1 - \sqrt{R(\theta)}}$$

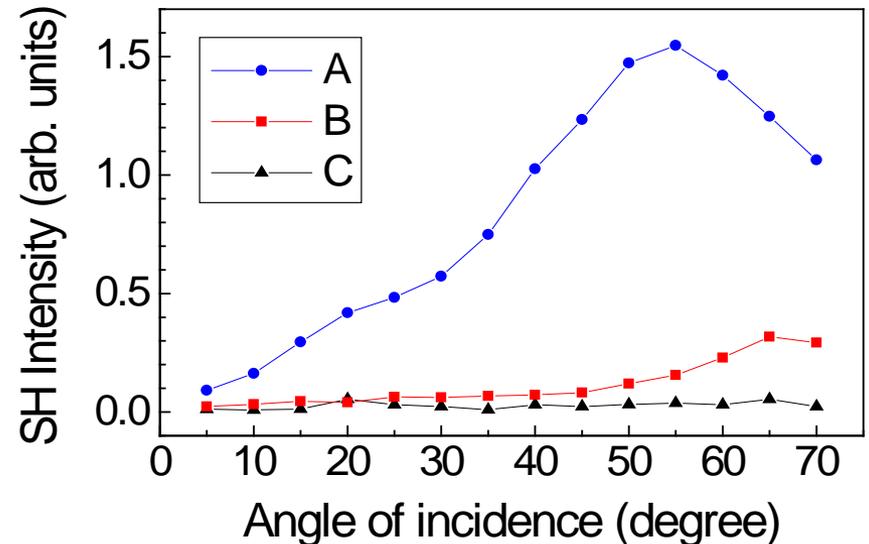
Реализация фазового синхронизма в одномерных фотонных кристаллах для ГВГ

Зависимость фазовой расстройки от угла падения



$$|\Delta\vec{k}| = |2\vec{k}_1 - \vec{k}_2|$$

Зависимость интенсивности сигнала второй гармоники от угла падения на образец



Наблюдается рост сигнала второй гармоники при углах падения, соответствующих минимуму фазовой расстройки

Вынужденное комбинационное рассеяние света (ВКР)

Описывается кубической нелинейностью на следующих частотах:

$$\chi^{(3)}(\omega_{S,A}; \omega_{S,A}, \omega, -\omega)$$

$$\omega_{S,A} = \omega \mp \Omega$$

В частности, кубическая поляризация на стоксовой частоте имеет следующий вид. Затем в приближении одной существенной компоненты тензора получим:

$$\vec{P}^{(3)}(\omega_S) = \hat{\chi}^{(3)} \vec{E}(\omega_S) \vec{E}(\omega) \vec{E}(-\omega)$$

$$P^{(3)}(\omega_S) \approx \chi^{(3)} E(\omega_S) |E(\omega)|^2$$

Волновое уравнение с нелинейным источником:

$$\Delta \vec{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} - \frac{4\pi}{c} \frac{\partial^2 \vec{P}^{(1)}}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c} \frac{\partial^2 \vec{P}^{(3)}}{\partial t^2}$$

Ищем решение в виде:

$$E_S(z, t) = E_S(z) \exp[i\omega_S(t - k_S z)]$$

Для одномерной задачи получим экспоненциальный рост сигнала ВКР:

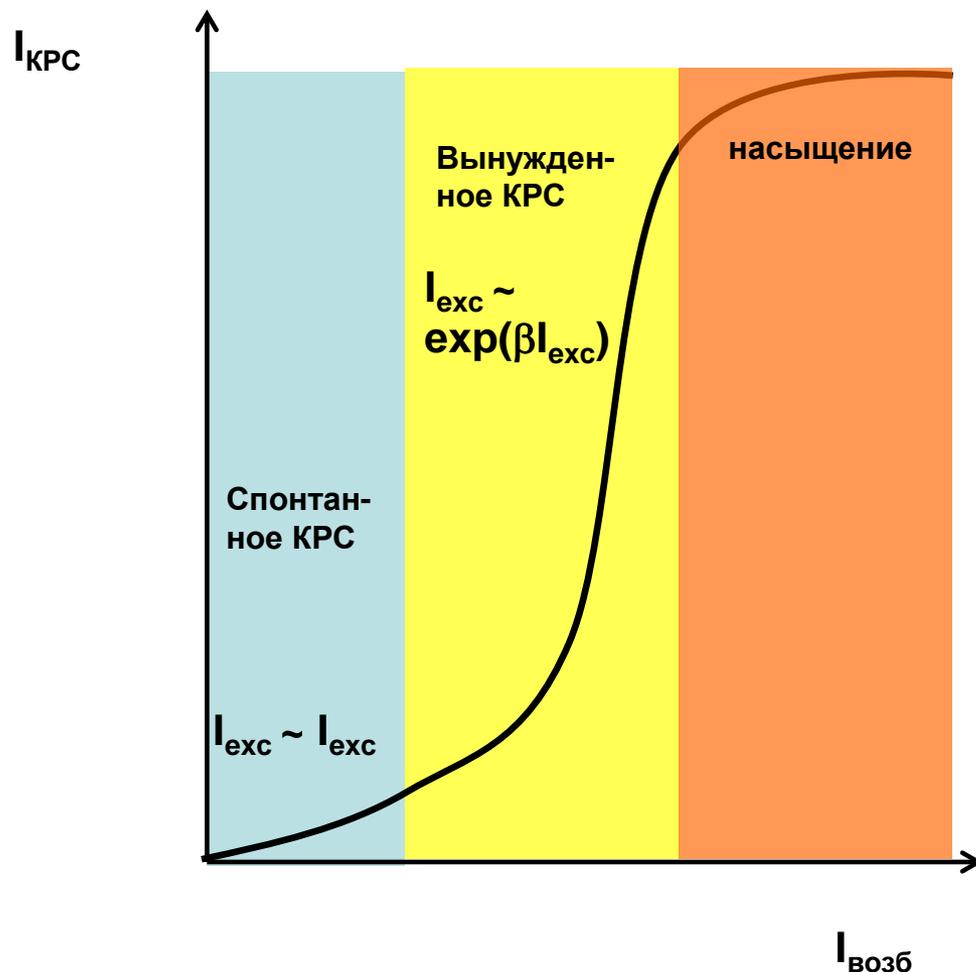
$$I_S \approx I_S(0) \exp(gz)$$

$$g \propto \text{Im} \chi^{(3)} I_\omega$$

Если $gz \ll 1 \Rightarrow$ спонтанное КРС:

$$I_S(z) \approx I_{S0}(1 + gz + \dots) \approx I_{S0} + I_{S0} |\text{Im} \chi^{(3)}| I_\omega z$$

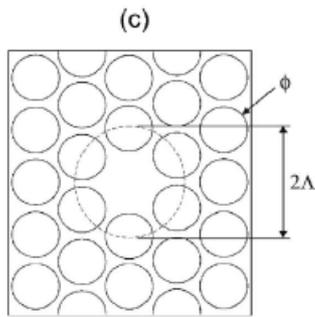
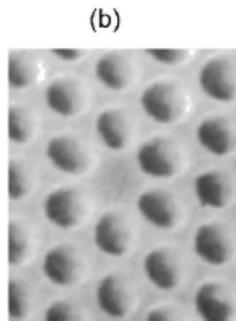
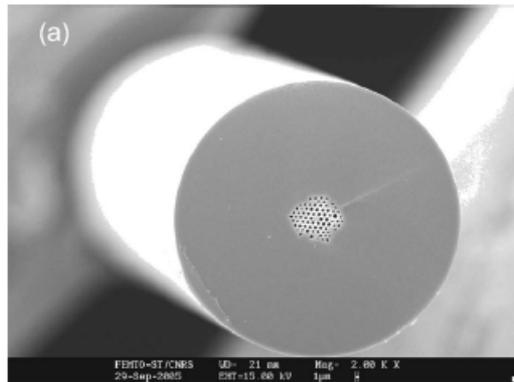
Спонтанное и вынужденное КРС



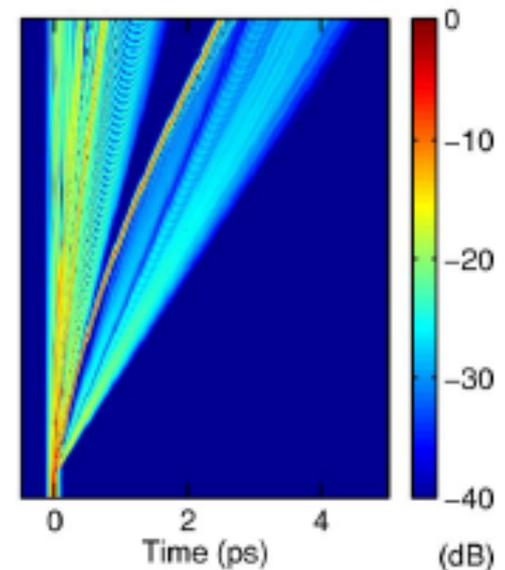
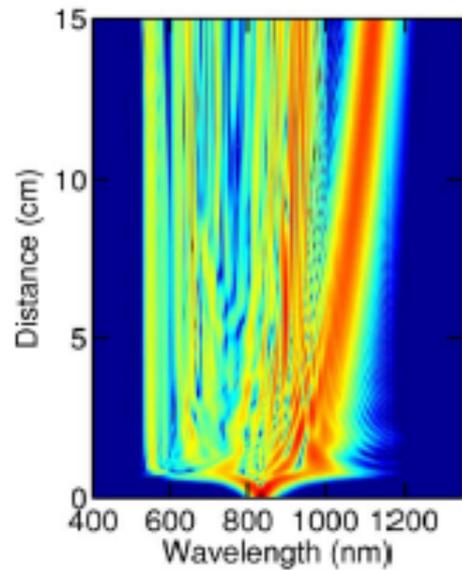
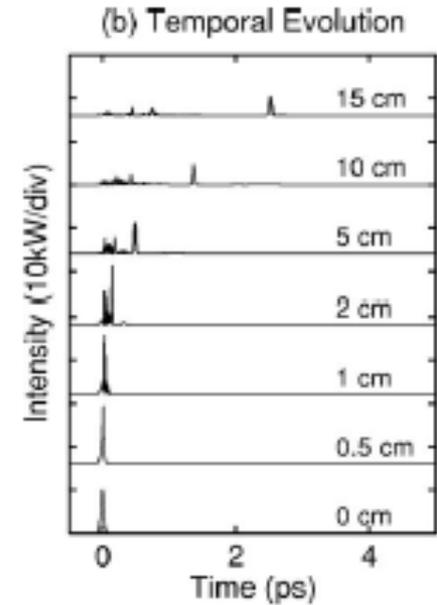
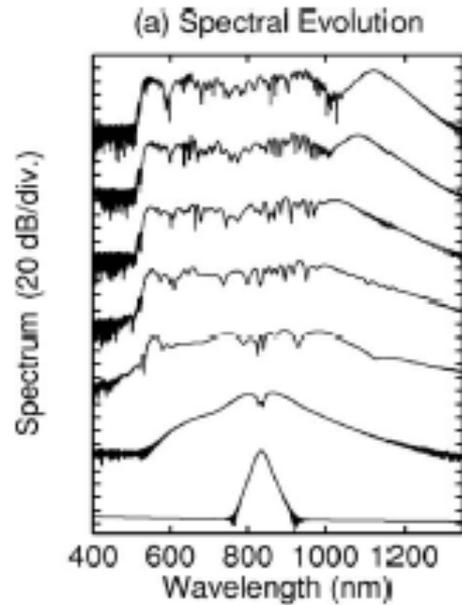
Экспоненциальный рост сигнала ВКР с ростом интенсивности накачки и длины оптического пути может быть использовано для усиления света . Такие устройства иногда называются **Рамановскими лазерами** .

ВКР в дырчатых волноводах

J. M. Dudley et al. Rev. Mod. Phys. v. 47 (2006)



3 мкм



Широкий спектральный диапазон большой кубической нелинейности приводит в результате ВКР к генерации так называемого суперконтинуума

Контрольные вопросы к Лекции 20:

- Что описывает нелинейная поляризуемость среды?
- Возможен ли фазовый синхронизм при генерации оптических гармоник в изотропной среде с нормальной дисперсией?
- Каковы причины роста оптических нелинейностей в нанокompозитах?
- Как может реализовываться фазовый синхронизм в анизотропных нанокompозитах?
- Как развивается ВКР и к чему это может приводить в наноструктурах?