Оптика твердого тела и наноструктур

Гончар Кирилл Александрович

Тимошенко Виктор Юрьевич

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

Лекция 11. Нелинейные оптические явления в твердотельных системах

Нелинейная поляризуемость среды. Генерация гармоник, смешение частот и оптическое выпрямление. Правила Клеймана. Генерация второй гармоники «на отражение» и «на прохождение». Фазовый синхронизм. Реализация фазового синхронизма в анизотропных кристаллах и средах с аномальной дисперсией. Эффективность преобразования излучений во вторую гармонику с учетом обеднения накачки.

Вынужденное комбинационное рассеяние света. Рамановский лазер.

Линейная поляризуемость среды

В линейном приближении поляризация единицы объема вещества пропорциональна напряженности действующего электрического поля в световой волне:

$$\vec{P}^{(1)} = \chi^{(1)} \vec{E}$$

где $\chi^{(1)}$ – линейная оптическая восприимчивость.

В общем случае – *тензор 2-го ранга*, а компоненты вектора поляризации имеют вид:

$$P_i^{(1)} = \chi_{ij}^{(1)} E_j \qquad i,j = x,y,z$$

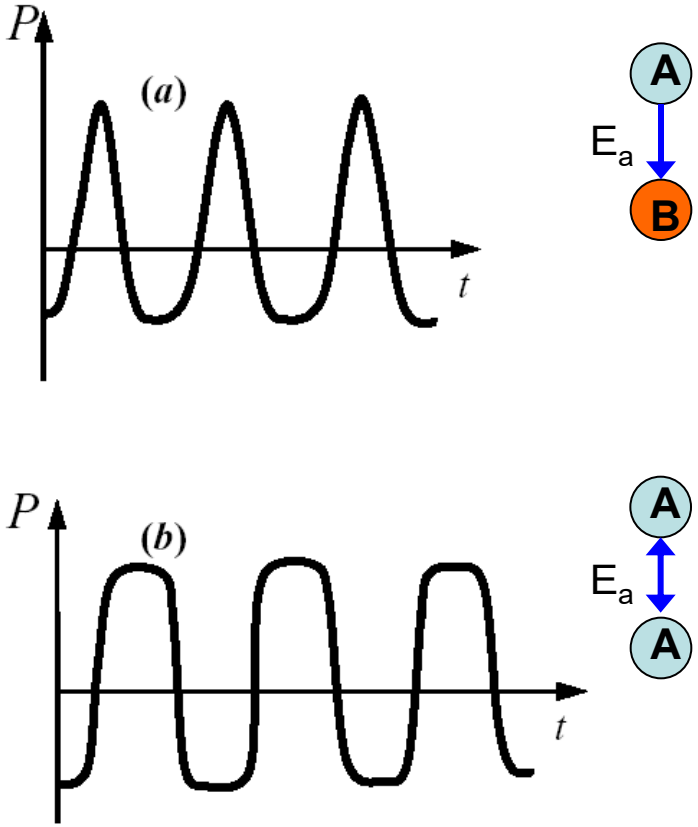
Здесь и далее используется система единиц СГСЕ, т.е.

$$\vec{D} = \vec{E} + 4\pi\vec{P}$$

Поляризуемость сред с различной ионностью связи в сильных световых полях

Напряженность электрического поля внутри атома составляет E_a~10^9 В/см. Поэтому, когда внешнее поле имеет большее значение , то поляризуемость среды насыщается.

Если вещество уже имеет определенную степень ионности связей между атомами (например, в полупроводниковых соединениях A^3B^5, A^2B^6 и др.), то поляризация под внешним воздействием насыщается при меньших значениях в направлении уже имеющейся естественной поляризации.



(a) - искажения гармонического отклика в в ионных соединениях соответствуют появлению постоянной составляющей (оптическое выпрямление) и генерации второй гармоники (ГВГ). Данный эффект также возникает на поверхности и границах, что делает его важным в наноструктурах и нанокристаллах.

(b) - для ковалентных кристаллов (Ge, Si и др.) зависимость от времени остается симметричной , что соответствует генерации нечетных гармоник.

Нелинейная поляризуемость среды

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

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

Где величина нелинейная поляризации зависит от нелинейных поляризуемостей :

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

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

$$P_i^{(3)} = \chi_{ijkl}^{(2)} E_j E_j E_j$$

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

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

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

Разложение поляризации по степеням напряженности электрического поля:

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

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:

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

$$\vec{E} \to -\vec{E}$$

$$\vec{P} \to -\vec{P}$$

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

В центросиммеричных средах (Si,Ge, C-алмаз, аморфные вещества, газы и жидкости)

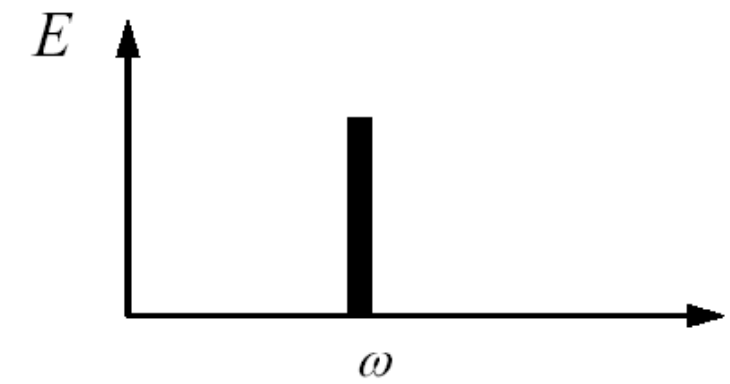
$$\chi^{(2)} = 0$$

$$\chi^{(n)} = 0,\ n = 2,4,6,....$$

Для любой среды компоненты тензора обладают взаимосвязью, следующей, что задается так называемыми *правилами Клеймана* :

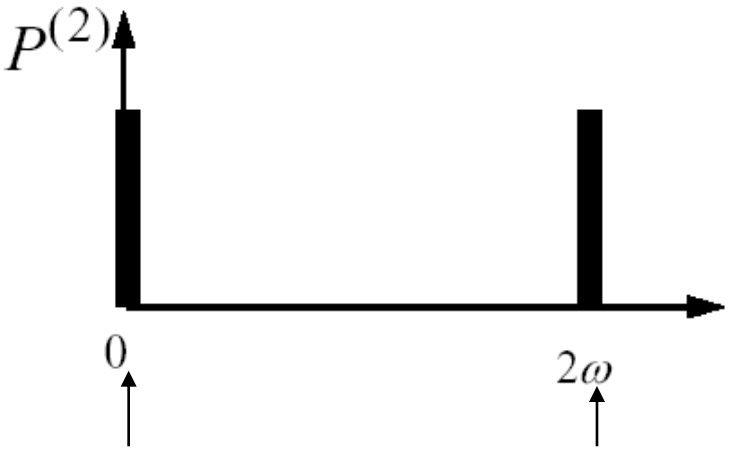
$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega, \omega_1, \omega_2) = \chi_{ikj}^{(2)}(\omega, \omega_2, \omega_1)$$

Спектры световой волны и квадратичной поляризации нецентросимметричной среды



$$E_x = E\cos(\omega t)$$

$$P_x^{(2)} = \chi_{xxx}^{(2)} E_x E_x$$



Оптическое выпрямление

Генерация второй гармоники (ГВГ)

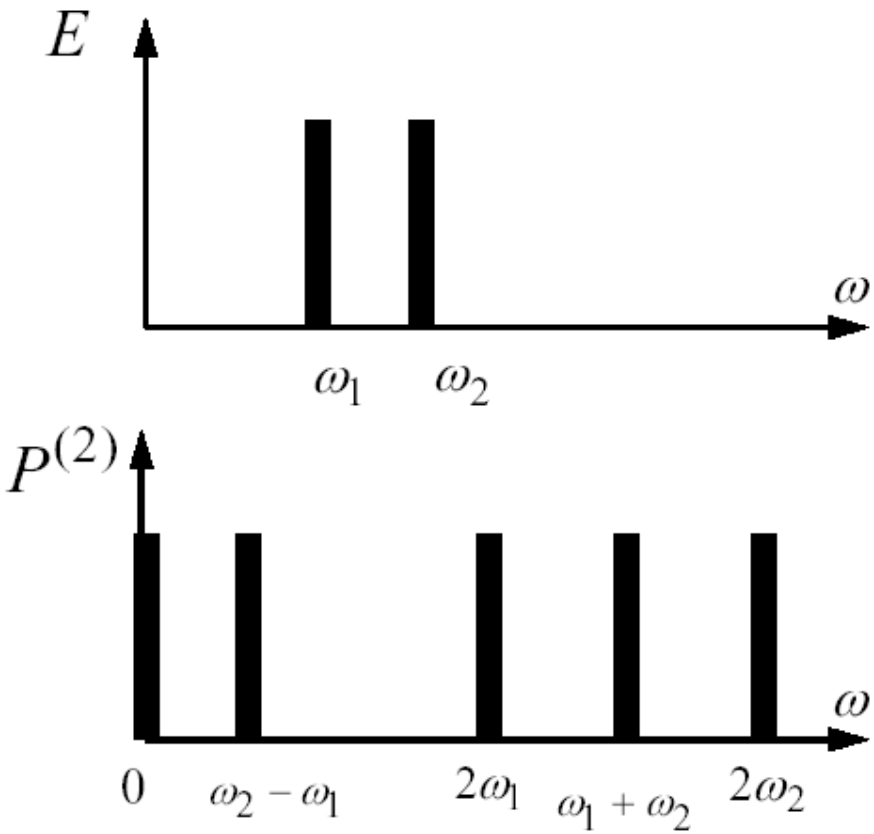
$$P_x^{(2)} = \chi_{xxx}^{(2)} E^2 \cos^2(\omega t) =$$

$$= \frac{1}{2}\chi_{xxx}^{(2)} E^2 \left[\cos(2\omega t) + 1\right]$$

Спектр частот света и квадратичной поляризации среды при распространении в среде двух волн

$$E_x = E_1 \cos\left[\omega_1\left(t - \frac{\tilde{n}_1}{c} z\right)\right]$$

$$E_y = E_2 \cos\left[\omega_2\left(t - \frac{\tilde{n}_2}{c} z\right)\right]$$



$$P_x^{(2)} = \chi_{xxy}^{(2)} E_x E_y + \chi_{xxx}^{(2)} E_x^2 + \chi_{xyy}^{(2)} E_y^2 + \chi_{xyx}^{(2)} E_y E_x$$

Возможные виды нелинейно-оптических явлений

При **нелинейности 2-го порядка** возможны следующие нелинейно-оптические эффекты:

- **генерация второй гармоники (ГВГ):** $\omega=2\omega_0$
- **оптическое выпрямление:** $\omega=\omega_0-\omega_0=0$
- **параметрическое смешение частот:** $\omega=\omega_1\pm\omega_2$
- **линейный электрооптический эффект (эффект Поккельса):** $\omega=\omega+0$

Важными частными случаем **нелинейно-оптического отклика 3-го порядка** являются:

- **генерация третьей гармоники:** $\omega=3\omega_0$
- **параметрическое смешение частот:** $\omega=\omega_1\pm\omega_2\pm\omega_3$
- **самовоздействие, например, самофокусировка:** $\omega=\omega-\omega+\omega$
- **квадратичный электрооптический эффект (эффект Керра):** $\omega=\omega+0+0$
- **двухфотонное поглощение,**
- **комбинационное (Рамановское) рассеяние света, в том числе, вынужденное комбинационное рассеяние.**

Волновое уравнение с нелинейным источником

Уравнения Максвелла:

$$\begin{cases} \mathrm{rot}\,\vec{E} = -\dfrac{1}{c}\dfrac{\partial \vec{B}}{\partial t} \\ \mathrm{rot}\,\vec{H} = \dfrac{4\pi}{c}\vec{j} + \dfrac{1}{c}\dfrac{\partial \vec{D}}{\partial t} \\ \mathrm{div}\,\vec{B} = 0 \\ \mathrm{div}\,\vec{D} = 4\pi\rho \end{cases}$$

Материальные уравнения:

$$\vec{B} = \mu\vec{H}$$

$$\vec{D} = \vec{E} + 4\pi\vec{P} =$$

$$= \vec{E} + 4\pi\vec{P}^{(1)} + 4\pi\vec{P}^{NL}$$

В оптике полупроводников и диэлектриков обычно:

$$\mu = 1,\ \rho = 0,\ j = 0$$

Волновое уравнение :

$$\Delta\vec{E} = \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2\vec{E}}{\partial t^2} + \frac{4\pi}{c}\frac{\partial^2\vec{D}}{\partial t^2}$$

Волновое уравнение для ГВГ

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

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

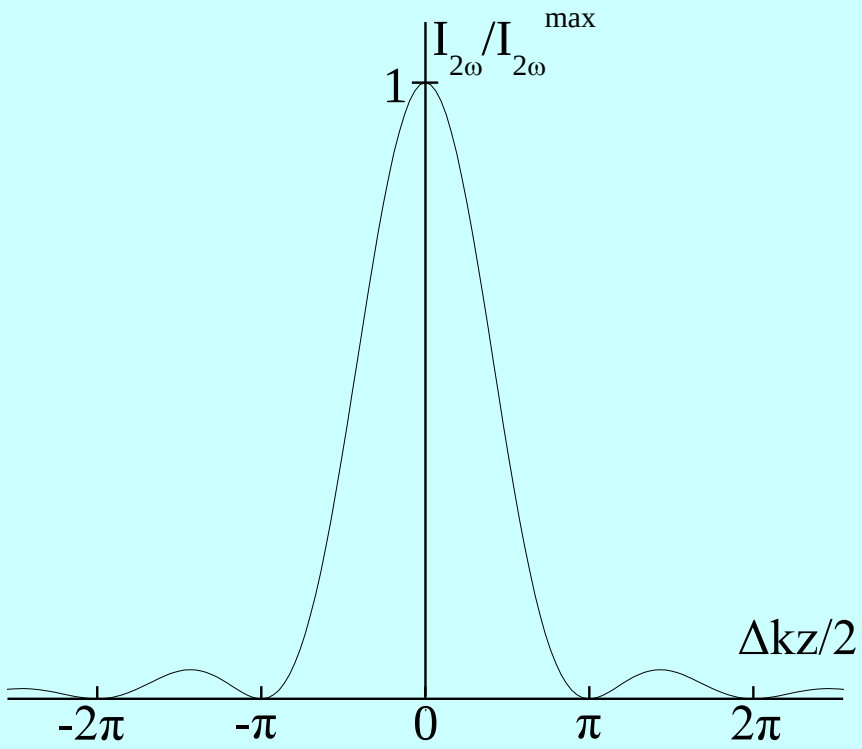
$$I_{2\omega} \propto \frac{\left|\chi^{(2)} I_\omega\right|^2}{n_{2\omega}^2} \cdot \frac{\sin^2 \dfrac{\omega(n_\omega - n_{2\omega})z}{c}}{\left[\dfrac{\omega(n_\omega - n_{2\omega})}{c}\right]^2} = \frac{\left|\chi^{(2)} I_\omega\right|^2}{n_{2\omega}^2} z^2 \mathrm{sinc}^2\left(\tfrac{1}{2}\Delta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

Для нецентро-симметричной среды: $\chi^{(2)} \neq 0 \Rightarrow$ $I_{2\omega} \propto \left|\chi^{(2)}\right|^2 I_\omega{}^2 z^2 \mathrm{sinc}^2\left(\Delta kz/2\right)$

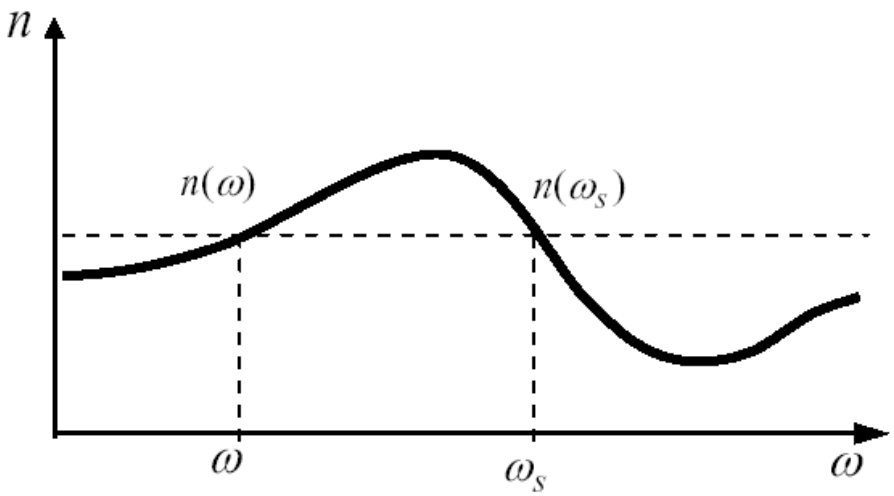
Расстройка волновых векторов: $\Delta k = k_{2\omega} - k_\omega = \dfrac{2\omega(n_\omega - n_{2\omega})}{c}$

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:

$$n^e_{2\omega} = n^o_\omega$$

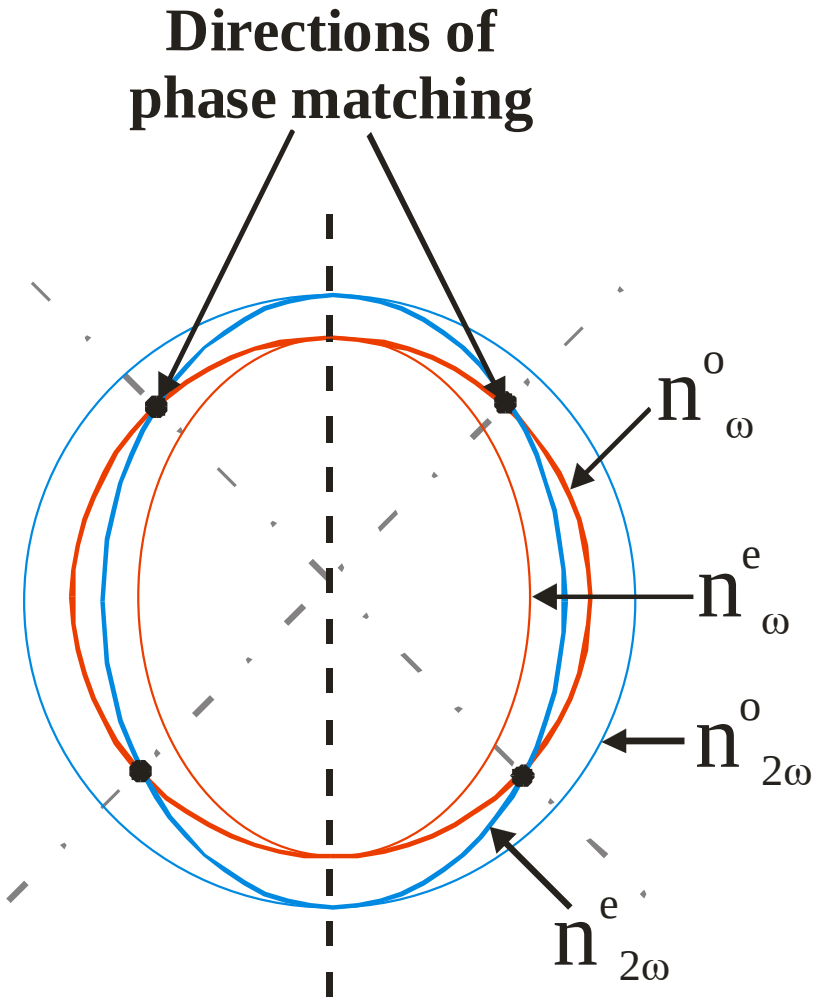
или $$n^e_{2\omega} = \frac{1}{2}\left(n^o_\omega + n^e_\omega\right)$$

Фазовый синхронизм в отрицательном одноосном кристалле

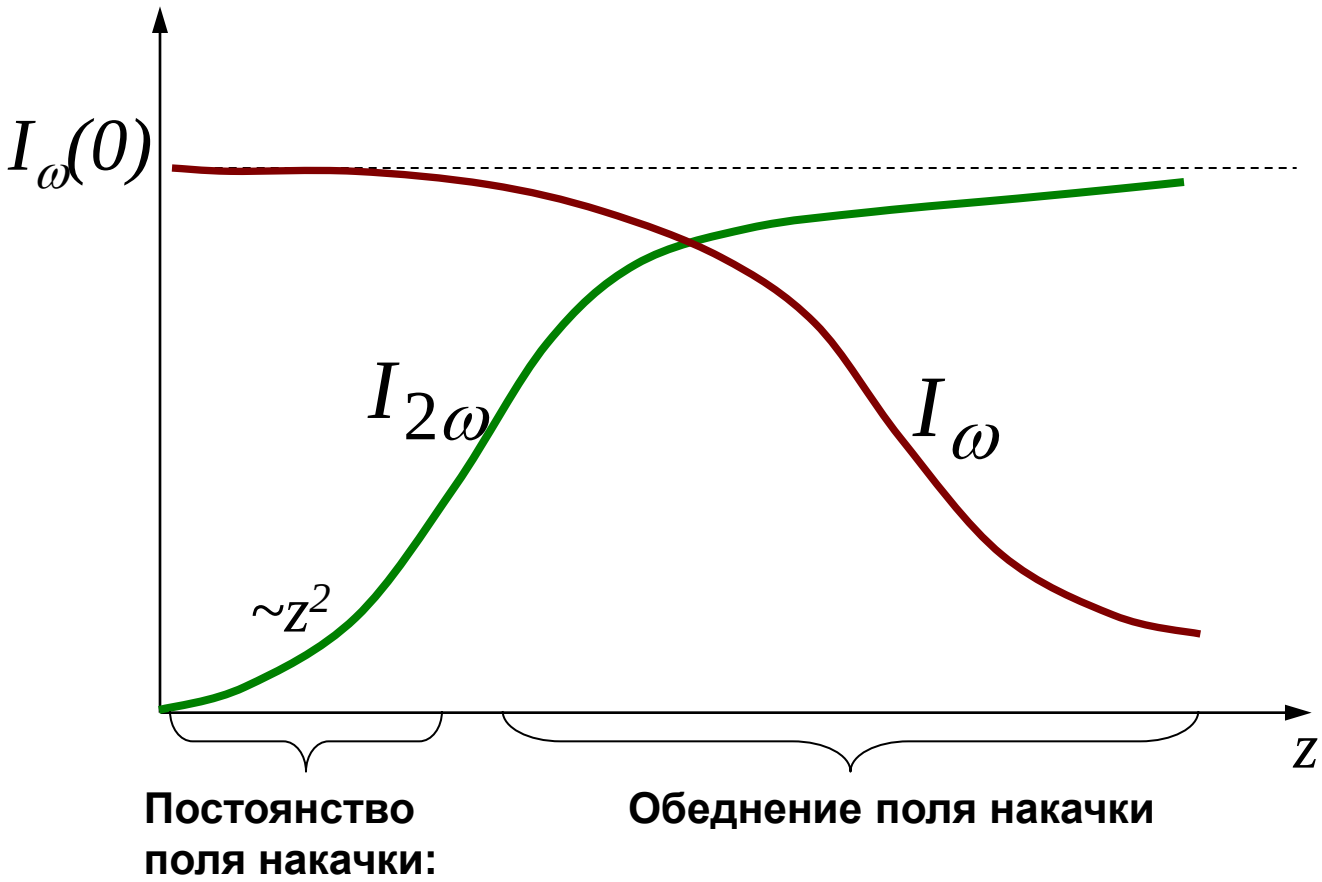
$$\Delta k = 2k_{\omega} - k_{2\omega} = 0$$

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

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



Перекачка энергии из основной во вторую гармонику в условиях фазового синхронизма



$$\Delta k = 0, \quad I_\omega = const$$

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

Вынужденное комбинационное рассеяние света (ВКР)

Описывается кубичной нелинейностью на следующих частотах:

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

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

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

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

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

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:

$$E_s(z,t)=E_s(z)\exp\left[i\omega_s\left(t-k_s z\right)\right]$$

Для одномерной задачи получим экспоненциальный рост сигнала ВКР:

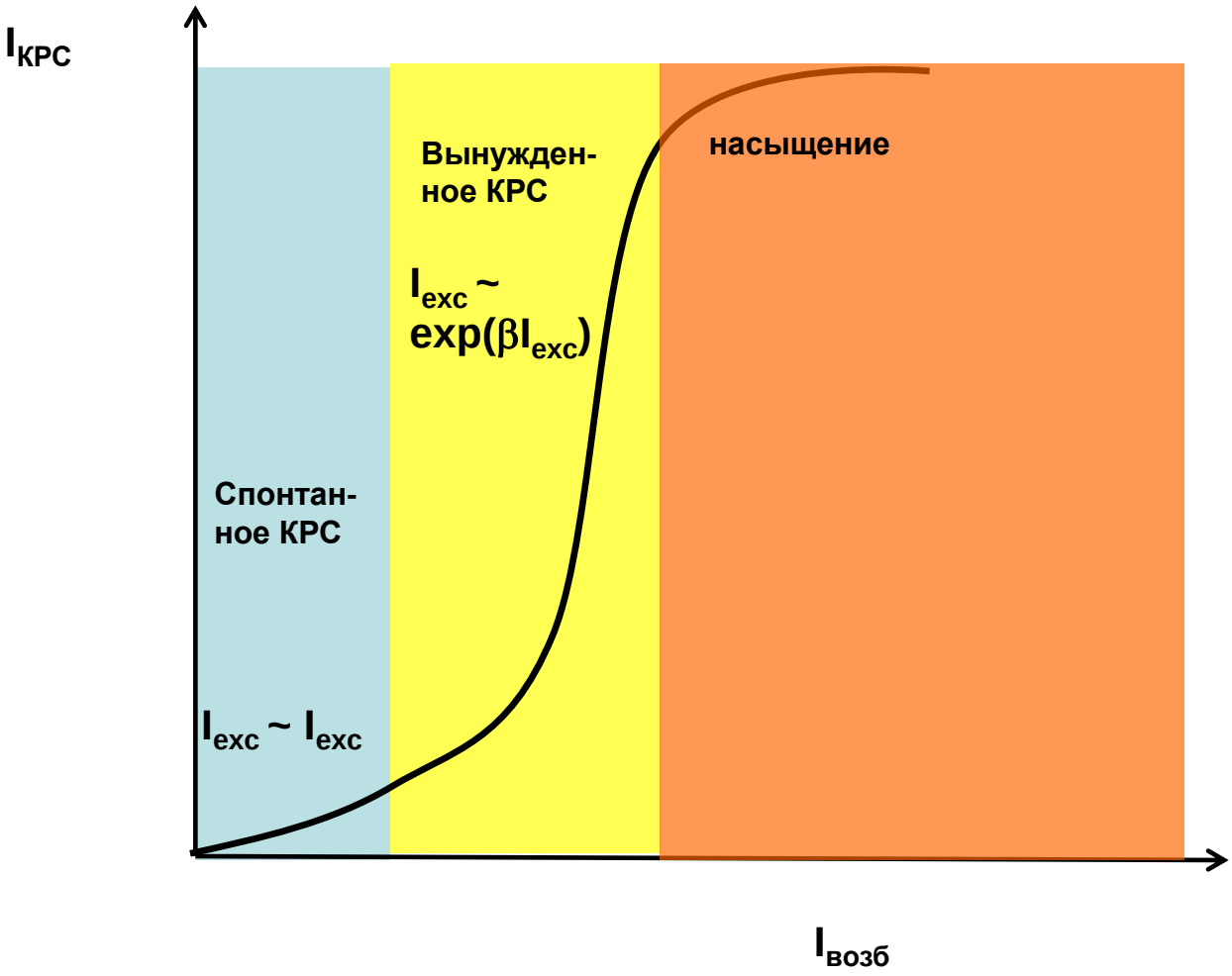
$$I_S\approx I_S(0)\exp(gz)$$

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

Если $gz<<1$ ⇨ ***спонтанное КРС***:

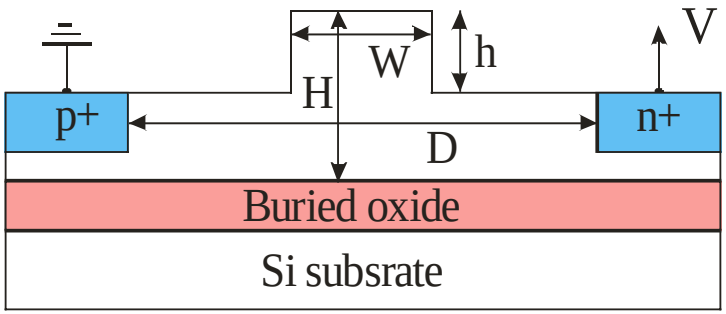
$$I_S\approx I_S(0)(1+gz)\approx\left|\operatorname{Im}\chi^{(3)}\right|I_\omega$$

Спонтанное и вынужденное КРС

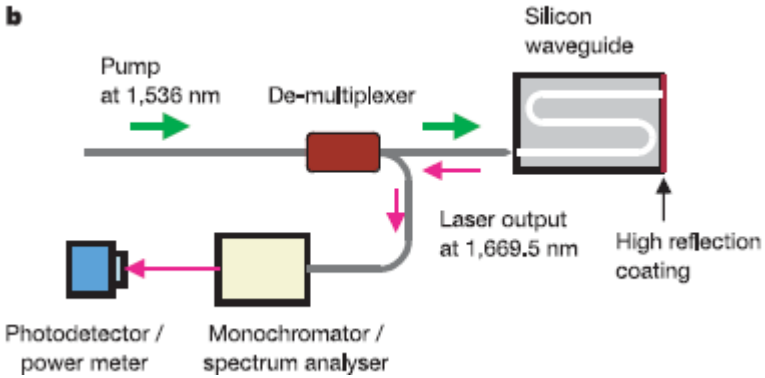


Рамановский лазер на кремнии

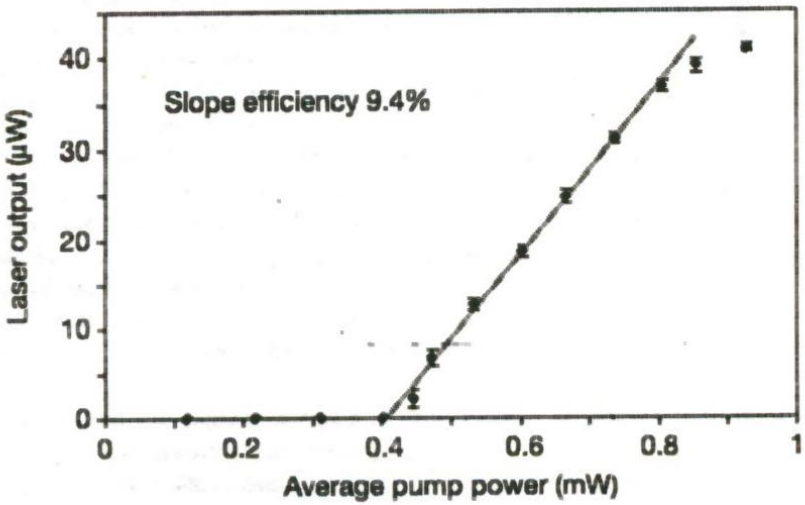
O. Boyraz, B. Jalali, *Opt.Express* 12 (21), p. 5269 (2004)
H. Rong et.al., *Nature* 433, p. 292 (2005)

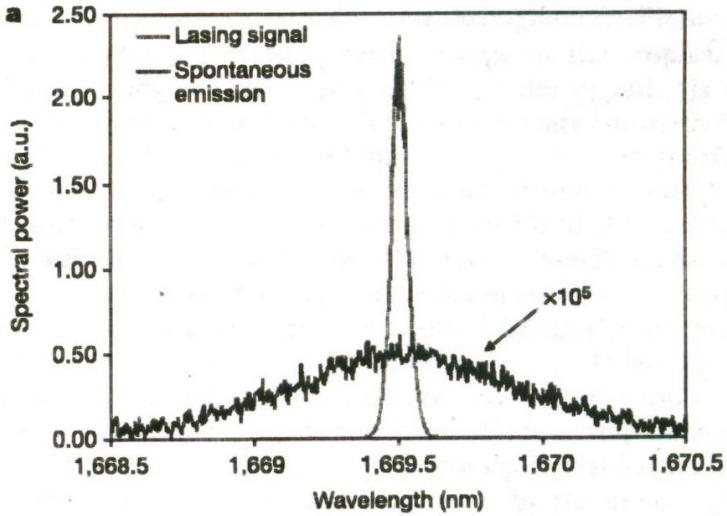


W=1.5μm
H=1.55μm
h=0.7μm
L= 4.8 cm



λ_p=1540 (1536) нм → λ_s=1675 (1669.5) нм





Итоги Лекции 11:

- Нелинейная поляризуемость среды описывает оклик при высокой напряженности электрического поля
- Роль симметрии среды
- Правила Клеймана
- Классификация нелинейно-оптических процессов второго и третьего порядков
- Фазовый синхронизм при генерации оптических гармоник
- Вынужденное комбинационное рассеяние
- Рамановский лазер