

Министерство образования и науки Российской Федерации

ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ БЮДЖЕТНОЕ
ОБРАЗОВАТЕЛЬНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ
ВЫСШЕГО ПРОФЕССИОНАЛЬНОГО ОБРАЗОВАНИЯ
"САРАТОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ
ИМЕНИ Н.Г. ЧЕРНЫШЕВСКОГО"

Ю.С. Кузюткина, Е.А. Романова, А.И. Конюхов

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ НЕЛИНЕЙНЫХ СВОЙСТВ ОПТИЧЕСКИХ СТЕКОЛ

Учебно-методическое пособие для студентов физического факультета,
обучающихся по специальности 010701 "Физика"

САРАТОВ 2013

Введение

В результате появления мощных источников когерентного светового излучения (лазеров) возникло новое научное направление, а именно - исследование взаимодействия мощного лазерного излучения с веществом.

Оптические эффекты, которые зависят от интенсивности излучения, называют нелинейными, а область оптики, изучающую нелинейные оптические эффекты - нелинейной оптикой.

До появления лазеров интенсивность световых источников (тепловых и газоразрядных) была слишком мала и, как следствие, большинство наблюдаемых оптических эффектов не зависело от интенсивности излучения. Лазеры позволяют получать световые волны с напряженностью электрического поля $10^7 - 10^9$ В/см и выше, что сравнимо с напряженностью электрических полей, которые удерживают частицы вещества в атомах и молекулах.

Для достижения больших значений интенсивностей используются сверхкороткие импульсы. Такие импульсы генерируются за счет синхронизации мод в лазерах [Конюхов А.И., Романова Е.А., Мельников Л.А., Современная фотоника, Изд-во СГУ]. Средняя энергия в резонаторе лазера W определяется подводимой энергией и потерями в резонаторе. Пиковая интенсивность пропорциональна W/τ , где τ - длительность импульса, генерируемого лазером в режиме синхронизации мод. Поэтому одной из задач лазерной физики является генерация импульсов с минимальной длительностью. Для импульсов с длительностью порядка 10^{-15} с, пиковая интенсивность может достигать значений ТВт/см². В видимом диапазоне длин волн минимальная длительность импульса ограничена частотой осцилляций электромагнитной волны.

Быстрое развитие в конце XX века оптики сверхкоротких импульсов, волоконной и интегральной оптики привело к созданию новых оптических устройств передачи, обработки и хранения информации. В свою очередь, это послужило основанием для создания и экспериментальных исследований новых нелинейных оптических материалов с заданными свойствами. Актуальной проблемой в данной области является развитие измерительных методик для исследования как линейных, так и нелинейных оптических свойств новых оптических материалов.

В устройствах современной нелинейной оптики используются как аморфные, так и кристаллические материалы. В кристаллических диэлектриках или полупроводниках нелинейный отклик при воздействии мощного лазерного излучения проявляется в нелинейных эффектах второго, третьего и более высоких порядков. В аморфных диэлектриках или полупроводниках, и в частности, в оптических стеклах, наблюдаются нелинейные эффекты третьего порядка, поскольку нелинейная восприимчивость второго порядка в этих материалах равна нулю.

В данном пособии рассматриваются измерительные методики для изучения нелинейных свойств оптических стекол и эффекты, связанные с нелинейной восприимчивостью третьего порядка.

1. Нелинейно-оптические эффекты третьего порядка

1.1 Нелинейная поляризация диэлектрика

Поляризация диэлектрика $\vec{P}(r, t)$ имеет физический смысл электрического дипольного момента единицы объема вещества и является нелинейной функцией приложенного электрического поля $\vec{E}(r, t)$.

Отметим, что основными видами поляризации диэлектрика являются:

- электронная поляризация, обусловленная смещением электронных оболочек атомов относительно ядер (характерное время отклика составляет $10^{-16} - 10^{-14}$ с);
- ионная поляризация, вызванная относительным смещением положительных и отрицательных ионов в веществе (характерное время отклика $10^{-13} - 10^{-11}$ с);
- ориентировочная (иначе – вращательная) поляризация, обусловленная поворотом дипольных моментов молекул среды вдоль поля (характерное время отклика составляет $10^{-10} - 10^{-14}$ с).

Линейная поляризация изотропной среды связана с напряженностью электрического поля соотношением:

$$\vec{P} = (\chi_{ik}^{(1)})\vec{E}, \quad (1.1)$$

а проекция вектора поляризации на ось i есть

$$P_i = \sum_{k=1}^3 \chi_{ik}^{(1)} E_k, \quad (k=1,2,3), \quad (1.2)$$

где $\chi_{ik}^{(1)}$ - компоненты тензора линейной восприимчивости, который является симметричным и может быть приведен к диагональному виду:

$$(\chi_{ik}^{(1)}) = \begin{pmatrix} \chi_{11}^{(1)} & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{22}^{(1)} & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{33}^{(1)} \end{pmatrix}. \quad (1.3)$$

Для изотропных сред $\chi_{11}^{(1)} = \chi_{22}^{(1)} = \chi_{33}^{(1)} = \chi^{(1)}$. В этом случае соотношение (1.2) принимает вид:

$$\vec{P} = \chi^{(1)}\vec{E}. \quad (1.4)$$

В сильном поле тензор восприимчивости зависит от напряженности поля, и линейное материальное уравнение (1.3) становится нелинейным:

$$P_i = \sum_{k=1}^3 \chi_{ik}(E) E_k, \quad (k=1,2,3), \quad (1.5)$$

где нелинейные функции $\chi_{ik}(E)$ можно представить в виде ряда по степеням напряженности:

$$\chi_{ik}(E) = \chi_{ik}^{(1)} + \sum_{j=1}^3 \chi_{ikj}^{(2)} E_j + \sum_{j=1}^3 \sum_{m=1}^3 \chi_{ikjm}^{(3)} E_j E_m, \quad (1.6)$$

где $\chi_{ik}^{(1)}$, $\chi_{ikj}^{(2)}$, $\chi_{ikjm}^{(3)}$ - соответственно, компоненты тензоров линейной восприимчивости, квадратичной нелинейной восприимчивости и кубической нелинейной восприимчивости.

Характерные значения нелинейных восприимчивостей для диэлектриков составляют

$$\chi^{(1)} \approx 1, \chi^{(2)} \approx 10^{-10} \div 10^{-9} \text{ см} / \text{В}, \chi^{(3)} \approx 10^{-18} \div 10^{-19} \text{ см}^2 / \text{В}^2,$$

т.е. для типичных значений напряженности лазерного излучения ($<10^8$ В/см) нелинейные поправки в разложении (1.7) уменьшаются по величине.

$$\chi^{(1)} \gg \chi^{(2)} \gg \chi^{(3)}$$

Линейный или нелинейный отклик среды на внешнее световое поле характеризуется относительной величиной напряженности приложенного электрического поля по отношению к внутриатомным полям. Напряженность внутриатомных полей $E_{\text{ат}}$ составляет $\sim 10^{10}$ - 10^{11} В/м. Для нелазерных источников напряженности светового поля составляют величину порядка $E \leq 10^3$ В/м, то есть $E \ll E_{\text{ат}}$. В этом случае отклик среды является линейным. Для лазерного излучения и, в частности, для сверхкоротких лазерных импульсов с большой пиковой интенсивностью, параметр $E/E_{\text{ат}}$, но не является малым, поэтому отклик среды перестает быть линейным.

В оптических стеклах (как и в кристаллах, обладающих центром симметрии) нелинейная восприимчивость второго порядка $\chi^{(2)}$ равна нулю [1, 2], и нелинейность таких сред определяется тензором восприимчивости третьего порядка:

$$\chi_{ik}(E) = \chi_{ik}^{(1)} + \sum_{j=1}^3 \sum_{m=1}^3 \chi_{ikjm}^{(3)} E_j E_m. \quad (1.7)$$

Такие среды называются кубично-нелинейными.

Волна квадратичной поляризации образуется в результате взаимодействия двух волн (в общем случае, имеющих разные частоты ω_1 и ω_2), сопровождающемся возникновением волны на частоте $\omega_3 = \omega_1 \pm \omega_2$. Такие взаимодействия называют трехчастотными, а компоненты тензора $\chi^{(2)}$ при трехчастотном взаимодействии зависят от частот всех трех волн: $\chi_{ikj}^{(2)}(\omega_1 \pm \omega_2, \omega_3)$. Нелинейная поляризация третьего порядка образуется в результате взаимодействия трех волн, сопровождающемся возникновением волны на частоте $\omega_4 = \omega_1 \pm \omega_2 \pm \omega_3$. При четырехчастотном взаимодействии компоненты тензора $\chi^{(3)}$ зависят от частот всех четырех волн: $\chi_{ikj}^{(3)}(\omega_1 \pm \omega_2 \pm \omega_3, \omega_4)$. На Рис.1 показаны возможные комбинации частот взаимодействующих волн в кубично-нелинейной среде при возбуждении монохроматической волной на частоте ω .

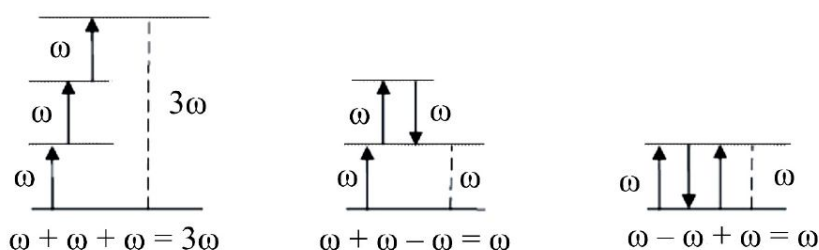


Рис.1. Схема энергетических уровней при четырехчастотном взаимодействии.

Для определения нелинейной поляризации высших порядков используются квантово-механические представления. Первоначально для оценки $\chi^{(n)}$ использовались

простые модели, в частности, модель ангармонического осциллятора и модель газа свободных электронов [1], [2].

Для описания распространения электромагнитных волн в нелинейных средах часто используют ряд упрощающих предположений: приближение плоских волн, приближение медленно меняющихся амплитуд, приближение заданного поля и заданной интенсивности накачки. В случае плоской монохроматической волны, распространяющейся в направлении z , электрическое поле можно записать в скалярном виде:

$$E(z, t) = E_0 \cos(\omega t - k \cdot z) = \frac{1}{2} E_0 (e^{i(\omega t - kz)} + e^{-i(\omega t - kz)}), \quad (1.8)$$

где $k = \sqrt{\varepsilon(\omega)} \frac{\omega}{c}$ - волновое число, ω - частота излучения.

1.2 Эффект самоиндуцированной рефракции

В приближении плоских волн для кубично - нелинейного диэлектрика ($\chi^{(2)}=0$ и $\chi^{(3)} \neq 0$) нелинейную поляризацию, возбужденную монохроматической волной (1.8), можно записать в скалярном виде:

$$\begin{aligned} P &= \chi^{(1)} E + \chi^{(3)} E^3 = \\ &= \left(\chi^{(1)} + \frac{3}{4} \chi^{(3)} E_0^2 \right) E_0 \cos(\omega t - k z) + \\ &\quad + \frac{1}{4} \chi^{(3)} E_0^3 \cos(3(\omega t - k z)) = P^\omega + P^{3\omega} \end{aligned} \quad (1.9)$$

Амплитуда волны поляризации на частоте ω равна уже не $\chi^{(1)} E_0$, как в линейном случае, а $\left(\chi^{(1)} + \frac{3}{4} \chi^{(3)} E_0^2 \right) E_0$. Наличие добавки $\frac{3}{4} \chi^{(3)} E_0^2$ к коэффициенту линейной восприимчивости $\chi^{(1)}$ показывает, что показатель преломления в нелинейной среде не является постоянной величиной, а зависит от амплитуды поля световой волны.

Диэлектрическая проницаемость в кубично-нелинейной среде

$$\varepsilon_{\text{нелин}} = 1 + 4\pi\chi^{(1)} + 3\pi\chi^{(3)} E_0^2 = \varepsilon + \varepsilon_2 E_0^2 \quad (1.10)$$

слагается из линейной диэлектрической проницаемости $\varepsilon = 1 + 4\pi\chi^{(1)}$ и нелинейной добавки, пропорциональной квадрату амплитуды, причем $\varepsilon_2 = 3\pi\chi^{(3)}$. Отметим, что линейный показатель преломления связан с действительной частью ε_0 , а коэффициент линейного (однофотонного) поглощения связан с мнимой частью ε_0 . Аналогично, действительная часть величины $\varepsilon_2 E_0^2$ в (1.10) связана с нелинейным показателем преломления n_2 , а мнимая часть - с коэффициентом нелинейного (двухфотонного) поглощения β_2 [1].

При условии $\varepsilon_2 \ll \varepsilon$, показатель преломления в нелинейной среде можно выразить следующим образом:

$$n_{\text{нелин}} = \sqrt{\varepsilon_{\text{нелин}}} = \sqrt{\varepsilon + \varepsilon_2} / (2\sqrt{\varepsilon}) E_0^2 = n_0 + \frac{3\pi}{2n_0} \chi^{(3)} E_0^2, \quad (1.11)$$

где $n_0 = \sqrt{\varepsilon}$ - линейный показатель преломления. Поскольку интенсивность светового пучка связана с напряженностью электрического поля соотношением:

$$I = \frac{n_0}{2} \left(\frac{\varepsilon_0}{\mu_0} \right)^{1/2} |E|^2, \quad (1.12)$$

выражение (1.11) можно записать в следующем виде:

$$n_{\text{нелин}} = n_0 + n_2 I, \quad (1.13)$$

где

$$n_2 = \frac{3\pi}{n_0^2} \left(\frac{\mu_0}{\varepsilon_0} \right)^{1/2} \chi^{(3)}. \quad (1.14)$$

Таким образом, распространение мощной световой волны в нелинейной кубичной среде приводит к изменению показателя преломления, а нелинейная добавка к показателю преломления пропорциональна квадрату амплитуды волны (или интенсивности лазерного излучения).

Изменение показателя преломления среды под действием распространяющегося в ней излучения называется эффектом самоиндуцированной рефракции.

Используя метод медленно меняющихся амплитуд [1], можно записать уравнение для амплитуды $A(z)$ волны

$$E(\omega, z) = A(z) \exp(-i\omega t + ikz) + \text{к.с.} \quad (1.12)$$

в следующем виде:

$$\frac{dA}{dz} = \frac{6\pi i \omega_1^2}{k_1 c^2} \theta |A|^2 A \quad (1.13)$$

Поскольку все частоты одинаковы, условие фазового синхронизма выполняется автоматически. Поэтому эффекты, связанные с самовоздействием, всегда накапливаются при распространении пучка. Запишем комплексную амплитуду в виде

$$A_1 = \frac{1}{2} a_1 e^{i\varphi_1}$$

и получим уравнения для вещественной амплитуды и фазы:

$$\frac{da_1}{dz} = 0 \quad (1.14)$$

$$\frac{d\varphi_1}{dz} = \frac{3\pi\omega_1^2}{2k_1 c^2} \theta \cdot a_1^2 \quad (1.15)$$

Уравнение (1.15) описывает нелинейный набег фазы, возникающий при распространении плоской световой волны в кубично-нелинейной среде.

Явление самофокусировки является частным случаем самоиндуцированной рефракции и обусловлено тем, что в сильном световом поле ограниченного в пространстве лазерного пучка изменяется показатель преломления среды. Если знак нелинейного изменения показателя преломления таков, что в области, занятой пучком, он возрастает, эта область становится оптически более плотной, и периферийные лучи отклоняются к центру пучка. На рисунке 1.1 изображены фазовые фронты и ход лучей в световом пучке, распространяющемся в среде с нелинейным показателем преломления: $n = n_0 + n_2 I$, $n_2 > 0$. На рисунке стрелками показан ход лучей, пунктирными линиями — поверхности постоянной фазы, сплошной жирной линией — поперечный профиль интенсивности пучка.

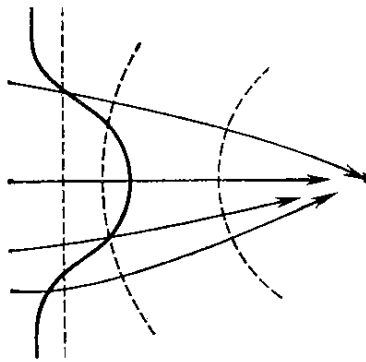


Рис 1.1 Фазовые фронты и ход лучей в световом пучке при самофокусировке

Оптические стекла имеют малые значения n_2 : для типичных составов многокомпонентных стекол и плавленого кварца $n_2 \sim 10^{-16} \text{ см}^2/\text{Вт}$ (Рис. 1.2). В частности, у плавленого кварца (SiO_2) $n_2 = 1.6 \cdot 10^{-16} \text{ см}^2/\text{Вт}$. Однако, существуют оптические стекла с существенно большей нелинейностью третьего порядка, для которых значения n_2 на 2-3 порядка больше, чем у плавленого кварца. К таковым относятся, например, халькогенидные стекла, известные разнообразием состава. На Рис.1.2 приводятся данные для сульфидных (As-S) и селенидных (As-Se) халькогенидных стекол.

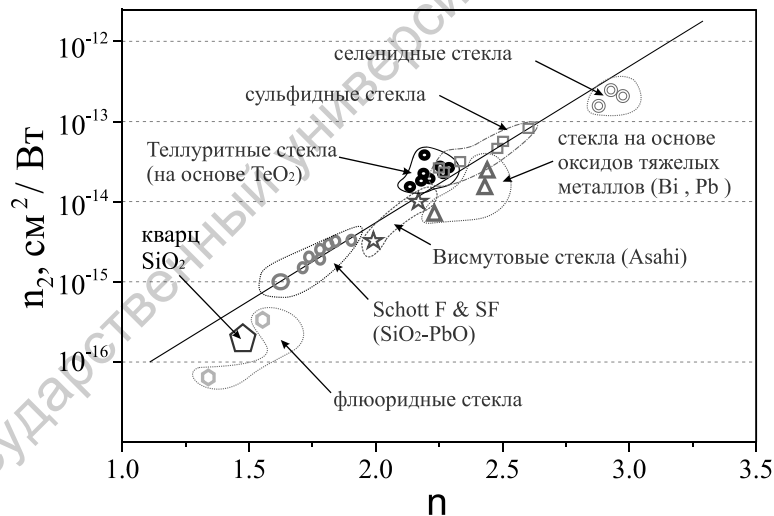


Рис. 1.2 Диаграмма показателей преломления оптических стекол

Для того, чтобы получить изменения показателя преломления, измеряемые в эксперименте, требуется большая интенсивность лазерного излучения. Так, при интенсивности $1 \text{ ГВт}/\text{см}^2$ в кварцевом стекле изменение показателя преломления $n_2 I$ составляет всего лишь $1.6 \cdot 10^{-7}$, а в халькогенидном стекле на основе селенида мышьяка $\sim 10^{-4}$. Однако, следует иметь в виду порог разрушения по мощности, который зависит от состава стекла. Так, в непрерывном режиме генерации лазера интенсивности в сотни $\text{кВт}/\text{см}^2$ уже приводят к разрушению материала. Как известно [3], порог разрушения материала увеличивается при уменьшении длительности импульса. Поэтому для наблюдения нелинейных эффектов необходимо использовать импульсное излучение.

1.3 Генерация третьей гармоники

При распространении лазерной волны с большой интенсивностью в кубично-нелинейном диэлектрике в результате взаимодействия трех волн на частоте лазера ω может образоваться нелинейная поляризация на суммарной частоте $3\omega = \omega + \omega + \omega$ (Рис.1.3а).

В выражении (1.6) этот эффект соответствует слагаемому $\frac{1}{4} \varepsilon_0 \chi^{(3)} E_0^3 [\cos(3(\omega t - kz))]$.

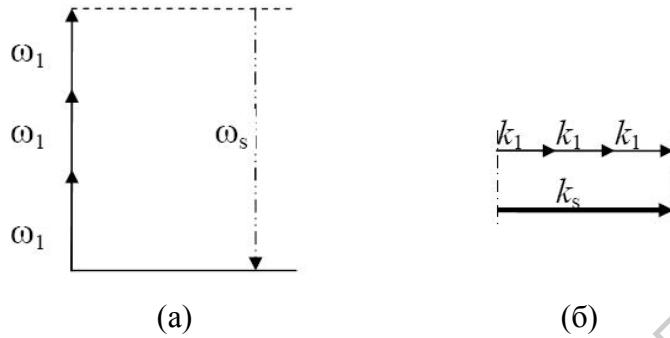


Рис.1.3

Для эффективного преобразования частоты исходного излучения (накачки) в частоту третьей гармоники необходимо выполнение условия фазового (волнового) синхронизма [1]: $\Delta k = 0$ (Рис.1.3б), где

$$\Delta k = 3k(\omega) - k(3\omega). \quad (1.16)$$

Укороченные уравнения [1] можно записать для каждой их взаимодействующих волн. Поскольку в изотропной среде эффективность преобразования исходного излучения в третью гармонику мала, можно считать амплитуду лазерного поля на частоте накачки ω_1 постоянной и в укороченных уравнениях использовать приближение заданного поля накачки. Тогда систему уравнений для комплексных амплитуд A_1 и A_3 , описывающую взаимодействие волн с частотами ω_1 и $\omega_3 = 3\omega_1$, можно свести к одному уравнению для амплитуды A_3 :

$$\frac{dA_3}{dz} e^{ik_3 z} = \frac{2\pi i \omega_3^2}{k_3 c^2} \chi^{(3)} A_1^3 e^{i3k_1 z} \quad (1.17)$$

Интегрируя это уравнение от 0 до z при условии $A_3(0) = 0$, получаем

$$A_3(z) = \frac{18\pi\omega_1^2}{k_3 c^2 \Delta k} \chi^{(3)} A_1^3(0) (1 - e^{-i\Delta k z}) \quad (1.18)$$

Поскольку в аморфном материале $\Delta k \neq 0$ (см., например, [1]), интенсивность третьей гармоники в оптическом стекле

$$I_3(z) = A_3(z)A_3^*(z) = \left(\frac{18\pi\omega_1^2}{k_3 c^2} \chi^{(3)} \right)^2 I_1^3(0) \left(\frac{\sin \frac{\Delta k \cdot z}{2}}{\Delta k / 2} \right)^2, \quad (1.19)$$

периодически меняется вдоль z , как показано на Рис. 1.4.

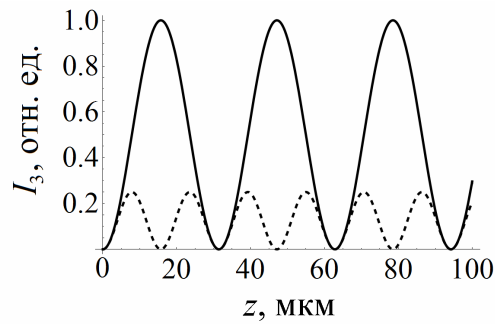


Рис. 1.4 График функции $I_3(z)$ при $\Delta k=0.2 \text{ мкм}^{-1}$ (сплошная линия) и $\Delta k=0.4 \text{ мкм}^{-1}$ (штриховая линия).

Нарастание третьей гармоники происходит на длине когерентности $l_k=\pi/\Delta k=\lambda_0/(6(n_3-n_1))$. Для повышения мощности третьей гармоники надо увеличить длину когерентности, уменьшая Δk (в кристалле с двулучепреломлением) или же увеличивая нелинейную восприимчивость $\chi^{(3)}$. Величина $\chi^{(3)}$ на несколько порядков меньше величины $\chi^{(1)}$. Поэтому для наблюдения третьей гармоники необходимы очень большие интенсивности излучения, что может привести к разрушению материала.

1.4 Четырехволновое смешение

Нелинейный процесс генерации новых частот с участием, в общем случае, четырех взаимодействующих электромагнитных волн, называют четырехволновым смешением [1], [4]. Свойства этого процесса определяется нелинейной восприимчивостью третьего порядка (1.7). Если падающая волна содержит компоненты на частотах $\omega_1, \omega_2, \omega_3$, то в процессах третьего порядка отклик среды будет содержать как утроенные частоты $3\omega_1=\omega_1+\omega_1+\omega_1, 3\omega_2=\omega_2+\omega_2+\omega_2, 3\omega_3=\omega_3+\omega_3+\omega_3$, так и их различные комбинации: $\omega_1\pm\omega_2\pm\omega_3$ (Рис.1.5).

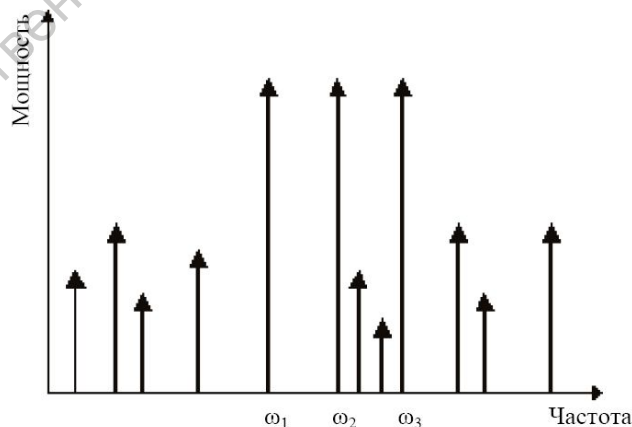


Рис.1.5. Частотная диаграмма при четырехволновом смешении

Четырехволновое смешение может произойти, если, по крайней мере, две различные частотные составляющие ω_f и ω_b распространяются в кубично-нелинейной среде одновременно. Тогда модуляция показателя преломления происходит на разностных частотах (Рис.1.6):

$$\omega_c = \omega_f - (\omega_b - \omega_f) = 2\omega_f - \omega_b \quad (1.12a)$$

и

$$\omega_p = \omega_b + (\omega_b - \omega_f) = 2\omega_b - \omega_f \quad (1.12b)$$

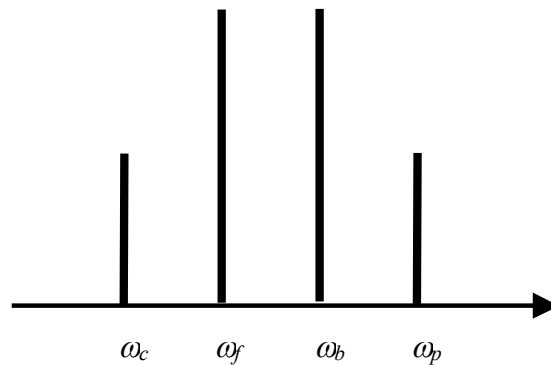


Рис.1.6. Генерация новых частотных компонент ω_c и ω_p посредством четырехволнового смешения компонент ω_f и ω_b .

Низкочастотная и высокочастотная спектральные составляющие называются, соответственно, стоксовой и антистоксовой компонентами (или сигнальной и холостой волнами, если использовать терминологию физики СВЧ).

Случай, когда $\omega_f = \omega_b$, т.е. взаимодействуют три частотные компоненты, почти вырожденным четырехволновым смешением. Частота антистоксовой компоненты в таком процессе определяется соотношением:

$$\omega_p = 2\omega_b - \omega_c. \quad (1.12c)$$

В приближении плоских волн четырехволновое смешение описывается с использованием укороченных волновых уравнений для амплитуд взаимодействующих волн. Поляризация третьего порядка связывает четыре волны – две или три исходных и одну или две генерируемые, соответственно.

Для эффективного преобразования частот необходимо выполнение условий фазового синхронизма.

Рассмотрим линейно поляризованные четыре непрерывные оптические волны с частотами $\omega_1, \omega_2, \omega_3, \omega_4$. Напряженность суммарного электрического поля равна:

$$E = \frac{1}{2} \sum_{j=1}^4 A_j \exp(ik_j z - i\omega_j t) + \text{к.с.} \quad (1.13)$$

Наведенная нелинейная поляризация может быть представлена в виде:

$$P^{(3)} = \frac{1}{2} \sum_{j=1}^4 P_j \exp(ik_j z - i\omega_j t) + \text{к.с.} \quad (1.14)$$

Нелинейные поляризации P_j для $j=1...4$ состоят из большого числа членов, включающих произведение трех напряженностей электрических полей.

Распространение четырех линейно-поляризованных волн описывается системой связанных волновых уравнений [1,2], которая может быть преобразована в систему уравнений для медленно меняющихся амплитуд:

(1.15)

$$\begin{aligned} \frac{dA_1}{dz} &= \frac{in_2\omega_1}{cS_{\text{эфф}}} \left[(|A_1|^2 + 2|A_2|^2)A_1 + 2A_2^*A_3A_4 \exp(i\Delta kz) \right] \\ \frac{dA_2}{dz} &= \frac{in_2\omega_2}{cS_{\text{эфф}}} \left[(|A_2|^2 + 2|A_1|^2)A_2 + 2A_1^*A_3A_4 \exp(i\Delta kz) \right] \\ \frac{dA_3}{dz} &= \frac{in_2\omega_3}{cS_{\text{эфф}}} \left[2(|A_1|^2 + |A_2|^2)A_3 + 2A_1A_2A_4^* \exp(-i\Delta kz) \right] \\ \frac{dA_4}{dz} &= \frac{in_2\omega_4}{cS_{\text{эфф}}} \left[2(|A_1|^2 + |A_2|^2)A_4 + 2A_1A_2A_3^* \exp(-i\Delta kz) \right] \end{aligned}$$

где n_2 - нелинейный коэффициент преломления, Δk – расстройка волновых векторов, которая определяется материальной и волноводной дисперсией. Обозначим $\gamma = n_2\omega_j/c$ (для всех частот).

Используем приближение заданного поля для волн накачки. Тогда комплексные амплитуды волн накачки:

$$A_1(z) = |A_1(0)| \exp(i\gamma(|A_1(0)|^2 + 2|A_2(0)|^2)z) \quad (1.16a)$$

$$A_2(z) = |A_2(0)| \exp(i\gamma(|A_2(0)|^2 + 2|A_1(0)|^2)z) \quad (1.16б)$$

имеют постоянную амплитуду, а их фазы меняются при распространении за счет нелинейной фазовой модуляции. Полагая $A_1(0)=A_2(0)=A_0$, получим решение системы (1.15) в следующем виде:

$$A_3(z) = (a_3 e^{gz} + b_3 e^{-gz}) \exp(-i\chi z/2) \exp(4i\gamma |A_0|^2 z) \quad (1.17a)$$

$$A_4^*(z) = (a_4 e^{gz} + b_4 e^{-gz}) \exp(i\chi z/2) \exp(4i\gamma |A_0|^2 z) \quad (1.17б)$$

где $g = \left[(2\gamma |A_0|^2)^2 - (\chi/2)^2 \right]^{1/2}$, $\chi = \Delta k + 4\gamma |A_0|^2$, коэффициенты a_3, b_3, a_4, b_4 определяются из граничных условий. Если волновая расстройка $\chi=0$, то стоксова и антистоксова волны экспоненциально нарастают при $gz \gg 1$.

Если все четыре световых волны имеют одинаковую частоту, процесс называется вырожденным четырехволновым смешением. В этом случае векторы волновых чисел участвующих световых полей должны удовлетворять условию векторного синхронизма. В п.3.4 рассматривается экспериментальный метод измерения нелинейных параметров, основанный на этом эффекте.

1.5. Многофотонное поглощение

При большой интенсивности светового пучка, распространяющегося в среде, плотность фотонов может быть настолько велика, что возможно одновременное взаимодействие нескольких фотонов с одним электроном, т.е. могут сразу поглотиться несколько фотонов (Рис.1.5). Этот процесс принципиально отличается от процесса нескольких последовательных однофотонных процессов, так как реальные промежуточные уровни энергии отсутствуют.

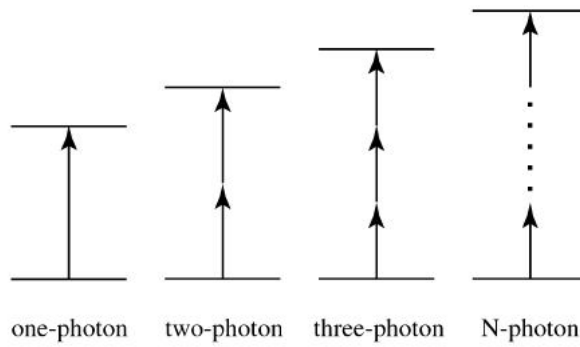


FIGURE 12.5.1 Several examples of multiphoton absorption processes.

Рис.1.5 Схема многофотонного поглощения

Для наблюдения двухфотонного поглощения требуются относительно низкие интенсивности лазерного пучка. Например, для межзонных переходов в полупроводниках и диэлектриках заметное ослабление пучка за счёт двухфотонного поглощения достигается при интенсивностях 10^6-10^8 Вт/см².

Как известно [1], коэффициент однофотонного (линейного) поглощения пропорционален мнимой части линейной восприимчивости $\text{Im } \chi^{(1)}$:

$$k_{\lambda} = 4\pi k \text{Im } \chi^{(1)} / n_R, \quad (1.21)$$

где n_R – действительная часть линейного показателя преломления.

В общем случае нелинейные восприимчивости $\chi^{(m)}$ также являются комплексными величинами: $\chi^{(m)} = \text{Re } \chi^{(m)} + i \text{Im } \chi^{(m)}$, а коэффициент поглощения n -фотонов пропорционален $\text{Im } \chi^{(2n-1)}$.

Для кубических оптических сред нелинейную поляризацию можно записать в следующем виде:

$$P^{(3)} = \chi^{(3)} \cdot E^3 \quad (1.22)$$

$$\chi^{(3)} = \text{Re } \chi^{(3)} + i \text{Im } \chi^{(3)} \quad (1.23)$$

Используя приближение медленно меняющихся амплитуд ([1], [2]), запишем укороченное уравнение для амплитуды электрического поля электромагнитной волны, которая ослабляется в результате двухфотонного поглощения (полагаем, что линейное поглощение отсутствует):

$$\frac{dA_1}{dz} = -\frac{6\pi i \omega_1^2}{k_1 c^2} \text{Im } \chi^{(3)} |A_1|^2 A_1 \quad (1.24)$$

Уравнение (1.24) описывает изменение амплитуды пучка вдоль направления распространения в среде с заданной нелинейностью третьего порядка. Переходя к действительной амплитуде

$$A_1 = \frac{1}{2} a_1 e^{i\varphi_1},$$

получим

$$\frac{da_1}{dz} - i \cdot a_1 \frac{d\varphi_1}{dz} = -\frac{3\pi\omega_1^2}{2k_1c^2} \text{Im} \chi^{(3)} \cdot a_1^3, \quad (1.25)$$

откуда

$$\frac{da_1}{dz} = -\frac{3\pi\omega_1^2}{2k_1c^2} \text{Im} \chi^{(3)} \cdot a_1^3, \quad (1.26)$$

$$\frac{d\varphi_1}{dz} = 0. \quad (1.27)$$

Интегрируя уравнение для a_1 , получим

$$a_1^2(z) = \frac{1}{\frac{1}{a_1^2(0)} + \frac{3\pi\omega_1^2}{k_1c^2} \text{Im} \chi^{(3)} z}. \quad (1.28)$$

Таким образом, интенсивности волны уменьшается вдоль оси z :

$$I(z) = \frac{I_0}{1 + \beta I_0 \cdot z}. \quad (1.29)$$

Здесь $I_0 = I(0)$ - начальная интенсивность, β – коэффициент двухфотонного поглощения:

$$\beta = \frac{16\pi^2\omega}{c^2 n^2} \text{Im} \chi^{(3)} \quad (1.30)$$

Функция (1.29) графически показана на рисунке 1.7 в сравнении с законом Бугера, описывающим уменьшение интенсивности при однофотонном поглощении:

$$I(z) = I(0)\exp(-k_\lambda z). \quad (1.31)$$

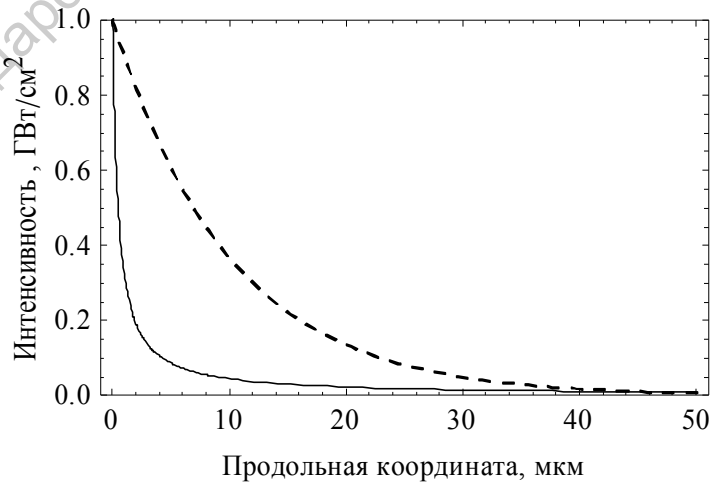


Рис.1.7. Уменьшение интенсивности световой волны при однофотонном (пунктирная линия) и двухфотонном (сплошная линия) поглощении. $I(0) = 1 \text{ ГВт/см}^2$, $\alpha = 0.1 \text{ см}^{-1}$, $\beta = 2.1 \text{ см/ГВт}^2$.

2. Основные параметры оптических импульсов

Нелинейные эффекты в некристаллических средах исследуются с использованием сверхкоротких импульсов длительностью от 10 наносекунд (нс) до 10 фемтосекунд (фс). Напряженность электрического поля импульса, распространяющегося вдоль оси z , в заданный момент времени t связана со спектром импульса $E(\omega)$ соотношением:

$$E(t, z) = \int_{-\infty}^{\infty} E(\omega) e^{i(\omega t - kz)} d\omega \quad (2.1)$$

При использовании подхода, основанного на приближении медленно меняющейся амплитуды, в выражении для напряженности поля импульса выделяют быстро изменяющуюся часть поля и комплексную амплитуду $A(t, z)$:

$$E(t, z) = \frac{1}{2} A(t, z) e^{i(\omega_0 t - kz)} + \text{к.с.} \quad (2.2)$$

Для описания импульсов используются действительные функции: огибающая импульса $\rho_0(t)$ и фаза импульса $\varphi_0(t)$, в выражении для комплексной амплитуды

$$A_0(t) = \rho_0(t) e^{i\varphi_0(t)}. \quad (2.3)$$

Рассмотрим спектрально ограниченный импульс [5]. Под таким импульсом понимают импульс длительностью $\tau_{\text{ск}}$ (среднеквадратичная длительность), которая полностью определяется обратным значением среднеквадратичной ширины $\Delta\omega_{\text{ск}}$ его спектра (другими словами, полуширина спектра данного импульса обратно пропорциональна его длительности). В этом случае отсутствует фазовая (частотная) модуляция ($\varphi_0(t) = 0$, $A_0(t) = \rho_0(t)$).

Чаще всего рассматривают импульсы с огибающей вида

$$\rho_0(t) = \rho_0 \operatorname{sech}(t/\tau_0), \quad (2.4)$$

$$\rho_0(t) = \rho_0 \exp(-t^2/2\tau_0^2). \quad (2.5)$$

В случае гауссова импульса (2.5) длительность по уровню e^{-1} от максимальной интенсивности равна $\tau_0 = \sqrt{2}\tau_{\text{ск}}$. Значение τ_0 связано с длительностью по полувысоте $\tau_{1/2}$ соотношением $\tau_{1/2} = 2\sqrt{\ln 2}\tau_0$. Имея в виду приведенные соотношения, величину τ_0 будем называть в дальнейшем просто длительностью импульса. Для гауссова импульса

$$\tau_0 \Delta\omega_0 = 2, \quad \tau_{1/2} \Delta\omega_{1/2} = 4 \ln 2, \quad (2.6)$$

где $\Delta\omega_0$ и $\Delta\omega_{1/2}$ - ширины спектров по уровням, соответствующим различным определениям длительности.

Рассмотрим фазово-модулированный импульс. Фаза импульса $\varphi_0(t)$ может быть сложной детерминированной либо случайной функцией. Ширина спектра фазово-модулированного импульса $\Delta\omega_0^{\text{фм}}$ может значительно превышать ширину спектра спектрально-ограниченного импульса: $\tau_0 \Delta\omega_0^{\text{фм}} \gg 1$.

Если фаза изменяется со временем по квадратичному закону

$$\varphi_0(t) = -\alpha_0 t^2 / 2, \quad (2.7)$$

то изменение частоты линейно по t :

$$\delta\omega(t) = \omega(t) - \omega_0 = d\varphi_0(t)/dt = -\alpha_0 t, \quad (2.8)$$

где α_0 характеризует скорость изменения частоты.

Для частотной модуляции вида (2.8) при гауссовой форме огибающей (2.5) ширина спектра импульса

$$\Delta\omega_0^{\text{фм}} = \Delta\omega \left[1 + (\alpha_0 \tau_0^2)^2 \right]^{1/2} \quad (2.9)$$

$$\tau_0 \Delta\omega_0^{\text{фм}} = 2 \left[1 + (\alpha_0 \tau_0^2)^2 \right]^{1/2} \quad (2.10)$$

В последнем соотношении учтено (2.6).

Частотно-модулированные световые импульсы часто называют чирпированными (от англ. chirp); Частотная модуляция вида (2.8) соответствует линейному чирпу (Рис.1.8).

При распространении импульса в кубично-нелинейной среде возникает фазовая самомодуляция, которая приводит к частотной модуляции импульса. Генерация новых частотных компонент происходит непрерывно при распространении импульса, вызывая уширение спектра импульса по отношению к его начальной ширине.

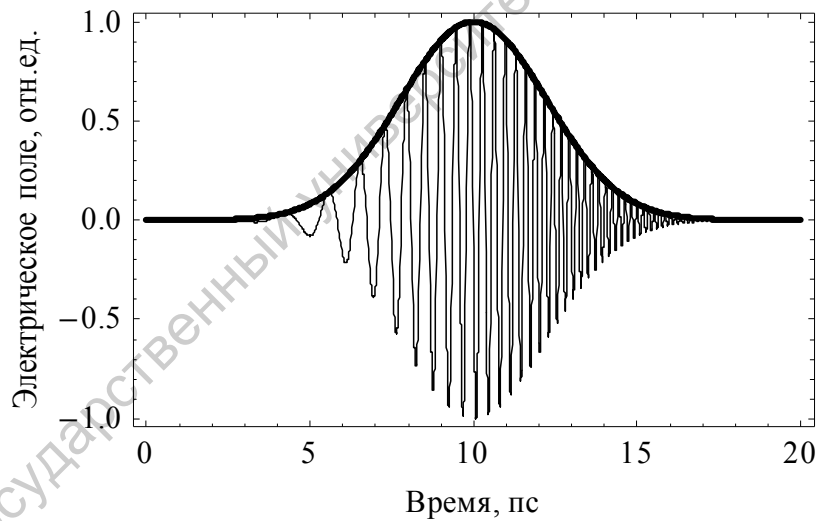


Рис. 1.8 Импульс с гауссовой огибающей и линейным чирпом.

3. Экспериментальные методы исследования нелинейных свойств оптических материалов

3. 1. Метод z-сканирования

Данный метод, введенный Шейх-Баха [6], хорошо известен и используется для исследования нелинейных свойств оптических материалов. Метод позволяет не только определить величину и знак нелинейного показателя преломления n_2 , но также и коэффициент двухфотонного поглощения $\beta^{(2)}$.

Метод z-сканирования основан на использовании эффекта самофокусировки сходящегося гауссова пучка в образце, обладающем нелинейными оптическими свойствами. Методика определения нелинейных констант заключается в перемещении образца вдоль оптической оси вблизи фокуса линзы, используемой для формирования сходящегося гауссова пучка, и измерении мощности прошедшего через образец излучения.

В схеме эксперимента, показанной на Рис.3.1, линейно поляризованный гауссов пучок, распространяющийся в направлении z, сфокусирован линзой L. Образец S перемещается вдоль направления оптической оси z, а интенсивность прошедшего излучения регистрируется на конечной апертуре фотоприемника D₂ в дальней зоне, как функция положения образца относительно фокальной плоскости. Детектор D₁ и делитель пучка BS необходимы для отслеживания флуктуаций мощности лазера.

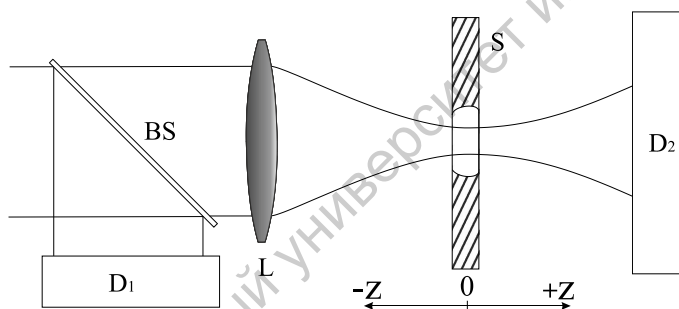


Рис 3.1 Принципиальная схема установки для z-сканирования: D₁, D₂ – детекторы, L – линза, BS – делитель пучка.

Методика z-сканирования с открытой апертурой (open aperture z-scan technique) применяется для измерения коэффициента двухфотонного поглощения. На Рис.3.2а показана принципиальная схема установки для метода z-сканирования с открытой апертурой. При перемещении образца вдоль оси z с переходом через фокус может быть измерена зависимость полной прошедшей интенсивности (пропускание образца), как функции положения образца (Рис.3.2б). Данная зависимость симметрична относительно фокуса линзы ($z = 0$ мм), в котором наблюдается минимум пропускания. T_i – пропускание образца при малой интенсивности падающего излучения (в отсутствие нелинейных эффектов), T_c – пропускание образца при большой интенсивности падающего излучения.

Для оценки нелинейного показателя преломления используется методика z-сканирования с закрытой апертурой (closed aperture z-scan technique). Поскольку вследствие эффекта самофокусировки изменяется размер пятна в плоскости детектора, помещение диафрагмы конечной апертуры перед детектором обеспечивает измерение величины нелинейного показателя преломления. На Рис. 3.3а и 3.3б показана схема эксперимента по z-сканированию с закрытой апертурой. Характерная форма функции пропускания представлена на рисунке 3.3в. В случае, когда образец с положительным нелинейным показателем преломления n_2 находится далеко от фокуса линзы, интенсивность проходящего через образец излучения мала и, поскольку толщина образца не велика, пропускание слабо меняется при его перемещении. Как только образец

оказывается ближе к фокусу, интенсивность в пучке становится достаточной для появления самофокусировки в образце.

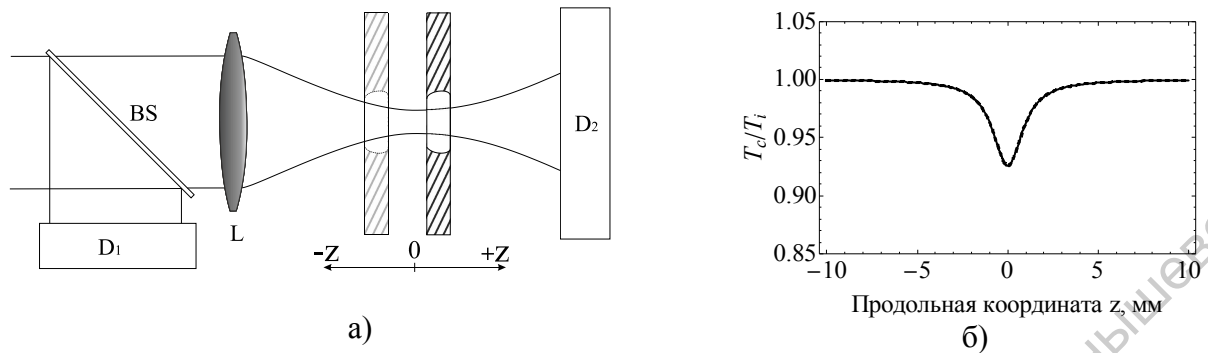
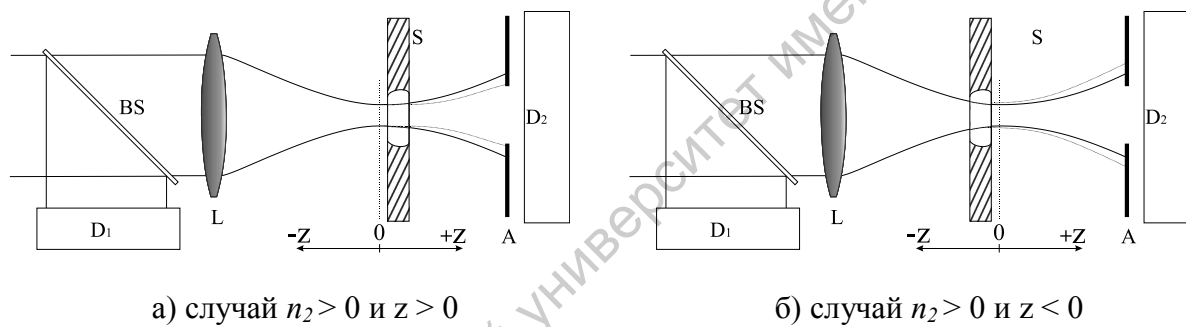


Рис 3.2 а - принципиальная схема эксперимента по z-сканированию при отсутствии диафрагмы (метод z-сканирования с открытой апертурой); б – пропускание, как функция положения образца относительно фокуса линзы.



а) случай $n_2 > 0$ и $z > 0$

б) случай $n_2 > 0$ и $z < 0$

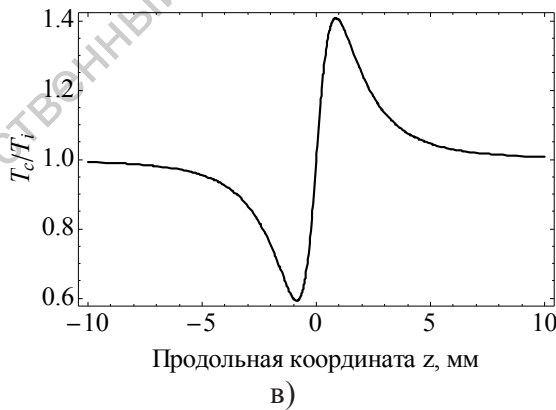


Рис 3.3 а и б - принципиальная схема эксперимента z-сканирования с диафрагмой (метод z-сканирования с закрытой апертурой) при различных положениях образца относительно фокуса линзы; в - пропускание, как функция положения образца. $n_2 > 0$.

Прошедшая через апертуру с радиусом r_a мощность пучка может быть вычислена путем интегрирования напряженности поля $E_a(r, t)$ в пределах апертуры:

$$P_T(\Delta\Phi_0(t)) = c\varepsilon_0 n_0 \pi \int_0^{r_a} |E_a(r, t)|^2 r dr \quad (3.1)$$

где c - скорость света в вакууме, ε_0 - электрическая постоянная, n_0 - показатель преломления.

Изменение фазы вследствие самовоздействия пучка определяется следующим образом:

$$\Delta\Phi_0(t) = k\Delta n_0(t)L_{eff}, \quad (3.2)$$

где $L_{eff} = (1 - e^{-\alpha L})/\alpha$, длина образца L , α - коэффициент линейного поглощения. Δn_0

Пропускание апертуры определяется по формуле:

$$T(z) = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} P_T(\Delta\Phi_0(t)) dt}{S \int_{-\infty}^{\infty} P_i(t) dt} \quad (3.3)$$

где P_i - начальная мощность пучка, падающего на образец, а $S = 1 - \exp(-2r^2/w^2)$ линейное пропускание апертуры, w - радиус пучка на апертуре в линейном режиме распространения (в отсутствие нелинейности), r - радиус апертуры.

Для оптического импульса с гауссовой огибающей пропускание определяется формуле:

$$T(z, S=1) = \frac{1}{\sqrt{\pi} q_0(z, 0)} \int_{-\infty}^{\infty} \ln[1 + q_0(z, 0) e^{-\tau^2}] d\tau \quad (3.4)$$

где $q_0(z, t) = \beta I_0(t) L_{eff} / (1 + z^2 / z_0^2)$, z_0 - дифракционная длина гауссова пучка, β - коэффициент двухфотонного поглощения, $I_0(t)$ - интенсивность импульса.

Если $|q_0| < 1$, пропускание может быть представлено в виде ряда:

$$T(z, S=1) = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{[-q_0(z, 0)]^m}{(m+1)^{3/2}} \quad (3.5)$$

Если в этом выражении взять только два первых слагаемых, то в дальней зоне можно получить упрощенное выражение для T при открытой диафрагме:

$$T_{open}(z) = 1 - \frac{\beta I_0 L}{2\sqrt{2}(1+x^2)} \quad (3.6)$$

Для закрытой диафрагмы можно получить аналогичные выражения:

$$T_{closed}(z) \cong 1 + \frac{4x(\Delta\varphi_0)(1-S)^{0.25}}{(1+x^2)(9+x^2)} \quad (3.7)$$

где $x = z/z_0$.

3.2. Двухимпульсный спектральный метод «накачка-зондирование»

Данный метод основан на измерении нелинейной модуляции фазы электрического поля пробного импульса в присутствии мощного нестационарного лазерного пучка (импульс накачки). Стандартная экспериментальная схема, используемая для исследования влияния пучка накачки на пробный импульс, показана на рисунке 3.4.

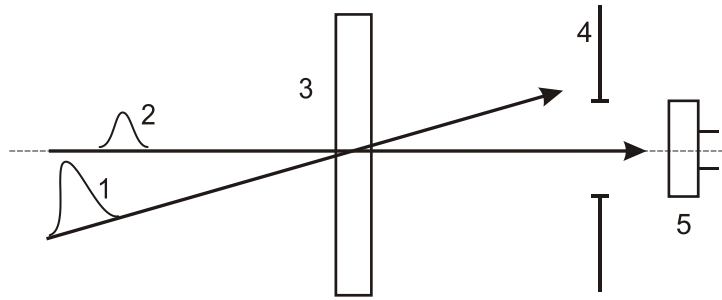


Рис. 3.4 Схема эксперимента по двухимпульсному методу «накачка-зондирование». 1 – импульс накачки, 2 – пробный импульс, 3 – образец, 4 – диафрагма, 5 - фотоприемник

В поле мощного пучка накачки вследствие керровской нелинейности происходит изменение показателя преломления образца. В результате, пробный импульс, следующий за импульсом накачки с некоторой варьируемой временной задержкой, приобретает дополнительный набег фазы.

Рассмотрим распространение двух лазерных пучков в кубично-нелинейной среде. Для корректного описания необходимо включить в рассмотрение как керровскую нелинейность, так и двухфотонное поглощение. Уравнения для медленно меняющихся огибающих импульса накачки и слабого пробного импульса имеют следующий вид [7]:

$$\begin{aligned} \frac{\partial I_{pu}}{\partial z} &= -\alpha I_{pu} - \beta I_{pu}^2, & \frac{\partial \varphi_{pu}}{\partial z} &= \gamma I_{pu}, \\ \frac{\partial I_p}{\partial z} &= -\alpha I_p - 2\beta I_{pu} I_p, & \frac{\partial \varphi_p}{\partial z} &= 2\gamma I_{pu}, \end{aligned} \quad (3.8)$$

где I_{pu} и φ_{pu} – интенсивность и фаза временной огибающей импульса накачки, I_p и φ_p – интенсивность и фаза временной огибающей пробного импульса; α – линейный коэффициент поглощения образца, $k=2\pi/\lambda$, где λ – длина волны в вакууме, β – коэффициент двухфотонного поглощения, коэффициент керровской нелинейности γ связан с нелинейным коэффициентом преломления n_2 соотношением $\gamma=kn_2$.

Уравнения (3.8) записаны в бегущей системе координат, связанной с импульсом. Нелинейный временной отклик предполагается мгновенным. Первые два уравнения описывают самовоздействие пучка накачки, а последние два – влияние накачки на пробный импульс посредством двухфотонного поглощения и фазовой кросс-модуляции. Предполагается, что импульс накачки и пробный импульс имеют одинаковую групповую скорость, что является справедливым для импульсов с одинаковой центральной длиной волны. Дисперсией групповой скорости (ДГС) можно пренебречь, если уширение импульса, происходящее из-за ДГС, достаточно мало по сравнению с его длительностью. ДГС не оказывает влияния на распространение импульса до тех пор, пока дисперсионная длина больше, чем длина нелинейности $L_D \geq L_{NL}$, где $L_D = t_0^2/\beta_2$, $L_{NL} = 1/(\gamma P_0)$, t_0 – длительность импульса, β_2 – коэффициент дисперсии второго порядка, P_0 – мощность пучка в пике импульса.

Решения уравнений (3.8) имеют вид:

$$\begin{aligned}
I_{pu}(z) &= \frac{I_{pu}(0) \exp(-\alpha z)}{1 + I_{pu}(0)(1 - \exp(-\alpha z))(\beta / \alpha)}, \\
\varphi_{pu}(z) &= \varphi_{pu}(0) + \frac{\gamma}{\beta} \ln[1 + I_{pu}(0)(1 - \exp(-\alpha z))(\beta / \alpha)], \\
I_p(z) &= \frac{I_p(0) \exp(-\alpha z)}{1 + I_{pu}(0)(1 - \exp(-\alpha z))(\beta / \alpha)}, \\
\varphi_p(z) &= \varphi_p(0) + \frac{2\gamma}{\beta} \ln[1 + I_{pu}(0)(1 - \exp(-\alpha z))(\beta / \alpha)].
\end{aligned}
\tag{3.9}$$

С помощью преобразования Фурье можно получить спектр пробного импульса и оценить, на каких частотах происходят сильные изменения пробного сигнала в нелинейном образце. В [8] показано, что эти оценки могут быть получены аналитически в предположении, что $\gamma I_{pu} L < 0.1$ и $\beta I_{pu} L < 0.1$, где L – толщина образца. Для гауссовой огибающей электрического поля импульса $E(t) \sim \exp(-t^2/t_0^2)$ нелинейное пропускание, как функция задержки τ и расстройки $\delta = \omega - \omega_0$ (ω_0 – центральная частота спектра), будет иметь вид [1a]:

$$\frac{\Delta T}{T}(\tau, \delta) = \frac{2}{\sqrt{3}} \exp(\delta^2 t_0^2 / 6) \exp(-2\tau^2 / 3t_0^2) [2\Delta\Phi \sin(2\delta\tau / 3) - q \cos(2\delta\tau / 3)]. \tag{3.10}$$

На Рис. 3.5 показаны экспериментальные измерения и аппроксимация по формуле (3.10) из работы [8].

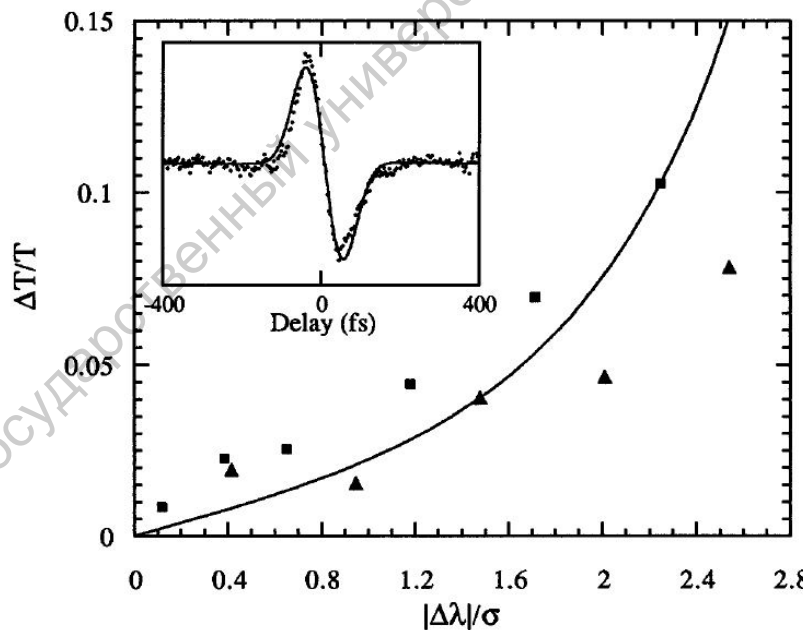


Рис. 3.5 Зависимость величины $\Delta T/T$ от разности $\Delta\lambda$ между центральной длиной волны спектра лазерного импульса и длиной волны, на которой проводятся измерения, σ – ширина спектра пробного импульса. Сплошная кривая рассчитана в предположении гауссовой формы импульса. Точки соответствуют экспериментальным результатам, полученным для образца стекла SF6 толщиной 1 мм. Точки в форме треугольников (квадратов) соответствуют измерениям при $\Delta\lambda < 0$ ($\Delta\lambda > 0$). Вкладка показывает экспериментальные точки и теоретическую кривую при $\Delta\lambda = 1.44\sigma$.

Таким образом, при измерении нелинейного показателя преломления n_2 данным методом наибольшая чувствительность достигается при измерениях на краях спектра пробного импульса.

Измерения нелинейного показателя преломления плавленого кварца демонстрируют высокую чувствительность данного метода [7]. В эксперименте регистрировался сигнал, полученный после прохождения пластинки плавленого кварца толщиной 1 мм. Интенсивность накачки была такова, что нелинейный сдвиг фазы составлял $\Delta\Phi=4\times 10^{-4}$ рад. (Рис.3.6).

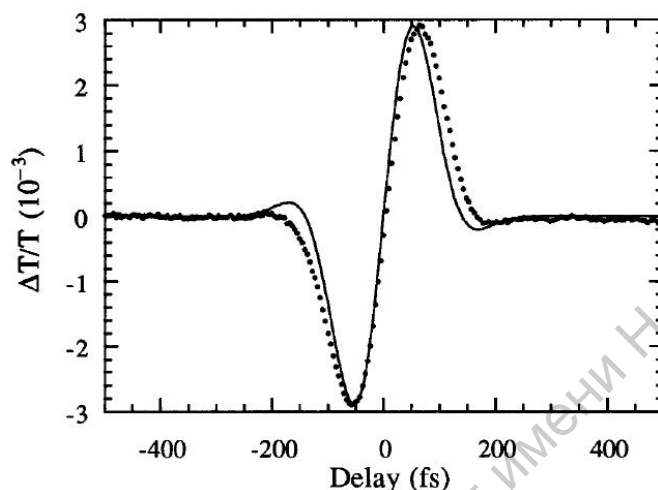


Рис. 3.6 Сигнал, полученный после прохождения пластинки из плавленого кварца (точки), измеренный при $\Delta\lambda=-2.4\sigma$. Теоретическая кривая показана сплошной линией.

При наличии двухфотонного поглощения кривая $\Delta T/T$ имеет другой вид (Рис.3.7). При длине волны излучения накачки 800 нм, сульфид кадмия CdS имеет достаточно большой коэффициент двухфотонного поглощения β , и большой нелинейный коэффициент преломления n_2 . Аппроксимация результатов, показанных на рис.3.7 по формуле (3.10) дает следующие величины $\beta=7.3$ см/ГВт, $n_2=11\times 10^{-12}$ esu. Что находится в хорошем согласии с результатами измерений, полученных другими методами [8].

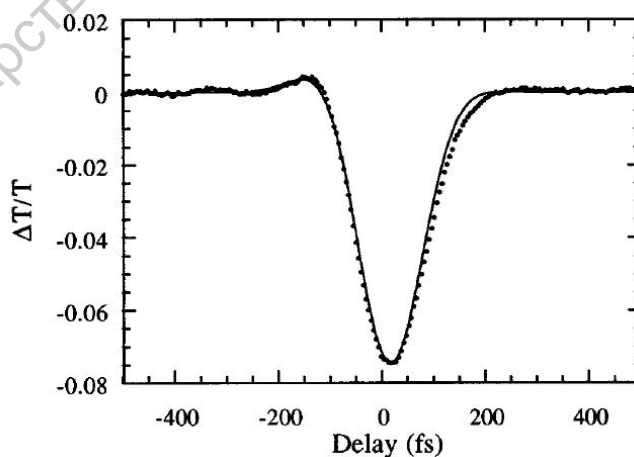


Рис.3.7 Сигнал, полученный после прохождения пластинки CdS (точки), измеренный при $\Delta\lambda=1.0\sigma$. Толщина пластинки – 1 мм. Пиковая интенсивность излучения 360 МВт/см².

3.3 Трехимпульсный интерферометрический метод «накачка-зондирование»

Данный метод определения нелинейных коэффициентов преломления и поглощения основан на измерении нелинейной модуляции фазы электрического поля пробного импульса [9]. Изменение фазы $\Delta\Phi$ определяется по интерференционной картине сложения двух идентичных пробных импульсов 1 и 3 (Рис.3.8) на выходе спектрометра SP. Второй пробный импульс имеет фиксированную временную задержку Δt относительно первого. Изменения в исследуемом образце S, возникшие в результате воздействия импульса накачки 2, приводят к сдвигу полос интерференционной картины (Рис.3.9).

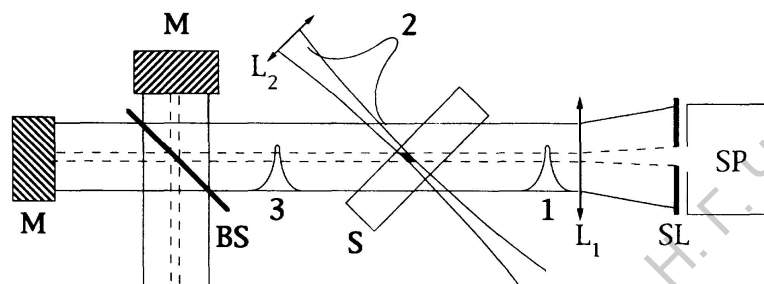


Рис.3.8 Схема эксперимента по трехимпульсному интерферометрическому методу «накачка-зондирование»

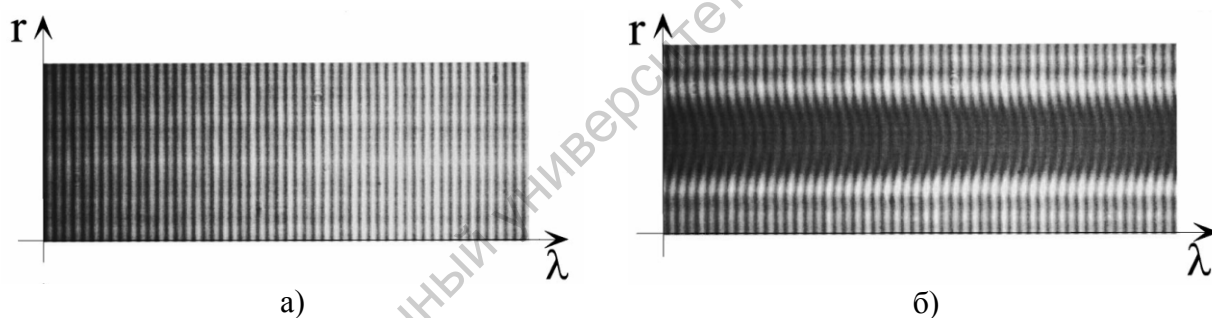


Рис.3.9 Картина интерференции пробных импульсов в отсутствие импульса накачки (а) и после его прохождения через образец (б)

Интерференционная картина возникает следующим образом. В результате сложения электрических полей пробных импульсов

$$E_1(t) = E_0(t)e^{i\omega_0 t} \quad (3.11)$$

$$E_2(t) = E_0(t - \Delta t)e^{i\omega_0(t - \Delta t)} \quad (3.12)$$

получаем спектр интенсивности

$$I(\omega) = 2I_0(\omega)(1 + \cos(\omega\Delta t)) \quad (3.13)$$

с полосами на расстоянии $2\pi/\Delta t$.

Если импульс накачки проходит через образец в промежуток времени между двумя пробными импульсами, второй пробный импульс испытывает дополнительный сдвиг фазы $\Delta\Phi$, а также частично поглощается в образце, модифицированном импульсом накачки. В результате происходит искажение полос в спектре мощности, а также уменьшение контраста полос. Действительно, поскольку теперь

$$E_2(t) = \sqrt{T}E_0(t - \Delta t)e^{i(\omega_0(t - \Delta t) + \Delta T)}, \quad (3.14)$$

где T – линейное пропускание, спектр суммарной интенсивности пробных импульсов имеет вид:

$$I(\omega) = I_0(\omega)(1 + T + 2T \cos(\omega\Delta t + \Delta\Phi)). \quad (3.15)$$

Отсюда можно получить значения $\Delta\Phi$ и T , применив преобразование Фурье.

Меняя временную задержку между импульсом накачки 2 и вторым пробным импульсом 3, можно построить зависимость сдвига фазы $\Delta\Phi$ от времени (Рис.3.10). Измеряемый сдвиг фазы пропорционален величине изменения показателя преломления $\Delta n(r,t)$:

$$\Delta\Phi(r,t) = \Delta n(r,t) \cdot 2\pi L / \lambda, \quad (3.16)$$

где r – расстояние от центра пучка накачки, t – время задержки относительно пучка накачки, L – длина, на которой пробный пучок и пучок накачки пересекаются в образце, λ – длина волны пробного импульса. Нулевая временная задержка соответствует совпадению максимумов второго пробного импульса и импульса накачки.

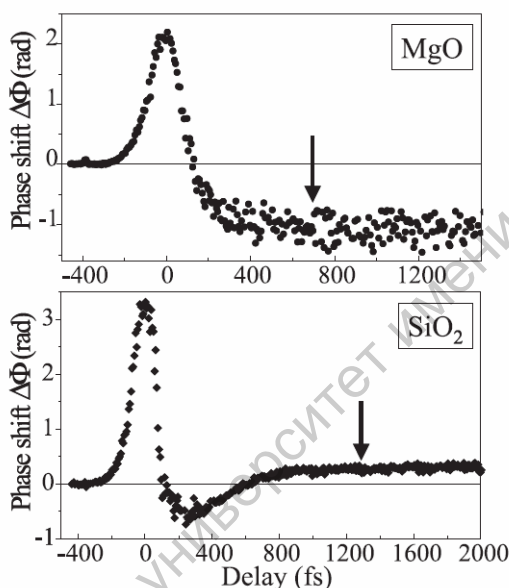


Рис.3.10 Временная зависимость сдвига фаз в эксперименте по интерферометрическому методу «накачка-зондирование» в образцах MgO и SiO₂ (центральная длина волны импульса накачки 800нм). Стрелками показаны времена задержки, на которых измерился фазовый сдвиг

Изменение показателя преломления:

$$\Delta n(r,t) \approx n_2 I_p + \frac{e^2}{2n_0 \epsilon_0} \left\{ -\frac{N_{CB} f_{CB}}{m^* \omega^2} + \frac{N_{tr} f_{tr}}{m(\omega_{tr}^2 - \omega^2)} \right\} \quad (3.17)$$

определяется, в основном, тремя эффектами. Первое слагаемое в правой части выражения (3.17) соответствует эффекту самоиндуцированной рефракции пучка накачки с интенсивностью I_p в среде с нелинейным показателем преломления n_2 . Два слагаемых в фигурных скобках описывают изменение показателя преломления, обусловленное появлением свободных носителей заряда в материале. Первое слагаемое пропорционально плотности электронов N_{CB} в зоне проводимости и всегда имеет отрицательный знак. Здесь n_0 – показатель преломления стекла, e – заряд электрона, m – масса электрона, m^* – эффективная масса электрона в зоне проводимости, ω – частота пробного импульса, f_{CB} – сила осциллятора, соответствующая переходу в зону проводимости. Второе слагаемое в фигурных скобках определяет эффект захвата электронов на дефектные уровни (N_{tr} – плотность захваченных электронов). Здесь ω_{tr} – частота перехода с первого дефектного уровня на основной уровень, f_{tr} – сила осциллятора, соответствующая переходу на дефектный уровень.

3.4. Метод на основе эффекта вырожденного четырехволнового смешения

Эффект четырехволнового смешения может быть использован для определения нелинейного коэффициента преломления в оптических материалах [4].

Если три когерентных волны одинаковой частоты падают на нелинейную среду, то, как результат их нелинейного взаимодействия, генерируется четвертая, сигнальная волна. Амплитуда этой волны зависит от коэффициента связи, пропорционального $\chi^{(3)}$, что дает возможность путем измерения интенсивности фазово-сопряженной волны вычислить компоненты тензора $\chi^{(3)}$ исследуемой среды.

Наиболее часто используется экспериментальная схема с обратной геометрией пучков (Рис.3.11), в которой волны накачки являются коллинеарными, но противоположно направленными. Холостая волна падает на нелинейный образец под малым углом. При взаимодействии трех волн в кубично-нелинейной среде наводится периодическая модуляция показателя преломления (решетка), в результате чего происходит формирование отраженной от этой решетки сигнальной волны.



Рис.3.11. Прямая (F) и обратная волны (B) накачки, холостая (P) и сигнальная (C) волны.

Электрическое поле падающих на среду волн можно записать в следующем виде:

$$E_i(\vec{r}, t) = A_i(\vec{r})e^{i(\vec{k}_i\vec{r}-\omega t)}, i = 1, 2, 3. \quad (3.18)$$

Компонента нелинейной поляризации третьего порядка на частоте ω :

$$P_i^{(3)} = 6\chi_{eff}^{(3)} A_j A_k A_l^* e^{i(\vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{k}_3)\cdot\vec{r}}. \quad (3.19)$$

Волна поляризации распространяется в направлении $\vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{k}_3$, где волновые векторы \vec{k}_1 и \vec{k}_2 соответствуют прямой и обратной волнам накачки, а \vec{k}_3 - волновой вектор холостой волны. Индексы j, k, l соответствуют компонентам полей прямой, обратной и холостой волн, соответственно. Поскольку волны накачки распространяются навстречу друг другу, $\vec{k}_1 + \vec{k}_2 = 0$, и нелинейная поляризация принимает вид:

$$P_i^{(3)} = 6\chi_{eff}^{(3)} A_j A_k A_l^* e^{i(-\vec{k}_3)\cdot\vec{r}}. \quad (3.20)$$

Таким образом, волна поляризации и сигнальная волна распространяются в направлении, противоположном холостой волне.

Распространение холостой и сигнальной волн можно описать в рамках метода медленно меняющихся амплитуд в приближении заданного поля накачки. Выберем направление оси z вдоль \vec{k}_3 и \vec{k}_4 , запишем выражения для полей в виде:

$$E_3(z, t) = A_3(z)e^{i(kz - \omega t)} \quad (3.21a)$$

$$E_4(z, t) = A_4(z)e^{i(-kz - \omega t)} \quad (3.21б)$$

и получим уравнения:

$$\frac{dA_4}{dz} = -i\kappa A_3^* \quad (3.22a)$$

$$\frac{dA_3}{dz} = i\kappa A_4^* \quad (3.22б)$$

где коэффициент связи

$$\kappa = \frac{12\pi\omega^3}{kc^2} \chi^{(3)} A_1 A_2 \quad (3.33)$$

При получении уравнений (3.22) предполагалось, что угол между волнами накачки и сигнальной волной очень мал.

Для граничных условий $A_3(0) \neq 0$, $A_4(L) = 0$ получим решения уравнений (3.22):

$$A_3(z) = \frac{\cos[|\kappa|(z-L)]}{\cos(|\kappa|L)} A_3(0) \quad (3.34a)$$

$$A_4(z) = -\frac{i\kappa \sin[|\kappa|(z-L)]}{|\kappa| \cos(|\kappa|L)} A_3^*(0) \quad (3.34б)$$

Измерения нелинейной восприимчивости производятся в сравнении с эталонным материалом с известными значениями нелинейной восприимчивости. Относительные измерения нелинейности третьего порядка проводятся при одинаковых условиях для образца и для эталона – с точностью до коэффициента пропорциональности, одинакового в обоих измерениях – что даст возможность выразить восприимчивость образца через значение восприимчивости эталона. Коэффициент пропорциональности может быть записан в виде

$$R = aP_{pump}^2 \quad (3.35)$$

где P_{pump} – средняя мощность накачки. Восприимчивость образца вычисляется по формуле:

$$\chi_{eff}^{(3)} = \left(\frac{n_0}{n_{ref}} \right)^2 \left(\frac{L_{ref}}{L} \right) \left(\frac{a}{a_{ref}} \right)^{1/2} \chi_{ref}^{(3)} \quad (3.36)$$

3.5. Метод на основе эффекта генерации третьей гармоники

Эффект четырехволнового смешения может быть реализован как генерация третьей гармоники для определения нелинейной восприимчивости $\chi^{(3)}(3\omega)$. Как видно из формулы для интенсивности третьей гармоники (1.11), модуль $\chi^{(3)}(3\omega)$ может быть рассчитан на основании результатов измерения выходной мощности третьей гармоники, если известны входящие в (1.11) величины $I_1^3(0)$, k_3 , и др. Зависимость $I_3(z)/I_1^3(0) \sim \sin(\Delta k z/2)$ в функции для интенсивности выглядит как последовательность максимумов (Рис.3.12а), известных как биения Мейкера [11, 12]. Обычно их получают вращением плоскопараллельного образца оптического стекла относительно оптической оси системы. Эффективная толщина образца в этом случае равна $l=d \cdot \cos\theta_i$, где d – толщина образца, а θ_i – угол между нормалью к поверхности образца и направлением распространения луча (рис. 3.12б).

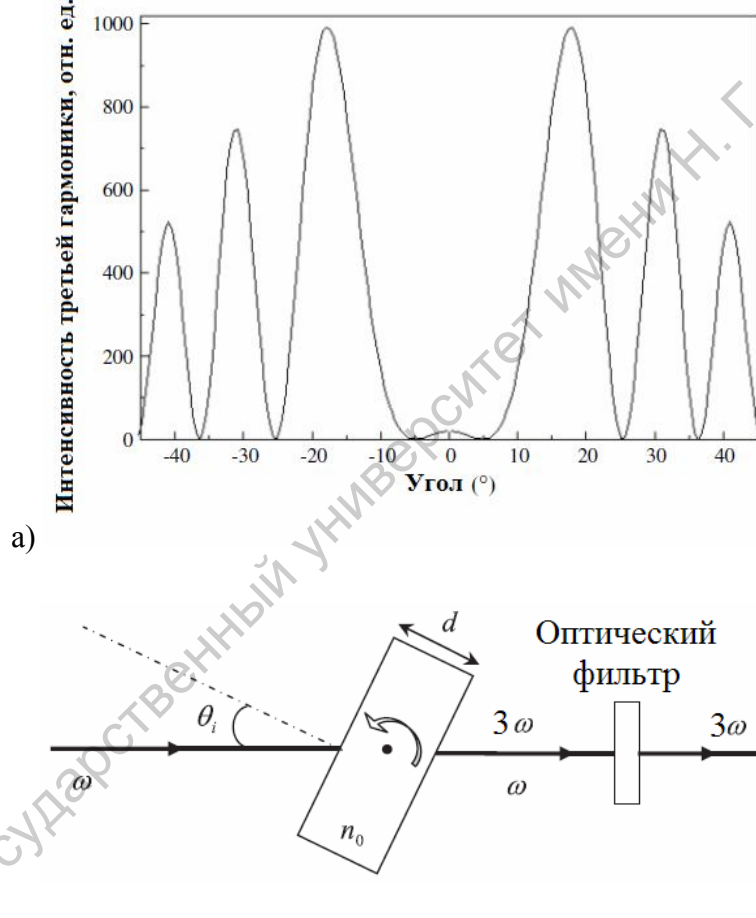


Рис.3.12. Интенсивность третьей гармоники (а), и принцип ее измерения при вращении образца (б).

Биения Мэйкера первоначально наблюдались в экспериментах с кристаллическими пластинками при генерации второй гармоники. Однако такие биения можно получить и в экспериментах с аморфными веществами (оптическими стеклами). В этом случае генерация второй гармоники отсутствует, т.к. $\chi^{(2)}=0$. Биения Мейкера наблюдаются при генерации третьей гармоники [13].

Прямое измерение величины нелинейной восприимчивости затруднено, т.к. для этого требуется знать точное значение интенсивности лазерного излучения внутри образца.

Чтобы избежать ошибок, связанных с неточным определением интенсивности внутри образца, пользуются сравнением с результатами измерений для образца с известным $\chi^{(3)}$. Обозначим величину нелинейной восприимчивости для образца с известной нелинейной восприимчивостью как $\chi_S^{(3)}$. Например, для плавленного кварца $\chi_S^{(3)} = 2.0 \times 10^{-22} \text{ м}^2 \text{ В}^{-2}$ при $\lambda = 1060 \text{ нм}$. Если считать, что линейное поглощение в образце очень мало, то отношение нелинейной восприимчивости образца $\chi^{(3)}$ к восприимчивости пластинки из плавленного кварца $\chi_S^{(3)}$ определяется уравнением

$$\frac{\chi^{(3)}}{\chi_S^{(3)}} = \frac{2}{\pi} \frac{L_{c,S}}{l} \sqrt{\frac{I^{3\omega}}{I_S^{3\omega}}},$$

где $\chi^{(3)}$ – нелинейная восприимчивость исследуемого образца, $\chi_S^{(3)}$ – нелинейная восприимчивость известного материала, $L_{c,S} = 2\pi c \omega^{-1} [6(n_{3\omega} - n_\omega)]^{-1}$ – длина когерентности, $n_{3\omega}$, n_ω – линейные показатели преломления известного материала на частоте 3ω и ω , $l = d \cdot \cos\theta_i$ – эффективная толщина пластинки, $I^{3\omega}$, $I_S^{3\omega}$ – интенсивность третьей гармоники для исследуемого образца и образца из известного материала.

Схема экспериментальной установки для регистрации биений Мейкера при повороте пластинки показана на рис.3.13 [14].

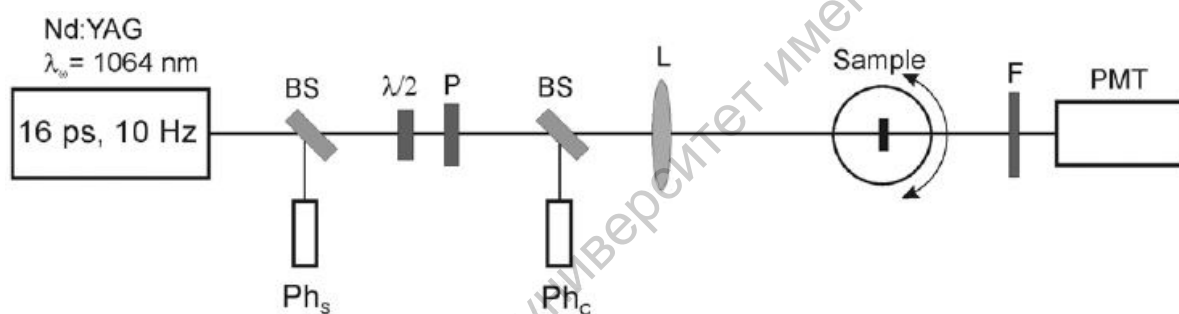


Рис. 3.13 Схема установки [14].

На схеме (рис.3.13) в качестве источника лазерного излучения показан Nd:YAG лазер. Излучение от этого лазера направляется на делительную пластинку BS, фотодиод Ph_s используется для синхронного детектирования сигнала, фотодиод Ph_c измеряет мощность лазерного излучения, пластинка $\lambda/2$ и поляризатор P используются для регулировки мощности лазерного излучения, попадающего на образец (Sample). Линза L фокусирует излучение в образец. Фильтр F отсекает излучение на основной гармонике ω и пропускает излучение на частоте 3ω , которое регистрируется фотоумножителем PMT. При вращении образца интенсивность излучения на частоте 3ω меняется в соответствии с законом (1.11).

Заключение

Данное пособие предназначено для ознакомления с методами исследования нелинейных свойств оптических материалов. Пособие представляет собой систематическое изложение теоретических основ и экспериментальных подходов к определению коэффициентов нелинейности второго и третьего порядков. Для изотропных веществ наиболее важным является определение нелинейного коэффициента преломления, определение нелинейных коэффициентов многофотонного поглощения. Данные коэффициенты связаны с нелинейной восприимчивостью третьего порядка и многофотонным поглощением. Измерение нелинейных коэффициентов опирается на прочно установленные явления – генерация третьей гармоники, самофокусировки, нелинейное поглощение. Данные явления хорошо изучены, однако их использование при экспериментальной реализации методов измерения требует применения особых методов. В пособии рассмотрены три основных метода – метод генерации третьей гармоники, метод Z-сканирования, метод неколлинеарного вырожденного четырехволнового смещения, метод зондирования пробным импульсом. Авторы стремились к тому, чтобы читатели усвоили основные теоретические принципы, овладели языком изучаемого предмета, познакомились с рядом явлений и их применением, и были подготовлены к чтению специальной оригинальной и монографической литературы.

Библиографический список

1. Шен И.Р. Принципы нелинейной оптики. М.:Наука, 1989. 559 с.
2. Сидоров, Н.К. Введение в волновую нелинейную оптику. Саратов, Издательство Саратовского Университета, 1991. 264 с.
3. Chenan Xia, Zhao Xu, Mohammed N. Islam, Fred L. Terry, Jr., Mike J. Freeman, Andy Zakel, Jeremiah Mauricio, 10.5 W Time-Averaged Power Mid-IR Supercontinuum generation extending beyond 4 μm with direct pulse pattern modulation // IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics. 2009. V. 15, P. 2209.
4. A. Zakery, S.R. Elliott. Optical Nonlinearities of chalcogenide glasses and their Applications. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2007. 201 p.
5. Ахманов С.А., Вислоух В.А., Чиркин А.С. Оптика фемтосекундных лазерных импульсов. М.: Наука, 1988. 312 с.
6. Sheik-Bahae M., Hutchings D. C., Hagan D. J., Van Stryland E. W. Dispersion of Bound Electronic Nonlinear Refraction in Solids // IEEE Journal of Quantum Electronics 1991. V.27. No. 6. P. 1296-1309.
7. Kang I., Krauss T., Wise F. Sensitive measurement of nonlinear refraction and two-photon absorption by spectrally resolved two-beam coupling // Opt. Lett. 1997. V. 22. P. 1077-1079.
8. Krauss T. D., Wise F. W. Femtosecond measurement of nonlinear absorption and refraction in CdS, ZnSe, and ZnS // Appl. Phys. Lett. 1994. V. 65. P.1739-1741.
9. Guizard S., Mao S.S., Quere F., Mao X., Russo R.E., Petite G., Martin P. Dynamics of femtosecond laser interactions with dielectrics // Applied Physics A. 2004. V. 79. P. 1695–1709.
10. Kanbara H., Fujiwara S., Tanaka K., Nasu H., Hirao K. // Appl. Phys. Lett. 1997. V. 70. P. 1925.
11. Maker P., Terhune R., Nisenoff M. and Savage C. Effects of dispersion and focusing on the production of optical harmonics. // Phys. Rev. Lett. 1962. V. 8. P. 21.
12. Jerphagnon J., Kurtz S. Maker fringes: a detailed comparison of theory and experiment for isotropic and uniaxial crystals. // J. Appl. Phys. 1970. V. 40. P.1667.
13. Wang X. H., West D. P., McKeown N. B. and King T. A., Determining the cubic susceptibility χ^3 of films or glasses by the Maker fringe method: a representative study of spin-coated films of copper phthalocyanine derivation // J. Opt. Soc. Am. B. 1998. V.15. P. 1895.
14. Sahraoui B., Luc J., Meghea A., Czaplicki R., Fillaut J-L., Migalska-Zalas A. Nonlinear optics and surface relief gratings in alkynyl–ruthenium complexes // J. Opt. A: Pure Appl. Opt. 2009. V.11. 024005.

Оглавление

1	Введение	2
1.	Нелинейно-оптические эффекты третьего порядка	
1.1	Нелинейная поляризация диэлектрика	3
1.2	Эффект самоиндуцированной рефракции	5
1.3	Генерация третьей гармоники	7
1.4	Четырехволновое смешение	9
1.5	Многофотонное поглощение	11
2	Основные параметры оптических импульсов	14
3	Экспериментальные методы исследования нелинейных свойств оптических материалов	
3.1	Метод Z-сканирования	16
3.2	Двухимпульсный спектральный метод «накачка-зондирование»	18
3.3	Трехимпульсный интерферометрический метод «накачка-зондирование»	21
3.4	Метод на основе эффекта вырожденного четырехволнового смешения	24
3.5	Метод на основе эффекта генерации третьей гармоники	26
	Заключение	28
	Библиографический список	