

УДК 535.135

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ И РАСЧЕТ ЭФФЕКТИВНОСТИ ГЕНЕРАЦИИ ВТОРОЙ ОПТИЧЕСКОЙ ГАРМОНИКИ В ДОМЕННЫХ СТРУКТУРАХ НИОБАТА ЛИТИЯ

С.Д. Лавров, аспирант

Московский технологический университет, Москва, 107076 Россия

@Автор для переписки, e-mail: sdlavrov@mail.ru

В работе представлены экспериментальные и теоретические результаты исследования нелинейно-оптических свойств доменных структур ниобата лития, созданных с помощью сфокусированного электронного пучка. Экспериментальные результаты получены с помощью методики сканирующей конфокальной микроскопии, позволяющей проводить неdestructивный анализ геометрических объемных параметров доменных структур, благодаря высокой чувствительности второй оптической гармоники к сегнето-электрической поляризации исследуемого материала. Показано наличие периодического сигнала мощности второй оптической гармоники в местах расположения доменных структур. На основе модели Бойда произведено численное моделирование мощности второй оптической гармоники в объеме кристалла с учетом фокусировки оптического излучения в его объеме. Показано согласование полученных теоретических и экспериментальных результатов. Продемонстрирована возможность определения объемных параметров доменных структур с помощью конфокальной нелинейно-оптической микроскопии.

Ключевые слова: доменные структуры, нелинейно-оптическая микроскопия, моделирование второй оптической гармоники.

CALCULATION OF THE OPTICAL SECOND HARMONIC GENERATION EFFICIENCY IN THE LITHIUM NIOBATE DOMAIN STRUCTURES

S.D. Lavrov

Moscow Technological University, Moscow, 107076 Russia

@Corresponding author, e-mail: sdlavrov@mail.ru

The paper presents the experimental and theoretical study results of nonlinear optical properties of lithium niobate domain structures created by a focused electron beam. The presence of a second optical harmonic periodic signal in the locations of the domain structures is shown. The numerical simulation of the second harmonic optical power was done based on the model of Boyd. The possibility of determining the volumetric parameters of domain structures using nonlinear confocal optical microscopy is shown.

Keywords: domain structure, nonlinear optical microscopy, optical second harmonic simulation.

Упорядоченные сегнетоэлектрические доменные структуры в настоящее время представляют большой интерес для приборов оптоэлектроники. Одним из самых распространенных материалов, используемых в доменной инженерии, является ниобат лития (LiNbO_3). На его основе создаются такие оптические приборы как преобразователи оптических частот [1], высокоскоростные оптические модуляторы для телекоммуникационных систем [2, 3] и целый ряд других устройств.

Целью настоящей работы является выявление особенностей формирования микронных по толщине доменных структур в волноводном слое монокристаллического образца LiNbO_3 и моделирование оптических свойств полученных структур.

Экспериментальная часть

Исследуемый образец представлял собой объемный монокристалл ниобата лития (LiNbO_3) Y-среза толщиной 2 мм. С помощью метода ионной имплантации в приповерхностном слое кристалла был создан оптический волновод, ограничивающий область пространства, в котором происходит распространение оптического излучения [4]. Кроме того, волноводный слой является препятствием для роста доменных структур, что связано с наличием дефектов на его границе.

С помощью сфокусированного электронного луча осуществлено локальное облучение поверхности кристалла. Такое локальное облучение приводит к сегнетоэлектрическому переключению поляризации в структуре – росту доменов вдоль полярной оси Z.

В исследуемой структуре глубина «прорастания» доменов ограничена волноводным слоем и поэтому не превышала 4 мкм. При этом максимальная толщина доменов в объеме LiNbO_3 достигалась только в местах экспонирования сфокусированным электронным лучом.

В качестве источника оптического излучения использовали титан-сапфировый фемтосекундный лазер TiF-100 производства «Авеста-Проект» с длиной волны накачки 800 нм, длительностью импульсов 80 фс и частотой следования импульсов 80 МГц. Лазерное излучение направляли в сканирующий конфокальный оптический микроскоп alpha300s+ производства «WITec» и фокусировали на исследуемом образце с помощью ахроматического объектива с числовой апертурой, равной 0.75. Направление поляризации лазерного излучения выбирали перпендикулярным доменным структурам. Исследуемый образец фиксировали на сканирующем пьезостолике микроскопа, который можно перемещать в пространстве.

Лазерное излучение, отраженное от образца, и излучение второй гармоники (ВГ), сформированное образцом, собирали объективом в обратном направлении, после чего оно проходило через набор notch-фильтров. Эти фильтры позволяют выделить из оптического спектра только излучение ВГ. Далее излучение ВГ через многомодовое оптическое волокно, выполняющее роль диафрагмы, направляли во встроенный в микроскоп фотоэлектронный умножитель (ФЭУ). Таким образом, при последовательном перемещении столика и детектировании сигнала с помощью ФЭУ возможно получение распределения мощности ВГ как по поверхности, так и в объеме исследуемого образца.

Результаты и их обсуждение

При варьировании положения точек облучения на поверхности образца и изменении параметров электронного пучка возможно создание целого набора различных структур

– например, периодических решеток. Таким образом, можно точно задавать такие параметры доменов, как глубина, ширина, длина, положение в пространстве и т. д.

Рост доменов вдоль полярной оси Z сопровождается равномерным уменьшением толщины домена [5]. Принципиальная схема роста доменов приведена на рис. 1.

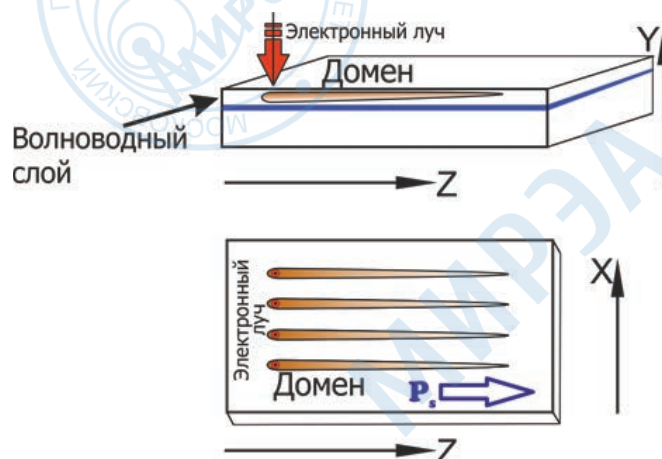


Рис. 1. Схема упорядоченных доменных структур, полученных при помощи облучения поверхности Y-среза монокристалла электронным пучком.

Для исследования доменных структур используется большое количество методов и методик. Самыми распространенными являются методы селективного химического травления, пироэлектрического зонда, сканирующей электронной микроскопии, нематических жидких кристаллов и сканирующей зондовой микроскопии. Однако не все из них применимы для неdestructивного исследования объемных свойств доменных структур.

В данной работе для исследования параметров доменных структур использована методика нелинейно-оптической конфокальной микроскопии. Обладая высоким пространственным разрешением и не являясь деструктивной, нелинейно-оптическая микроскопия позволяет получать информацию об объемных свойствах исследуемых доменных структур на основе LiNbO_3 , благодаря их высокой оптической прозрачности. Основные принципы экспериментальной методики, использованной в данной работе, основаны на классическом подходе, разработанном Уэсу [6, 7].

Экспериментальные результаты по картированию ВГ представлены на рис. 2. На изображении отчетливо видны протяженные темно-светлые полосы, отвечающие положению доменных решеток. Зеленым прямоугольником отмечено место локального облучения структуры электронным пучком. Рост доменов происходил направо от места облучения вдоль полярной оси Z . Очевидно (рис. 2), что при одинаковых условиях экспонирования длина доменов различна, вероятно, вследствие структурной неоднородности кристалла. Также очевидна периодичность сигнала ВГ вдоль каждого из доменов. Наблюдаемый эффект обусловлен уменьшением толщины домена вдоль полярной оси Z .

Сечения вдоль нескольких доменов (отмечены цифрами 1–3) представлены на рис. 3. Период интенсивности ВГ вдоль доменов в исследованном образце мог варьироваться от 4 до 15 мкм.

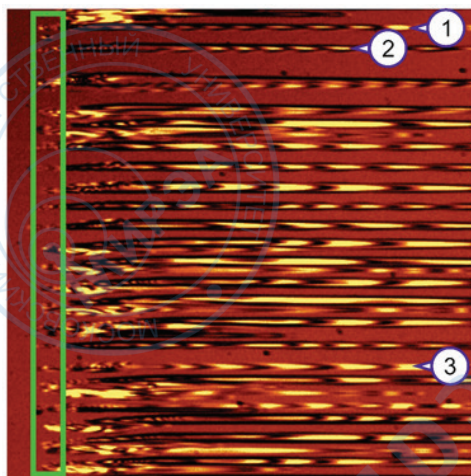


Рис. 2. Распределение сигнала ВГ на поверхности доменных структур LiNbO_3 , полученное методом нелинейно-оптической конфокальной микроскопии; зеленым прямоугольником отмечены места локального облучения структуры электронным пучком; цифрами указаны исследуемые домены.

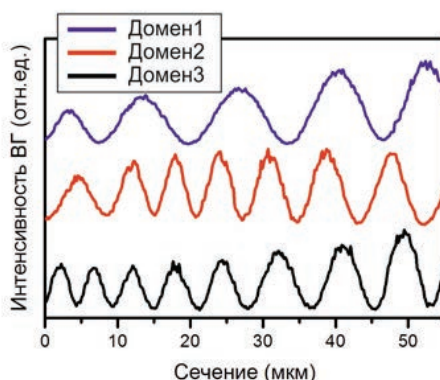


Рис. 3. Сечение доменных структур, приведенных на рис. 2.

Теоретическое моделирование нелинейно-оптических процессов, происходящих в объеме нелинейно-оптических материалов, и их сравнение с экспериментальными результатами выполняли и ранее [8, 9]. Однако в указанных работах не учитывали наличие периодической доменной структуры с переменной толщиной доменов.

В основе теоретической оценки интенсивности генерации второй оптической гармоники в объеме доменных структур использовали модель Бойда [10]. Согласно этой модели, генерация ВГ будет происходить только на границах нелинейно-оптического материала, а в объеме – отсутствовать. Этот эффект вызван скачком фазы излучения накачки при прохождении через точку фокуса (сдвиг фазы Гойи) [11].

На интенсивность распределения сигнала ВГ оказывают влияние интерференционные эффекты. Однако в данном случае из-за жесткой фокусировки лазерного излучения и достаточно толстого волноводного слоя интерференционный вклад незначителен.

Вывод основных выражений для численного описания мощности генерации ВГ, приведенных в настоящей работе и полученных с использованием вышеуказанной модели, приведен ниже.

Запишем стандартное волновое уравнение, вытекающее из уравнений Максвелла, действительное для различных частотных компонент поля:

$$\nabla^2 \tilde{E}_n - \frac{1}{(c/n)^2} \frac{\partial^2 \tilde{E}_n}{\partial t^2} = \frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \tilde{P}_n}{\partial t^2} \quad (1)$$

где $\tilde{E}_n$ – напряженность электрического поля (индекс n отвечает за частотные компоненты);

$\tilde{P}_n$ – вектор поляризации вещества;

c – скорость света в вакууме;

n – показатель преломления вещества;

ε_0 – диэлектрическая постоянная.

Напряженность электрического поля и вектор поляризации можно представить здесь в следующем виде [12]:

$$\begin{aligned} \tilde{E}_n(r, t) &= A_n(r) e^{i(k_n z - \omega_n t)} + C \\ \tilde{P}_n(r, t) &= p_n(r) e^{i(k_n' z - \omega_n t)} + C \end{aligned} \quad (2)$$

Здесь комплексные амплитуды A_n и p_n являются пространственно-зависимыми, что позволяет учитывать волны сложной формы. Учитывается также возможность различия волновых векторов k_n и k_n' , что позволяет описать волновое рассогласование.

Подставив выражения (2) в выражение (1), осуществив переход к цилиндрической системе координат и используя приближение медленно меняющихся амплитуд, получим:

$$2ik_n \frac{\partial A_n}{\partial z} + \nabla_T^2 A_n = -\frac{\omega_n^2}{\varepsilon_0 c^2} p_n e^{i\Delta k z} \quad (3)$$

где $\Delta k = k_n' - k_n$.

Данное выражение принято называть параксиальным волновым выражением.

Для описания распределения интенсивности полей в пространстве необходимо ввести Гауссову функцию [13]. В краткой форме ее удобно записать так:

$$A(r, z) = \frac{\mathcal{A}}{1 + iz/z_R} e^{-r^2/w_0^2(1 + iz/z_R)} \quad (4)$$

где w_0 – радиус перетяжки лазерного излучения;

Z_R – длина Рэлея.

Радиус перетяжки лазерного излучения для высокоапертурных иммерсионных объективов оценивается по следующей формуле:

$$w_0 = \frac{1.22\lambda}{4n_0} \sqrt{(n_0 / NA)^2 - 1} \quad (5)$$

где λ – длина волны;

n_0 – показатель преломления иммерсионного масла;

NA – числовая апертура объектива.

Чтобы рассчитать полную мощность гауссова пучка, необходимо вычислить интеграл поперечного распределения интенсивности $P = \int I 2\pi r dr$. Учитывая, что интенсивность определяется выражением $I = 2n\epsilon_0 c |A|^2$, можно записать общую мощность гауссова пучка P как [14]:

$$P = n\epsilon_0 c \pi w_0^2 |A|^2 \quad (6)$$

Далее необходимо рассмотреть генерацию ВГ под действием гауссова пучка накачки. Для этого вводим коэффициент нелинейной восприимчивости χ . Преобразуем выражение (3), представив комплексную амплитуду поляризации в виде:

$$p_2 = \epsilon_0 \chi A_1^2 \quad (7)$$

где χ – нелинейная восприимчивость среды;

A_1 – комплексная амплитуда излучения накачки.

В итоге выражение (3) примет следующую форму:

$$2ik_2 \frac{\partial A_2}{\partial z} + \nabla_r^2 A_2 = -\frac{\omega_2^2}{c^2} \chi A_1^2 e^{i\Delta k z} \quad (8)$$

При этом волновое рассогласование будет определяться следующим образом:

$$\Delta k = 2k_1 - k_2 \quad (9)$$

Подставив в выражение (8) амплитуды гауссовых пучков накачки и ВГ из выражения (4), получим следующую функцию:

$$\frac{dA_2}{dz} = \frac{i\omega}{n_2 c} \chi A_1^2 \frac{e^{i\Delta k z}}{1 + iz / z_R} \quad (10)$$

После интегрирования данного выражения, амплитуда интенсивности ВГ принимает вид:

$$A_2(z) = \frac{i\omega}{n_2 c} \chi A_1^2 J(zf, d, \Delta k, z_R) \quad (11)$$

где функция $J(z_f, d, \Delta k, z_R)$ представлена в виде [15,16]:

$$J(z_f, d, \Delta k, z_R) = \int_{-z_f}^{-z_f+d} \frac{e^{i\Delta k z} dz}{1 + iz / z_R} \quad (12)$$

В данном выражении пределы интегрирования выбраны, исходя из координаты положения точки фокуса объектива z_f и толщины доменной структуры d . При этом считается, что образец полубесконечный. Схема фокусировки оптического излучения представлена на рис. 4.

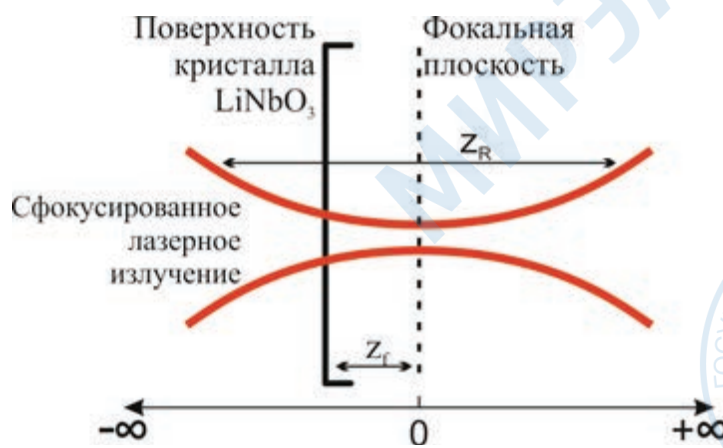


Рис. 4. Схема фокусировки оптического излучения.

Для перевода интенсивности ВГ (11) в мощность необходимо использовать выражение (6). Следует учитывать, что генерация ВГ происходит во всей области перетяжки w_0 для излучения накачки, поэтому разница в значениях радиусов перетяжки для разных длин волн не дает никакого вклада. Итоговая формула имеет вид:

$$P_2 = \frac{|\chi|^2}{\pi w_0^2} \frac{\omega^2}{n_1^2 n_2^3 \epsilon_0} P_1^2 |J(\Delta k, z_0, z)|^2 \quad (13)$$

Приведенное выражение позволяет количественно оценить мощность генерации ВГ в рассматриваемых структурах LiNbO_3 . Однако данная модель не учитывает все особенности экспериментальной установки, такие как диаметр конфокальной апертуры, спектральная чувствительность фотоэлектронного умножителя, режимы работы синхронного детектора, световые aberrации и эффективность распространения оптического излучения в системе. Для более аккуратной оценки необходимо проводить сравнение с нормировочным образцом, параметры генерации ВГ в котором известны (например, кварц). В то же время особенности исследуемого образца (наличие волноводного слоя, периодических доменов и т.д.) не позволяют осуществить это в полной мере, и в приведенных теоретических результатах значение мощности ВГ дано в относительных единицах.

В выполненных нами расчетах значения коэффициентов преломления выбраны $n_1 = 2,176$; $n_2 = 2,331$, согласно работе [17]. Варьируемыми параметрами, влияющими на

мощность ВГ в данном случае, являются числовая апертура объектива, толщина домена и положение фокальной плоскости. Числовая апертура объектива является фиксированной величиной и определяется выбором фокусирующей системы в ходе эксперимента. Как показано в экспериментальной части работы, мы использовали объектив с NA , равной 0.75.

Используя формулу (13) для доменных структур LiNbO_3 , можно получить набор зависимостей для оценки мощности ВГ, принимая положение фокуса объектива z_f и толщину доменной структуры d в качестве переменных. На ее основе построена зависимость мощности ВГ от толщины отдельного домена (рис. 5).

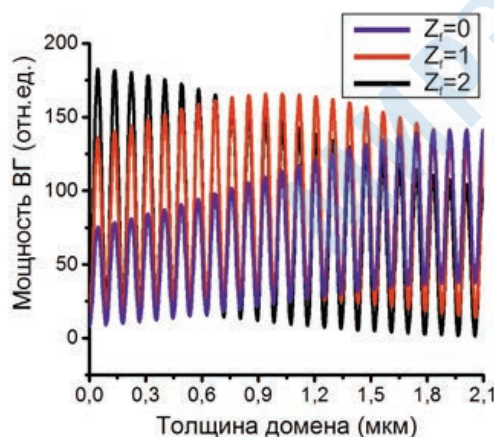


Рис. 5. Зависимость мощности ВГ от толщины отдельного домена.

Полученная функция является периодической с фиксированным периодом, равным 90 нм. При этом изменение положения фокальной плоскости не влияет на период и отвечает только за положение максимума огибающей данной функции.

Для определения влияния глубины фокуса на мощность ВГ построена также зависимость, представленная на рис. 6. Количественные значения толщин доменов выбраны согласно рис. 5 – использовались максимумы периодической функции. Отрицательная область на графике соответствует фокусировке перед образцом, положительная – в объеме образца (см. рис. 4).

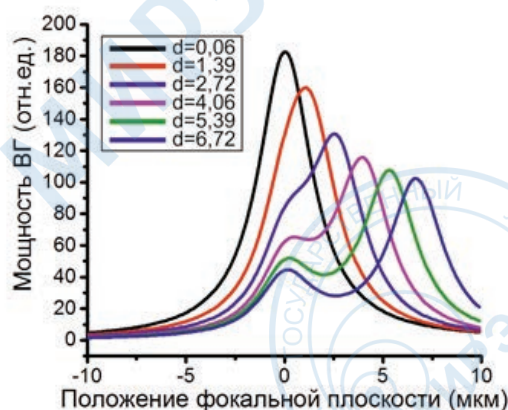


Рис. 6. Моделирование мощности ВГ при варьировании значений толщины домена и положения фокальной плоскости.

Согласно зависимостям на рис. 6, при увеличении толщины домена происходит сдвиг максимума мощности ВГ в фокальной плоскости. Достижение определенной толщины доменной структуры (4 мкм) сопровождается появлением дополнительного максимума ВГ, что связано с эффективной генерацией ВГ на обратной границе доменной структуры. В случае больших значений толщины домена происходит разделение пиков, причем мощность ВГ второго пика больше. Данный эффект связан с увеличенной плотностью мощности в объеме кристалла, что вызвано меньшим диаметром пучка излучения в объеме кристалла.

Для наглядной визуализации зависимости мощности ВГ построена двумерная зависимость от глубины фокуса z_f и толщины домена d (рис. 7). Характер построенных теоретических зависимостей качественно совпадает с экспериментальными результатами, что подтверждает работоспособность представленной модели.

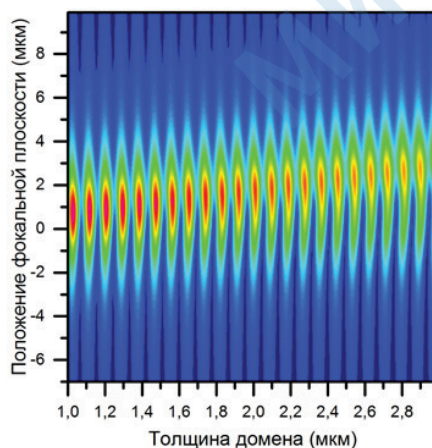


Рис. 7. Моделирование мощности ВГ при варьировании значений толщины домена и положения фокальной плоскости.

Заключение

Полученная нами модель позволяет описать периодические изменения мощности второй оптической гармоники в объемных доменных структурах LiNbO_3 . На основе полученных результатов возможно определить оптимальные геометрические параметры фокусирующей системы и доменных структур для максимальной эффективности генерации второй гармоники.

Литература:

1. Myers L.E. [et al.] Quasi-phase-matched optical parametric oscillators in bulk periodically poled LiNbO_3 // J. Opt. Soc. Am. B. 1995. V. 12, № 11. P. 2102–2116.
2. Wooten E.L. [et al.] A review of lithium niobate modulators for fiber-optic communications systems // IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. 2000. V. 6, № 1. P. 69–82.
3. Lucchi F. [et al.] Very low voltage single drive domain inverted LiNbO_3 integrated electro-optic modulator // Opt. Express. 2007. V. 15, № 17. P. 10739–10743.
4. Chen F. Micro- and submicrometric waveguiding structures in optical crystals produced by ion beams for photonic applications // Laser Photon. Rev. 2012. V. 6, № 5. P. 622–640.

5. Volk T.R. [et al.] Microdomain patterns recorded by an electron beam in he-implanted optical waveguides on X-Cut LiNbO₃ crystals // J. Light. Technol. 2015. V. 33, № 23. P. 4761–4766.
6. Uesu Y. [et al.] 3D images of inverted domain structure in LiNbO₃ using SHG interference microscope // Ferroelectrics. 2004. V. 304, № 1. P. 99–103.
7. Kaneshiro J. [et al.] Three-dimensional observations of polar domain structures using a confocal second-harmonic generation interference microscope // J. Appl. Phys. 2008. V. 104, № 5. P. 1–7.
8. Stoller P. [et al.] Quantitative second-harmonic generation microscopy in collagen // Appl. Opt. 2003. V. 42, № 25. P. 5209–5219.
9. Stoller P. [et al.] Polarization-modulated second harmonic generation in collagen // Biophys. J. 2002. V. 82, № 6. P. 3330–3342.
10. Boyd R.W. Nonlinear Optics. 3rd Edition. Academic Press, 2008. 613 p.
11. Feng S., Winful H.G. Physical origin of the Gouy phase shift. // Opt. Lett. 2001. V. 26, № 8. P. 485–487.
12. Byer R.L. Nonlinear optical phenomena and materials // Annu. Rev. Mater. Sci. 1974. V. 4. P. 147–190.
13. Kleinman D.A., Ashkin A., Boyd G.D. Second-harmonic generation of light by focused laser beams // Phys. Rev. 1966. V. 145, № 1. P. 338–379.
14. Byer R.L., Herbst R.L. Parametric oscillation and mixing // Nonlinear Infrared Gener. 1977. P. 81–137.
15. Kaneshiro J., Uesu Y., Fukui T. Visibility of inverted domain structures using the second harmonic generation microscope: Comparison of interference and non-interference cases // J. Opt. Soc. Am. B. 2010. V. 27, № 5. P. 888.
16. Yokota H., Kaneshiro J., Uesu Y. Optical second harmonic generation microscopy as a tool of material diagnosis // Phys. Res. Int. 2012. V. 2012.
17. Palik E.D. Handbook of Optical Constants of Solids. Academic Press, 1998. 804 p.