

# ОПТИЧЕСКОЕ МАТЕРИАЛОВЕДЕНИЕ И ТЕХНОЛОГИЯ

УДК 535.8, 535.4

## ИССЛЕДОВАНИЕ ЛОКАЛЬНЫХ НЕОДНОРОДНОСТЕЙ ТЕНЗОРА КВАДРАТИЧНОЙ НЕЛИНЕЙНОЙ ВОСПРИИМЧИВОСТИ $\Delta\chi^{(2)}$ В КРИСТАЛЛАХ КТиОРО<sub>4</sub>

© 2009 г. **В. Н. Войцеховский**, канд. геол.-мин. наук; **И. В. Мочалов**, доктор физ.-мат. наук;  
**В. Э. Якобсон**

Научно-исследовательский и технологический институт оптического материаловедения  
ВНЦ “ГОИ им. С.И. Вавилова”, Санкт-Петербург

E-mail: Jacobson@goi.ru

Исследованы локальные неоднородности тензора квадратичной нелинейной восприимчивости  $\Delta\chi^{(2)}$  в кристалле КТиОРО<sub>4</sub> (КТР). Предложен метод визуализации нелинейно-оптических неоднородностей, позволяющий выявлять в кристалле монодоменные области. Метод основан на анализе интерференционной картины второй гармоники, генерируемой в КТиОРО<sub>4</sub> сильно расходящимся лазерным лучом. Установлена связь нелинейно-оптической однородности пирамид роста граней {201} и {100} с механизмами их роста.

**Ключевые слова:** КТиОРО<sub>4</sub>, монодоменный, нелинейно-оптическая однородность, тензор квадратичной нелинейной восприимчивости.

Коды OCIS: 190.4400

Поступила в редакцию 19.03.2009

Среди известных нелинейно-оптических материалов кристаллы титанилфосфата калия (КТР) являются одними из самых востребованных. Благодаря высоким значениям тензора квадратичной нелинейной восприимчивости  $\chi^{(2)}$  кристалл обеспечивает эффективное преобразование частоты лазерного излучения. Нелинейные элементы из КТР широко используются в различных устройствах, где необходимо получение излучения второй гармоники неодимовых лазеров или реализация параметрической генерации в ближней инфракрасной (ИК) и видимой областях спектра. Кристаллы КТР имеют ацентричную орторомбическую структуру и принадлежат к точечной группе симметрии  $tt\bar{2}$  (пространственная группа  $Pna2_1$ ).

В КТР наряду с секториальной и зонарной неоднородностями, связанными главным образом с неоднородным вхождением в кристалл примесей, возможно наличие областей с антипараллельным направлением полярной оси – 180°-ных сегнетоэлектрических доменов [1]. Присутствие таких областей в объеме нелинейного элемента значительно понижает эффективность преобразования лазерного излучения, однако их обнаружение

рентгеновскими и известными оптическими методами невозможно, так как поворот оптической индикатрисы на 180° не меняет параметров проходящего света. Детектирование 180°-ных доменов требует применения методов идентификации полярных неоднородностей, не связанных с линейной оптикой, таких как селективное травление и декорирование поверхности [2]. В то же время поворот оптической оси кристалла в каждом последующем домене на 180° фактически означает смену знака  $\chi^{(2)}$ , что можно зафиксировать с помощью таких достаточно дорогих и трудоемких методов как электрооптический [3], АС-микроскопия и динамический пироэффект [3, 4]. Смена знака  $\chi^{(2)}$  (без изменения величины тензора линейной восприимчивости  $\chi^{(1)}$ ), также означает, что границы между 180°-ными доменами являются нелинейно-оптической неоднородностью, не будучи в то же время неоднородностью оптической.

Принято считать, что для оптического материала есть два главных критерия качества: оптическая однородность и линейное поглощение в области рабочих длин волн, которые описываются соответственно действительной и мнимой

составляющими линейной восприимчивости  $\chi^{(1)}$ . Для квадратично-нелинейного диэлектрика, которым является кристалл КТР, эти критерии необходимы, но недостаточны. Требуется вводить дополнительные параметры – нелинейно-оптическую однородность и нелинейное поглощение, проявляющие себя только в процессе нелинейного взаимодействия света с кристаллом и описываемые квадратичной нелинейной восприимчивостью  $\chi^{(2)}$ . И если двухфотонное поглощение (так называемая проблема серых треков) в кристаллах КТР – явление известное и достаточно изученное, то нелинейно-оптическая неоднородность или локальная неоднородность тензора квадратичной нелинейной восприимчивости осталась обойденной вниманием исследователей.

Под локальной неоднородностью тензора квадратичной нелинейной восприимчивости  $\chi^{(2)}$  будем понимать скачкообразное изменение значения тензора, связанное с неравномерным изменением концентрации примеси в ограниченной области кристалла, либо изменение знака тензора, связанное с пересечением междоменной границы.

Целью работы было изучение локальной неоднородности тензора квадратичной нелинейной восприимчивости  $\Delta\chi^{(2)}$  на примере кристаллов КТР. Для изучения нелинейно-оптической неоднородности предложен простой метод, позволяющий выявлять в кристалле КТР моно-доменные области [5]. Метод основан на анализе пространственного распределения интенсивности второй гармоники, генерируемой сильно расходящимся лазерным лучом. Метод так же хорошо чувствует наличие в материале оптических неоднородностей, связанных с локальным изменением показателей преломления сегнетоэлектрика.

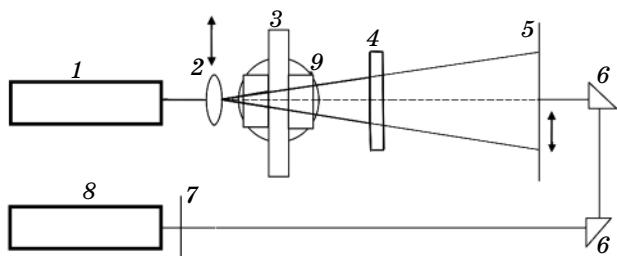
Кристаллы КТР массой до 350 г выращивались из концентрированного раствора в  $K_4P_2O_7$  “top seeded solution growth” (TSSG) методом на затравку, ориентированную вдоль кристаллографической оси X [6]. Рост происходил в интервале температур  $\sim 1060 \div 1000$  °C, а сегнетоэлектрический переход ( $\sim 970$  °C) происходил в кристаллах в процессе их отжига. Кристаллы выращивались из тиглей  $\varnothing 120 \times 150$  мм на модернизированных серийных установках К-5067 в трехзонной шахтной печи, снабженной каркасным нагревателем.

Исследование локальной нелинейно-оптической неоднородности  $\Delta\chi^{(2)}$  и оптической неоднородности  $\Delta n$  проводились на образцах,

представляющих собой плоскопараллельные полированные пластины толщиной 5÷10 мм, вырезанные перпендикулярно направлению [010] или перпендикулярно направлению синхронизма для генерации второй гармоники (ГВГ) от излучения с  $\lambda = 1064$  нм ( $\Theta = 90^\circ$ ,  $\phi \approx 23,5^\circ$ ).

Схема стенда для исследования пространственной однородности нелинейно-оптических свойств выращенных кристаллов представлена на рис. 1. Его основными узлами являются одномодовый  $TEM_{00}$  YAG:Nd<sup>3+</sup>-лазер с внутрирезонаторным поляризатором, задающим линейную поляризацию излучения под углом  $45^\circ$  к плоскости стенда, юстировочный Не-Не-лазер и столик от теодолита с расположенной на нем двухкоординатной подвижкой. Точность измерения углов на стенде – не хуже 3 угловых минут. Метод визуализации нелинейно-оптических неоднородностей был реализован с применением YAG:Nd<sup>3+</sup>-лазеров, работающих как в моноимпульсном, так и в непрерывном режимах генерации.

Рассмотрим процесс генерации второй оптической гармоники. Световая волна с частотой  $\omega$ , распространяясь в квадратично-нелинейной среде, вызывает волну квадратичной поляризации  $P_{KB}$  на частоте  $2\omega$ . Световые волны с частотой  $2\omega$ , переизлученные в разных точках среды, проходят вдоль направления распространения луча и интерферируют друг с другом. При равенстве фазовых скоростей волн квадратичной поляризации и второй гармоники (ВГ) возникает условие фазового синхронизма (ФС), сопровождающееся эффективным переносом энергии падающей волны в волну ВГ, а направление в среде, где



**Рис. 1.** Оптическая схема стенда для изучения пространственной однородности нелинейно-оптических свойств кристаллов. 1 – YAG:Nd<sup>3+</sup>-лазер ( $\tau = 10$  нс;  $\varnothing$  пучка 3 мм), 2 – короткофокусная линза, 3 – пластина КТР, 4 – фильтр СЗС-23, 5 – экран, 6 – поворотные призмы, 7 – диафрагма-экран, 8 – юстировочный Не-Не-лазер, 9 – столик от теодолита с двухкоординатной подвижкой.

реализуется это условие, называется направлением ФС. При различии фазовых скоростей возникают пространственные биения волн ВГ, период и амплитуда которых тем меньше, чем больше фазовая расстройка  $\Delta k$  между волной квадратичной поляризации и волной ВГ. В бездефектном кристалле в приближении заданного поля зависимость интенсивности ВГ от направления распространения луча, выраженного через  $\Delta k$ , описывается формулой

$$I_3 = \frac{128\pi^5}{cn_1n_2n_3\lambda^2} (\chi^{(2)})^2 I_1 I_2 L^2 \vartheta, \quad (1)$$

где  $L$  – длина кристалла,  $n$  – показатель преломления материала,  $\lambda$  – длина волны,  $I$  – интенсивность лазерного излучения. Индексы 1 и 2 относятся к падающим волнам, а 3 – к генерируемой волне. Множитель  $\chi^{(2)}$  – тензор квадратичной нелинейной восприимчивости – связывает амплитуды нелинейной поляризации и электрического поля электромагнитной волны  $\vartheta$  – интерференционный множитель

$$\vartheta = \frac{\sin^2(\Delta k L/2)}{(\Delta k L/2)^2}, \quad (2)$$

где  $\Delta k = k_3 - (k_2 + k_1)$  – мера согласования фаз трех взаимодействующих волн, а  $k_i$  – волновой вектор соответствующей волны. При неизменности других параметров в формуле (1) интенсивность второй гармоники  $I_3$  в идеальном кристалле пропорциональна произведению  $L^2 * \vartheta$ . Зависимость  $I_3$  от координаты или угла падения является периодической функцией (рис. 2), внешне схожей с хорошо известной зависимостью интенсивно-

сти света от синуса угла дифракции при дифракции на плоской щели [7].

Как следует из формулы (1) и видно на рис. 2, интенсивность второй гармоники имеет четко выраженный максимум при распространении падающего излучения в направлении с  $\Delta k = 0$ , являющемся направлением ФС (отвечает кривой 1 на рис. 4). Этот максимум называется главным максимумом (ГМ). Почти симметрично справа и слева от ГМ наблюдаются экстремумы ВГ порядка  $m$ . Они соответствуют распространению падающего излучения в кристалле по направлениям, отличным от направления ФС, и в этом случае  $\Delta k \neq 0$ . Интенсивность вторичных максимумов убывает с увеличением их порядка обратно пропорционально квадрату аргумента. Из формулы (1) следует, что при наличии фазовой расстройки ( $\Delta k \neq 0$ ) интенсивность ВГ периодически меняется с расстоянием  $L$ . Зависимость амплитуды ВГ  $A_3$  в объеме кристалла от  $L$  для трех значений фазовой расстройки, показана на рис. 4. Период изменения  $A_3$  составляет

$$L = 2\pi/\Delta k. \quad (3)$$

Полпериода, на котором  $A_3$  достигает максимального значения, называется когерентной длиной нелинейного взаимодействия.

$$l_{\text{kog}} = \pi/\Delta k. \quad (4)$$

Очевидно, что чем больше  $\Delta k$ , тем меньше  $l_{\text{kog}}$ . При удалении от ГМ фазовая расстройка возрастает, и эффективная длина взаимодействия волн уменьшается. Иными словами, если материал в направлении распространения коллинеарного и одномодового луча оптически однородный и монодоменный, то почти симметрично от направления синхронизма в плоскости XY кристалла КТР обязательно должны быть направления с полным отсутствием ВГ на выходе кристаллического образца (кривые 2 и 3 на рис. 4). Результат удвоения частоты YAG:Nd<sup>3+</sup>-лазера ( $\lambda = 1064\text{nm}$ ) в направлении синхронизма виден на экране как яркая зеленая точка, диаметр которой равен диаметру лазерного луча. При повороте пластины яркость точки меняется в соответствии с формулой (1) и рис. 2. То есть, по мере поворота пластины на экране должны чередоваться четкие минимумы и максимумы излучения второй гармоники. Если коллинеарный лазерный луч с помощью линзы преобразовать в конус, то на экране наблюдается двумерное изображение, каждой точке которого соответствует свое особое направление распространения взаимодействующих волн со своей фазовой расстройкой  $\Delta k$ . В этом

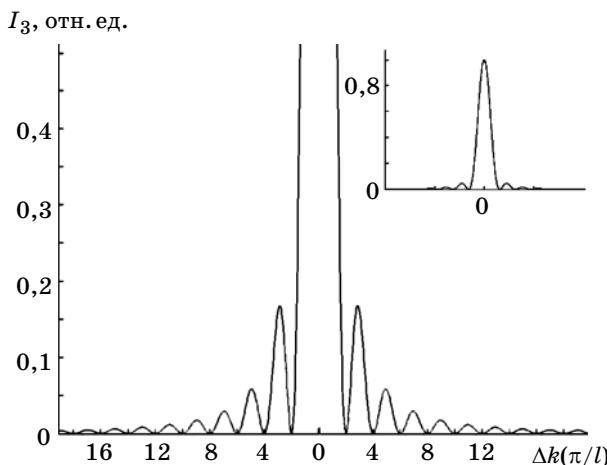


Рис. 2. Зависимость интенсивности второй гармоники  $I_3$  от угла поворота образца, выраженного через фазовую расстройку  $\Delta k$ .

случае на экране одновременно можно наблюдать несколько минимумов и максимумов излучения ВГ. В бездефектном кристалле наблюдается картина в виде чередующихся прямых или слегка изогнутых зеленых и черных контрастных полос (рис. 3а). В случае прохождения лазерного луча через дефектную область пластины на экране наблюдаются искривленные зеленые и черные полосы или пятна (рис. 3б), а также уменьшается контраст между максимумами и минимумами полос ВГ (рис. 8ж–к).

Так называемая “полосчатость” пятна ВГ наблюдалась и раньше. В частности, в работе [8] указывается на сложность использования иодата лития при ГВГ в сфокусированном пучке, поскольку из-за аномально малой ширины углового синхронизма в этом кристалле при жесткой фокусировке луча пятно ВГ в дальнем поле приобретает полосатую структуру. Примером использования “полосчатости” пятна ВГ служит применение расходящегося луча падающего излучения для предварительной настройки удвоителей из кристаллов дигидрофосфата калия и дидейтерофосфата калия, обладающих малой шириной углового синхронизма, при их юстировке на лазерном стенде. Однако в литературе нет упоминания о том, что нарастающую с увеличением порядка экстремума ВГ фазовую расстройку  $\Delta k$  можно использовать для визуальной оценки нелинейно-оптической однородности нелинейного материала.

Благодаря высокой нелинейной восприимчивости КТР в бездефектной области пластин можно последовательно наблюдать до пятнадцати полос вторичных максимумов и минимумов ВГ. При этом, чем больше полос максимумов и минимумов ВГ на участке пластины визуализируется без искажений, тем выше качество нелинейного материала, тем более оптически и структурно он

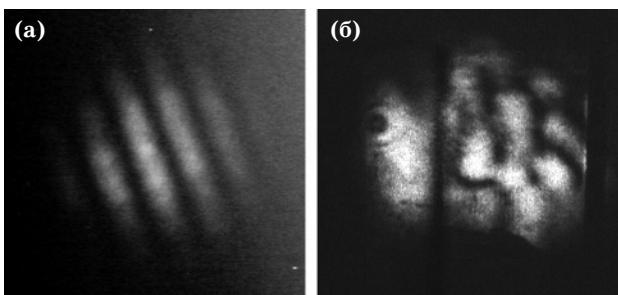


Рис. 3. Фотографии интерференции волн ВГ при их генерации: в образце кристалла КТР с высокой нелинейно-оптической однородностью – а, в полидоменном образце – б.

однороден. В зависимости от оптической силы линзы и кристаллографической ориентации пластины КТР можно одновременно наблюдать от 2 до 10 побочных максимумов второй гармоники.

Проиллюстрировать сказанное можно с помощью следующего геометрического построения. На рис. 4 схематично показаны изменения амплитуд ВГ по длине идеального нелинейного кристалла при трех различных значениях фазовой расстройки  $\Delta k$ . Кривая 1 соответствует направлению фазового синхронизма для ГВГ, 2 – второму минимуму ВГ (точка  $4\pi/l$  на рис. 2), 3 – восьмому минимуму ВГ (точка  $16\pi/l$  на рис. 2). Предположим, что на участке  $(L_2 - L_1)$  кристалла (рис. 5) имеется  $180^\circ$ -ный домен. Разворот полярной оси кристалла в каждом следующем домене на  $180^\circ$  означает изменение знака  $\chi^{(2)}$  и (при прохождении волнового фронта излучения) изменение обобщенной фазы  $\Psi$  взаимодействующих волн на  $\pi$  относительно фазы на выходе предыдущего домена. Если  $L_1$  и  $L_2$  – координаты доменных стенок, то

$$L_1 - \delta l = \Psi/\Delta k \text{ и } L_1 + \delta l = (\Psi + \pi)/\Delta k, \quad (5)$$

$$\begin{aligned} L_2 - \delta l &= (\Psi \pm \Delta\Psi + \pi)/\Delta k \\ \text{и } L_2 + \delta l &= (\Psi \pm \Delta\Psi)/\Delta k. \end{aligned} \quad (6)$$

То есть если амплитуда ВГ в направлении синхронизма возрастила, то после пересечения волновым фронтом доменной стенки  $A_3$  будет уменьшаться и наоборот. После прохождения

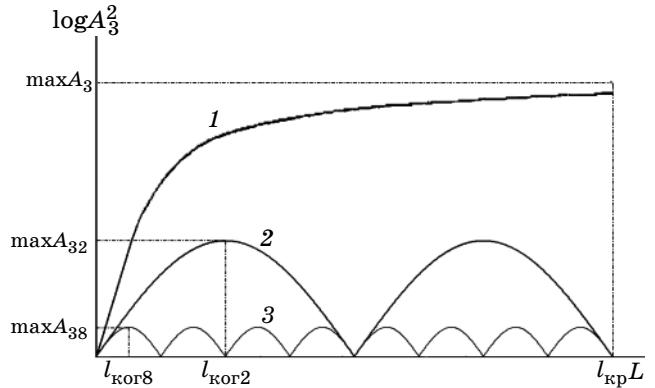
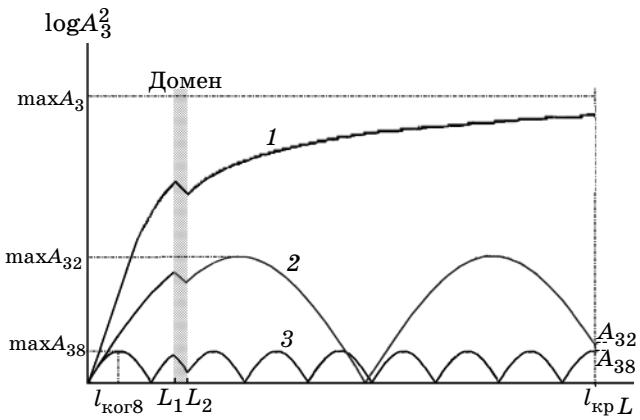


Рис.4. Изменения амплитуды ВГ по длине идеального нелинейного кристалла при трех различных значениях фазовой расстройки  $\Delta k$ . 1 –  $\Delta k = 0$  – соответствует направлению фазового синхронизма для ГВГ, 2 – отвечает второму минимуму ВГ на выходе кристалла в направлении  $\Delta k = 4\pi/l$ , 3 – отвечает восьмому минимуму ВГ на выходе кристалла в направлении  $\Delta k = 16\pi/l$ .



**Рис.5.** Изменения амплитуды ВГ по длине нелинейного кристалла, имеющего доменную прослойку, при трех различных значениях фазовой расстройки  $\Delta k$ . 1 –  $\Delta k = 0$ , 2 –  $\Delta k = 4\pi/l$ , 3 –  $\Delta k = 16\pi/l$ .

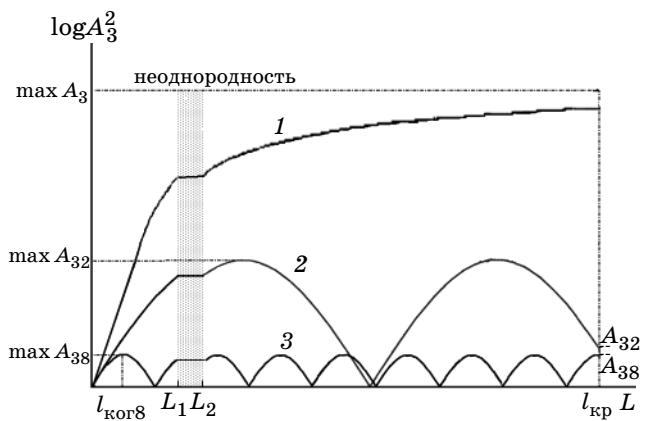
волновым фронтом границы доменного участка согласование фаз автоматически восстанавливается и процесс синхронного взаимодействия идет дальше. В результате амплитуда ВГ на выходе кристалла изменяется на  $\Delta A_3$  по сравнению с соседними участками, не содержащими доменной прослойки. Очевидно, что при небольшом сдвиге фаз изменение  $A_3$  также будет небольшим и зафиксировать его на фоне главного максимума можно только с использованием высокоточного оборудования. Именно поэтому методики оценки нелинейной однородности сегнетоэлектрических монокристаллов, основанные на измерении параметров кривой, отвечающей ГМ второй гармоники (интенсивность, полуширина и проч.) столь громоздки и дороги.

По мере удаления от центрального максимума (с ростом  $m$  и уменьшением когерентной длины) один и тот же набег фаз  $\Delta\Psi$  будет все меньше и меньше сказываться на амплитуде ВГ, но все больше сдвигать фазу ВГ на выходе из кристалла. Из сравнения рис. 4 и 5 видно, что при данном размере домена второму минимуму ВГ соответствует сдвиг фазы на выходе из кристалла примерно  $0,25\pi$ , а восьмому минимуму – уже  $\pi$ . На экране стенда (рис. 1) сдвиг фазы ВГ выглядит как искривление или разрыв зеленой и черной полос соответствующего порядка  $m$ . Расстояние между двумя соседними минимумами (или максимумами) на экране равно  $2\pi$  (3), поэтому смещение полосы, отвечающей второму минимуму ВГ, составляет для приведенного геометрического построения  $1/8$  периода, а полосы, отвечающей

восьмому минимуму –  $1/2$  периода (сдвиг фазы пропорционален  $m$ ). Тогда как изменение интенсивности ВГ в направлении синхронизма не превышает 5%.

Оценим минимальную толщину домена или полидоменной прослойки, при которой их наличие можно засечь предложенным методом на описанном выше стенде. Пусть  $L = 0,75$  см,  $m = 15$ . Тогда  $l_{\text{ког}} = 0,75/30 = 0,025$  см. Учитывая, что визуально на экране можно заметить искривление контрастной черной полосы на  $1/10$  периода,  $\Delta L = 50$  мкм. Изменение интенсивности ВГ в направлении синхронизма для 50 мкм доменной прослойки, полученное из аналогичного геометрического построения, составляет порядка 0,05%. Очевидно, что зафиксировать столь малое изменение интенсивности невозможно ни на одном существующем лазерном стенде. Чувствительность метода можно еще повысить, если увеличить мощность лазера или применить фотосъемку. Увеличение мощности позволяет визуально наблюдать максимумы ВГ более высоких порядков, а фотопленка позволяет их регистрировать за счет использования большой выдержки.

Аналогичное геометрическое построение можно применить для участка кристалла ( $L_2 - L_1$ ), содержащего оптическую неоднородность  $\Delta n$  (рис. 6). Локальная оптическая неоднородность (например, слои роста, сформировавшиеся в результате скачка температуры) является по сути микролинзой со скачкообразно меняющимся значением показателя преломления. Поэтому при прохождении волнового фронта лазерного излучения через неоднородность в ней возни-



**Рис. 6.** Изменение амплитуды ВГ по длине кристалла с оптической неоднородностью при трех различных значениях фазовой расстройки  $\Delta k$ . 1 –  $\Delta k = 0$ , 2 –  $\Delta k = 4\pi/l$ , 3 –  $\Delta k = 16\pi/l$ .

кает изменение обобщенной фазы  $\Psi$  взаимодействующих волн не на  $\pi$ , как для домена, а на  $\delta\psi$ , зависящую кроме  $(L_2 - L_1)$  еще от  $\Delta n$ , а также от значения и знака  $\partial n / \partial l$ .

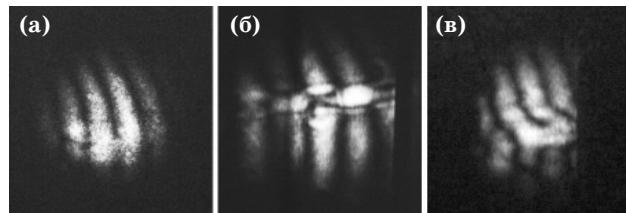
$$L_1 = \Psi / \Delta k \text{ и } L_2 = (\Psi \pm \delta\psi) / (\Delta k \pm \delta k). \quad (6)$$

Амплитуда ВГ на этом участке изменяется по иному гармоническому закону, чем на других участках при том же направлении распространения луча. Поэтому сдвиг фазы  $A_3$  на выходе кристалла зависит не только от размера неоднородности, как в случае со  $180^\circ$ -ным доменом, а от трех величин:  $\Delta L$ ,  $\Delta n$  и  $\partial n / \partial l$ .

Из приведенного построения следует, что полосы равной интенсивности ВГ, видимые на экране, соответствуют полосам равных фаз (отвечают геометрическому месту точек с равными фазами), а само изображение является интерференционной картиной волн ВГ. Локальный сбой фазы интерферирующих при ГВГ в кристалле волн, вызванный каким-либо изменением величин (или/и знака)  $\chi^{(2)}$  или/и показателей преломления, вызывает искажение интерференционных полос ВГ.

Из приведенных построений также становится понятно, почему метод одинаково хорошо чувствует наличие в материале как полидоменных областей, так и оптических неоднородностей, связанных с локальным изменением показателей преломления кристалла. Причем при выявлении в КТР локальных  $\Delta n$  наблюдается полное совпадение предложенного в работе метода с широко известной дифракционно-теневой методикой [9].

В качестве примера на рис. 7 приведены фотографии, сделанные с экрана стенда (рис. 1). На них видно, как искажаются черные и зеленые полосы при прохождении расходящегося ИК лазерного луча через материал с различными оптическими неоднородностями. На рис. 7а верхняя и центральная части пучка проходят через оптически однородный участок кристалла. Тогда как нижняя его часть распространяется уже в неоднородной области кристалла. Следующий рис. 7б иллюстрирует, как искажаются черные и зеленые полосы при прохождении расходящегося ИК лазерного излучения через слой материала с большим локальным  $\Delta n$ . Видимое в центре фотографии искажение волнового фронта является следствием прохождения центральной области луча через неоднородную зону в кристалле, подобную тонкой свили. Выше и ниже зоны полосы ровные, без искажений. Зная диаметр расходящегося луча на выходе из пластины, можно оценить поперечный размер неоднородности. В част-



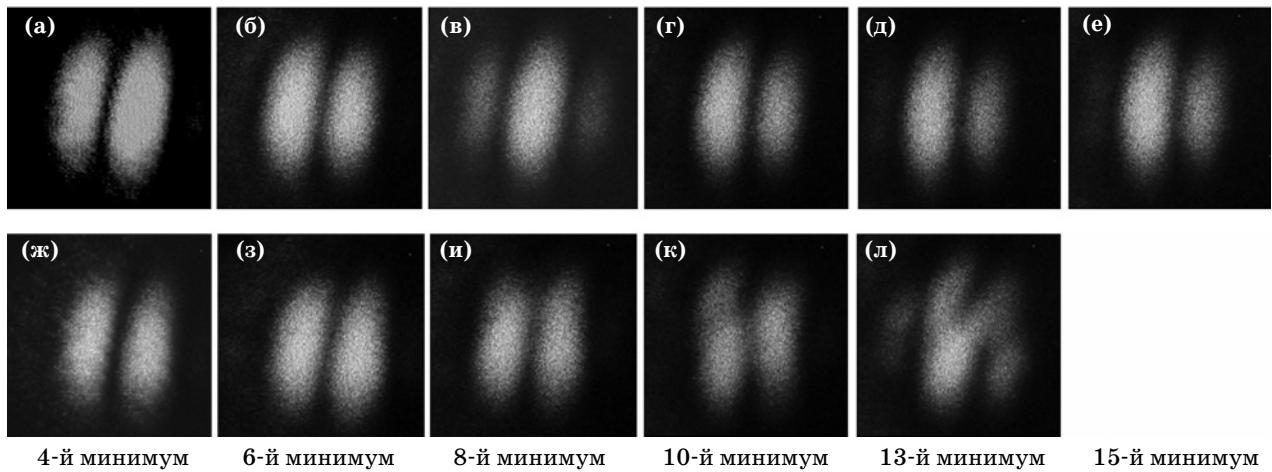
**Рис. 7.** Фотографии интерференции волн ВГ при их генерации в образце кристалла КТР: а – граничащем с неоднородностью, б – содержащем свилеподобную неоднородность, в – содержащем оптическую неоднородность.

ности, на рис. 7б при диаметре луча примерно 1 мм этот размер  $\leq 0,2$  мм. На рис 7в видно, что верхний сегмент пучка распространяется через однородный участок кристалла, а остальная его часть пересекает неоднородную зону.

Сравнивая предложенную методику и дифракционно-теневые методы исследования оптической неоднородности, можно утверждать, что при выявлении в КТР локальных изменений показателей преломления  $\Delta n$  предложенный в настоящей работе метод, по крайней мере, на полпорядка более чувствителен и позволяет заметить значение локальной оптической неоднородности  $\Delta n$  порядка  $5 \times 10^{-7}$ .

Установленная закономерность формулируется следующим образом: чем выше порядок генерируемого в нелинейном материале максимума (минимума) ВГ, который визуализируется без искажений, тем выше нелинейно-оптическое качество этого материала. Подтверждают данный тезис две серии фотографий на рис. 8. Снимки сделаны с экрана стенда при выдержке от 2 с для 4-го минимума до 15 с для 15-го минимума. Верхний ряд фотографий отвечает материалу монодоменному, моносекториальному, не содержащему никаких оптических дефектов. Черные полосы остаются четкими, контрастными вплоть до пятнадцатого минимума. На фотографиях нижнего ряда хорошо видно, как постепенно размывается черная полоса при последовательном переходе от 4-го к 10-му минимуму ВГ. Полоса, отвечающая 13-му минимуму, уже пересечена зеленой полосой, что говорит о сдвиге фазы ВГ больше чем на  $\pi$  по сравнению с бездефектным участком кристалла.

При исследовании кристаллов КТР было установлено, что если в пирамидах роста граней {201}, формирующих боковое огранение, ростовые дефекты (выявленные с помощью стандартных дифракционно-теневых и интерферометриче-



**Рис. 8.** Два ряда фотографий интерференционных минимумов и максимумов ВГ при ее генерации расходящимся лазерным лучом. Верхний ряд фотографий характеризует монопирамидальный участок кристалла КТР, нижний ряд – участок кристалла, сложенный материалом двух пирамид роста.

ских методик) с неоднородностью по показателю преломления  $\Delta n \leq 2 \times 10^{-6}$  отсутствуют, то можно утверждать, что поле второй гармоники будет однородным. В то время как для материала пирамиды роста фронтальной грани (100) этот критерий отбора не срабатывает. Оптически однородный ( $\Delta n \leq 5 \times 10^{-6}$ ) материал из этой пирамиды роста при исследовании на лазерном стенде почти всегда дает на экране пятнистую интерференционную картину ВГ (рис. 3б).

Различие в качестве материала пирамид роста габитусных граней (100) и {201}, на взгляд авторов, является принципиальным и связанным с различием в локальной нелинейно-оптической неоднородности материала, то есть в  $\Delta\chi^{(2)}$ . Данный факт можно объяснить разными механизмами роста этих граней. Вероятнее всего, сказывается направление роста слоев на грани (100), которое лежит в плоскости полярной оси Z. Ростовая полосчатость провоцирует образование доменов, которые в виде ламелей слагают пирамиду роста этой грани [1, 2, 3]. Тогда как на гранях {201} слои роста идут под косым углом к полярной оси и плоскости доменных ламелей (и междоменных границ), что препятствует их образованию. Поскольку методы линейной оптики не годятся для обнаружения 180°-ных доменов, только исследование материала по предлагаемому методу позволяет однозначно судить об однородности нелинейно-оптического преобразования в образце кристалла КТР и пригодности его для изготовления нелинейно-оптических элементов.

Предложенный метод регистрации локальной неоднородности  $\chi^{(2)}$  основан на явлении интерференции в кристаллической решетке волн второй гармоники, генерируемых электрическим полем падающей волны. Поэтому метод в принципе применим ко всем нелинейно-оптическим кристаллам, в которых возможна генерация ВГ. К преимуществам предложенного метода следует отнести следующие:

Использование современных технических средств визуализации (ПЗС или КМОП матриц и др.) позволяет существенно расширить перечень нелинейных материалов, в которых возможно определение нелинейно-оптической неоднородности, за счет расширения спектрального диапазона регистрируемой ВГ в ИК и ультрафиолетовой областях. В первую очередь это касается непрозрачных в видимой области спектра, но востребованных в ИК технике сегнетоэлектриков типа тиогаллата серебра, прустита, селенида кадмия и галлия и других чистых и смешанных монокристаллов  $A^{II}B^{VI}$  и  $A^{IV}B^{VI}$ .

Метод позволяет визуализировать нелинейно-оптические неоднородности даже в тех кристаллах, в которых из-за недостаточного значения дисперсионного двулучепреломления отсутствует направление скалярного синхронизма, поскольку для регистрации  $\Delta\chi^{(2)}$  используется наблюдение заискажением вторичных максимумов ВГ, когда  $\Delta k \gg 1$ . В частности, при использовании чувствительной приемной матрицы нелинейно-оптические неоднородности можно регистрировать даже в кристаллическом кварце.

Для визуализации  $\Delta\chi^{(2)}$  можно использовать нелинейное взаимодействие трех волн в режиме суммирования частот или в режиме генерации разностной частоты, поскольку генерация ВГ является частным случаем трехволнового взаимодействия  $\omega_1 \pm \omega_2 = \omega_3$ . При этом необходимо для каждого материала специально подбирать тип лазера, его мощность, расходимость пучка и условия наблюдения, обеспечивающие регистрацию искажения интерференционных полос выходной волны.

## Выводы

Результаты работы представлены в виде следующих тезисов.

Обнаружено искажение интерференционных полос второй оптической гармоники при ее генерации в кристалле КТР сильно расходящимся лазерным лучом, обусловленное локальными неоднородностями тензора квадратичной нелинейной восприимчивости  $\Delta\chi^{(2)}$  и тензора линейной восприимчивости  $\Delta\chi^{(1)}$ .

Предложен новый качественный способ контроля нелинейно-оптической однородности материала. Способ заключается в анализе наблюданного на экране распределения минимумов и максимумов интерференционной картины излучения второй гармоники, возникающего в результате прохождения сквозь образец кристалла КТР в режиме ГВГ сильно расходящегося лазерного пучка, что позволяет судить о постоянстве  $\chi^{(2)}$  в исследуемом образце.

Показано, что пороговая чувствительность метода визуализации  $\Delta\chi^{(2)}$  и  $\Delta\chi^{(1)}$  зависит от порядка наблюданного интерференционного максимума (минимума) второй гармоники. Чем выше порядок экстремума, тем больше пороговая чувствительность.

Установлено, что чем выше порядок интерференционного максимума (минимума) второй гармоники, который визуализируется без искажений, тем выше нелинейно-оптическая однородность материала.

Обнаружена связь нелинейно-оптических неоднородностей в объеме кристалла КТР с микроморфологией его габитусных граней {100} и {201}.

Показано, что для характеристизации качества квадратично-нелинейных сред учет общепринятых параметров качества: оптической однородности, линейного поглощения и двухфотонного поглощения, – недостаточен. Важным и актуальным также представляется учет еще одного параметра – однородности тензора квадратичной нелинейной восприимчивости, определяющего однородность квадратично-нелинейного взаимодействия в объеме среды и обеспечивающего равномерность поля второй гармоники и параметрического преобразования, равномерность погасания лазерного излучения при переключении электрооптического затвора и пр.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Bierlein J.D., Ahmed F. Observation and poling of ferroelectric domains in KTiOPO<sub>4</sub> // Appl. Phys. Lett. 1988. V. 51. № 17. P. 1322–1324.
2. Экнадиосянц Е.И., Пинская А.Н., Бородин В.З. // Кристаллография. 1987. Т. 32. № 2. С. 1042.
3. Иванов Н.Р., Тихомирова Н.А., Гинзберг А.В., Чумакова С.П., Экнадиосянц Е.И., Бородин В.З., Пинская А.Н., Бабанских В.А., Дьяков В.А. Доменная структура кристаллов KTiOPO<sub>4</sub> // Кристаллография. 1994. Т. 39. № 4. С. 659–665.
4. Angert N., Kaplin L., Tseitlin M., Yahchin E., Roth M. J. Growth and domain structure of potassium titanil phosphate crystals pulled from high-temperature solutions // Cryst. Growth. 1994. V. 173. № 1–2. P. 116–122.
5. Якобсон В.Э. Метод визуализации локальных неоднородностей тензора квадратичной нелинейной восприимчивости  $\Delta\chi^{(2)}$  в кристалле KTiOPO<sub>4</sub> (КТР) // Труды IV Международной конференции “Фундаментальные проблемы оптики-2006”. СПб., 2008. С. 231–232.
6. Андреев Р.Н., Войцеховский В.Н., Калинцев А.Г., Шведова М.В., Якобсон В.Э. Опыт выращивания монокристаллов титанилфосфата калия (КТР) и изготовления из них нелинейных элементов // Оптический журнал. 1995. Т. 62. № 11. С. 75–79.
7. Ландсберг Г.С. Оптика. М.: Наука, 1976. С. 177.
8. Дмитриев В.Г., Тарасов Л.В. Прикладная нелинейная оптика. М.: ФИЗМАТЛИТ, 2004. С. 473.
9. Доладугина В.С., Березина Е.Е. Исследование однородности корунда с помощью поляризационно-теневой установки // Рост кристаллов / под ред. Шефталя Н.Н. М.: Наука, 1965. Т. 5. С. 391.