

## КРИСТАЛЛОФИЗИКА

УДК 535.543

### **МОДЕЛИРОВАНИЕ УСЛОВИЙ ВОЗНИКНОВЕНИЯ ФАЗОВОГО СИНХРОНИЗМА ПРИ ГЕНЕРАЦИИ ВТОРОЙ ОПТИЧЕСКОЙ ГАРМОНИКИ В НЕУПОРЯДОЧЕННЫХ СТРУКТУРАХ**

**А. В. Мишина<sup>1</sup>, А. Д. Мишин<sup>2</sup>**

<sup>1</sup>Тверской государственный технический университет

<sup>2</sup>Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова

Обсуждаются способы увеличения эффективности генерации второй оптической гармоники в неупорядоченных наноструктурах. Использована модель эффективной среды Бруггемана.

**Ключевые слова:** тонкие пленки, фазовый синхронизм, модель Бруггемана

Исключительные оптические свойства наноматериалов являются предметом обширных исследований в последние годы. Успешное применение тонкопленочных композитов, прежде всего, в оптоэлектронике, требует развития надежных диагностических методик, позволяющих изучать связь между структурой наноматериалов и их свойствами. Одним из них является метод генерации второй оптической гармоники, позволяющий исследовать с высокой степенью пространственного разрешения как периодические (фотонные кристаллы), так и непериодические оптические структуры.

В данной работе представлен результат численного моделирования эффекта усиления интенсивности второй гармоники (ВГ), обусловленного фактором фазового синхронизма, в пленочной неупорядоченной наноструктуре (как матрицы, так и наполнителя) с характерным поперечным размером пор (наночастиц наполнителя) меньшим длины волны (100...200 нм). Методика изготовления таких композитных материалов из прекурсоров  $(\text{Ba,Sr})\text{TiO}_3$  (БСТ) и  $(\text{Pb,Zr})\text{TiO}_3$  (ЦТС), внедренных золь-гель методом в поры мембран оксида алюминия, а также результаты исследований этих структур методом генерации ВГ с использованием фемтосекундного оптического параметрического усилителя и системы счета фотонов рассмотрены в [1].

Для расчетов была использована модель, в которой часть пористых столбчатых матриц, частично заполненная материалом с большим значением  $\chi$ , представляла собой один из слоев, незаполненная часть – второй слой (см. рис. 1, а и 1, б).

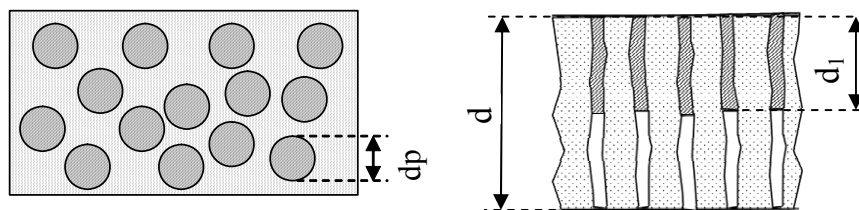


Рис. 1. Модель двухслойной среды на основе пористой диэлектрической матрицы

Основными параметрами, определяющими геометрию и характеристики пленки, являлись:

- процент столбцов в общем объеме пленки (предполагалось, что пленки имеют однородную толщину, поэтому этот параметр фактически пропорционален доли суммарной площади поперечных сечений столбцов (диагональная штриховка) к общей площади пленки (рис. 1, а);
- толщина пленки ( $d$  на рис. 1, б);
- средняя глубина заполнения столбцов ( $d_1$  на рис. 1, б);
- средний диаметр столбцов ( $dp$  на рис. 1, а);
- абсолютные коэффициенты преломления среды для веществ матрицы и столбцов на частотах  $\omega$  и  $2\omega$ :  $n_m(\omega)$ ,  $n_m(2\omega)$ ,  $n_c(\omega)$ ,  $n_c(2\omega)$ .

Расчет для данной двумерной наноструктуры производился в рамках модели Бруггемана [2, 3] (в соответствии с рис. 2), согласно которой эффективная диэлектрическая проницаемость  $\epsilon_{ii}^{eff}$  среды, состоящей из эллиптических наночастиц (среда А), внедренных в матрицы (среда В), может быть найдена из уравнения

$$f_A \left[ \frac{\epsilon_A - \epsilon_{ii}^{eff}}{\epsilon_{ii}^{eff} + L_i (\epsilon_i - \epsilon_{ii}^{eff})} \right] + f_B \left[ \frac{\epsilon_B - \epsilon_{ii}^{eff}}{\epsilon_{ii}^{eff} + L_i (\epsilon_B - \epsilon_{ii}^{eff})} \right] = 0.$$

где  $f_A$ ,  $f_B$  – объемные доли;  $\epsilon_A$ ,  $\epsilon_B$  – диэлектрические проницаемости доли фазы А и В соответственно;  $L_i$  – анизотропный деполаризующий фактор (для цилиндра использовались значения  $L_x = L_y = 0,475$ ,  $L_z = 0,05$  [3]).

Нелинейная восприимчивость рассчитывается по формуле

$$\chi^{eff} = f_A \chi_A + f_B \chi_B$$

Незаполненные матрицы рассматривались как частный случай заполненных.

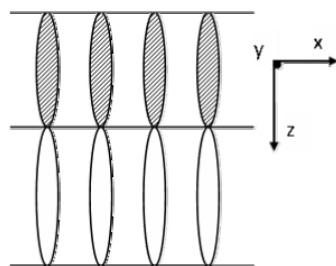


Рис. 2. Модифицированная модель Бруггемана для определения эффективной диэлектрической проницаемости анизотропной среды

В результате применения данной модели эффективной среды композитные слои рассматривались как сочетание слоев анизотропной пленки на анизотропной подложке. В силу нерегулярности расположения столбцов анизотропия носила характер одноосного кристалла. В частности, рассчитывались показатели преломления для обыкновенной и необыкновенной волн  $n_o$  и  $n_e$  на каждой частоте и в каждом из слоев.

В моделируемом эксперименте на структуру под различными углами (от  $-\pi/2$  до  $+\pi/2$ ) падала плоская монохроматическая волна частоты  $\omega$  в различной поляризации. Наблюдаемая расчетная волна ВГ при определенных соотношениях исходных геометрических и оптических параметров пленки имела ярко выраженный пик интенсивности. Зависимость между углами падения исходной волны, при которых наблюдался этот синхронизм, и отдельными параметрами пленки имела, как правило, нелинейный характер.

Были рассмотрены условия возникновения фазового синхронизма в применении к рассматриваемой модели. Учитывалось, что рабочие частоты лежат в области нормальной дисперсии  $n(\omega) < n(2\omega)$  для каждого типа волн. Реализация фазового синхронизма на определенных углах возможна для отрицательных кристаллов при  $n_o(\omega) = n_e(2\omega)[\theta]$  и в положительных – при  $n_e(\omega)[\theta] = n_o(2\omega)$ . Моделирование позволяло сделать выбор в пользу одного из рассматриваемых типов кристаллов за счет изменения диаметра столбцов по отношению к их длине.

Необходимыми условиями реализации фазового синхронизма в выбранном типе кристалла являлись, во-первых, во-первых, выполнение соотношения  $n_e(2\omega) < n_o(\omega)$  для отрицательного и  $n_o(2\omega) < n_e(\omega)$  для положительного кристаллов, что изображено на рис. 3, а, б, и, во-вторых, область пересечения волновых нормалей должна была находиться под углом меньшим, чем угол полного внутреннего отражения на границе кристалл  $\rightarrow$  воздух. Принципиальный случай невозможности реализовать синхронизм при невыполнении этого условия изображен на рис. 4.

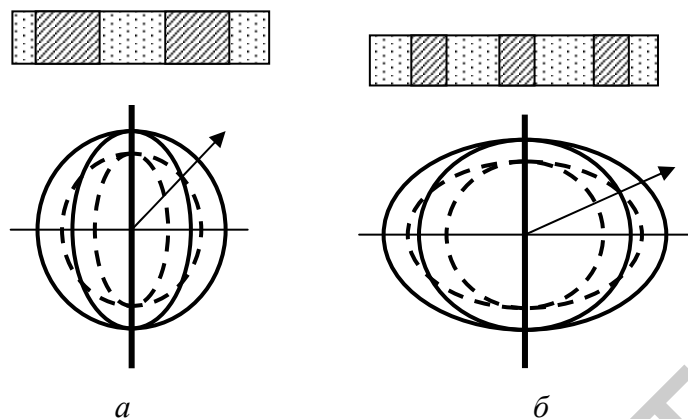


Рис. 3. Модель реализации условий фазового синхронизма для отрицательных и положительных кристаллов

Необходимыми условиями реализации фазового синхронизма в выбранном типе кристалла являлись, во-первых, во-первых, выполнение соотношения  $n_e(2\omega) < n_o(\omega)$  для отрицательного и  $n_o(2\omega) < n_e(\omega)$  для положительного кристаллов, что изображено на рис. 3, а, б, и, во-вторых, область пересечения волновых нормалей должна была находиться под углом меньшим, чем угол полного внутреннего отражения на границе кристалл → воздух. Принципиальный случай невозможности реализовать синхронизм при невыполнении этого условия изображен на рис. 4.

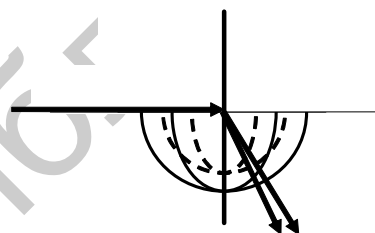


Рис. 4. Принципиальный случай невозможности реализации фазового синхронизма

Результаты численного моделирования представлены на примерах зависимости положения пика синхронизма от исходных параметров пленки. Для большей конкретизации зависимостей реализован случай полного заполнения столбцов.

**1. Изменение доли столбцов в общем объеме пленки.** При разных, но фиксированных значениях показателей преломления матрицы и столбцов (для примера  $n_{\text{матрицы}} > n_{\text{столбца}}$ ), при увеличении процентного объема столбцов наблюдалась общая тенденция уменьшения эффективных параметров показателей преломления среды. Скорость убывания тем больше, чем выше изначально показатель преломления среды.

Увеличение относительного объема столбцов приводило к более быстрому уменьшению эффективных  $n_o$  и  $n_e$  для частоты второй гармоники и, в результате, к перекрыванию эллипсоидов преломления и возникновению направлений синхронизма. Таким образом, чем больше был процент заполнения матрицы столбцами, тем при меньших углах падения исходной волны наблюдался синхронизм. В таблице приведен пример этой зависимости (в относительных единицах).

На рис. 5, а, в, д в соответствии с данными таблицы последовательно продемонстрирован процесс перекрывания эллипсоидов преломления (для наглядности изображена только четверть эллипсоида) по мере увеличения процентного объема столбцов. На рис. 5, б, г, е даны соответствующие расчетные графики интенсивности волны ВГ  $I(2\omega)$  (в относительных единицах) в зависимости от углов падения исходной волны  $\theta$ . Наличие острых пиков интенсивности указывает на резонанс при определенных углах.

Т а б л и ц а . Влияние заполнения матрицы на возникновение синхронизма

Объем столбцов в общем объеме пленки, %	$n_o(\omega)$ , % к начальному значению	$n_e(\omega)$ , % к начальному значению	$n_o(2\omega)$ , % к начальному значению	$n_e(2\omega)$ , % к начальному значению	Угол падения исходной волны, при котором наблюдается синхронизм, градусы
30	100	100	100	100	нет
50	93	93	85	85	75
80	68	80	63	62	53

**2. Изменение разницы между коэффициентами преломления сред матрицы и столбцов.** В качестве изменяемого исходного параметра рассматривали процентную разницу между абсолютными показателями преломления сред матрицы и столбцов на частоте волны первой гармоники (по-прежнему  $n_{\text{матрицы}} > n_{\text{столбца}}$ ). Исходя из фактических данных по показателям преломления [4], было учтено, что коэффициент преломления среды в среднем на 1% выше для волны удвоенной частоты.

Расчет показал, что при достаточно близких коэффициентах преломления сред матрицы и столбцов, в целом синхронизм должен иметь место под углами тем меньшими, чем меньше эта разница.

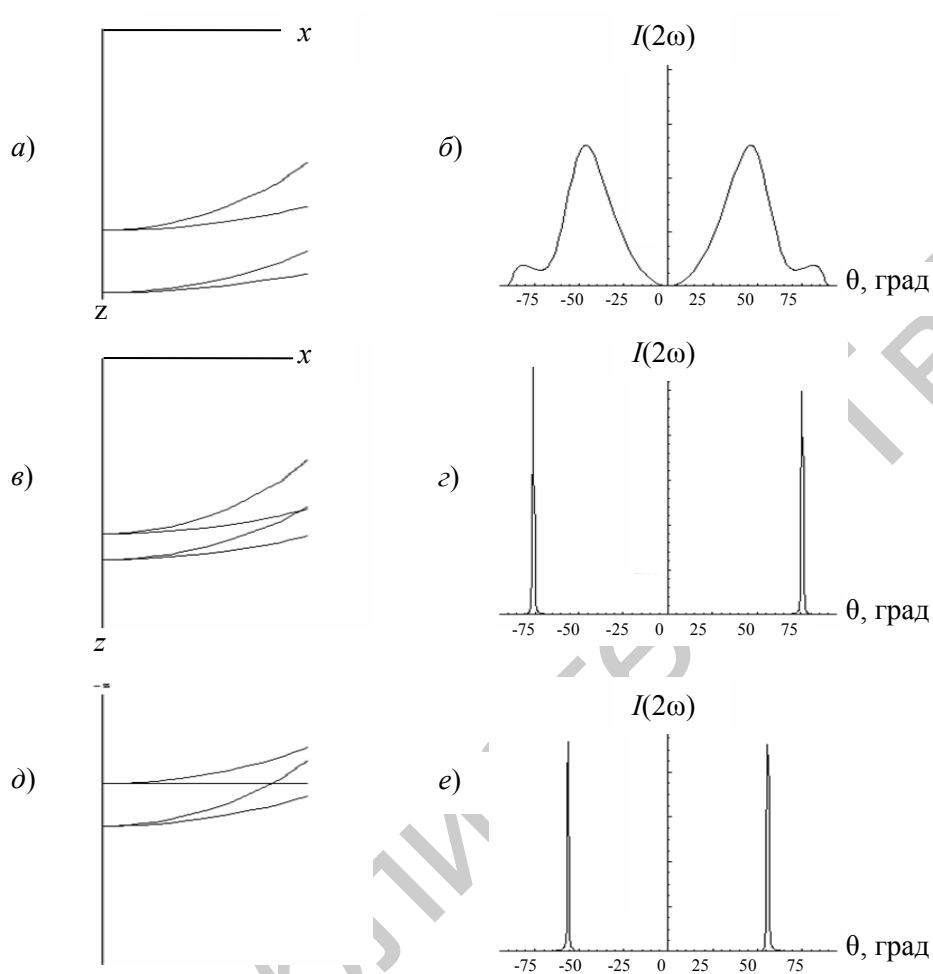


Рис. 5. Процесс перекрытия эллипсоидов преломления по мере увеличения процентного объема столбцов (а, в, д) и расчетные графики интенсивности волны ВГ  $I(2\omega)$  в зависимости от углов падения исходной волны  $\theta$  (б, г, е)

Несмотря на то, что при уменьшении разницы ( $n_{\text{матрицы}} - n_{\text{столбца}}$ ) искривление эллипсоидов, характеризующих эффективный показатель преломления необыкновенной волны уменьшается, что должно приводить к увеличению угла наблюдения синхронизма, эффект сближения эллипсоидов преломления для основной удвоенной частоты является здесь более существенным, что приводит к противоположному результату. На рис. 6, а, б показано изменение положения эллипсоидов при уменьшении разницы ( $n_{\text{матрицы}} - n_{\text{столбца}}$ ).

На рис. 7 представлены расчетные зависимости интенсивности ВГ  $I(2\omega)$  (в относительных единицах) от угла падения луча  $\theta$  при уменьшении параметра ( $n_{\text{матрицы}} - n_{\text{столбца}}$ ) соответственно на 0, 10, 30 и

40% от исходного значения. Здесь наглядно просматривается тенденция к уменьшению углов, при которых возможно наблюдение фазового синхронизма.

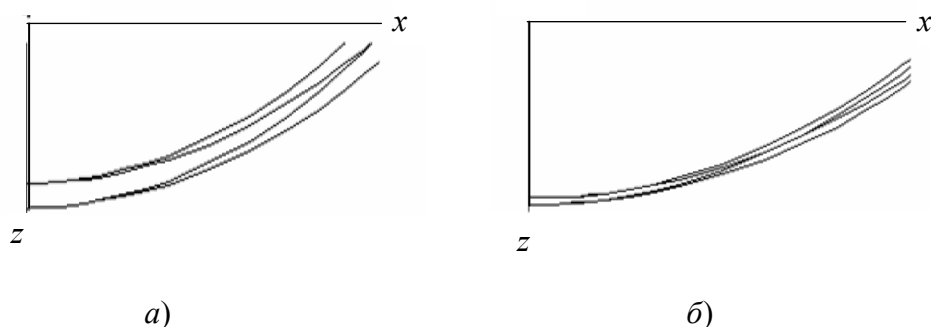


Рис. 6. Изменение положения эллипсоидов при уменьшении разницы ( $n_{\text{матрицы}} - n_{\text{столбца}}$ )

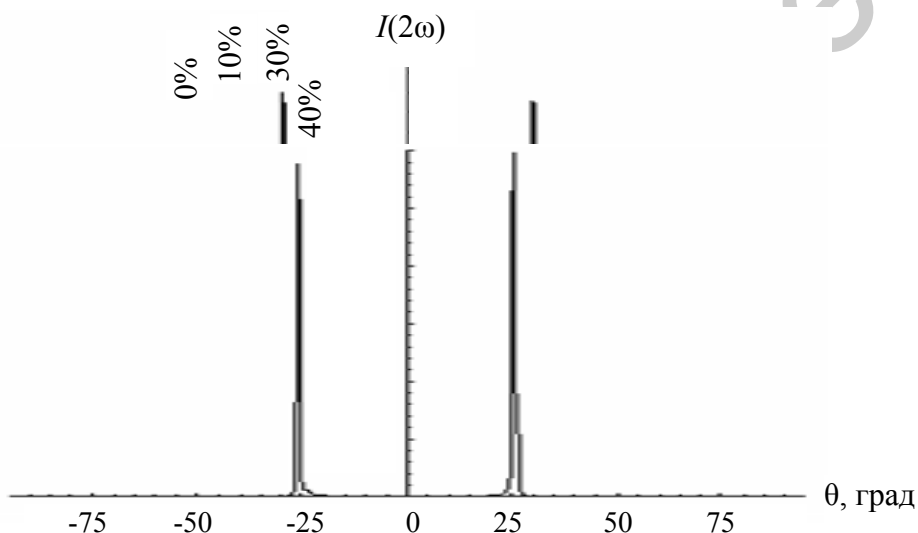


Рис. 7. Расчетные зависимости интенсивности ВГ  $I(2\omega)$  (в относительных единицах) от угла падения луча  $\theta$  при уменьшении параметра ( $n_{\text{матрицы}} - n_{\text{столбца}}$ )

Таким образом, расчет в рамках применяемой модели позволяет направленно оценить конструктивные параметры композитной неупорядоченной структуры тонкой пленки для осуществления эффективной генерации второй гармоники при оптических исследованиях.

**Список литературы**

1. Мишина Е.Д., Шерстюк Н.Э., Вальднер В.О., Мишина А.В., Воротилов К.А., Васильев В.А., Сигов А.С., De Santo M.P., Cazzanelli E., Barberi R., Rasing Th. Нелинейно-оптическая и микрорамановская диагностика тонких пленок и наноструктур сегнетоэлектриков  $\text{ABO}_3$  // ФТТ. 2006. Т. 48, вып.6. С. 1140–1142.
2. Ruppin R. Evaluation of extended Maxwell-Garnett theories // Optics Commun. 2000. V. 182. P. 273–279.
3. Wang J., Shao J., Fan Z. Extended effective medium model for refractive indices of thin films with oblique columnar structure // Optics Commun. 2004. V. 247. P. 107–110.
4. Ярив А., Юх П. Оптические волны в кристаллах. М.: Мир, 1987. 616 с.

**SIMULATION OF THE CONDITIONS FOR PHASE SYNCHRONISM  
APPEARANCE AT SECOND HARMONIC GENERATION IN  
DISORDERED STRUCTURES**

**A. V. Mishina<sup>1</sup>, A. D. Mishin<sup>2</sup>**

<sup>1</sup> Tver State Technical University, *Chair of Physics*

<sup>2</sup> M.V. Lomonosov Moscow State University, *Department of Physics*

Methods of increasing the efficiency of second harmonic generation are discussed. Use has been made of the Bruggeman model of disordered effective medium.

**Keywords:** *thin films, phase synchronism, Bruggeman model*

*Об авторах:*

МИШИНА Анна Витальевна – старший преподаватель кафедры физики Тверского государственного технического университета, *e-mail*: nna32@mail.ru;

МИШИН Алексей Дмитриевич – студент 3 курса, МГУ им. М.В. Ломоносова, физфак, *e-mail*: a123-91@mail.ru.