

## GERAÇÃO DE SEGUNDO HARMÔNICO EM KDP

Niklaus Ursus Wetter  
Div. MEO  
IPEN - CNEN/SP  
Caixa Postal 11049  
São Paulo - S.P.

Curso ministrado na VI Escola de Verão Jorge André Swieca no Instituto de Física da UNICAMP Campinas - S.P.

LITERATURA: - A. YARIV, "Optical Electronics", Saunders College (1991)  
- A. YARIV, "Quantum Electronics", John Wiley & Sons (1989)  
- Y. R. SHEN, "The Principles of Nonlinear Optics",  
John Wiley & Sons (1984)

### 1. A ORIGEM FÍSICA DA POLARIZAÇÃO NÃO LINEAR

A polarização ótica em cristais dielétricos se deve aos elétrons da banda de valência que são deslocados devido à incidência de um campo ótico. Sendo  $N(t)$  a densidade de elétrons, a polarização é dada por:

$$p(t) = - Nex(t) \quad (1)$$

A função da energia potencial do elétron devido ao campo cristalino pode ser escrita, utilizando uma representação unidimensional, como:

$$V(x) = \frac{m\omega^2}{2}x^2 + \frac{m}{3}Dx^3 + \frac{m}{4}Bx^4 \dots \quad (2)$$

Em cristais simétricos, onde  $V(x) = V(-x)$ , o coeficiente anarmônico  $D$  é nulo. Para relacionar a polarização ao campo indutor  $E^{(\omega)}\cos \omega t$  utilizaremos a força restauradora do campo cristalino dada por  $F = - dV/dx$ . A equação de movimento é então dada por:

$$\frac{d^2x(t)}{dt^2} + \sigma \frac{dx(t)}{dt} + \omega^2 x(t) + Dx^2(t) = -\frac{eE^{(\omega)}}{2m} (e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}) \quad (3)$$

onde incluímos as perdas devido a uma força de atrito de  $-m\sigma\dot{x}$ . O termo  $Dx^2$  requer uma componente oscilando em  $2\omega$ . Portanto, a geração de segundo harmônico (oscilação em  $2\omega$ ) é possível somente em cristais assimétricos (onde  $D$  não é nulo). Assumimos, então, uma solução para  $x(t)$  na forma de:

$$x(t) = \frac{1}{2}(q_1 e^{i\omega t} + q_2 e^{2i\omega t} + \text{c. c.}) \quad (4)$$

Substituindo esta expressão na equação (3) e igualando primeiramente os coeficientes de  $e^{i\omega t}$ , obtém-se  $q_1$ :

$$q_1 = -\frac{eE^{(\omega)}}{m} \frac{1}{(\omega_0^2 - \omega^2) + i\omega\sigma} \quad (5)$$

onde assumimos que  $|Dq_2| \ll \left[ (\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega^2\sigma^2 \right]^{1/2}$ . A polarização linear em  $\omega$  se relaciona ao deslocamento eletrônico em  $\omega$  através de:

$$p^{(\omega)}(t) = -\frac{Ne}{2}(q_1 e^{i\omega t} + \text{c. c.}) \equiv \frac{\epsilon_0}{2} [\chi(\omega) E^{(\omega)} e^{i\omega t} + \text{c. c.}] \quad (6)$$

onde  $\chi(\omega)$  é a susceptibilidade linear.

Para encontrar a polarização não linear de segunda ordem é necessário de calcular a amplitude,  $q_2$ , do movimento eletrônico em  $2\omega$ . Substituindo expressão (4) na equação (3) e igualando os coeficientes de  $e^{2i\omega t}$ , obtém-se:

$$q_2 = \frac{-De^2(E^{(\omega)})^2}{2m^2[(\omega_0^2 - \omega^2) + i\omega\sigma]^2(\omega_0^2 - 4\omega^2 + 2i\omega\sigma)} \quad (7)$$

## 2. PROPAGAÇÃO DE ONDA NO MEIO NÃO LINEAR

Para simplificar a seguinte análise, assumimos que apenas um coeficiente  $d_{ijk}$  na expressão (11) não seja nulo. Deste modo o campo ótico consiste de dois feixes:

$$E(t) = \text{Re} \left[ E^{(\omega_1)} e^{i\omega_1 t} + E^{(\omega_2)} e^{i\omega_2 t} \right] \quad (12)$$

e, portanto, as possíveis polarizações induzidas apresentam a soma e a diferença das frequências  $\omega_1$  e  $\omega_2$ :

$$p_i^{(\omega_1+\omega_2)} = \text{Re} \left[ d_{ijk}^{(\omega=\omega_1+\omega_2)} E_j^{(\omega_1)} E_k^{(\omega_2)} e^{i(\omega_1+\omega_2)t} \right] \quad (13)$$

$$p_i^{(\omega_1-\omega_2)} = \text{Re} \left[ d_{ijk}^{(\omega=\omega_1-\omega_2)} E_j^{(\omega_1)} \left( E_k^{(\omega_2)} \right)^* e^{i(\omega_1-\omega_2)t} \right] \quad (14)$$

Utilizaremos agora as equações de Maxwell para derivar as equações de propagação:

$$\nabla \times \mathbf{h} = \mathbf{i} + \frac{\partial \mathbf{d}}{\partial t} \quad (15)$$

$$\nabla \times \mathbf{e} = -\mu \frac{\partial \mathbf{h}}{\partial t} \quad (16)$$

$$\mathbf{d} = \epsilon_0 \mathbf{e} + \mathbf{p} \quad (17)$$

$$\mathbf{i} = \sigma \mathbf{e} \quad (18)$$

onde  $\sigma$  é a condutividade. Separando  $\mathbf{p}$  na parte linear e na parte não linear temos:

$$\mathbf{p} = \epsilon_0 \chi_e \mathbf{e} + \mathbf{p}_{NL} \quad (19)$$

Utilizando-se  $\epsilon \equiv \epsilon_0 (1 + \chi_e)$  e a equação (15), obtém-se:

$$\nabla \times \mathbf{h} = \sigma \mathbf{e} + \epsilon \frac{\partial \mathbf{e}}{\partial t} + \frac{\partial \mathbf{p}_{NL}}{\partial t} \quad (20)$$

A polarização não linear em  $2\omega$  é dada por:

$$p^{(2\omega)}(t) = -\frac{Ne}{2} (q_2 e^{i\omega t} + \text{c.c.}) \equiv \frac{1}{2} \left( d^{(2\omega)} [E^{(\omega)}]^2 e^{2i\omega t} + \text{c.c.} \right) \quad (8)$$

Onde a segunda equação define o coeficiente ótico não linear  $d^{(2\omega)}$ . Através das equações (5) a (8) podemos relacionar o coeficiente não linear à susceptibilidade linear e ao coeficiente anarmônico D:

$$d^{(2\omega)} = \frac{mD [\chi^{(\omega)}]^2 \chi^{(2\omega)} \epsilon_0^3}{2N^2 e^3} \quad (9)$$

Utilizando a amplitude complexa de polarização,  $P^{(2\omega)}$ , tem-se:

$$p^{(2\omega)}(t) = \frac{1}{2} [P^{(2\omega)} e^{2i\omega t} + \text{c.c.}]$$

e,

$$P^{(2\omega)} = d^{(2\omega)} E^{(\omega)} E^{(\omega)} \quad (10)$$

Agora precisamos abandonar a representação uni-dimensional e considerar que a polarização de segundo harmônico, numa dada direção, depende das possíveis combinações dos campos elétricos  $E_x$ ,  $E_y$  e  $E_z$ . Portanto, ela está relacionada a estes campos através de um tensor de terceira ordem  $d_{ijk}$ :

$$P_i^{(2\omega)} = \sum_{j,k=x,y,z} d_{ijk}^{(2\omega)} E_j^{(\omega)} E_k^{(\omega)} \quad (11)$$

Considerações sobre a simetria do cristal fazem com que alguns dos coeficientes não lineares desapareçam ou, como no caso dos cristais centro simétricos, são todos nulos e, portanto, não geram segundo harmônico (ver tabela 1). Como exemplo, verifica-se pelas tabelas, que um feixe incidindo ao longo do eixo z ( $E_z^{(\omega)} = 0$ ) de um cristal de  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  (KDP) gera uma polarização de

$$P_z^{(2\omega)} = d_{zxy}^{(2\omega)} E_x^{(\omega)} E_y^{(\omega)} \quad (\text{Utiliza-se a notação matricial. Exemplo: } d_{36} = d_{zxy}).$$

Aplicando-se o rotacional nos dois lados de (16) e utilizando-se a identidade  $\nabla \times \nabla \times \mathbf{e} = \nabla \nabla \cdot \mathbf{e} - \nabla^2 \mathbf{e}$ , onde  $\nabla \cdot \mathbf{e} = 0$ , tem-se:

$$\nabla^2 \mathbf{e} = \mu\sigma \frac{\partial \mathbf{e}}{\partial t} + \mu\varepsilon \frac{\partial^2 \mathbf{e}}{\partial t^2} + \mu \frac{\partial^2 \mathbf{p}_{NL}}{\partial t^2} \quad (21)$$

Para simplificar o problema, escolhamos a direção de propagação ao longo do eixo  $z$  e limitamos as frequências em  $\omega_1$ ,  $\omega_2$  e  $\omega_3$  de acordo com

$$E^{(\omega_j)}(z,t) = \frac{1}{2} \left[ E_j(z) e^{i(\omega_j t - k_j z)} + \text{c.c.} \right], \quad \text{onde } j=1,2,3 \quad (22)$$

O campo total  $E$  é a soma dos três campos da equação (22). Na sequência, introduz-se  $E$  na equação (21) e, a seguir, iguala-se os termos com a mesma frequência  $\omega_j$ . Resolveremos para  $\omega_1$ .

Conforme as equações (13) e (14), a polarização não linear oscila ou com a soma de duas frequências (das três  $\omega_1$ ,  $\omega_2$ ,  $\omega_3$ ) ou com a diferença delas. Portanto, a única maneira de obter uma contribuição de  $P_{NL}$  na equação de onda dos termos em  $\omega_1$  é quando

$$\omega_1 = \omega_3 - \omega_2 \quad (23)$$

Utilizando (23), (14) e (21) obtemos

$$\nabla^2 E^{(\omega_1)} = \mu\sigma \frac{\partial E^{(\omega_1)}}{\partial t} + \mu\varepsilon_1 \frac{\partial^2 E^{(\omega_1)}}{\partial t^2} + \mu d \frac{\partial^2}{\partial t^2} \left[ \frac{E_3(z) E_2^*(z)}{2} e^{i[(\omega_3 - \omega_2)t - (k_3 - k_2)z]} + \text{c.c.} \right] \quad (24)$$

Substituindo  $E^{(\omega_1)}$  na equação (24) pela expressão (22), utilizando  $\delta/\delta t = i\omega$  e  $k_1^2 = \omega_1^2 \mu\varepsilon_1$ , podemos rescrever (24):

$$\frac{dE_1}{dz} = -\frac{\sigma_1}{2} \sqrt{\frac{\mu}{\varepsilon_1}} E_1 - \frac{i\omega_1}{2} \sqrt{\frac{\mu}{\varepsilon_1}} d E_3 E_2^* e^{-i(k_3 - k_2 - k_1)z} \quad (25)$$

e de modo similar obtemos:

$$\frac{dE_2^*}{dz} = -\frac{\sigma_2}{2} \sqrt{\frac{\mu}{\varepsilon_2}} E_2^* - \frac{i\omega_2}{2} \sqrt{\frac{\mu}{\varepsilon_2}} d E_1 E_3^* e^{-i(k_1 - k_3 + k_2)z} \quad (26)$$

$$\frac{dE_3}{dz} = -\frac{\sigma_3}{2} \sqrt{\frac{\mu}{\epsilon_3}} E_3 - \frac{i\omega_3}{2} \sqrt{\frac{\mu}{\epsilon_3}} dE_1 E_2 e^{-i(k_1+k_2-k_3)z} \quad (27)$$

Estas são as equações básicas que descrevem as interações paramétricas não lineares.

### 3. "PHASE-MATCHING" NA GERAÇÃO DE SEGUNDO HARMÔNICO (SHG)

Na SHG dois dos três campos apresentam a mesma frequência. Portanto podemos colocar  $\omega_1 = \omega_2 = \omega$  e  $\omega_3 = 2\omega$ . Desprezando-se a absorção ( $\sigma_{1,2,3} = 0$ ), temos (ver equação (27)):

$$\frac{dE^{(2\omega)}}{dz} = -\frac{i\omega}{2} \sqrt{\frac{\mu}{\epsilon}} d [E^{(\omega)}]^2 e^{i(\Delta k)z} \quad (28)$$

onde

$$\Delta k \equiv k_3 - 2k_1 = k^{(2\omega)} - 2k^{(\omega)} \quad (29)$$

Para simplificar, assumiremos que a perda da onda fundamental (frequência  $\omega$ ) devido à conversão de sua potência em segundo harmônico, seja desprezível. Deste modo,  $E^{(\omega)}$  é constante e pode-se integrar o campo de saída ao longo do cristal com comprimento  $L$ :

$$E^{(2\omega)}(L) = -i\omega \sqrt{\frac{\mu}{\epsilon}} d [E^{(\omega)}]^2 \frac{e^{i\Delta k L} - 1}{i\Delta k L} \quad (30)$$

A intensidade de saída é proporcional a:

$$E^{(2\omega)}(L) E^{(2\omega)*}(L) = \left(\frac{\mu}{\epsilon}\right) \frac{\omega^2 d^2}{n^2} [E^{(\omega)}]^4 L^2 \frac{\text{sen}^2(\Delta k L / 2)}{(\Delta k L / 2)^2} \quad (31)$$

onde utilizamos  $\epsilon/\epsilon_0 = n^2$ . De acordo com (31) a eficiência de conversão é máxima quando  $\Delta k = 0$ . Esta condição é chamada de *phase - matching*. Devido a relação  $k^{(\omega)} = \omega \sqrt{\mu \epsilon_0} n^\omega$ , a condição  $\Delta k = 0$  é válida quando:

$$n^{2\omega} = n^\omega \quad (32)$$

Os índices de refração na frequência fundamental e na frequência de segundo harmônico tem que ser igual ao longo de uma dada direção de propagação dentro do cristal.

Em cristais uniaxiais, um feixe, polarizado ao longo do eixo z do cristal (o eixo de maior simetria), é chamado de feixe extraordinário e o índice de refração associado a este eixo é denominado  $n_e$ . Similarmente, um feixe com polarização perpendicular ao eixo z é chamado de ordinário e o índice de refração associado é  $n_o$ . Em materiais dielétricos normais o índice de refração de  $\omega$  e  $2\omega$  é diferente, para a mesma polarização, como verifica-se na tabela 3. Portanto, é possível satisfazer a equação (32) somente, quando o feixe fundamental e o feixe de segundo harmônico forem de polarizações diferentes: um ordinário outro extraordinário. O índice de refração do feixe extraordinário, que inclui um ângulo  $\Phi$  entre sua direção de propagação e o eixo z, é dado por (ver figura 4 para um cristal uniaxial positivo:  $n_e^\omega > n_o^\omega$ ):

$$\frac{1}{n_e^2(\Phi)} = \frac{\cos^2\Phi}{n_o^2} + \frac{\sin^2\Phi}{n_e^2} \quad (33)$$

Se  $n_e^{2\omega} < n_o^\omega$ , deve existir um ângulo  $\Theta$  tal que  $n_e^{2\omega}(\Theta) = n_o^\omega$ . Utilizando equação (33) e o fato que KDP é um cristal uniaxial negativo ( $n_e^\omega < n_o^\omega$ ), têm-se (ver figura 5):

$$\frac{1}{(n_o^\omega)^2} = \frac{\cos^2\Theta}{(n_o^{2\omega})^2} + \frac{\sin^2\Theta}{(n_e^{2\omega})^2} \quad (34)$$

ou, resolvendo para  $\Theta$ :

tipo1

$$\boxed{\sin^2\Theta = \frac{(n_o^\omega)^{-2} - (n_o^{2\omega})^{-2}}{(n_e^{2\omega})^{-2} - (n_o^{2\omega})^{-2}}} \quad (35)$$

Exemplo: Para duplicar a frequência de um laser de rubi, o feixe fundamental dentro do cristal deve apresentar um ângulo de  $51^\circ$  (ver tabela 3 e equação 35) com o eixo z e uma polarização ordinária.

O *phase-matching* com  $n_e^{2\omega}(\Theta) = n_o^\omega$  é chamado de *phase-matching tipo 1*.

Como o feixe fundamental é ordinário ( $E_z^\omega = 0$ ), a polarização de segundo harmônico é dada por (ver equação 11) :

$$P_z^{(2\omega)} = d_{36}^{(2\omega)} E_x^{(\omega)} E_y^{(\omega)}$$

Portanto,  $P_z$  é máximo quando  $E_x^\omega = E_y^\omega = E^\omega/\sqrt{2}$ , o que ocorre quando o ângulo entre o feixe fundamental e o eixo cristalino x é de  $45^\circ$ .

No *phase-matching tipo 2*, os componentes  $E_x$  e  $E_y$  do feixe fundamental pertencem a polarizações diferentes. Neste caso, um dos dois componentes é um feixe extraordinário. A condição de *phase-matching* ( $\Delta k=0$ ) é dada por:

$$n_{ie}^{2\omega}(\Theta) = \frac{1}{2} [n_{jo}^\omega + n_{ke}^\omega] \quad (36)$$

onde i,j,k são os eixos do elipsóide de índice (fig. 4). O ângulo de *phase-matching* tipo 2 calcula-se introduzindo a expressão (34) na equação (36):

$$\text{tipo2} \quad \boxed{\left[ \frac{\cos^2\Theta}{(n_o^{2\omega})^2} + \frac{\sin^2\Theta}{(n_e^{2\omega})^2} \right]^{-1/2} = \frac{1}{2} \left\{ n_o^\omega + \left[ \frac{\cos^2\Theta}{(n_o^\omega)^2} + \frac{\sin^2\Theta}{(n_e^\omega)^2} \right]^{-1/2} \right\}} \quad (37)$$

#### 4. EXERCÍCIOS

1. Porque aumenta a eficiência de SHG quando o ângulo de *phase-matching* se aproxima de  $90^\circ$ ? (Duas respostas)
2. É possível gerar segundo harmônico com um feixe não polarizado?
3. Calcule os ângulos de *phase-matching* tipo 1 e tipo 2 para dobrar 1064nm (Nd:YAG) em KDP.
4. Use os resultados do exercício 3 para desenhar nas figura 6 e 7 as orientações cristalográficas para *phase-matching* tipo 1 e tipo 2, respectivamente.



TABLE 1. The Form of the Nonlinear Optical Tensor  $d_{ijk}$

Key to Notation

- Zero modulus
- Nonzero modulus
- Equal moduli
- Moduli numerically equal, but opposite in sign

---

Centrosymmetrical Classes  
(all moduli vanish)

---

Noncentrosymmetrical Classes

Triclinic  
Class 1

Tetragonal (continued)

Class  $\bar{4}2m$

---

Cubic

Class 432

All moduli vanish

Classes  $\bar{4}3m$  and 23

---

Monoclinic

Class 2

Class 2

Class m

Class m

---

Orthorhombic

Class 222

Class mm2

---

Trigonal

Class 3

Class 3m

Class 3m

---

Hexagonal

Class 6

same as class 4

Class 6mm

same as class 4mm.

Class 6

Class 6m2

same as class 422

Class  $\bar{6}m2$

m ⊥ x<sub>1</sub> (standard orientation)

Class  $\bar{6}m2$

m ⊥ x<sub>2</sub>

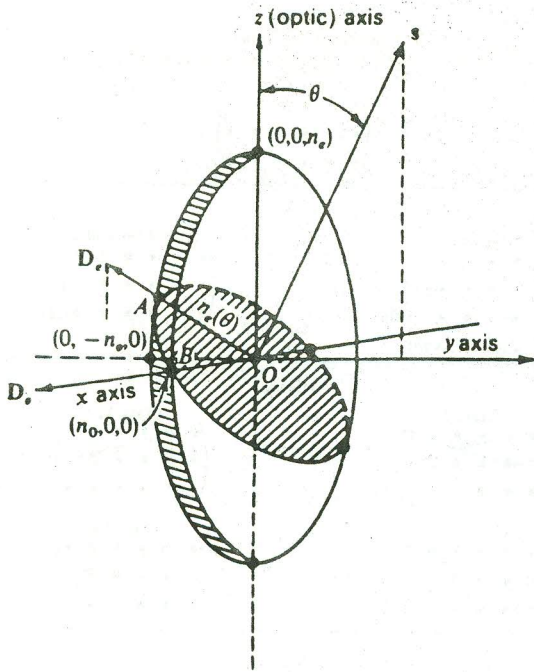
TABLE 2. The Nonlinear Optical Coefficients of a Number of Crystals<sup>a</sup>

Crystal	$d_{ijk}^{(2\omega)}$ in units of $\text{Å} \times 10^{-22}$ MKS	$\delta_{ijk}$ in units of $10^9$
LiIO <sub>3</sub>	$d_{15} = 4.4$	
NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> (ADP)	$d_{16} = 0.45$ $d_{14} = 0.50 \pm 0.02$	3.2 3.2
KH <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> (KDP)	$d_{16} = 0.45 \pm 0.03$ $d_{14} = 0.35$	3.4 3.4
KD <sub>2</sub> PO <sub>4</sub>	$d_{16} = 0.42 \pm 0.02$ $d_{14} = 0.42 \pm 0.02$	3.1 3.1
KH <sub>2</sub> AsO <sub>4</sub>	$d_{16} = 0.48 \pm 0.03$ $d_{14} = 0.51 \pm 0.03$	2.9 3.1
Quartz	$d_{11} = 0.37 \pm 0.02$	2.3
AlPO <sub>4</sub>	$d_{11} = 0.38 \pm 0.03$	2.5
ZnO	$d_{33} = 6.5 \pm 0.2$ $d_{31} = 1.95 \pm 0.2$ $d_{15} = 2.1 \pm 0.2$	4.0 1.3 1.5
CdS	$d_{33} = 28.6 \pm 2$ $d_{31} = 30 \pm 10$ $d_{16} = 33$	3.8 1.9 2.3
GaP	$d_{14} = 80 \pm 14$	1.5
GaAs	$d_{14} = 72$	2.0
BaTiO <sub>3</sub>	$d_{33} = 6.4 \pm 0.5$ $d_{31} = 18 \pm 2$ $d_{15} = 17 \pm 2$	1.3 3.1 2.9
LiNbO <sub>3</sub>	$d_{15} = 4.4$ $d_{22} = 2.3 \pm 1.0$	1.4 0.66
Te	$d_{11} = 517$	0.8
Se	$d_{11} = 130 \pm 30$	5.0
Ba <sub>2</sub> NaNb <sub>5</sub> O <sub>15</sub>	$d_{33} = 10.4 \pm 0.7$ $d_{12} = 7.4 \pm 0.7$	
Ag <sub>3</sub> AsS <sub>3</sub> (proustite)	$d_{22} = 22.5$ $d_{16} = 13.5$	
CdSe	$d_{31} = 22.5 \pm 3$	
CdGeAs <sub>2</sub>	$d_{16} = 363 \pm 70$	
AgGaSe <sub>2</sub>	$d_{16} = 27 \pm 3$	
AgSbS <sub>3</sub>	$d_{16} = 9.5$	
ZnS	$d_{16} = 13$	

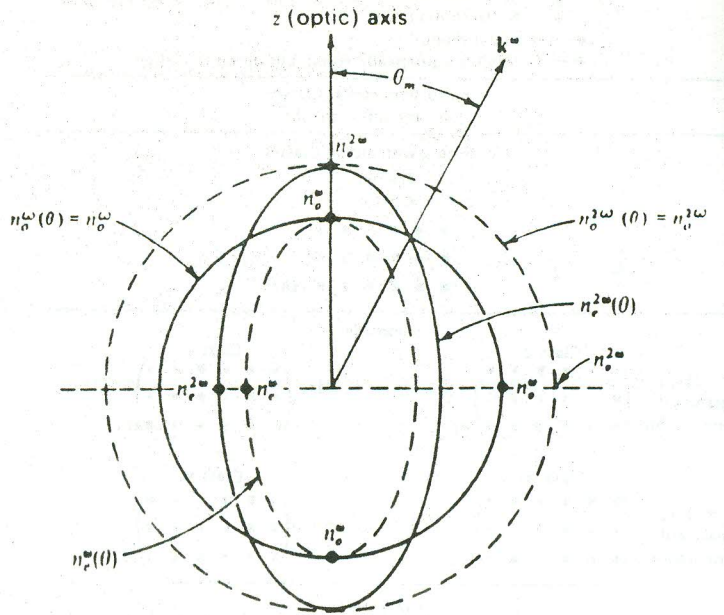
<sup>a</sup> Some authors define the nonlinear coefficient  $d$  by  $P = \epsilon_0 dE^2$  rather than by the relation  $P = dE^2$  used here.

TABLE 3. Index of Refraction Dispersion Data of KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>

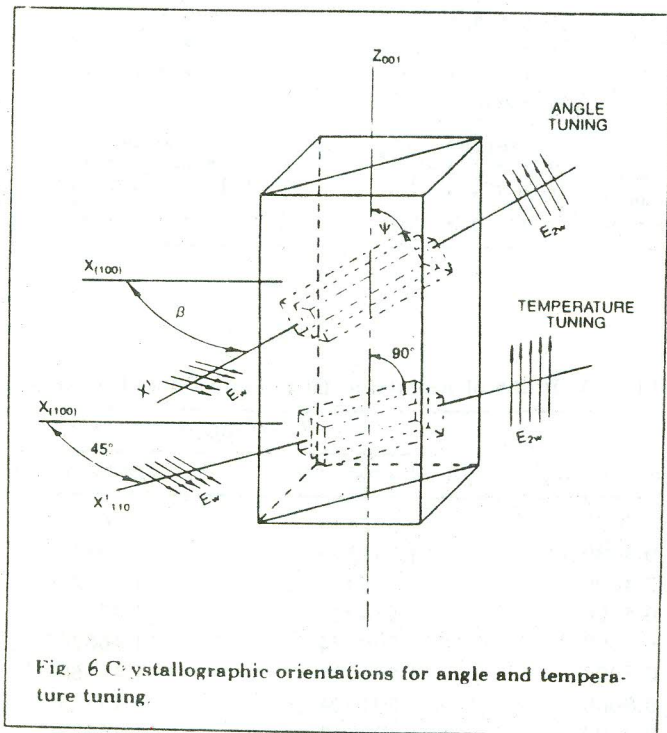
Wavelength, $\mu\text{m}$	Index	
	$n_o$ (ordinary ray)	$n_e$ (extraordinary ray)
0.2000	1.622630	1.563913
0.3000	1.545570	1.498153
0.4000	1.524481	1.480244
0.5000	1.514928	1.472486
0.6000	1.509274	1.468267
0.7000	1.505235	1.465601
0.8000	1.501924	1.463708
0.9000	1.498930	1.462234
1.0000	1.496044	1.460993
1.1000	1.493147	1.459884
1.2000	1.490169	1.458845
1.3000	1.487064	1.457838
1.4000	1.483803	1.456838
1.5000	1.480363	1.455829
1.6000	1.476729	1.454797
1.7000	1.472890	1.453735
1.8000	1.468834	1.452636
1.9000	1.464555	1.451495
2.0000	1.460044	1.450308



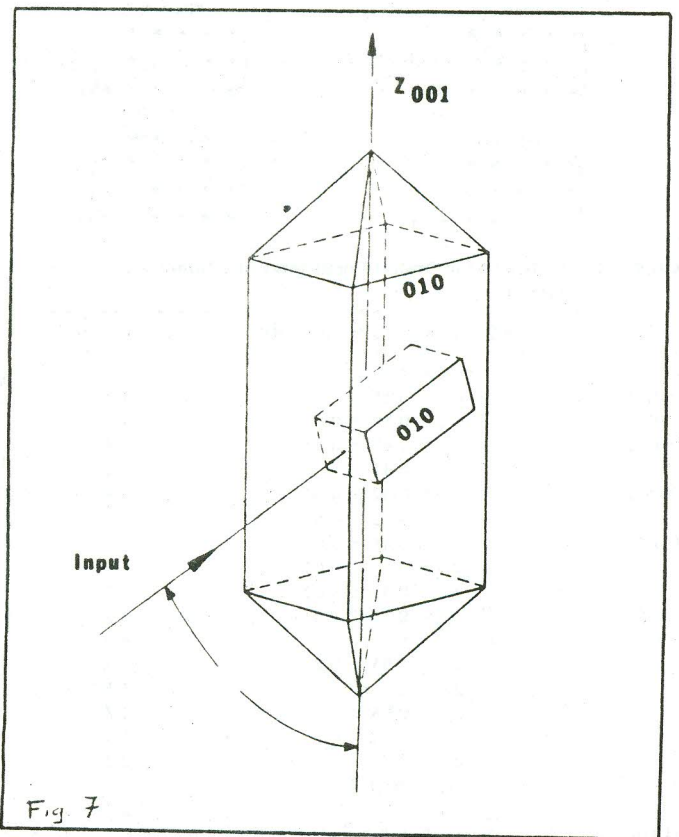
**FIGURE 4** The construction for finding the indices of refraction and the allowed polarization directions for a given direction of propagation  $s$ . The figure shown is for a uniaxial crystal with  $n_x = n_y = n_o$ ,  $n_z = n_e$ .



**FIGURE 5** Normal (index) surfaces for the ordinary and extraordinary rays in a negative ( $n_e < n_o$ ) uniaxial crystal. If  $n_e^{\omega} < n_o$ , the condition  $n_e^{\omega}(\theta) = n_o$  is satisfied at  $\theta = \theta_m$ . The eccentricities shown are exaggerated.



**Fig. 6** Crystallographic orientations for angle and temperature tuning.



**Fig. 7**