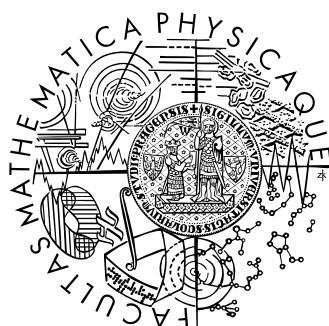


Univerzita Karlova v Praze
Matematicko-fyzikální fakulta

BAKALÁŘSKÁ PRÁCE



Tomáš Popelář

Nelineární vlastnosti nanokrystalického diamantu

KCHFO MFF UK

Vedoucí bakalářské práce: doc. RNDr. František Trojánek, Ph.D.

Studijní program: Obecná fyzika

2010

Chtěl bych na tomto místě poděkovat panu docentu Františku Trojánkovi za vedení práce a poskytnutí informací k jejímu vypracování. Dále bych chtěl poděkovat panu magistru Martinu Kozákovi za pomoc při provedení experimentu a při zpracování naměřených dat.

Prohlašuji, že jsem svou bakalářskou práci napsal samostatně a výhradně s použitím citovaných pramenů. Souhlasím se zapůjčováním práce.

V Praze dne

Tomáš Popelář

Obsah

1	Úvod	5
2	Základní teoretické podklady	5
2.1.	Nelineární vlnová rovnice.....	5
2.2.	Aproximace pomalé změny amplitudy.....	7
2.3.	Rovnice vázaných vln.....	8
2.4.	Vliv sfázování.....	10
2.5.	Vliv prostředí na optické vlnění.....	11
2.6.	Gaussovské svazky.....	12
2.7.	Nanodiamant.....	12
3	Experiment	13
3.1.	Experimentální soustava a podmínky experimentu.....	13
3.2.	Měření THG v nanodiamantu.....	14
3.3.	Možnosti zvýšení intenzity THG.....	17
4	Zhodnocení výsledků	20
	Literatura	21

Název práce: Nelineární vlastnosti nanokrystalického diamantu
Autor: Tomáš Popelář
Katedra: KCHFO MFF UK
Vedoucí bakalářské práce: doc. RNDr. František Trojánek, Ph.D.
e-mail: Frantisek.Trojaneck@mff.cuni.cz

Abstrakt: V předložené práci studujeme schopnost nanodiamantu generovat třetí harmonickou frekvenci z generující vlny o vlnové délce 1200 nm. Byla vypočtena hodnota nelineární susceptibility třetího řádu v případě úplného sfázování. Dále byla zkoumána možnost tohoto stavu dosáhnout, pro srovnání byl jako příklad uveden krystal KDP, pro nějž byl zjištěn vliv natočení na možnou velikost generované intenzity pro různé délky krystalu. Jelikož se úplné sfázování ukázalo být v nanodiamantu nedosažitelné, byl studován vliv délky vzorku na velikost intenzity třetí harmonické frekvence a byla zhodnocena vhodnost délky použitého vzorku. Vypočtená hodnota susceptibility byla následně opravena o vliv rozfázování.

Klíčová slova: nanodiamant, nelineární optika, THG

Title: Nonlinear properties of nanocrystalline diamond
Author: Tomáš Popelář
Department: KCHFO MFF UK
Supervisor: doc. RNDr. František Trojánek, Ph.D.
e-mail: Frantisek.Trojaneck@mff.cuni.cz

Abstrakt: In the present work we study the ability of nanodiamond to generate the third harmonic frequency from a generating wave with wavelength 1200 nm. The value of the third order nonlinear susceptibility in the case of a perfect phase matching was computed. Then the possibilities of achieving of this state were explored and as an example we used the KDP crystal and an influence of this crystal alignment on the possible value of the generated wave intensity for various lengths of the crystal. Because the perfect phase matching is not achievable for diamond, the influence of a length of the crystal on the efficiency of the third harmonic generation was studied and a length of the used nanodiamond was discussed. The computed value of the third order susceptibility was corrected for the case of phase mismatch.

Keywords: nanodiamond, nonlinear optics, THG

Kapitola 1

Úvod

V této práci je zkoumána schopnost nanodiamantu produkovat nelineární optický proces generování třetí harmonické frekvence. Tento materiál má jisté vhodné fyzikální vlastnosti (vysoká tvrdost, chemická inertnost, netoxičnost, biokompatibilita,..), které ho předurčují pro optické a jiné aplikace. Jeho lineární optické vlastnosti byly již rozsáhle zkoumány, nicméně výzkum nelineárních optických vlastností je vzácný. Tento výzkum dává informace o mikroskopických vlastnostech materiálu a dále umožňuje posouzení vhodnosti nanodiamantu ke konverzi vlnové délky.

Kapitola 2

Základní teoretické podklady

2.1 Nelineární vlnová rovnice

Základem nelineární optiky je nelineární vlnová rovnice. Lze ji odvodit podobným způsobem jako v optice obvykle používanou vlnovou rovnici z Maxwellových rovnic (1)-(4):

$$\nabla \times \vec{H} - \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} = \vec{j} \quad (1)$$

$$\nabla \times \vec{E} + \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = 0 \quad (2)$$

$$\nabla \cdot \vec{D} = \rho \quad (3)$$

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0 \quad (4)$$

kde \vec{H} je magnetická intenzita, \vec{E} elektrická intenzita, \vec{B} magnetická indukce, \vec{D} elektrická indukce, \vec{j} proudová hustota a ρ nábojová hustota.

Jelikož budeme pracovat jen s nevodivým nemagnetickým homogenním prostředím bez nábojů, platí, že:

$$\begin{aligned}\vec{j} &= 0 \\ \rho &= 0 \\ \vec{B} &= \mu_0 \vec{H} \\ \nabla \cdot \vec{E} &= 0\end{aligned}\tag{5}$$

kde μ_0 je permeabilita vakua a ϵ permitivita daného prostředí.

V nelineární optice se závislost polarizace \vec{P} na \vec{E} rozepíše do mocninné řady (jejíž první člen odpovídá lineární optice), takže \vec{D} lze vyjádřit jako:

$$\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P} = \epsilon_0 \left(\vec{E} + \chi^{(1)} \vec{E} + \chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} + \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots \right)\tag{6}$$

kde ϵ_0 je permitivita vakua a χ je tenzor elektrické susceptibility. Takto vyjádřené \vec{D} můžeme rozložit na lineární a nelineární část (v \vec{E}) a s využitím:

$$\epsilon = \epsilon_0 (1 + \chi^{(1)})\tag{7}$$

přepsat do tvaru:

$$\vec{D} = \epsilon \vec{E} + \chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} + \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots = \epsilon \vec{E} + \vec{P}_{NL}\tag{8}$$

Dále už obvyklým způsobem odvodíme vlnovou rovnici (podrobněji v [1]) Provedeme rotaci na rovnici (2), zaměníme na pravé straně pořadí časové a prostorové derivace, využijeme vztahů (5) a (8), dosadíme z (1) a získáme vlnovou rovnici ve tvaru:

$$\nabla \times \nabla \times \vec{E} + \mu_0 \epsilon \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}_{NL}}{\partial t^2}\tag{9}$$

2.2 Aproximace pomalé změny amplitudy

Rovnici (9) lze upravit podle rovnosti z vektorové analýzy:

$$\nabla \times \nabla \times \vec{E} = \nabla (\nabla \cdot \vec{E}) - \Delta \vec{E} \quad (10)$$

První člen v nelineární optice v prostředí bez nábojů nemůžeme jednoduše jako v lineární optice v důsledku rovnice (3) zanedbat kvůli vztahu (8) pro \vec{D} . Nicméně v důsledku dále provedené aproximace a také faktu, že odvození vázaných vlnových rovnic uděláme pro rovinné vlny, jej vypustit můžeme. Pokud také uvážíme, že každé vlnění můžeme zapsat jako Fourierův integrál, tedy jako superpozici monochromatických vln (11), tak vlnovou rovnici vyjádříme ve tvaru [2]:

$$E(r, t) = \int_{-\infty}^{\infty} E(\omega, r) e^{-i\omega t} d\omega \quad (11)$$

$$\Delta \vec{E}(\omega, r) + \mu_0 \epsilon \omega^2 \vec{E}(\omega, r) = -\mu_0 \omega^2 \vec{P}_{NL}(\omega, r) \quad (12)$$

Elektrické pole vyjádříme ve tvaru rovinné vlny šířící se ve směru z:

$$\vec{E}(\omega, r) = \vec{a} A(z) e^{ikz} \quad (13)$$

kde \vec{a} je jednotkový vektor, $A(z)$ amplituda vlnění a k je vlnčet, který lze vyjádřit ve tvaru:

$$k = \frac{n\omega}{c} \quad (14)$$

kde n je index lomu, pro nějž platí:

$$n = \sqrt{\epsilon_r \mu_r} \quad (15)$$

kde ϵ_r je relativní permitivita a μ_r je relativní permeabilita daného prostředí.

Vyjádření (13) dosadíme do rovnice (12), a pokud se amplituda vlnění bude měnit pomalu, můžeme zanedbat její druhou derivaci a získáme tak rovnici ve tvaru (podrobněji v [1]):

$$\frac{\partial A(z)}{\partial z} = \frac{i\mu_0}{2k} \vec{a} P_{NL}(\omega, z) \quad (16)$$

2.3 Rovnice vázaných vln

Při generaci vyšších harmonických frekvencí jsou v médiu přítomny dvě vlny, původní a generovaná. Jelikož se budeme zabývat generací třetí harmonické frekvence (dále THG), tak budeme vyjadřovat polarizace obou vlnění takto:

$$\begin{aligned} P_1(\omega = 3\omega - \omega - \omega) &= \varepsilon_0 \chi^{(3)}(3\omega, -\omega, -\omega) \vec{E}_2(3\omega) \vec{E}_1^*(\omega) \vec{E}_1^*(\omega) \\ P_2(3\omega = \omega + \omega + \omega) &= \varepsilon_0 \chi^{(3)}(\omega, \omega, \omega) \vec{E}_1(\omega) \vec{E}_1(\omega) \vec{E}_1(\omega) \end{aligned} \quad (17)$$

kde $\chi^{(3)}$ je tenzor nelineární susceptibilitity třetího řádu. Jedná se o interakci tří vln, proto na pravé straně (17) vystupuje součin tří amplitud. Komplexní sdružení amplitudy odpovídá odečítání frekvence, tzn. $A(-\omega)$, což vyplývá z (11), pokud provedeme inverzní Fourierovu transformaci [2].

Jestliže do (17) dosadíme z (13), a pak výsledný výraz dáme do rovnice (16), získáme dvě rovnice vázaných vln odpovídající dvěma přítomným vlněním – na základní a na třetí harmonické frekvenci:

$$\begin{aligned} \frac{\partial A_1(z)}{\partial z} &= \frac{ik_1}{2\varepsilon(\omega)} \varepsilon_0 \chi^{(3)}(3\omega, -\omega, -\omega) A_2 A_1^* A_1^* \exp(i(k_2 - 3k_1)z) \\ \frac{\partial A_2(z)}{\partial z} &= \frac{ik_2}{2\varepsilon(3\omega)} \varepsilon_0 \chi^{(3)}(\omega, \omega, \omega) A_1 A_1 A_1 \exp(i(3k_1 - k_2)z) \end{aligned} \quad (18)$$

Obecné řešení této soustavy diferenciálních rovnic by bylo obtížné, nicméně v důsledku nízké efektivity THG můžeme předpokládat, že se amplituda původního vlnění prakticky nemění, tedy první rovnice je rovna 0. Druhou rovnici nejdříve

vyřešíme pro případ, kdy jsou obě vlnění zřázována, tedy $\Delta k = 3k_1 - k_2 = 0$. Integrovat budeme přes délku média za okrajových podmínek: $A_2(0) = 0, A_1(L) = A_1(0)$. První podmínka vyjadřuje, že před vstupem do média neobsahuje paprsek vlnění na třetí harmonické frekvenci, druhá, že se amplituda A_1 v médiu nezmění, což vyplývá z první rovnice, kterou jsme položili rovnou nule.

$$\int_0^L \frac{\partial A_2(z)}{\partial z} dz = \int_0^L \frac{ik_2}{2\mathcal{E}(3\omega)} \varepsilon_0 \chi^{(3)}(\omega, \omega, \omega) A_1^3$$

$$A_2(L) = \frac{ik_2}{2\mathcal{E}(3\omega)} \varepsilon_0 \chi^{(3)}(\omega, \omega, \omega) A_1^3(0)L \quad (19)$$

Intenzitu daného vlnění spočteme z (19) podle tohoto vztahu:

$$I_2 = 2\varepsilon_0 n_2 c |A_1|^2 = \frac{\varepsilon_0^3 n_2 c k_2^2}{4\mathcal{E}^2(3\omega)} \left(\chi^{(3)}(\omega, \omega, \omega) \right)^2 A_1^6(0)L^2 \quad (20)$$

kde n_2 je index lomu prostředí při frekvenci 3ω . Pokud podobně vyjádříme intenzitu I_1 a využijeme vztahu (14), tak (20) upravíme do tvaru:

$$I_2 = \frac{9n_2^3 \omega^2}{16n_1^3 c^4 \mathcal{E}^2(3\omega)} \left(\chi^{(3)}(\omega, \omega, \omega) \right)^2 I_1^3 L^2 \quad (21)$$

Finální úpravu provedeme použitím definic $\varepsilon = \varepsilon_0 \varepsilon_r$, $\omega = 2\pi \frac{c}{\lambda}$ a vztahu (15):

$$I_2 = \frac{3\pi^2}{2n_1^3 n_2 c^2 \varepsilon_0^2 \lambda_1^2} \left(\chi^{(3)}(\omega, \omega, \omega) \right)^2 I_1^3 L^2 \quad (22)$$

kde n_1 je index lomu prostředí pro vlnu na základní frekvenci, I_1 a λ_1 jsou intenzita a vlnová délka vstupního vlnění.

Z měření intenzit vstupujícího paprsku na základní frekvenci a vystupujícího na třetí harmonické frekvenci tak můžeme určit velikost nelineární susceptibility v daném směru:

$$\chi^{(3)} = \frac{2c\varepsilon_0 \lambda_1 n_1 \sqrt{n_1 n_2}}{3\pi L I_1} \sqrt{\frac{I_2}{I_1}} \quad (23)$$

2.4 Vliv sfázování

Pokud budeme uvažovat obecnou hodnotu Δk , pak integrace druhé rovnice v (18) povede k tomuto výsledku:

$$I_2 = \frac{3\pi^2}{2n_1^3 n_2 c^2 \varepsilon_0^2 \lambda_1^2} (\chi^{(3)}(\omega, \omega, \omega))^2 I_1^3 L^2 \frac{\sin^2(\Delta k L / 2)}{(\Delta k L / 2)^2} \quad (24)$$

Intenzita se tedy mění jako funkce sinc^2 . Z požadavku $\Delta k = 0$ a definice (14) vyplývá v případě THG tato podmínka na index lomu:

$$n(3\omega) = n(\omega) \quad (25)$$

Toho lze těžko dosáhnout, jelikož látky vykazují jev zvaný normální disperze, kdy index lomu je rostoucí funkcí frekvence. V úzkém frekvenčním pásmu lze (25) dosáhnout pomocí anomální disperze, kdy je index lomu klesající funkcí frekvence, nicméně zde dochází k silné absorpci. Druhou možností je použití dvojlomných krystalů. U těch se v závislosti na úhlu θ , který svírá směr šíření s optickou osou, mění index lomu pro vlnění, které je polarizované v rovině určené optickou osou a směrem šíření. Index lomu se dá spočítat podle vztahu [1]:

$$\frac{1}{(n_e(\theta))^2} = \frac{\sin^2 \theta}{N_e^2} + \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2} \quad (26)$$

kde n_e je mimořádný index lomu, N_e je hlavní hodnota mimořádného indexu lomu a n_o je řádný index lomu. Kombinací vztahů (25) a (26) je možné určit úhel θ , aby Δk bylo nulové:

$$\theta = \arcsin \left(\sqrt{\frac{\frac{1}{n_o(\omega)^2} - \frac{1}{n_o(3\omega)^2}}{\frac{1}{N_e(3\omega)} - \frac{1}{n_o(3\omega)^2}}} \right) \quad (27)$$

Natáčením dvojlomného krystalu je tedy možné měnit sfázování, u izotropních krystalů je úplné sfázování nedosažitelné.

2.5 Vliv prostředí na optické vlnění

Optické vlnění se na rozhraní dvou prostředí rozdělí na odražené a procházející. Pro amplitudy těchto vln platí tzv. Fresnelovy vzorce[3]:

$$\begin{aligned} T_r &= \frac{2 \sin \theta_t \cos \theta_i}{\sin(\theta_i + \theta_t) \cos(\theta_i - \theta_t)} A_r \\ T_k &= \frac{2 \sin \theta_t \cos \theta_i}{\sin(\theta_i + \theta_t)} A_k \\ R_r &= \frac{\operatorname{tg}(\theta_i - \theta_t)}{\operatorname{tg}(\theta_i + \theta_t)} A_r \\ R_k &= \frac{-\sin(\theta_i - \theta_t)}{\sin(\theta_i + \theta_t)} A_k \end{aligned} \quad (28)$$

kde T_r je složka prošlé vlny polarizovaná rovnoběžně k rovině dopadu, T_k je složka polarizovaná kolmo k rovině dopadu, stejné označení je použito u odraženého vlnění s amplitudou R a původního vlnění s amplitudou A . θ_i a θ_t jsou úhly dopadu a lomu. V případě kolmého dopadu z těchto vzorců plynou pro poměry intenzit prošlé a odražené vlny vůči intenzitě původního vlnění s využitím Snellova zákona tyto vztahy:

$$\begin{aligned} \mathcal{T} &= \frac{4n_{12}}{(n_{12} + 1)^2} \\ \mathcal{R} &= \left(\frac{n_{12} - 1}{n_{12} + 1} \right)^2 \end{aligned} \quad (29)$$

kde \mathcal{T} resp. \mathcal{R} je poměr prošlé resp. odražené intenzity vůči intenzitě původního vlnění.

2.6 Gaussovské svazky

Rozdělení intenzity Gaussovských svazků je dáno podle rovnice:

$$I = I_0 \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_0^2}\right) \quad (30)$$

kde ω_0 je středová pološířka a r je poloměr svazku.

Gaussovský svazek si v každém bodě po cestě svého šíření uchovává svůj profil. Pouze se mění jeho velikost $\omega(z)$ a zakřivení vlnoplochy R :

$$\omega(z) = \omega_0 \left(1 + \left(\frac{\lambda z}{\pi \omega_0^2} \right)^2 \right) \quad (31)$$

$$R(z) = z \left(1 + \left(\frac{\pi \omega_0^2}{\lambda z} \right)^2 \right) \quad (32)$$

Z těchto vztahů je vidět, že nejmenší poloměr svazku je ω_0 , v tomto místě umístíme počátek soustavy souřadné. Zde má také svazek stejnou vlnoplochu jako rovinná vlna.

2.7 Nanodiamant

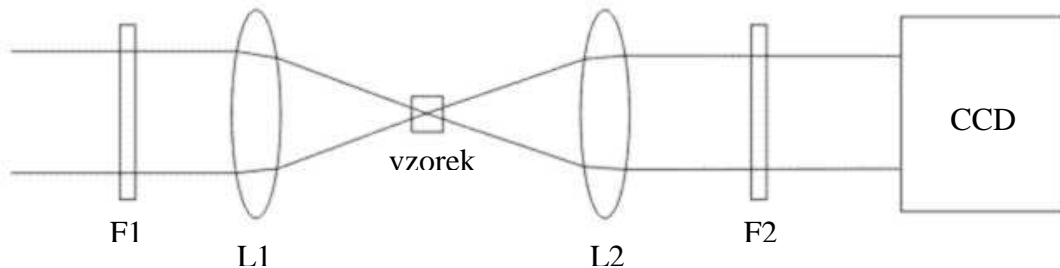
Nanodiamant si uchovává vlastnosti diamantu popsané v úvodu, ale jeho optické vlastnosti jsou významně pozměněny přítomností hranic zrn, které vytvářejí nové energetické hladiny. Jako materiál jej lze využít mimo jiné ve spintronice, zpracování kvantové informace a adaptivní mikrooptice.

Náš vzorek rostl na křemíkovém substrátu orientovaném ve směru (100) metodou rozkladu plynů v mikrovlnném plazmatu (7). Byla použita směs metanu a vodíku, tlak 30 mbar, výkon mikrovln 1300 W. Růst krystalů probíhal při teplotách 600°C - 850°C. Po odstranění křemíkového substrátu pomocí litografie a leptání KOH zůstal ve středu vzorku tenký film o tloušťce 1 μm , skládající se z náhodně orientovaných krystalů o maximální velikosti 100 nm.

Kapitola 3

Experiment

3.1 Experimentální soustava a podmínky experimentu



Obrázek 1 – experimentální soustava

Na obrázku 1 je schématicky zobrazena experimentální soustava. F1 značí filtr, který propouští jen nastavenou frekvenci 1200 nm. Dochází zde ke ztrátě 20% energie. L1 a L2 označuje čočku s ohniskovou vzdáleností $f = 9$ cm. F2 jsou dva filtry, které nepropustí původní vlnění a také sníží intenzitu třetí harmonické, na každém filtru dochází k poklesu intenzity na 48%.

Laserový svazek byl generován femtosekundovým titan-safírovým laserem Tsunami (Spectra Physics), který byl zesílen zesilovačem Spitfire s opakovací frekvencí 1kHz, a jeho vlnová délka byla nastavena v optickém parametrickém zesilovači TOPAS na 1200 nm. Takto připravený svazek měl změřenou energii v jednom pulsu 0,55 μ J a časovou délku 100 fs. Průměr svazku dopadajícího na první filtr byl 1,7 mm.

Výkon v jednom pulsu můžeme určit z energie pulsu ze vztahu:

$$E = \int_{-\infty}^{\infty} P(t) dt = \int_{-\infty}^{\infty} P_{\max} \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right)^2 dt \quad (33)$$

kde P_{\max} je špičkový výkon, τ je časová konstanta odpovídající danému pulsu. Po provedení integrace a vyjádření τ pomocí τ_{FWHM} získáme vztah pro špičkový výkon:

$$P_{\max} = \frac{2\sqrt{\ln 2}}{\sqrt{\pi}} \frac{E}{\tau_{FWHM}} \approx 0.94 \frac{E}{\tau_{FWHM}} \quad (34)$$

Intenzita, která dopadá na filtr, je proto $0,23 \text{ GW/cm}^2$. Na filtru dojde k poklesu na 80%. Čočka byla vyrobena ze skla BK7, které má index lomu 1,505 na 1200 nm [4]. Podle vztahu (29) je transmitance rozhraní 0,959, hned za čočkou je tedy intenzita laserového svazku rovna $0,21 \text{ GW/cm}^2$.

Čočka zaostří svazek do vzorku, jeho průměr v ohnisku byl $32 \mu\text{m}$. Na rozhraní diamant-vzduch opět dojde k poklesu procházející intenzity. Diamant má na 1200 nm index lomu roven 2,389, transmitance je tudíž 0,832. Maximální intenzita dopadající do vzorku tedy byla $4,92 \cdot 10^2 \text{ GW/cm}^2$.

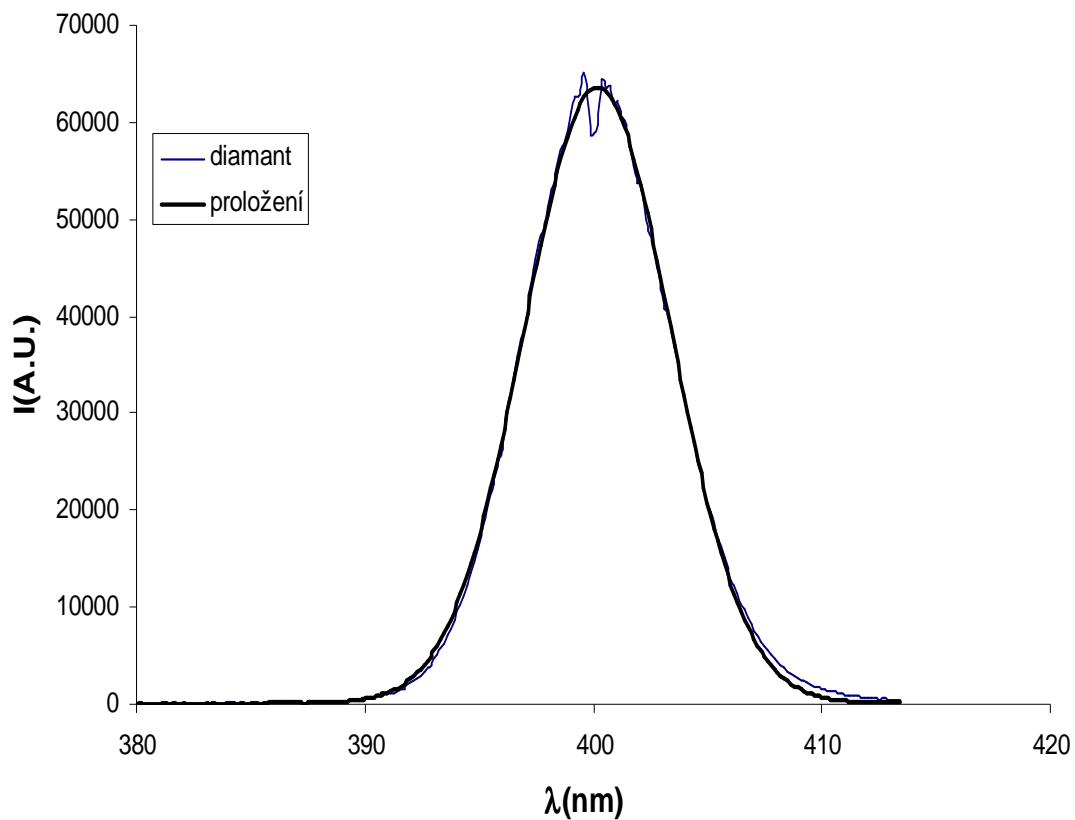
Vzorek byl dlouhý $1 \mu\text{m}$, zakřivení vlnoploch R na jeho okrajích bylo podle vztahu (32) rovno $1,14 \cdot 10^8 \text{ m}$. Vlnění lze tedy považovat za rovinné a odvozené vztahy zůstávají v platnosti. Světlo vystupující ze vzorku se podle vztahu (31) rozšíří na průměr $1,43 \text{ mm}$. Dále je kolimováno čočkou do CCD detektoru, před nímž je ještě filtrováno.

3.2 Měření THG v nanodiamantu

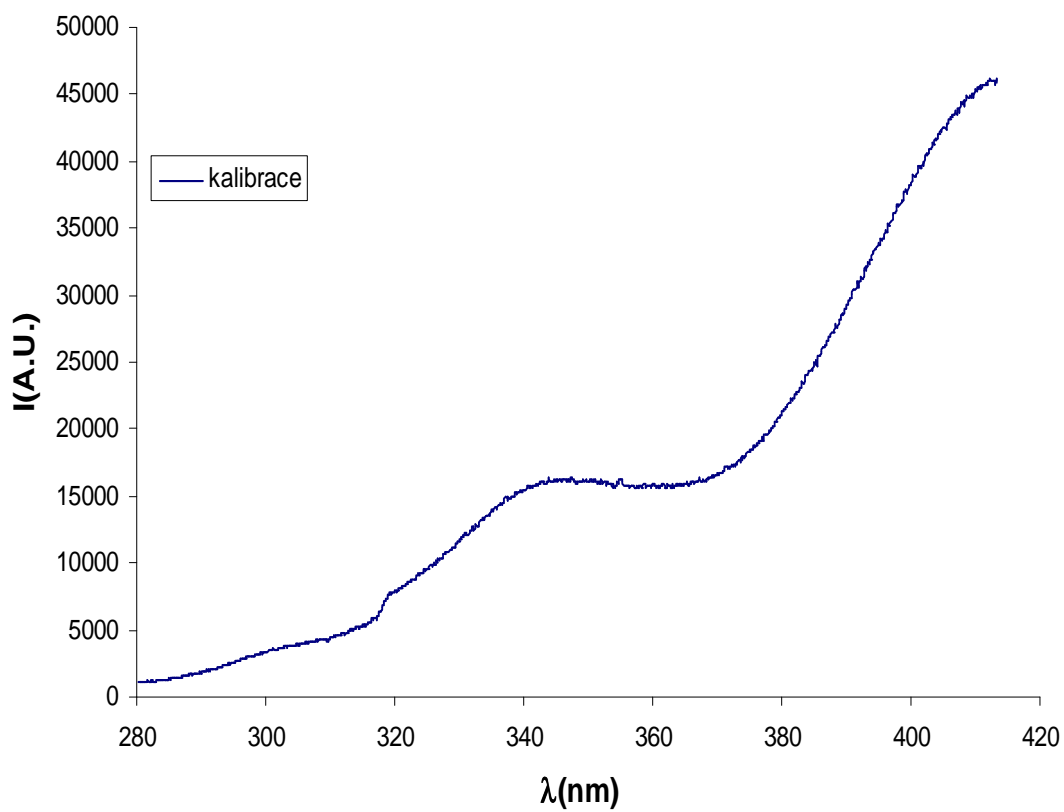
Na CCD detektoru bylo změřeno spektrum, které je zobrazeno v grafu 1. Integrační čas byl 4 s. Jeho střed byl proložením určen na 400 nm, FWHM byla 7,6 nm.

Detektor byl kalibrován lampou Oriol, která svítila intenzitou $0,5 \text{ mW} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{nm}^{-1}$ na vlnové délce 400 nm. Integrační čas byl nastaven na 0,06 s. Tento čas byl ve skutečnosti delší o 20% [5]. Vstupní štěrbina měla šířku 0,3 cm a výšku 0,0025 cm. Abychom zjistili výkon, který byl naměřen na CCD čipu, musíme ještě intenzitu přepočítat na rozsah měření vůči počtu pixelů. Ten byl 1024, rozsah měření byl 149,3 nm. Výkon byl považován za stejný v celém spektrálním oboru a jeho hodnota byla $5,47 \cdot 10^{-11} \text{ W}$. Kalibrační křivka je v grafu 2.

Výkon byl přepočten na počet intenzitních jednotek na dané vlnové délce a pomocí integračního času byl převeden na energii. Tento přepočet byl použit na originální spektrum, jež bylo odečtením pozadí určeného z proložení na 109 A.U.



Graf 1 – spektrum THG v diamantu

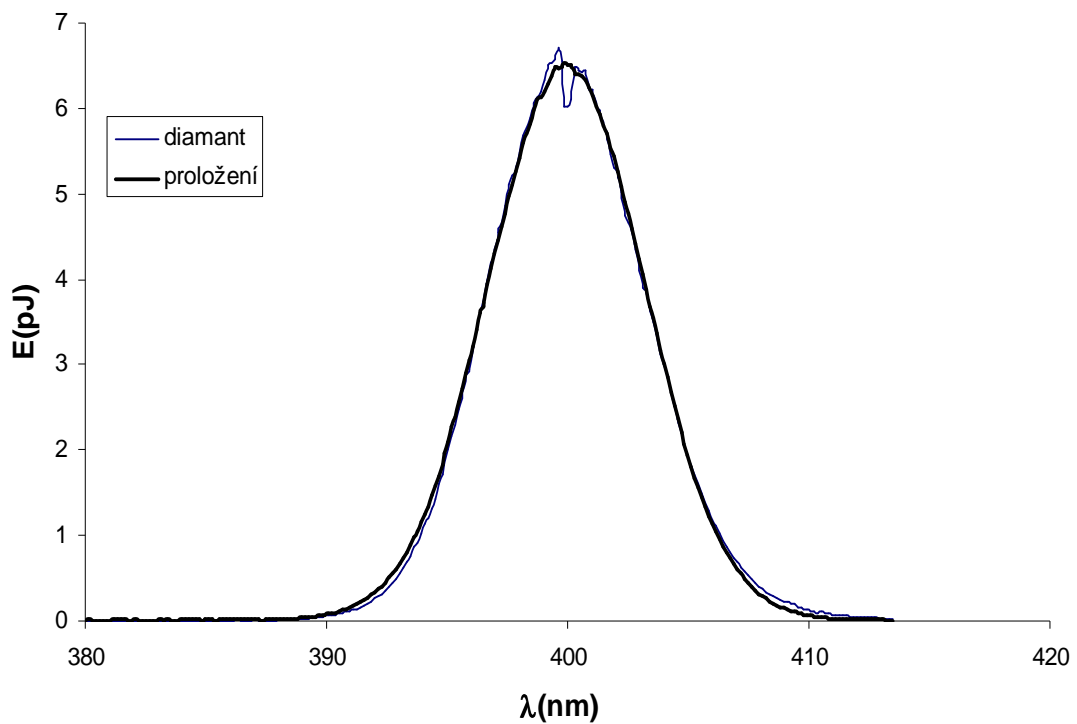


Graf 2 – kalibrační křivka detektoru

opraveno, a byla sečtena celková energie, která dopadla na detektor. Z integračního času a opakovací frekvence měření byla určena energie v jednom pulsu na $9,33 \cdot 10^{-14} \text{ J}$. Energie v závislosti na vlnové délce je zakreslena v grafu 3.

Jelikož se délka pulsu při THG zkracuje faktorem $\sqrt{3}$, jak se dá odvodit ze vztahu (22), výkon v jednom pulsu byl podle vztahu (34) 1.52 W. Intenzita těsně před vstupem do detektoru byla 95 W/cm^2 . Tato intenzita je už snížena dvěma filtry před detektorem, ztrátami na rozhraních na druhé čočce, která má pro vlnovou délku 400 nm transmitanci 0,956, a na nanodiamantu, jehož transmitance na této vlnové délce je 0,821. Intenzita generované vlny o třetí harmonické frekvenci tak byla $1,1 \text{ MW/cm}^2$. Pokud dosadíme do vztahu (23), zjistíme velikost $\chi^{(3)}$:

$$\chi^{(3)} = 1,2 \cdot 10^{-21} \text{ m}^2 \text{V}^{-2}$$

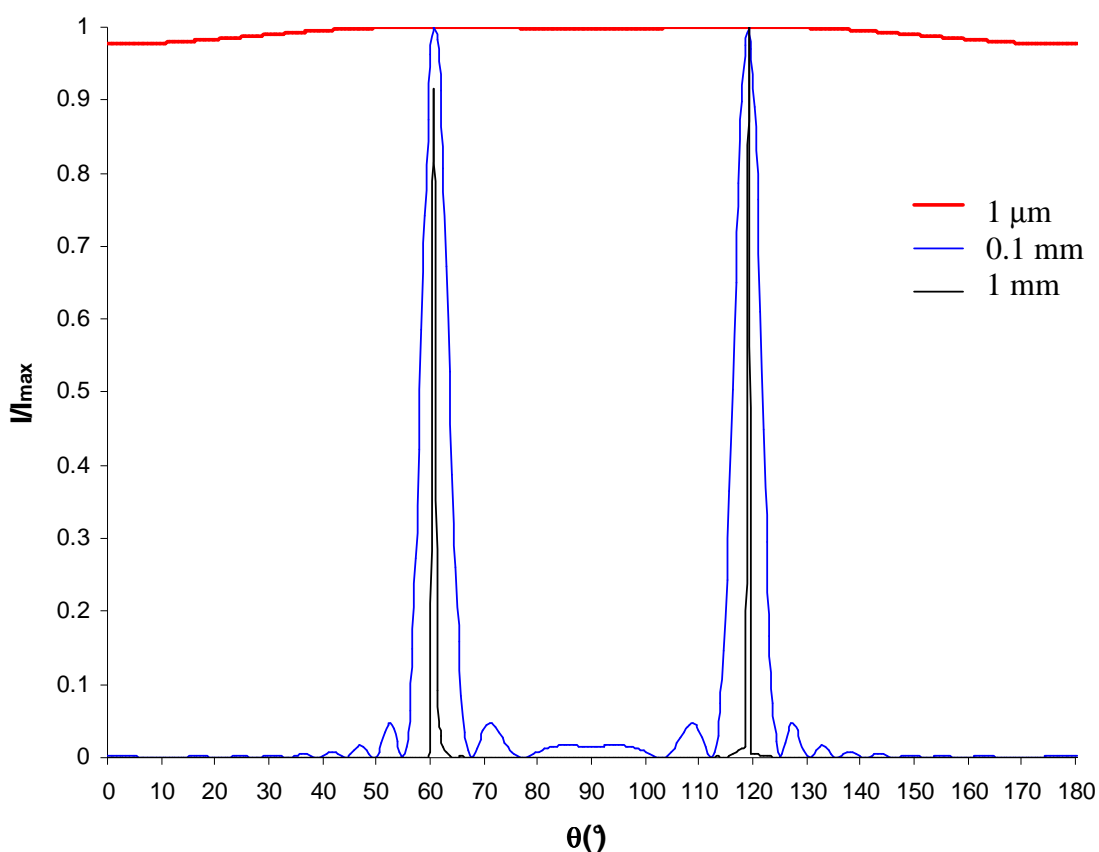


Graf 3 – energie v závislosti na vlnové délce

3.3 Možnosti zvýšení intenzity THG

Tento výsledek je ale platný pouze v případě úplného sfázování. To je v případě nanodiamantu nedosažitelné, neboť ten má kubickou krystalickou soustavu, je tedy izotropní. Pokud si vezmeme jako příklad jednoosý krystal KDP, je možné zkoumat vliv natočení krystalu na velikost generované intenzity. Ten má řádný index lomu roven 1,524 pro 400 nm a 1,490 pro 1200 nm a mimořádný 1,480 pro 400 nm a 1,459 pro 1200 nm (tyto indexy lomu byly vypočteny ze Sellmeireových koeficientů z [6]). Po dosazení do (27) byl určen úhel θ , pro který je sfázování dokonalé:

$$\theta_0 = 60,8^\circ$$

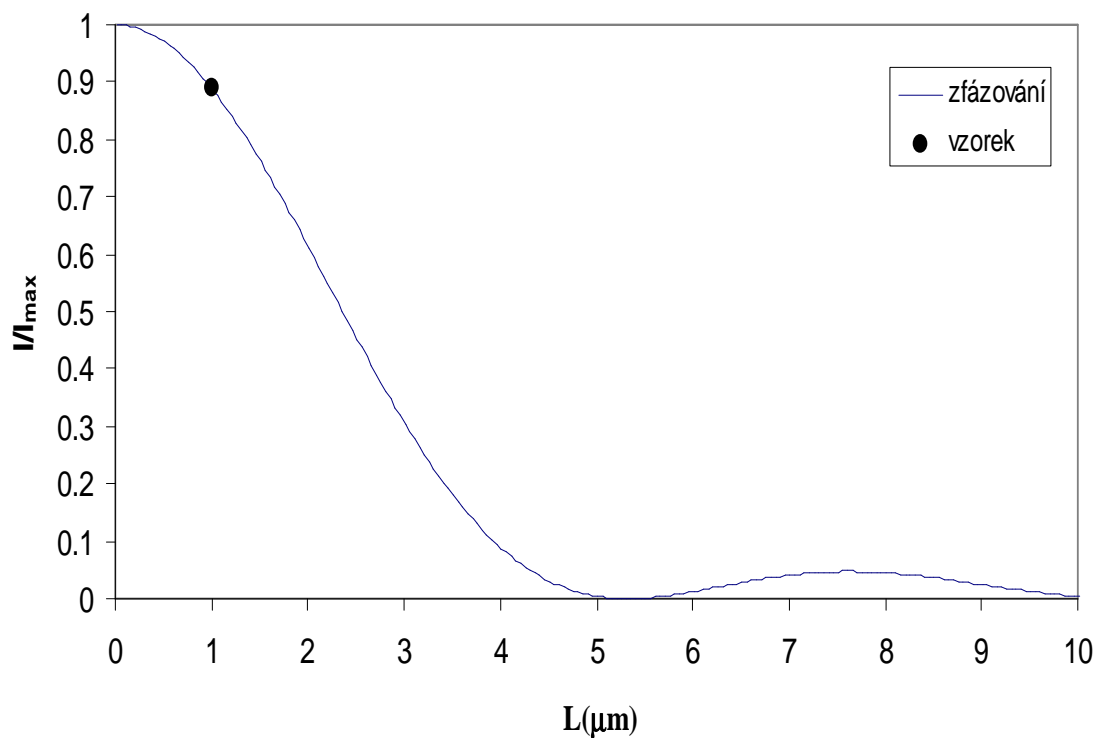


Graf 4 – velikost intenzity v závislosti na natočení krystalu KDP

Z grafu 4 je vidět, že pro tenké krystaly je vliv natočení zanedbatelný. V případě $1 \mu\text{m}$ krystalu intenzita neklesne pod 97,6% své maximální hodnoty. Situace se

dramaticky změni v případě 100 μm vzorku. V grafu jsou již vidět oscilace funkce sinc^2 , při změně natočení krystalu od θ_0 o 3° dochází k poklesu intenzity pod 50%, při odchylce 5° klesne intenzita na 0. Pro 1 mm vzorek jsou již oscilace v grafu nepozorovatelné. Druhé výrazné maximum je doplněk θ_0 do 180° . Pokud chceme dosahovat maximálních intenzit, které nám délka vzorku umožňuje, musíme úměrně s prodlužováním vzorku zvyšovat i přesnost natočení.

V případě nanodiamantu žádné natáčení nepomůže. Faktor Δk je určen rozdílem indexů lomu nanodiamantu pro generovanou a generující vlnu. Zde nikdy nedosáhneme maximální možné intenzity, jak je patrné z grafu 5. Jediné, co můžeme ovlivnit, je délka vzorku. Graf 5 ale není tak směrodatný, protože i když s prodlužováním vzorku roste rozfázování, stejně tak roste maximální dosažitelná intenzita. Tyto dva protikladné efekty způsobí, že dosažitelná intenzita bude oscilovat mezi 0 a jistou maximální hodnotou.

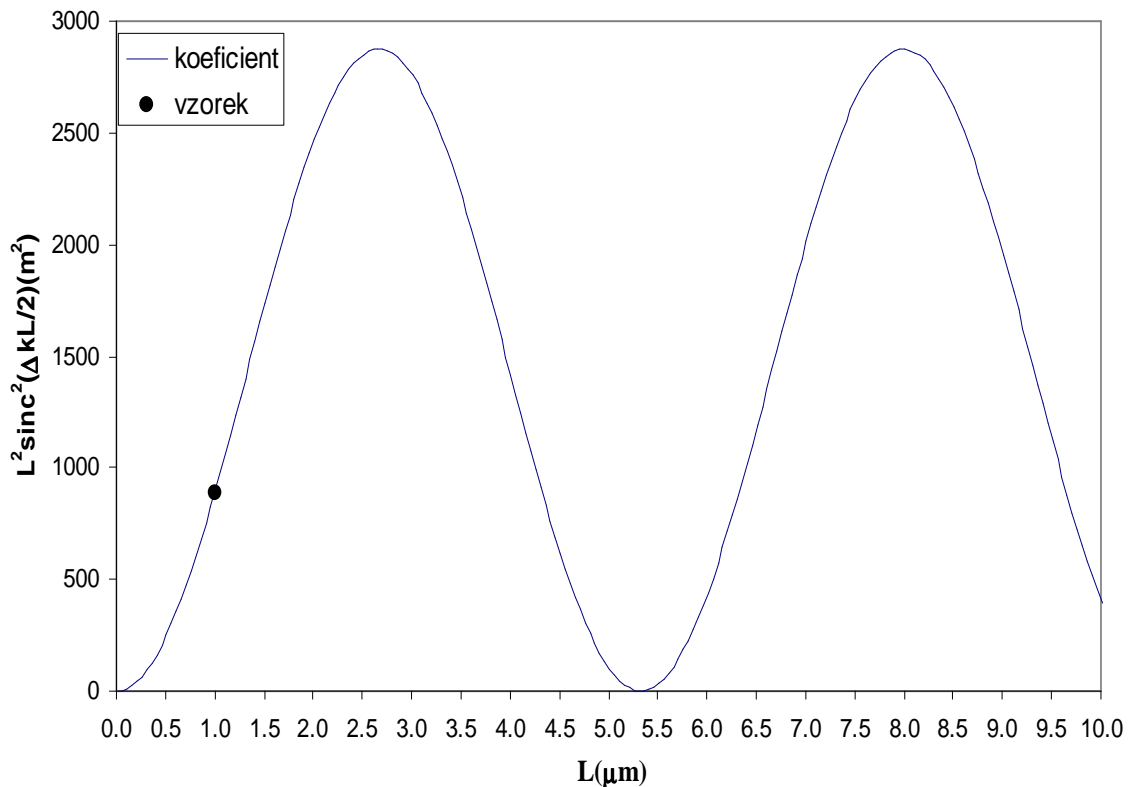


Graf 5 – vliv délky vzorku na velikost sfázování

Tuto maximální hodnotu principiálně nelze překročit. Proto při THG v nanodiamantu není nutné mít dlouhý vzorek (pro příliš dlouhé vzorky by už ani neplatily odvozené vztahy, neboť by nebylo možné pokládat vlnění ve vzorku za rovinné a také by docházelo ke zdatnému poklesu intenzity generující vlny), ale jeho

délka musí být přesně zvolena. V grafu 6 je zakreslen intenzitní koeficient $L^2 \text{sinc}^2(\Delta kL/2)$, což je část vztahu (26), která je závislá na L. Dosažitelná intenzita klesá z maximální hodnoty na polovinu po změně délky vzorku o 1,3 μm , na nulu po 2,7 μm . Porovnáním grafů 5 a 6 zjistíme, že i když graf 5 ukazoval pro naši délku vzorku poměrně příznivou hodnotu (dosahovalo se 89,9% maximální intenzity), z grafu 6 vyplývá, že s jiným vzorkem bylo možné dosáhnout více než třikrát vyšší intenzity. Pokud námi vypočtené $\chi^{(3)}$ opravíme o vliv sfázování, získáme tuto hodnotu:

$$\chi^{(3)} = 1,3 \cdot 10^{-21} \text{ m}^2 \text{V}^{-2}$$



Graf 6 – intenzitní koeficient v závislosti na délce vzorku

Kapitola 4

Vyhodnocení výsledků

Z efektivity THG byla určena velikost nelineární susceptibility třetího řádu na $1,3 \cdot 10^{-21} \text{ m}^2\text{V}^{-2}$, což je ve velmi dobrém souhlasu s hodnotou $2,1 \cdot 10^{-21} \text{ m}^2\text{V}^{-2}$ pro obyčejný diamant (1). Tato hodnota spolu s nemožností dosáhnout úplného sfázování u nanodiamantu určuje strop dosažitelné velikosti intenzity při generování třetí harmonické frekvence. Prosté zvětšování vzorku není přínosem, neboť záleží hlavně na přesně zvolené délce. Velikost THG osciluje mezi nulou a určitou hodnotou, která je dána susceptibilitou a vlnovou délkou generující vlny. Dále by tedy bylo možné zkoumat, jaká vlnová délka je pro generaci třetí harmonické frekvence v nanodiamantu nejvhodnější.

Literatura

- [1] Robert W.Boyd: *Nonlinear Optics*, Academic Press, 1992
- [2] Guang S.He, Song H.Liu: *Physics Of Nonlinear Optics*, World Scientific Publishing 1999
- [3] Eugene Hecht: *Optics*, Addison Wesley, 2002
- [4] Refractive indices, refractiveindex.info
- [5] Václav Dědič: *Charakterizace CCD kamery a vybraná měření*, 2007
- [6] KDP Isomorphic Crystals, www.u-oplaz.com/crystals/crystals07.htm
- [7] M.Vaněček, J.Kočka(2005): *CVD diamant a nanodiamant*, Technický týdeník **8**, 15