## Nelineární jevy 2. řádu

$$\Delta\vec{E} - \frac{1+\chi_{eff}^{(1)}}{c^2}\frac{\partial^2\vec{E}}{\partial t^2} - \mu_0\sigma\frac{\partial\vec{E}}{\partial t} = \mu_0\frac{\partial^2\overrightarrow{P_{NL}}}{\partial t^2}$$

$$\overrightarrow{P_{NL}} = \overleftrightarrow{\chi^{(2)}}\cdot\vec{E}\vec{E} + \overleftrightarrow{\chi^{(3)}}\cdot\vec{E}\vec{E}\vec{E} + \ldots$$

$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$

- generace součtových frekvencí (SFG)
- generace 2. harmonické (SHG)

$\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$

- generace rozdílové frekvence / optické parametrické zesílení
- parametrická fluorescence

Za normálních okolností jsou tyto jevy **velmi slabé**.

Intenzitu pozorovaných efektů lze zvýšit za podmínky ***fázové synchronizace*** (phase-matching):

$$\boxed{\Delta\vec{k} = \vec{k}_3 - \vec{k}_2 - \vec{k}_1 = 0},\ |k_i| = \frac{\omega_i n(\omega_i)}{c} = \frac{2\pi n_i}{\lambda_i}$$

Fyzikálně to odpovídá *prostorové rezonanci* mezi vlnou nelineární dielektrické polarizace (zdrojový člen vlnové rovnice) a produkovanou světelnou vlnou na téže frekvenci.

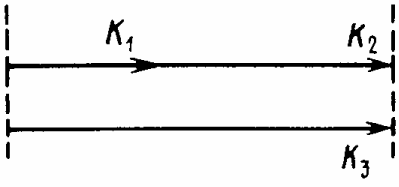
Např. pro druhou harmonickou: $I^{SHG} = I_{\max}^{SHG}\frac{\sin^2(\Delta kL/2)}{(\Delta kL/2)^2}$

Podmínku fázové synchronizace lze splnit:

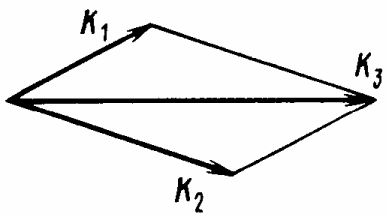
- **Kolineárně** (skalární fázová synchronizace):

  $$\omega_3 n_3 = \omega_1 n_1 + \omega_2 n_2$$

  nebo (pro SHG): $n_3 = n_1$




- **Nekolineárně** (vektorová fázová synchronizace) – parametrická fluorescence, autokorelace




Ale optické materiály vykazují normální disperzi ($n_1 < n_3$), takže tyto podmínky nelze jednoduše splnit.

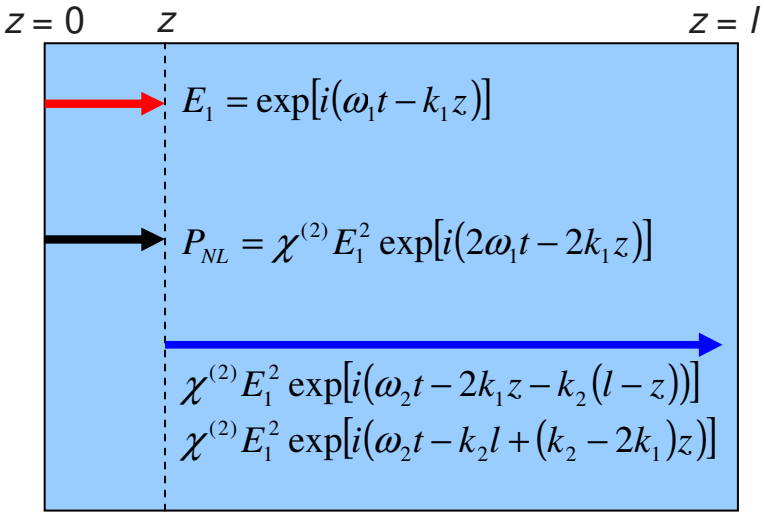
## Fázová synchronizace

Např. pro druhou harmonickou:

Čerpací pole ($\omega_1$) v pozici *z*

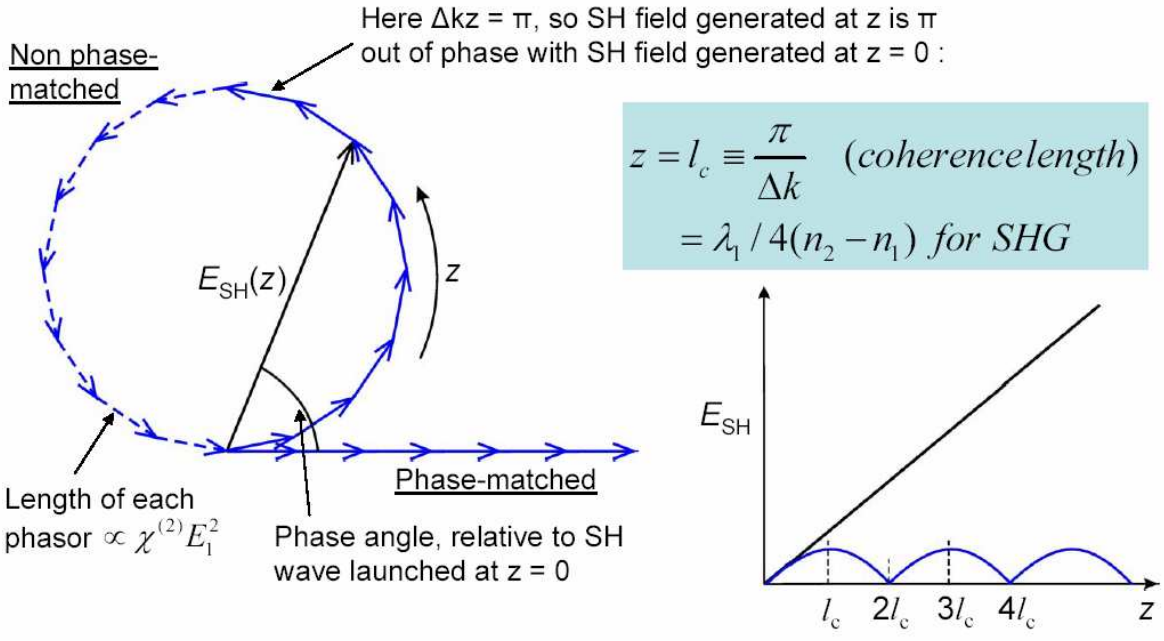
SH polarizace ($\omega_2 = 2\omega_1$) v *z*

SH pole v pozici *z=l* způsobené SH polarizací v *z*




Aby se všechny příspěvky k SH ze všech poloh *z* sečetly ve fázi, je třeba splnit $\Delta k \equiv k_2 - 2k_1 = 0$

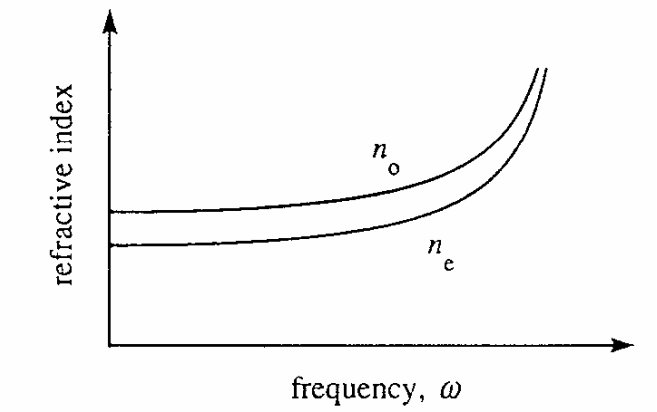
$$E_{SH}(l) \propto \exp(\omega_2 t - k_2 l) \int_0^l \chi^{(2)} E_1^2 \exp(i\Delta k z)\, dz$$



## Dosažení fázové synchronizace

Využití anomální disperze brání zpravidla vysoká absorpce.

Lze ale využít **rozdílně polarizované vlny v anizotropních krystalech**.



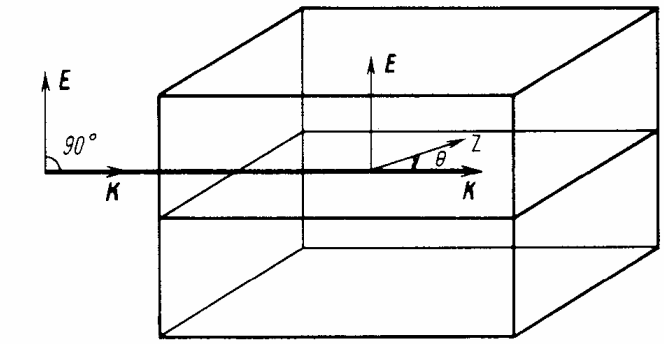

Např. pro SHG lze dosáhnout:

$$n_e(2\omega) = n_o(\omega)$$

## Optika krystalů - pojmy

*Optická osa* – směr, v němž jeví krystal stejný index lomu pro všechny polarizace.

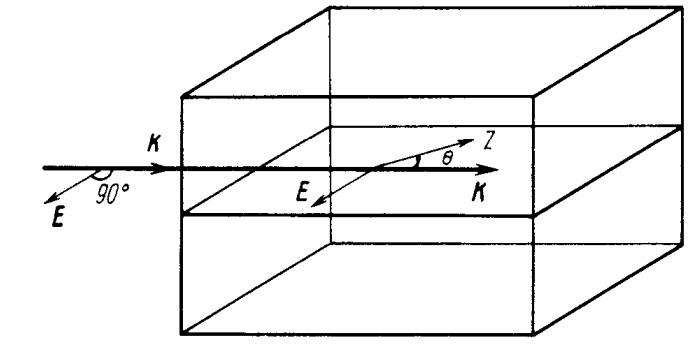
- Krystaly *jednoosé* (trigonální, tetragonální, hexagonální)
- Krystaly *dvouosé* (monoklinické, triklinické, ortorombické)
- Krystaly *izotropní* (kubické)




*Jednoosé krystaly:*

*Hlavní rovina* – rovina obsahující optickou osu a vektor $\vec{k}$ .

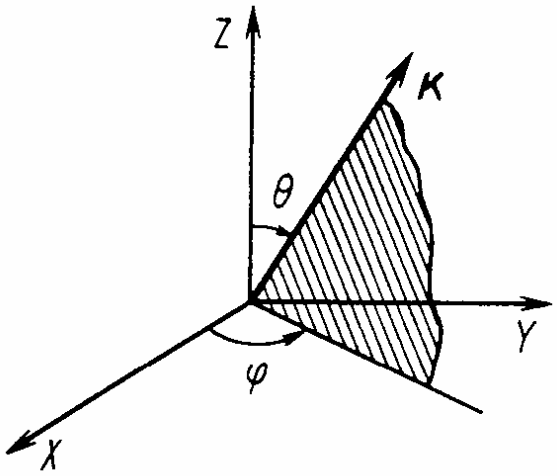
*Ordinální svazek* – polarizován kolmo na hlavní rovinu

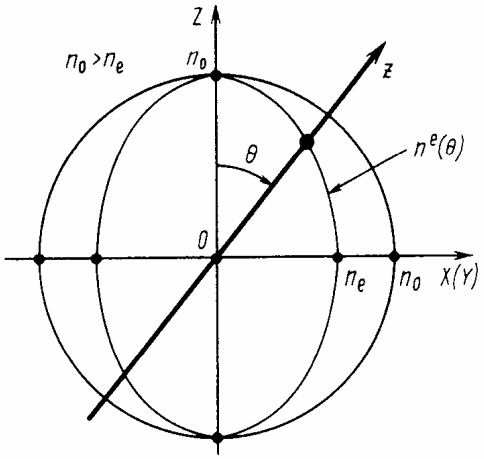



*Extraordinální svazek* – polarizován v hlavní rovině

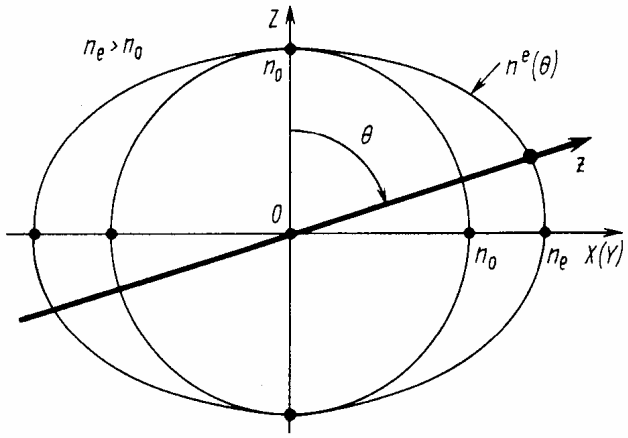
*Dvojlom*: $\Delta n = n_e - n_o$

## Optika anizotropních krystalů – jednoosé krystaly



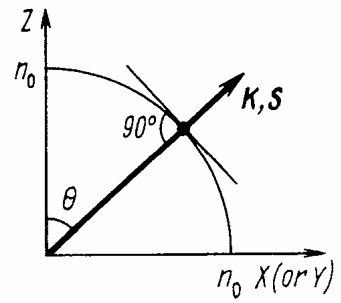



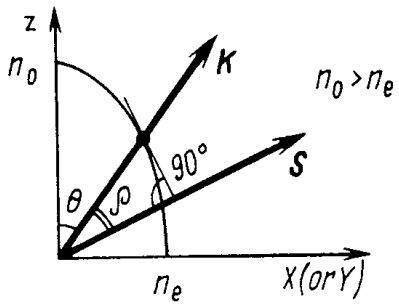

$$n_o(\theta) \equiv n_o$$
$$n_e(\theta = 0^\circ) = n_o$$
$$n_e(\theta = 90^\circ) = n_e$$
$$n_e(\theta) = n_o \sqrt{\frac{1+\tan^2\theta}{1+(n_o/n_e)^2\tan^2\theta}}$$

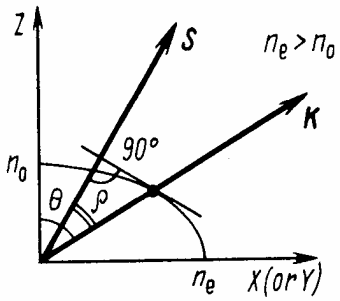



$n_o > n_e$ : negativní krystal
$n_o < n_e$ : pozitivní krystal

Směr šíření fáze $\vec{k}$ se obecně liší od směru šíření energie $\vec{s}$ :




Úhel dvojlomu („walk-off“)

$$\rho(\theta) = \pm\arctan\left[(n_o/n_e)^2\tan\theta\right] \mp \theta \quad \begin{cases} negativní \\ pozitivní \end{cases}$$

(Může pomoci k přibližnému měření orientace řezu krystalu.)

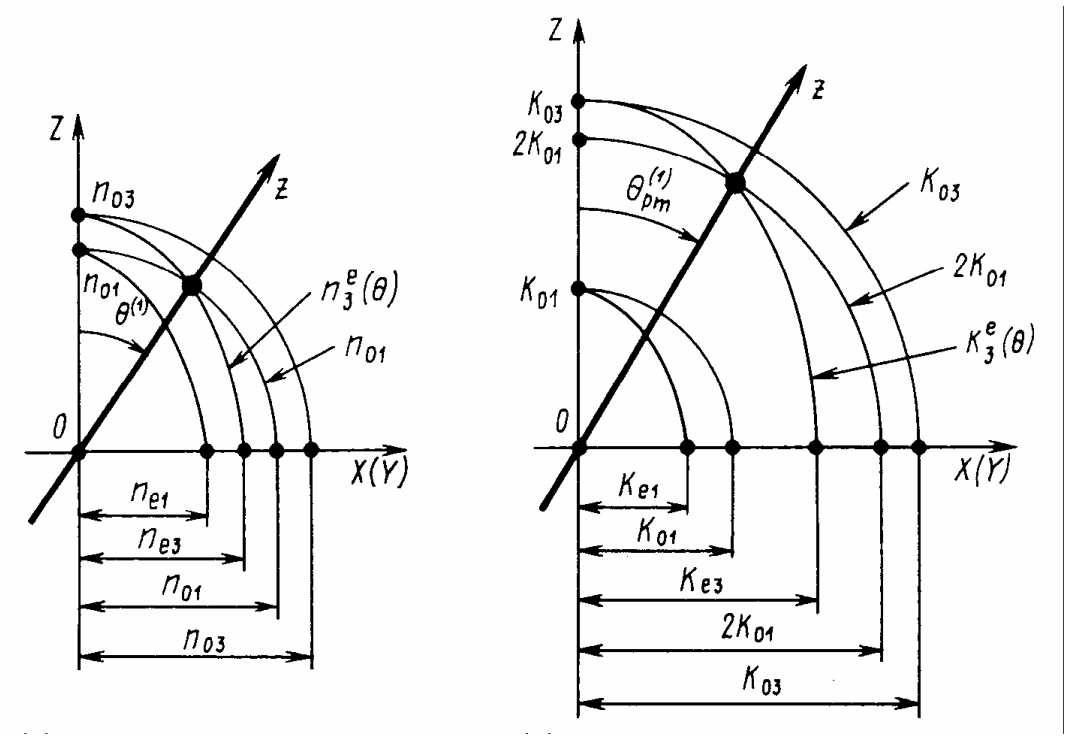
## Fázová synchronizace v jednoosých krystalech (typ I)

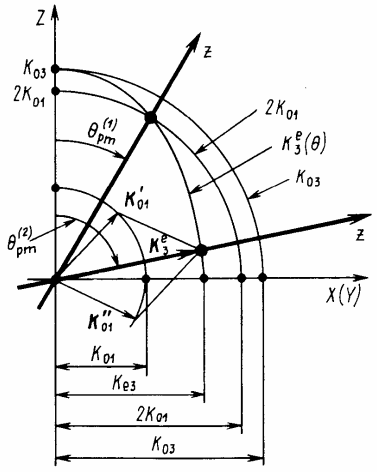
Typ I: subfrekvenční vlny mají stejnou polarizaci

$\vec{k}_{o1} + \vec{k}_{o2} = \vec{k}_{e3}(\theta)$ v negativních krystalech (interakce oo-e)
$\vec{k}_{e1}(\theta_{(1)}) + \vec{k}_{e2}(\theta_{(2)}) = \vec{k}_{o3}$ v pozitivních krystalech (interakce ee-o)

*SHG v negativním jednoosém krystalu, kolineární interakce typu I (oo-e)*

$n_{o1}(\omega_1) = n_{e3}(2\omega_1, \theta_{pm}^{(1)})$ $\qquad$ $2k_{o1}(\omega_1) = k_{e3}(2\omega_1, \theta_{pm}^{(1)})$




*nekolineární interkace typu I (oo-e)*

možná pouze pro

$$\theta_{pm}^{(1)} \le \theta_{pm}^{(2)} \le \pi - \theta_{pm}^{(1)}$$

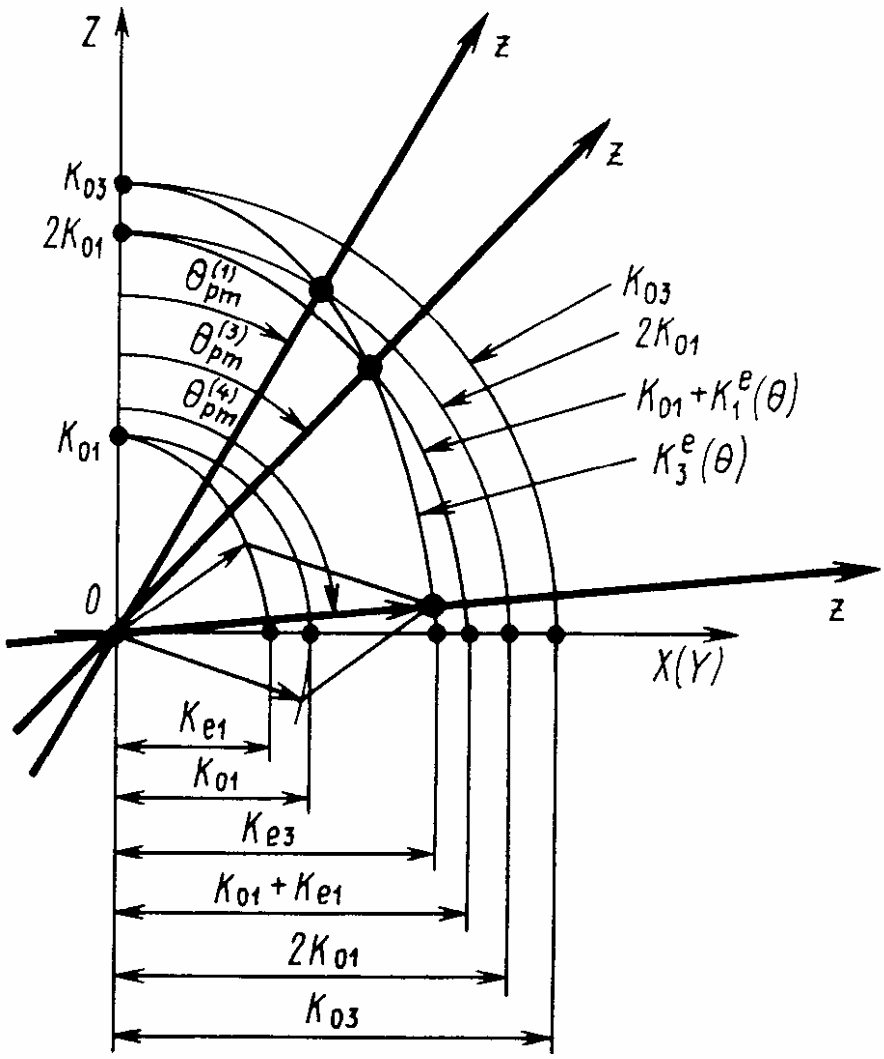
## Fázová synchronizace v jednoosých krystalech (typ II)

Typ II: subfrekvenční vlny mají různou polarizaci

$\vec{k}_{o1} + \vec{k}_{e2}(\theta_{(2)}) = \vec{k}_{e3}(\theta_{(3)})$ v negativních krystalech (interakce oe-e)
$\vec{k}_{e1}(\theta_{(1)}) + \vec{k}_{o2} = \vec{k}_{e3}(\theta_{(3)})$ v negativních krystalech (interakce eo-e)

$\vec{k}_{o1} + \vec{k}_{e2}(\theta) = \vec{k}_{o3}$ v pozitivních krystalech (interakce oe-o)
$\vec{k}_{e1}(\theta) + \vec{k}_{o2} = \vec{k}_{o3}$ v pozitivních krystalech (interakce eo-o)

*SHG v negativním jednoosém krystalu, kolineární* $\theta_{pm}^{(3)}$ a nekolineární $\theta_{pm}^{(4)}$ *interakce typu II (oe-e)*



## Praktické poznámky k fázové synchronizace pro jednoosé krystaly

- Fázová synchronizace nezávisí na úhlu $\varphi$ (susceptibilita ano!!!)
- Pro interakce typů oo-e, oe-o, eo-o lze najít přesné analytické výrazy.
- Pro interakce typů eo-e, oe-e, ee-o lze řešení najít numericky, lze nicméně odvodit i přibližné vztahy s přesností cca 0,2°.
- Disperzní závislosti indexů lomu lze dobře aproximovat Sellmeierovými vztahy.
- Je třeba vzít v úvahu také lom na vstupních a výstupních plochách krystalu
- Odraz na vstupních a výstupních plochách se zpravidla minimalizuje antireflexními vrstvami
- Je-li to možné, je výhodné používat krystal v blízkosti úhlu $\theta = 90^\circ$ („nekritická fázová synchronizace“), kdy je „walk-off“ zanedbatelný. To lze pro kolineární interakci splnit jen pro úzký rozsah vlnových délek, lze ale použít také teplotní ladění místo úhlového.
- Obecně je třeba vzít v úvahu teplotní a úhlovou položířku (lze spočítat).

**Table 2.1.** Equations for calculating phase-matching angles in uniaxial crystals

| Negative uniaxial crystals | Positive uniaxial crystals |
|---|---|
| $\tan^2\theta_{\mathrm{pm}}^{\mathrm{ooe}} = (1-U)/(W-1)$ | $\tan^2\theta_{\mathrm{pm}}^{\mathrm{eeo}} \cong (1-U)/(U-S)$ |
| $\tan^2\theta_{\mathrm{pm}}^{\mathrm{eoe}} \cong (1-U)/(W-R)$ | $\tan^2\theta_{\mathrm{pm}}^{\mathrm{oeo}} = (1-V)/(V-Y)$ |
| $\tan^2\theta_{\mathrm{pm}}^{\mathrm{oee}} \cong (1-U)/(W-Q)$ | $\tan^2\theta_{\mathrm{pm}}^{\mathrm{eoo}} = (1-T)/(T-Z)$ |

Notations:
$U = (A+B)^2/C^2$; $W = (A+B)^2/F^2$; $R = (A+B)^2/(D+B)^2$;
$Q = (A+B)^2/(A+E)^2$; $S = (A+B)^2/(D+E)^2$; $V = B^2/(C-A)^2$;
$Y = B^2/E^2$; $T = A^2/(C-B)^2$; $Z = A^2/D^2$;
$A = n_{\mathrm{o1}}/\lambda_1$; $B = n_{\mathrm{o2}}/\lambda_2$; $C = n_{\mathrm{o3}}/\lambda_3$;
$D = n_{\mathrm{e1}}/\lambda_1$; $E = n_{\mathrm{e2}}/\lambda_2$; $F = n_{\mathrm{e3}}/\lambda_3$.

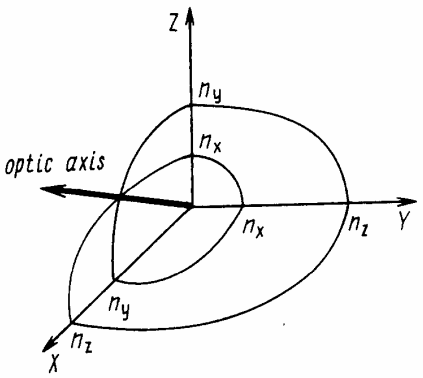
The expressions presented in Table 2.1 can be generalized to the noncollinear phase matching. In this case, for example, the phase-matching angle $\theta_{\mathrm{pm}}^{\mathrm{ooe}}$ is determined from the above presented equation using the new coefficients $U$ and $W$:

$$U = (A^2 + B^2 + 2AB\cos\gamma)/C^2, \quad W = (A^2 + B^2 + 2AB\cos\gamma)/F^2$$

where $\gamma$ is the angle between wave vectors $\boldsymbol{k}_1$ and $\boldsymbol{k}_2$.

## Dvouosé krystaly

- hlavní roviny: XY, YZ, XZ
- hlavní indexy lomu: $n_X, n_Y, n_Z$
- konvence – optické osy leží v hlavní rovině XZ
- pojem ordinální a extraordinální nemá smysl, místo toho se používá pojem rychlý (f) a pomalý (s) svazek
- svazek polarizovaný v rovině kolmé na hlavní rovinu se chová v této rovině jako ordinální (index lomu nezávisí na směru šíření v dané hlavní rovině)

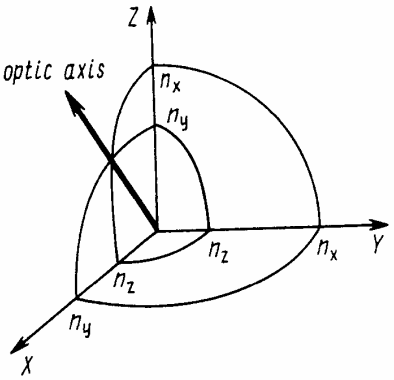



$$n_X < n_Y < n_Z$$

např. v rovině XY se chová jako jednoosý krystal s $n_o = n_Z$ (s) a

$$n_e(\varphi) = n_Y \sqrt{\frac{1+\tan^2\varphi}{1+(n_Y/n_X)^2\tan^2\varphi}} \quad \text{(f)}$$

atd.




$$n_X > n_Y > n_Z$$

### *Fázová synchronizace*

- typ I: ss-f
- typ II: sf-f, fs-f

Obecně je to velmi složité.

# Dvouosé krystaly – fázová synchronizace

**Table 2.2.** Equations for calculating phase-matching angles in biaxial crystals upon light propagation in the principal planes

*(a)* $n_X < n_Y < n_Z$

| Principal plane | Type of interaction | Equations | Notations |
|---|---|---|---|
| 1 | 2 | 3 | 4 |
| | ooe | $\tan^2\phi = \frac{1-U}{W-1}$ | $U = \left(\frac{A+B}{C}\right)^2;\ W = \left(\frac{A+B}{F}\right)^2;\ A = \frac{n_{Z1}}{\lambda_1};\ B = \frac{n_{Z2}}{\lambda_2};\ C = \frac{n_{Y3}}{\lambda_3};\ F = \frac{n_{X3}}{\lambda_3}$ |
| $XY$ | eoe | $\tan^2\phi \cong \frac{1-U}{W-R}$ | $U = \left(\frac{A+B}{C}\right)^2;\ W = \left(\frac{A+B}{F}\right)^2;\ R = \left(\frac{A+B}{D+B}\right)^2;\ A = \frac{n_{Y1}}{\lambda_1};\ B = \frac{n_{Z2}}{\lambda_2};\ C = \frac{n_{Y3}}{\lambda_3};\ D = \frac{n_{X1}}{\lambda_1};\ F = \frac{n_{X3}}{\lambda_3}$ |
| | oee | $\tan^2\phi \cong \frac{1-U}{W-Q}$ | $U = \left(\frac{A+B}{C}\right)^2;\ W = \left(\frac{A+B}{F}\right)^2;\ Q = \left(\frac{A+B}{A+E}\right)^2;\ A = \frac{n_{Z1}}{\lambda_1};\ B = \frac{n_{Y2}}{\lambda_2};\ C = \frac{n_{Y3}}{\lambda_3};\ E = \frac{n_{X2}}{\lambda_2};\ F = \frac{n_{X3}}{\lambda_3}$ |
| | eeo | $\tan^2\theta \cong \frac{1-U}{U-S}$ | $U = \left(\frac{A+B}{C}\right)^2;\ S = \left(\frac{A+B}{D+E}\right)^2;\ A = \frac{n_{Y1}}{\lambda_1};\ B = \frac{n_{Y2}}{\lambda_2};\ C = \frac{n_{X3}}{\lambda_3};\ D = \frac{n_{Z1}}{\lambda_1};\ E = \frac{n_{Z2}}{\lambda_2}$ |
| $YZ$ | oeo | $\tan^2\theta = \frac{1-V}{V-Y}$ | $V = \left(\frac{B}{C-A}\right)^2;\ Y = \left(\frac{B}{E}\right)^2;\ A = \frac{n_{X1}}{\lambda_1};\ B = \frac{n_{Y2}}{\lambda_2};\ C = \frac{n_{X3}}{\lambda_3};\ E = \frac{n_{Z2}}{\lambda_2}$ |
| | eoo | $\tan^2\theta = \frac{1-T}{T-Z}$ | $T = \left(\frac{A}{C-B}\right)^2;\ Z = \left(\frac{A}{D}\right)^2;\ A = \frac{n_{Y1}}{\lambda_1};\ B = \frac{n_{X2}}{\lambda_2};\ C = \frac{n_{X3}}{\lambda_3};\ D = \frac{n_{Z1}}{\lambda_1}$ |
| $XZ$ | ooe | $\tan^2\theta = \frac{1-U}{W-1}$ | $U = \left(\frac{A+B}{C}\right)^2;\ W = \left(\frac{A+B}{F}\right)^2;\ A = \frac{n_{Y1}}{\lambda_1};\ B = \frac{n_{Y2}}{\lambda_2};\ C = \frac{n_{X3}}{\lambda_3};\ F = \frac{n_{Z3}}{\lambda_3}$ |
| $\theta < V_Z$ | eoe | $\tan^2\theta \cong \frac{1-U}{W-R}$ | $U = \left(\frac{A+B}{C}\right)^2;\ W = \left(\frac{A+B}{F}\right);\ R = \left(\frac{A+B}{D+B}\right)^2;\ A = \frac{n_{X1}}{\lambda_1};\ B = \frac{n_{Y2}}{\lambda_2};\ C = \frac{n_{X3}}{\lambda_3};\ D = \frac{n_{Z1}}{\lambda_1};\ F = \frac{n_{Z3}}{\lambda_3}$ |
| | oee | $\tan^2\theta \cong \frac{1-U}{W-Q}$ | $U = \left(\frac{A+B}{C}\right)^2;\ W = \left(\frac{A+B}{F}\right)^2;\ Q = \left(\frac{A+B}{A+E}\right)^2;\ A = \frac{n_{Y1}}{\lambda_1};\ B = \frac{n_{X2}}{\lambda_2};\ C = \frac{n_{X3}}{\lambda_3};\ E = \frac{n_{Z2}}{\lambda_2};\ F = \frac{n_{Z3}}{\lambda_3}$ |
| $XZ$ | eeo | $\tan^2\theta \cong \frac{1-U}{U-S}$ | $U = \left(\frac{A+B}{C}\right)^2;\ S = \left(\frac{A+B}{D+E}\right)^2;\ A = \frac{n_{X1}}{\lambda_1};\ B = \frac{n_{X2}}{\lambda_2};\ C = \frac{n_{Y3}}{\lambda_3};\ D = \frac{n_{Z1}}{\lambda_1};\ E = \frac{n_{Z2}}{\lambda_2}$ |
| $\theta > V_Z$ | oeo | $\tan^2\theta = \frac{1-V}{V-Y}$ | $V = \left(\frac{B}{C-A}\right)^2;\ Y = \left(\frac{B}{E}\right)^2;\ A = \frac{n_{Y1}}{\lambda_1};\ B = \frac{n_{X2}}{\lambda_2};\ C = \frac{n_{Y3}}{\lambda_3};\ E = \frac{n_{Z2}}{\lambda_2}$ |
| | eoo | $\tan^2\theta = \frac{1-T}{T-Z}$ | $T = \left(\frac{A}{C-B}\right)^2;\ Z = \left(\frac{A}{D}\right)^2;\ A = \frac{n_{X1}}{\lambda_1};\ B = \frac{n_{Y2}}{\lambda_2};\ C = \frac{n_{Y3}}{\lambda_3};\ D = \frac{n_{Z1}}{\lambda_1}$ |

*(b)* $n_X > n_Y > n_Z$

| | | | |
|---|---|---|---|
| | eeo | $\tan^2\phi \cong \frac{1-U}{U-S}$ | $U = \left(\frac{A+B}{C}\right)^2;\ S = \left(\frac{A+B}{D+E}\right)^2;\ A = \frac{n_{Y1}}{\lambda_1};\ B = \frac{n_{Y2}}{\lambda_2};\ C = \frac{n_{Z3}}{\lambda_3};\ D = \frac{n_{X1}}{\lambda_1};\ E = \frac{n_{X2}}{\lambda_2}$ |
| $XY$ | oeo | $\tan^2\phi = \frac{1-V}{V-Y}$ | $V = \left(\frac{B}{C-A}\right)^2;\ Y = \left(\frac{B}{E}\right)^2;\ A = \frac{n_{Z1}}{\lambda_1};\ B = \frac{n_{Y2}}{\lambda_2};\ C = \frac{n_{Z3}}{\lambda_3};\ E = \frac{n_{X2}}{\lambda_2}$ |
| | eoo | $\tan^2\phi = \frac{1-T}{T-Z}$ | $T = \left(\frac{A}{C-B}\right)^2;\ Z = \left(\frac{A}{D}\right)^2;\ A = \frac{n_{Y1}}{\lambda_1};\ B = \frac{n_{Z2}}{\lambda_2};\ C = \frac{n_{Z3}}{\lambda_3};\ D = \frac{n_{X1}}{\lambda_1}$ |
| | ooe | $\tan^2\theta = \frac{1-U}{W-1}$ | $U = \left(\frac{A+B}{C}\right)^2;\ W = \left(\frac{A+B}{F}\right)^2;\ A = \frac{n_{X1}}{\lambda_1};\ B = \frac{n_{X2}}{\lambda_2};\ C = \frac{n_{Y3}}{\lambda_3};\ F = \frac{n_{Z3}}{\lambda_3}$ |
| $YZ$ | eoe | $\tan^2\theta \cong \frac{1-U}{W-R}$ | $U = \left(\frac{A+B}{C}\right)^2;\ W = \left(\frac{A+B}{F}\right)^2;\ R = \left(\frac{A+B}{D+B}\right)^2;\ A = \frac{n_{Y1}}{\lambda_1};\ B = \frac{n_{X2}}{\lambda_2};\ C = \frac{n_{Y3}}{\lambda_3};\ D = \frac{n_{Z1}}{\lambda_1};\ F = \frac{n_{Z3}}{\lambda_3}$ |
| | oee | $\tan^2\theta \cong \frac{1-U}{W-Q}$ | $U = \left(\frac{A+B}{C}\right)^2;\ W = \left(\frac{A+B}{F}\right)^2;\ Q = \left(\frac{A+B}{A+E}\right)^2;\ A = \frac{n_{X1}}{\lambda_1};\ B = \frac{n_{Y2}}{\lambda_2};\ C = \frac{n_{Y3}}{\lambda_3};\ E = \frac{n_{Z2}}{\lambda_2};\ F = \frac{n_{Z3}}{\lambda_3}$ |
| $XZ$ | eeo | $\tan^2\theta \cong \frac{1-U}{U-S}$ | $U = \left(\frac{A+B}{C}\right)^2;\ S = \left(\frac{A+B}{D+E}\right)^2;\ A = \frac{n_{X1}}{\lambda_1};\ B = \frac{n_{X2}}{\lambda_2};\ C = \frac{n_{Y3}}{\lambda_3};\ D = \frac{n_{Z1}}{\lambda_1};\ E = \frac{n_{Z2}}{\lambda_2}$ |
| $\theta < V_Z$ | oeo | $\tan^2\theta = \frac{1-V}{V-Y}$ | $V = \left(\frac{B}{C-A}\right)^2;\ Y = \left(\frac{B}{E}\right)^2;\ A = \frac{n_{Y1}}{\lambda_1};\ B = \frac{n_{X2}}{\lambda_2};\ C = \frac{n_{Y3}}{\lambda_3};\ E = \frac{n_{Z2}}{\lambda_2}$ |
| | eoo | $\tan^2\theta = \frac{1-T}{T-Z}$ | $T = \left(\frac{A}{C-B}\right)^2;\ Z = \left(\frac{A}{D}\right)^2;\ A = \frac{n_{X1}}{\lambda_1};\ B = \frac{n_{Y2}}{\lambda_2};\ C = \frac{n_{Y3}}{\lambda_3};\ D = \frac{n_{Z1}}{\lambda_1}$ |
| $XZ$ | ooe | $\tan^2\theta = \frac{1-U}{W-1}$ | $U = \left(\frac{A+B}{C}\right)^2;\ W = \left(\frac{A+B}{F}\right)^2;\ A = \frac{n_{Y1}}{\lambda_1};\ B = \frac{n_{Y2}}{\lambda_2};\ C = \frac{n_{X3}}{\lambda_3};\ F = \frac{n_{Z3}}{\lambda_3}$ |
| $\theta > V_Z$ | eoe | $\tan^2\theta \cong \frac{1-U}{W-R}$ | $U = \left(\frac{A+B}{C}\right)^2;\ W = \left(\frac{A+B}{F}\right)^2;\ R = \left(\frac{A+B}{D+B}\right)^2;\ A = \frac{n_{X1}}{\lambda_1};\ B = \frac{n_{Y2}}{\lambda_2};\ C = \frac{n_{X3}}{\lambda_3};\ D = \frac{n_{Z1}}{\lambda_1};\ F = \frac{n_{Z3}}{\lambda_3}$ |
| | oee | $\tan^2\theta \cong \frac{1-U}{W-Q}$ | $U = \left(\frac{A+B}{C}\right)^2;\ W = \left(\frac{A+B}{F}\right)^2;\ Q = \left(\frac{A+B}{A+E}\right)^2;\ A = \frac{n_{Y1}}{\lambda_1};\ B = \frac{n_{X2}}{\lambda_2};\ C = \frac{n_{X3}}{\lambda_3};\ E = \frac{n_{Z2}}{\lambda_2};\ F = \frac{n_{Z3}}{\lambda_3}$ |

## Efektivní nelinearita

$$\overrightarrow{P_{NL}} = \overleftrightarrow{\chi^{(2)}} \cdot \vec{E}\vec{E} + \overleftrightarrow{\chi^{(3)}} \cdot \vec{E}\vec{E}\vec{E} + \ldots,$$

Při interakci dvou vln existuje devět frekvenčních složek polarizace:

$$P^{(2)}(t) \propto \left[E_1^2 e^{-2i\omega_1 t} + E_2^2 e^{-2i\omega_2 t} + 2E_1 E_2 e^{-i(\omega_1+\omega_2)t} + 2E_1 E_2^* e^{-i(\omega_1-\omega_2)t} + \text{c.c.}\right] + 2\left[E_1 E_1^* + E_2 E_2^*\right]$$

Tenzor třetího řádu $\chi_{ijk} = 2d_{ijk}$ (**27** složek x 9 kombinací = 243 obecně komplexnízh čísel)

V důsledku *vnitřní permutační symetrie* lze reprezentovat jako tenzor 2. řádu:

$$d_{ijk} \to d_{il}, i = \begin{Bmatrix} 1 & 2 & 3 \\ X & Y & Z \end{Bmatrix}, l = \begin{Bmatrix} 1 & 2 & 3 & 4 & 5 & 6 \\ XX & YY & ZZ & YZ{=}ZY & XZ{=}ZX & XY{=}YX \end{Bmatrix} \text{ (**18** složek)}$$

$$\begin{bmatrix} P_X \\ P_Y \\ P_Z \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} E_X^2 \\ E_Y^2 \\ E_Z^2 \\ 2E_Y E_Z \\ 2E_X E_Z \\ 2E_X E_Y \end{bmatrix}$$

*Kleinmannova symetrie* - $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ jsou daleko od rezonancí

a) $\Rightarrow$ $\chi_{ijk}$ jsou reálné (*totální permutace*)

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) = \chi_{jki}^{(2)}(-\omega_1 = \omega_2 - \omega_3) = \chi_{jki}^{(2)}(\omega_1 = -\omega_2 + \omega_3)^* = \chi_{jki}^{(2)}(\omega_1 = -\omega_2 + \omega_3)$$

b) $\Rightarrow$ $\chi^{(2)}$ téměř nezávisí na frekvenci

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) = \chi_{jki}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2)$$

$$d_{21} = d_{16} \quad d_{24} = d_{32} \quad d_{31} = d_{15}$$
$$d_{13} = d_{35} \quad d_{12} = d_{26} \quad d_{23} = d_{34}$$
$$d_{14} = d_{36} = d_{25}$$

$$\begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ D_{16} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & D_{14} & D_{12} \\ D_{15} & D_{24} & d_{33} & D_{23} & D_{13} & D_{14} \end{bmatrix} \text{ (**10** složek)}$$

Další složky mohou být nulové pro určitou symetrii krystalu. Většinou zůstanou nenulové jen 1-3 složky.

## Efektivní nelinearita

*Jednoosý krystal*

Pro danou geometrii (směry šíření svazků v krystalu a jejich polarizace) je možno najít efektivní nelinearitu $d_{eff}$ :

$$P_{NL} = 2d_{eff} E_1 E_2$$

$$d_{eff} = \vec{p}_3 . \overleftrightarrow{d} : \vec{p}_1 \vec{p}_2 \qquad \begin{array}{ll} p_{oX} = -\sin\varphi & p_{eX} = \cos\theta\cos\varphi \\ p_{oY} = \cos\varphi & p_{eY} = \cos\theta\sin\varphi \\ p_{oZ} = 0 & p_{eZ} = -\sin\theta \end{array}$$

Vzhledem k tomu, že směry polarizačních vektorů jsou kolmé na směr šíření energie, je třeba provést opravu úhlu $\theta$ o „walk-off".

**Table 2.3.** Expressions for $d_{\text{eff}}$ in uniaxial crystals of different point groups when Kleinman symmetry relations are valid

| Point group | Type of interaction | |
|---|---|---|
| | ooe, oeo, eoo | eeo, eoe, oee |
| $\bar{4}2m(D_{2d})$ | $d_{36}\sin\theta\sin 2\phi$ | $d_{36}\sin 2\theta\cos 2\phi$ |
| $3m(C_{3v})$ | $d_{31}\sin\theta - d_{22}\cos\theta\sin 3\phi$ | $d_{22}\cos^2\theta\cos 3\phi$ |
| $4(C_4)$, $4mm(C_{4v})$, $6(C_6)$, $6mm(C_{6v})$ | $d_{31}\sin\theta$ | 0 |
| $\bar{4}(S_4)$ | $(d_{36}\sin 2\phi + d_{31}\cos 2\phi)\sin\theta$ | $(d_{36}\cos 2\phi - d_{31}\sin 2\phi)\sin 2\theta$ |
| $3(C_3)$ | $(d_{11}\cos 3\phi - d_{22}\sin 3\phi)\cos\theta + d_{31}\sin\theta$ | $(d_{11}\sin 3\phi + d_{22}\cos 3\phi)\cos^2\theta$ |
| $32(D_3)$ | $d_{11}\cos\theta\cos 3\phi$ | $d_{11}\cos^2\theta\sin 3\phi$ |
| $\bar{6}(C_{3h})$ | $(d_{11}\cos 3\phi - d_{22}\sin 3\phi)\cos\theta$ | $(d_{11}\sin 3\phi + d_{22}\cos 3\phi)\cos^2\theta$ |
| $\bar{6}m2(D_{3h})$ | $d_{22}\cos\theta\sin 3\phi$ | $d_{22}\cos^2\theta\cos 3\phi$ |
| $422(D_4)$ | 0 | 0 |
| $622(D_6)$ | 0 | 0 |

Podobně i pro *dvouosý krystal*, ale vztahy jsou složitější.

## KDP

$KH_2PO_4$, dihydrogenfosforečnan draselný
negativní jednoosý krystal ($n_o > n_e$)
Krystalografická skupina: 42m
Tvrdost: 2,5
Optická transparentnost: 174-1570 nm
Efektivní nelinearita:

typ I: $d_{eff} = d_{36} \sin\theta \sin 2\varphi$

typ II: $d_{eff} = d_{36} \sin 2\theta \cos 2\varphi$

$d_{36}$ = 0,39 pm.V$^{-1}$

Sellmeierovy vztahy:

$$n_o^2 = 2{,}259276 + \frac{13{,}00522\lambda^2}{\lambda^2 - 400} + \frac{0{,}01008956}{\lambda^2 - (77{,}26408)^{-1}}$$

$$n_e^2 = 2{,}132668 + \frac{3{,}2279924\lambda^2}{\lambda^2 - 400} + \frac{0{,}008637494}{\lambda^2 - (81{,}42631)^{-1}}$$

## DKDP

$KD_2PO_4$, deuterovaný (95-99%) dihydrogenfosforečnan draselný
Optická transparentnost: 200-2100 nm
$d_{36}$ = 0,37 pm.V$^{-1}$

## ADP

$NH_4H_2PO_4$, dihydrogenfosforečnan amonný
Tvrdost: 2,0
Optická transparentnost: 180-1530 nm
$d_{36}$ = 0,47 pm.V$^{-1}$

***U všech velmi vysoká hygroskopičnost.***
***Snadná výroba i ve velkých rozměrech (20 cm).***
***Nízký práh poškození – spíše pro kontinuální režim.***

## BBO

β-$BaB_2O_4$, beta-barium borát
negativní jednoosý krystal ($n_o > n_e$)
Krystalografická skupina: 3m
Tvrdost: 4
Optická transparentnost: 189-3500 nm
Efektivní nelinearita:

typ I: $d_{eff} = d_{31}\sin\theta - d_{22}\cos\theta\sin 3\varphi$

typ II: $d_{eff} = d_{22}\cos^2\theta\cos 3\varphi$

$d_{22}$ = 2,3 pm.$V^{-1}$

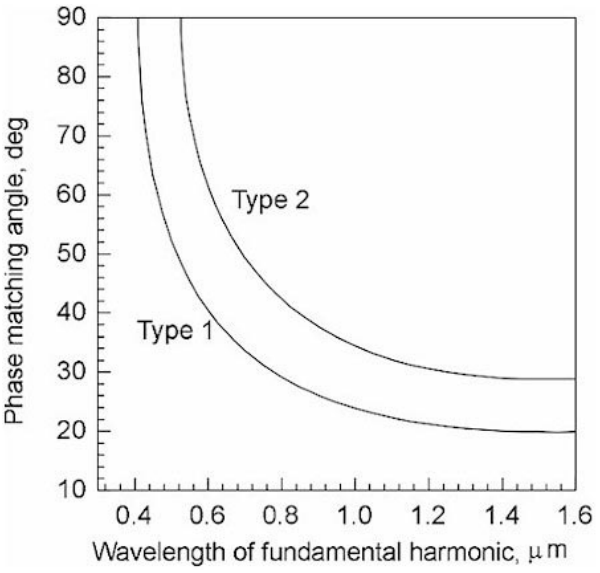
$d_{31}$ =-0,16 pm.$V^{-1}$

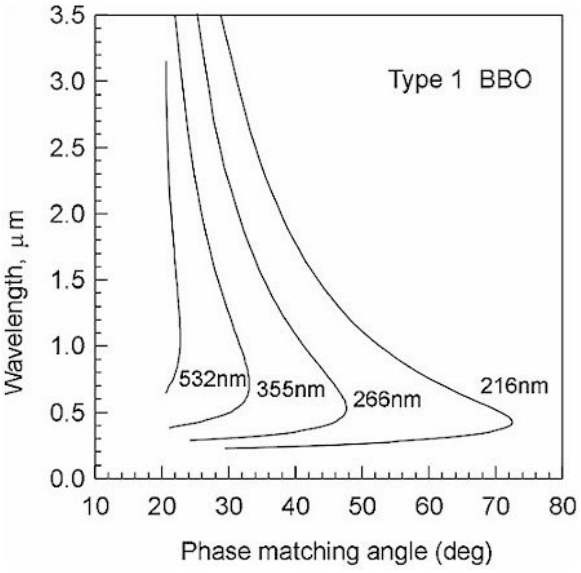
Sellmeierovy vztahy:

$$n_o^2 = 2{,}7359 + \frac{0{,}01878\lambda^2}{\lambda^2 - 0.01822} - 0{,}01354\lambda^2$$

$$n_e^2 = 2{,}3753 + \frac{0{,}01224\lambda^2}{\lambda^2 - 0{,}01667} - 0{,}01516\lambda^2$$

***Vysoký práh poškození.***
***Výborná optická homogenita a dobrá transparentnost v UV.***
***Velmi vhodný pro OPA, OPO a SHG.***
***Dá se vyrobit i velmi tenký (10 μm) – pro autokorelace.***



## $LiNbO_3$

lithium niobát
negativní jednoosý krystal ($n_o > n_e$)
Krystalografická skupina: 3m
Tvrdost: 5-5,5
Optická transparentnost: 400-5500 nm

Indexy lomu i susceptibilita závisí na stechiometrickém poměru Li-Nb – úhly fázové synchronizace **závisí poměrně silně** na stechiometrii.

Efektivní nelinearita:

typ I: $d_{eff} = d_{31}\sin\theta - d_{22}\cos\theta\sin 3\varphi$

typ II: $d_{eff} = d_{22}\cos^2\theta\cos 3\varphi$

| Li/Nb=1.000 | Li/Nb=0.946 |
|---|---|
| $d_{22}$ = 2,46 pm.V$^{-1}$ | $d_{22}$ = 2,10 pm.V$^{-1}$ |
| $d_{31}$ =-4,64 pm.V$^{-1}$ | $d_{31}$ =-4,35 pm.V$^{-1}$ |
| $d_{33}$ =-41,7 pm.V$^{-1}$ | $d_{33}$ =-27,2 pm.V$^{-1}$ |

***Vysoká nelinearita ve směru optické osy – nulový dvojlom.***
***Lze dobře ladit teplotně.***

Vysokou nelinearitu $d_{33}$ lze dobře využít v periodicky pólovaném krystalu ($d_{eff}$ periodicky mění znaménko).

typ. 20 kV/mm

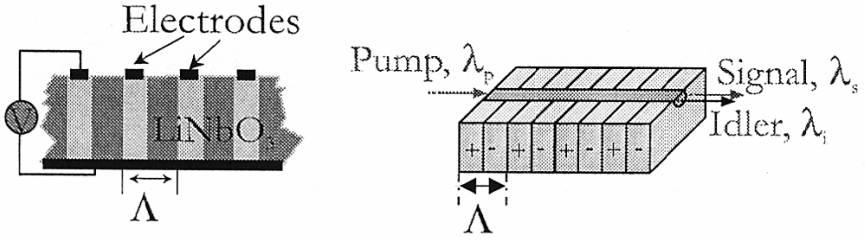



**Fig. 1.** Poling of the lithium niobate substrate (left hand picture) and schematics of a PPLN waveguide (right hand picture). $\Lambda$ denotes the poling period, $\lambda_p$, $\lambda_s$, $\lambda_i$ are the wavelength for the pump, signal and idler photons, and + and − indicate the sign of the $\chi^{(2)}$ coefficient.

Fázová kvazi-synchronizace.
S výhodou se implementuje ve vlnovodné struktuře.
Efektivita procesu může být o několik řádů vyšší než v objemových krystalech.

## $LiIO_3$

lithium jodát
negativní jednoosý krystal ($n_o > n_e$)
Krystalografická skupina: 6
Tvrdost: 3,5-4
Optická transparentnost: 280-6000 nm
Efektivní nelinearita:

typ I: $d_{eff} = d_{31} \sin\theta$

$d_{31} = 4{,}4$ pm.V$^{-1}$

***Vysoká nelinearita.***
***Mírně hygroskopický.***

## KTP

$KTiOPO_4$, titanyl fosfát draselný
Pozitivní dvouosý krystal
Krystalografická skupina: mm2
Tvrdost: 5
Optická transparentnost: 350-4500 nm
Efektivní nelinearita:

$d_{33} = 10{,}7$ pm.V$^{-1}$

$d_{32} = 2{,}65$ pm.V$^{-1}$

$d_{31} = 1{,}4$ pm.V$^{-1}$

***Vysoká nelinearita.***
***Vhodný pro SHG v dutině laseru.***

## LBO

$LiB_3O_5$, lithium triborát
negativní dvouosý krystal
Krystalografická skupina: mm2
Tvrdost: 6
Optická transparentnost: 155-3200 nm
Efektivní nelinearita:

$d_{33} = 0{,}04$ pm.V$^{-1}$

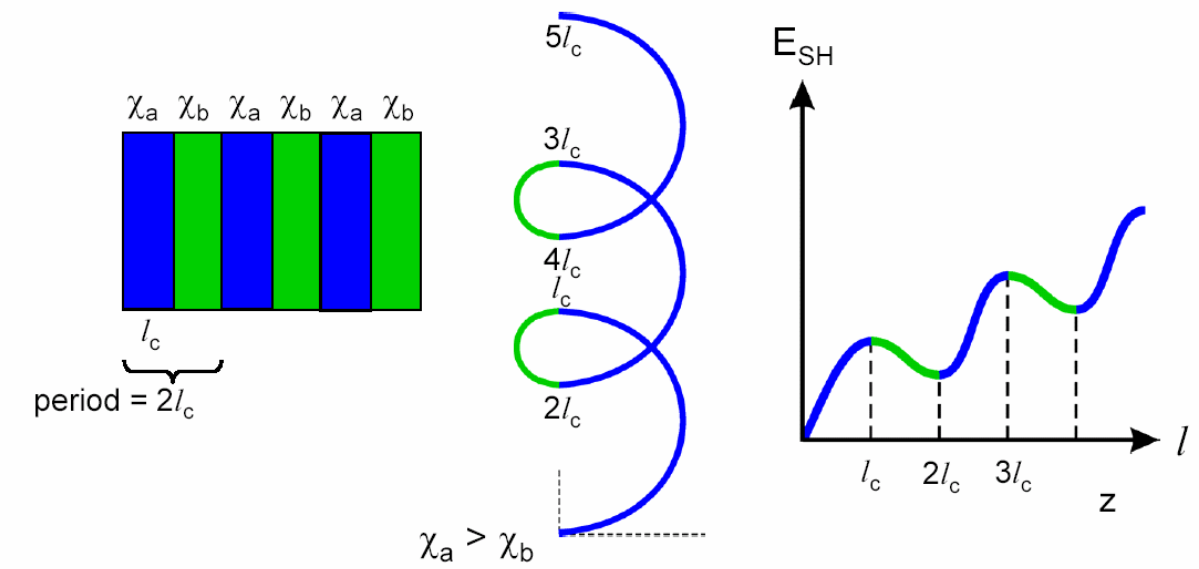
$d_{32} = 0{,}85$ pm.V$^{-1}$

$d_{31} = -0{,}67$ pm.V$^{-1}$

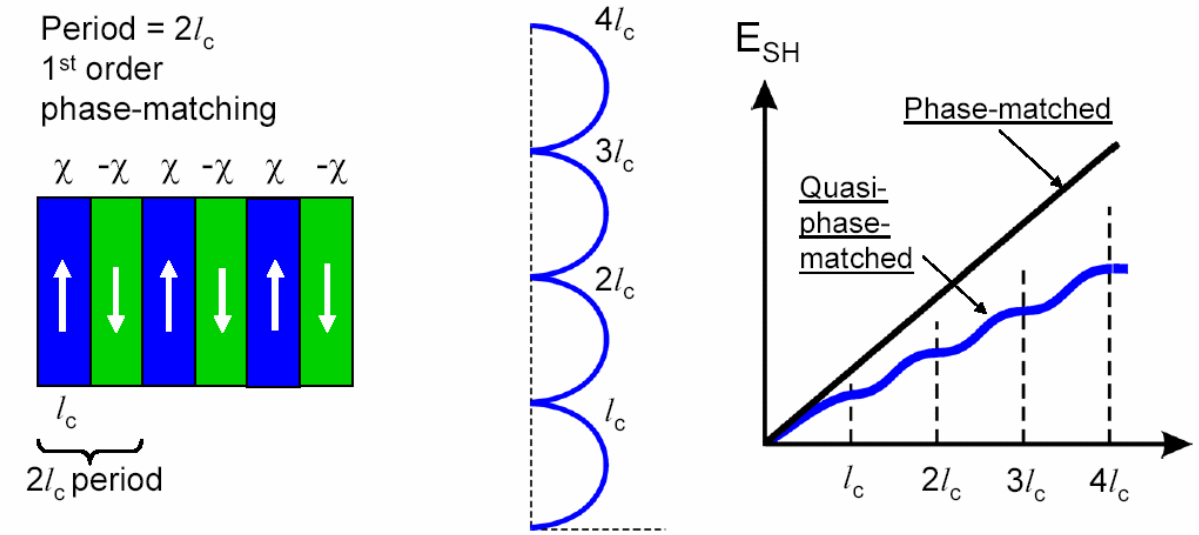
teplotní ladění
***Extrémně vysoký práh poškození.***
***Vhodný pro výkonové aplikace.***

## Kvazi-fázová synchronizace

Příspěvky z jednotlivých koherentních délek se neodečtou:




Např. pomocí periodického pólování:




Nelineární mřížka s periodou $2l_c$ $\Rightarrow$ mřížkový vlnový vektor

$$\Delta k_G = \frac{2\pi}{\Lambda} = \frac{\pi}{l_c}$$

Obecně: Pokud má nelineární proces fázovou (ne)synchronizaci $\Delta\vec{k}$, je třeba nějak vytvořit modulaci nelinearity s takovou periodou, že její mřížkový vlnový vektor bude splňovat $N\Delta\vec{k}_G = \Delta\vec{k}$.

Toho lze s výhodou využít také například ve **fotonických krystalech**.

## Kvazi-fázová synchronizace

Výhody:

- lze produkovat nelineární procesy s dobrou efektivitou i v materiálech s velmi malým dvojlomem ($LiTaO_3$, GaAs) – to může být obzvlášť výhodné, mají-li velkou nelinearitu (GaAs: $d_{14} \approx 100$ pm/V)
- lze produkovat nelineární jevy v celé oblasti transparence daného materiálu bez ohledu na dvojlom
- lze získat přístup k vysokým nelineárním koeficientům ve směru optické osy, např. $d_{33}$ v $LiNbO_3$