Centro de Investigación Científica y de Educación Superior de Ensenada



FABRICACION DE ESTRUCTURAS CON DOMINIOS FERROELECTRICOS INVERTIDOS EN NIOBATO DE LITIO

TESIS MAESTRIA EN CIENCIAS

JORGE FONSECA CAMPOS

Ensenada, Baja Cfa., Mexico.

Enero de 2000.

TESIS DEFENDIDA POR

Jorge Fonseca Campos

Y APROBADA POR EL SIGUIENTE COMITÉ

Dr. Roger Sean Cudney Bueno

Director del Comité_

Dr. Pedro Negrete Regagnon

Miembro del Comité

Dr. Anatolii Khomenko Filatova

Miembro del Comité

Dr. Leonardo Morales de la Garza Miembro del Comité

Dr. Eugenio Rafael Méndez Méndez

Jefe del Departamento de Optica

Dr. Federico Graef Ziehl

Director de Estudios de Posgrado

13 de enero del 2000

CENTRO DE INVESTIGACIÓN CIENTÍFICA Y EDUCACIÓN

SUPERIOR DE ENSENADA.



DIVISIÓN DE FÍSICA APLICADA

DEPARTAMENTO DE ÓPTICA

FABRICACIÓN DE ESTRUCTURAS CON DOMINIOS FERROELÉCTRICOS INVERTIDOS EN NIOBATO DE LITIO.

TESIS

que para cubrir parcialmente los requisitos necesarios para obtener el grado de Maestro en

Ciencias presenta:

JORGE FONSECA CAMPOS

Ensenada Baja California, México. Enero del 2000.

RESUMEN de la tesis de Jorge Fonseca Campos, presentada como requisito parcial para la obtención del grado de **MAESTRO EN CIENCIAS** en **ÓPTICA**. Ensenada, Baja California, México, enero del 2000.

FABRICACIÓN DE ESTRUCTURAS CON DOMINIOS FERROELÉCTRICOS INVERTIDOS PERIÓDICAMENTE EN LINbO₃.

Resumen aprobado por:

Dr. Roger S Director de Tesis.

Para que un proceso de conversión de ondas de una frecuencia a otra se dé eficientemente en un medio no-lineal, las ondas generadas en diferentes regiones del medio deben interferir constructivamente. Debido a la dispersión del índice de refracción, las ondas generadas en diferentes regiones del medio se desfasan entre sí, por lo que algunas ondas interfieren destructivamente, reduciendo drásticamente la conversión de una frecuencia a otra. Una técnica para mantener la interferencia constructiva entre las ondas es la técnica de cuasi empatamiento de fases, que consiste en alternar el signo del coeficiente no lineal del medio, y por ende la fase de las ondas generadas, a lo largo de la región de interacción entre las ondas.

En este trabajo se presenta la fabricación y caracterización de estructuras de dominios ferroeléctricos invertidos periódicamente en niobato de litio para la conversión de ondas de una frecuencia a otra mediante la técnica de cuasi empatamiento de fases. Las estructuras fueron desarrolladas en obleas de niobato de litio de 0.5 mm de espesor mediante la aplicación selectiva de campos eléctricos elevados (21 KV/mm). Se logró crear estructuras de casi 2 cm de longitud con una periodicidad de 25 micras.

Palabras claves: Técnica de cuasi empatamiento de fases, dominios ferroeléctricos, niobato de litio.

Abstract of the thesis of Jorge Fonseca Campos, presented as a partial requirement to obtain the MASTER IN SCIENCE degree in OPTICS. Ensenada, Baja California, México, January of 2000.

FABRICATION OF PERIODICALLY POLED LiNbO3 STRUCTURES.

Abstract approved by:

Dr. Roger S. Cudney Bueno. Thesis director

In order for a nonlinear optical process which involves a conversion from one optical fequency to another to be efficient, it is necessary that the waves generated in different regions of the medium interfere constructively. Due to the dispersion of the index of refraction, the waves generated in different regions of the medium will be out of phase. Therefore only some of the waves interfere constructively, which drastically reduces the conversion efficiency. One technique to have constructive interference between all waves is the technique of quasi phase matching; in this technique the sign of the nonlinear, and therefore the phase of the waves, is periodically inverted throughout of the interaction region. This periodic inversion of the sign compensates the dephasing produced by the dispersion, in such a way that all of the waves interfere constructively.

In this work we present the technique of fabrication and the characterization of structures with ferroelectric domains periodically inverted in lithium niobate (periodically-poled lithium niobate) for applications in quasi-phase matched frequency conversion processes. The structures were developed in 0.5 mm thick lithium niobate wafers by a selective application of high electric fields (21 KV/mm). We created structures approximately 2 cm long and with a period of 25 μ m.

Keywords: Technique of quasi phase matching, ferroelectric domains, lithium niobate, PPLN.

DEDICATORIA

Deseo dedicar sinceramente esta pequeña y gran aventura de mi vida a varios amigos y amigas que se han visto involucrados en innumerables pasajes de lo que se suele llamar como vida. En la vida se viven siempre situaciones que provocan sentimientos encontrados, desde sanguinolentas punzadas de veneno hasta grandes momentos de excelsitud. Quiero agradecer de corazón a mis amigos y amigas que me han brindado su amistad para que con ésta yo haya podido superar los momentos difíciles, como si estos no lo hubieran sido; además que su amistad es la única y verdadera responsable de que yo haya disfrutado profundamente los mejores momentos de mi vida. Después de mucho reflexionar me he dado cuenta que mi mamá y mi papá han sido los mejores amigos que he tenido, afortunadamente juntos hemos podido romper con el nexo biológico que nos mantenía unidos en un principio. Ahora hemos podido crear otro nexo más importante que es el nexo del amor, que estoy convencido que nos mantendrá unidos por siempre y para siempre, y por los siglos de los siglos. Mi hermano también ha sido un gran amigo, es más puedo decir que hasta ha sido mi maestro y redentor, él sabe que lo amo profundamente y que su apoyo incondicional es completamente recíproco. Mis abuelas y abuelos, mis tíos y tías, mis primos y mis primas; también han jugado su papel no menos importante en el buen fin que han tenido las cosas, les agradezco que hayan estado y estén involucrados en todos mis pensamientos y decisiones.

En mi estancia en Ensenada he podido crear un nexo de unión indisoluble con varias amigos y amigas. Todavía recuerdo que mi primer año de estancia sirvió para que en el camino conociera mejor a mi amigo del alma. Al amigo que me enseñó una nueva manera de concebir el mundo. La afinidad ideológica nos tendió un puente indestructible que sólo la muerte podrá olvidar más no romper, él sabe como lo amo y sé que en donde quiera que se encuentre, él disfrutará al igual que yo nuestra amistad eterna. Algo que nunca olvidaré es la estancia en el cuchitril III, ahí conocí a dos muy buenos amigos uno de Lázaro y otro de Mazatlán, juntos formábamos el trío dinámico (en lo que se refiere a cuestiones de limpieza sería más bien el trío estático), a ellos también les doy las gracias. Y por último quisiera agradecer profundamente a una chica oriunda de Guadalajara, que es

muy bella, buena e inteligente. Afortunadamente por azares del destino nos encontramos en un punto y en un momento en este diminuto universo; en este universo en el cual hemos pasado muchas cosas juntos, las cuales en más de una ocasión me han demostrado que ella en ningún momento ha dudado en ofrecerme su amistad sincera, y su amor a toda prueba.

AGRADECIMIENTOS

Pienso que en la vida ningún logro es individual y este trabajo no fue la excepción, a continuación expreso los agradecimientos a quienes de forma directa o indirecta estuvieron involucrados en este trabajo.

Al profesor Roger Cudney que aceptó ser mi director de tesis, y no sólo eso, además aportó numerosas y valiosas ideas, y empleó muchas horas de su tiempo en este trabajo.

A los profesores Anatolii Khomenko, Pedro Negrete, Leonardo Morales; les quiero dar las gracias primero porque aceptaron ser miembros de mi comité de tesis, y segundo por toda la paciencia y la confianza que me tuvieron.

A Fabián Alonso que gracias a su ahínco se pudieron resolver muchos de los problemas que surgieron en este trabajo. Además que él me brindó su amistad de forma sincera.

A Javier Dávalos que aparte de ser mi amigo, desarrolló la técnica de corte y pulido de los cristales.

A María Orozco que a lo largo del tiempo tuvimos una buena amistad. Además que ella me ayudó en gran medida en la parte de la caracterización óptica de los cristales.

A Juan Peralta que me ayudó siempre en el momento en que lo necesité.

A Gina, y al profesor Eugenio Méndez que me permitieron todas las facilidades para realizar los depósitos de fotorresina.

A los profesores y profesoras, y todo el personal del departamento de óptica por su loable labor.

A las chicas de sistemas escolares que tuvieron una actitud excepcional.

Al CICESE y a todo el personal de esta institución por su trabajo y esfuerzo.

Al CONACyT que en mi caso particular cumplió con los designios del pueblo de México, al otorgarme una beca para mi manutención.

A mis grandes amigas y amigas, el señor César Castillo rey de la música cubana, Nina Leshan la chica actual, al señor Silver amo y señor de los gusanos y los caballos, al señor Efrén con su canción de moda "luego paso por ti", el señor Mike el desheredado del premio Nobel, el señor Jorge Espinosa, la señorita Adriana Nava ama y señora de las mascarillas, al señor David Zevallos el rey de la noche, el señor Francisco Lazo, la señorita Beatriz maestra de los foraminí..., la señorita Laura chica Ensenada-watch, Maricela, Aida, Rafa, David Salazar... Y a todos aquellos amigos y amigas que me faltó mencionar. Por último agradezco a todos los mexicanos que luchan cada día para tener la comida puesta en la mesa, y aquellos que han logrado con su empuje que esta sociedad se esté democratizando.

Capítulo I. INTRODUCCIÓN

I. Introducción		1
Capítulo II. MEZCLA DE ONDAS A TRAVÉS DEL COEFICIENTE		
	ÓPTICO NO LINEAL DE ORDEN DOS	
II.1.	Procesos óptico no lineales	6
	II.1.1. Tipos de procesos ópticos no lineales	7
II.2 .	Ecuaciones acopladas	8
II.3.	Proceso de generación del segundo armónico	11
	II.3.1. Empatamiento de fases para el proceso de generación	
	del segundo armónico	15
	II.3.2. Cuasi empatamiento de fases para el proceso de	
	generación del segundo armónico	18
II.4.	Proceso de generación de suma de frecuencias	25
	II.4.1. Cuasi empatamiento de fases para el proceso de	
	de generación de suma de frecuencias	27
II.5.	Interacción con el coeficiente óptico no lineal mayor en	
	el niobato de litio	30

Página

Capítulo III. MATERIALES FERROELÉCTRICOS.

III.1.	Polarización espontánea, dominios ferroeléctricos y curva	
	de histéresis ferroeléctrica	33
III.2.	Estructura del niobato de litio	35
III.3.	Parámetros de la inversión de dominios ferroeléctricos por	
	aplicación de campo eléctrico	37
III.4.	Visualización de dominios ferroeléctricos	39
III.5.	Ecuación de dispersión de Sellmeier en niobato de litio	40

Capítulo IV. MÉTODOS DE FABRICACIÓN Y RESULTADOS

IV.1.	Corte, esmerilado y pulido de obleas de niobato de litio	44
IV.2.	Técnica de fabricación de estructuras con dominios ferroeléctricos	
	invertidos periódicamente en LiNbO3 por aplicación de campo	
	eléctrico	48
	IV.2.1 Fabricación de electrodos con una periodicidad precisa	
	en niobato de litio	49
	IV.2.2. Inversión de dominios ferroeléctricos periódicamente	52
IV.3.	Fabricación de rejillas con periodicidad precisa	68
IV.4.	Conclusiones	73

	Página
Literatura citada	75
APÉNDICE I. Ecuaciones acopladas	78
APÉNDICE II. Cuasi empatamiento de fases para regiones periódicas	
donde la longitud de las regiones con signos opuestos de la	
no-linealidad es distinta a la longitud de coherencia	86

LISTA DE FIGURAS

Figura		Página
1.	Comportamiento cualitativo de la intensidad de la onda generada	
	para diferentes valores de Δk	14
2	Interpretación física del empatamiento y desempatamiento de fases	16
3	Gráfica de dispersión para el niobato de litio a 100^{0}	17
4.	Idea básica del cuasi empatamiento de fases	19
5	Alternancia del signo de $d^{(2)}$ a través del medio no lineal	20
6	Comparación entre desempatamiento de fases, empatamiento de fases	
	y cuasi empatamiento de fases	23
7	Alternancia del signo de la no-linealidad, cuando $a \ge b$ son diferentes	
	a la longitud de coherencia	24
8	Curva de histéresis ferroeléctrica	34
9	9 Estructura del LiNbO ₃	
10	Dirección de la polarización espontánea	38
11	Curva de sintonización para el niobato de litio	42
12	Preparación para el corte de las obleas de niobato de litio	45
13	Sistema de corte empleado	46
14	Sujección de piezas para el pulido del niobato de litio	47
15	Grabado de rejilla en fotorresina por contacto	50
16	Rejilla comercial con periodo de 25µm	50

LISTA DE FIGURAS (Continuación)

Fi	Figura	
17	Imágenes de fotorresina en niobato de litio	51
18	Escalones de fotorresina medidos con perfilómetro	52
19	Comportamiento de la fuente de alto voltaje con respecto a un	
	voltaje de control	53
20	Estructura de dominios en niobato de litio en la superficie de la	
	oblea: (a) Imagen tomada con un objetivo de microscopio de 10X,	
	(b) Imagen tomada con un objetivo de microscopio de 45X	54
21	Inversión de dominios ferroeléctricos usando electrodos líquidos	55
22	Arreglo experimental para la inversión de dominios ferroeléctricos	
	invertidos periódicamente	56
23	Celda para la aplicación de alto voltaje	57
24	Inversión de dominios. (a) Aplicación del alto voltaje en la cara $z +$,	
	(b) Aplicación del alto voltaje en la cara z –	58
25	Señales de alto voltaje utilizadas en la inversión de dominios	60
26	Estructuras de dominios ferroeléctricos invertidos con $\Lambda = 25 \mu m$:	
	(a) Fotorresina en la cara $z + , (b)$ Fotorresina en la cara $z - $	61
27	Fronteras de dominios ferroeléctricos invertidos: (a) Fotografía con	
	un objetivo de microscopio de 20X, (b) Fotografía con un objetivo	
	de microscopio de 45X	62

LISTA DE FIGURAS (Continuación)

Fig	Figura	
28	Estructuras de dominios ferroeléctricos invertidas vistas entre	
	polarizadores cruzados	62
29	Comparación de la estructura de dominios con respecto a la	
	mascarilla empleada para su fabricación	64
30	Arreglo óptico para caracterizar la estructura de dominios	
	ferroeléctricos invertidos periódicamente	65
31	Comportamiento del segundo armónico, con regiones con	
	dominios ferroeléctricos invertidos y una región con un solo dominio	66
32	Esquema básico para la fabricación de rejillas	69
33	Determinación experimental del ancho del haz	70
34	Resultados experimentales de la medición del ancho del haz	71
35	Rejilla de 1200 líneas en película holográfica, con periodo de 28.5µm	72
36	Rejilla en película holográfica con periodicidades de 21 y 29µm	73

FABRICACIÓN DE ESTRUCTURAS CON DOMINIOS FERROELÉCTRICOS INVERTIDOS PERIÓDICAMENTE EN NIOBATO DE LITIO

I. INTRODUCCIÓN

Uno de los acontecimientos que marcó un hito en la historia de la óptica fue el desarrollo de los láseres. Sin las características que posee la luz emitida por los láseres, como lo son su gran intensidad, alto grado coherencia, gran direccionalidad, etcétera, no sería posible que hoy en día varios campos de la óptica se hubieran desarrollado como hasta ahora. Uno de los campos que ha tenido un gran desarrollo con el advenimiento de la luz láser es el campo de la óptica no lineal. A grosso modo la óptica no lineal se puede entender como el estudio de la interacción de luz intensa con la materia. En 1961, Franken *et al.* reportaron el primer experimento de óptica no lineal, el cual consistió en la generación del segundo armónico ($\lambda = 347$ nm) de un láser de rubí ($\lambda = 694$ nm) que se produjo al interaccionar con un cristal de cuarzo. La eficiencia de conversión en este experimento fue de ~10⁻⁸ (Yariv, 1991).

La descripción de la óptica no lineal se hace a través del efecto que produce un campo eléctrico que varía en el tiempo a frecuencias ópticas sobre la polarización eléctrica del medio, donde la polarización eléctrica es el momento dipolar por unidad de volumen. Existen procesos ópticos no lineales de distintos órdenes; en nuestro caso particular abordaremos exclusivamente algunos de los procesos ópticos no lineales de orden dos; en estos la polarización eléctrica es proporcional (Boyd, 1992) al campo eléctrico aplicado al cuadrado y a la susceptibilidad óptica no lineal de orden dos ($\chi^{(2)}$), la cual es una cantidad intrínseca del material; esta cantidad da una idea de la magnitud en que se pueden manifestar los procesos ópticos no lineales en el medio. Se puede demostrar que una de las consecuencias del comportamiento no lineal de la polarización eléctrica con respecto al campo eléctrico es el fenómeno de generación del segundo armónico que se mencionó anteriormente de forma implícita; en este fenómeno una onda con frecuencia ω al interactuar con el medio óptico no lineal da lugar a la generación de una onda con frecuencia 2ω . Otra de las consecuencias de este comportamiento es que el medio óptico no lineal se puede utilizar para mezclar dos ondas con diferentes frecuencias, y obtener como resultado de esta mezcla, una tercer onda que tiene como frecuencia la suma o la diferencia de estas frecuencias.

Como hemos mencionado, al hacer incidir radiación en el medio óptico no lineal la polarización actúa como una fuente de radiación a una frecuencia diferente que la frecuencia de la radiación incidente. La fase de la radiación que se genera en cada punto del material dependerá de la fase de la ondas ópticas que la generan en ese punto; por ejemplo, en el caso de generación de segundo armónico, la fase de la onda con frecuencia 2ω depende de la fase local de la onda a frecuencia ω . El campo total a frecuencia ω está dado por la suma de las diferentes contribuciones generadas a lo largo del medio no lineal. Si estas contribuciones están en fase, entonces la intensidad de la onda generada será máxima. Sin embargo, debido a la dispersión del índice de refracción del medio, la onda a frecuencia ω viaja a una velocidad diferente a la onda de frecuencia 2ω . Esto trae como consecuencia

que las ondas generadas en distintas partes del cristal no estén en fase, por lo que la intensidad de la onda generada oscila con la distancia y la eficiencia de conversión se reduce drásticamente. En 1962 Giordmaine propuso una técnica con la cual se logra que los índices de refracción de la onda fundamental y de la onda generada sean iguales, esta técnica se conoce como la técnica de empatamiento de fases; en esta técnica a la onda a la frecuencia fundamental y a la del segundo armónico se les ajusta el estado de polarización en un material birrefringente de manera que los índices de refracción de ambas ondas sean iguales. Esto es posible ya que en los materiales birrefringentes el índice de refracción es función del estado de polarización. Cuando se implementa la técnica de empatamiento de fases la intensidad de la onda generada varía de forma parabólica con respecto a la longitud de interacción.

Se he mencionado que cuando los índices de refracción de la onda a la frecuencia fundamental y la onda generada son diferentes la intensidad de la onda generada oscila la distancia, esta oscilación tiene un periodo bien definido que se conoce como la longitud de coherencia. Se puede demostrar que existe una diferencia de fases de 180^{0} entre las ondas generadas que se encuentran separadas por una longitud de coherencia; este desfasamiento es el responsable del comportamiento oscilatorio que presenta la intensidad de la onda generada. En 1962 Bloembergen *et al.* propusieron la técnica conocida como cuasi empatamiento de fases; en esta técnica se corrige la diferencia de fases que hay entre las ondas generadas que están separadas entre sí por una longitud de coherencia, obteniéndose como resultado que la intensidad del segundo armónico sea siempre creciente a lo largo de la longitud de interacción. La forma de implementar la técnica anterior es por medio de la

construcción de una estructura periódica dentro del medio óptico no lineal, y el tipo de estructura que es más efectiva es aquella en la que el signo de la no-linealidad se modula periódicamente a lo largo de todo el medio óptico no lineal.

Dentro de los materiales que son candidatos para implementar esta técnica se encuentran los materiales ferroeléctricos, la principal característica de estos materiales es que presentan un momento dipolar permanente (polarización espontánea P_s) inclusive en la ausencia de un campo eléctrico externo. A las regiones donde la polarización espontánea tiene la misma dirección se les denomina dominios ferroeléctricos. Existen dos características que permiten implementar la técnica de cuasi empatamiento de fases en estos materiales, una de ellas es que la polarización espontánea es proporcional al signo de la nolinealidad (Didomenico y Wemple, 1969), y la otra es que el signo de la polarización espontánea puede cambiarse por la aplicación de un campo eléctrico externo. Por lo tanto, es posible crear una inversión periódica del signo de la no-linealidad simplemente invirtiendo periódicamente la dirección de la polarización espontánea. En años recientes se ha implementado con bastante éxito la técnica de cuasi empatamiento de fases a través del método que involucra la aplicación de un campo eléctrico selectivo. Con este método se han desarrollado estructuras con dominios ferroeléctricos invertidos periódicamente en LiNbO₃, las cuales se has utilizado en distintas interacciones ópticas no lineales.

Dentro de las ventajas de esta técnica con respecto a la técnica de empatamiento de fases por birrefringencia se enlistan las siguientes:

- Se pueden producir interacciones ópticas no lineales eficientes utilizando el coeficiente óptico no lineal mayor del niobato de litio, obteniendo una ganancia ~16 mayor que la que se obtiene por empatamiento de fases (Myers *et al.* 1995).
- Se puede modificar el periodo de modulación de la estructura con el objetivo de producir cualquier interacción óptica no lineal que se desee dentro de todo el intervalo de transparencia del material; éste va desde el ultravioleta cercano al infrarrojo medio.

La organización del trabajo es la siguiente. En el capítulo II básicamente se hace una revisión breve de los procesos ópticos no lineales de orden dos. Además se incluye el análisis de la técnica de cuasi empatamiento de fases para el fenómeno de generación del segundo armónico y para el proceso de suma de frecuencias. En el capítulo III se hace una breve descripción de las características de los materiales ferroeléctricos; esta descripción se centra principalmente en el LiNbO₃. Finalmente, en el capítulo IV se presenta la técnica con la cual se implementa la técnica de cuasi empatamiento de fases en el niobato de litio y los resultados experimentales obtenidos con esta técnica.

II. MEZCLA DE ONDAS A TRAVÉS DEL COEFICIENTE ÓPTICO NO LINEAL DE ORDEN DOS

II.1 PROCESOS ÓPTICOS NO LINEALES

Un medio dieléctrico óptico lineal se caracteriza por una relación lineal entre el campo eléctrico \mathbf{E} y la polarización eléctrica del medio \mathbf{P} . La relación se desvía de la linealidad cuando el campo eléctrico aumenta de forma considerable. Para describir el efecto de la desviación de la linealidad entre \mathbf{E} y \mathbf{P} se utiliza una expansión en serie de potencias:

$$\mathbf{P} = \mathbf{P}_{s} + \varepsilon_{0} (\overline{\chi}^{(1)} \cdot \mathbf{E} + \overline{\overline{\chi}}^{(2)} : \mathbf{E}\mathbf{E} + \overline{\overline{\chi}}^{(3)} : \mathbf{E}\mathbf{E}\mathbf{E} + \dots), \qquad (1)$$

donde \mathbf{P}_s es la polarización espontánea del medio, ε_0 es la permitividad del vacío, $\overline{\chi}^{(1)}$ es el tensor de susceptibilidad de primer orden, $\overline{\overline{\chi}}^{(2)}$ es el tensor de susceptibilidad de segundo orden y $\overline{\overline{\chi}}^{(3)}$ es tensor de susceptibilidad de tercer orden.

El primer término dentro del paréntesis de la ec. (1) representa la respuesta lineal de la polarización con respecto al campo eléctrico incidente. El segundo término dentro del paréntesis de la ec. (1) representa la primera interacción óptica no lineal; como se observará posteriormente, este término da lugar a los procesos ópticos no lineales de orden dos, tales como la generación de segundo armónico, fluorescencia paramétrica, oscilación óptica paramétrica, el efecto electroóptico, etcétera. El tercer término dentro del paréntesis de la ec. (1) representa las interacciones no lineales de tercer orden; éstas dan origen a fenómenos como la generación del tercer armónico, conjugación de fase, biestabilidad óptica, autoenfocamiento, etcétera. En principio, existen interacciones no lineales de orden mayor; pero las interacciones no lineales son más débiles conforme se aumenta el orden de la interacción, por lo tanto, para fines prácticos se consideran hasta las interacciones de orden tres.

II.1.1. TIPOS DE PROCESOS ÓPTICOS NO LINEALES

A continuación se describirán cualitativamente los principales tipos de procesos ópticos no lineales que se presentan en un medio con una susceptibilidad de orden dos apreciable, cuando en este medio se propagan dos ondas planas monocromáticas con frecuencias ω_1 y ω_2 . Por simplicidad, consideramos al campo eléctrico total como una cantidad escalar y que las dos ondas viajan en la misma dirección; de esta forma, la expresión del campo eléctrico total E_T viene dada por:

$$E_T = E_1(z)e^{-i\omega_1 t} + E_2(z)e^{-i\omega_2 t} + c.c.,$$
(2)

donde E_1 y E_2 son las amplitudes de las ondas a la frecuencia ω_1 y ω_2 , respectivamente, y *c.c.* significa el complejo conjugado.

Si la ec. (2) se introduce en el término que incluye a $\overline{\overline{\chi}}^{(2)}$ de la ec. (1), considerando por simplicidad que $\overline{\overline{\chi}}^{(2)}$ es una cantidad escalar, obtenemos de resultado:

$$P = \varepsilon_0 \chi^{(2)} [|E_1|^2 + |E_2|^2 + E_1^2 e^{-i2\omega_1 t} + E_2^2 e^{-i2\omega_2 t} + 2E_1 E_2 e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t} + 2E_1^* E_2 e^{-i(\omega_2 - \omega_1)t} + c.c].$$
(3)

En la ec. (3) los dos primeros términos tienen frecuencia cero y dan lugar al fenómeno conocido como rectificación óptica, en el cual las ondas de bombeo se aniquilan produciendo una diferencia de potencial en el material. Los siguientes dos términos contienen en el argumento el doble de las frecuencias incidentes y dan lugar al proceso que se conoce como generación de segundo armónico. El quinto término contiene en su argumento la suma de las frecuencias de las ondas incidentes, por lo que dan origen a radiación con una longitud de onda más corta con respecto a las longitudes de bombeo iniciales. El sexto término contiene en su argumento la diferencia de las frecuencias de las ondas incidentes y genera radiación con una longitud de onda mayor que las longitudes de onda de bombeo.

II.2 ECUACIONES ACOPLADAS

Acabamos de analizar cómo la presencia de dos ondas a las frecuencias ω_1 y ω_2 generan términos de la polarización que oscilan a frecuencias distintas. Para estudiar el efecto que tiene esta polarización sobre el campo eléctrico es necesario resolver la ecuación de onda, que en su forma escalar e isotrópica viene dada por:

$$\nabla^2 E = \mu \varepsilon \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} + \mu \frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2}, \qquad (4)$$

donde *E* es el campo eléctrico, μ es la permeabilidad del espacio libre, ε es la permitividad eléctrica y P_{NL} es la polarización no lineal, que hasta términos de segundo orden viene dada por:

$$P_{NL} = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E^2.$$
⁽⁵⁾

La ec. (4) no puede resolverse de manera exacta, por lo que es necesario hacer unas aproximaciones. Una técnica para resolver la ecuación de onda de manera aproximada es la de modos acoplados. En esta técnica se propone que la solución a la ec. 4 consta de una suma de tres ondas monocromáticas con frecuencias ω_1 , ω_2 y ω_3 , cuyas amplitudes varían a lo largo del medio no lineal por donde propagan. Si la no-linealidad no es muy grande, el resultado es que la ec. (4) se reduce a 3 ecuaciones diferenciales de primer grado acopladas entre sí por la no-linealidad. La solución de estas ecuaciones nos da la evolución espacial de las amplitudes de las 3 ondas supuestas como soluciones. El formalismo matemático y las aproximaciones utilizadas para producir este sistema de ecuaciones se describen en detalle en el apéndice 1. Si suponemos que las ondas viajan en la misma dirección z, el método de modos acoplados nos da el siguiente sistema de ecuaciones:

$$\frac{dE_{1}(z)}{dz} = i \frac{\omega_{1}}{cn_{1}} d^{(2)} E_{2}^{*} E_{3} e^{i\Delta kz}
\frac{dE_{2}(z)}{dz} = i \frac{\omega_{2}}{cn_{2}} d^{(2)} E_{1}^{*} E_{3} e^{i\Delta kz} , \qquad (6)
\frac{dE_{3}(z)}{dz} = i \frac{\omega_{3}}{cn_{3}} d^{(2)} E_{1} E_{2} e^{-i\Delta kz}
\operatorname{con} \omega_{3} = \omega_{2} + \omega_{1}$$

donde E_1 , E_2 y E_3 representan las amplitudes del campo eléctrico a las frecuencias ω_1 , ω_2 y ω_3 , respectivamente y n_1 , n_2 y n_3 son los índices de refracción del medio a las frecuencias respectivas; c velocidad de la luz en el espacio libre y $d^{(2)}$ es el coeficiente óptico no lineal de orden dos. En la literatura es común encontrar al coeficiente óptico no lineal de orden dos ($d^{(2)}$); éste en el caso escalar se relaciona a la susceptibilidad no lineal de orden dos como:

$$d^{(2)} = \frac{1}{2}\chi^{(2)}.$$
(7)

El término $d^{(2)}$ está definido por:

$$\Delta k = k_3 - k_2 - k_1,$$

(8)

donde k_1 , k_2 y k_3 representan las magnitudes de los vectores de propagación de las ondas a las frecuencias ω_1 , ω_2 y ω_3 , respectivamente. La magnitud del vector de propagación de la onda i-ésima se relaciona con la frecuencia de la onda i-ésima como:

$$k_i = \frac{\omega_i}{c} n^{(\omega_i)},\tag{9}$$

donde $n^{(\omega_i)}$ es el índice de refracción del medio a la frecuencia i-ésima.

II.3. PROCESO DE GENERACIÓN DEL SEGUNDO ARMÓNICO

Ahora procedemos a resolver el sistema de ecs. (6) para dos casos que son de nuestro interés, generación de segundo armónico y generación paramétrica. Comenzaremos por resolver el sistema de ecuaciones para el caso de generación de segundo armónico.

En el proceso de generación de segundo armónico una onda que incide en el medio óptico no lineal a la frecuencia ω genera una onda con el doble de la frecuencia incidente.

Si se propone $\omega_3 = 2\omega$, $\omega_1 = \omega_2 = \omega$, $k_1 = k_2 = k^{(\omega)}$ y $k_3 = k^{(2\omega)}$ el sistema de ecs. (6) se reduce a:

$$\frac{dE^{(\omega)}}{dz} = i \frac{\omega}{cn^{(\omega)}} d^{(2)} \left[E^{(\omega)} \right]^* E^{(2\omega)} e^{i\Delta kz}$$

$$\frac{dE^{(\omega)}}{dz} = i \frac{\omega}{cn^{(\omega)}} d^{(2)} \left[E^{(\omega)} \right]^* E^{(2\omega)} e^{i\Delta kz} , \qquad (10)$$

$$\frac{dE^{(2\omega)}}{dz} = i \frac{2\omega}{cn^{(2\omega)}} d^{(2)} \left[E^{(\omega)} \right]^2 e^{-i\Delta kz}$$

donde $\Delta k = k^{(2\omega)} - 2k^{(\omega)}$.

Nótese que las dos primeras ecuaciones son iguales, por lo que solamente es necesario resolver dos de las tres ecuaciones. Además, cuando la onda de bombeo es muy intensa y la eficiencia de conversión no es tan elevada de modo que la transferencia de energía de la onda fundamental a la onda generada no es significativa, se puede suponer que $E^{(\omega)}$ es constante a lo largo de la trayectoria de interacción, de aquí que del sistema de ecuaciones sólo se tiene que resolver la última, la cual se puede reexpresar en términos de

la intensidad de la onda de bombeo $I^{(\omega)}$. Si se utiliza la ecuación $I^{(\omega)} = \frac{cn^{(\omega)} \mathcal{E}_0}{2} |E^{(\omega)}|^2$, se

obtiene:

$$\frac{dE^{(2\omega)}}{dz} = \Gamma d^{(2)} I^{(\omega)} e^{-i\Delta kz}, \qquad (11)$$

donde $\Gamma = i \frac{4\omega}{c^2 n^{(2\omega)} n^{(\omega)} \varepsilon_0}$. Si se integra la ec. (11) para un cristal de longitud *l* con la

condición inicial $E^{(2\omega)}(0) = 0$ se obtiene:

$$E^{(2\omega)}(l) = \Gamma d^{(2)} I^{(\omega)} l \operatorname{sinc}(\frac{\Delta k l}{2}) e^{-i(\frac{\Delta k l}{2})} .$$
(12)

Si se utiliza la ecuación $I^{(2\omega)} = \frac{cn^{(2\omega)}\varepsilon_0}{2} |E^{(2\omega)}|^2$, la ec. (12) se puede expresar co-

mo:

$$I^{(2\omega)}(l) = A^2 \left| d^{(2)} \right|^2 \left[I^{(\omega)} \right]^2 l^2 \operatorname{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k l}{2} \right), \tag{13}$$

donde $A^2 = \frac{8\omega^2}{c^3 [n^{(\omega)}]^2 n^{(2\omega)} \varepsilon_0}$. Si se analiza la ec. (13) se observa que $I^{(2\omega)}$ es proporcio-

nal a la intensidad de la onda de bombeo, la longitud de interacción del medio y el coeficiente óptico no lineal. Éste da una medida de qué tan no lineal es el medio. En la figura 1 se presenta una gráfica de la ec. (13) que muestra los valores que toma $I^{(2\omega)}$ para cuatro valores diferentes de Δk . En esta gráfica se observa que para cada valor específico de Δk , mientras que sea diferente de cero, la intensidad de segundo armónico oscila con la distancia; además, conforme el valor de Δk se aproxima más a cero, la intensidad de segundo armónico es mayor. En el caso particular cuando $\Delta k = 0$ la intensidad aumenta de forma cuadrática con respecto a la longitud de interacción l, produciéndose una conversión máxima de segundo armónico. Esta condición se analiza más a detalle en la sección II.3.1.



Figura 1. Comportamiento cualitativo de la intensidad de la onda generada para diferentes valores de Δk .

Si se analiza el término sinc²
$$\left(\frac{\Delta kl}{2}\right)$$
 de la ec. (13), se observa que para cada valor

específico de Δk , esta función tiene una periodicidad bien definida (obsérvese figura 1). A la mitad de este periodo se le denomina como longitud de coherencia, la cual está definida para generación de segundo armónico como:

$$l_{c} = \frac{\pi}{\Delta k} = \frac{\pi}{k^{(2\omega)} - 2k^{(\omega)}} = \frac{\lambda^{(\omega)}}{4[n^{(2\omega)} - n^{(\omega)}]},$$
(14)

donde $\lambda^{(\omega)}$ es la longitud de onda a la frecuencia fundamental.

II.3.1. EMPATAMIENTO DE FASES PARA EL PROCESO DE GENERACIÓN DEL SEGUNDO ARMÓNICO

En la sección anterior se encontró una expresión para $I^{(2\omega)}$, también se analizó que la generación de $I^{(2\omega)}$ es más eficiente cuando $\Delta k = 0$. El caso anterior se conoce como la condición de empatamiento de fases. Si $\Delta k = 0$ tenemos que:

$$k^{(2\omega)} = 2k^{(\omega)}.\tag{15}$$

Substituyendo la ec. (9) en la ec. (15) se obtiene:

$$n^{(2\omega)} = n^{(\omega)}.$$
(16)

Ahora procedemos a analizar el significado físico de que se cumpla la condición anterior y cuando se presenta un desempatamiento de fases ($\Delta k \neq 0$). En el caso en el que se cumple con la condición de empatamiento de fases, los trenes de onda generados en distintas porciones del material están en fase, por lo tanto, los trenes de onda generados en distintas porciones del medio interfieren constructivamente, dando lugar a que la contribuciones de las distintas regiones a $I^{(2\omega)}$ sean aditivas, como se esquematiza en la parte superior de la figura 2. En el caso de desempatamiento de fases, los trenes generados en distintas porciones del material no están en fase por lo que éstos interfieren destructivamente, por lo tanto, las contribuciones de las distintas regiones a $I^{(2\omega)}$ no son todas aditivas. Lo anterior se esquematiza en la parte inferior de la figura 2.

Empatamiento de fases: $n(\omega) = n(2\omega)$ Suma de las dos contribuciones

Las ondas generadas en distintas regiones del cristal están en fase.

Desempatamiento de fases: $n(\omega) \neq n(2\omega)$



Las ondas generadas en distintas regiones del cristal NO están en fase.

Figura 2. Interpretación física del empatamiento y desempatamiento de fases.

Si la onda fundamental y la onda generada tienen el mismo estado de polarización, Δk siempre es distinta de cero, ya que el índice de refracción es función de la frecuencia (fenómeno de dispersión), así que $n^{(\omega)} \neq n^{(2\omega)}$. Sin embargo, si las ondas tienen polarizaciones distintas en un material birrefringente es posible conseguir que $\Delta k = 0$, ya que el índice de refracción depende del estado de polarización.

Un rayo ordinario es aquel que está polarizado perpendicular al plano que incluye al eje óptico y al vector de propagación, un rayo extraordinario es aquel que está polarizado en el mismo plano que el vector de propagación y el eje óptico. Los índices de refracción n_o y n_e corresponden a los índices de refracción del rayo ordinario y extraordinario, respectivamente. A continuación, a manera de ejemplo, presentamos la gráfica del comportamiento de los índices de refracción ordinario y extraordinario del niobato de litio con respecto a la longitud de onda, a una temperatura de 100⁰ C.



Figura 3. Gráfica de dispersión para el niobato de litio a 100° C.

En la figura 3 se observa que en este caso particular es posible que se cumpla la condición $n^{(\omega)} = n^{(2\omega)}$ (línea punteada), si se elige que la onda fundamental tenga polarización ordinaria y que la onda generada tenga polarización extraordinaria, y si la longitud de onda de bombeo es igual a 1020 µm. Además, de la gráfica anterior se observa que para

que se cumpla $n^{(2\omega)} = n^{(\omega)}$, no se puede hacer una selección arbitraria de la longitud de onda de bombeo; solamente para un único valor de λ_F , el valor del índice n_o es igual al valor del índice n_e a la longitud de onda $\lambda_{F/2}$.

II.3.2. CUASI EMPATAMIENTO DE FASES PARA EL PROCESO DE GENERACIÓN DEL SEGUNDO ARMÓNICO

Como se ha mencionado en la generación de segundo armónico, una onda a la frecuencia ω genera una onda con frecuencia 2ω , con índices de refracción $n^{(\omega)}$ y $n^{(2\omega)}$, respectivamente. Como los índices de refracción son diferentes (debido al fenómeno de dispersión), una de las ondas se retrasa con respecto a la otra conforme se propagan a través del material; este retraso da origen a un desfasamiento entre las ondas de 2ω generadas en diferentes partes del cristal, ya que la fase de las ondas generadas depende de la fase de la onda de bombeo. Se puede probar que las ondas generadas en regiones que se encuentran separadas a una distancia de I_c entre sí están desfasadas en exactamente 180⁰, por lo cual interfieren destructivamente, de ahí el nombre de longitud de coherencia. Es está interferencia la que lugar a la oscilación del segundo armónico con la distancia de interacción.

En el análisis anterior hemos supuesto tácitamente que el medio no lineal es homogéneo, es decir, que la no-linealidad es constante a través del medio. Sin embargo, es posible modular tanto la magnitud, como el signo de la no-linealidad, como se verá más adelante. Supongamos que el signo de la no-linealidad se cambiara cada longitud de coherencia. Este cambio de signo introduciría una fase adicional de 180⁰ a las ondas generadas, que aunados a la fase de 180⁰ discutido en el párrafo anterior, provocaría una interferencia constructiva en vez de destructiva entre las ondas. De está manera, la intensidad de la onda generada no oscila, sino que crece monotónicamente, como se muestra en la figura 4. A esta técnica se le conoce como cuasi empatamiento de fases. Los detalles de esta técnica se presentan a continuación.



Figura4. Idea básica del cuasi empatamiento de fases.

Si se supone un medio que cambia de signo (mas no en magnitud) cada longitud de coherencia, a través de todo el cristal como se muestra en la figura 5, se produce una mo-

dulación periódica del coeficiente óptico no lineal. Para un medio con estas características la ec. (11) sigue siendo válida, excepto que $d^{(2)}$ se tiene que reemplazar por $d^{(2)}(z)$, dada por:

$$d^{(2)}(z) = \begin{cases} \left| d^{(2)} \right| \text{ para } 2jl_c < z < (2j+1)l_c \\ -\left| d^{(2)} \right| \text{ para } (2j+1)l_c < z < 2(j+1)l_c \end{cases},$$
(17)

donde j es un número entero.



Figura 5. Alternancia del signo de $d^{(2)}$ a través del medio no lineal.

Si en la ec. (11) se substituye la ec. (17) se obtiene:

$$\int_{E^{(2\omega)}(0)}^{E^{(2\omega)}(z)} dE^{(2\omega)}(z) = \Gamma I^{(\omega)} \sum_{j=1}^{N} \int_{z_{j-1}}^{z_j} (-1)^j \left| d^{(2)} \right| e^{-i\Delta kz} dz , \qquad (18)$$

donde $z_j = j l_c$.

Si se integra la ec. (18) considerando $E^{(2\omega)}(0) = 0$ se tiene:

$$E^{(2\omega)}(z) = \Gamma I^{(\omega)} \Big| d^{(2)} \Big| \sum_{j=1}^{N} (-1)^{j} \left[\frac{e^{-i\Delta k z_{j}} - e^{-i\Delta k z_{j-1}}}{-i\Delta k} \right],$$
(19)

Al introducir los valores respectivos de z_j y z_{j-1} en la ecuación anterior se obtiene:

$$E^{(2\omega)}(z) = \Gamma I^{(\omega)} \left| d^{(2)} \right| \sum_{j=1}^{N} (-1)^{j} e^{-i\Delta k j l_{c}} e^{i \frac{\Delta k l_{c}}{2}} \left[\frac{e^{-i \frac{\Delta k l_{c}}{2}} - e^{+i \frac{\Delta k l_{c}}{2}}}{-i\Delta k} \right].$$
(20)

Utilizando la identidad de Euler para las exponenciales en el término entre corchetes de la ec. (20) y como por definición $\Delta k = \frac{\pi}{l_c}$, se obtiene:

$$E^{(2\omega)}(z) = i \Gamma I^{(\omega)} \Big| d^{(2)} \Big| \left(\frac{2}{\pi}\right) l_c \sum_{j=1}^{N} (-1)^j e^{-i\pi j} = i \Gamma I^{(\omega)} \Big| d^{(2)} \Big| \left(\frac{2}{\pi}\right) l_c N.$$
(21)

Si la en la ec. (21) se utiliza el hecho de que la longitud del cristal $l = Nl_c$, se puede obtener una relación proporcional a la intensidad de segundo armónico dada por:

$$I^{(2\omega)} = A^2 [I^{(\omega)}]^2 \left| d^{(2)} \right|^2 \left(\frac{2}{\pi} \right)^2 l^2.$$
(22)
Al comparar la ec. (22) con la ec. (13) con $\Delta k = 0$ (empatamiento de fases), se observa que la intensidad del segundo armónico es exactamente igual salvo por un factor de $\frac{4}{\pi^2}$.

El resultado que se obtiene para $I^{(2\omega)}$ en la ec. (22) se calculó a partir de la ec. (18) para longitudes de interacción que son múltiplos enteros de la longitud de coherencia. La curva de la intensidad del segundo armónico con respecto a la distancia para cuasi empatamiento de fases de primer orden presenta una serie de rizos cuando la ec. (18) se evalúa punto a punto a lo largo de la longitud de interacción *l*. Este comportamiento se muestra en la figura 6. En esta figura se presenta una simulación numérica que compara la intensidad de la onda generada cuando está presente un desempatamiento de fases en un medio homogéneo, cuando se implementa la técnica de empatamiento de fases y cuando se implementa el cuasi empatamiento de fases. La línea punteada que se muestra en esta figura en caso del cuasi empatamiento de fases representa el valor promedio de la onda generada [ec. (22)].



Figura 6. Comparación entre desempatamiento de fases, empatamiento de fases y cuasi empatamiento de fases.

Hasta este momento hemos analizado el cuasi empatamiento de fases de primer orden en estructuras perfectas, en las cuales el signo de $d^{(2)}$ se alterna cada longitud de coherencia. Por aspectos que se relacionan a la fabricación de este tipo de estructuras, en ocasiones las estructuras se desvían de lo ideal, produciéndose un detrimento en la cantidad de $I^{(2\omega)}$ que se puede generar. Por ejemplo, uno de los tipos de imperfecciones que se pueden presentar se esquematiza en la figura 7. En esta figura se muestra una estructura en la que la longitud de las regiones con signos opuestos de la no-linealidad es distinta a l_e , la longitud de todas las regiones donde la no-linealidad es positiva está denominada como a y la longitud de las regiones donde la no-linealidad es negativa está denominada como b. Además, se cumple que $a + b = 2l_e$.



Figura 7. Alternancia del signo de la no linealidad, cuando $a ext{ y } b$ son diferentes a la longitud de coherencia.

El análisis detallado una estructura con este tipo de imperfección se presenta en el apéndice 2, en él se obtiene para la intensidad del segundo armónico lo siguiente:

$$I^{(2\omega)} = A^2 \left[I^{(\omega)} \right]^2 \left| d^{(2)} \right|^2 \left(\frac{2}{\pi} \right)^2 l^2 \operatorname{sen}^2(\pi\eta) , \qquad (23)$$

donde la cantidad η , conocida como ciclo "duty", está definida por:

$$\eta = \frac{a}{a+b} \,. \tag{24}$$

Se puede tener cuasi empatamiento de fases de órdenes mayores. Si en la ec. (18) la longitud donde cambia de signo la no-linealidad es un múltiplo impar de la longitud de coherencia. Un análisis similar al anterior nos da como resultado:

$$I^{(2\omega)} = A^2 [I^{(\omega)}]^2 \left| d^{(2)} \right|^2 \left(\frac{2}{m\pi} \right)^2 l^2,$$
(25)

donde la cantidad *m* se le conoce como el orden del cuasi empatamiento de fases.

II.4. PROCESO DE GENERACIÓN DE SUMA DE FRECUENCIAS

En la sección II.3 se habló del proceso de generación de segundo armónico, a continuación analizaremos el proceso óptico no lineal de suma de frecuencias. En este proceso dos ondas a las frecuencias ω_1 y ω_2 que inciden en un medio no lineal generan una onda con frecuencia ω_3 , donde se cumple que $\omega_3 = \omega_2 + \omega_1$.

Para describir este fenómeno se emplea el sistema de ecs. (6), que reescribimos aquí

$$\frac{dE_{1}(z)}{dz} = i \frac{\omega_{1}}{cn_{1}} d^{(2)} E_{2}^{*} E_{3} e^{i\Delta kz}
\frac{dE_{2}(z)}{dz} = i \frac{\omega_{2}}{cn_{2}} d^{(2)} E_{1}^{*} E_{3} e^{i\Delta kz} ,$$

$$\frac{dE_{3}(z)}{dz} = i \frac{\omega_{3}}{cn_{3}} d^{(2)} E_{1} E_{2} e^{-i\Delta kz}
\text{con } \omega_{3} = \omega_{2} + \omega_{1}$$
(26)

donde $\Delta k = k_3 - k_2 - k_1$.

Para resolver el sistema de ecuaciones anteriores suponemos que estamos en el régimen de pequeña señal, es decir, $E_1(z) \approx E_1(0)$ y $E_2(z) \approx E_2(0)$. De aquí que del sistema de ecuaciones anteriores sólo es necesario la última dada por:

$$\frac{dE_3(z)}{dz} = i \frac{\omega_3}{cn_3} d^{(2)} E_1 E_2 e^{-i\Delta kz} .$$
(27)

Si se integra la ec. (27) para un cristal de longitud l, y además se considera la condición $E_3(0) = 0$, se obtiene:

$$E_{3}(z) = i \frac{\omega_{3}}{cn_{3}} d^{(2)} E_{1} E_{2} l \operatorname{sinc}(\frac{\Delta kl}{2}) e^{-i\frac{\Delta kl}{2}}.$$
(28)

Si en la ec. (28) se utiliza la expresión $|E_i|^2 = I_i \frac{2}{cn_i \varepsilon_0}$, se puede obtener una ex-

presión para I_3 dada por:

$$I_{3} = \frac{2\omega_{3}^{2}}{c^{3}n_{1}n_{2}n_{3}\varepsilon_{0}} \left[d^{(2)} \right]^{2} I_{1}I_{2} l^{2} \operatorname{sinc}^{2}\left(\frac{\Delta kl}{2}\right).$$
⁽²⁹⁾

Si se compara la expresión anterior con la expresión de la intensidad de segundo armónico [ec. (13)] se observa que son similares. Como en el caso de segundo armónico, para que se presente el empatamiento de fases en el proceso de suma de frecuencias se debe cumplir que $\Delta k = 0$. Lo anterior implica que:

$$k_3 - k_2 - k_1 = 0. ag{30}$$

Si en la ec. (30) se substituye $k_i = \frac{\omega_i}{c} n_i$, la ecuación anterior se puede reexpresar

como:

$$\frac{n_3}{\lambda_3} = \frac{n_2}{\lambda_2} + \frac{n_1}{\lambda_1} \,. \tag{31}$$

II.4.1. CUASI EMPATAMIENTO DE FASES PARA EL PROCESO DE GENERACIÓN DE SUMA DE FRECUENCIAS

En la sección II.3.2. se analizó la técnica de cuasi empatamiento de fases para el fenómeno de segundo armónico. El tratamiento para describir los fenómenos de suma y diferencia de frecuencias (Fejer *et al.* 1992) cuando se considera baja eficiencia de conversión, desenfocamiento, bombeo con onda continua o interacción con pulsos largos, además, que la onda óptica fundamental y los armónicos generados no presentan pérdidas al interactuar con el medio no lineal, es básicamente el mismo que el del fenómeno se segundo armónico. Para realizar el análisis de cuasi empatamiento de fases en el fenómeno de suma de frecuencias, se considera que $d^{(2)}$ se somete a una modulación espacial de la forma descrita por la ec. (17); al substituir el valor de $d^{(2)}(z)$ de la ec. (17) en la ec. (27) y haciendo un desarrollo similar al que se realizó en el caso de cuasi empatamiento de fases de primer orden para generación se segundo armónico se obtiene:

$$I_{3} = \frac{2\omega_{3}^{2}}{c^{3}n_{1}n_{2}n_{3}\varepsilon_{0}} \left[d^{(2)}\right]^{2} I_{1}I_{2}\left(\frac{2}{\pi}\right)^{2}l^{2} .$$
(32)

Para cuasi empatamiento de fases de primer orden se cumple que $\Delta k = \frac{\pi}{l_c}$. Esto significa que:

$$k_3 - k_2 - k_1 = \frac{\pi}{l_c} \,. \tag{33}$$

La ecuación anterior se puede escribir como:

$$k_3 - k_2 - k_1 - \frac{2\pi}{\Lambda} = 0 , \qquad (34)$$

donde Λ se conoce como el periodo de modulación y representa el doble de la longitud de coherencia. Como esta cantidad no es una propiedad intrínseca del material, este parámetro lo puede uno ajustar para que se presente una interacción óptica no lineal que sea de nues-

tro interés, esto se puede hacer dentro de todo el intervalo de transparencia del material. Si se substituye la ec. (9) en la ec. (34) se obtiene:

$$\frac{n_3}{\lambda_3} - \frac{n_2}{\lambda_2} - \frac{n_1}{\lambda_1} - \frac{1}{\Lambda} = 0.$$
(35)

Existe un fenómeno que se denomina fluorescencia paramétrica (Yariv, 1989); en este fenómeno una onda a la frecuencia ω_3 al incidir en el medio óptico no lineal se descompone en dos ondas con frecuencias ω_1 y ω_2 . El origen de este fenómeno es cuántico, por razones de espacio no se presenta en este trabajo. En este fenómeno se cumple la siguiente relación:

$$\omega_3 = \omega_2 + \omega_1. \tag{36}$$

La ecuación anterior se puede escribir como:

$$\frac{1}{\lambda_3} = \frac{1}{\lambda_2} + \frac{1}{\lambda_1} \,. \tag{37}$$

La ec. (35) se puede demostrar que sigue siendo válida para este fenómeno.

II.5. INTERACCIÓN CON EL COEFICIENTE ÓPTICO NO LINEAL MAYOR EN NIOBATO DE LITIO

En las secciones anteriores se ha manejado al coeficiente óptico no lineal como una cantidad escalar, pero en el caso más general es un tensor de 27 elementos y este tensor por cuestiones de simetría se puede reducir a un tensor de 18 elementos.

En el caso más general el coeficiente óptico no lineal se relaciona con las susceptibilidad no lineal de orden dos como:

$$d_{ijk}^{(2)} = \frac{1}{2} \chi_{ijk}^{(2)} , \qquad (38)$$

con i = 1,2,3; j = 1,2,3 y k = 1,2,3.

Si se considera que la absorción es poca se cumple que:

$$\chi_{ijk}^{(2)} = \chi_{ikj}^{(2)} \,, \tag{39}$$

De la ec. (39) se observa que los dos últimos índices se pueden permutar, de aquí que en la literatura es frecuente encontrar la notación conocida como contracción de índices. En esta notación se introduce una matriz d_{il} , en la cual se contraen los dos últimos índices del tensor del coeficiente óptico no lineal, de la siguiente manera: l=1 cuando j = k = l, l = 2 cuando j = k = y, l = 3 cuando j = k = z, l = 4 cuando j = y y k = z, l = 5 cuando j = x y k = z, l = 6 cuando j = x y k = y.

En el caso del niobato de litio que es un cristal de la clase 3m presenta únicamente tres valores independientes del coeficiente óptico no lineal diferentes de cero; estos valores para $\lambda = 1.064 \ \mu m$ (Myers *et al.* 1995) son:

$$|d_{22}| = |d_{21}| = |d_{16}| = 2.1 \text{ pm/V}$$

$$|d_{31}| = |d_{32}| = |d_{21}| = |d_{15}| = 4.3 \text{ pm/V} .$$

$$|d_{33}| = 27 \text{ pm/V}$$
(40)

Para el niobato de litio la expresión para la polarización (Boyd, 1992), si $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ es:

$$\begin{bmatrix} P_{x}(\omega_{3}) \\ P_{y}(\omega_{3}) \\ P_{z}(\omega_{3}) \end{bmatrix} = 2\varepsilon_{0} \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{31} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{31} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \times \begin{bmatrix} E_{x}(\omega_{1})E_{x}(\omega_{2}) \\ E_{y}(\omega_{1})E_{z}(\omega_{2}) \\ E_{y}(\omega_{1})E_{z}(\omega_{2}) + E_{z}(\omega_{1})E_{y}(\omega_{2}) \\ E_{x}(\omega_{1})E_{z}(\omega_{2}) + E_{z}(\omega_{1})E_{x}(\omega_{2}) \\ E_{x}(\omega_{1})E_{y}(\omega_{2}) + E_{y}(\omega_{1})E_{x}(\omega_{2}) \\ E_{x}(\omega_{1})E_{y}(\omega_{2}) + E_{y}(\omega_{1})E_{x}(\omega_{2}) \end{bmatrix}.$$
(41)

Si se desarrolla la ec. (41) para $P_z(\omega_3)$, que es la componente de la polarización en la cual se incluye el coeficiente de mayor magnitud (d_{33}), se obtiene:

$$P_{z}(\omega_{3}) = 2\varepsilon_{0}[d_{31}E_{x}(\omega_{1})E_{x}(\omega_{2}) + d_{31}E_{y}(\omega_{1})E_{y}(\omega_{2}) + d_{33}E_{z}(\omega_{1})E_{z}(\omega_{2})].$$
(42)

Al analizar la ecuación anterior, vemos que si las tres ondas están polarizadas extraordinariamente, es decir, paralelas al eje óptico del cristal (eje z), se puede acceder al coeficiente d_{33} . A pesar del fenómeno de dispersión, una interacción óptica no lineal a través de d_{33} se puede presentar de forma eficiente, si se implementa la técnica de cuasi empatamiento de fases, ajustando adecuadamente el valor de Λ . La ganancia efectiva de la técnica de cuasi empatamiento de fases de primer orden con respecto a empatamiento de fases por birrefringencia es:

$$\left[\frac{2d_{33}}{\pi d_{31}}\right]^2 \approx 16.$$
(43)

III. MATERIALES FERROELÉCTRICOS

En el capítulo anterior se analizó la técnica de cuasi empatamiento de fases y se encontró que para que se pueda implementar esta técnica es necesario modular periódicamente el signo de la no-linealidad. En este capítulo se presentarán las características principales por las cuales en el niobato de litio se pueden producir estructuras en las que el signo de la no-linealidad cambia periódicamente.

III.1. POLARIZACIÓN ESPONTÁNEA, DOMINIOS FERROELÉCTRICOS Y CURVA DE HISTÉRESIS FERROELÉCTRICA

El niobato de litio es un cristal ferroeléctrico. Los cristales ferroeléctricos poseen un momento dipolar permanente (polarización espontánea P_s), inclusive en la ausencia de un campo eléctrico externo. La dirección de la polarización espontánea puede ser invertida mediante la aplicación de un campo eléctrico. El niobato de litio se comporta como un cristal ferroeléctrico bajo condiciones normales de temperatura y presión.

En un material ferroeléctrico a las regiones donde la polarización espontánea tiene la misma dirección se les denomina dominios ferroeléctricos. A la región que separa a dos dominios ferroeléctricos se le denomina como pared de dominios ferroeléctricos. En el caso del niobato de litio en condiciones normales de temperatura y presión, presenta únicamente dominios en dos direcciones antiparalelas entre sí. A este tipo de dominios ferroeléctricos se le denomina dominios de 180[°]. Cuando se aplica un campo eléctrico externo a un material ferroeléctrico, éste presenta un comportamiento no lineal de la polarización eléctrica con respecto al campo eléctrico aplicado, dentro de un cierto intervalo. Si se grafica el comportamiento de la polarización eléctrica con respecto al campo eléctrico aplicado se obtiene una curva de histéresis ferroeléctrica como la de la figura (8).



Figura 8. Curva de histéresis ferroeléctrica.

De la gráfica anterior se puede observar que para E = 0, la polarización puede poseer dos valores, P_s o $-P_s$, representados por los puntos A y D de la curva. Para cambiar el valor de la polarización de $-P_s$ a P_s , es necesario aumentar el campo eléctrico hasta llegar al valor conocido como campo cohersivo, representado por E_c en la curva anterior. En este punto la dirección de la polarización empieza a cambiar de forma abrupta. Si se continúa aumentando E, la relación entre E y P presenta un comportamiento lineal, representado por el segmento de recta que une los puntos B y C de la curva de histéresis. De la misma manera, para cambiar la polarización de P_s a $-P_s$, es necesario aplicar un campo eléctrico negativo cuyo valor absoluto exceda ligeramente a E_c .

Una característica de algunos materiales ferroeléctricos, entre los que se incluye al niobato de litio, es que el tensor del coeficiente óptico no lineal es proporcional a la polarización espontánea (Didomenico y Wemple, 1969):

$$d_{ijk}^{(2)} \propto \beta_{ijk} P_S , \qquad (44)$$

donde β_{ijk} es el tensor del potencial de la polarización. De la ecuación anterior se observa que al cambiar de signo la polarización espontánea cambia el signo el coeficiente óptico no lineal. Si se utiliza la característica anterior, aunada al hecho de que se puede cambiar el signo de P_s por aplicación de campo eléctrico, se puede implementar la técnica de cuasi empatamiento de fases en el niobato de litio si se aplica selectivamente el campo eléctrico con el fin de obtener una inversión periódica de \mathbf{P}_s , y por lo tanto de $d^{(2)}$.

III.2. ESTRUCTURA DEL NIOBATO DE LITIO

En la sección anterior se describieron algunas de las características de los cristales ferroeléctricos. A continuación se hará una descripción breve de la estructura del niobato de litio para explicar algunas de sus propiedades.

La estructura del niobato de litio (Houé y Townsend, 1995) se considera una estructura de perovskita distorsionada . Es un cristal de clase 3m y grupo espacial R3c con una densidad de $4.64 \frac{g}{cm^3}$ a 25° C. La celda unitaria se describe como romboédrica (dos fórmulas unitarias por celda) o hexagonal (seis fórmulas unitarias por celda).

La estructura de este cristal se muestra en la figura 9. Los iones de oxígeno están ordenados en forma de un paquete hexagonal en planos perpendiculares al eje óptico del cristal (eje c o eje z). Los planos consisten de tres iones de oxígeno en arreglo triangular, los cuales están separados por sitios intersticiales que pueden ser ocupados por iones de litio o niobio. La manera en que se distribuyen a lo largo del eje z a cualquier temperatura es: plano de oxígenos, *niobio*, plano de oxígenos, *vacancia*, plano de oxígenos, *litio*, plano de oxígenos, *niobio* y así sucesivamente.



Figura 9. Estructura del LiNb03.

Los radios atómicos de los iones de oxígeno, niobio y litio (Houé y Townsend, 1995) son:

$$R_{0^{-2}} = 1.40 \stackrel{0}{\text{A}}; R_{\text{Li}^+} = 0.068 \stackrel{0}{\text{A}} \text{ y } R_{\text{Nb}^{5+}} = 0.70 \stackrel{0}{\text{A}}.$$
 (45)

Dos planos de oxígenos adyacentes están separados por 2.31 Å. La distancia a la que se encuentran los iones metálicos con respecto a los planos de oxígenos adyacentes es la responsable de que el niobato de litio esté en un estado ferroeléctrico. En un estado ferroeléctrico la distancia que separa a un ion de niobio de uno de los planos de oxígenos adyacentes es de 1.413 Å, y la distancia con respecto al otro plano adyacente de oxígenos es de 0.897 Å. El ion de litio está separado de un plano de oxígenos por 0.714 Å y por el otro por 1.597 Å.

III.3. PARÁMETROS DE LA INVERSIÓN DE DOMINIOS FERROELÉCTRICOS POR APLICACIÓN DE CAMPO ELÉCTRICO

En la sección III.1 vimos que cuando E = 0 la polarización espontánea puede presentar dos direcciones. La dirección del momento dipolar permanente está determinada por la forma en que se encuentran distribuidos los iones metálicos en la estructura del niobato de litio. En la figura 10 se muestra la posición relativa que tienen los iones metálicos en la estructura del LiNbO₃ y la manera en que esto se manifiesta en la dirección de la polarización espontánea.



Figura 10. Dirección de la polarización espontánea.

La dirección de los dominios ferroeléctricos puede invertirse térmicamente. Este fenómeno se presenta a una temperatura aproximada de 1150 °C (Zernike y Midwinter, 1973). También se puede invertir por aplicación de campo eléctrico como se mencionó anteriormente. Para que se de este fenómeno en el LiNbO₃ es necesario aplicar un campo cohersivo de ~ 21 kV/mm (Myers *et al.* 1995). La inversión de dominios es permanente cuando el alto voltaje se aplica alrededor de unos 50 ms. Si al alto voltaje que se aplica al cristal permanece menos de este tiempo, una porción de los dominios invertidos retorna a su configuración inicial. Se ha encontrado que una vez que se ha realizado la inversión de dominios permanecen estables, inclusive a temperaturas que exceden los 800⁰ C (Myers *et al.* 1995).

En todos los ferroeléctricos la presencia del momento dipolar permanente genera una carga superficial, cuya densidad es $P_s \cdot \hat{n}$, donde \hat{n} es la normal a la superficie. Para invertir la orientación de P_s es necesario transferirle al ferroeléctrico una carga total Qpara compensar esta carga superficial presente. Esta carga está dada (Myers *et al.* 1995) por:

$$Q = 2P_{\rm s}A, \tag{46}$$

donde *A* es el área perpendicular a \mathbf{P}_s de los dominios que se han invertido. La magnitud de la polarización espontánea en el niobato de litio es $P_s = 71 \frac{\mu C}{cm^2}$ (Didomenico y Wemple, 1969).

III. 4. VISUALIZACIÓN DE DOMINIOS FERROELÉCTRICOS.

En secciones anteriores se presentó la técnica de inversión de dominios ferroeléctricos invertidos por aplicación de campo eléctrico. En esta sección revisaremos de forma breve algunos de los métodos que existen para caracterizar estructuras de este tipo. Algunos de estos métodos son destructivos; pero como se verá más adelante todos presentan algunas ventajas y desventajas. Entre un dominio y otro con polarización invertida no existe un cambio en el índice de refracción, de aquí que es imposible discernir dominios 180⁰ si se utiliza, por ejemplo, la técnica de microscopía de polarización. Sin embargo, en ocasiones se pueden originar estructuras visibles en las fronteras de estos dominios por efecto de estrés en las fronteras, o a través del efecto electroóptico originado en las fronteras de los dominios (M. Flörsheimer *et al*.1998).

El ataque químico selectivo es otra técnica que se ha utilizado extensivamente en la observación de dominios. Esta técnica aprovecha el hecho de que el ataque químico en la cara -c del cristal es mucho rápido que el que se produce en la cara +c del cristal (Barry *et al.* 1998), por lo tanto, la estructura química en la superficie de los dominios se transforma en una superficie topográfica. La principal desventaja de esta técnica es que es una técnica destructiva; además en el LiNbO₃ únicamente se puede utilizar en los ejes z y y, pero no en el eje x del cristal.

Otras técnicas que se utilizan para la observación de dominios son la microscopía de fuerza atómica (Lüthi *et al.*1996) y la microscopía de escaneo secundario de electrones (Rosenman *et al.* 1996). También se han empleado técnicas basadas en óptica no lineal como la microscopía de segundo armónico (M. Flörsheimer *et al.*1998) y la técnica de acoplamiento fotorrefractivo (MacCormack y Feinberg, 1996); esta técnica posee un resolución limitada; además, sólo se puede emplear en materiales fotorrefractivos.

III.5. ECUACIÓN DE DISPERSIÓN DE SELLMEIER EN NIOBATO DE LITIO

Hasta este momento hemos visto que es posible producir estructuras con dominios ferroeléctricos invertidos periódicamente por aplicación de campo eléctrico. En esta sección calcularemos el periodo de modulación A que es necesario implementar en el LiNbO₃ para el fenómeno de fluorescencia paramétrica. En este fenómeno una onda con frecuencia ω_3 que incide en el medio óptico no lineal hace que se emita espontáneamente radiación a las frecuencias ω_1 y ω_2 . Como se vio en el capítulo anterior, para que se lleve a cabo este fenómeno se tiene que cumplir que:

$$\frac{1}{\lambda_3} = \frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2} , \qquad (47)$$

donde λ_3 es la longitud de onda de bombeo, λ_1 es la longitud de onda de la señal y λ_2 es la longitud de onda de la acompañante, y

$$\frac{n_3}{\lambda_3} - \frac{n_2}{\lambda_2} - \frac{n_1}{\lambda_1} - \frac{1}{\Lambda} = 0, \qquad (48)$$

donde n_3 , n_2 y n_1 son los índices de refracción de la onda de bombeo, la acompañante y la señal, respectivamente. Como se comentó anteriormente, para que se pueda acceder a el coeficiente d_{33} es necesario que las ondas tengan polarización extraordinaria. Para calcular cada uno de los índices de refracción extraordinarios de la ec. (48) se utiliza la relación de dispersión de Sellmeier (Jundt D. 1997) dada por:

$$n_e^2 = a_1 + b_1 f + \frac{a_2 + b_2 f}{\lambda^2 - (a_3 + b_3 f)^2} + \frac{a_4 + b_4 f}{\lambda^2 - a_5^2} - a_6 \lambda^2 \quad , \tag{49}$$

donde λ es la longitud de onda en micras, $f = (T - 24.5^{\circ} C)(T + 570.82)$, T es la temperatura en grados Celcius, $a_1 = 5.35583$, $a_2 = 0.100473$, $a_3 = 0.20692$, $a_4 = 100$, $a_6 = 1.5334 \times 10^{-2}$, $b_1 = 4.629 \times 10^{-7}$, $b_2 = 3.862 \times 10^{-8}$, $b_3 = -0.89 \times 10^{-8}$, y $b_4 = 2.657 \times 10^{-5}$.

Si se combinan las ecuaciones (47), (48) y (49), con $\lambda_3 = 1.064 \,\mu\text{m}$, se obtiene una gráfica de sintonización de la longitud de onda acompañante/señal con respecto al periodo de la rejilla A.



Figura 11. Curva de sintonización para el niobato de litio, $\lambda_3 = 1.064 \,\mu\text{m}$.

En la figura 11 se muestra la curva de sintonización para dos diferentes temperaturas; en ésta se observa que para un periodo de la rejilla dado modificando la temperatura se obtiene radiación a diferentes longitudes de onda, tanto para la señal como para la acompañante.

IV. MÉTODOS DE FABRICACIÓN Y RESULTADOS

En este capítulo presentamos los métodos con los cuales hemos obtenido estructuras con dominios ferroeléctricos invertidos periódicamente en el LiNbO₃. El capítulo está dividido en tres secciones; en éstas se presentan los aspectos principales que han sido cubiertos en la fabricación de este tipo de estructuras.

IV.1. CORTE, ESMERILADO Y PULIDO DE OBLEAS DE NIOBATO DE LITIO

Con el objetivo de elaborar estructuras con dominios ferroeléctricos invertidos periódicamente en LiNbO₃ utilizables ópticamente, es indispensable que las caras de los cristales estén pulidas. En esta sección presentamos una técnica para el pulido de las piezas de LiNbO₃, además de una técnica para el corte con dimensiones predeterminadas de piezas de LiNbO₃. La técnica para el pulido de los cristales se desarrolló en el Taller de Óptica y Pulido de esta institución. La técnica es básicamente una extensión de la técnica de pulido convencional que existe para el vidrio con algunas modificaciones.

En nuestro caso particular los cristales de niobato de litio que se utilizaron para fabricar las estructuras de dominios ferroeléctricos invertidos fueron obleas monodominio de LiNbO₃ de 0.5 mm de espesor y 3 pulgadas de diámetro. El eje c del cristal es paralelo a la normal a las superficies de 3 pulgadas de diámetro. A continuación presentamos la técnica para el corte de las obleas de LiNbO₃. Para proteger las superficies de rayaduras al momento del corte se les deposita una capa de resina en ambas caras. Las obleas debido a su espesor son sumamente frágiles, entonces para tener un arreglo más rígido al momento de realizar el corte, la oblea de LiNbO₃ se coloca entre obleas de vidrio de ventana, adheridas a éstas por medio de cera, como se muestra en la figura 12.



Figura 12. Preparación para el corte de las obleas de LiNbO₃.

Para cortar el arreglo anterior se utiliza un disco de diamante de 1 mm de espesor que está girando permanentemente (figura 13) y en una base construida ex profeso se montan las piezas a uno de los extremos de un brazo de palanca, éste se puede mover en el eje x y en el eje y, en el otro extremo del brazo se coloca un sistema de pesos (sobre el eje z), con los cuales se puede regular la presión que ejerce el disco sobre el conjunto de piezas.



Figura 13. Sistema de corte empleado.

Las piezas se cortaron en paralelepípedos con dos caras paralelas al eje x del cristal y con las otras dos caras paralelas al eje y. Para remover las espurias del corte, el paralelepípedo se esmerila con un abrasivo de carburo de silicio.

El proceso del pulido es un proceso netamente mecánico, de aquí que los paralelepípedos cortados se sujetan a una base rígida. Ésta consiste de un cilindro de aluminio sujeta con cera a un anillo de vidrio, como se muestra en el inciso (a) de la figura 14. Esta base se coloca en una superficie plana, en el interior se coloca el paralelepípedo, para sujetarlo a la base se vierte primero cera y posteriormente yeso, obteniéndose el arreglo rígido inciso (b) de la figura 14.



Figura 14. Sujeción de piezas para el pulido del niobato de litio.

El proceso de esmerilado es un proceso previo al pulido. En el esmerilado se utilizan abrasivos de carburo de silicio de un tamaño medio de partículas específicas, a éstos se les agrega agua destilada para formar una suspensión. En este proceso la parte inferior de la base se pone en contacto con un disco metálico plano giratorio y éste se baña en periodos regulares con la suspensión abrasiva. El esmerilado se realiza en diferentes etapas, las cuales consisten en utilizar un abrasivo con determinado tamaño promedio de partículas y este tamaño medio de partículas decrece en cada etapa. Además, la velocidad a la que gira el disco metálico se va reduciendo dependiendo de la etapa del proceso de esmerilado. El tamaño promedio de los esmeriles empleados es de 9, 5, y 3 μ m. La inspección de las superficies se realiza por medio de un microscopio óptico convencional. Al inspeccionar las muestras es necesario observar que el esmerilado sea regular, es decir, que se vean poros del mismo tamaño en la superficie del cristal y que la superficie esté libre de rayaduras.

Para la etapa del pulido se utilizan óxidos de cerio, los cuales tienen un tamaño de partículas promedio de décimas de micras. En esta etapa se emplea un disco giratorio de brea y se va disminuyendo de forma gradual el tamaño de los abrasivos. En nuestro caso particular empleamos tres pulidores con tamaños de partículas promedio de 0.7, 0.3 y 0.05 μm. La inspección se realiza por medio de un microscopio óptico.

Para constatar el pulido la luz de un láser Helio-Neón ($\lambda = 632.5 \text{ nm}$) se hizo incidir en el cristal. No se observó degradación de la calidad del haz ni esparcimiento a la salida del cristal. Con el procedimiento que utilizamos hemos obtenido buenos resultados.

IV.2. TÉCNICA DE FABRICACIÓN DE ESTRUCTURAS CON DOMINIOS FERROELÉCTRICOS INVERTIDOS PERIÓDICAMENTE EN LINBO₃ POR APLICACIÓN DE CAMPO ELÉCTRICO

En esta sección presentaremos la técnica con la cual invertimos los dominios ferroeléctricos periódicamente en el niobato de litio. Cuando se utiliza un láser Nd:YAG ($\lambda = 1.064 \mu m$) para producir interacciones en el infrarrojo, la periodicidad debe estar comprendida entre 25 ~ 30 µm, como se puede apreciar en la figura 11. Para la inversión periódica de dominios ferroeléctricos es necesario aplicar selectivamente un campo eléctrico; este campo lo aplicarnos en electrodos colocados periódicamente en la superficie del cristal. En nuestro caso particular empleamos electrodos líquidos (cloruro de litio disuelto en agua destilada) para hacer el contacto eléctrico en la superficie del cristal. Para impedir que la solución esté en contacto directo con la superficie del cristal en las regiones que no se quieren polarizar se utilizó fotorresina, porque en la fotorresina puede imprimirse un patrón periódico de electrodos, utilizando una mascarilla especial y grabando esta mascarilla en la fotorresina por exposición a radiación. Los detalles de la técnica se describirán más adelante. En lo que resta de esta sección se presentarán los procedimientos con los cuales se logró implementar un patrón de electrodos en la superficie del cristal y el método con el cual se aplicó el campo eléctrico selectivo.

IV.2.1. FABRICACIÓN DE ELECTRODOS CON UNA PERIODICIDAD PRECISA EN NIOBATO DE LITIO

A continuación presentamos la técnica para la fabricación de electrodos; en esta técnica se utilizó fotorresina SHIPLEY S1813. La fotorresina se deposita en los substratos de niobato de litio empleando la técnica de "spin-coating" a una velocidad de giro de ~1500 rpm. Los espesores que se han obtenido con esta técnica han oscilado entre 1.75 a 2.5 μ m; éstos se han medido a través de un perfilómetro. Para rigidizar la fotorresina se utiliza un horno de convección. Las muestras se han horneado durante 40 minutos a 75° C, posteriormente se ha apagado el horno y se han dejado reposar las muestras dentro del horno no por un lapso de 8 horas.

Una vez realizado el depósito de fotorresina se imprime un patrón de escalones con el arreglo experimental de la figura 15. El arreglo consiste de un láser de argón ($\lambda = 458 \text{ nm}$), un filtro espacial, una lente convergente y una rejilla de Ronchi.



Figura 15. Grabado de rejilla en fotorresina por contacto.

La mascarilla comercial que se utilizó fue una rejilla de Ronchi de 40 líneas por milímetro, marca Edmund Scientific, la cual se muestra en la figura 16.



Figura 16. Rejilla comercial con periodo de 25 µm.

Para el revelado de la fotorresina se usó el revelador Microposist Developer MF-319 de Shipley. En este proceso las muestras se sumergen durante dos minutos en revelador y posteriormente para detener el proceso de revelado se sumergen en agua durante un minuto.

A continuación se presentan dos imágenes de dos rejillas de fotorresina diferentes grabadas en el niobato de litio. En el inciso *a* de la figura 17 se utilizó un objetivo de mi-

croscopio de 45X, y en el inciso b de la figura 17 se utilizó un objetivo de microscopio de 60X.



Figura 17. Imágenes de fotorresina en niobato de litio.

La mancha que aparece en la imagen del inciso *a* de figura 17 es producto de un defecto en el objetivo de microscopio utilizado.

En la figura 18 se presenta una medición hecha con el perfilómetro de una muestra con fotorresina, en la cual se grabó un patrón de escalones. La resolución de las medidas hechas con el perfilómetro están limitadas por el tamaño de la punta, debido a esto en la figura no se definen adecuadamente los bordes del patrón grabado en la fotorresina.



Figura18. Escalones de fotorresina medidos con perfilómetro.

IV. 2.2. INVERSIÓN DE DOMINIOS FERROELÉCTRICOS PERIÓDICAMENTE

A continuación presentamos la técnica de aplicación de campo eléctrico selectivo en el niobato de litio. Antes de realizar la inversión de dominios ferroeléctricos se hizo una prueba para caracterizar la fuente de voltaje que utilizamos (BERTAN modelo 603C). Esta fuente tiene un voltaje nominal máximo de 30KV y una corriente nominal máxima de 400 μ A. El alto voltaje de esta fuente se controla a través de una señal de voltaje en el intervalo de 0 a 5 volts, siendo el alto voltaje de salida proporcional a la señal de entrada. Para caracterizar la respuesta de la fuente de alto voltaje con respecto a la señal de entrada se utilizó una punta de prueba de alto voltaje. En la figura 19 se muestran los resultados experrimentales obtenidos. La línea continua en la figura es un ajuste teórico a los datos experimentales. Se encontró que $V_s = (6.015 \times 10^3 \times V_{en}) + 15.1$, donde V_s es el voltaje de salida de la fuente y V_{en} es el voltaje de control de la fuente. Cada parámetro tiene una incertidumbre de ±5 volts.



Figura 19. Comportamiento de la fuente de alto voltaje con respecto a un voltaje de control.

El campo cohersivo a temperatura ambiente del niobato de litio es de ~ 21 kV/mm (Myers *et al.* 1995). Las obleas que se han utilizado tienen medio milímetro de espesor, por lo tanto, para realizar la inversión de dominios es necesario aplicar un voltaje ~ 10.5 kV. Esto implica la necesidad de un arreglo especial para la aplicación del alto voltaje puesto que la resistencia dieléctrica del aire a una atmósfera es de 3 kV/mm (Reitz *et al.* 1996), es decir, el voltaje que hay que aplicar es ~7 veces superior a lo que se puede aplicar sin riesgo de ruptura dieléctrica del aire.

En experimentos previos a la inversión de dominios periódicos se invirtieron dominios ferroeléctricos usando electrodos metálicos y electrodos líquidos. Para invertir los dominios con electrodos metálicos se pintaron unos electrodos con pintura de plata en una muestra de niobato de litio, el área de los electrodos fue ~8 mm². Al aplicar un voltaje de ~ 10.5 KV obtuvimos una inversión de dominios ferroeléctricos. Para observar los dominios ferroeléctricos invertidos se utilizó ataque químico, las muestras se sumergieron durante un lapso de 30 minutos en ácido fluorídrico (HF) sin diluir. Los resultados se muestran el figura 20.



Figura 20. Estructura de dominios en niobato de litio en la superficie de la oblea: (*a*) Imagen tomada con un objetivo de microscopio de 10X, (*b*) Imagen tomada con un objetivo de microscopio de 45X.

En la figura 21 se muestran resultados de la inversión de dominios ferroeléctricos usando electrodos líquidos.



Figura 21. Inversión de dominios ferroeléctricos usando electrodos líquidos.

La diferencia de contraste entre la fotografía del inciso (*a*) y la fotografía del inciso (*b*) se debe primordialmente a que el cristal de la primera fotografía estuvo sumergido en el ácido durante 30 minutos y el otro cristal estuvo sumergido en HF durante 1 hora.

En las anteriores fotografías (figura 20 y 21) encontramos una característica en común y es que al realizar la inversión de dominios se observó la presencia de dominios con forma hexagonal. En el capítulo III se mencionó que la estructura del LiNbO₃ está compuesta de iones de oxígeno que están ordenados en forma de paquete hexagonal, por lo tanto suponemos que la forma en que se invirtieron estos dominios es una consecuencia de la estructura del LiNbO₃. Si comparamos la figura 20 con la figura 21 se aprecian diferencias en la distribución de los dominios y que las fronteras de los dominios están más definidas cuando se utilizaron electrodos líquidos. De esta forma hemos corroborado que la naturaleza de los electrodos tiene un efecto en la forma en que se invierten los dominios (Myers *et al.* 1995). Para la inversión de dominios periódicos utilizando electrodos líquidos se utilizó el arreglo experimental que se muestra en la figura 22. El arreglo consiste de una computadora Macintosh IIvx con la cual se controlan vía GPIB un generador de funciones Hewlett Packard modelo 33120 y un osciloscopio de 100 Mhz; el generador de funciones se utiliza para suministrar la señal externa de voltaje para controlar el alto voltaje de la fuente BERTAN modelo 603C; el osciloscopio se utiliza para monitorear el alto voltaje y la corriente que suministra la fuente de alto voltaje. La fuente de alto voltaje cuenta con un monitor externo al circuito de alto voltaje para la corriente y para el alto voltaje que ésta suministra.



Figura 22. Arreglo experimental para la inversión de dominios ferroeléctricos invertidos periódicamente.

En la figura 23 se muestra la celda que se ha utilizado para aplicar el alto voltaje. El líquido electrolítico que hemos empleado con buenos resultados es una solución saturada de cloruro de litio (LiCl) disuelto en agua; en esta solución se han pesado 7 partes de cloruro de litio por cada 10 partes de agua destilada. En nuestro caso particular hemos empleado con buenos resultados "o-rings" de uso común y corriente.



Figura 23. Celda para la aplicación de alto voltaje.

Un aspecto que se presentó en la inversión de dominios es que al aplicar el alto voltaje en la cara z + del cristal, el voltaje cohersivo que se obtuvo fue de ~10.5 KV, lo cual es consistente con el valor que se presenta en la literatura; pero cuando se aplicó el alto voltaje para invertir los dominios en la dirección contraria, es decir, aplicando el alto voltaje en la cara z – del cristal, el valor del voltaje cohersivo fue de ~ 8.4 KV. En la figura 24 se presentan las gráficas de las mediciones experimentales que muestran este comportamiento. En el inciso a de la figura se muestra la señal del alto voltaje aplicado en la cara z + del cristal; además se muestra la corriente que se le suministró al cristal durante la inversión de los dominios. En el inciso b de la figura se muestra la señal de alto voltaje aplicado a la muestra en la cara z - y la corriente que se le suministró al cristal. Se tiene conocimiento (Eason R. W., comunicación privada) de que el comportamiento señalado anteriormente se presenta porque al aplicar el campo eléctrico se forma, debido a la conductividad finita del cristal, un campo eléctrico remanente con una dirección que es opuesta a la dirección del campo aplicado, por lo que al invertir la dirección del campo eléctrico aplicado el campo eléctrico remanente se suma al campo aplicado, reduciendo así el voltaje necesario para obtener la inversión de la polarización espontánea. Este campo
remanente desaparece después de cierto tiempo, que es del orden de horas, de aquí que para reinvertir los dominios después de este tiempo es necesario aplicar un voltaje de ~ 10.5 KV.



Figura 24. Inversión de dominios: (a) Aplicación del alto voltaje en la cara z +, (b) Aplicación del alto voltaje en la cara z -.

Una cantidad que se intentó determinar fue el valor de la polarización espontánea (P_s) utilizando la ec. (46). Para esto se midió la corriente y se integró con respecto al tiempo. Si se conoce el área de los electrodos y la carga total suministrada por la fuente, se puede inferir la magnitud de P_s . El valor que se obtuvo discrepó con el valor reportado en la literatura, siempre siendo mayor por un valor aproximadamente de 2. Esto se debe principalmente a que el monitor de corriente externo de la fuente de alto voltaje no ha sido confiable debido a su tiempo de respuesta.

Para el desarrollo de las estructuras con dominios ferroeléctricos invertidos se programó el generador de funciones para variar la forma de la señal de alto voltaje. En la figura 25 se muestran dos tipos de pulsos que se utilizaron. El pulso del inciso *b* de la figura nos ha dado mejores resultados. Las frecuencias de los pulsos que se han utilizado están comprendidas en el intervalo de 10 mHz a 200 mHz. La frecuencia de 120 mHz es la que mejor nos ha funcionado.



Figura 25. Señales de alto voltaje utilizadas en la inversión de dominios.

En la figura 26 se presentan dos fotografías de dos cristales con estructuras de dominios ferroeléctricos invertidos periódicamente en LiNbO₃. En la fabricación de estas muestras se han colocado los escalones de fotorresina en la cara z + (inciso a de la figura),

60

y en la cara z – (inciso *b* de la figura) obteniéndose resultados semejantes. El área aproximada de dominios ferroeléctricos invertidos que se ha obtenido de forma estándar es ~8mm². Las fotografías son de las caras que están perpendiculares al eje *c*. La mancha central que aparece invariablemente en todas las fotografías fue producto de un defecto en el objetivo de microscopio. Las muestras se atacaron químicamente para que los dominios fueran visibles.



(a)

(*b*)

Figura 26. Estructuras de dominios ferroeléctricos invertidos con $\Lambda = 25 \mu \text{m}$: (a) Fotorresina en la cara z + , (b) Fotorresina en la cara z - .

En las pruebas iniciales corroboramos que se había logrado exitosamente la inversión de dominios periódicos observando las fronteras de los dominios, las cuales invariablemente terminaban en punta como se observa en la figura 27. Estas puntas, que forman un ángulo de 120° , reflejan la simetría del cristal.



Figura 27. Fronteras de dominios ferroeléctricos invertidos: (*a*) Fotografía con un objetivo de microscopio de 20X, (*b*) Fotografía con un objetivo de microscopio de 45X.

Se ha visto que es posible observar los dominios invertidos con polarizadores cruzados justo después de aplicar el alto voltaje. Esto se debe a que se produce un cambio en el índice de refracción en las fronteras de los dominios, debido principalmente a estrés en estas fronteras (Flörsheimer *et al.* 1998). En la figura 28 se muestran dos especímenes cuyas fotografías se tomaron con polarizadores cruzados, las superficies que se exhiben son perpendiculares al eje c.



Figura 28. Estructuras de dominios ferroeléctricos invertidas vistas entre polarizadores cruzados.

Para distender de forma significativa el estrés las muestras se calientan a 140^{0} C durante una hora aproximadamente, como se ha sugerido en la literatura (Myers *et al.* 1996). Después de calentar las muestras hemos observado una disminución muy significativa del estrés.

Una de las pruebas con las cuales verificamos la calidad de los dominios fue la comparación de la imagen obtenida de los dominios ferroeléctricos invertidos con la imagen de la rejilla que se empleó para su fabricación; la comparación se muestra en la figura 29. Al comparar ambas imágenes observamos que la periodicidad es muy semejante, pero el ancho de las franjas de la rejilla comercial difiere del ancho de los dominios ferroeléctricos invertidos. Una causa a la que le atribuimos este comportamiento es la falta de un control preciso de la corriente que fluye a través de la muestra, que nos permita calcular con exactitud el área de dominios que se invierte; además que se ha encontrado como regla que para periodos mayores a 10 μ m, los dominios crecen de ~3-4 μ m más anchos que el ancho de los escalones de fotorresina (Myers *et al.* 1995).



Figura 29. Comparación de la estructura de dominios con respecto a la mascarilla empleada para su fabricación, ambas fotografías se tomaron un objetivo de microscopio de 45X.

Con las muestras que se fabricaron se realizaron pruebas ópticas, la finalidad de estas pruebas era generar radiación en el infrarrojo medio. Si se observa la curva de sintonización para el LiNbO₃ a temperatura ambiente y bombeando con un láser Nd:YAG (véase figura 11), para un periodo de rejilla $\Lambda = 25 \,\mu\text{m}$, se espera encontrar dos longitudes de onda: $\lambda \sim 1.35 \,\mu\text{m}$ y $\lambda \sim 5.2 \,\mu\text{m}$. En nuestro caso particular intentamos detectar radiación a $\lambda = 1.35 \,\mu\text{m}$ por el intervalo de trabajo de los dispositivos empleados para la detección de la radiación generada. Para este fin se utilizó el arreglo experimental que se muestra en la figura 30. El arreglo consistió básicamente en un láser Nd:YAG, un polarizador que controla que el haz que incide sobre el cristal esté polarizado extraordinario, un filtro que sólo transmite a longitudes de onda superiores a $\lambda = 1100 \,\text{nm}$, dos lentes convergentes y un monocromador. Este arreglo se llegó a modificar, las modificaciones consistieron en utilizar un analizador de espectros como dispositivo de detección, en lugar del monocromador y el uso de un horno para calentar el cristal.



Figura 30. Arreglo óptico para caracterizar la estructura de dominios ferroeléctricos invertidos periódicamente.

En estos experimentos no detectamos en ninguno de los dos dispositivos la longitud de onda deseada. Uno de los aspectos que afectó en gran medida a que no se observara la radiación a la longitud de onda deseada es que el ciclo "duty" de los dominios (ecuación 24) está alejado del ideal que es $\eta = \frac{1}{2}$, esto provoca una disminución en de la eficiencia de conversión de la radiación generada (ecuación 23). Aunque no pudimos encontrar el valor preciso de η , se puede apreciar en la figura 29 que es mucho menor a $\frac{1}{2}$. Por otra parte el coeficiente de absorción para 5µm en el niobato de litio es de 0.94 cm⁻¹ (Jundt D. 1997), esto significa que si se llegara a generar radiación a $\lambda \sim 5.2$ µm se absorbería fuertemente por el material, esto repercutiría en la generación eficiente a $\lambda \sim 1.35$ µm. En la literatura hasta donde tenemos conocimiento no se ha presentado el fenómeno de fluorescencia paramétrica con $\Lambda = 25$ µm si se bombea con un láser Nd:YAG. Aunque no se pudo detectar la fluorescencia paramétrica, sí se observó un realce significativo de la generación del segundo armónico. Cuando el haz de bombeo incidía en una región del cristal monodominio y después el cristal se desplazaba haciendo incidir el haz en una región con dominios ferroeléctricos invertidos, la intensidad del segundo armónico aumentaba de forma significativa. En la figura 31 se muestra este comportamiento. Para visualizar mejor las curvas que aparecen en esta figura se ha empleado un factor de escala diferente para cada curva.



Figura 31. Comportamiento del segundo armónico, con regiones con dominios ferroeléctricos invertidos y una región con un solo dominio. Nótese que el factor de escala para las curvas es diferente.

En el experimento anterior se obtuvo que la intensidad del segundo armónico en la región de una de las estructuras con dominios ferroeléctricos invertidos periódicamente fue

66

aproximadamente 167 veces mayor que la intensidad del segundo armónico obtenida en una región del cristal con un solo dominio. A continuación haremos una comparación entre la intensidad del segundo armónico que se obtiene teóricamente para una estructura con dominios ferroeléctricos invertidos con un periodo Λ y la intensidad del segundo armónico para el desempatamiento de fases; para esto calculamos el cociente siguiente:

$$\frac{I_{\text{cef}}^{(2\omega)}}{I_{\text{desempatamiento}}^{(2\omega)}} = \frac{\operatorname{sinc}^{2}(\frac{\Delta k_{Q}l}{2})}{\operatorname{sinc}^{2}(\frac{\Delta kl}{2})},$$
(50)

donde $\Delta k_{Q} = \Delta k - \frac{2\pi}{\Lambda}$. Ahora procedemos a hacer el cálculo de la ec. (50), para esto calculamos el valor de Δk a temperatura ambiente con la ec. (14), además en nuestro caso particular $\Lambda = 25 \,\mu\text{m}$ y $l \approx 16 \,\text{mm}$, de aquí que $\frac{I_{\text{cef}}^{(2\omega)}}{I_{\text{desempatamiento}}^{(2\omega)}} \approx 1.88$. Como se puede obser-

var el resultado anterior diverge del resultado obtenido experimentalmente, a continuación discutiremos los aspectos a los que le atribuimos este comportamiento.

Para explicar el incremento del segundo armónico que se observó experimentalmente nos auxiliaremos de un tratamiento alternativo que se utiliza para explicar el fenómeno de cuasi empatamientode fases; en este tratamiento el efecto de cuasi empatamiento de fases se ve como una transformación Fourier (Fejer *et al.* 1992). En este tratamiento básicamente se considera a la no-linealidad como una función modulada periódicamente que se puede expresar como una serie de Fourier. Por tratarse de una estructura periódica a la estructura se le asocian m-ésimos vectores conocidos como vectores de la rejilla; estos son inversamente proporcionales al periodo de modulación (Λ). Se puede demostrar que en el caso más general la intensidad del segundo armónico está en función de todos los vectores de la rejilla asociados a la estructura, si la estructura periódica fuera perfecta el término que dominaría sería el vector de la rejilla m-ésimo, y en ese caso la intensidad del segundo armónico estaría dada por la ecuación (25).

En nuestro caso particular en las estructuras de dominios que se desarrollaron la longitud de los dominios presentaba fluctuaciones con respecto del valor ideal que debió ser de $12.5 \,\mu\text{m}$, en algunos casos estos fueron más anchos y en otros más angostos como se puede apreciar en la figura 29. Además aunado a esto no se determinó que distribución tenían exactamente los dominios a lo largo de la región del cristal que se modificó. De lo anterior es claro que las estructuras desarrolladas tenían imperfecciones, por lo tanto nosotros le atribuimos el aumento de la intensidad del segundo armónico observada experimentalmente a las contribuciones de diferentes periodos de la rejilla asociadas a las imperfecciones en la estructura.

IV.3. FABRICACIÓN DE REJILLAS CON PERIODICIDAD PRECISA

En esta sección presentaremos una técnica para la fabricación de rejillas en película holográfica con periodicidad precisa. Uno de nuestros objetivos fue evitar la dependencia del uso de mascarillas comerciales en la técnica descrita anteriormente, debido a que para

68

cada aplicación específica, es necesario contar una mascarilla con una periodicidad específica; se pueden mandar hacer pero esto repercute en tiempo y dinero.

La idea básica de la técnica consiste en formar la imagen de una rendija sobre una película holográfica y mover la película para obtener múltiples exposiciones. El arreglo básico se muestra en la figura 32. En este arreglo se expande un haz proveniente de un láser de Argón y se filtra con el filtro espacial para que la intensidad sea uniforme, este haz se colima con una lente convergente e incide sobre una rendija. Una lente de cámara forma la imagen de esta rendija sobre una placa holográfica. Para desplazar la película a lo largo del eje x se utilizó un microposicionador Newport-Klinger modelo UE41PP que tiene resolución de 0.1 μ m y el movimiento se coordinó con el obturador por computadora.



Figura 32. Esquema básico para la fabricación de rejillas.

En la figura 33 se muestra el procedimiento con el cual se determina el ancho del haz obtenido en el arreglo anterior. En este método se sitúa una navaja en el foco de la lente de cámara y la navaja se sujeta a una base con tornillos micrométricos, la cual permite movimiento en la dirección x y z. Al moverse la navaja en la dirección x se va

obstruyendo el haz produciéndose una variación de intensidad que se detecta con el fotodetector.



Figura 33. Determinación experimental del ancho del haz

En el inciso *a* de la figura 34 se presenta una gráfica en la que se muestra la variación de la intensidad con respecto al desplazamiento de la navaja. Para obtener el ancho del haz es necesario derivar la curva que se ha obtenido; el ancho del haz que en una de las mediciones se obtuvo utilizando este procedimiento es de ~11µm, como se muestra en el inciso *b* de la figura.



Figura 34. Resultados experimentales de la medición del ancho del haz.

En la figura 35 se presenta una sección de una rejilla de 1200 líneas con una periodicidad de $28.5 \,\mu\text{m}$ que se obtuvo con la técnica que se propuso. Se seleccionó esta periodicidad porque se cuenta con un cristal de LiNbO₃ con dominios ferroeléctricos invertidos con esta periodicidad y la idea era comparar los resultados de éste con los que nosotros obtuviéramos.



Figura 35. Rejilla de 1200 líneas en película holográfica, con periodo de 28. 5 µm.

Una de las ventajas de la técnica de cuasi empatamiento de fases con respecto a la técnica de empatamiento de fases es que se pueden producir procesos ópticos no lineales en cadena. Para esto en una región del cristal los dominios ferroeléctricos se invierten con cierta periodicidad de acuerdo a la interacción óptica no lineal que se desee, y posteriormente la radiación generada por esta interacción se inyecta en otra región del cristal con otra periodicidad para que se de otra interacción óptica no lineal. En la figura 36 se presenta una fotografía de una rejilla con dos periodicidades distintas; en esta fotografía se observa que con la técnica que se propuso se pueden producir mascarillas para implementar este tipo de procesos.



Figura 36. Rejilla en película holográfica con periodicidades de 21 y 29 µm.

IV.4 CONCLUSIONES

- Se ha implementado y se ha hecho reproducible la inversión de dominios ferroeléctricos invertidos por aplicación de campo eléctrico con un periodo de 25 μm. Para la fabricación de estas estructuras se han desarrollado técnicas específicas que incluyen el corte y pulido del niobato de litio, grabado de rejillas en fotorresina, aplicación de alto voltaje en muestras de LiNbO₃ que tienen medio milímetro de espesor, fabricación de rejillas en película holográfica con una periodicidad precisa y la caracterización de las estructuras con dominios ferroeléctricos invertidos por medio de métodos ópticos y por medio de ataque químico.
- Al realizar la inversión periódica de dominios ferroeléctricos invertidos hemos corroborado distintos parámetros físicos reportados previamente en la literatura, entre estos se ha corroborado que la naturaleza de los electrodos juega un papel importante en la forma en que se invierten los dominios ferroeléctricos, se ha corroborado la presencia

de estrés en las fronteras de los dominios ferroeléctricos inmediatamente después de aplicar el campo eléctrico, y que este estrés disminuye considerablemente aumentando la temperatura en el cristal, se ha corroborado que el voltaje cohersivo que se necesita aplicar en medio milímetro del cristal es de ~10.5 KV cuando el voltaje se aplica en la cara z+. Además se ha corroborado la existencia de un campo eléctrico remanente al aplicar el campo eléctrico en la cara z – del cristal.

- Se ha observado que la concentración del líquido electrolítico desempeña un factor muy importante para el desarrollo exitoso de las estructuras con dominios ferroeléctricos invertidos.
- Experimentalmente corroboramos que se produce un realce significativo de la intensidad del segundo armónico entre un cristal con dominios ferroeléctricos invertidos y un cristal monodominio.
- Hasta donde se tiene conocimiento es la primera vez que en México se producen estructuras con dominios ferroeléctricos invertidos periódicamente en LiNbO₃.
- Uno de los objetivos que no se logró cumplir fue la generación de fluorescencia paramétrica, como se mencionó anteriormente. Se piensa que si se utiliza una mascarilla con otra periodicidad (entre 27 y 30 micras en vez de 25 micras) y se mide con precisión el flujo de corriente a través de la muestra para poder controlar mejor el ciclo "duty" de la estructura de dominios se podrá observar este fenómeno.

LITERATURA CITADA.

- Barry I. E., Ross G. W., Smith P. G. R., Eason R. W., Cook G. 1998. "Microstructuring of lithium niobate using differential etch-rate between inverted and noninverted ferroelectric domains". Material Letters. 37 : 246-254 p.
- Boyd R. 1992. "Nonlinear Optics". Academic Press Inc. Primera edición. San Diego. 439 pp.
- Didomenico M. & Wemple S.H. 1969. "Oxigen-Octahedra Ferroelectrics. I. Theory of electro-optical and nonlinear optical effects". Journal of Applied Physics 40 (2): 720-734 p.
- Fejer M. M., Magel G. A., Jundt D. H., Byer R. L. 1992. "Quasi-phase-matched second harmonic generation tuning and tolerances". IEEE Journal of Quantum Electronics 28 (11): 2631-2654 p.
- Flörsheimer M., Paschotta R., Kubitscheck U., Brillert. C., Hofmann D., Heuer L., Schreiber G., Verbeek C., Sohler W., Fuchs H. 1998. "Second-harmonic imaging of ferroelectric domains in LiNbO₃ with micron resolution in lateral and axial directions". Appl. Phys. B. 67: 593-599 p.
- Houé M., & Townsend P. D. 1995. "An introduction to methods of periodic poling for second-harmonic generation". J. Phys. D: Appl. Phys. 28: 1747-1763 p.
- Jundt D. H. 1997. "Temperature-dependent Sellmeier equation for the index of refraction, n_e , in congruent lithium niobate". Optics Letters 22 (20): 1553-1555 p.

- Lüthi R., Haefke H., Meyer K. P., Meyer E., Howald L., Güntherodt H. 1993. "Surface and domain structures of ferroelectric crystals studied with scanning force microscopy". J. Appl. Phys. 74 (12): 7461-7471 p.
- MacCormack S. & Feinberg J. 1996. "Revealing 180⁰ domains in ferroelectric crystals by photorefractive beam coupling". Applied Optics 35 (30): 5961-5963 p.
- Myers L. E., Edkardt R. C., Fejer M. M., Byer R. L. 1995. "Quasi-phase-matched optical parametric oscillators in bulk periodically poled LiNbO₃". J. Opt. Soc. Am. B 12 (11): 2102-2116 p.
- Myers L. E., Edkardt R. C., Fejer M. M., Byer R. L. 1996. "Multigrating quasi-phase-matched optical parametric oscillator in periodically poled LiNbO₃". Optics Letters. 21 (8): 591-593 p.
- Reitz J., Milford F., Christy R. 1996. "Fundamentos de la Teoría Electromagnética". Addison Wesley Iberoamericana. Cuarta edición. Wilmington. 641 pp.
- Rosenman G., Skliar A., Lareah I., Angert N., Tseitlin M., Roth M. 1996. "Observation of ferroelectric domain structures by secondary-electron microscopy in asgrown KTiOPO₄ crystal. Phys. Rev. B. 54 (9): 6622-6226 p.
- Sadiku M. 1994. "Elements of electromagnetics". Saunders College Publishing, Segunda Edición. Orlando. 821 pp.
- Yariv Amnon, 1989. "Quantum Electronics". John Wilwey & Sons, Tercera edición. New York. 676 pp.

Yariv Amnon, 1991. "Optical Electronics". Saunders College Publishing, Cuarta edición. Philadelphia. 713 pp.

Zernike F. & Midwinter, J. 1973. "Applied Nonlinear Optics". John Wiley & Sons.

Primera edición. New York. 199 pp.

APÉNDICE I. ECUACIONES ACOPLADAS

Para describir el comportamiento de la propagación de ondas electromagnéticas en medios ópticos no lineales se utilizan las ecuaciones acopladas, las cuales se derivan de las ecuaciones de Maxwell cuando consideramos la interacción de tres ondas electromagnéticas viajeras con un medio óptico no lineal, a través del coeficiente óptico no lineal de orden dos.

Para obtener las ecuaciones acopladas tomamos como punto de partida las ecuaciones de Maxwell en su forma diferencial en la forma generalizada en sistema internacional (Sadiku,1994):

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho , \qquad (51)$$

donde **D** es el Desplazamiento eléctrico y ρ es la densidad volumétrica de carga eléctrica.

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0, \tag{52}$$

donde B es la densidad de flujo magnético.

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} , \qquad (53)$$

donde \mathbf{E} es la intensidad de campo eléctrico y t el tiempo,

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \quad , \tag{54}$$

donde **H** es la intensidad de campo eléctrico que está relacionada inversamente a la densidad de flujo magnético por medio de la permeabilidad magnética μ como **B** = μ **H** y **J** es la densidad de corriente.

El desplazamiento eléctrico está relacionado con la polarización eléctrica P por:

$$\mathbf{D} = \boldsymbol{\varepsilon}_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \,, \tag{55}$$

donde ε_0 es la permitividad eléctrica en el espacio libre.

Para el análisis que se desarrollará haremos las siguientes consideraciones físicas:

- 1. Suponemos que el medio es isotrópico.
- 2. No hay una densidad volumétrica de carga presente, es decir, $\rho = 0$.
- 3. La densidad de corriente es cero.

La polarización eléctrica del medio se puede separar en una superposición del efecto lineal y el efecto no lineal:

$$\mathbf{P} = \varepsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E} + \mathbf{P}_{NL} \,, \tag{56}$$

donde $\chi^{(1)}$ es la susceptibilidad eléctrica lineal y $\mathbf{P}_{_{NL}}$ es la polarización eléctrica no lineal.

Si se introduce la ec. (55) en la ec. (56), se obtiene:

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 (1 + \chi^{(1)}) \mathbf{E} + \mathbf{P}_{NL} , \qquad (57)$$

si se substituye $\varepsilon = \varepsilon_0 (1 + \chi^{(1)})$ en la ec. (57), y este resultado se introduce en la ec. (56) se tiene:

$$\nabla \times \mathbf{H} = \varepsilon \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{\partial \mathbf{P}_{NL}}{\partial t} \,. \tag{58}$$

Si se aplica el rotacional en ambas partes de la igualdad de la ec. (53) y se utiliza la identidad vectorial $\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = \nabla \nabla \cdot \mathbf{E} - \nabla^2 \mathbf{E}$ se obtiene:

$$\nabla \nabla \cdot \mathbf{E} - \nabla^2 \mathbf{E} = -\mu \frac{\partial}{\partial t} (\nabla \times \mathbf{H}) \,. \tag{59}$$

Al introducir la ec. (58) en la ec. (59) se obtiene:

$$\nabla \nabla \cdot \mathbf{E} - \nabla^2 \mathbf{E} = -\mu \varepsilon \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} - \mu \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{NL}}{\partial t^2}.$$
(60)

Como se supuso un medio isotrópico y que $\rho = 0$ la ec. (51) está dada por:

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = 0$$
.

Introduciendo la ec. (61) en la ec. (62) y se obtiene la ecuación de onda escalar que incluye los efectos de la polarización no lineal dada por:

$$\nabla^2 E = \mu \varepsilon \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} + \mu \frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2}.$$
(62)

La ec. (62) describe el efecto que induce la polarización no lineal sobre las ondas ópticas que se propagan en el medio óptico no lineal. Para obtener la solución de la ec. (62) primero se considera la propagación de las ondas ópticas en una dirección, además se desprecia el término de la polarización no lineal, de aquí se obtiene:

$$\nabla^2 E = \mu \varepsilon \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} \,. \tag{63}$$

Como solución de la ec. (63) se proponen tres ondas monocromáticas planas que viajan en la dirección z. El campo eléctrico total E_T propuesto como solución está dado por:

$$E_T = \frac{1}{2} [E_1 e^{-i(\omega_1 t - k_1 z)} + E_2 e^{-i(\omega_2 t - k_2 z)} + E_3 e^{-i(\omega_3 t - k_3 z)} + c.c].$$
(64)

(61)

Al introducir la ec. (64) en la ec. (63) se obtiene:

$$k_i = \frac{\omega_i}{c} n_i \,. \tag{65}$$

con i = 1, 2, 3.

La solución de la ec. (62) se espera que sea semejante a la solución de la ec. (63), pero ahora como solución se propone que la amplitud de las ondas varíe con la distancia, por lo tanto, el campo eléctrico total está dado por:

$$E_T = \frac{1}{2} [E_1(z)e^{-i(\omega_1 t - k_1 z)} + E_2(z)e^{-i(\omega_2 t - k_2 z)} + E_3(z)e^{-i(\omega_3 t - k_3 z)} + c.c]$$
(66)

Para simplificar los cálculos resolveremos los términos de la ec. (62) por separado. Si se introduce la ec. (66) en el primer término de la ec. (62) se obtiene:

$$\nabla^2 E = \frac{1}{2} \left\{ \left[\frac{\partial^2 E_i(z)}{\partial z^2} + 2ik_i \frac{\partial E_i(z)}{\partial z} - k_i^2 E_i(z) \right] e^{-i(\omega_i t - k_i z)} + c.c. \right\}$$
(67)

con i = 1, 2, 3.

Si en la ec. (67) se utiliza la aproximación de la envolvente de la variación lenta, en la cual se propone que la variación de E_i en una distancia del orden de una longitud de

onda es despreciable, es decir, si $\left|k_i \frac{dE_i(z)}{dz}\right| >> \frac{d^2 E_i(z)}{dz^2}$, para i = 1,2,3, se obtienen tres

ecuaciones:

$$\nabla^{2} E = \frac{1}{2} \left\{ [2ik_{i} \frac{\partial E_{i}(z)}{\partial z} - k_{i}^{2} E_{i}(z)] e^{-i(\omega_{i}t - k_{1}z)} + c.c. \right\},$$
(68)

con i = 1, 2, 3.

Al desarrollar el término $\mu \varepsilon \frac{\partial^2 E_T}{\partial t^2}$ de la ec. (62) se obtiene:

$$\mu\varepsilon \frac{\partial^2 E_T}{\partial t^2} = \frac{\mu\varepsilon}{2} \left[-\omega_i^2 E_i(z) e^{-i(\omega_i t - k_i z)} + c.c. \right],\tag{69}$$

con i = 1, 2, 3.

Con las ecuaciones (68), (69) y (65) se puede calcular $\nabla^2 E - \mu \varepsilon \frac{\partial^2 E}{\partial t^2}$, obteniéndo-

se:

$$\nabla^2 E - \mu \varepsilon \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \left[ik_i \frac{dE_i(z)}{dz} e^{-i(\omega_i t - k_i z)} + c.c \right].$$
(70)

con i = 1, 2, 3.

Si se calcula $\mu \frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2}$ considerando sólo el primer término de la polarización no li-

neal dado por $P_{NL} = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_T^2$, se obtiene:

$$\mu \frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2} = \frac{1}{4} \mu \varepsilon_0 \chi^{(2)} [-4\omega_1^2 E_1^2 e^{-2i(\omega_1 t - k_1 z)} - 4\omega_2^2 E_2^2 e^{-2i(\omega_2 t - k_2 z)} - 4\omega_3^2 E_3^2 e^{-2i(\omega_3 t - k_3 z)} - 2E_1 E_2 (\omega_1 + \omega_2)^2 e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t + i(k_1 + k_2)z} - 2E_1 E_3 (\omega_1 + \omega_3)^2 e^{-i(\omega_1 + \omega_3)t + i(k_1 + k_3)z} - 2E_2 E_3 (\omega_2 + \omega_3)^2 e^{-i(\omega_2 + \omega_3)t + i(k_2 + k_3)z} - 2E_1^* E_2 (\omega_2 - \omega_1)^2 e^{-i(\omega_2 - \omega_1)t + i(k_2 - k_1)z} - 2E_1^* E_3 (\omega_3 - \omega_1)^2 e^{-i(\omega_3 - \omega_1)t + i(k_3 - k_1)z} - 2E_2^* E_3 (\omega_3 - \omega_2)^2 e^{-i(\omega_3 - \omega_2)t + i(k_3 - k_2)z} + c.c.]$$

$$(71)$$

De la ec. (71) observamos que existen términos que oscilan a las frecuencias ω_1 , ω_2 , ω_3 , y también a la suma y la diferencia de estas frecuencias.

La igualdad entre la ec. (70) y la ec. (71) se debe de cumplir para toda t, por lo tanto, se pueden resolver separadamente los términos que varían como $e^{-i\omega_1 t}$, $e^{-i\omega_2 t}$ y $e^{-i\omega_3 t}$. Si consideramos primero el término que varía como $e^{-i\omega_3 t}$ donde $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$, se obtiene:

$$\frac{dE_3(z)}{dz} = i \frac{\omega_3}{cn_3} d^{(2)} E_1 E_2 e^{-i(k_3 - k_2 - k_1)z}.$$
(72)

Usando un procedimiento similar al anterior, para los términos que varían como $e^{-i\omega_1 t}$ y $e^{-i\omega_2 t}$, se obtiene el sistema de ecuaciones siguientes:

$$\frac{dE_{1}(z)}{dz} = i \frac{\omega_{1}}{cn_{1}} d^{(2)} E_{2}^{*} E_{3} e^{i(k_{3}-k_{2}-k_{1})z}$$

$$\frac{dE_{2}(z)}{dz} = i \frac{\omega_{2}}{cn_{2}} d^{(2)} E_{1}^{*} E_{3} e^{i(k_{3}-k_{2}-k_{1})z} ,$$

$$\frac{dE_{3}(z)}{dz} = i \frac{\omega_{3}}{cn_{3}} d^{(2)} E_{1} E_{2} e^{-i(k_{3}-k_{2}-k_{1})z}$$
(73)

donde $d^{(2)} = \frac{1}{2}\chi^{(2)}$ y por completes hemos incluido la ec. (72). Las ecuaciones anteriores

se conocen como las ecuaciones acopladas y estas describen las interacciones no lineales paramétricas.

$$E^{(2\omega)}(z) = \Gamma I^{(\omega)} \left| d^{(2)} \right| l_c \sum_{j=1}^{N} (-1)^j \left[\frac{e^{-i\pi j} e^{-i\pi \eta} e^{-i\frac{\pi}{2}(-1)^j} [e^{i\pi \eta(-1)^j} - e^{-i\pi \eta(-1)^j}]}{-\pi} \right],$$
(78)

donde se ha introducido la cantidad η conocida como ciclo "duty" η , dada por:

$$\eta \equiv \frac{a}{a+b} \tag{79}$$

Simplificando la ec. (78) se puede obtener una relación para la intensidad de la onda generada; esta relación está dada por:

$$I^{(2\omega)} = A^{2} [I^{(\omega)}]^{2} \left| d^{(2)} \right|^{2} \left(\frac{2}{\pi} \right)^{2} \operatorname{sen}^{2} (\pi \eta) l^{2},$$
(80)

donde $A^2 = \frac{8\omega^2}{c^3 [n^{(\omega)}]^2 n^{(2\omega)} \varepsilon_0}$. De la ecuación se observa que la intensidad de la onda gene-

rada sufre un detrimento adicional de sen²($\pi\eta$) aunado al factor de ($\frac{4}{\pi^2}$) que se obtiene en cuasi empatamiento de fases con respecto a empatamiento de fases.