

1971

ФИЗИКА ТВЕРДОГО ТЕЛА

Том 13, № 10

1971

SOLID STATE PHYSICS

Vol. 13, № 10

НЕЛИНЕЙНОЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ ВОЛН  
В НЕЭНANTIОМОРФНЫХ КРИСТАЛЛАХ  
КЛАССА  $\bar{4}2m$ , ИЗОТРОПНЫХ НА ОПРЕДЕЛЕННОЙ  
ДЛИНЕ ВОЛНЫ

Б. В. Бокутъ и А. Н. Сердюков

Показано, что в кристаллах класса  $\bar{4}2m$  возможны такие взаимодействия волн, при которых линейно поляризованная волна может возбудить циркулярно поляризованную гармонику, и наоборот, циркулярно поляризованная основная волна может генерировать линейно поляризованную гармонику. Рассмотрен эффект оптического выпрямления.

До недавнего времени явление оптической активности не наблюдалось в неэнантиоморфных кристаллах классов  $\bar{4}2m$ ,  $\bar{4}$ ,  $mm2$  и  $m$ . В [1, 2] было показано, что кристалл  $\text{AgGaS}_2$  класса  $\bar{4}2m$  на длине волны  $\lambda_i = 4974 \text{ \AA}$  становится изотропным, и это дало возможность измерить угол поворота плоскости поляризации прошедшего через кристалл света длины волны  $\lambda_i$  в направлениях, перпендикулярных оптической оси. Было установлено, что в плоскостях симметрии вращение плоскости поляризации не имеет места, а удельные вращения вдоль осей второго порядка равны по величине и противоположны по знаку. Удельное вращение оказалось равным 522 град./мм, параметр активности  $k_i \alpha_1 = 3.88 \cdot 10^{-3}$ , где  $k_i$  — волновое число.

В [3] аналогичные эксперименты были проведены на кристалле  $\text{CdGa}_2\text{S}_4$  класса  $\bar{4}$ , который оказался изотропным на длине волны  $\lambda_i = 4872 \text{ \AA}$ . Были измерены оба параметра оптической активности этого кристалла на длине волны  $\lambda_i$  и удельные вращения плоскости поляризации для кристаллографических направлений [100], [010], [110] и [110].

Рассмотрим кристаллы класса  $\bar{4}2m$ , у которых дисперсионные кривые главных показателей преломления  $n_o$  и  $n_e$  пересекаются на какой-то длине волны  $\lambda_i$ . Пусть на длинах волн  $\lambda > \lambda_i$  кристалл является отрицательным, а при  $\lambda < \lambda_i$  — положительным. При  $\lambda = \lambda_i$  кристалл становится изотропным и по любому направлению, исключая случаи расположения волновой нормали в плоскостях симметрии и вдоль оптической оси, в нем будут распространяться поляризованные по кругу волны.

Ясно, что при генерации второй гармоники на длине волны  $\lambda_r$ , значительно большей  $\lambda_i$ , в кристалле будут возможны  $oee$ - и  $eoe$ -взаимодействия, а если длина волны основного излучения будет гораздо меньше  $\lambda_i$ , то в кристалле могут быть  $eo$ - и  $ee$ -взаимодействия. В обоих этих случаях оптическая активность практически не будет влиять на процесс преобразования частоты из-за большого эффекта двупреломления.

Интерес представляют такие ситуации, когда  $\lambda_r$  или  $\lambda$  основного излучения будут равны  $\lambda_i$  или мало отличаться от этой длины волны. В этих случаях на процесс преобразования будут оказывать влияние как поляризация волн, так и величина параметров оптической активности.

Предположим, что  $\lambda_r = \lambda_i$ . Тензор оптической активности для кристаллов рассматриваемого класса есть [4]

$$\alpha = \alpha_1 (\mathbf{c}' \cdot \mathbf{c}' - \mathbf{c}'' \cdot \mathbf{c}''),$$

где  $\mathbf{c}', \mathbf{c}''$  — единичные векторы направления осей второго порядка,  $\alpha_1$  — скалярный параметр активности. Из уравнения нормалей [5]

$$n^4 \mathbf{n} \cdot \mathbf{n} + n^2 [\mathbf{n} \cdot \mathbf{G}]^2 + n^2 \mathbf{n} (\bar{\epsilon} - \bar{\epsilon}_e) \mathbf{n} - \mathbf{G} \cdot \mathbf{G} + |\epsilon| = 0$$

при  $\epsilon_0 = \epsilon_e$  имеем выражение для показателей преломления

$$N_{\pm} = N_i \pm \frac{1}{2} k_i \alpha_1 [(\mathbf{n} \cdot \mathbf{c}')^2 - (\mathbf{n} \cdot \mathbf{c}'')^2], \quad (1)$$

где  $\mathbf{n}$  — единичный вектор волновой нормали;  $\mathbf{G} = nk_i (\alpha_e - \tilde{\alpha}) \mathbf{n}$  — вектор гирации, равный  $-nk_i \alpha \mathbf{n}$ , так как  $\alpha_e = 0$ ,  $\tilde{\alpha} = \alpha$ .

Обозначим угол между вектором  $\mathbf{n}$  и оптической осью с через  $\theta$ , а угол между проекцией  $\mathbf{n}$  на плоскость ( $\mathbf{c}', \mathbf{c}''$ ) и осью  $\mathbf{c}'$  через  $\varphi$ . Тогда  $\mathbf{n} \cdot \mathbf{c}' = \sin \theta \cos \varphi$ ,  $\mathbf{n} \cdot \mathbf{c}'' = \sin \theta \sin \varphi$  и (1) можно записать в виде

$$N_{\pm} = N_i \pm \frac{1}{2} p \sin^2 \theta \cos 2\varphi, \quad (2)$$

где  $p = k_i \alpha_1$ . Из (2) видно, что в плоскостях ( $\mathbf{c}', \mathbf{c}$ ) и ( $\mathbf{c}'', \mathbf{c}$ ) эффект оптической активности максимальен.

Рассмотрим случай, когда волновая нормаль лежит в плоскости ( $\mathbf{c}', \mathbf{c}$ ). Условие фазового согласования при  $p > 0$  можно записать следующим образом

$$n_0 = N_-,$$

где  $n_0$  — показатель преломления на основной частоте. Отсюда угол фазового согласования определяется из выражения

$$\sin \theta = \sqrt{\frac{2(N_i - n_0)}{p^{(2\omega)}}}, \quad (3)$$

т. е. разность показателей преломления  $N_i$  и  $n_0$  должна быть меньше или равна  $p^{(2\omega)}/2$ . Следует отметить, что этому условию трудно удовлетворить. Например, для кристалла  $\text{AgGaS}_2$  параметр  $p^{(2\omega)}/2 \sim 2 \cdot 10^{-3}$ , а  $N_i - n_0 \sim 2 \cdot 10^{-1}$ . Однако не исключено, что для каких-либо других кристаллов и соответствующих длин волн это условие может реализоваться. Следовательно, линейно поляризованная обыкновенная волна на основной частоте может в принципе возбудить вторую гармонику, которая будет поляризована по кругу.

Пусть теперь основное излучение имеет длину волны  $\lambda_i$ . Наиболее благоприятное условие для выполнения фазового согласования в этом случае дается соотношением

$$n_+ = N_0, \quad (4)$$

где  $N_0$  — показатель преломления на частоте второй гармоники. Из (4) и (2) аналогично (3) имеем

$$\sin \theta = \sqrt{\frac{2(N_0 - n_i)}{p^{(\omega)}}}.$$

В рассматриваемом случае падающее излучение должно быть поляризовано по кругу, вторая же гармоника оказывается линейно поляризованной как обыкновенная волна. Основное излучение может быть также и линейно поляризованным, однако энергетически это не выгодно, так как в процессе преобразования будет участвовать только одна круговая волна с показателем преломления  $n_+$ .

В нелинейной оптике рассматривались такие взаимодействия, при которых линейно поляризованная волна основного излучения возбуж-

ждала волну гармоники линейной поляризации, но ортогональной поляризации основной волны. В направлении оптической оси активного кристалла поляризованные по кругу основная волна может генерировать гармонику также круговой поляризации, но противоположного направления обращения [5]. Здесь рассмотрены такие взаимодействия волн, при которых линейно поляризованная волна может возбудить вторую гармонику, поляризованную по кругу, и наоборот, циркулярно поляризованная основная волна может генерировать линейно поляризованную волну гармоники.

Предположим теперь, что при  $\lambda > \lambda_i$  кристалл положителен, а при  $\lambda < \lambda_i$  — отрицателен. Здесь наиболее вероятными будут такие взаимодействия, при которых выполняются условия

$$n_e(0) = N_-, \quad n_+ = N_e(0).$$

Отсюда соответственно следуют выражения для углов фазового согласования (в первом приближении относительно  $p$ )

$$\begin{aligned} \sin \theta &= \frac{n_e}{N_i} \sqrt{\frac{N_i^2 - n_0^2}{n_e^2 - n_0^2}} \left(1 - \frac{p^{(2\omega)} n_e^2}{2N_i(n_e^2 - n_0^2)}\right), \\ \sin \theta &= \frac{N_e}{n_i} \sqrt{\frac{N_0^2 - n_i^2}{N_0^2 - n_e^2}} \left(1 - \frac{p^{(\omega)} N_0^2}{2n_i(N_0^2 - n_e^2)}\right). \end{aligned}$$

При таком ходе дисперсионных кривых в процессе преобразования участвуют линейная необыкновенная и круговая волны.

Обратим внимание на следующее обстоятельство. На длине волны  $\lambda_i$ , когда волновая нормаль лежит не в плоскости симметрии, в кристалле AgGaS<sub>2</sub>, можно возбудить постоянную во времени, но переменную в пространстве нелинейную поляризацию [6]. В плоскости симметрии эта поляризация кристалла будет постоянная также и в пространстве. Действительно, так как круговые векторы можно записать в виде

$$\mathbf{u}_\pm = \frac{1}{\sqrt{2}} (\mathbf{u}_0 \pm i\mathbf{u}_e),$$

где  $\mathbf{u}_0$  и  $\mathbf{u}_e$  — единичные векторы колебаний электрического поля волны в кристалле, и проекции этих векторов на оси  $\mathbf{c}'$ ,  $\mathbf{c}''$ ,  $\mathbf{c}$  есть

$$\begin{aligned} \mathbf{u}_0 \mathbf{c}' &= \sin \varphi, \quad \mathbf{u}_0 \mathbf{c}'' = -\cos \varphi, \quad \mathbf{u}_0 \mathbf{c} = 0, \\ \mathbf{u}_e \mathbf{c}' &= -\cos \theta' \cos \varphi, \quad \mathbf{u}_e \mathbf{c}'' = -\cos \theta' \sin \varphi, \quad \mathbf{u}_e \mathbf{c} = \sin \theta', \\ \operatorname{tg} \theta' &= \frac{\varepsilon_0}{\varepsilon_e} \operatorname{tg} \theta, \end{aligned}$$

то из

$$P_i = \frac{1}{2} \chi_{ikl} (\mathbf{u}_+)_k (\mathbf{u}_-^*)_l \cos [(k_+ - k_-) l]$$

получаем следующее выражение для вектора постоянной нелинейной поляризации

$$\hat{\mathbf{P}} = (\mathbf{P} + \mathbf{P}^*)/2$$

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{P}} &= \frac{|U|^2}{\sqrt{2}} \{ (\mathbf{c}' \chi_{14} \sin \varphi + \mathbf{c}'' \chi_{25} \cos \varphi) \sin 2\theta' - \\ &- \mathbf{c} \chi_{36} \sin 2\varphi (1 + \cos^2 \theta') \} \cos \left( \frac{2\pi}{\lambda_i} pl \sin^2 \theta \right). \end{aligned} \quad (5)$$

Рассмотрим частные случаи.

1) Угол  $\varphi = 0^\circ$  (волновая нормаль лежит в плоскости ( $\mathbf{c}'$ ,  $\mathbf{c}$ )). Из (5) тогда следует

$$\hat{\mathbf{P}} = \frac{|U|^2}{\sqrt{2}} \mathbf{c}'' \chi_{25} \sin 2\theta' \cos \left( \frac{\pi l p}{\lambda_i} \right), \quad (6)$$

и максимальное значение для  $\hat{P}$  будет при  $\theta' = 45^\circ$ , а толщина кристалла должна удовлетворять условию

$$l = \frac{m\lambda_i}{p}, \quad m = 0, 1, 2, \dots$$

2) Угол  $\varphi = 90^\circ$ . В (6) необходимо сделать замену  $\chi_{25} \rightarrow \chi_{14}$ ,  $e'' \rightarrow e'$ . В плоскости симметрии  $\cos[(k_+ - k_-)l] = 1$  и из (5) получаем постоянную во времени и пространстве поляризацию

$$\hat{P} = \frac{|U|^2}{\sqrt{2}} \{ (e'\chi_{14} + e''\chi_{25}) \sin 2\theta' - e\chi_{36} (1 + \cos^2 \theta') \}.$$

Таким образом, независимо от поляризации падающего излучения можно получать эффект оптического выпрямления, постоянный и переменный в пространстве.

Авторы выражают признательность И. С. Резу за обсуждение результатов.

#### Л и т е р а т у р а

- [1] M. V. Hobden. Nature, 216, 678, 1967.
- [2] M. V. Hobden. Acta Cryst., A24, 676, 1968.
- [3] M. V. Hobden. Nature, 220, 781, 1968.
- [4] Б. В. Бокутъ, Ф. И. Федоров. Опт. и спектр., 6, 537, 1959.
- [5] Б. В. Бокутъ, А. Н. Сердюков, Ф. И. Федоров. К электродинамике оптически активных сред. Изд. Инст. физики АН БССР, 1970.
- [6] Б. В. Бокутъ. ДАН БССР, 19, 599, 1969.

Институт физики  
АН БССР  
Минск

Поступило в Редакцию  
20 апреля 1971 г.