ЖУРНАЛ ПРИКЛАДНОЙ СПЕКТРОСКОПИИ

1968г.

6

ДЕКАБРЬ

ТОМ IX

ЖУРНАЛ ПРИКЛАДНОЙ СПЕКТРОСКОПИИ

Том IX, выпуск 6 — Декабрь 1968 г.

УДК 539.171

Б. В. Бокуть, А. Н. Сердюков

ВРАЩАЮЩЕЕ ДЕЙСТВИЕ ИЗЛУЧЕНИЯ НА НЕЛИНЕЙНЫЙ КРИСТАЛЛ

Эффект Садовского заключается, как известно [1], в том, что под действием излучения анизотропная среда испытывает вращающий момент, плотность которого равна

$$\mathbf{M} = [\mathbf{PE}]. \tag{1}$$

Расчет величины этого момента для случая линейной поляризации $\mathbf{P} = \hat{\varkappa}\cdot\mathbf{E}$ был выполнен в [1, 2]. Однако, вообще говоря, поляризация $\mathbf{P}$ зависит от напряженности поля $\mathbf{E}$ внутри среды нелинейно. Рассмотрение пондеромоторного вращающего действия излучения, обусловленного нелинейной зависимостью $\mathbf{P}$ от $\mathbf{E}$, представляет несомненный интерес. В частности, измерение такого вращающего момента дает дополнительную возможность экспериментального определения параметров нелинейностей.

Зависимость поляризации среды от напряженности поля представим в виде

$$\mathbf{P} = \hat{\varkappa}\cdot\mathbf{E} + \hat{\chi}:\mathbf{EE} + \hat{\theta}\,\vdots\,\mathbf{EEE}, \tag{2}$$

где $\hat{\chi}$ и $\hat{\theta}$ — тензоры нелинейной восприимчивости соответственно третьего и четвертого рангов. Подставляя (2) в (1), получим

$$\mathbf{M} = [\hat{\varkappa}\cdot\mathbf{E},\ \mathbf{E}] + [\hat{\chi}:\mathbf{EE},\ \mathbf{E}] + [\hat{\theta}\,\vdots\,\mathbf{EEE},\ \mathbf{E}]. \tag{3}$$

Здесь первое слагаемое, связанное с восприимчивостью $\varkappa$, характеризует линейный вращающий момент, а два других — нелинейный. В соответствии с этим будем говорить о линейном и нелинейном эффектах Садовского.

Поскольку в нелинейной оптике наиболее широко используются кристаллы KDP и ADP, принадлежащие классу $\bar{4}2m$, то и все конкретные расчеты проведем для кристалла этого класса. Выберем систему координат так, чтобы ось z совпадала с оптической осью кристалла. Тогда $\varkappa_{\mu\nu} = \varkappa_{(\nu)}\delta_{\mu\nu}$, $\varkappa_{(1)} = \varkappa_{(2)} = \varkappa_0$, $\varkappa_{(3)} = \varkappa_e$. Для тензоров нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}$ и $\hat{\theta}$ симметрия кристалла допускает отличие от нуля лишь компонент $\chi_{3,21}$, $\chi_{1,23} = \chi_{2,13}$ и $\theta_{1,111} = \theta_{2,222}$, $\theta_{3,333}$, $\theta_{2,233} = \theta_{3,223} = \theta_{1,133} = \theta_{3,113}$, $\theta_{1,122} = \theta_{2,112}$ [3, 4], причем $\chi_{\mu,\nu\sigma}$ и $\theta_{\mu,\nu\sigma\rho}$ симметричны относительно любой перестановки соответственно двух и трех последних индексов. Таким образом, из (3) следует

$$M_1 = 2\chi_{1,23}E_1E_3^2 - 2\chi_{3,21}E_1E_2^2 + [\varkappa_0 - \varkappa_e + \theta_{1,111}E_2^2 - \theta_{3,333}E_3^2 - 3\theta_{2,233}(E_1^2 + E_2^2 - E_3^2) + 3\theta_{1,122}E_1^2]\,E_2E_3,$$

$$M_2 = -2\chi_{1,23}E_2E_3^2 + 2\chi_{3,21}E_2E_1^2 - [\varkappa_0 - \varkappa_e + \theta_{1,111}E_2^2 - \theta_{3,333}E_3^2 - 3\theta_{2,233}(E_1^2 + E_2^2 - E_3^2) + 3\theta_{1,122}E_2^2]\,E_1E_3, \tag{4}$$

$$M_3 = -2\chi_{1,23}E_3(E_1^2 - E_2^2) + (\theta_{1,111} - 3\theta_{1,122})(E_1^2 - E_2^2)E_1E_2.$$

Как видно из (4), для кристаллов рассматриваемой симметрии в случае сильных полей невозможно в чистом виде наблюдать линейный эффект Садовского. Соответствующим выбором поляризации излучения и ориентации кристалла можно выделить компоненты вектора $\mathbf{M}$, зависящие только от $\chi_{\mu,\nu\sigma}$ или $\theta_{\mu,\nu\sigma\rho}$. Например, ориентируя кристалл таким образом, чтобы составляющая электрического поля E_1 обращалась в нуль, для компонент плотности вращающего момента из (4) получим

$$M_1 = [\varkappa_0 - \varkappa_e + \theta_{1,111}E_2^2 - \theta_{3,333}E_3^2 - 3\theta_{2,233}(E_2^2 - E_3^2)]\,E_2E_3,$$
$$M_2 = -2\chi_{1,23}E_2E_3^2, \tag{5}$$
$$M_3 = 2\chi_{1,23}E_3E_2^2.$$

Очевидно, M_2 и M_3 обусловлены только квадратичной восприимчивостью среды, в то время как в M_1, кроме составляющей линейного момента, входят члены, зависящие от кубичной восприимчивости среды.

В нелинейной среде, как известно, кроме волн на частоте падающего излучения, генерируется и электромагнитное излучение на кратных частотах [3, 5]. Ощутимая для рассматриваемой задачи интенсивность такого излучения может быть получена лишь для определенных направлений распространения основных волн (фазовое согласование) и для кристаллов достаточно большой толщины. Выбор $E_1 = 0$ уже фиксирует направление распространения излучения, которое будет в общем случае отличаться от направления фазового согласования. Кроме того, следует иметь в виду, что вращающий момент оказывает заметное действие на кристаллы сравнительно малых размеров. Поэтому генерацией высших гармоник будем пренебрегать.

Если поле $\mathbf{E}$ в среде является монохроматическим, то, как следует из (5), усреднение по времени обратит в нуль компоненты плотности вращающего момента M_2 и M_3. Однако в случае падения на кристалл волн частот ω и 2ω напряженность поля в кристалле будет $\mathbf{E} = \mathbf{E}(\omega) + \mathbf{E}(2\omega)$, и при усреднении (5) компоненты M_2 и M_3, как нетрудно видеть, оказываются отличными от нуля:

$$\langle M_2 \rangle = -2\chi_{1,23}\{2\langle E_2(\omega)E_3(\omega)E_3(2\omega)\rangle + \langle E_2(2\omega)E_3^2(\omega)\rangle\},$$
$$\langle M_3 \rangle = 2\chi_{1,23}\{2\langle E_3(\omega)E_2(\omega)E_2(2\omega)\rangle + \langle E_3(2\omega)E_2^2(\omega)\rangle\}.$$

Выражая напряженность электрического поля в комплексной форме и сохраняя за ней прежнее обозначение, получим

$$\langle M_2 \rangle = -\frac{\chi_{1,23}}{4}\{2E_2(\omega)E_3(\omega)E_3^*(2\omega) + E_3^2(\omega)E_2^*(2\omega) + \text{к. с.}\},$$
$$\langle M_3 \rangle = \frac{\chi_{1,23}}{4}\{2E_3(\omega)E_2(\omega)E_2^*(2\omega) + E_2^2(\omega)E_3^*(2\omega) + \text{к. с.}\}. \tag{6}$$

Рассмотрим кристалл, вырезанный в форме плоскопараллельной пластинки толщиной d, грани которой параллельны плоскости, образованной оптической осью z и кристаллографической осью второго порядка y. Напряженности электрического поля преломленных в кристалле волн $\mathbf{v}^{(+)}(\omega)$, $\mathbf{V}^{(+)}(2\omega)$ и волн, отраженных от нижней грани $\mathbf{v}^{(-)}(\omega)$, $\mathbf{V}^{(-)}(2\omega)$, согласно [6], будут равны

$$\mathbf{v}^{(\pm)}(\omega) = \sum_{\nu=2,3} \mathbf{e}_\nu v_\nu^{(\pm)} e^{i\omega t \mp i k_\nu x},$$

$$\mathbf{V}^{(\pm)}(2\omega) = \sum_{\nu=2,3} \mathbf{e}_\nu V_\nu^{(\pm)} e^{i2\omega t \mp i K_\nu x}, \tag{7}$$

где

$$v_\nu^{(\pm)} = \frac{2n(n_\nu \pm n)\, e^{\pm i k_\nu d}}{(n_\nu + n)^2 e^{i k_\nu d} - (n_\nu - n)^2 e^{-i k_\nu d}}\, u_\nu \qquad (\nu = 2,\ 3);$$

$$V_\nu^{(\pm)} = \frac{2n(N_\nu \pm n)\, e^{\pm i K_\nu d}}{(N_\nu + n)^2 e^{i K_\nu d} - (N_\nu - n)^2 e^{-i K_\nu d}}\, U_\nu,$$

u_ν, U_ν — амплитуды нормально падающих на кристалл волн; n, n_2, N_2, n_3, N_3 — показатели преломления соответственно волн в изотропной среде, обыкновенной и необыкновенной волны в кристалле на частотах ω и 2ω; $k_\nu = \dfrac{\omega n_\nu}{c}$ и $K_\nu = \dfrac{2\omega N_\nu}{c}$ — волновые числа соответствующих волн. Таким образом, напряженность электрического поля внутри пластинки

$$\mathbf{E} = \sum_{\nu=2,3} \mathbf{e}_\nu [E_\nu(\omega) + E_\nu(2\omega)],$$

где

$$E_\nu(\omega) = (v_\nu^{(+)} e^{-i k_\nu x} + v_\nu^{(-)} e^{i k_\nu x})\, e^{i\omega t};$$

$$E_\nu(2\omega) = (V_\nu^{(+)} e^{-i K_\nu x} + V_\nu^{(-)} e^{i K_\nu x})\, e^{i2\omega t}; \tag{8}$$

$$E_1(\omega) = E_1(2\omega) = 0.$$

Когда падающее излучение на частоте 2ω поляризовано как обыкновенная волна, амплитуда U_3 равна нулю и, следовательно, $E_3(2\omega) = 0$. Тогда, подставляя (7) и (8) в (6) и интегрируя по x от 0 до d, получаем значение компоненты нелинейного вращающего момента, действующего на кристаллическую пластинку площадью S и толщиной d:

$$I_2 = -S\chi_{1,23} u_3^2 U_2 Z\, \{a_1 \sin(2k_3 - K_2)d + a_2 \sin(2k_3 + K_2)d +$$
$$+ a_3 \sin K_2 d + a_4 \sin 2k_3 d + a_5 \sin 2K_2 d + a_6 \sin 4k_3 d +$$
$$+ a_7 \sin 2(k_3 - K_2)d + a_8 \sin 2(k_3 + K_2)d +$$
$$+ a_9 \sin 2(2k_3 - K_2)d + a_{10} \sin 2(2k_3 - K_2)d\},$$

где

$$Z = 8n^4 \{K_2^2(4k_3^2 - K_2^2)\left[(n_3 + n)^4 - 2(n_3^2 - n^2)^2 \cos 2k_3 d + (n_3 - n)^4\right]^2 \times$$
$$\times \left[(N_2 + n)^4 - 2(N_2^2 - n^2)^2 \cos 2K_2 d + (N_2 - n)^4\right]\}^{-1};$$

$$a_{1,2} = \mp \alpha \left[(n_3 + n)^4 (N_2 \pm n)^2 + (n_3 - n)^4 (N_2 \mp n)^2\right];$$

$$a_3 = -\alpha 4(n_3^2 - n^2)(N_2^2 + n^2);$$

$$a_4 = -8(n_3^2 - n^2)\{(n^2 + 3N_2^2)k_3\left[n^2(n^2 +\right.$$
$$\left. + 3n_3^2)K_2^2 - n_3^2(n_3^2 + 3n^2)(k_3^2 - K_2^2)\right. -$$
$$- N_2(N_2^2 + 3n^2)n_3K_2[(n^2 + 3n_3^2)(2k_3^2 - K_2^2) + 2(n_3^2 + 3n^2)k_3^2]\},$$

$$a_5 = -2K_2(N_2^2 - n^2)\{2(n^2 + 3n_3^2)K_2\left[n^2(n^2 +\right.$$
$$\left. + 3n_3^2)K_2 - n_3N_2(n_3^2 + 3n^2)k_3\right] -$$
$$- 2n_3(n_3^2 + 3n^2)k_3\left[N_2(n^2 + 3n_3^2)K_2 -\right.$$
$$\left. - 2n_3(n_3^2 + 3n^2)k_3\right] + (4k_3^2 - K_2^2)(n_3^2 - n^2)^3\};$$

$$a_6 = 4(n_3^2 - n^2)^2 K_2^2\left[(n^2 + 3N_2^2)(n_3^2 + n^2)k_3 - N_2(N_2^2 + 3n^2)n_3K_2\right];$$

$$a_{7,8} = -4K_2(n_3^2 - n^2)(N_2^2 - n^2)(2k_3 \pm K_2)\left[(n^2 + 3n_3^2)(n_3N_2 \pm n^2)(k_3 - K_2) \pm\right.$$
$$\left. \pm (n_3^2 + 3n^2)(n_3 \pm N_2)n_3k_3\right];$$

$$a_{9,10} = (n_3^2 - n^2)^2(N_2^2 - n^2)K_2^2(2k_3 \pm K_2)(n_3^2 + n^2 \pm 2n_3N_2);$$

$$\alpha = 4K_2\left[(2k_3^2 - K_2^2)n_3^2 - 2k_3^2n^2 - 2K_2k_3n_3N_2\right].$$

Если в L_2 произвести замену $k_3 \to k_2$, $n_3 \to n_2$, $K_2 \to K_3$, $N_2 \to N_3$ и поменять знак, то получим компоненту L_3 в предположении, что $U_2 = 0$.

Значение коэффициента a_1 оказывается на несколько порядков больше значений остальных коэффициентов. Чтобы величина L_2 оказалась наибольшей, естественно выбрать толщину пластинки d такой, чтобы

$$\sin(K_2 - 2k_3)d = \pm 1,$$

т. е.

$$d = \frac{(2m + 1)\pi}{2(K_2 - 2k_3)}, \quad m = 0,\ 1,\ 2,\ \ldots$$

При прохождении основного излучения неодимового лазера ($\lambda = 1{,}06$ *мкм*) и его второй гармоники ($\lambda = 0{,}53$ *мкм*) через пластинку из кристалла KDP толщиной $d = 2{,}5 \cdot 10^{-4}$ *см* ($m = 0$), компонента момента

$$L_2 = 3 \cdot 10^{-5} S\chi_{1,23} u_3^2 U_2 \ \text{эрг}.$$

Для $S \sim 1$ *см*^{2}, $\chi_{1,23} \sim 10^{-9}$ ед. CGSE, $u_3 \sim 10^6$ *в/см* и $U_2 \sim 3 \cdot 10^5$ *в/см* величина нелинейного момента оказывается порядка $L_2 \sim 10^{-4}$ *эрг*, что на пять порядков больше линейного вращающего момента, измеренного Бэтом [7].

Для сравнения найдем эту же компоненту вращающего момента, рассматривая кристалл как полубесконечную среду. После интегрирования $\langle M_2 \rangle$ по x от 0 до d получим

$$L_2 = -S\chi_{1,23} \frac{4n^3u_3^2U_2}{(n_3 + n)^2(N_2 + n)(2k_3 - K_2)} \sin(2k_3 - K_2)d.$$

При тех же условиях подсчет дает значение $L_2 \sim 10^{-4}$ *эрг*.

В заключение отметим, что нелинейный эффект Садовского может быть использован для определения компонент тензора $\hat{\chi}$. Например, как следует из (9), измеряя величины L_2, u_3 и U_2, можно определить $\chi_{1,23}$.

Литература

1. А. И. Садовский. Уч. зап. Юрьевского ун-та, **7**, в. 1, 1899; **8**, в. 2, 1900.
2. Б. В. Бокуть. Весці АН БССР, сер. фіз.-мат., № 4, 123, 1966.
3. С. А. Ахманов, Р. В. Хохлов. Проблемы нелинейной оптики. М., 1964.
4. J. E. Midwinter, J. Warner, Brit. J. Appl. Phys., **16**, 1667, 1965.
5. Н. Бломберген. Нелинейная оптика. Изд. «Мир», 1966.
6. Ф. И. Федоров, Т. Л. Котяш. Опт. и спектр., **12**, 298, 1962.
7. R. A. Beth. Phys. Rev., **48**, 471, 1935; **50**, 115, 1936.

Поступило в редакцию 19 июня 1968 г.