АКАДЕМИЯ НАУК СССР
СИБИРСКОЕ ОТДЕЛЕНИЕ

НЕЛИНЕЙНАЯ ОПТИКА

Труды 2-го Всесоюзного симпозиума
по нелинейной оптике

ИЗДАТЕЛЬСТВО «НАУКА» · СИБИРСКОЕ ОТДЕЛЕНИЕ
НОВОСИБИРСК, 1968

2-3-4
237-67 (2-е пол.)

ПРИМЕНЕНИЕ МЕТОДА ФУНКЦИИ ГРИНА ДЛЯ ИЗУЧЕНИЯ ЧАСТОТНОГО ПРЕОБРАЗОВАНИЯ ПУЧКОВ СВЕТА

А. Г. ХАТКЕВИЧ, Б. В. БОКУТЬ

Развитие экспериментальных исследований по нелинейной оптике позволило наблюдать эффекты, для объяснения которых необходимо более полно учитывать свойства кристалла и падающего излучения. Среди различных методов, на основе которых можно провести такой учет, заслуживает внимания классический метод функции Грина, широко используемый для изучения взаимодействий в современной физике. В настоящем сообщении этот метод применяется для изучения преобразования частот фокусированных пучков света различной поляризации на толстых кристаллах. Особое внимание будет уделено оценке тех допущений, которые обычно применяются и позволяют получить аналитические зависимости характеристик преобразованного излучения от оптических свойств кристалла и падающего излучения.

В качестве исходного пункта принимается решение хорошо известного волного уравнения для напряженности электрического поля в анизотропной среде с нелинейной поляризуемостью в следующей форме:

$$\overline{E}(\overline{r}, t) = \frac{4\pi}{c^2} \int\limits_{\Delta\overline{r}', \Delta t'} d\overrightarrow{r'} dt' \hat{G}(\overline{R}, T) \overline{Q}(\overline{r}', t'), \tag{1}$$

где $\frac{4\pi}{c^2}\overline{Q}$ — правая часть волнового уравнения, характеризующая взаимодействие излучения с веществом, а $\hat{G}(\overline{R}, T) \equiv \hat{G}(\overline{r} - \overline{r}', t - t')$ — тензорная функция Грина. Тензорную функцию Грина волнового уравнения легко найти в виде интеграла Фурье

$$\hat{G}(\overline{R}, T) = (2\pi)^{-4} \int d\overline{k} d\omega L^{-1}(\overline{k}, \omega) e^{i(\overline{kR} - \omega T)} + \hat{G}_0, \tag{2}$$

где

$$L = \overline{k}^{\times 2} + \frac{\mu\varepsilon\omega^2}{c^2} + i\frac{4\pi\mu\varkappa\omega}{c^2} \equiv \overline{k}^{\times 2} + \frac{\omega^2}{c^2}\varepsilon'$$

— компонента Фурье линейного оператора волнового уравнения, причем $\overline{k}^{\times}$ — тензор, дуальный волновому вектору $\overline{k}$, а ε' — комплексный тензор, характеризующий «линейные» свойства среды. Разлагая вектор $\overline{k}$ на два вектора (параллельный и перпендикулярный единичному вектору $\overline{q}$, который удобно выбрать нормальным к поверхности кристалла): $\overline{k} = (\overline{kq})\overline{q} + [\overline{q}[\overline{kq}]] \equiv \overline{k}_{\parallel} + \overline{k}_{\perp}$ и используя соотношения $L^{-1} = \overline{L}/|L|$, $\frac{\partial}{\partial k_{\parallel}}|L| = \left(\overline{L}\frac{\partial}{\partial k_{\parallel}}L\right)_c$, проинтегрируем выражение (2) по $k_{\parallel}$ с помощью теории вычетов:

$$(2\pi)^{-1} \int dk_{\parallel} L^{-1} e^{i\overline{kR}} = i \sum_{n=1}^{4} e^{i\overline{kR}} L \Big/ \left(\overline{L}\frac{\partial}{\partial k_{\parallel}} L\right)_c \tag{3}$$

при $\bar{k}=\bar{k}_n$, удовлетворяющим уравнению $|L|=0$. Учитывая, что при $\bar{k}=\bar{k}_n$ $L=\bar{e}_n'\cdot\bar{e}_n$ и $\left(\bar{L}\frac{\partial}{\partial k_\parallel}\bar{k}^{x^2}\right)_c=-2\,[\bar{e}_n'\,[\bar{k}_n\bar{e}_n]]\,\bar{q}\equiv-2s_{nq}$, где $\bar{e}_n$ — собственный вектор оператора L, отвечающий нулевому собственному значению, и подставляя (3) в (2), получим

$$\hat{G}\,(\bar{R},T)=-i2\,(2\pi)^{-3}\sum_{n=1}^{2}\int d\bar{k}_\perp d\omega e^{i(\bar{k}_n\bar{R}-\omega_nT)}\,\bar{e}_n'\cdot\bar{e}_n/(2s_{nq}-\sigma_n)+\hat{G}_0, \qquad (4)$$

где $\sigma_n=\left[\bar{e}_n'\bar{e}_n\frac{\partial}{\partial k_\parallel}\left(\frac{\omega^2}{c^2}\,\varepsilon'\right)\right]_c$. Хотя возможно дальнейшее интегрирование, удобнее пользоваться функцией Грина в этом виде. Следует особо отметить, что $\bar{Q}$ в решении (1) определяется полем $\bar{E}$, которое неизвестно.

Рассмотрим случай нормального падения на кристалл сфокусированного лазерного излучения. Предположим, что в прямоугольной системе координат, ось которой z параллельна нормали к поверхности кристалла $\bar{q}$, напряженность электрического поля светового пучка в воздухе можно аппроксимировать выражением

$$\bar{E}=\bar{\mathscr{E}}e^{i(\tilde{k}z-\omega t)},$$

$$\bar{\mathscr{E}}=\frac{\bar{\mathscr{E}}_0}{4\pi}\int dk_xe^{-\frac{u_x^2k_x^2}{4}+ixk_x}\int dk_ye^{-\frac{u_y^2k_y^2}{4}+iyk_y}=\frac{\bar{\mathscr{E}}_0}{u_xu_y}\,e^{-\frac{x^2}{u_x^2}-\frac{y^2}{u_y^2}}, \qquad (5)$$

где $u_x^2=u_{0x}^2+2iz/k$; $u_y^2=u_{0y}^2+2iz/k$; u_{0x} и u_{0y} — полудиаметры эллиптического светового пятна в плоскости, нормальной вектору $\bar{q}$, помещенной в фокусе; $\tilde{k}=\bar{k}+i\alpha\bar{q}$; α — коэффициент поглощения. При такой аппроксимации оставлены только первые два члена разложения

$$k_z=k\left(1-\frac{[\bar{k}\bar{q}]^2}{k^2}\right)^{1/2}\approx k\left(1-\frac{[\bar{k}\bar{q}]^2}{2k^2}-\frac{[\bar{k}\bar{q}]^4}{8k^4}\cdots\right).$$

Следовательно, предполагается, что $z\frac{[\bar{k}\bar{q}]^4}{8k^3}\ll\pi$, т. е. $z\sin^4\gamma\ll8\pi/k$. Это, в свою очередь, предполагает, что $u_0\geqslant2/k\sin\gamma$. Таким образом, полуугол расходимости светового пучка γ определяет как расстояние z, на котором допустимо рассматривать сфокусированное излучение лазера как плоскую волну (5), так и минимальные размеры светового пятна. Поскольку в оптическом диапазоне частот $k\approx10^5$ *см*$^{-1}$, допустимые $z\ll(10\gamma)^{-4}$ *см* и $u_0\geqslant10^{-5}\gamma^{-1}$ *см*.

Поле обеих волн в кристалле естественно искать в таком же виде, как в воздухе. Однако величина $\bar{k}$ в кристалле, вообще говоря, будет зависеть от направления. Чтобы найти эту зависимость, выразим $\bar{k}$ в виде $\bar{k}=(k_0+\eta)\,\bar{q}+[\bar{q}\,[\bar{k}\bar{q}]]$, где k_0 — постоянная величина. Подставив это выражение в уравнение нормалей $|L|=0$, в первом приближении получим $\eta=\frac{[\bar{s}_0\bar{q}]\,[\bar{k}\bar{q}]}{s_{0q}}$. Следовательно, в кристалле в том же приближении, как в воздухе

$$k_z=k_0\left(1-\frac{[\bar{k}\bar{q}]^2}{2k_0^2}\right)-\frac{[\bar{s}_0\bar{q}]^2}{s_{0q}}\,[\bar{k}\bar{q}].$$

Из равенства тангенциальных компонент поля $\overline{E}$ на границе следует, что в кристалле нужно x и y заменить на $x-\frac{[\overline{s_0 q}]_x}{s_{0q}}z$ и $y-\frac{[\overline{s_0 q}]_y}{s_{0q}}z$, а z — на $z+z_0\left(1-\frac{k_0}{k}\right)$, где z_0 — расстояние от поверхности кристалла до фокуса в воздухе, т. е. фокус в кристалле приближается к границе и сносится в сторону. В оптическом диапазоне частот для необыкновенной волны в кристаллах типа KDP и ADP $\frac{|[\overline{s_0 q}]|}{s_{0q}}=\operatorname{tg}\beta\approx\beta\leqslant 0{,}03$ (β — угол между вектором $\overline{k}_0$ и лучом s_0) и $1-\frac{k_0}{k}\approx -0{,}5$. Что касается $\overline{\mathscr{E}}$ для обоих пучков (волн) в кристалле, то они могут быть определены теми же формулами, что и для плоских волн с волновым вектором $\overline{k}_0$ (см., например, [1]). Кроме того, следует заметить, что поглощение кристалла считается малым; мнимая часть вектора $\overline{k}$ здесь учитывается лишь в экспоненте $e^{i\widetilde{k}_0 z}$ формулы (5). В результате, если начало системы координат поместить в фокус одного из пучков (волн) в воздухе и ограничиться только квадратичной поляризуемостью кристалла, обусловленной взаимодействием двух волн, то вектор $\overline{Q}$ можно выразить следующим образом:

$$\overline{Q}=\frac{\overline{Q}_0}{2}f_x(\overline{r})f_y(\overline{r})e^{i\left(\widetilde{k}_0' z-\omega' t\right)};$$

$$f_x(\overline{r})=(u_{1x}u_{2x})^{-1}\exp\left(-\frac{x^2}{u_x^2}+\frac{2xz}{v_x^2}-\frac{z^2}{w_x^2}\right); \qquad (6)$$

$$Q_{0i}=\omega'^2\mu_{ik}\chi_{klm}\mathscr{E}_{01l}\mathscr{E}_{02m}^{\pm},$$

где μ и χ — компоненты Фурье тензоров магнитной восприимчивости и нелинейной поляризуемости; $\overline{\mathscr{E}}_{02}^{+}=\overline{\mathscr{E}}_{02}$, $\overline{\mathscr{E}}_{02}^{-}=\overline{\mathscr{E}}_{02}^{*}$;

$$\frac{1}{u_x^2}=\frac{1}{u_{1x}^2}+\frac{1}{u_{2x}^2};\quad \frac{1}{v_x^2}=\frac{\beta_{1x}}{u_{1x}^2}+\frac{\beta_{2x}}{u_{2x}^2};\quad \frac{1}{w_x^2}=\frac{\beta_{1x}^2}{u_{1x}^2}+\frac{\beta_{2x}^2}{u_{2x}^2};$$

$$\omega'=\omega_1\pm\omega_2;\ k_0'=k_{01}\pm k_{02}.$$

Теперь задача сводится к подстановке (4) и (6) в (1) и последовательному интегрированию выражения

$$\overline{E}=i(2\pi c)^{-2}\sum_{n=1}^{4}\int d\overline{k}_{\perp}d\overline{r}'\,d\omega\,dt'\,\frac{\overline{e}_n'\,(\overline{e}_n\overline{Q}_0)\,f_x(\overline{r}')\,f_y(\overline{r}')}{2s_{nq}-\sigma_n}e^{i\left(\overline{k}_n\overline{R}+\widetilde{k}_0' z'-\omega_n T-\omega' t'\right)}. \qquad (7)$$

В результате интегрирования по t' получим $\frac{\sin\tau(\omega_n-\omega')/2}{(\omega_n-\omega')/2}$. Отсюда видно, что в кристалле возникают полосы частот, максимальные амплитуды в которых относятся как $1:2/3\pi:2/5\pi\ldots$, причем полуширина первого максимума равна $2\pi/\tau$. При длительности лазерного импульса $\tau=10^{-7}$ *сек* ширина центральной полосы $\sim 10^8$ *сек*$^{-1}$ на два порядка меньше ширины линии лазерного излучения $\sim 10^{10}$ *сек*$^{-1}$. Если предполагать, что τ велико, тогда вместо $\frac{\sin\tau(\omega_n-\omega')/2}{(\omega_n-\omega')/2}$ получим $2\pi\delta(\omega_n-\omega')$, после чего выполнить интегрирование

по ω_n очень просто:

$$\overline{E} = \frac{ie^{-i\omega t}}{2\pi c^2} \sum_{n=1}^{4} \int d\bar{k}_\perp d\bar{r}' \frac{\bar{e}_n' (\bar{e}_n \bar{Q}_0) f_x(\bar{r}') f_y(\bar{r}')}{2s_{nq} - \sigma_n} e^{i(\bar{k}_n \bar{R} + \bar{k}_0' z')} \tag{8}$$

при $\omega_n = \omega' \equiv \omega$. Интегрирование по x' и y' также легко провести, распространив пределы интегрирования до $\pm\infty$. Например,

$$\int dx' \exp\left[-\frac{x'^2}{u_x^2} - i\left(k_{nx} + i\frac{2z'}{v_x^2}\right)x'\right] = \sqrt{\pi}\, u_x \exp\left[-\frac{u_x^2}{4}\left(k_{nx} + i\frac{2z'}{v_x^2}\right)^2\right].$$

Чтобы провести интегрирование по k_{nx} и k_{ny}, учтем, что изменение всех величин под знаком интеграла с изменением $\bar{k}_\perp$ несущественно по сравнению с изменением экспоненты, которая, кроме того, срезает вклад от больших $\bar{k}_\perp$. Вынося средние значения этих сомножителей за знак интеграла, разложив показатель экспоненты в ряд, как и раньше, сохранив только первые члены и оставив мнимую часть $\bar{k}_n$ лишь в $e^{\widetilde{k}_{n0} z}$, например, для k_{nx} получаем

$$\int dk_x \exp\{-k_{nx}^2 u_x^2 [1 + i2(z - z')/k_{n0} u_x^2]/4 + i[x - \beta_x z + (\beta_x - u_x^2/v_x^2) z'] k_{nx}\} =$$

$$= 2\sqrt{\pi}\left(u_x \sqrt{1 + i2(z - z')/k_{n0} u_x^2}\right)^{-1} \exp\left\{-\frac{[x - \beta_x z + (\beta_x - u_x^2/v_x^2) z']^2}{u_x^2 [1 + i2(z - z')/k_{n0} u_x^2]}\right\},$$

где β — угол между волновым вектором и лучом преобразованной волны.

Окончательно для преобразованной волны $\overline{E}$ вместо (8) будем иметь

$$\overline{E} = \frac{i\pi (\bar{e}\,\overline{Q}_0)\, e^{i(\widetilde{k}_0 z - \omega t)}}{c^2 s_q} I\bar{e}' + \overline{E}_0; \quad I = \int_{z_1}^{z_2} dz' g_x(z') g_y(z') e^{i(\widetilde{k}_0' - \widetilde{k}_0) z'}; \tag{9}$$

$$g_x(z') = \left[u_{1x} u_{2x} \sqrt{1 + i2(z - z')/k_0 u_x^2}\right]^{-1} \exp\left[-\left(\frac{1}{w_x^2} - \frac{u_x^2}{v_x^4}\right) z'^2 - \right.$$

$$\left. - \frac{[x - \beta_x z + (\beta_x - u_x^2/v_x^2) z']^2}{u_x^2 [1 + i2(z - z')/k_0 u_x^2]}\right].$$

В этом выражении пренебрегается дисперсией и опускается σ, кроме того, оставлен лишь один член суммы, для которого почти выполняется условие согласования, т. е. $k_0' - k_0$ наименьшее, и введено поле $\overline{E}_0$, обусловленное несингулярной частью функции Грина и определяемое из граничных условий. Средняя плотность потока энергии преобразованной частоты через поверхность, нормальную вектору q, равна

$$S_q = \frac{c^2}{8\pi\omega\mu} |\overline{E}|^2 s_q = \frac{\pi |(\bar{e}\overline{Q}_0)^2 e^{-2\alpha z}}{8c^2\omega\mu s_q} I(z') I(z'')^*, \tag{10}$$

где α и μ — коэффициент поглощения и магнитная восприимчивость для преобразованного излучения. Если считать $\mu \approx 1$, $\cos\beta \approx 1$ и $\hat{\bar{e}} = \mathrm{Re}\,\bar{e}$, то $s_q = \frac{\omega}{c} n$ (n — показатель преломления); $(\bar{e}\overline{Q}_0) = \omega^2 d \mathscr{E}_{01} \mathscr{E}_{02}$; $d = \chi_{ikl} \hat{e}_i \hat{e}_{1k} \hat{e}_{2l}$ — коэффициент нелинейного взаимодействия волн. Подставляя эти выражения в (10) и вводя интенсивности падающего излучения, получим выражения интенсив

ности преобразованного излучения через интенсивности падающего

$$S_q = \frac{8\pi^3\omega^2 d^2 S_{01} S_{02} e^{-2\alpha z}}{c^3 n n_1 n_2} I(z') I(z'')^*. \tag{11}$$

Интеграл I существенно упрощается при u_{0ix}^2, $u_{0iy}^2 \gg 2z/k_0'$ и u_{0x}^2, $u_{0y}^2 \gg 2(z-z')k_0$. Тогда малыми величинами можно пренебречь и величину $I(z')I(z'')^*$ записать следующим образом:

$$I(z')I(z'')^* = \frac{\pi^4}{\sigma_{01}^2\sigma_{02}^2}\int_{z_1}^{z_2} dz'\,dz'' \exp[-a'(z'^2+z''^2) - 2b'(z'+z'') + 2ib''(z'-z'') - h');$$

$$a' = \frac{1}{w_{0x}^2} - \frac{u_{0x}^2}{v_{0x}^4} + \frac{(\beta_x - u_{0x}^2/v_{0x}^2)^2}{u_{0x}^2} + \frac{1}{w_{0y}^2} - \frac{u_{0y}^2}{v_{0y}^4} + \frac{(\beta_y - u_{0y}^2/v_{0y}^2)^2}{v_{0y}^2};$$

$$b' = \frac{(x-\beta_x z)(\beta_x - u_{0x}^2/v_{0x}^2)}{u_{0x}^2} + \frac{(y-\beta_y z)(\beta_y - u_{0y}^2/v_{0y}^2)}{u_{0y}^2} + \frac{\alpha'-\alpha}{2}; \tag{12}$$

$$b'' = \frac{k_0' - k_0}{2}, \quad h' = 2\left[\frac{(x-\beta_x z)^2}{u_{0x}^2} + \frac{(y-\beta_y z)^2}{u_{0y}^2}\right], \quad \sigma_{0i} = \pi u_{0ix} u_{0iy}.$$

Если теперь ввести в (11) мощности преобразуемого излучения $P_{0i} = \frac{\pi^2}{2\sigma_{0i}} S_{0i}$ и проинтегрировать S_q по x и y, получим выражение мощности преобразованного излучения через мощность падающего:

$$P_q = \frac{16\pi^2\omega^2 d^2 P_{01} P_{02} e^{-2\alpha z}}{c^3 n n_1 n_2} j(z') j(z'')^*;$$

$$j(z')j(z'')^* = \frac{\sigma_0}{\sigma_{01}\sigma_{02}}\int_{z_1}^{z_2} dz'dz'' \exp[-a(z'^2+z''^2) + 2bz'z'' - 2h(z'+z'') + i2h''(z'-z'');$$

$$a = \frac{1}{w_{0x}^2} - \frac{u_{0x}^2}{v_{0x}^4} + \frac{1}{2}\frac{(\beta_x - u_{0x}^2/v_{0x}^2)^2}{u_{0x}^2} + \frac{1}{w_{0y}^2} - \frac{u_{0y}^2}{v_{0y}^4} + \frac{1}{2}\frac{(\beta_y - u_{0y}^2/v_{0y}^2)^2}{u_{0y}^2}; \tag{13}$$

$$b = \frac{1}{2}\frac{(\beta_x - u_{0x}^2/v_{0x}^2)^2}{u_{0x}^2} + \frac{1}{2}\frac{(\beta_y - u_{0y}^2/v_{0y}^2)^2}{u_{0y}^2}, \quad h = \frac{\alpha'-\alpha}{2}, \quad h'' = \frac{k_0' - k_0}{2}.$$

Остановимся на случае, когда $h''=0$. При $a^2 - b^2 \neq 0$, вводя новые переменные $\zeta = \frac{1}{\sqrt{2}}(z'+z'') + \sqrt{2}\,p$, $\zeta' = \frac{1}{\sqrt{2}}(-z'+z'')$, $p = h/(a-b)$, будем иметь

$$j(z')j(z'')^* = \frac{\sqrt{\pi}\,\sigma_0 e^{2ph}}{\sigma_{01}\sigma_{02}\sqrt{a-b}}\int_{\sqrt{2}z_1-p}^{\sqrt{2}z_2-p} d\zeta e^{-(a+b)\zeta^2}\{\Phi[(l/\sqrt{2}-\zeta)\sqrt{a-b}] + \Phi[(l/\sqrt{2}+\zeta)\sqrt{a-b}]\}, \tag{14}$$

где $l = z_2 - z_1$,

$$\Phi(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x e^{-t^2} dt$$

— интеграл вероятности. Как видно из (14), при большой толщине кристалла l наступает насыщение и с дальнейшим увеличением l мощность преобразованного излучения не возрастает. Это насыщение обусловлено тем, что на достаточно большом расстоянии преобразуемые пучки расходятся и нелинейная поляризуемость частоты ω не создается.

При преобразовании излучения на одноосном кристалле обычно выбирают ось y (или x) параллельно собственному вектору обыкновенной волны в кристалле и все $\beta_y = 0$ и $\frac{1}{v_{0y}^2} = \frac{1}{w_{0y}^2} = 0$. Тогда для преобразования на отрицательном одноосном кристалле обыкновенной и необыкновенной в необыкновенную волну будем иметь

$$b = \frac{1}{2}\left(\beta_x - \frac{\beta_{2x} u_{01x}^2}{u_{01x}^2 + u_{02x}^2}\right)^2 \left(\frac{1}{u_{01x}^2} + \frac{1}{u_{02x}^2}\right), \quad a = \frac{\beta_{2x}^2}{u_{01x}^2 + u_{02x}^2} + b,$$

для двух обыкновенных в необыкновенную

$$a = b = \frac{\beta_x^2}{2}\left(\frac{1}{u_{01x}^2} + \frac{1}{u_{02x}^2}\right).$$

В последнем случае при $h = 0$ получим

$$j(z') j(z'')^* = \frac{\sigma_0}{\sigma_{01}\sigma_{02}} \left[\frac{\sqrt{\pi}\, l}{\sqrt{a}} \Phi(l\sqrt{a}) - \frac{1}{a}(e^{-al^2} - 1)\right]. \tag{15}$$

Это выражение было уже получено ранее [2—4] и детально исследовано и проверено экспериментально [4]. Преобразование сфокусированного излучения также изучалось в работах [5, 6]. В отличие от проведенного здесь рассмотрения в работах [5, 6], хотя и больше внимания уделено сильной фокусировке, но, как и в работах [3, 4], исследование ограничивается случаем преобразования обыкновенных волн на одноосных отрицательных кристаллах.

ЛИТЕРАТУРА

1. Б. В. Бокуть, А. Г. Хаткевич.— ДАН БССР, **8**, 713, 1964.
2. Б. В. Бокуть, А. Г. Хаткевич.— Ж. прикл. спектр., **1**, 97, 1964.
3. D. H. McMahon, A. R. Franklin.— App. Phys. Lett., **6**, 14, 1965.
4. L. D. Boyd and oth.— Phys. Rev. **137**, A1305, 1965.
5. С. А. Ахманов, А. П. Сухоруков, А. В. Хохлов.— ЖЭТФ, **50**, 474, 1966.
6. J. E. Bjorkholm.— Phys. Rev., **142**, 126, 1966.