

ТРАНСФОРМАЦИЯ ПОЛЯРИЗАЦИОННЫХ ХАРАКТЕРИСТИК ИМПУЛЬСНОГО СВЕТОВОГО ПУЧКА ПРИ УДВОЕНИИ ЧАСТОТЫ В ИЗОТРОПНОЙ ХИРАЛЬНОЙ СРЕДЕ

Н. Ю. Кузнецов

Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования
«Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова»

Настоящий доклад посвящён изучению такого классического и хорошо известного эффекта нелинейной оптики, как генерация второй гармоники (ГВГ). Данное явление было впервые описано Питером Франкеном в 1961 году [1]. Несмотря на столь солидный возраст эффекта, он до сих пор привлекает внимание исследователей и с экспериментальной, и с теоретической точки зрения. В последнем случае интересным вопросом являются возможные механизмы, за счёт которых генерация может осуществляться в средах с различными оптическими свойствами; в частности – классами симметрии.

Важной особенностью эффекта является тот факт, что наблюдение ГВГ в изотропных средах запрещено с точки зрения классического механизма удвоения частоты за счёт нелинейной восприимчивости $\chi^{(2)}$, так как в подобных средах условия симметрии обязывают этот тензор обратиться в тождественный ноль. Несмотря на это, ряд механизмов, разрешающих ГВГ в подобных условиях уже был описан. К ним относятся генерация за счёт приповерхностных нарушений симметрии [2, 3], создание плазмы с оптическими свойствами, отличными от свойств исходного вещества мощным излучением [4], вырожденные шестифотонные процессы [5] и использование деформированной (скрученной) среды [6].

Кроме того, был описан механизм ГВГ за счёт нелокальности нелинейного оптического отклика неоднородно поляризованным излучением [7]. В настоящей работе рассматривается ещё одна возможность: генерация за счёт частотной дисперсии нелинейного отклика. Как и в случае с нелокальным откликом, этот механизм существенно зависит от поляризационного состояния падающего излучения и требует от импульса сложной, неоднородной во времени поляризационной структуры.

Современные методы позволяют создавать пучки с достаточно сложным профилем, среди которых необходимо выделить особый класс пучков, обладающих ненулевым орбитальным моментом. Такие пучки имеют фазовую сингулярность, также известную как оптический вихрь – точку, в которой интенсивность излучения обращается в ноль, а фаза становится неопределённой. По поведению фазы в ближайшей окрестности такой точки, сингулярности классифицируются двумя параметрами: топологическим зарядом, определяющим число полных оборотов фазы при обходе сингулярности по малому замкнутому контуру, и топологическим классом, определяющим число линий, касательных полю, исходящих из неё.

Помимо фазовых, существуют и поляризационные сингулярности – точки, в которых эллипс поляризации вырождается в окружность, а определённое значение теряет направление его осей. Пучки, содержащие такие сингулярности, используются в настоящей работе как основные моды неоднородно поляризованного поля.

Для описания состояний поляризации в данной работе используется циркулярный базис, подразумевающий разложение по двум противоположным круговым поляризациям, комплексные амплитуды которых $E_{\pm}^{(\omega)}$ равны $E_{\pm}^{(\omega)} = (E_x^{(\omega)} \pm iE_y^{(\omega)})/\sqrt{2}$. Этот базис удобен для изучения интересующих нас пучков, так как поляризационной сингулярности излучения в целом соответствует фазовая сингулярность одной из циркулярных компонент.

Было проведено аналитическое и численное исследование ГВГ за счёт частотной дисперсии нелинейного отклика, показана необходимость использования неоднородно поляризованных пуч-

ков и исследована зависимость поляризованного состояния сигнального поля от структуры падающего пучка.

Расчёт проводился в приближении заданного поля с использованием второго порядка теории дисперсии и параболического приближения дифракции. В таких условиях общее уравнение для распространения излучения на основной частоте имеет вид

$$\left[\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{u_\omega} \frac{\partial}{\partial t} \right) - \frac{i}{2k_\omega} \Delta_\perp + \frac{ik_\omega''}{2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right] E_\pm^{(\omega)} = 0, \quad (1)$$

где $\Delta_\perp = \partial_x^2 + \partial_y^2$ – поперечный Лапласиан, k_ω, u_ω и k_ω'' – волновое число, групповая скорость и коэффициент дисперсии на основной частоте соответственно.

Поскольку для генерации за счёт дисперсии нелинейности критически важна неоднородная поляризация входного импульса, для расчёта было выбрано входное излучение, состоящее из двух импульсов, разнесённых во времени.

$$E_{\Sigma\pm}^{(\omega)}(\mathbf{r}, z, t) = E_{1\pm}^{(\omega)}(\mathbf{r}, z, t - \delta) + E_{2\pm}^{(\omega)}(\mathbf{r}, z, t + \delta). \quad (2)$$

В данной работе $E_{1\pm}^{(\omega)}(\mathbf{r}, z, t)$, имеет вид

$$E_{1\pm}^{(\omega)}(\mathbf{r}, z, t) = f_{1\pm}(\mathbf{r}, z)G(\mathbf{r}, z, t), \quad (3)$$

где \mathbf{r} – поперечный радиус-вектор, $f_{1\pm}(\mathbf{r}, z)$ отвечает за модовую структуру пучка, а $G(\mathbf{r}, z, t)$ – гауссова пространственно-временная огибающая:

$$G(\mathbf{r}, z, t) = \frac{1}{\beta_z(z)\beta_t(z)} \exp \left[-\frac{r^2}{w^2\beta_z(z)} - \frac{[t - (z - l_0)/u_\omega]^2}{\tau_0^2\beta_t^2(z)} \right] \quad (4)$$

с полушириной w и длительностью τ_0 . При этом $\beta_{t,z}$ – функции распространения, имеющие следующий вид:

$$\begin{aligned} \beta_z(z) &= 1 + i(z - l_0)/l_d, \\ \beta_t(z) &= \sqrt{1 - i(z - l_0)/l_{ds}}, \end{aligned} \quad (5)$$

где $l_d = k_\omega w^2/2$ – дифракционная, а $l_{ds} = \tau_0^2/(2k_\omega'')$ – дисперсионная длины соответственно.

Второй импульс был выбран в виде результата прохождения первого через полуволновую пластину. Таким образом

$$E_{2\pm}^{(\omega)}(\mathbf{r}, z, t) = E_{1\mp}^{(\omega)}(\mathbf{r}, z, t). \quad (6)$$

Наконец, остаётся выбрать конкретный вид модового состава импульсов основного излучения $f_{1\pm}(\mathbf{r}, z) = f_{2\mp}(\mathbf{r}, z)$. В простейшем случае чисто гауссовых импульсов генерации не наблюдается, поэтому были использованы сингулярно поляризованные импульсные пучки, одна из циркулярных компонент которых была гауссовой, а вторая представляла линейную комбинацию двух лаггер-гауссовых мод:

$$f_{1\pm}(\mathbf{r}, z) = E_L \frac{p(x + iy) + q(x - iy)}{\sqrt{2}w\beta_z(z)}, \quad f_{1\mp}(\mathbf{r}, z) = E_G, \quad (7)$$

где p, q, E_G и E_L – комплексные константы и $|p|^2 + |q|^2 = 1$. Такой пучок обладает поляризационной сингулярностью на оси, топологический заряд которой равен $\pm \frac{1}{2} \operatorname{sgn} \{|p|^2 - |q|^2\}$.

Обратимся теперь к свойствам рассматриваемой среды. В общем случае квадратичная компонента отклика вещества на внешнее электрическое поле может быть описана с помощью тензора диэлектрической восприимчивости χ_{ijk} :

$$P_i^{(2)}(\mathbf{r}, t) = \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^t dt_2 \int d\mathbf{r}_1 \int d\mathbf{r}_2 \chi_{ijk}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, t_1, t_2) E_j(\mathbf{r} - \mathbf{r}_1, t - t_1) E_k(\mathbf{r} - \mathbf{r}_2, t - t_2). \quad (8)$$

В данной работе нас интересует случай пространственно-локального, но диспергирующего отклика:

$$\chi_{ijk}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, t_1, t_2) = \chi_{ijk}(t_1, t_2) \delta(\mathbf{r}_1) \delta(\mathbf{r}_2). \quad (9)$$

Проведя преобразование Фурье E и проинтегрировав в соответствии с выражениями (8), (9), получим выражение для комплексных амплитуд поляризации:

$$P_i^{(2\omega)} \approx \left\{ \frac{\partial E_k^{(\omega)}}{\partial t} \chi_{ijk}(\omega, \omega) E_j^{(\omega)} E_k^{(\omega)} + \right. \\ \left. + i \frac{\partial \chi_{ijk}(\omega_1, \omega_2)}{\partial \omega_2} \Big|_{\omega, \omega} E_j^{(\omega)} \frac{\partial E_k^{(\omega)}}{\partial t} + i \frac{\partial \chi_{ijk}(\omega_1, \omega_2)}{\partial \omega_1} \Big|_{\omega, \omega} \frac{\partial E_j^{(\omega)}}{\partial t} E_k^{(\omega)} \right\} \quad (10)$$

где функция $\chi_{ijk}(\omega_1, \omega_2)$ является Фурье-образом $\chi_{ijk}(t_1, t_2)$:

$$\chi_{ijk}(\omega_1, \omega_2) = \int_0^{\infty} dt_1 \int_0^{\infty} dt_2 \chi_{ijk}(t_1, t_2) \exp(i\omega_1 t_1 + i\omega_2 t_2). \quad (10)$$

Для изотропной хиральной среды справедливо перестановочное соотношение $\chi_{ijk}(\omega_1, \omega_2) = \chi_{ikj}(\omega_2, \omega_1)$, а тензор квадратичной восприимчивости должен быть пропорционален тензору Леви-Чивиты: $\chi_{ijk}(\omega, \omega) = \chi(\omega, \omega) e_{ijk}$. С учётом этого, уравнение

Ошибка! Источник ссылки не найден. можно переписать в существенно упрощённом виде:

$$\bar{P}^{(2\omega)} \approx i\gamma_t \left[\frac{\partial \bar{E}^{(\omega)}}{\partial t}, \bar{E}^{(\omega)} \right], \quad (11)$$

где $\gamma_t = 2\partial\chi/\partial\omega_1$, производная берётся при $\omega_1 = \omega_2 = \omega$.

Уравнение распространения сигнальной волны в используемой нами модели генерации имеет следующий вид:

$$\left[\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{u_{2\omega}} \frac{\partial}{\partial t} \right) - \frac{i}{2k_{2\omega}} \Delta_{\perp} + \frac{ik_{2\omega}''}{2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right] E_{\pm}^{(2\omega)} = \frac{2\pi ik_{2\omega}}{\varepsilon_{2\omega}} P_{s\pm}^{(2\omega)} \exp(i\Delta k(z - l_0)). \quad (12)$$

Вычислив значение выражения (11) для нашего импульса (уравнения (2) – (7)), можно получить итоговое выражение для поляризации $P_{s\pm}^{(2\omega)}$ в правой части уравнения (12):

$$\bar{P}_s^{(2\omega)} = \pm \gamma_t E_G E_L \frac{4i\delta}{w\beta_t^2 \beta_z k_\omega \tau_0^2} (p\mathbf{e}_+ + q\mathbf{e}_-) G^2 \exp\left(-\frac{2\delta^2}{\tau_0^2 \beta_t^2}\right), \quad (13)$$

где $\mathbf{e}_\pm = (\mathbf{e}_x \pm i\mathbf{e}_y)/\sqrt{2}$ – вектора, образующие циркулярный базис поляризации.

Решение уравнения (13) осуществлялось с помощью численного счёта по схеме Дугласа – Ганна. Интенсивность сигнального излучения существенно зависит от коэффициентов фазовой $\Delta k = 2k_\omega - k_{2\omega}$ и групповой $\tilde{u}^{-1} = u_{2\omega}^{-1} - u_\omega^{-1}$ расстройки. В то время, как рост групповой расстройки всегда приводит к уменьшению энергии сигнального пучка, для фазовой это, вообще говоря, не так: максимальная интенсивность достигается при положительной фазовой расстройке (случай аномальной дисперсии). На графиках ниже (рис. 1) приведена пиковая и интегральная мощности сигнального пучка для трёх значений фазовой расстройки. Хорошо видно явление квазисинхронизма.

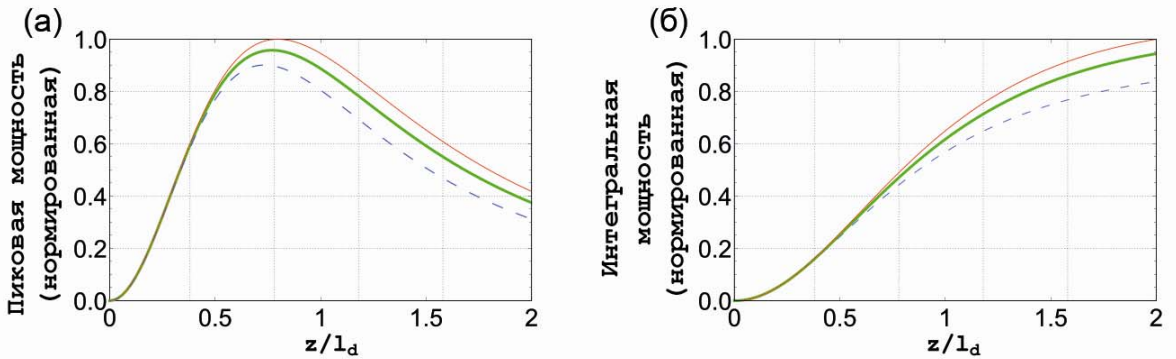


Рис. 1. Зависимость пиковой (а) и интегральной (б) мощностей сигнального импульса от расстояния. Толстая линия соответствует $\Delta k = 0$, тонкая сплошная – $\Delta k = 0,5/l_d$; тонкая пунктирная – $\Delta k = -0,5/l_d$. Остальные параметры: $\tilde{u} = 0$; $l_{ds}/l_d = 5$; $\delta/\tau_0 = 0,45$

Кроме того, численное моделирование выявило зависимость эффективности генерации от параметра δ/τ_0 . При большом запаздывании второго импульса мала область перекрытия, в то время, как при малом запаздывании незначительна неоднородность поляризации. Поэтому для наиболее успешной генерации необходимо некое среднее значение δ/τ_0 , по результатам численного эксперимента лежащее вблизи значения 0,5.

Наибольший интерес представляет поляризационное состояние сигнального излучения. Расчёт показал, что в отличие от основного импульса, сигнальный не будет иметь сингулярной структуры, а будет представлять однородно поляризованный гауссов импульс с эллипсом поляризации, определяемым параметрами p и q из уравнения (7). Это несложно заметить, глядя на вид уравнения (13), в которое правая и левая компоненты поляризации входят одинаково с точностью до коэффициентов p и q соответственно. Третий параметр Стокса для сигнального излучения выражается через эти коэффициенты:

$$S_3^{(2\omega)} = |p|^2 - |q|^2. \quad (14)$$

Графически поляризационные профили основного и сигнального импульса изображены на рис. 2.

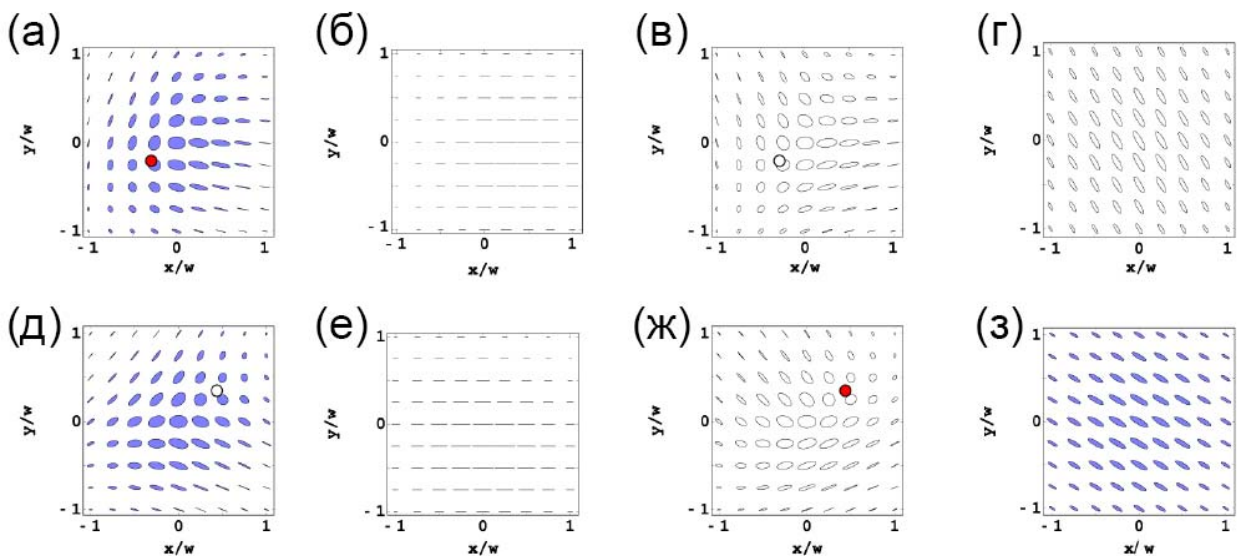


Рис. 2. Поляризационные профили излучения основного (а–в и д–ж) в три различных момента: $-\tau_0$ (а, д), 0 (б, е) и τ_0 (в, ж) и соответствующего им сигнального (г, з) импульсов, сгенерированных за счёт дисперсии нелинейного отклика для двух наборов параметров: $p = \frac{\sqrt{3}}{2}$, $q = 0,5$ (а–г), $p = 0,5$; $q = \frac{\sqrt{3}}{2} \exp(2i\pi/3)$ (д–з). Остальные параметры: $\Delta k = -0,5/l_d$; $\dot{y} = 0$; $l_{ds}/l_d = 5$; $\delta/\tau_0 = 0,45$; $z = l_d$. Лево-поляризованные эллипсы заполнены, право-поляризованные – пусты. Поляризационные сингулярности отмечены заполненными (топологический заряд $1/2$) и пустыми (топологический заряд $-1/2$) круглыми метками

Таким образом, в ходе работы была продемонстрирована качественная возможность осуществления ГВГ в изотропной хиральной среде за счёт дисперсии даже локального квадратичного отклика. Исследованы основные закономерности этого эффекта и показано явление «сглаживания» поляризации. Продemonстрирована важность неоднородной поляризации излучения для данного механизма генерации.

Автор благодарит доктора физ-мат. наук профессора В. А. Макарова и аспиранта лаборатории нелинейной поляризационной оптики кафедры общей физики и волновых процессов физического факультета МГУ им. М. В. Ломоносова К. С. Григорьева за помощь, оказанную в подготовке данной работы.

Список литературы

1. Franken P., Hill A., Peters C., Weinreich G. Generation of Optical Harmonics // Phys. Rev. Letters. 1961. 7 (4): 118–119.
2. Sipe J. E., Moss D. J., and H. M. van Driel. Phenomenological theory of optical second- and third-harmonic generation from cubic centrosymmetric crystals // Phys. Rev. 1987. В 35, 1129–1141.
3. Shen Y. Surface properties probed by second-harmonic and sum-frequency generation // Nature, 1989. 337, 519–525.
4. Beresna M., Kazansky P. G., Svirko Y., Barkauskas M., and Danielius R., “High average power second harmonic generation in air // App. Phys. Lett. 2009. 95, 121502.
5. Coles M. M., Williams M. D., and Andrews D. L. Second harmonic generation in isotropic media: six-wave mixing of optical vortices // Opt. Express, 2013. 21, 12783–12789.
6. Bahabad A. and Arie A. Generation of optical vortex beams by nonlinear wave mixing // Opt. Express, 2007. 15, 17619–17624.
7. Волков С. Н., Коротеев Н. И., Макаров В. А. Генерация второй гармоники гауссовым пучком на оптической нелинейности четвертого порядка в объеме изотропной гиротропной среды // Квантовая Электроника, 1998. 25, № 9, 799–803.