

А.И. Толкачѳв, В.Н. Капшай, А.А. Шамына
(Гомель, Беларусь)

ГЕНЕРАЦИЯ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ-СУММАРНОЙ ЧАСТОТЫ В ТОНКОМ ЦИЛИНДРИЧЕСКОМ СЛОЕ

В приближении Рэля-Ганса-Дебая получено аналитическое решение задачи о нелинейной генерации второго порядка двумя когерентными плоскими эллиптически поляризованными электромагнитными волнами одинаковой частоты в тонком слое на поверхности диэлектрической частицы цилиндрической формы, покрытой тонким слоем, обладающим нелинейными оптическими свойствами.

Ключевые слова: генерация второй гармоники, генерация суммарной частоты, два когерентных источника одинаковой частоты, цилиндрическая частица, нелинейное приближение Рэля-Ганса-Дебая.

In the Rayleigh-Gans-Debye approximation, we have solved the problem of the second-order nonlinear generation by two coherent plane elliptically polarized electromagnetic waves with the same frequency in a thin layer on the surface of a dielectric particle of a cylindrical shape that is coated by a thin layer possessing nonlinear optical properties.

Keywords: second-harmonic generation, sum-frequency generation, two coherent sources with the same frequency, cylindrical particle, nonlinear Rayleigh-Gans-Debye approximation.

К основным нелинейным оптическим эффектам, используемым для исследования поверхностей диэлектрических нано- и микрочастиц, относят генерацию второй гармоники (ГВГ) [1; 2] и генерацию суммарной частоты (ГСЧ) [3; 4], для которых довольно хорошо разработаны теоретические модели. Мы предлагаем рассмотреть нелинейную генерацию от двух когерентных источников одинаковой частоты, это явление будем называть генерацией второй гармоники-суммарной частоты (ГВГ-СЧ).

Нахождение генерируемых полей будем производить в рамках нелинейной модели Рэлея-Ганса-Дебая, при этом ГВГ-СЧ обусловлена нелинейным слагаемым второго порядка вектора поляризации среды:

$$P_i^{(2)} = c_{ijk}^{(2)} (\mathbf{E}^{(1)} + \mathbf{E}^{(2)})_j (\mathbf{E}^{(1)} + \mathbf{E}^{(2)})_k = c_{ijk}^{(2)} \sum_{\alpha=1}^2 \sum_{\beta=1}^2 E_j^{(\alpha)} E_k^{(\beta)}, \quad (1)$$

где $c_{ijk}^{(2)}$ – тензор нелинейной диэлектрической восприимчивости второго порядка, поле первой гармоники представляется в виде суперпозиции полей источников $\mathbf{E}^{(1)}$ и $\mathbf{E}^{(2)}$, $E_j^{(\alpha)}$, $E_k^{(\beta)}$ – их компоненты, индексы α и β здесь и далее показывают принадлежность величины к соответствующему источнику и принимают значения 1 или 2, при этом подразумевается правило суммирования по двум повторяющимся латинским индексам.

Электрические поля источников зададим в виде плоских волн:

$$\mathbf{E}^{(\alpha)}(\mathbf{x}, t) = E_\alpha \mathbf{e}^{(\alpha)} \exp(i\mathbf{k}^{(\alpha)} \mathbf{x} - i\omega t), \quad (2)$$

где E_α – комплексная амплитуда волны, $\mathbf{e}^{(\alpha)}$ – единичный комплексный вектор поляризации, $\mathbf{k}^{(\alpha)}$ – волновой вектор (рисунок), ω – циклическая частота.

Тензор $c_{ijk}^{(2)}$ для данной задачи имеет четыре независимые компоненты $c_{1-4}^{(2)}$, входящие в него в следующем виде:

$$c_{ijk}^{(2)} = c_1^{(2)} n_i n_j n_k + c_2^{(2)} n_i \delta_{jk} + c_3^{(2)} (n_j \delta_{ki} + n_k \delta_{ij}) + c_4^{(2)} n_m (n_k \varepsilon_{ijm} - n_j \varepsilon_{imk}), \quad (3)$$

где n_i – компоненты вектора нормали \mathbf{n} к поверхности (рисунок), δ_{ij} – дельта-символ Кронекера, ε_{ijk} – символ Леви-Чивита.

Проводя рассуждения аналогично работе [3], напряженность электрического поля ГВГ-СЧ от слоя произвольной формы в дальней зоне можно получить в виде

$$\mathbf{E}^{(2\omega)}(\mathbf{x}) \approx k_{2\omega}^2 \frac{\exp(ik_{2\omega} r)}{\hat{\mathbf{a}}_{2\omega} r} (1 - \mathbf{e}_r \otimes \mathbf{e}_r) \int_V \exp(-i\mathbf{k}^{(2\omega)} \mathbf{x}') \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{x}') d^3 \mathbf{x}'. \quad (4)$$

Здесь $\mathbf{k}^{(2\omega)} = k_{2\omega} \mathbf{e}_r$, $k_{2\omega} = \sqrt{\varepsilon_{2\omega} \mu_{2\omega}} 2\omega / c$ – волновой вектор генерируемого поля и его модуль, $\varepsilon_{2\omega}$, $\mu_{2\omega}$ – диэлектрическая и магнитная проницаемости на частоте 2ω , символ \otimes означает тензорное произведение векторов. Инте-

гирование производится по объему V , занятому веществом с нелинейными оптическими свойствами (по нелинейному слою).

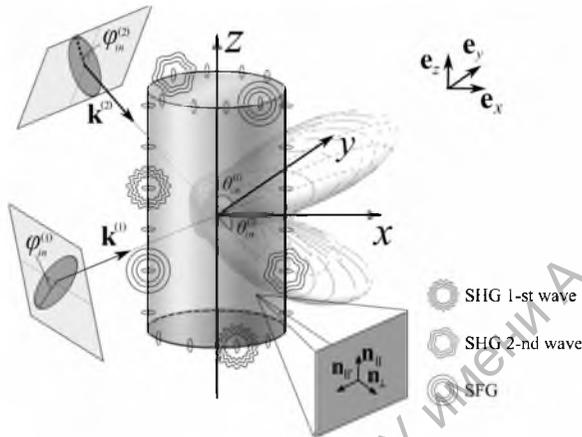


Схема задачи о ГВГ-СЧ от поверхности цилиндрической частицы

Пусть цилиндрическая частица высотой h и радиусом основания a покрыта нелинейным слоем толщины d_0 ($d_0 \ll a, d_0 \ll h$). Расположим ее так, чтобы ось цилиндра совпала с осью Oz цилиндрической системы координат, а геометрический центр находился в начале координат (рисунок). В данном случае интегрирование по нелинейному слою V удобно рассмотреть отдельно для слоя на боковой поверхности V_{lat} и слоев на торцах V_{bc} .

Боковая поверхность

Выражение для напряженности генерируемого поля, при интегрировании по боковой поверхности цилиндра, принимает вид

$$E_{lat,i}^{(2\omega)}(\mathbf{x}) = \mu_{2\omega} \frac{(2\omega)^2 \exp(ik_{2\omega}r)}{c^2 r} (\delta_{im} - e_{r,i}e_{r,m}) \times \quad (5)$$

$$\sum_{\alpha=1}^2 \sum_{\beta=1}^2 E_{\alpha} E_{\beta} e_j^{(\alpha)} e_k^{(\beta)} \int_a^{a+d_0} r' dr' \int_{-h/2}^{h/2} \exp(iq_{||}^{(\alpha\beta)} z') dz' \int_0^{2\pi} \exp(ia\mathbf{q}_{\perp}^{(\alpha\beta)} \mathbf{n}) \chi_{mjk}^{(2)}(\mathbf{n}) d\varphi',$$

где вектор нормали \mathbf{n} имеет компоненты $(\cos\varphi', \sin\varphi', 0)$, векторы рассеяния $\mathbf{q}^{(\alpha\beta)} = \mathbf{k}^{(\alpha)} + \mathbf{k}^{(\beta)} - \mathbf{k}^{(2\omega)}$ раскладываются на составляющие параллельную оси Oz ($\mathbf{q}_{||}$) и перпендикулярную ей (\mathbf{q}_{\perp}):

$$\mathbf{q}_{||}^{(\alpha\beta)} = (\mathbf{q}^{(\alpha\beta)} \mathbf{e}_z) \mathbf{e}_z = q_{||}^{(\alpha\beta)} \mathbf{e}_z, \quad \mathbf{q}_{\perp}^{(\alpha\beta)} = \mathbf{q}^{(\alpha\beta)} - \mathbf{q}_{||}^{(\alpha\beta)}, \quad q_{\perp}^{(\alpha\beta)} = |\mathbf{q}_{\perp}^{(\alpha\beta)}|. \quad (6)$$

Интегрируя по переменным r' и z' , получаем

$$E_{\text{lat},i}^{(2\omega)}(\mathbf{x}) = \mu_{2\omega} \frac{(2\omega)^2 \exp(ik_{2\omega}r)}{c^2 r} d_0 ah (\delta_{im} - e_{r,i} e_{r,m}) \times \quad (7)$$

$$\times \sum_{\alpha=1}^2 \sum_{\beta=1}^2 E_{\alpha} E_{\beta} e_j^{(\alpha)} e_k^{(\beta)} \frac{\sin(q_{\parallel}^{(\alpha\beta)} h / 2)}{q_{\parallel}^{(\alpha\beta)} h / 2} \int_0^{2\pi} \exp(ia\mathbf{q}_{\perp}^{(\alpha\beta)} \mathbf{n}) \chi_{mj}^{(2)}(\mathbf{n}) d\varphi'.$$

При подстановке в явного вида тензора $\chi_{mj}^{(2)}$ получаются интегралы, вычисление которых было произведено в работе [4], связанной с определением генерируемого поля суммарной частоты от цилиндрической поверхности. Учитывая это, напряженность ГВГ-СЧ от боковой поверхности представим в виде

$$\mathbf{E}_{\text{lat}}^{(2\omega)}(\mathbf{x}) = 2\pi\mu_{2\omega} \frac{(2\omega)^2 \exp(ik_{2\omega}r)}{c^2 r} d_0 ah (1 - \mathbf{e}_r \otimes \mathbf{e}_r) \sum_{\alpha=1}^2 \sum_{\beta=1}^2 E_{\alpha} E_{\beta} \mathbf{f}_{\text{lat}}^{(\alpha\beta)}. \quad (8)$$

Здесь векторы $\mathbf{f}_{\text{lat}}^{(\alpha\beta)}$ определяются следующим образом:

$$\begin{aligned} \mathbf{f}_{\text{lat}}^{(\alpha\beta)} = & \frac{\sin(q_{\parallel}^{(\alpha\beta)} h / 2)}{q_{\parallel}^{(\alpha\beta)} h / 2} (i\chi_1^{(2)}) \left\{ -J_3(q_{\perp}^{(\alpha\beta)} a) \mathbf{v}^{(\alpha\beta)} (\mathbf{v}^{(\alpha\beta)} \mathbf{e}^{(\alpha)}) (\mathbf{v}^{(\alpha\beta)} \mathbf{e}^{(\beta)}) + \right. \\ & + \frac{1}{4} (J_1(q_{\perp}^{(\alpha\beta)} a) + J_3(q_{\perp}^{(\alpha\beta)} a)) \left[\mathbf{v}^{(\alpha\beta)} \left((\mathbf{e}^{(\alpha)} \mathbf{e}^{(\beta)}) - (\mathbf{e}^{(\alpha)} \mathbf{e}_z) (\mathbf{e}^{(\beta)} \mathbf{e}_z) \right) + \right. \\ & \left. \left. + (\mathbf{v}^{(\alpha\beta)} \mathbf{e}^{(\alpha)}) (\mathbf{e}^{(\beta)} - \mathbf{e}_z (\mathbf{e}^{(\beta)} \mathbf{e}_z)) + (\mathbf{v}^{(\alpha\beta)} \mathbf{e}^{(\beta)}) (\mathbf{e}^{(\alpha)} - \mathbf{e}_z (\mathbf{e}^{(\alpha)} \mathbf{e}_z)) \right] \right\} + \quad (9) \\ & + iJ_1(q_{\perp}^{(\alpha\beta)} a) (\chi_2^{(2)} \mathbf{v}^{(\alpha\beta)} (\mathbf{e}^{(\alpha)} \mathbf{e}^{(\beta)}) + \chi_3^{(2)} \mathbf{e}^{(\alpha)} (\mathbf{v}^{(\alpha\beta)} \mathbf{e}^{(\beta)}) + \chi_3^{(2)} \mathbf{e}^{(\beta)} (\mathbf{v}^{(\alpha\beta)} \mathbf{e}^{(\alpha)})) - \\ & - \frac{1}{2} \chi_4^{(2)} (J_0(q_{\perp}^{(\alpha\beta)} a) + J_2(q_{\perp}^{(\alpha\beta)} a)) \left([\mathbf{e}^{(\alpha)} \times \mathbf{e}_z] (\mathbf{e}^{(\beta)} \mathbf{e}_z) + [\mathbf{e}^{(\beta)} \times \mathbf{e}_z] (\mathbf{e}^{(\alpha)} \mathbf{e}_z) \right) \\ & - \chi_4^{(2)} J_2(q_{\perp}^{(\alpha\beta)} a) \left([\mathbf{e}^{(\alpha)} \times \mathbf{v}^{(\alpha\beta)}] (\mathbf{v}^{(\alpha\beta)} \mathbf{e}^{(\beta)}) + [\mathbf{e}^{(\beta)} \times \mathbf{v}^{(\alpha\beta)}] (\mathbf{v}^{(\alpha\beta)} \mathbf{e}^{(\alpha)}) \right), \end{aligned}$$

где $\mathbf{v}^{(\alpha\beta)}$ – единичные векторы вдоль $\mathbf{q}_{\perp}^{(\alpha\beta)}$, $J_m(q_{\perp}^{(\alpha\beta)} a)$ – цилиндрические функции Бесселя.

Торцы цилиндра

В данном случае интегрирование в (4) проводится по верхнему и нижнему торцам соответственно:

$$\begin{aligned}
E_{\text{be},i}^{(2\omega)}(\mathbf{x}) &= \mu_{2\omega} \frac{(2\omega)^2}{c^2} \frac{\exp(ik_{2\omega}r)}{r} (\delta_{im} - e_{r,i}e_{r,m}) \sum_{\alpha=1}^2 \sum_{\beta=1}^2 E_{\alpha} E_{\beta} e_j^{(\alpha)} e_k^{(\beta)} \times \\
&\times \left[\int_{h/2}^{h/2+d_0} \exp(iq_{\perp}^{(\alpha\beta)} z') \chi_{mjk}^{(2)}(z') dz' \int_0^a r' dr' \int_0^{2\pi} \exp(iq_{\perp}^{(\alpha\beta)} r' \cos \varphi') d\varphi' + \right. \\
&+ \left. \int_{-h/2-d_0}^{-h/2} \exp(iq_{\perp}^{(\alpha\beta)} z') \chi_{mjk}^{(2)}(z') dz' \int_0^a r' dr' \int_0^{2\pi} \exp(iq_{\perp}^{(\alpha\beta)} r' \cos \varphi') d\varphi' \right] = (10) \\
&= \pi \mu_{2\omega} \frac{(2\omega)^2}{c^2} \frac{\exp(ik_{2\omega}r)}{r} a^2 d_0 (\delta_{im} - e_{r,i}e_{r,m}) \times \\
&\times \sum_{\alpha=1}^2 \sum_{\beta=1}^2 E_{\alpha} E_{\beta} e_j^{(\alpha)} e_k^{(\beta)} \left(J_0(q_{\perp}^{(\alpha\beta)} a) + J_2(q_{\perp}^{(\alpha\beta)} a) \right) \times \\
&\times \left[\exp(iq_{\perp}^{(\alpha\beta)} h/2) \chi_{mjk}^{(2)}(h/2) + \exp(-iq_{\perp}^{(\alpha\beta)} h/2) \chi_{mjk}^{(2)}(-h/2) \right],
\end{aligned}$$

где тензоры нелинейной диэлектрической восприимчивости $\mathbf{c}_{mjk}^{(2)}(\pm h/2)$ на верхнем и нижнем торцах выражаются через $e_{z,i}$ – компоненты единичного вектора вдоль оси Oz (для верхнего торца вектор нормали к поверхности $\mathbf{n} = \mathbf{e}_z$, для нижнего $\mathbf{n} = -\mathbf{e}_z$):

$$\begin{aligned}
\mathbf{c}_{mjk}^{(2)}(h/2) &= \mathbf{c}_1^{(2)} e_{z,m} e_{z,j} e_{z,k} + \mathbf{c}_2^{(2)} e_{z,m} \mathbf{d}_{jk} + \mathbf{c}_3^{(2)} (e_{z,j} \mathbf{d}_{km} + e_{z,k} \mathbf{d}_{mj}) + \\
&+ \mathbf{c}_4^{(2)} e_{z,l} (e_{z,k} \mathbf{e}_{mjl} - e_{z,j} \mathbf{e}_{mlk}), \\
\mathbf{c}_{mjk}^{(2)}(-h/2) &= -(\mathbf{c}_1^{(2)} e_{z,m} e_{z,j} e_{z,k} + \mathbf{c}_2^{(2)} e_{z,m} \mathbf{d}_{jk} + \mathbf{c}_3^{(2)} (e_{z,j} \mathbf{d}_{km} + e_{z,k} \mathbf{d}_{mj})) + \\
&+ \mathbf{c}_4^{(2)} e_{z,l} (e_{z,k} \mathbf{e}_{mjl} - e_{z,j} \mathbf{e}_{mlk}).
\end{aligned} \tag{11}$$

Тогда формула (10) принимает вид:

$$\begin{aligned}
E_{\text{be},i}^{(2\omega)}(\mathbf{x}) &= 2\pi \mu_{2\omega} \frac{(2\omega)^2}{c^2} \frac{\exp(ik_{2\omega}r)}{r} a^2 d \left(\delta_{im} - e_{r,i}e_{r,m} \right) \times \\
&\times \sum_{\alpha=1}^2 \sum_{\beta=1}^2 E_{\alpha} E_{\beta} e_j^{(\alpha)} e_k^{(\beta)} \left(J_0(q_{\perp}^{(\alpha\beta)} a) + J_2(q_{\perp}^{(\alpha\beta)} a) \right) \times \\
&\times \left[i \sin(q_{\perp}^{(\alpha\beta)} h/2) \left(\mathbf{c}_1^{(2)} e_{z,m} e_{z,j} e_{z,k} + \mathbf{c}_2^{(2)} e_{z,m} \delta_{jk} + \mathbf{c}_3^{(2)} (e_{z,j} \delta_{km} + e_{z,k} \delta_{mj}) \right) + \right. \\
&\quad \left. + \cos(q_{\perp}^{(\alpha\beta)} h/2) \mathbf{c}_4^{(2)} e_{z,l} (e_{z,k} \mathbf{e}_{mjl} - e_{z,j} \mathbf{e}_{mlk}) \right].
\end{aligned}$$

Переходя к векторному виду имеем

$$\begin{aligned}
\mathbf{E}_{\text{be}}^{(2\omega)}(\mathbf{x}) &= 2\pi\mu_{2\omega} \frac{(2\omega)^2}{c^2} \frac{\exp(ik_{2\omega}r)}{r} a^2 d_0 (1 - \mathbf{e}_r \otimes \mathbf{e}_r) \sum_{\alpha=1}^2 \sum_{\beta=1}^2 E_\alpha E_\beta \times \\
&\times \left\{ \left(J_0(q_{\perp}^{(\alpha\beta)} a) + J_2(q_{\perp}^{(\alpha\beta)} a) \right) \left[i \sin(q_{\parallel}^{(\alpha\beta)} h / 2) \left(\chi_1^{(2)} \mathbf{e}_z \left(\mathbf{e}_z \mathbf{e}^{(\alpha)} \right) \left(\mathbf{e}_z \mathbf{e}^{(\beta)} \right) + \right. \right. \right. \\
&\quad \left. \left. \left. + \chi_2^{(2)} \mathbf{e}_z \left(\mathbf{e}^{(\alpha)} \mathbf{e}^{(\beta)} \right) + \chi_3^{(2)} \left(\mathbf{e}^{(\beta)} \left(\mathbf{e}_z \mathbf{e}^{(\alpha)} \right) + \mathbf{e}^{(\alpha)} \left(\mathbf{e}_z \mathbf{e}^{(\beta)} \right) \right) \right] \right. \\
&\quad \left. + \cos(q_{\parallel}^{(\alpha\beta)} h / 2) \chi_4^{(2)} \left(\left[\mathbf{e}^{(\alpha)} \times \mathbf{e}_z \right] \left(\mathbf{e}_z \mathbf{e}^{(\beta)} \right) + \left[\mathbf{e}^{(\beta)} \times \mathbf{e}_z \right] \left(\mathbf{e}_z \mathbf{e}^{(\alpha)} \right) \right) \right\} = \\
&= 2\pi\mu_{2\omega} \frac{(2\omega)^2}{c^2} \frac{\exp(ik_{2\omega}r)}{r} a^2 d_0 (1 - \mathbf{e}_r \otimes \mathbf{e}_r) \sum_{\alpha=1}^2 \sum_{\beta=1}^2 E_\alpha E_\beta \left\{ \mathbf{f}_{\text{be}}^{(\alpha\beta)} \right\}, \tag{13}
\end{aligned}$$

где $\mathbf{f}_{\text{be}}^{(\alpha\beta)}$ – вспомогательные векторы, характеризующие пространственное распределение поля ГВГ-СЧ, генерируемого от торцов цилиндрической частицы.

Поле, генерируемое от цилиндра, поверхность которого полностью покрыта нелинейным слоем, может быть получено, как суперпозиция поля от боковой поверхности и от торцевых поверхностей цилиндра:

$$\begin{aligned}
\mathbf{E}^{(2\omega)}(\mathbf{x}) &= \mathbf{E}_{\text{lat}}^{(2\omega)}(\mathbf{x}) + \mathbf{E}_{\text{be}}^{(2\omega)}(\mathbf{x}) = \\
&= 2\pi\mu_{2\omega} \frac{(2\omega)^2}{c^2} \frac{\exp(ik_{2\omega}r)}{r} d_0 a h (1 - \mathbf{e}_r \otimes \mathbf{e}_r) \sum_{\alpha=1}^2 \sum_{\beta=1}^2 E_\alpha E_\beta \mathbf{f}^{(\alpha\beta)}, \tag{14}
\end{aligned}$$

где $\mathbf{f}^{(\alpha\beta)} = \mathbf{f}_{\text{lat}}^{(\alpha\beta)} + \frac{a}{h} \mathbf{f}_{\text{be}}^{(\alpha\beta)}$ – вспомогательные векторы, характеризующие пространственное распределение поля ГВГ-СЧ, генерируемого всей поверхностью цилиндра.

Таким образом, в данной работе в векторной форме получена напряженность электрического поля второй гармоники-суммарной частоты в дальней зоне, генерируемого в тонком оптически нелинейном цилиндрическом слое. Это позволяет находить остальные компоненты генерируемого электромагнитного поля и его характеристики, например, распределение плотности мощности по углам θ , φ и соответствующую степень поляризации излучения.

Работа выполнена при финансовой поддержке БРФФИ (проект Ф18М-026).

Литература:

1. Wang, H. Second harmonic generation from the surface of centrosymmetric particles in bulk solution / H. Wang, E.C.Y. Yan, E. Borguet, K.B. Eisenthal // Chemical Physics Letters. – 1996. – V. 259, № 1–2. – P. 15–20.

2. Капшай, В.Н. Генерация второй гармоники от тонкого сферического слоя и условия отсутствия генерации / В.Н. Капшай, А.А. Шамына // Оптика и спектроскопия. – 2017. – Т. 123, № 3. – С. 416–429.
3. Капшай, В.Н. Генерация суммарной частоты от тонкого сферического слоя. I. Аналитическое решение / В.Н. Капшай, А.А. Шамына // Оптика и спектроскопия. – 2018. – Т. 124, № 6. – С. 795–803.
4. Шамына, А.А. Генерация суммарной частоты от тонкого цилиндрического слоя / А.А. Шамына, В.Н. Капшай // Оптика и спектроскопия. – 2018. – Т. 124, № 1. – С. 105–121.