Письма в ЖЭТФ, том 37, вып. 2, стр. 85 – 86 *20 января 1983 г.*

ГЕНЕРАЦИЯ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ СВЕТА В КРИСТАЛЛАХ С РЕЗОНАНСНЫМИ ПРИМЕСЯМИ

Б.Я.Зельдович, С.Д.Кузьмичев

Световая волна наводит в резонансной примеси осциллирующий дипольный момент; его поле в ближней зоне превосходит макроскопическое, и на квадратичной нелинейности матрицы может эффективно возбуждаться вторая гармоника. Дан расчет и оценки эффекта для случая, когда возбуждающая волна распространяется в режиме самоиндуцированной прозрачности.

Обычно для генерации второй гармоники света используются прозрачные кристаллы без центра симметрии, для которых тензор квадратичной поляризуемости $\chi^{(2)}$ в соотношении

$$P_i^{2\omega}(\mathbf{r})\,e^{-2i\omega t} = \chi^{(2)}_{ikl}E_k^{\omega}(\mathbf{r})E_l^{\omega}(\mathbf{r})\,e^{-2i\omega t} \tag{1}$$

отличен от нуля. Здесь комплексные амплитуды $\mathbf{A}(\mathbf{r})$ связаны с вещественными полями соотношением $\mathbf{A}_{\text{вещ}}(\mathbf{r},t) = 0{,}5\,[\mathbf{A}(\mathbf{r})e^{-i\omega t} + \mathbf{A}^*(\mathbf{r})e^{i\omega t}]$, $\mathbf{P}(\mathbf{r})$ – дипольный момент единицы объема. Вблизи полос поглощения среды тензор $\chi^{(2)}$ испытывает резонансный подъем, однако возбуждающее излучение сильно поглощается в среде.

Мы рассмотрим специальный случай, когда в среде имеются резонансные примесные центры. Если амплитуду наведенного дипольного момента примеси обозначить через $\mathbf{d}e^{-i\omega t}$, то на расстоянии $|r| \lesssim \lambda$ от центра поле имеет вид суммы макроскопического $\mathbf{E}_{\text{макр}}$ и дипольного поля в ближней зоне:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_{\text{макр}} + \frac{3(\mathbf{d}\cdot\mathbf{r})\,\mathbf{r} - r^2\mathbf{d}}{r^5}\,. \tag{2}$$

Если оценить $d \propto \alpha E_{\text{макр}}$, где α (см^3) – поляризуемость центра на резонансной частоте, то $|E_{\text{дип}}|/|E_{\text{макр}}| \sim \alpha/r^3$, и при не слишком больших r дипольное поле может значительно превосходить макроскопическое, так как в резонансе можно иметь $\alpha \gg a^3$, где a – атомный размер.

Мы хотим обратить внимание на тот факт, что это дипольное поле может эффективно возбуждать поляризацию (1) на удвоенной частоте в материале нерезонансной матрицы. Поскольку в (1) напряженность E входит квадратично, то вклад дипольного поля не исчезает при усреднении по объему. В результате, например, для случая $\mathbf{d} = \mathbf{e}_z d$ и $\chi^{(2)}_{zzz} \neq 0$ имеем для указанного дипольного вклада

$$P_z^{2\omega} = \chi^{(2)}_{zzz}\, d^2 \frac{N}{\rho^3}\,, \tag{3}$$

где N (см$^{-3}$) – плотность примесей, и усреднение производится по объему матрицы за вычетом малых сфер радиусом ρ вокруг центров. Как видно из (3), основной вклад дает непосредственная окрестность $r \sim \rho$ вблизи центра, и поэтому перекрестными членами от полей разных центров можно пренебречь.

Большая величина осциллирующего дипольного момента d в (3) наводится световой волной лишь в сильно поглощающих примесях с узкой линией перехода. Однако как раз для такого рода примесных центров может иметь место эффект самоиндуцированной прозрачности (СИП, см. [1–3]), т.е. прохождение излучения по резонансно поглощающей среде без потерь энергии.

Стационарный 2π-импульс в режиме СИП имеет вид [1–3]

$$e^{i(kx-\omega t)}E_{\text{макр}}(x,t) = \frac{2\hbar}{d_{12}\,\tau}\,e^{i(kx-\omega t)}\,\mathrm{sech}\,[(t - x/u)/\tau]\,, \tag{4}$$

где d_{12} – матричный элемент дипольного момента перехода, τ – длительность импульса, $u = u(\tau)$ – эффективная скорость. Поле (4) удовлетворяет известному условию $d_{12}\hbar^{-2}\cdot\int E_{\text{макр}}dt = 2\pi$, а длительность τ должна быть короче всех времен релаксации.

Пусть условие фазового синхронизма для генерации второй гармоники выполнено. Тогда подстановка макроскопического и дипольного полей в поляризацию (1) и (3) и последующее решение укороченного уравнения для амплитуды $E_2(x, t)$ поля на удвоенной частоте дает

$$E_2(x, t) = i\frac{B\tau}{b}\left\{\epsilon_1^2\left[\text{th}\left(\frac{t'+bx}{\tau}\right) - \text{th}\left(\frac{t'}{\tau}\right)\right] - \frac{\epsilon_2^2}{3}\left[\text{th}^3\left(\frac{t'+bx}{\tau}\right) - \text{th}^3\left(\frac{t'}{\tau}\right)\right]\right\}. \quad (5)$$

Здесь $B = 4\pi(\omega/c)\chi^{(2)}_{zzz}/n$, n – показатель преломления, $\epsilon_1 = 2\hbar/d_{12}\tau$, $\epsilon_2^2 = 3, 2Nd_{12}^2/\rho^3$ $b = v_2^{-1} - u^{-1}$, v_2 – невозмущенная групповая скорость второй гармоники, $t' = t - x/v_2$ – локальное время.

При $bx \gtrsim \tau$ выражение (5) описывает увеличение длительности импульса второй гармоники по сравнению с длительностью накачки, $\Delta\tau_2 \propto bx$. Связано это с тем, что возбуждающее излучение в режиме СИП движется по среде с меньшей скоростью, а вторая гармоника после возбуждения отрывается и движется со скоростью v_2. В типичных условиях, однако $bx \ll \tau$; тогда $\tau_2 \sim \tau$ и для энергетического коэффициента преобразования во вторую гармонику имеем

$$\eta = \frac{\int|E_2|^2dt}{\int|E_{\text{макр}}|^2dt} \approx \frac{4}{3}(Bx\epsilon_1)^2\left\{1 - \frac{2}{15}\left(\frac{\epsilon_2}{\epsilon_1}\right)^2 + \frac{4}{3}\left(\frac{\epsilon_2}{\epsilon_1}\right)^4\right\}. \quad (6)$$

Здесь слагаемое $\propto 1$ описывает генерацию второй гармоники за счет макроскопического поля, слагаемое $\propto(\epsilon_2/\epsilon_1)^4$ – за счет дипольного поля центров, а слагаемое $\propto(\epsilon_2/\epsilon_1)^2$ – их интерференцию. Приведем численные оценки. Пусть $d_{12} \sim 10^{-19}$ CGSE, $\rho \sim 3\cdot 10^{-8}$ см, $\tau \sim 10^{-8}$ с, $x = 1$ см, $\omega/c = 10^5$ см$^{-1}$, $\chi^{(2)} \sim 10^{-9}$ CGSE, макроскопический" вклад равен $\eta_0 = \frac{4}{3}(Bx\epsilon_1)^2 \approx 10^{-6}$. Вклад „дипольной" части становится заметным при концентрации примесных центров $\gtrsim 10^{14}$ см^3; так, при $N = 8\cdot 10^{14}$ см^3, $\eta \cong 2\eta_0$.

Таким образом, рассмотренные выше эффекты представляются доступными экспериментальному наблюдению. Их изучение может дать информацию о свойствах резонансных примесей и возбуждаемых ими полей в ближней зоне.

Литература

1. *McCall S.L., Hahn E.L.* Phys.Rev. Lett., 1967, 18, 908
2. *Полуэктов И.А., Попов Ю.М., Ройтберг В.С.* УФН, 1974, 114, 97
3. *Аллен Л., Эберли Дж.* Оптический резонанс и двухуровневые атомы, М.: Мир, 1978

Московский
физико-технический институт

Поступила в редакцию
2 декабря 1982 г.