Лекции 13-14

Генерация магнитоиндуцированной второй гармоники

В средах с макроскопической намагниченностью - ферромагнетиках и парамагнетиках, находящихся в насыщающем внешнем магнитном поле, возможна генерация магнитоиндуцированной ВГ (МВГ), или магнитного нелинейно-оптического эффекта Керра. Особенности явления МВГ обусловлены аксиальной природой вектора намагниченности.

Элементы антисимметрии

В природе существует ряд векторных физических величин - угловая скорость, момент силы, напряженность и индукция магнитного поля, намагниченность - меняющих знак при инверсии времени. Они являются *аксиальными* векторами или *псевдотензорами*, а их пространственные преобразования отражают временную неинвариантность. Аксиальные вектора характеризуются направлением вращения. Группа симметрии аксиального вектора - ∞/m - отличается от группы симметрии полярного вектора - ∞m и является центросимметричной - аксиалный вектор инвариантен относительно инверсии.

Зададим произвольный ортонормированый полярный векторный базис $\mathbf{e}_1\mathbf{e}_2\mathbf{e}_3$. Построим на нем аксиальный базис $\mathbf{e}_1^0\mathbf{e}_2^0\mathbf{e}_3^0$, задавая направления вращения вокруг $\mathbf{e}_1$, $\mathbf{e}_2$ и $\mathbf{e}_3$ по правому винту. Определим дополнительную операцию симметрии - инверсию времени $1'$, меняющую направление обхода аксиальных векторов. Тогда группа ортогональных преобразований, составленная из поворотов n и инверсионных поворотов $\bar{n}$ (напомним, что плоскость симметрии $m = \bar{2}$) добавляется *антиповоротами* $1'n$ и инверсионными антиповоротами $1'\bar{n}$, образуя группу расширенных ортогональных преобразований. Антиповороты $1'n$ и инверсионные антиповороты $1'\bar{n}$ являются элементами *антисимметрии*. Если g - операция симметрии или анитисимметрии группы расширенных ортогональных преобразований, то ей соответствуют два тензора ортогональных преобразований $\mathbf{T}$ и $\mathbf{T}^\circ$ полярных и аксиальных векторов, соответственно:

$$\begin{aligned} \mathbf{e}'_\alpha &= T_{\alpha\beta}\mathbf{e}_\beta \\ \mathbf{e}^{\circ\prime}_\alpha &= T^\circ_{\alpha\beta}\mathbf{e}^\circ_\beta, \end{aligned} \tag{1}$$

причем $\det \mathbf{T} = 1$, а $\det \mathbf{T}^0 = -1$. Если $\mathbf{n}$ - тензор поворота n, то тензора $\mathbf{T}$ и $\mathbf{T}^\circ$ для любой операции g расширенной ортогональной группы определяются таблицей:

	n	$\bar{n}$	$1'n$	$1'\bar{n}$
$T_{\alpha\beta}$	$n_{\alpha\beta}$	$-n_{\alpha\beta}$	$n_{\alpha\beta}$	$-n_{\alpha\beta}$
$T^\circ_{\alpha\beta}$	$n_{\alpha\beta}$	$n_{\alpha\beta}$	$-n_{\alpha\beta}$	$-n_{\alpha\beta}$

Итак, в средах с полярными и аксиальными векторами вводится комбинированный ортонормированный базис $(\mathbf{e}_1\mathbf{e}_2\mathbf{e}_3)(\mathbf{e}_1^\circ\mathbf{e}_2^\circ\mathbf{e}_3^\circ)$. Преобразования этого базиса являются пространственно-временными и определяются совокупностью тензоров $\mathbf{T}$, действующего на полярную часть базиса, и $\mathbf{T}^{\circ}$ - действующего на аксиальную. Пространственная инверсия $\overline{1}$ переворачивает полярные базисные векторы, не изменяя аксиальных; инверсия времени $1'$ изменяет направления обхода аксиальных базисных векторов, не изменяя $\mathbf{e}_1$, $\mathbf{e}_2$ и $\mathbf{e}_3$, а пространственно-временная инверсия $\overline{1}1'$ меняет на обратные как направления полярных векторов, так и направления обхода аксиальных.

Квадратичная поляризация магнитных сред

Намагниченность, будучи аксиальным вектором, не нарушает инверсной симметрии, поэтому магнитоиндуцированная нелинейно-оптическая поляризация возникает только в нецентросимметричных средах или в областях ее нарушения - на поверхностях и границах раздела центосимметричных сред. Существуют два феноменологических метода описания магнитоиндуцированных добавок в нелинейную поляризацию. В первом из них квадратичная поляризация $\mathbf{P}(2\omega)$ раскладывается в ряд по степеням намагниченности $\mathbf{M}$:

$$P_i(2\omega) = \chi^{(2)}_{ijk} E_j(\omega) E_k(\omega) + \chi^{(2,1)}_{ijkl} E_j(\omega) E_k(\omega) M_l + ..., \qquad (2)$$

при этом псевдотензоры $\chi^{(2,n)}$ описывают нечетные по намагниченности вклады в квадратичную поляризацию, а тензоры $\chi^{(2,2n)}$, $n \geq 1$ - четные. Малым параметром ряда (2) является отношение $\mathbf{M}/\mathbf{H}_0$, где $\mathbf{H}_0$ - характерное внутриатомное магнитное поле. Ненулевые компоненты $\chi^{(2,n)}$ и $\chi^{(2,2n)}$ находятся из условия инвариантности их компонент относительно операций симметрии данного твердого тела. Для псевдотензоров $\chi^{(2,n)}$ используются тензоры $\mathbf{T}^{\circ}$ преобразования аксиального базиса, а для тензоров $\chi^{(2,2n)}$ - тензор $\mathbf{T}$ преобразования полярного базиса. Достоинством этого подхода является корректный учет четных и нечетных по намагниченности добавок в квадратичную поляризацию, основанный на симметрийный свойствах соответствующих псевдотензоров и тензоров квадратичной восприимчивости. Недостатком его является неопределенная степень малости параметра $\mathbf{M}/\mathbf{H}_0$, ставящей под вопрос сходимость ряда (2).

При втором подходе квадратичная восприимчивость $\chi^{(2)}$ делится на два эффективных слагаемых - четный по намагниченности, $\chi^{(2),even}_{ijk}(-\mathbf{M}) = \chi^{(2),even}_{ijk}(\mathbf{M})$, и нечетный, $\chi^{(2),odd}_{ijk}(-\mathbf{M}) = -\chi^{(2),odd}_{ijk}(\mathbf{M})$. Квадратичная поляризация записывается в виде:

$$P_i(2\omega) = (\chi^{(2),even}_{ijk}(\mathbf{M}) + \chi^{(2),odd}_{ijk}(\mathbf{M})) E_j(\omega) E_k(\omega). \qquad (3)$$

Четное по намагниченности слагаемое в свою очередь состоит из не зависящего от намагниченности, кристаллографического члена $\chi^{(2),cr}$ и истинно четного $\chi'^{(2),even}$:

$$\chi^{(2),even}_{ijk}(\mathbf{M}) = \chi^{(2),cr}_{ijk} + \chi'^{(2),even}_{ijk}(\mathbf{M}). \qquad (4)$$

Достоинством такого подхода является снятие проблемы сходимости ряда магнитоиндуцированных добавок в квадратичную поляризацию. Недостатком его является симметрийная "нестрогость"при нахождении ненулевых компонент $\chi^{(2),cr}$ $\chi'^{(2),even}$ и

$\chi^{(2),odd}$, а именно, для тензоров $\chi^{(2),cr}$ и $\chi'^{(2),even}$ используются тензоры преобразований $\mathbf{T}$ полярного базиса, а для тензора $\chi^{(2),odd}$ - как тензоры преобразований $\mathbf{T}$ полярного базиса, так и тензоры преобразований $\mathbf{T}^0$ аксиального базиса в зависимости от направления намагниченности $\mathbf{M}$.

Для примера найдем ненулевые компоненты $\chi^{(2),cr}$ и $\chi^{(2),odd}$ для поверхности изотропной среды (в рамках такой модели хорошо описывается отклик поверхности поликристалла с размером микрокристаллита $d << \lambda_\omega$). Ненулевые компоненты $\chi^{(2),cr}_{ijk}$ найдем из условия их инвариантности относительно операций симметрии m_x и m_y, характеризуемых тензорами преобразований $T_{x'x} = -1$, $T_{y'y} = T_{z'z} = 1$ и $T_{y'y} = -1$ и $T_{x'x} = T_{z'z} = 1$. Получим, что ненулевыми являются компоненты $\chi^{(2),cr}_{zzz}$, $\chi^{(2),cr}_{zxx} = \chi^{(2),cr}_{zyy}$ и $\chi^{(2),cr}_{xzx} = \chi^{(2),cr}_{yzy}$. Ненулевые компоненты $\chi^{(2),odd}_{ijk}$ найдем для случая ортогональности вектора намагниченности и плоскости падения излучения, т.е. $\mathbf{M} = (0, M_y, 0)$. Тогда для операции симметрии m_y, не изменяющей направление вращения аксиального вектора $\mathbf{M}$ берется тот же самый, "полярный"тензор $T_{y'y} = -1$ и $T_{x'x} = T_{z'z} = 1$, а для преобразования, соответствующего элементу симметрии m_x, меняющего направление вращения $\mathbf{M}$, используется тензор $T^0_{x'x} = 1$, $T^0_{y'y} = T^0_{z'z} = -1$ для преобразования аксиального базиса. При такой конфигурации намагниченности ненулевыми являются компоненты $\chi^{(2),odd}_{xxx} = \chi^{(2),odd}_{xyy}$, $\chi^{(2),odd}_{yxy}$ и $\chi^{(2),odd}_{xzz}$. При другом направлении $\mathbf{M}$ тензор $\chi^{(2),odd}$ имеет другой набор ненулевых компонент.

Неинвариантность аксиальных векторов (и псевдотензоров) относительно инверсии времени приводит к определенным (по крайней мере для случая прозрачных сред) фазовым соотношениям между квадратичными восприимчивостями, определяющими немагнитный (или четный по намагниченности) и нечетный по намагниченности вклады в квадратичную поляризацию. Рассмотрим поле накачки в виде суммы двух Фурье-компонент на частотах ω и $-\omega$:

$$\mathbf{E}(t) = \frac{1}{2}\left(\mathbf{E}_\omega e^{-i\omega t} + \mathbf{E}_{-\omega} e^{i\omega t}\right). \tag{5}$$

Тогда квадратичная поляризация $\mathbf{P}(t) = \chi^{(2)} : \mathbf{E}(t)\mathbf{E}(t)$ определяется квадратичной восприимчивостью $\chi^{(2)}$ в виде:

$$\chi^{(2)}(t) = \frac{1}{2}\left(\chi^{(2)}_{2\omega} e^{-i2\omega t} + \chi^{(2)}_{-2\omega} e^{i2\omega t}\right). \tag{6}$$

Условие инвариантности квадратичной поляризации $\mathbf{P}$ относительно инверсии времени $\mathbf{P}(t) = \mathbf{P}(-t)$, описывающей немагнитный и четный по намагниченности отклик, приводит к тому, что для прозрачной среды Фурье-компоненты восприимчивости в выражении (6) связаны между собой следующим соотношением: $\chi^{(2)}_{-2\omega} \equiv \left(\chi^{(2)}_{2\omega}\right)^* = \chi^{(2)}_{2\omega}$, т.е. $\chi^{(2)}_{2\omega}$ действительна. Неинвариантность относительно инверсии времени $\mathbf{P}(t) = -\mathbf{P}(-t)$ нечетной по намагниченности компоненты квадратичной поляризации означает, что Фурье-компоненты $\chi^{(2)}_{2\omega}$ и $\chi^{(2)}_{-2\omega}$ полностью мнимы. Итак, в прозрачной среде выражения (2) и (3) примут вид:

$$P_i(2\omega) = \chi^{(2)}_{ijk} E_j(\omega) E_k(\omega) + i\chi^{(2,1)}_{ijkl} E_j(\omega) E_k(\omega) M_l + ..., \tag{7}$$

$$P_i(2\omega) = (\chi^{(2),even}_{ijk}(\mathbf{M}) + i\chi^{(2),odd}_{ijk}(\mathbf{M})) E_j(\omega) E_k(\omega). \tag{8}$$

Генерация магнитоиндуцированной ВГ: гигантский эффект Керра и интерференционный механизм усиления

Для генерации МВГ, аналогично линейной магнитооптике, различают три взаимной конфигурации вектора намагниченности и плоскости падения излучения накачки: экваториальный эффект Керра (transversal) - намагниченность перпендикулярна плоскости падения, меридианальный (longitudinal) - намагниченность лежит в плоскости падения и полярный эффект Керра - намагниченность перпендикулярна поверхности.

В ряде случаев, как например для рассмотренной выше поверхности изотропного кристалла, симметрия среды приводит к "*s-запрету занулению компонент* $\chi^{(2),cr}_{ijk}$, *ответственных за генерацию s-поляризованного сигнала ВГ, и излучение ВГ оказывается строго p-поляризованным. В присутствии намагниченности возможно появляются компоненты* $\chi^{(2),odd}_{ijk}$, *отвечающие за генерацию s-поляризованной компоненты ВГ.*

Например, для поверхности изотропной среды, рассмотренной в предыдущем пункте, при p-поляризованном излучении накачки $\mathbf{E}^{\omega} = (E_x, 0, E_z)$ *в отсутствие намагниченности волна ВГ p-поляризована:*

$$E^{2\omega}_x \propto 2\chi^{(2),cr}_{xzx} E_x E_z, \quad E^{2\omega}_y = 0, \quad E^{2\omega}_z \propto \chi^{(2),cr}_{zzz} E_z^2 + \chi^{(2),cr}_{zxx} E_x^2. \tag{9}$$

При наложении намагниченности в геометрии экваториального эффекта Керра ($\mathbf{M} = (0, M_y, 0)$*) магнитоиндуцированные добавки в поле волны ВГ имеют вид:*

$$\begin{aligned}
E^{2\omega,M}_x &\propto \left(2\chi^{(2),odd}_{xxx} E_x^2 + \chi^{(2),odd}_{xzz} E_z^2\right)\cos\psi + \frac{1}{2}\chi^{(2),odd}_{yxy} E_x^2(\sin\psi + \sin 3\psi),\\
E^{2\omega,M}_y &\propto -\left(2\chi^{(2),odd}_{xxx} E_x^2 + \chi^{(2),odd}_{xzz} E_z^2\right)\sin\psi + \frac{1}{2}\chi^{(2),odd}_{yxy} E_x^2(\cos\psi - \cos 3\psi),\\
E^{2\omega,M}_z &\propto 2\chi^{(2),odd}_{zxz} E_x E_z \cos\psi,
\end{aligned} \tag{10}$$

где ψ *- азимутальный угол поворота поверхности вокруг нормали к ней. Компонента* $E^{2\omega,M}_y$ *указывает на наличие s-поляризованного сигнала ВГ. Плоскость поляризации излучения ВГ оказывается повернутой от p-поляризации исходного немагнитного излучения ВГ на угол*

$$\vartheta^{2\omega}_{\mathrm{Kerr}} = \mathrm{Arctg}\frac{E_s}{E_p}, \tag{11}$$

где $E_s = E^{2\omega,M}_y$ *и* $E_p = (E^{2\omega}_x + E^{2\omega,M}_x)\cos\theta + (E^{2\omega}_z + E^{2\omega,M}_z)\sin\theta$ *при* θ *- угол отражения ВГ. При определенных значениях угла* ψ *(например, при* $\psi = \pi/2$*)* $E^{2\omega,M}_x = 0$ *и* $E^{2\omega,M}_z = 0$*, и керровское вращение плоскости поляризации определяется отношением линейных комбинаций* $\chi^{(2),odd}$ *и* $\chi^{(2),cr}$*. При* $\theta = \pi/4$ *выражение (11) примет вид:*

$$\vartheta^{2\omega}_{\mathrm{Kerr}} = -\mathrm{Arctg}\frac{2\chi^{(2),odd}_{xxx} + \chi^{(2),odd}_{xzz}}{\sqrt{2}\left(\chi^{(2),cr}_{xzx} + \frac{1}{2}\chi^{(2),cr}_{zzz} + \frac{1}{2}\chi^{(2),cr}_{zxx}\right)}. \tag{12}$$

При отражении от поверхностей некоторых ферромагнетиков (Ni, Co) $\vartheta^{2\omega}_{\mathrm{Kerr}}$ *достигает десятков градусов, в предельном случае достигая* $\pi/2$*, по крайней мере в* 10^2 *раз превышая значения углов поворота плоскости поляризации при линейно-оптическом* *эффекте Керра. Такое усиление вращения плоскости поляризации излучения ВГ, обусловленное нарушением s-запрета в присутствии намагниченности, называется гигантским нелинейно-оптическим эффектом Керра.*

В большинстве экспериментальных ситуаций амплитуда поля МВГ $\mathbf{E}^{2\omega,M}(\mathbf{M})$ *существенно меньше амплитуды независящей от магнитного поля компоненты поля ВГ* $\mathbf{E}^{2\omega}$*. Интенсивность детектируемого сигнала ВГ является когерентной суммой этих полей:*

$$I^{2\omega} = \frac{c}{8\pi}|\mathbf{E}^{2\omega} + \mathbf{E}^{2\omega,M}(\mathbf{M})|^2. \tag{13}$$

Поля $\mathbf{E}^{2\omega,M}(\mathbf{M})$ *и* $\mathbf{E}^{2\omega}$ *являются в общем случае комплексными величинами (см. раздел 3) и выражение (13) содержит как компоненты интенсивности ВГ, четные по намагниченности -* $|\mathbf{E}^{2\omega,M}(\mathbf{M})|^2$*, так и перекрестный интерференционный член* $2|\mathbf{E}^{2\omega}||\mathbf{E}^{2\omega,M}(\mathbf{M})|\cos(\varphi - \varphi_M)$*, нечетный по намагниченности. Величина последнего определяется разностью фаз* $\varphi - \varphi_M$ *полей* $\mathbf{E}^{2\omega,M}(\mathbf{M})$ *и* $\mathbf{E}^{2\omega}$*. При* $\varphi - \varphi_M \neq \pi/2$ *и* $|\mathbf{E}^{2\omega}| \gg |\mathbf{E}^{2\omega,M}(\mathbf{M})|$ *перекрестный член становится много больше собственно магнитного вклада* $|\mathbf{E}^{2\omega,M}(\mathbf{M})|^2$*. Таким образом, немагнитная компонента ВГ через интерференцию "визуализирует"магнитоиндуцированный сигнал ВГ, являясь внутренним гомодином на оптической частоте.*