Нелинейный эффект Керра в магнитных кристаллах

© А.Д. Петренко

Донецкий государственный технический университет,
340000 Донецк, Украина

E-mail: info@dgtu.donetsk.ua

(Поступила в Редакцию 17 июля 1998 г.)

Теоретически исследовано отражение интенсивной световой волны от границы полубесконечного магнитного кристалла. Получены выражения для угла поворота эллипса поляризации и степени эллиптичности отраженной волны в зависимости от поляризации падающего излучения. Установлены физические механизмы взаимодействия волн, обусловливающие эффект.

В линейной оптике магнитных сред известен [1] оптический эффект Керра — деформация эллипса поляризации и поворот его главной оси при отражении от намагниченного образца. В сильных световых полях поляризации отраженного света, очевидно, будет зависеть от его интенсивности, что соответствует нелинейному эффекту Керра. Экспериментальное изучение этого явления может быть использовано для спектроскопии непрозрачных кристаллов, а также для изучения их приповерхностных состояний. В частности, в средах с изотропными линейными характеристиками становится существенной роль анизотропии нелинейного отклика, что может явиться источником уникальной информации о тонких деталях кристаллической структуры [2].

Экспериментальные исследования индуцированных эффектов Фарадея и Керра в кристаллах CsI_3 и CuCl [3] продемонстрировали возможность спектроскопии "на отражение" для диагностики экситонов.

В настоящей работе выполнено теоретическое исследование нелинейного эффекта Керра, возникающего при отражении монохроматической световой волны с произвольной эллиптической поляризацией от границы полубесконечного магнитного кристалла. Рассматривается случай нормального падения в направлении намагниченности кристалла (полярный эффект).

1. Поле отраженной волны

Поляризационные характеристики отраженной световой волны — азимут эллипса поляризации Φ и степень эллиптичности B — могут быть найдены, если известен вектор ее электрического поля, который определяется из решения соответствующей граничной задачи.

В качестве границы раздела двух сред — вакуум–нелинейный кристалл выберем плоскость $z = 0$, где ось Oz ориентирована вдоль направления [001]. Тогда электрическое поле $\mathbf{E}(E_x, E_y, 0)$ волны в кристалле определяется из волнового уравнения

$$\frac{d^2\mathbf{E}(z)}{dz^2} + \frac{\omega^2}{c^2}\Big(\mathbf{D}^{\mathrm{L}}(z) + \mathbf{D}^{\mathrm{NL}}(z)\Big) = 0, \tag{1}$$

где $\mathbf{D}^{\mathrm{L}} = \hat{\varepsilon}\mathbf{E}$, $\mathbf{D}^{\mathrm{NL}} = \hat{\chi}\mathbf{EEE}$ — линейная и нелинейная части вектора электрической индукции соответственно.

Для простоты ограничимся рассмотрением случая, когда магнитное поле или спонтанная намагниченность кристалла направлена вдоль оси Oz высокой симметрии кристалла, поскольку исследование эффекта в кристаллах с более низкой симметрией не вызывает принципиальных трудностей и не меняет его сути, однако приводит к значительно более громоздким результатам. При этом поперечный тензор линейной диэлектрической проницаемости имеет следующий вид:

$$\hat{\varepsilon} = \begin{pmatrix} \varepsilon & i\varepsilon' \\ -i\varepsilon' & \varepsilon \end{pmatrix} \tag{2}$$

Здесь $\varepsilon = \varepsilon_{xx}^{(0)} = \varepsilon_{yy}^{(0)}$, $i\varepsilon' = \varepsilon_{xy}^{(m)}$, причем тензор $\hat{\varepsilon} = \hat{\varepsilon}^{(0)} + \hat{\varepsilon}^{(m)}$ представлен в виде суммы чисто оптической $\hat{\varepsilon}^{(0)}$ и магнитооптической $\hat{\varepsilon}^{(m)}$ частей.

Для кристаллов со слабой нелинейностью уравнение (1) можно решить в приближении заданного поля, когда вектор $\mathbf{D}^{\mathrm{NL}}(z)$ считается известным и определяется полем $\mathbf{E}^0(z)$ — решением соответствующей линейной задачи.

В циркулярных переменных $E_\pm(z) = E_x(z) \pm iE_y(z)$ система уравнений (1) приобретает вид

$$\left[\frac{d^2}{dz^2} + \frac{\omega^2}{c^2}(\varepsilon \pm \varepsilon')\right] E_\pm(z) = -\frac{\omega^2}{c^2} D_\pm^{\mathrm{NL}}(z). \tag{3}$$

Полагая в (3) $D_\pm^{\mathrm{NL}}(z) = 0$, находим поле в линейном кристалле

$$E_\pm^0(z) = E_\pm^0(0)\exp(ik_\pm z). \tag{4}$$

Здесь $k_\pm = (\omega/c)\sqrt{\varepsilon \pm \varepsilon'}$ — волновые числа нормальных циркулярно поляризованных волн; $E_\pm^0(0)$ — амплитуды прошедших волн, определяемые из решения линейной граничной задачи.

Будем считать, что падающая на кристалл волна имеет произвольную эллиптическую поляризацию, причем

$$\mathbf{E}^i(z) = \left(a_1 e^{i\varphi_1}\mathbf{e}_x + a_2 e^{i\varphi_2}\mathbf{e}_y\right)\exp(ikz), \tag{5}$$

где $\mathbf{e}_{x,y}$ — орты осей Ox и Oy. Поля $\mathbf{E}^R(z)$ отраженной и $\mathbf{E}^T(z)$ прошедшей в кристалл волн представим в виде

$$\mathbf{E}^R(z) = \left(E_x^R\mathbf{e}_x + E_y^R\mathbf{e}_y\right)e^{-ikz}, \tag{6}$$

$$\mathbf{E}^T(z) = \frac{1}{2}\left(E_+^T(z)e^{ik_+z} + E_-^T e^{ik_-z}\right)\mathbf{e}_x - \frac{1}{2}\left(E_+^T(z)e^{ik_+z} + E_-^T e^{ik_-z}\right)\mathbf{e}_y. \quad (7)$$

При этом амплитды волн $E_\pm^T(0)\, E_\pm^R = E_x^R \pm iE_y^R$ определяются из системы уравнений [4]

$$\left.\begin{aligned} &E_\pm^T(0) - E_\pm^R = a_\pm, \\ &k_\pm E_\pm^T(0) = kE_\pm^R = ka_\pm + iS_\pm \end{aligned}\right\} \quad (8)$$

и равны

$$E_\pm^R = E_\pm^{0R} + \delta E_\pm^R, \quad (9)$$

$$E_\pm^T(0) = E_\pm^{0T} + \delta E_\pm^T. \quad (10)$$

В этих выражениях $a_\pm = a_1 e^{i\varphi_1} \pm ia_2 e^{i\varphi_2}$,

$$E_\pm^{0R} = r_\pm a_\pm, \quad (11)$$

$$E_\pm^{0T} = t_\pm a_\pm \quad — \quad (12)$$

амплитуды отраженной и прошедшей волн, полученные из решения линейной задачи, $r_\pm = (k - k_\pm)/(k + k_\pm)$, $t_\pm = 2k/(k + k_\pm)$ — соответственно, линейные коэффициенты отражения и преломления,

$$\delta E_\pm^R = \delta E_\pm^T = \frac{iS_\pm}{k + k_\pm} \quad — \quad (13)$$

добавки к амплитудам, обусловленные самовоздействием света в кристалле,

$$S_\pm = \left.\frac{dE_\pm^T(z)}{dz}\right|_{z=0}. \quad (14)$$

Амплитуды поля $E_\pm^T(z)$ прошедшей в нелинейный кристалл волны находятся из уравнения (1), в котором вектор нелинейной индукции следует положить равным

$$\mathbf{D}^{\mathrm{NL}}(z) = 4\pi\hat{\chi}\mathbf{E}^{0T}(z)\mathbf{E}^{0T}(z)\mathbf{E}^{0T}(z). \quad (15)$$

Здесь вектор электрического поля $\mathbf{E}^{0T}$ определяется формулами (4) и (12) и имеет следующие циркулярные компоненты:

$$E_\pm^0(z) = t_\pm A_\pm \exp(ik_\pm z + i\delta_\pm), \quad (16)$$

где

$$A_\pm = \sqrt{a_1^2 + a_2^2 - 2a_1a_2\sin(\varphi_2 - \varphi_1)}, \quad (17)$$

$$\delta_\pm = a\,\mathrm{tg}\left(\frac{a_1\sin\varphi_1 \pm a_2\cos\varphi_2}{a_1\cos\varphi_1 \mp a_2\sin\varphi_2}\right), \quad (18)$$

причем величина $\beta = (1/2)(\delta_+ - \delta_-)$ определяет угол между главной осью эллипса поляризации и осью абсцисс.

Как и тензор диэлектрической проницаемости кристалла, кубическую нелинейную восприимчивость $\hat{\chi}$ представим в виде суммы оптической и магнитооптической частей: $\hat{\chi} = \hat{\chi}^{(0)} + \chi^{(m)}$. В рассматриваемой задаче отличными от нуля будут ее следующие компонеты:

$$\chi_1 = \chi_{xxxx}^{(0)} = \chi_{yyyy}^{(0)}, \qquad \chi_2 = \chi_{xxyy}^{(0)} = \chi_{yyxx}^{(0)},$$

$$\chi_3 = \chi_{xyxy}^{(0)} = \chi_{yxyy}^{(0)}, \qquad \chi_4 = \chi_{xyxy}^{(0)} = \chi_{yxyx}^{(0)},$$

$$i\eta_1 = -\chi_{yyyx}^{(m)} = \chi_{xxxy}^{(m)}, \qquad i\eta_2 = -\chi_{yxxx}^{(m)} = \chi_{xxyx}^{(m)},$$

$$i\eta_3 = -\chi_{yxyy}^{(m)} = \chi_{xyxx}^{(m)}, \qquad i\eta_4 = -\chi_{xyyy}^{(m)} = \chi_{yxxx}^{(m)}.$$

После вычисления вектора $\mathbf{D}^{\mathrm{NL}}(z)$ и подстановки его в уравнение (1) находим выражения для поля волны в нелинейном кристалле [4] и далее — для величин $S_\pm$

$$\begin{aligned} S_\pm = \frac{i\pi\omega^2 t_\pm A_\pm e^{i\delta_\pm}}{4c^2k_\pm}\Big[&2A_\mp^2 t_\mp^2\left[\chi_1 + \chi_3 \pm (\eta_2 - \eta_4)\right] \\ &+ A_\pm^2 t_\pm^2\left[\chi_1 + \chi_2 - \chi_3 + \chi_4 \mp (\eta_1 - \eta_2 - \eta_3 + \eta_4)\right] \\ &+ 2\frac{k_\pm}{k_\mp}A_\mp^2 t_\mp^2 e^{\mp 4i\beta}\big[\chi_1 - \chi_2 - \chi_3 - \chi_4 \\ &\mp (\eta_1 + \eta_2 + \eta_3 + \eta_4)\big]\Big]. \end{aligned} \quad (19)$$

2. Поляризация отраженной волны

Азимут эллипса поляризации и степень эллиптичности отраженной от нелинейного кристалла волны находятся с помощью следующих соотношений:

$$\mathrm{tg}\,2\Phi = \frac{\mathrm{Im}\,(E_+^R E_-^{R^*})}{\mathrm{Re}\,(E_+^R E_-^{R^*})}, \quad (20)$$

$$B = \frac{|E_+^R|^2 - |E_-^R|^2}{|E_+^R|^2 + |E_-^R|^2}. \quad (21)$$

Для рассматриваемого случая слабо нелинейных кристаллов $|\delta E_\pm^R| \ll |E_\pm^{0R}|$, и таким образом можно положить $\Phi = \beta + \Phi^{\mathrm{L}} + \Phi^{\mathrm{NL}}$, $B = B^{\mathrm{L}} + B^{\mathrm{NL}}$. Кроме того, для простоты ограничимся исследованием сред со слабой намагниченностью ($\varepsilon' \ll \varepsilon$). Тогда для поляризационных характеристик волны, отраженной от линейного кристалла имеем

$$\Phi^{\mathrm{L}} = -\frac{\mathrm{Im}\,\varepsilon'}{\sqrt{\varepsilon}(\varepsilon - 1)}, \quad (22)$$

$$B^{\mathrm{L}} = B_0 + (1 - B_0^2)\frac{\mathrm{Re}\,\varepsilon'}{\sqrt{\varepsilon}(\varepsilon - 1)}, \quad (23)$$

где

$$B_0 = \frac{A_+^2 - A_-^2}{A_+^2 + A_-^2} \quad — \quad (24)$$

степень эллиптичности падающей волны.

Нелинейные добавки к углу поворота эллипса поляризации и степени эллиптичности отраженной волны определяются следующими выражениями:

$$\Phi^{\mathrm{NL}} = \frac{1}{2r_+r_-A_+A_-}\left[\mathrm{Re}\left(\frac{E_-^{0R}S_+^*}{k+k_+} - \frac{E_+^{0R}S_-^*}{k+k_-}\right)\cos 2\beta \right.$$

$$\left. - \mathrm{Im}\left(\frac{E_-^{0R}S_+^*}{k+k_+} - \frac{E_+^{0R}S_-^*}{k+k_-}\right)\sin 2\beta\right], \quad (25)$$

$$B^{\mathrm{NL}} = \frac{4}{\left(|E_+^{0R}|^2 + |E_-^{0R}|^2\right)^2}$$

$$\times \mathrm{Im}\left(\frac{|E_+^{0R}|^2 E_-^{0R}S_-^*}{k+k_-} - \frac{|E_-^{0R}|^2 E_+^{0R}S_+^*}{k+k_+}\right). \quad (26)$$

Подставляя в (25) и (26) значения $S_\pm$ из (19) с точностью до членов более высокого порядка малости находим выражение для угла нелинейного оптического вращения отраженной световой волны в виде суммы пяти слагаемых

$$\Phi^{\mathrm{NL}} = \sum_{i=1}^{5}\Phi_i, \quad (27)$$

отвечающих различным физическим механизмам взаимодействия волн в кристалле.

Первое из низ было получено в работе [4], оно связано с анизотропией нелинейной оптической восприимчивости кристалла и равно

$$\Phi_1 = 2KI_0\,\mathrm{Re}\,(\chi_1 - \chi_2 - \chi_3 - \chi_4)\sin 4\beta, \quad (28)$$

где

$$K = \frac{8\pi^2k^6}{ck_0(k^2 - k_0^2)^2(k+k_0)},$$

$I_0 = (c/4\pi)(A_+^2 + A_-^2)$ — интенсивность падающего света.

Угол

$$\Phi_2 = KI_0\,\mathrm{Im}\left[\eta_1 + \eta_2 + \eta_3 - 3\eta_4\right.$$

$$\left. + 2(\eta_1 + \eta_2 + \eta_3 + \eta_4)\cos 4\beta\right] \quad (29)$$

обусловлен нелинейным поглощением света за счет магнитооптического взаимодействия в кристалл.

Остальные слагаемые в формуле (27) связаны с конечной эллиптичностью падающего излучения. В частности, угол Φ_3 описывает комбинированный эффект линейной магнитной гиротропии и нелинейного оптического взаимодействия волн

$$\Phi_3 = \frac{\omega^2\mathrm{Re}\,\varepsilon'}{c^2k_0^2}\,\frac{(2k_0+k)}{(k+k_0}$$

$$\times KI_0B_0\,\mathrm{Re}\,(\chi_1 - \chi_2 - \chi_3 - \chi_4)\sin 4\beta. \quad (30)$$

В проходящем свете с мнимой частью нелинейной магнитооптической восприимчивости связан нелинейный эффект Фарадея [5], а в отраженном — этот механизм обусловливает вращение, описываемое углом

$$\Phi_4 = -2KI_0B_0\,\mathrm{Re}\,(\eta_1 + \eta_2 + \eta_3 + \eta_4)\sin 4\beta. \quad (31)$$

Наконец, угол Φ_5 является аналогом эффекта Мейкера-Терхьюна-Сэваджа [6] "на отражение" и определяется выражением

$$\Phi_5 = KI_0B_0\,\mathrm{Im}\left[\chi_1 - \chi_2 + 3\chi_3 + \chi_4\right.$$

$$\left. - 2(\chi_1 - \chi_2 - \chi_3 - \chi_4)\cos 4\beta\right]. \quad (32)$$

В экспериментах с линейно поляризованным светом реальное излучение обладает конечной эллиптичностью $B_0 \geq 10^{-2}$ [7], поэтому слагаемые Φ_3–Φ_5 следует считать отличными от нуля также в случае линейно поляризованной падающей волны.

Для оценки относительных вкладов в эффект, связанных с различными механизмами взаимодействия волн, положим $\mathrm{Re}\chi/\mathrm{Im}\chi \sim \mathrm{Re}\,\eta/\mathrm{Im}\,\eta = \mu$, $\mathrm{Re}\,\eta/\mathrm{re}\chi \sim \mathrm{Re}\,\varepsilon' \sim \alpha_{\mathrm{F}}/k$, где α_{F} — удельная величина линейного фарадеевского вращения. Сравнение формул (28)–(32) дает: $\Phi_1/\Phi_2 \sim \mu k/\alpha_{\mathrm{F}}$, $\Phi_3/\Phi_2 \sim B_0\mu$, $\Phi_4 \sim \Phi_3$, $\Phi_5/\Phi_2 \sim B_0k/\alpha_{\mathrm{F}}$. Для ферромагнитных кристаллов $\alpha_{\mathrm{F}} \sim 10^3\,\mathrm{cm}^{-1}$. Полагая также $\mu \sim 10^2$, $k \sim 10^5\,\mathrm{cm}^{-1}$, $B_0 \sim 10^{-2}$, находим, что углы Φ_2–Φ_5 одного порядка, а чисто оптическое вращение Φ_1 примерно на четыре порядка больше. В средах с изотропным нелинейным откликом последнее тождественно равно нулю.

С учетом выполненных оценок в формуле (26) сохраним наибольшие слагаемые. В результате получаем выражение для нелинейной степени эллиптичности отраженной волны в виде

$$B^{\mathrm{NL}} = -\frac{2k^5cA_+^2A_-^2}{(k+k_0)(k^2-k_0^2)^2k_0I_0}$$

$$\times \mathrm{Re}\left\{(k-k_0)\left[B_0(-\chi_1 + \chi_2 - 3\chi_3 + \chi_4)\right.\right.$$

$$- 2B_0(\chi_1 - \chi_2 - \chi_3 - \chi_4)\cos 4\beta$$

$$\left. - (\eta_1 + 3\eta_2 + \eta_3 - 3\eta_4) - 2(\eta_1 + \eta_2 + \eta_3 + \eta_4)\cos 4\beta\right]$$

$$- \frac{k\varepsilon'}{\sqrt{\varepsilon}k_0(k+k_0)}\left[(2kk_0 + k^2 - 5k_0^2)\right.$$

$$\times (\chi_1 + \chi_2 - \chi_3 + \chi_4) + 2(k^2 - 2kk_0 - k_0^2)(\chi_1 + \chi_3)$$

$$\left.\left. + 2(k_0^2 - k^2 - 2kk_0)(\chi_1 - \chi_2 - \chi_3 - \chi_4)\cos 4\beta\right]\right\}. \quad (33)$$

Таким образом, величина нелинейной эллиптичности оказывается зависящей не от полной интенсивности излучения, но от интенсивностей его циркулярных компонент.

Широкое использование магнитных кристаллов в квантовой электронике и нелинейной оптике ставит задачу исследования нелинейных магнитооптических восприимчивостей. С этой точки зрения вращение поляризации прошедшего света оказывается достаточно сложным эффектом [5], что требует более тщательной интерпретации соответствующих экспериментов [8]. Как показано, измерение состояния поляризации отраженной волны может существенным образом дополнить информацию, получаемую в измерениях "на просвет". В частности, это возможно путем измерения угла нелинейного оптического вращения в зависимости от ориентации азимута эллипса поляризации падающего излучения. В особенности это относится к средам с сильным поглощением, когда исследования в отраженном свете более эффективны либо единственно возможны.

Список литературы

[1] Р.В. Писарев. В кн.: Физика магнитных полупроводников. Наука, Л. (1974). С. 356.

[2] С.А. Ахманов, В.И. Емельянов, Н.И. Коротеев. УФН **147**, *4*, 675 (1985).

[3] G.E. Jellisson, D.H. Lowndes. Appl. Opt. **24**, *18*, 2948 (1985).

[4] А.Д. Петренко, Г.И. Труш. Кристаллография **37**, *1*, 159 (1992).

[5] С.Б. Борисов, И.Л. Любчанский, А.Д. Петренко, Г.И. Труш. ЖЭТФ **105**, *3*, 524 (1994).

[6] P.D. Maker, R.W. Terhune, C.M. Savage. Phys. Rev. Lett. **12**, *18*, 507 (1964).

[7] С.А. Бахрамов, А.Т. Бердикулов, А.М. Кохxаров, В.В. Тихоненко, П.К. Хабилулаев. ДАН СССР **309**, *3*, 607 (1989).

[8] J. Frey, R. Frey, C. Flytzanis, R. Triboulet. J. Opt. Soc. Am. **B9**, *1*, 132 (1992).