Генерация второй гармоники плоской электромагнитной волной в некиральном оптически нелинейном поверхностном слое сфероидальной диэлектрической частицы малого размера

В. Н. Капшай, А. А. Шамына, А. И. Толкачёв

Гомельский государственный университет им. Франциска Скорины, Гомель, Беларусь; e-mail: anton.shamyna@gmail.com

Рассмотрена задача о генерации второй гармоники в оптически нелинейном тонком поверхностном слое частицы в форме эллипсоида вращения плоской эллиптически поляризованной электромагнитной волной. Охарактеризована зависимость вспомогательных интегралов, используемых в решении, от линейных размеров частицы, когда длины полуосей эллипсоида вращения значительно меньше длины волны возбуждающего излучения. Выявлено, что во всех случаях, за исключением одного, интегралы прямо пропорциональны первой степени длины одной из полуосей эллипсоида вращения.

Ключевые слова: генерация второй гармоники, сфероидальная диэлектрическая частица, нелинейный поверхностный слой, предельная форма, малый размер.

Введение

В связи с ростом мощности доступных для использования в производстве и научных исследованиях источников когерентного излучения появляется возможность применения оптически нелинейных явлений для изучения свойств материалов, в том числе имеющих сложную структуру. Среди указанных явлений выделяется нелинейная генерация второго порядка, с помощью которой изучаются свойства не только макроскопических объектов (например, кристаллов), но и объектов с линейными размерами порядка нескольких микрометров и даже нанометров. В качестве последних можно указать поверхностные слои диэлектрических наноразмерных частиц [1–4]. Если в состав такого слоя входят адсорбированные молекулы, то их свойства напрямую влияют на нелинейный отклик, возникающий при облучении электромагнитными волнами высокой интенсивности. В этом случае, анализируя пространственное распределение и поляризацию генерируемого излучения, можно получить такие характеристики адсорбированных молекул, как ориентация на поверхности, поверхностная плотность распределения, тензор гиперполяризуемости [5]. Кроме диэлектрических частиц в научной литературе также встречаются методы использования указанного явления для изучения молекул ДНК [6], коллагеновых волокон и мембран биологических объектов.

В настоящей работе рассмотрена генерация второй гармоники в поверхностном слое эллипсоидальной диэлектрической частицы малого размера на основе обобщённого приближения Рэлея–Ганса–Дебая [7] в случае, когда оптически нелинейный слой не обладает киральными свойствами.

1. Напряжённость электрического поля

В декартовой системе координат значения компонент вектора напряжённости электрического поля излучения удвоенной частоты, генерируемого в поверхностном слое диэлектрической частицы произвольной формы плоской эллиптически поляризованной электромагнитной волной, в дальней зоне может быть определено посредством вычисления следующего интеграла по всей площади S тонкого оптически нелинейного слоя [1, 4]:

$$E_i^{(2\omega)}(\mathbf{x}) = \mu_{2\omega} \frac{(2\omega)^2}{c^2} \frac{\exp(ik_{2\omega} r)}{r} d_0 \left(\delta_{im} - e_{r,i} e_{r,m}\right) e_j^{(\omega)} e_k^{(\omega)} \int_S \exp\left(i\mathbf{x}'\mathbf{q}(\mathbf{x})\right) \chi_{ijk}^{(2)}(\mathbf{x}')\, \mathrm{d}S_{\mathbf{x}'}, \qquad (1)$$

где $\mu_{2\omega}$ — магнитная проницаемость окружающей частицу среды; 2ω и $k_{2\omega}$ — циклическая частота и модуль волнового вектора $\mathbf{k}^{(2\omega)}$ генерируемого излучения в вакууме соответственно; r — расстояние от частицы до точки наблюдения; d_0 — толщина оптически нелинейного слоя; δ_{im} — дельта-символ Кронекера; $e_{r,i}$ и $e_{r,m}$ — компоненты единичного вектора $\mathbf{e}_r$, направленного от центра частицы к точке наблюдения; $e_j^{(\omega)}, e_k^{(\omega)}$ — компоненты единичного вектора $\mathbf{e}^{(\omega)}$, характеризующего поляризацию возбуждающего излучения; $\mathbf{q}(\mathbf{x})$ — вектор рассеяния, вычисляемый по формуле

$$\mathbf{q}(\mathbf{x}) = 2\mathbf{k}^{(\omega)} - \mathbf{k}^{(2\omega)}(\mathbf{x}), \qquad (2)$$

где $\mathbf{k}^{(\omega)}(\mathbf{x})$ — волновой вектор падающей волны; $\chi_{ijk}^{(2)}(\mathbf{x}')$ — тензор нелинейной диэлектрической восприимчивости второго порядка, характеризующий нелинейный отклик элементарного участка поверхности в точке $\mathbf{x}'$. Для некирального слоя он может быть записан в виде

$$\chi_{ijk}^{(2)} = \chi_1^{(2)} n_i n_j n_k + \chi_2^{(2)} n_i \delta_{jk} + \chi_3^{(2)} \left(n_j \delta_{ki} + n_k \delta_{ij}\right) \qquad (3)$$

с использованием компонент вектора нормали к участку поверхности n_i, n_j, n_k и некиральных независимых компонент $\chi_{1-3}^{(2)}$ указанного тензора.

С учётом (3) выражение (1) можно записать в виде

$$\begin{gathered} E_i^{(2\omega)}(\mathbf{x}) = \mu_{2\omega} \frac{(2\omega)^2}{c^2} \frac{\exp(ik_{2\omega} r)}{r} d_0 a_x^2 \left(\delta_{im} - e_{r,i} e_{r,m}\right) e_j^{(\omega)} e_k^{(\omega)} \mathrm{X}_{mjk}^{(2\omega)}(\mathbf{x}), \\ \mathrm{X}_{mjk}^{(2\omega)}(\mathbf{x}) = \chi_1^{(2)} I\left(n_m n_j n_k \,|\, \mathbf{x}\right) + \chi_2^{(2)} I\left(n_m \,|\, \mathbf{x}\right) \delta_{jk} + \chi_3^{(2)} \left(I\left(n_j \,|\, \mathbf{x}\right) \delta_{km} + I\left(n_k \,|\, \mathbf{x}\right) \delta_{mj} \right), \end{gathered} \qquad (4)$$

где функции $I(n_i \,|\, \mathbf{x})$ и $I(n_i n_j n_k \,|\, \mathbf{x})$ задаются формулами

$$\begin{gathered} I(n_i \,|\, \mathbf{x}) = \frac{1}{a_x^2} \int_S \exp\left(i\mathbf{x}'\mathbf{q}(\mathbf{x})\right) n_i(\mathbf{x}')\, \mathrm{d}S_{\mathbf{x}'}, \\ I(n_i n_j n_k \,|\, \mathbf{x}) = \frac{1}{a_x^2} \int_S \exp\left(i\mathbf{x}'\mathbf{q}(\mathbf{x})\right) n_i(\mathbf{x}')\, n_j(\mathbf{x}')\, n_k(\mathbf{x}')\, \mathrm{d}S_{\mathbf{x}'}. \end{gathered} \qquad (5)$$

Здесь a_x — длина полуоси сфероидальной частицы вдоль направления, перпендикулярного оси частицы. Аналогичный подход к описанию генерации в сфероидальном слое ранее был рассмотрен в работе [8].

2. Предельные формы интегралов I

Аналитически вычисляя интегралы $I(n_i \,|\, \mathbf{x})$ и $I(n_i n_j n_k \,|\, \mathbf{x})$ при малых значениях линейных размеров частицы по сравнению с длиной волны возбуждающего излучения, получаем следующие соотношения для зависимости значений интегралов от размеров частицы:

$$I\left(n_x \,|\, \mathbf{x}\right) \propto \left(q_\perp(\mathbf{x}) a_x\right), \tag{6}$$

$$I\left(n_y \,|\, \mathbf{x}\right) \propto \left(q_\perp(\mathbf{x}) a_x\right), \tag{7}$$

$$I\left(n_z \,|\, \mathbf{x}\right) \propto \left(q_z(\mathbf{x}) a_z\right). \tag{8}$$

$$I\left(n_x n_x n_x \,|\, \mathbf{x}\right) \propto \left(q_\perp(\mathbf{x}) a_x\right), \tag{9}$$

$$I\left(n_x n_x n_y \,|\, \mathbf{x}\right) \propto \left(q_\perp(\mathbf{x}) a_x\right), \tag{10}$$

$$I\left(n_x n_y n_y \,|\, \mathbf{x}\right) \propto \left(q_\perp(\mathbf{x}) a_x\right), \tag{11}$$

$$I\left(n_y n_y n_y \,|\, \mathbf{x}\right) \propto \left(q_\perp(\mathbf{x}) a_x\right), \tag{12}$$

$$I\left(n_z n_x n_x \,|\, \mathbf{x}\right) \propto \left(q_z(\mathbf{x}) a_z\right), \tag{13}$$

$$I\left(n_z n_x n_y \,|\, \mathbf{x}\right) \propto \left(q_\perp(\mathbf{x}) a_x\right)^2 \left(q_z(\mathbf{x}) a_z\right), \tag{14}$$

$$I\left(n_z n_y n_y \,|\, \mathbf{x}\right) \propto \left(q_z(\mathbf{x}) a_z\right), \tag{15}$$

$$I\left(n_z n_z n_x \,|\, \mathbf{x}\right) \propto \left(q_\perp(\mathbf{x}) a_x\right), \tag{16}$$

$$I\left(n_z n_z n_y \,|\, \mathbf{x}\right) \propto \left(q_\perp(\mathbf{x}) a_x\right), \tag{17}$$

$$I\left(n_z n_z n_z \,|\, \mathbf{x}\right) \propto \left(q_z(\mathbf{x}) a_z\right). \tag{18}$$

Здесь $q_\perp(\mathbf{x})$ и $q_z(\mathbf{x})$ — составляющие вектора рассеяния, перпендикулярные и параллельные оси симметрии частицы соответственно, a_z — длина большой полуоси сфероидальной частицы.

Можно видеть, что для всех случаев, кроме $n_z n_x n_y$, значения интегралов I пропорциональны первой степени линейных размеров частицы. Если среди компонент, входящих в состав интеграла I, встречается чётное количество компонент n_z, то значение соответствующего интеграла I прямо пропорционально $q_\perp(\mathbf{x}) a_x$. Если же количество компонент n_z нечётное, то значение интеграла I прямо пропорционально $q_z(\mathbf{x}) a_z$.

Заключение

При малых линейных размерах диэлектрической частицы характер зависимости пространственного распределения генерируемого излучения от длин полуосей частицы значительно упрощается. Основываясь на формулах (6)–(18), несложно оценить компоненты, определяющие величину и ориентацию эллипса поляризации излучения второй гармоники в дальней зоне. Описанный подход можно применить не только для слоя, не обладающего киральными свойствами, но и для более общего случая: тонкого поверхностного слоя, тензор нелинейной диэлектрической восприимчивости которого содержит как киральные, так и некиральные компоненты.

Благодарности

Работа выполнена при финансовой поддержке Белорусского республиканского фонда фундаментальных исследований (проект Ф20М–011).

Литература

1. Kapshai V. N., Shamyna A.A. Second-Harmonic Generation from a Thin Spherical Layerand No-Generation Conditions. Optics and Spectroscopy. 2017. Vol. 123, No. 3. P. 440–453.
2. Shamyna A. A., Kapshai V. N. Sum-Frequency Generation from a Thin Cylindrical Layer. Optics and Spectroscopy. 2018. Vol. 24, No. 1. P. 103–120.
3. Kapshai V. N., Shamyna A. A. Sum-Frequency Generation from a Thin Spherical Layer: I. Analytical Solution. Optics and Spectroscopy. 2018. Vol. 124, No. 6. P. 826–833.
4. Shamyna A. A., Kapshai V. N. Second-Harmonic Generation from a Thin Cylindrical Layer. I. An Analytical Solution. Optics and Spectroscopy. 2019. Vol. 126, No. 6. P. 645–652.
5. De Beer A. G. F., Roke S. Nonlinear Mie theory for second-harmonic and sum-frequency scattering. Phys. Rev. B. 2009. Vol. 79, No. 15. P. 155420.
6. Dadap J. I., Eisenthal K. B. Probing the Relative Orientation of Molecules Bound to DNA by Second-Harmonic Generation. J. Phys. Chem. B. 2014. Vol. 118, No. 49. P. 14366–14372.
7. Viarbitskaya S., Kapshai V., van der Meulen P., Hansson T. Size dependence of second-harmonic generation at the surface of microspheres. 2010. Vol. 81, No. 5. P. 053850.
8. De Beer A. G. F., Roke S., Dadap J. I. Theory of optical second-harmonic and sum-frequency scattering from arbitrarily shaped particles. 2011. Vol. 28, No. 6. P. 1374–1384.

Second-harmonic generation by a plane electromagnetic wave in a nonchiral optically nonlinear surface layer of a spheroidal dielectric particle of small size

V. N. Kapshai, A. A. Shamyna, A. I. Talkachov

Francisk Skorina Gomel State University, Gomel, Belarus;
e-mail: anton.shamyna@gmail.com

The problem of second harmonic generation in an optically nonlinear thin surface layer of a particle in the form of an ellipsoid of revolution by a plane elliptically polarized electromagnetic wave is considered. The dependence of the auxiliary integrals used in the solution on the linear dimensions of the particle is characterized when the lengths of the semiaxes of the ellipsoid of revolution are much less than the wavelength of the exciting radiation. It was found that in all cases, except for one, the integrals are directly proportional to the first power of the length of one of the semiaxes of the ellipsoid of revolution.

Keywords: second-harmonic generation, spheroidal dielectric particle, nonlinear surface layer, limit form, small size**.**