立方晶体非线性折射系数的各向异性

邓 和

（中国科学院上海光机所）

提要：本文分析了立方晶体三次非线性极化强度 $\boldsymbol{P}^{(3)}$ 的各向异性，导出了非线性折射系数各向异性的一般表达式，讨论了强光束在立方晶体中的自感生偏振变化规律。

Anisotropy of nonlinear refractive index in a cubic crystal

Deng He

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica)

Abstract: In this article, anisotropy of the cubic nonlinear polarization $\boldsymbol{P}^{(3)}$ in a cubic crystal is investigated, general expression of anisotropy of nonlinear refractive index is derived, and self-induced polarization change of high intensity light beam in a cubic crystal is discussed.

一、引　　言

非线性折射率是强光光学材料一个十分重要的非线性性质。它的存在将导致强光束在介质中产生各种非线性光学效应，诸如自聚焦、自相位调制、自感生偏振变化，以及三波混频、三次谐波振荡等等。近年来，人们用各种不同的方法测量了一些材料的非线性折射率，得到了不少有价值的实验数据[1~6]；同时，对产生非线性折射率的各种可能的物理机理，也开展了不少研究工作[7~8]。可是，对于立方晶体非线性折射率的各向异性行为，还很少有人注意。大家都知道，立方晶体在线性光学中是各向同性介质，它的折射率 n_0 与光的传播方向及偏振方向无关。然而，立方晶体对于椭圆偏振的强激光的自感生偏振变化效应(SIPC)却不是各向同性的[2]，由此可以推想到非线性折射率可能是各向异性的。本文分析了立方晶体三次非线性极化强度 $\boldsymbol{P}^{(3)}$ 的各向异性，导出了非线性折射率各向异性的一般表达式，讨论了线偏振的强光束在立方晶体中的自感生偏振变化规律。

二、三次非线性极化的各向异性

如果有一强单色平面波场

$$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},\ t)=\frac{1}{2}[\boldsymbol{A}\exp i(\omega t-\boldsymbol{K}\cdot\boldsymbol{r})+c.c.] \tag{1}$$

存在于晶体中时，在介质极化是瞬时响应的假设下，可以把相同频率上的三次非线性极化强度写成如下形式：

$$\boldsymbol{P}^{(3)}(\boldsymbol{r}\cdot t)=\frac{1}{2}[\boldsymbol{P}^{(3)}\exp i(\omega t-\boldsymbol{K}\cdot\boldsymbol{r})+c.c.], \tag{2}$$

收稿日期：1979年7月25日。

其中三次非线性极化强度的振幅 $\boldsymbol{P}^{(3)}$ 与场振幅 $\boldsymbol{A}$ 之间有如下关系[10]:

$$P_i^{(3)}=3C_{ijkl}(-\omega,\ \omega,\ \omega,\ -\omega)A_jA_kA_l^*,\tag{3}$$

C_{ijkl} 是三次非线性极化率张量的分量。根据晶体的空间对称性和极化率张量的置换对称性，可以证明立方晶体的三次非线性极化率张量只有21个非零张量元，其中3个是独立的[9,11]。所以，立方晶体的 C_{ijkl} 通常可以写成:

$$\begin{aligned}C_{ijkl}=&C_{1122}(\delta_{ij}\delta_{kl}+\delta_{ik}\delta_{jl})+C_{1221}\delta_{il}\delta_{jk}\\&+(C_{1111}-2C_{1122}-C_{1221})\delta_{ijkl},\end{aligned}\tag{4}$$

其中 $i=j$ 时，$\delta_{ij}=1$，否则 $\delta_{ij}=0$，$i=j=k=l$ 时，$\delta_{ijkl}=1$，否则 $\delta_{ijkl}=0$。

考虑到(4)式，对于立方晶体，(3)式可以写成:

$$\begin{aligned}P_i^{(3)}=3[&(C_{1111}-2C_{1122}-C_{1221})A_iA_iA_i^*\\&+2C_{1122}A_iA_jA_j^*+C_{1221}A_jA_jA_i^*]。\end{aligned}\tag{5}$$

为了考察三次非线性极化 $\boldsymbol{P}^{(3)}$ 的各向异性，我们考虑一个沿任意方向振动的线偏振光场:

$$\boldsymbol{A}=A\boldsymbol{a}=A(\cos\alpha\boldsymbol{i}+\cos\beta\boldsymbol{j}+\cos\gamma\boldsymbol{k}),\tag{6}$$

其中 $\cos\alpha$、$\cos\beta$、$\cos\gamma$ 是单位偏振矢量的三个方向余弦。根据(5)、(6)两式，我们得到了由任意方向的线偏振光产生的三次非线性极化矢量为:

$$\begin{aligned}\boldsymbol{P}^{(3)}=3A^3[&(2C_{1122}+C_{1221})\\&\times(\boldsymbol{i}\cos\alpha+\boldsymbol{j}\cos\beta+\boldsymbol{k}\cos\gamma)\\&+(C_{1111}-2C_{1122}-C_{1221})\\&\times(\boldsymbol{i}\cos^3\alpha+\boldsymbol{j}\cos^3\beta+\boldsymbol{k}\cos^3\gamma)],\end{aligned}\tag{7}$$

或者:

$$\begin{aligned}\boldsymbol{P}^{(3)}=3A^3[&(2C_{1122}+C_{1221})\boldsymbol{a}\\&+(C_{1111}-2C_{1122}-C_{1221})\\&\times(\cos^6\alpha+\cos^6\beta+\cos^6\gamma)^{1/2}\boldsymbol{b}],\end{aligned}\tag{8}$$

其中 $\boldsymbol{b}$ 是一个单位矢量:

$$\boldsymbol{b}=\boldsymbol{i}\cos\alpha'+\boldsymbol{j}\cos\beta'+\boldsymbol{k}\cos\gamma';\tag{9}$$

$$\left.\begin{aligned}\cos\alpha'=&\cos^3\alpha/(\cos^6\alpha+\cos^6\beta\\&+\cos^6\gamma)^{1/2},\\\cos\beta'=&\cos^3\beta/(\cos^6\alpha\\&+\cos^6\beta+\cos^6\gamma)^{1/2},\\\cos\gamma'=&\cos^3\gamma/(\cos^6\alpha\\&+\cos^6\beta+\cos^6\gamma)^{1/2}。\end{aligned}\right\}\tag{10}$$

由(8)式可知，三次非线性极化矢量 $\boldsymbol{P}^{(3)}$ 一般不在光波电场 $\boldsymbol{a}$ 的方向。它可以分成两部分，第一部分表示在光波场方向 $\boldsymbol{a}$ 上的极化，并且是各向同性的；第二部分表示与光波场 $\boldsymbol{a}$ 不同向的极化，并且是各向异性的。我们从(8)式和(10)式可以得知，当光波场方向沿立方晶体的四度、二度和三度对称轴时，将有 $\boldsymbol{b}=\boldsymbol{a}$。于是:

$\boldsymbol{a}||[100]$ 时，$\boldsymbol{P}_{100}^{(3)}=3A^3C_{1111}\boldsymbol{a}$，　(11a)

$\boldsymbol{a}||[110]$ 时，

$$\boldsymbol{P}_{110}^{(3)}=\frac{3}{2}A^3[C_{1111}+2C_{1122}+C_{1221}]\boldsymbol{a},\tag{11b}$$

$\boldsymbol{a}||[111]$ 时，

$$\boldsymbol{P}_{111}^{(3)}=A^3[C_{1111}+4C_{1122}+2C_{1221}]\boldsymbol{a}\tag{11c}$$

由此可以看出，当光波场沿立方晶体的这些对称轴时，产生的三次非线性极化是与光波场同向的，但彼此不相等，表现了各向异性。

三、非线性折射率的各向异性

上面已经看到，在一般情况下，三次非线性极化矢量 $\boldsymbol{P}^{(3)}$ 与光波场矢量 $\boldsymbol{A}$ 是不同向的。因为 $\boldsymbol{P}^{(3)}$ 在垂直于 $\boldsymbol{A}$ 的方向上的分量 $P_\perp^{(3)}$ 只对材料的介电张量的非对角元有贡献，它们引起光波电场矢量的附加转动。正如文献[9]所指出的，在一般情况下这个转动角太小了，可以忽略不计。$\boldsymbol{P}^{(3)}$ 在 $\boldsymbol{A}$ 方向上的同向分量 $P_\parallel^{(3)}$ 使介质的介电常数产生非线性变化:

$$\delta\varepsilon=4\pi P_\parallel^{(3)}/A。\tag{12}$$

由于

$$\delta\varepsilon = 2n_0\delta n, \tag{13}$$

所以非线性折射率变化可写为:

$$\delta n = 2\pi P_{\parallel}^{(3)}/n_0 A_0 \tag{14}$$

按照非线性折射系数的通常定义:

$$\delta n = \frac{1}{2} n_2 A^2。 \tag{15}$$

n_2 称为非线性折射系数，它可以用 $P_{\parallel}^{(3)}$ 表示为

$$n_2 = \frac{4\pi}{n_0}\,\frac{P_{\parallel}^{(3)}}{A^3}。 \tag{16}$$

根据我们上面导出的(8)式，$P_{\parallel}^{(3)}$ 有如下的具体形式:

$$P_{\parallel}^{(3)} = \boldsymbol{P}^{(3)}\cdot\boldsymbol{a},$$

$$\begin{aligned} P_{\parallel}^{(3)} = 3A^3 [& (2C_{1122}+C_{1221}) \\ & + (C_{1111}-2C_{1122}-C_{1221}) \\ & \times (\cos^4\alpha+\cos^4\beta+\cos^4\gamma)]。 \end{aligned} \tag{17}$$

于是，我们得出了立方晶体非线性折射系数 n_2 的一般表示式为:

$$\begin{aligned} n_2 = \frac{12\pi}{n_0} [& (2C_{1122}+C_{1221}) \\ & + (C_{1111}-2C_{1122}-C_{1221}) \\ & \times (\cos^4\alpha+\cos^4\beta+\cos^4\gamma)]; \end{aligned} \tag{18}$$

或者:

$$n_2 = C_1 + C_2(\cos^4\alpha+\cos^4\beta+\cos^4\gamma), \tag{18$'$}$$

其中:

$$C_1 = \frac{12\pi}{n_0}(2C_{1122}+C_{1221}),$$

$$C_2 = \frac{12\pi}{n_0}(C_{1111}-2C_{1122}-C_{1221})。$$

C_1 是立方晶体非线性折射系数的各向同性部分; C_2 是它的各向异性部分的最大值。

当光波场沿立方晶体的 [100]、[110]、[111] 轴方向时，产生的非线性折射率可以从(18)式分别得到:

$$n_{2,[100]} = \frac{12\pi}{n_0} C_{1111}, \tag{19}$$

$$n_{2,[110]} = \frac{6\pi}{n_0}[C_{1111}+2C_{1122}+C_{1221}], \tag{20}$$

$$n_{2,[111]} = \frac{4\pi}{n_0}[C_{1111}+4C_{1122}+2C_{1221}]。 \tag{21}$$

其中 (19)、(20) 式同文献 [2] 中报道的形式一样。(21)式是本文第一次给出的。对于其他任何具体的偏振方向，均可从本文导出的(18)式得出相应的 n_2 表示式。

为了清楚地了解 n_2 的各向异性行为，我们研究了 n_2 在 (001) 和 $(1\bar{1}0)$ 平面内的分布情形。

当 $\boldsymbol{a}$ 位于(001)平面内时，

$$n_2 = C_1 + C_2\left[1 - \frac{1}{2}\sin^2 2\alpha\right]。 \tag{22}$$

它的分布如图 1 所示。C_1 和 C_2 的大小与具体的晶体有关，在图 1 和下面的图 2 中，它们是任意取的。从图 1 可以看出，在 $\boldsymbol{A}$ 取 [100] 和 [010] 方向时，n_2 有最大值，等于 (C_1+C_2)，在 [110] 和 $[1\bar{1}0]$ 方向时，n_2 有最小值，等于$\left(C_1+\frac{1}{2}C_2\right)$。

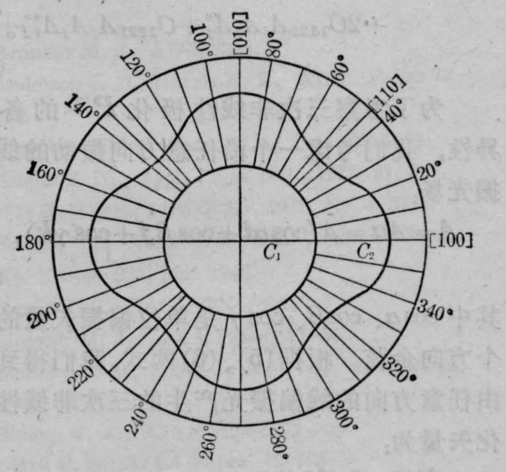


图 1 (001)平面内 n_2 的各向异性

当 $\boldsymbol{a}$ 位于 $(1\bar{1}0)$ 平面内时，

$$n_2 = C_1 + C_2\left[1 - \frac{1}{2}(4\sin^2\gamma - 3\sin^4\gamma)\right]。 \tag{23}$$

它的分布如图 2 所示。从图 2 可以看出，偏振矢量在[001]方向上时，n_2 有最大值，等于 (C_1+C_2); 偏振矢量在 [110] 方向时 n_2 有次极大值，等于 $\left(C_1+\frac{1}{2}C_2\right)$; n_2 的最小值出现在偏振矢量沿[111]和$[\bar{1}\bar{1}1]$方向时，等于

$\left(C_1+\frac{1}{3}C_2\right)$。

在一般情况下，当 $\boldsymbol{\alpha}$ 位于包含[001]轴的任意平面内时，非线性折射率为：

$$n_2=C_1+C_2\left[\cos^4\gamma+\sin^4\gamma\left(1-\frac{1}{2}\sin^2 2\alpha\right)\right]。\tag{24}$$

$\alpha=0$ 时，(24) 式退化为 (22) 式；$\alpha=\frac{\pi}{4}$ 时，(24)式退化为(23)式，所以(22)和(23)式是(24)式的两个特例。

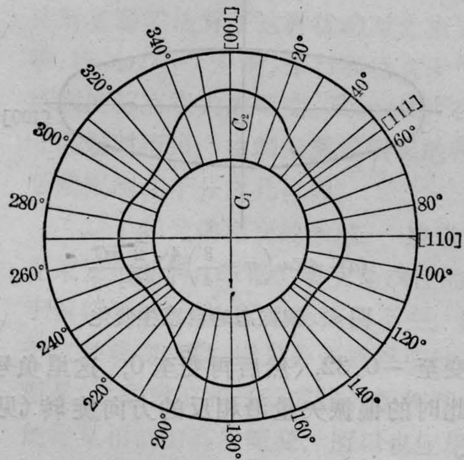


图 2 (1$\bar{1}$0)平面内 n_2 的各向异性

四、立方晶体中的自感生偏振变化

设光波电场矢量位于(001)平面内时，即 $\boldsymbol{\alpha}=(\cos\alpha, \sin\alpha, 0)$。根据 (8) 式，可得二个主轴[100]和[010]上偏振分量的非线性折射率变化为：

$$\delta n_1=\frac{1}{2}A^2(C_1+C_2\cos^2\alpha),\tag{25}$$

$$\delta n_2=\frac{1}{2}A^2(C_1+C_2\sin^2\alpha)。\tag{26}$$

这两个偏振分量在立方晶体中传播 l 距离后，产生的相位差为：

$$\phi=\frac{\omega}{C}(\delta n_1-\delta n_2)l=\frac{\omega}{2C}A^2C_2 l\cos 2\alpha。\tag{27}$$

一般说来，合成波将是一个椭圆偏振光：

$$\frac{x^2}{A^2\cos^2\alpha}+\frac{y^2}{A^2\sin^2\alpha}-\frac{2xy}{A^2\cos\alpha\sin\alpha}\cos\phi=\sin^2\phi。\tag{28}$$

在形式上这与双折射晶体或波片产生的效果类似。但是，由于(27)式，这种自感生偏振变化与双折射晶体中的情形不完全一样。

(28)式所示的椭圆参数由下式决定：

$$\operatorname{tg}2\theta=\operatorname{tg}2\alpha\cos\phi=\operatorname{tg}2\alpha\cos\left[\frac{\omega C_2}{2C}A^2 l\cos 2\alpha\right],\tag{29}$$

$$\operatorname{tg}2\chi=\sin 2\alpha\sin\phi=\sin 2\alpha\sin\left[\frac{\omega C_2}{2C}A^2 l\cos 2\alpha\right];\tag{30}$$

其中 θ 是椭圆主轴与 x 轴(即 [100] 轴)的夹角；$\operatorname{tg}\chi=\frac{b}{a}$，描述偏振的椭圆度(见图 3)。由(29)和(30)式可知，在 C_2A^2l 很小时，$\operatorname{tg}2\theta\approx\operatorname{tg}2\alpha$，$\operatorname{tg}2\chi\approx 0$，亦即 α 取任何值时都不会发生偏振态的变化。这就是我们在线性光学中见到的现象。此外，由(29)和(30)式还可知道，当 $\alpha=0$ 或 $\alpha=\frac{\pi}{4}$ 时，即使 $\frac{\omega C_2}{2C}A^2l$ 相当大，光束的偏振态不会发生变化。可以证明，光波电场矢量沿[111]轴方向时，也不会发生偏振态的变化。只有当 $\alpha=\frac{\pi}{8}$ 附近时才有可能产生明显的偏振态变化，此时

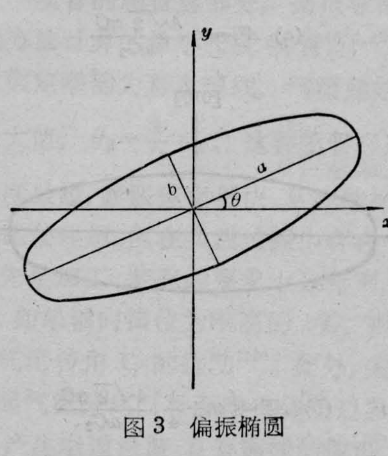


图 3 偏振椭圆

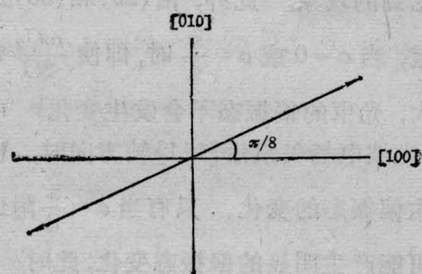
$$\operatorname{tg} 2\theta=\cos\left[\frac{\sqrt{2}}{4}\,\frac{\omega C_2}{C}\,A^2 l\right],$$

$$-1\leqslant \operatorname{tg} 2\theta\leqslant 1,$$

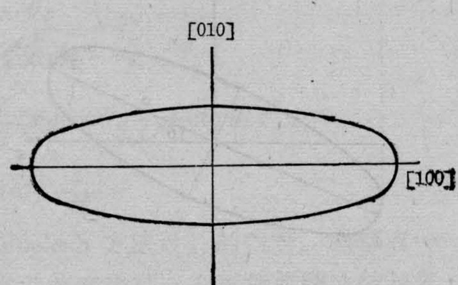
$$\operatorname{tg} 2\chi=\frac{\sqrt{2}}{2}\sin\left[\frac{\sqrt{2}}{4}\,\frac{\omega C_2}{C}\,A^2 l\right],$$

$$-\frac{\sqrt{2}}{2}\leqslant \operatorname{tg} 2\chi\leqslant\frac{\sqrt{2}}{2}。$$

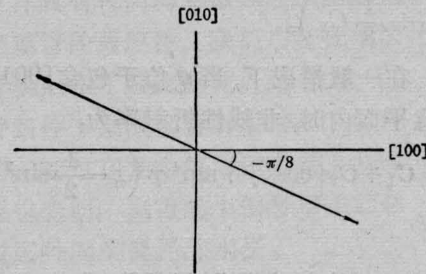
所以，随着 A^2l 的增大(即随着光功率密度和晶体长度的增加)，偏振椭圆主轴将在 $\frac{\pi}{8}\leftrightarrow-\frac{\pi}{8}$ 之间来回摆动，椭圆度参量 $\frac{b}{a}$ 在 $0\leftrightarrow\pm0.32$ 之间变化。例如，当 A^2l 从零增加至 $\frac{\sqrt{2}\,C\pi}{\omega C_2}$ 时，光束从 $\theta=\frac{\pi}{8}$ 的线偏振光变为 $\theta=0$, $\frac{b}{a}=0.32$ 的椭圆偏振光；继续增加 A^2l 至 $\frac{2\sqrt{2}\,C\pi}{\omega C_2}$ 时，光束又逐渐从椭圆偏振变化成线偏振，但偏振方向变至 $\theta=-\frac{\pi}{8}$。再继续增加 A^2l 值时，偏振主轴方向将从 $\theta=-\frac{\pi}{8}$ 逐渐变回至 $\theta=\frac{\pi}{8}$，椭圆度 $\frac{b}{a}$ 从



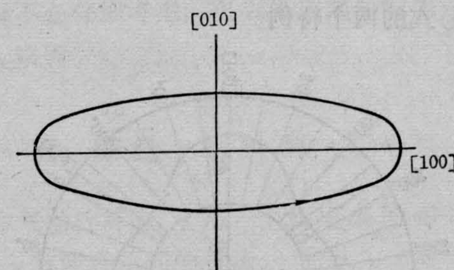
(a) $A^2l=m\,\frac{4\sqrt{2}\,\pi C}{\omega C_2}$



(b) $A^2l=\left(m+\frac{1}{4}\right)\frac{4\sqrt{2}\,\pi C}{\omega C_2}$



(c) $A^2l=\left(m+\frac{1}{2}\right)\frac{4\sqrt{2}\,\pi C}{\omega C_2}$



(d) $A^2l=\left(m+\frac{3}{4}\right)\frac{4\sqrt{2}\,\pi C}{\omega C_2}$

图4 偏振态的自感生变化

0变至 −0.32，然后再变至0，这里负号表示此时的偏振矢量沿相反的方向旋转(见图4)。

参 考 文 献

[1] A. Owyoung *et al.*; *Phys. Rev.*, 1972, **B5**, 628.

[2] A. Owyoung; *IEEE J. Quant. Electr.*, 1973, **QE-9**, 1064.

[3] M. J. Moran *et al.*; *IEEE J. Quant. Electr.*, 1975, **QE-11**, 259.

[4] D. Milam, M. J. Weber; *J. Appl. Phys.*, 1976, **47**, 2497.

[5] W. L. Smith *et al.*; *Phys. Rev. B: Solid State*, 1975, **12**, 706.

[6] 邓和，张梅珍等；《激光》，1979, **6**, No. 1, 13.

[7] O. Svelto; in Prog. Opt., **11** (1974).

[8] M. J. Weber *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1978, **32**, 403.

[9] R. W. Hellwarth; in Prog. Quant. Electr., **5** (1977), part 1.

[10] P. D. Maker, R. W. Terhune; *Phys. Rev.*, 1965, **137**, A801.

[11] P. N. Butcher; Nonlinear Opt. Phenomena, Engineering Experiment Station, Ohio State Univ., Columbus, Bull 200 (1965).