

Неоднородное поперечное распределение интенсивности и поляризации света при генерации суммарной частоты от поверхности изотропной гиротропной среды в геометрии нормального падения

В.А.Макаров, И.А.Пережогин

Теоретически исследована генерация суммарной частоты от поверхности изотропной гиротропной среды двумя однородно эллиптически поляризованными пучками гауссова профиля при их нормальном падении. При получении аналитических формул, полностью описывающих поперечное пространственное распределение интенсивности и поляризации в поперечном сечении отраженного пучка на суммарной частоте, принимались во внимание как локальный и нелокальный вклады квадратичной нелинейности толщи среды, так и нелинейный вклад ее поверхности. Показано, что специальный подбор параметров волн основного излучения позволяет получать информацию о величине компонент тензора поверхностной восприимчивости.

Ключевые слова: генерация суммарной частоты, поверхность, эллиптическая поляризация, гиротропия, пространственная дисперсия.

1. Введение

Бурный старт нелинейной оптики, открывшей миру множество необыкновенно красивых физических явлений, вначале на какое-то время отодвинул на второй план анализ изменения поляризаций взаимодействующих в среде волн (история открытий и исследований основных нелинейных оптических эффектов изложена в работах [1–3]). Первоначально считалось, что состояния их поляризаций могут оказывать лишь незначительное влияние на классические эффекты нелинейной оптики, а следовательно, весьма трудоемкое теоретическое исследование, связанное с решением как минимум в два раза большего числа связанных нелинейных дифференциальных уравнений, чем в приближении неизменности поляризации света в процессе распространения, малооправданно и представляет лишь академический интерес. Более того, такие исследования не стимулировались экспериментом. Как показали оценки, некоторые поляризационные эффекты могли наблюдаться лишь при значительных для середины 1960-х годов интенсивностях лазерного излучения.

Важность построения нелинейной поляризационной оптики никогда не подвергал сомнению Сергей Александрович Ахманов. Вместе с В.И.Жариковым он в 1967 г. предсказал эффект нелинейной оптической активности [4] – зависящий от интенсивности излучения поворот плос-

кости поляризации линейно поляризованного света, падающего на среду с пространственной дисперсией кубической нелинейности. Эта работа стимулировала последовательное развитие нелинейной поляризационной оптики в МГУ (исследования Н.И.Желудева, В.А.Макарова и их учеников), а затем и в других научных центрах [2].

Проведенные теоретические и экспериментальные исследования дают возможность в настоящее время со всей определенностью утверждать, что эффекты поляризационного самовоздействия и взаимодействия волн относятся к тонким, но широко распространенным эффектам нелинейной оптики. Использование в теоретических расчетах приближения неизменности поляризации волны в процессе распространения является малооправданным и представляет собой лишь первый шаг на пути последовательного описания нелинейных оптических явлений. Волна в устройствах квантовой электроники всегда эллиптически поляризована, причем степень ее эллиптичности, а также угол наклона главной оси эллипса поляризации меняются при прохождении нелинейных кристаллов вследствие переотражений от гладких поверхностей, а также из-за резонаторных эффектов. Более того, при взаимодействии волн в нелинейных средах их поляризация может различным образом изменяться в разных точках поперечного сечения светового пучка [5–7]. В ряде случаев эллиптически поляризованный импульс может дробиться на отдельные части, в каждой из которых степень эллиптичности электрического поля по модулю близка к единице. При этом направление вращения вектора электрического поля в центре импульса противоположно направлению вращения в боковых частях [8].

С именем С.А.Ахманова связано также активное применение идей и методов нелинейной оптики в лазерной спектроскопической диагностике вещества [9]. В обширном списке спектроскопических схем, предложенных им и его учениками, присутствуют методики, основанные на использовании зависящих от интенсивности эффектов

В.А.Макаров. Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова, физический факультет; Международный учебно-научный лазерный центр МГУ им. М.В.Ломоносова, Россия, 119991 Москва, Воробьевы горы; e-mail: vamaarov@phys.msu.ru

И.А.Пережогин. Международный учебно-научный лазерный центр МГУ им. М.В.Ломоносова, Россия, 119991 Москва, Воробьевы горы; e-mail: iap1@mail.ru

Поступила в редакцию 12 января 2009 г., после доработки – 10 апреля 2009 г.

изменения поляризации света. Являясь одной из наиболее совершенных, техника поляризационных измерений [10] позволяет регистрировать весьма слабые изменения степени эллиптичности и угла поворота главной оси эллипса поляризации сигнальной волны, а следовательно, получать недоступную другим методам исследования спектроскопическую информацию о веществе. Дополнительные возможности связаны с использованием эллиптически поляризованных волн основного излучения. Последнее, по мнению С.А.Ахманова, позволяет увеличить число «степеней свободы». Иными словами, можно изменять степени эллиптичности, взаимную ориентацию главных осей эллипсов поляризации и другие характеристики волн основного излучения и тем самым подчеркивать или подавлять вклад локальных, нелокальных, а в задачах, связанных с отражением света, и поверхностных нелинейных оптических восприимчивостей в интенсивность и поляризацию сигнальной волны.

Генерация суммарной частоты (ГСЧ) с момента открытия этого явления является одним из наиболее эффективных и часто используемых методов изучения свойств поверхности. В настоящее время ГСЧ используется в спектроскопии [11–13], микроскопии [14–16], при возбуждении поверхностных волн [17], а также при исследовании упорядоченности молекул [18, 19] и молекулярных кластеров на поверхности среды или в тонкой пленке, нанесенной на подложку. В последнее время ГСЧ активно используется также в задачах, связанных со спектроскопией колебательных спектров, стимулируя разработку различных моделей взаимодействия излучения с молекулами [18, 20].

ГСЧ является весьма эффективным методом спектроскопии и диагностики поверхности изотропных гиротропных сред. В отличие от обычных изотропных (симметрия которых $\infty \infty m$), такие среды состоят из хаотически ориентированных хиральных молекул, имеют группу симметрии $\infty \infty$ и, следовательно, обладают локальной квадратичной восприимчивостью. При этом пространственная дисперсия квадратичного отклика объема вещества (связанная с нелокальностью отклика среды) и квадратичная нелинейность поверхности также обеспечивают возможность ГСЧ. Заметим, что последние два механизма ГСЧ будут иметь место и в обычной изотропной среде.

В теоретических работах, посвященных ГСЧ от поверхности изотропной хиральной среды, авторы делали попытки различными способами учесть влияние пространственной дисперсии нелинейного оптического отклика вещества [21–28] и неоднородность оптических свойств приповерхностного слоя [26–28], а также указать способы экспериментального разделения вкладов в сигнальную волну, обусловленных поверхностью и объемом вещества [26–28]. Вычисления, как правило, проводились в плосковолновом приближении, а волновые векторы взаимодействующих волн основного излучения лежали в одной плоскости падения.

В теоретических работах [29, 30] впервые исследовалось влияние пространственной ограниченности падающего эллиптически поляризованного светового пучка на генерацию от поверхности изотропной гиротропной среды второй гармоники (ГВГ), являющейся вырожденным случаем ГСЧ. В [29] обсуждалась специфика ГВГ при наклонном падении двумерного (щелевого) гауссова пучка, а в [30] была решена задача о ГВГ при нормальном

падении трехмерного гауссова пучка. В обеих работах особое внимание уделялось корректному учету нелинейного отклика поверхности вещества (для этого применялись модифицированные граничные условия [31,32]) и нелокальности нелинейного отклика объема среды.

В работе [29] было показано, что в случае наклонного падения двумерного пучка его пространственная ограниченность вносит лишь небольшую (пропорциональную углу его расходимости) поправку в выражение для напряженности поля излучения на удвоенной частоте, полученное в плосковолновом приближении. Позднее [33] было установлено, что в большинстве случаев то же можно сказать и о трехмерном гауссовом пучке, падающем на нелинейную среду, параметры которой могут меняться в достаточно широких пределах, под произвольным углом. Однако при нормальном падении отраженный от поверхности изотропной хиральной среды сигнал на суммарной частоте может возникнуть лишь за счет неколлинеарного взаимодействия пространственных фурье-компонент пучка [28, 30] (в плосковолновом приближении ГСЧ невозможна).

Спектроскопические схемы, в которых в случае нормального падения эллиптически поляризованных волн основного излучения при диагностике поверхности используется ГВГ, позволяют получить по измеренному распределению поляризации в плоскости поперечного сечения сигнального пучка отдельные компоненты тензоров нелокальных и поверхностных нелинейных восприимчивостей среды. Это можно сделать [6], фиксируя состояния поляризации излучения на специально выбранных прямых в плоскости поперечного сечения отраженного пучка на удвоенной частоте. Можно ожидать, что в случае ГСЧ удастся получить больше информации о среде.

Настоящая работа посвящена исследованию специфики формирования неоднородного распределения поляризации в поперечном сечении пучка излучения на суммарной частоте, возникающего при отражении от поверхности изотропной гиротропной среды (симметрия $\infty \infty$) двух нормально падающих соосных эллиптически поляризованных гауссовых пучков основного излучения. Основное внимание будет уделено поперечным распределениям поляризации, позволяющим извлекать спектроскопическую информацию о хиральной среде или о ее поверхности.

2. Методика нахождения напряженности электрического поля в отраженной волне на суммарной частоте и решение задачи в квадратурах

Отраженный сигнал на суммарной частоте $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ возникает благодаря нелинейным оптическим откликам поверхности среды и её объёма, вызванным монохроматическими волнами на частотах $\omega_{1,2}$. Первый из них связан с отличием симметрии приповерхностного слоя изотропной гиротропной среды (группа ∞) от симметрии её толщи (группа $\infty \infty$). Для его описания мы воспользуемся модифицированными граничными условиями для электромагнитного поля [31]. Они получаются в результате решения уравнений Максвелла в приповерхностной области среды с эффективной толщиной d_0 .

Свяжем систему координат с поверхностью исследуемой среды таким образом, чтобы ось z была направлена

перпендикулярно поверхности в глубь среды, а оси x и y лежали на поверхности. В первом приближении по малому параметру $\mu \simeq d_0/\lambda_m$, где $\lambda_m = 2\pi c/\omega_m$, а $m = 1, 2, 3$, эти условия, связывающие компоненты векторов напряженности \mathbf{E} и индукций \mathbf{D} и \mathbf{B} электрического и магнитного полей на частоте ω_m в вакууме (верхний индекс «v») и в веществе (верхний индекс «t») с нелокальностью нелинейного оптического отклика, на границе раздела $z = 0$ имеют следующий вид [31]:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{\text{тан}}^{(v)}(\omega_m) - \mathbf{E}_{\text{тан}}^{(t)}(\omega_m) &= \frac{4\pi}{i\omega_m} \text{grad}_{\text{тан}} i_n(\omega_m), \\ D_n^{(v)}(\omega_m) - D_n^{(t)}(\omega_m) &= \frac{4\pi}{i\omega_m} \text{div } \mathbf{i}_{\text{тан}}(\omega_m), \\ \mathbf{B}^{(v)}(\omega_m) - \mathbf{B}^{(t)}(\omega_m) &= \frac{4\pi}{c} [\mathbf{n} \times \mathbf{i}_{\text{тан}}(\omega_m)]. \end{aligned} \quad (1)$$

Здесь \mathbf{n} – перпендикулярный поверхности единичный вектор, направленный противоположно оси z из среды в вакуум; c – скорость света; индексами «tan» и «n» обозначены тангенциальные и нормальные составляющие векторов \mathbf{E} , \mathbf{D} , \mathbf{B} и \mathbf{i} . Последний может быть интерпретирован как поверхностная плотность тока связанных зарядов [31, 32], и в общем случае в первом приближении по параметру μ его можно представить в виде разложения по степеням $E^{(v)}$:

$$\mathbf{i} = \hat{\kappa}^{(1)} \mathbf{E}^{(v)} + \hat{\kappa}^{(2)} : \mathbf{E}^{(v)} \mathbf{E}^{(v)} + \hat{\kappa}^{(3)} \vdots \mathbf{E}^{(v)} \mathbf{E}^{(v)} \mathbf{E}^{(v)} + \dots, \quad (2)$$

где материальные тензоры $\hat{\kappa}^{(n)}$ характеризуют отклик поверхности нелинейной среды на внешнее электромагнитное поле. Обусловленный тонким приповерхностным слоем отраженный сигнал на суммарной частоте связан со вторым слагаемым в этой сумме:

$$i_i(\omega_3) = \kappa_{ikl}^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2) E_k^{(v)}(\omega_1) E_l^{(v)}(\omega_2). \quad (3)$$

Для нахождения нелинейного оптического отклика толщи среды, вызванного монохроматическими волнами на частотах $\omega_{1,2}$, воспользуемся феноменологическим подходом и запишем выражение для нелинейной поляризации на частоте ω_3 в следующем виде:

$$\begin{aligned} P_i^{\text{NL}}(\omega_3) &= \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2) E_j^{(t)}(\omega_1) E_k^{(t)}(\omega_2) \\ &+ \gamma_{ijkl}^{(2)1}(\omega_3; \omega_1, \omega_2) \frac{\partial E_k^{(t)}(\omega_1)}{\partial x_j} E_l^{(t)}(\omega_2) \\ &+ \gamma_{ijkl}^{(2)2}(\omega_3; \omega_1, \omega_2) E_k^{(t)}(\omega_1) \frac{\partial E_l^{(t)}(\omega_2)}{\partial x_j}. \end{aligned} \quad (4)$$

Здесь $\hat{\chi}^{(2)}$ – тензор локальной квадратичной восприимчивости объема среды; $\hat{\gamma}^{(2)}$ – тензор, описывающий малую пространственную дисперсию $\hat{\chi}^{(2)}$, возникающую из-за нелокальности квадратичного оптического отклика объема среды. Более подробно об учете пространственной дисперсии и определении описывающего ее материального тензора $\hat{\gamma}^{(2)}$ при малом (по сравнению с длиной распространяющейся волны) масштабе нелокальности оптического отклика см. в [27–30]. Подчеркнем, что, в отличие от $\hat{\chi}^{(2)}$, описывающие пространственную дисперсию квадратичной нелинейности тензоры $\hat{\gamma}^{(2)1,2}$ несимметричны по перестановке последних двух индексов с одновременной перестановкой частотных аргументов.

Пусть на плоскую поверхность изотропной гиротропной среды коллинеарно падают имеющие общую ось симметрии (совпадает с осью z) слабо расходящиеся монохроматические пучки основного излучения с произвольными распределениями интенсивности и поляризации. Считая, что характерные изменения напряженности электрического поля в плоскостях поперечных сечений падающих, отраженных и преломленных пучков происходят на расстояниях, много больших λ_m , представим $\mathbf{E}^{(v,t)}(\omega_m, \mathbf{r}, z = 0)$, используя интеграл Фурье, в виде суперпозиции монохроматических плоских волн:

$$\mathbf{E}^{(v,t)}(\omega_m, \mathbf{r}, z = 0) = \iint \tilde{\mathbf{E}}^{(v,t)}(\omega_m, \mathbf{k}_{m\perp}) \exp(i\mathbf{k}_{m\perp} \mathbf{r}) d\mathbf{k}_{m\perp}, \quad (5)$$

где $\mathbf{k}_{m\perp}$ – компонента волнового вектора, лежащего в плоскости xu . В дальнейшем будем считать, что в среде отсутствует поглощение, и все пространственные фурье-компоненты $\tilde{\mathbf{E}}^{(t)}(\omega_m, \mathbf{k}_{1,2\perp})$ имеют действительные волновые векторы. Принимая во внимание малость углов расходимости пучков основного излучения, будем при нахождении поля учитывать лишь линейные по $\mathbf{k}_{1,2,3\perp}$ слагаемые, а в показателях экспонент (где они отсутствуют) – квадратичные. Входящие в выражение (5) $\tilde{\mathbf{E}}^{(v)}(\omega_{1,2}, \mathbf{k}_{1,2\perp})$ и $\tilde{\mathbf{E}}^{(t)}(\omega_{1,2}, \mathbf{k}_{1,2\perp})$ легко выразить через фурье-образы полей падающих волн $\tilde{\mathbf{E}}_{\perp}(\omega_{1,2}, \mathbf{k}_{1,2\perp})$, положив в формулах (1) $\mathbf{i}(\omega_{1,2}) \equiv 0$ (при этом условия (1) переходят в традиционные граничные условия) и перейдя в них к пространственным фурье-компонентам. В результате, пренебрегая $P_i^{\text{NL}}(\omega_{1,2})$, получаем следующие соотношения:

$$\begin{aligned} \tilde{\mathbf{E}}_{\perp}^{(v)}(\omega_{1,2}, \mathbf{k}_{1,2\perp}) &= \tilde{\mathbf{E}}_{\perp}^{(t)}(\omega_{1,2}, \mathbf{k}_{1,2\perp}) \\ &= \frac{2}{1 + n_{1,2}} \tilde{\mathbf{E}}_{\perp}(\omega_{1,2}, \mathbf{k}_{1,2\perp}), \end{aligned} \quad (6)$$

$$\begin{aligned} \tilde{\mathbf{E}}_z^{(v)}(\omega_{1,2}, \mathbf{k}_{1,2\perp}) &= \varepsilon_{1,2} \tilde{\mathbf{E}}_z^{(t)}(\omega_{1,2}, \mathbf{k}_{1,2\perp}) \\ &= -\varepsilon_{1,2} \frac{2}{(1 + n_{1,2}) n_{1,2} k_{1,2}} \mathbf{k}_{1,2\perp} \tilde{\mathbf{E}}_{\perp}(\omega_{1,2}, \mathbf{k}_{1,2\perp}), \end{aligned} \quad (7)$$

где $\varepsilon_{1,2}$ – диэлектрические проницаемости среды на частотах $\omega_{1,2}$ соответственно; $n_{1,2} = \sqrt{\varepsilon_{1,2}}$ – показатели преломления; $\tilde{\mathbf{E}}(\omega_{1,2}, \mathbf{k}_{1,2\perp})$ – пространственные фурье-компоненты электрических полей пучков основного излучения, падающих на среду. Напомним, что $\tilde{\mathbf{E}}^{(v)}(\omega_{1,2}, \mathbf{k}_{1,2\perp}) = \tilde{\mathbf{E}}(\omega_{1,2}, \mathbf{k}_{1,2\perp}) + \tilde{\mathbf{E}}^{(t)}(\omega_{1,2}, \mathbf{k}_{1,2\perp})$, где верхний индекс «v» соответствует отраженной волне. Зная последние и представляя аналогично (5) поляризацию $P_i^{\text{NL}}(\omega_3)$ и ток $\mathbf{i}(\omega_3)$ в виде интегралов Фурье, а также учитывая, что лежащая в плоскости xu компонента волнового вектора $\mathbf{k}_{3\perp} = \mathbf{k}_{1\perp} + \mathbf{k}_{2\perp}$, можно найти выражения для пространственных фурье-компонент поляризации и тока $\tilde{\mathbf{P}}^{(\text{NL})}(\omega_3, \mathbf{k}_{3\perp})$ и $\tilde{\mathbf{i}}(\omega_3, \mathbf{k}_{3\perp})$:

$$\begin{aligned} \tilde{i}_j(\omega_3, \mathbf{k}_{3\perp}) &= \iint \kappa_{jkl}^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2) \\ &\times \tilde{E}_k^{(v)}(\omega_1, \mathbf{k}_{1\perp}) \tilde{E}_l^{(v)}(\omega_2, \mathbf{k}_{3\perp} - \mathbf{k}_{1\perp}) d\mathbf{k}_{1\perp}, \end{aligned} \quad (8)$$

$$\begin{aligned} \tilde{P}_i^{(\text{NL})}(\omega_3, \mathbf{k}_{3\perp}) &= \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2) \\ &\times \iint \tilde{E}_j^{(t)}(\omega_1, \mathbf{k}_{1\perp}) \tilde{E}_k^{(t)}(\omega_2, \mathbf{k}_{3\perp} - \mathbf{k}_{1\perp}) d\mathbf{k}_{1\perp} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 & + \gamma_{ijkl}^{(2)1}(\omega_3; \omega_1, \omega_2) \iint k_{1j} \tilde{E}_k^{(t)}(\omega_1, \mathbf{k}_{1\perp}) \\
 & \times \tilde{E}_l^{(t)}(\omega_2, \mathbf{k}_{3\perp} - \mathbf{k}_{1\perp}) d\mathbf{k}_{1\perp} + \gamma_{ijkl}^{(2)2}(\omega_3; \omega_1, \omega_2) \\
 & \times \iint (k_{1j} - k_{3j}) \tilde{E}_k^{(t)}(\omega_1, \mathbf{k}_{1\perp}) \tilde{E}_l^{(t)}(\omega_2, \mathbf{k}_{3\perp} - \mathbf{k}_{1\perp}) d\mathbf{k}_{1\perp}.
 \end{aligned} \tag{9}$$

Видно, что формулы (8) и (9) представляют собой свертки пространственных фурье-компонент полей падающих на среду волн, при вычислении которых интегрирование ведется по всем возможным значениям $\mathbf{k}_{1\perp}$ и $\mathbf{k}_{2\perp}$ (их сумма равна $\mathbf{k}_{3\perp}$).

Для вычисления пространственной фурье-компоненты напряженности электрического поля отраженной волны на суммарной частоте $\tilde{E}^{(r)}(\omega_3, \mathbf{k}_{3\perp})$ необходимо подставить в модифицированные граничные условия (1) пространственные фурье-компоненты (8) поверхностной плотности тока связанных зарядов $\tilde{i}(\omega_3, \mathbf{k}_{3\perp})$ и индукцию электрического поля

$$\tilde{D}^{(t)}(\omega_3, \mathbf{k}_{3\perp}) = \varepsilon_3 \tilde{E}^{(t)}(\omega_3, \mathbf{k}_{3\perp}) + 4\pi \tilde{P}^{(NL)}(\omega_3, \mathbf{k}_{3\perp}), \tag{10}$$

удовлетворяющую уравнению $\text{div} \tilde{D}^{(t)}(\omega_3, \mathbf{k}_{3\perp}) = 0$, а затем решить полученную систему алгебраических уравнений. В (10) ε_3 – диэлектрическая проницаемость среды на частоте ω_3 . Для нахождения $\tilde{D}^{(t)}(\omega_3, \mathbf{k}_{3\perp}) = 0$ необходимо знать пространственную фурье-компоненту $\tilde{E}^{(t)}(\omega_3, \mathbf{k}_{3\perp})$. Её можно найти, решив в приближении заданного поля волновое уравнение с нелинейной поляризацией (9) в правой части. В результате получим формулы для пространственных фурье-компонент составляющих напряженности электрического поля отраженной волны на суммарной частоте вблизи поверхности среды:

$$\begin{aligned}
 \tilde{E}_{\perp}^{(r)}(\mathbf{k}_{3\perp}) = & -\frac{4\pi}{n_3} \left[\frac{1}{c} \left(\tilde{i}_{\perp} + \frac{n_3 \mathbf{k}_{3\perp}}{k_3} \tilde{i}_z \right) \right. \\
 & \left. + \frac{\omega_3}{n_1 \omega_1 + n_2 \omega_2 + n_3 \omega_3} \left(\tilde{P}_{\perp}^{(NL)} + \frac{\mathbf{k}_{3\perp}}{n_3 k_3} \tilde{P}_z^{(NL)} \right) \right], \tag{11}
 \end{aligned}$$

$$\tilde{E}_z^{(r)}(\omega_3, \mathbf{k}_{3\perp}) = \frac{1}{k_3^{(r)}} (\mathbf{k}_{3\perp} \tilde{E}_{\perp}^{(r)}(\omega_3, \mathbf{k}_{3\perp})), \tag{12}$$

где $n_3 = \sqrt{\varepsilon_3}$, а $k_3^{(r)} = \omega_3/c$. Как видно из полученных выражений, продольная составляющая $\tilde{E}_z^{(r)}(\omega_3, \mathbf{k}_{3\perp})$ имеет более высокий порядок малости по углу расходимости пучка, чем поперечная составляющая $\tilde{E}_{\perp}^{(r)}(\mathbf{k}_{3\perp})$. Подставив $\tilde{E}_{\perp}^{(r)}(\mathbf{k}_{3\perp})$ и $\tilde{E}_z^{(r)}(\omega_3, \mathbf{k}_{3\perp})$ в (5) и проведя интегрирование, можно найти в квадратурах распределение интенсивности и поляризации в плоскости поперечного сечения отраженного пучка на суммарной частоте вблизи поверхности среды. Подчеркнем, что сделать это можно для любых распределений напряженностей электрических полей в пучках основного излучения, имеющих малую угловую расходимость.

3. Случай падения на среду однородно эллиптически поляризованных гауссовых пучков

Рассмотрим падение на среду двух однородно эллиптически поляризованных в плоскости поперечного сече-

ния пучков основного излучения с гауссовыми профилями интенсивности:

$$\begin{aligned}
 \mathbf{E}(\omega_{1,2}, x, y, z) = & \left[\mathbf{e}_{1,2} + \frac{i}{k_{1,2}^{(r)}} \mathbf{e}_z (\mathbf{e}_{1,2} \nabla) \right] \\
 & \times \frac{E_{01,02}}{\beta_{1,2}(z)} \exp \left(-\frac{x^2 + y^2}{\omega_{1,2}^2 \beta_{1,2}(z)} - i\omega_{1,2} t + ik_{1,2} z \right). \tag{13}
 \end{aligned}$$

Здесь $|\mathbf{e}_{1,2}|^2 = 1$ – единичные комплексные векторы поляризации (их конкретный вид будет определен ниже); $\beta_{1,2}(z) = 1 - iz/l_{1,2}$; $l_{1,2} = k_{1,2} \omega_{1,2}^2 / 2$ – дифракционные длины; $E_{01,02}$ – амплитуды, $\omega_{1,2}$ – частоты, $\omega_{1,2} / c$ – соответствующие волновые числа. Выражение (13) содержит продольную составляющую напряженности электрического поля в таком виде, при котором в первом приближении по параметру $\lambda_{1,2} / \omega_{1,2}$ (углы расходимости падающих пучков считаются малыми, $\omega_{1,2} \gg \lambda_{1,2}$) в вакууме выполняется необходимое условие

$$\text{div} \mathbf{E}(\omega_{1,2}) = 0. \tag{14}$$

Заметим, что плоскости перетяжек пучков, задаваемых формулой (13), совпадают с плоскостью $z = 0$.

Эллиптически поляризованное излучение полностью характеризуется двумя комплексными или четырьмя действительными параметрами. Можно выбрать циркулярно поляризованные компоненты поля $E_{m\pm} = E_x(\omega_m) \pm iE_y(\omega_m)$ или параметры Стокса. Однако в нашей задаче удобнее использовать следующие четыре параметра: интенсивность $I_m = (|E_{m+}|^2 + |E_{m-}|^2) / 2$, степень эллиптичности $M_m = (|E_{m+}|^2 - |E_{m-}|^2) / (|E_{m+}|^2 + |E_{m-}|^2)$, угол поворота главной оси эллипса поляризации $\Psi_m = \frac{1}{2} \arg\{E_{m+} \times E_{m-}^*\}$ и угол, задающий ориентацию вектора напряженности электрического поля в фиксированный момент времени, $\Phi_m = \arg\{E_{m+} + E_{m-}^*\}$. В однородно поляризованных пучках M , Φ и Ψ не зависят от поперечных координат. Напомним, что M изменяется от -1 (циркулярная поляризация с левым вращением) до $+1$ (циркулярная поляризация с правым вращением), проходя через нуль (линейная поляризация), а Ψ – от 0 до π (состояния 0 и π неразличимы).

Нетрудно показать, что в этом случае входящие в (13) единичные векторы \mathbf{e}_m , не нарушая общности и считая начальные значения $\Phi(\omega_{1,2}) = 0$, можно записать в следующем виде:

$$\begin{aligned}
 \mathbf{e}_m = & [(1 - M_{0m})^{1/2} \exp(-i\Psi_m) \\
 & + (1 + M_{0m})^{1/2} \exp(i\Psi_m) \mathbf{e}_-] / \sqrt{2}, \tag{15}
 \end{aligned}$$

где $|\mathbf{e}_+|^2 = |\mathbf{e}_-|^2 = 1$ и $(\mathbf{e}_+ \mathbf{e}_-^*) = 0$; M_{01} и M_{02} – степени эллиптичности излучения в падающих на среду однородно поляризованных пучках; углы Ψ_1 и Ψ_2 задают ориентации главных осей их эллипсов поляризации.

Вычислив, используя (13), пространственные фурье-компоненты напряженностей электрических полей падающих пучков и найдя с их помощью выражения для \tilde{i} и $\tilde{P}^{(NL)}$, запишем на основании выражений (11) и (12) формулу для $\tilde{E}^{(r)}(\mathbf{k}_{3\perp})$. Проинтегрировав её по всем возможным значениям $\mathbf{k}_{3\perp}$, найдем поле отраженного пучка на частоте ω_3 в следующем виде:

$$E_{\pm}^{(r)}(\omega_3, r, \varphi, z) = -D(r, z) \{ \exp(\pm i\varphi) [(C_{0\pm} - C_{2\pm}) \times$$

$$\begin{aligned}
 & \times [(1 \pm M_{01})(1 \mp M_{02})]^{1/2} \exp[\pm i(\Psi_1 - \Psi_2)] \\
 & + (C_{0\mp} - C_{1\pm})[(1 \mp M_{01})(1 \pm M_{02})]^{1/2} \exp[\mp i(\Psi_1 - \Psi_2)] \\
 & - \exp(\mp i\varphi)(C_{1\pm} + C_{2\pm}) [(1 \pm M_{01})(1 \pm M_{02})]^{1/2} \\
 & \times \exp[\pm i(\Psi_1 + \Psi_2)]\}, \quad (16)
 \end{aligned}$$

где $x = r \cos \varphi$; $y = r \sin \varphi$; r и φ – полярные радиус и угол;

$$\begin{aligned}
 D(r, z) = & \frac{8\sqrt{2}\pi i E_{01} E_{02}}{(1+n_1)(1+n_2)(1+n_3)\omega_3 w_3^2 \beta_3^2(z)} r \\
 & \times \exp\left[-\frac{r^2}{w_3^2 \beta_3(z)} - i(k_3 z + \omega_3 t)\right]; \quad (17)
 \end{aligned}$$

$w_3^2 = w_1^2 w_2^2 / (w_1^2 + w_2^2)$; $\beta_3(z) = 1 - iz/l_3$; $l_3 = k_3 w_3^2 / 2$; $k_3 = \omega_3 / c$. Коэффициенты $C_{0\pm}$, $C_{1\pm}$ и $C_{2\pm}$ в формуле (16) зависят от параметров среды, от ω_1/ω_2 , w_1/w_2 и имеют вид

$$\begin{aligned}
 C_{0\pm} = & n_3 b_1 \pm i(n_3 b_7 + \xi_{\omega} \chi / n_3) + i \xi_{\omega} [(w_2^2 \gamma_1 + w_1^2 \gamma_2) \\
 & \times (w_1^2 + w_2^2)^{-1} + (n_1 \omega_1 \gamma_1 + n_2 \omega_2 \gamma_2) / n_3 \omega_3], \\
 C_{1\pm} = & (l_3 / l_1) \{n_1 b_4 \pm i(n_1 b_6 + \xi_{\omega} \chi / n_1) + i \xi_{\omega} \gamma_4 \\
 & \times [(n_2 l_2 - n_1 l_1) / n_2 l_2] (n_2 \omega_2 / n_1 \omega_3)\}, \\
 C_{2\pm} = & (l_3 / l_2) \{n_2 b_3 \mp i(n_2 b_5 + \xi_{\omega} \chi / n_2) - i \xi_{\omega} \gamma_3 \\
 & \times [(n_2 l_2 - n_1 l_1) / n_1 l_1] (n_1 \omega_1 / n_2 \omega_3)\}.
 \end{aligned} \quad (18)$$

Здесь $\xi_{\omega} = \omega_3 / (n_1 \omega_1 + n_2 \omega_2 + n_3 \omega_3)$; χ – константа, определяющая все ненулевые компоненты тензора квадратичного отклика толщи среды $\chi_{ijk}^{(2)} = (\chi/c) e_{ijk}$; e_{ijk} – символ Леви – Чевита. В (18) входят шесть из семи независимых компонент тензора квадратичного отклика поверхности среды $\hat{\kappa}^{(2)}(\omega_3)$: $b_1 = \kappa_{zxx}^{(2)} = \kappa_{zyy}^{(2)}$, $b_2 = \kappa_{zzz}^{(2)}$, $b_3 = \kappa_{yyz}^{(2)} = \kappa_{xxz}^{(2)}$, $b_4 = \kappa_{xzx}^{(2)} = \kappa_{yzy}^{(2)}$, $b_5 = \kappa_{xyz}^{(2)} = -\kappa_{yxz}^{(2)}$, $b_6 = \kappa_{yzx}^{(2)} = -\kappa_{xzy}^{(2)}$ и $b_7 = \kappa_{zxy}^{(2)} = -\kappa_{zyx}^{(2)}$. Эти компоненты заданы в кристаллофизической системе координат, совпадающей с xuz (поскольку сама среда и ее поверхностный слой изотропны, возможен произвольный выбор направления осей x и y). Также туда входят умноженные на ω_3 компоненты тензора, характеризующего пространственную дисперсию квадратичного оптического отклика объема среды: $\gamma_{1,2} = \omega_3 \gamma_{xxxy}^{(2)1,2}$, $\gamma_3 = \omega_3 \gamma_{xyyx}^{(2)1}$ и $\gamma_4 = \omega_3 \gamma_{xyyx}^{(2)2}$. Подчеркнем, что в формулах (16)–(18) оставлены слагаемые, найденные в первом приближении по параметру λ_m / w_m .

Если $\hat{\gamma}^{(2)1} = \hat{\gamma}^{(2)2} = 0$, то $C_{0,1,2+} = C_{0,1,2-}^*$. В этом случае при линейной поляризации падающих волн сигнал на суммарной частоте также линейно поляризован во всех точках поперечного сечения отраженного пучка.

При одинаковых степенях эллиптичности падающих пучков и $n_1 l_1 = n_2 l_2$ формула (16) значительно упрощается. Нетрудно заметить, что в этом случае сигнал на суммарной частоте не зависит от тензора $\hat{\chi}^{(2)}$ при одинаковой ориентации главных осей эллипсов поляризаций падающих волн Ψ_1 и Ψ_2 . Если же $|\Psi_1 - \Psi_2| = \pi/2$, т.е. главные оси этих эллипсов взаимно перпендикулярны, то поле на суммарной частоте не зависит от компонент тензора $\hat{\gamma}^{(2)1,2}$.

Последнее обстоятельство позволяет отделять отклик поверхности среды от отклика её объема. Например, если из-за наличия центра симметрии, отсутствия дисперсии в используемом диапазоне частот или других причин $\hat{\chi}^{(2)} \equiv 0$, то выбор Ψ_1 и Ψ_2 , удовлетворяющих условию $|\Psi_1 - \Psi_2| = \pi/2$, гарантирует полное отсутствие вклада объема среды в отраженное излучение на суммарной частоте.

Формула (16) позволяет вычислить интенсивность $I_3(r, \varphi, z)$, степень эллиптичности $M_3(r, \varphi, z)$ и угол поворота главной оси эллипса поляризации $\Psi_3(r, \varphi, z)$ излучения на суммарной частоте. Если падающие на среду пучки циркулярно поляризованы в противоположных направлениях ($M_{01} = -M_{02} = \pm 1$), то $M_3 = \tilde{M}_3$, где константа

$$\begin{aligned}
 \tilde{M}_3 = & \pm |C_{2\pm}|^2 \mp |C_{1\mp}|^2 \pm (C_{1\mp} C_{0\pm}^* + \text{компл. сопр.}) \\
 & \mp (C_{2\pm} C_{0\pm}^* + \text{компл. сопр.}) [2|C_{0\pm}|^2 + |C_{2\pm}|^2 + |C_{1\mp}|^2 \\
 & - (C_{1\mp} C_{0\pm}^* + \text{компл. сопр.}) - (C_{2\pm} C_{0\pm}^* + \text{компл. сопр.})]^{-1}, \quad (19)
 \end{aligned}$$

а угол поворота главной оси эллипса поляризации Ψ_3 отличается от φ на константу:

$$\begin{aligned}
 \Psi_3 = & \varphi \pm 0.5 \arg(|C_{0\pm}|^2 - C_{2\pm} C_{0\pm}^* \\
 & - C_{0\pm} C_{1\mp}^* + C_{2\pm} C_{1\mp}^*). \quad (20)
 \end{aligned}$$

Этот случай иллюстрирует рис. 1, на котором каждый эллипс несет информацию об электромагнитном поле в точке поперечного сечения пучка, соответствующей центру изображенного эллипса. Интенсивность излучения в ней пропорциональна сумме квадратов длин его полуосей, а M_3 и Ψ_3 совпадают с аналогичными параметрами эллипса на рисунке. Точки на его границе указывают направление вектора напряженности электрического поля в центре эллипса в момент времени $t = k_3^{(r)} z_1 / \omega_3$. В случае, изображенном на рис. 1, вектор напряженности электрического поля вращается по эллипсам против часовой стрелки.

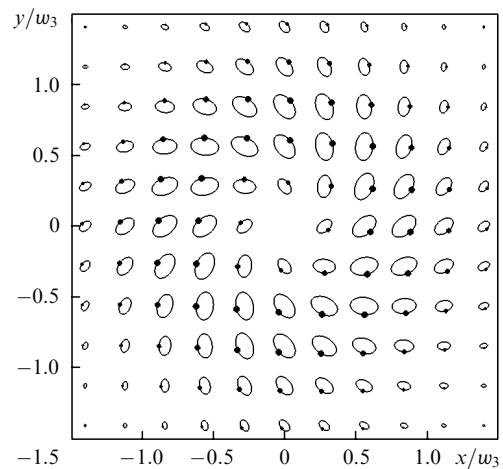


Рис. 1. Распределение интенсивности и поляризации в пучке на суммарной частоте при следующих значениях параметров падающего излучения и нелинейной среды: $M_{01} = 1$, $M_{02} = -1$, $b_1 = b_3/3 = b_4 = b_5 = -b_6/2 = 2b_7$, $\gamma_1 = 2\gamma_2/3 = 5\gamma_3/6 = 4\gamma_4/5 = b_1$, $\chi = b_1$, $n_1 = 1.26$, $n_2 = 1.3$, $n_3 = 1.34$, $\omega_1 = 0.4\omega_3$, $w_1/w_2 = 2$.

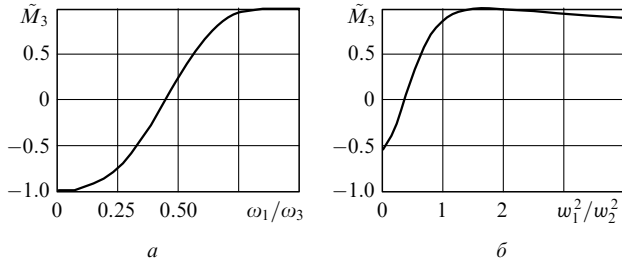


Рис.2. Зависимости $\tilde{M}_3(\omega_1/\omega_3)$ при $w_1/w_2 = 0.5$ (а) и $\tilde{M}_3(w_1^2/w_2^2)$ при $\omega_1/\omega_3 = 0.4$ (б); $M_{01} = 1, M_{02} = -1, b_1 = b_3/3 = b_4 = b_5 = -b_6/2 = 2b_7, \gamma_1 = 2\gamma_2/3 = 5\gamma_3/6 = 4\gamma_4/5 = b_1, \chi = b_1, n_1 = 1.26, n_2 = 1.3, n_3 = 1.34$.

Изображенное на рис.1 распределение электромагнитного поля может достаточно сильно меняться при изменении ω_1/ω_2 или w_1/w_2 . Это иллюстрирует рис.2, где приведены зависимости \tilde{M}_3 от ω_1/ω_3 и от w_1/w_2 . Видно, что при увеличении ω_1/ω_3 величина \tilde{M}_3 может изменяться от -1 до $+1$. Если $\hat{\kappa}^{(2)}(\omega_3) \equiv 0$ и $n_1 l_1 = n_2 l_2$, то $\tilde{M}_3 = 0$, а $\Psi_3 = \varphi$. В этом случае пучок на суммарной частоте радиально поляризован (рис.3). Такое распределение интенсивности и поляризации возникает и в некоторых других частных случаях.

Анализ зависимости $M_3(\varphi)$ показывает, что уравнение $M_3(\varphi) = 0$ является квадратным относительно $\tan \varphi$. Если $\Psi_1 = \Psi_2 = 0$ и $M_{01} = M_{02} = 0$, то первый его корень $\varphi_{01} = \pi/2$, а второй, φ_{02} , задается выражением

$$\begin{aligned} \varphi_{02} = & -\arctan\{[(w_2^2 \gamma_1 + w_1^2 \gamma_2)/(w_1^2 + w_2^2) \\ & + (n_1 \omega_1 \gamma_1 + n_2 \omega_2 \gamma_2)/n_3 \omega_2 + l_3(n_2 l_2 - n_1 l_1) \\ & \times (n_1 \omega_1 \gamma_3 - n_2 \omega_2 \gamma_4)/n_1 n_2 l_1 l_2 \omega_3)(n_2 b_5/l_2 - n_1 b_6/l_1 \\ & + \omega_3 \chi(n_1 l_1 - n_2 l_2)/(n_1 \omega_1 + n_2 \omega_2 + n_3 \omega_3) n_1 n_2 l_1 l_2)] \\ & \times [((w_2^2 \gamma_1 + w_1^2 \gamma_2)/(w_1^2 + w_2^2) + (n_1 \omega_1 \gamma_1 \\ & + n_2 \omega_2 \gamma_2)/n_3 \omega_3)(n_1 b_4/l_1 + n_2 b_3/l_2) - n_3 b_1 \\ & \times (n_1 l_1 - n_2 l_2)(n_1 \omega_1 \gamma_3 - n_2 \omega_2 \gamma_4)/n_1 n_2 l_1 l_2 \omega_3]^{-1}\}. \end{aligned} \quad (21)$$

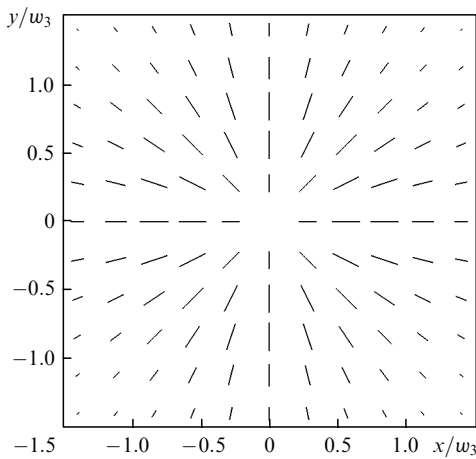


Рис.3. Распределение интенсивности и поляризации в пучке на суммарной частоте при $M_{01} = 1, M_{02} = -1, b_{1,2,3,\dots,7} = 0, \gamma_1 = 2\gamma_2/3 = 5\gamma_3/6 = 4\gamma_4/5 = b_1, n_1 = 1.26, n_2 = 1.3, n_3 = 1.34, \omega_1 = 0.4\omega_3, w_1^2/w_2^2 = n_2 \omega_2/(n_1 \omega_1) = 1.548$.

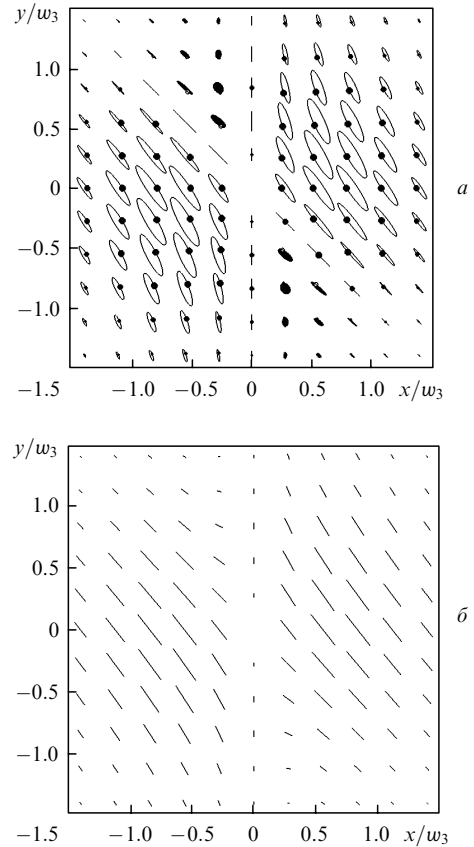


Рис.4. Распределения интенсивности и поляризации в пучке на суммарной частоте, построенные при $w_1^2/w_2^2 = n_2 \omega_2/n_1 \omega_1 = 1.548, \chi = b_1, b_5 = b_1 = \gamma_1 = 2\gamma_2/3 = 5\gamma_3/6 = 4\gamma_4/5$ (а) и $b_5 = 2b_1, \gamma_{1,2,3,4} = 0, \chi = 0, w_1/w_2 = 0.1$ (б); $M_{01} = M_{02} = 0, \Psi_1 = \Psi_2 = 0, b_1 = b_3 = b_4/2 = -b_6/2 = 2b_7, n_1 = 1.26, n_2 = 1.3, n_3 = 1.34, \omega_1/\omega_3 = 0.4, \gamma_1 = 2\gamma_2/3 = 5\gamma_3/6 = 4\gamma_4/5 = b_1$.

На рис.4,а показано соответствующее этому случаю распределение интенсивности и поляризации в плоскости поперечного сечения отраженного пучка на суммарной частоте. На нём хорошо видны четыре сектора, получающиеся в результате пересечения прямых $\varphi = \varphi_{01}$ и $\varphi = \varphi_{02}$ в точке с координатами $(0, 0, z)$. Излучение в пределах каждого из них поляризовано эллиптически, а на границах – линейно. При этом направления вращений векторов напряженностей электрического поля в точках, лежащих в соседних секторах, различны (белые и черные эллипсы).

Значения b_3, b_4, b_5 и b_6 можно найти, реализуя генерацию суммарной частоты от тонкого слоя хиральных молекул, помещенных на изотропную подложку ($\hat{\chi}^{(2)} \equiv 0$), пространственной дисперсией квадратичной нелинейности материала которой можно пренебречь. Рассмотрим сначала однородно линейно поляризованные в плоскости поперечного сечения падающие пучки с параллельно ориентированными плоскостями поляризации ($\Psi_1 = \Psi_2 = 0$ и $M_{01} = M_{02} = 0$). В этом случае $M_3(\varphi) \equiv 0$, а распределение углов поворота главных осей эллипсов поляризации излучения на суммарной частоте обладает рядом особенностей (см. рис.4,б). В частности, в поперечном сечении пучка существуют две прямые, $\varphi = \pi/2$ и $\varphi = \varphi^*$, где

$$\varphi^* = \arctan[(n_1 \omega_2 w_2^2 b_6 - n_2 \omega_1 w_1^2 b_5) \times$$

$$\times (n_1\omega_1\omega_2^2b_4 - n_2\omega_1\omega_1^2b_3)^{-1}], \quad (22)$$

на которых вектор напряженности электрического поля коллинеарен этим прямым. При неизменных значениях n_1/n_2 и ω_1/ω_2 специальный выбор отношения w_1/w_2 , достигаемый фокусировкой падающих пучков, позволяет реализовать ситуацию, когда $\varphi^* \approx \arctan(b_6/b_4)$ (при $w_1^2 \ll w_2^2$), либо когда $\varphi^* \approx -\arctan(b_5/b_3)$ (при $w_1^2 \gg w_2^2$). Если теперь изменить поляризацию падающих пучков на циркулярную с одинаковым направлением вращения вектора напряженности электрического поля, не меняя при этом другие их параметры, то интенсивность $I_3(r, \varphi, z)$, будет иметь вид

$$I_3(r, z_1) = 2|D(r, z)|^2(\omega_3\omega_3^2)^2\{[n_2b_3/(\omega_2w_2^2) + n_1b_4/(\omega_1w_1^2)]^2 + [n_2b_5/(\omega_2w_2^2) - n_1b_6/(\omega_1w_1^2)]^2\}. \quad (23)$$

Если $w_1^2 \ll w_2^2$, то I_3 зависит только от компонент b_4 и b_6 :

$$I_3(r, z) = 2|D(r, z_1)|^2n_1^2(\omega_3^2/\omega_1^2)(b_4^2 + b_6^2). \quad (24)$$

Именно для таких значений параметров и построен рис.4,б. В противоположном случае, когда $w_1^2 \gg w_2^2$, интенсивность I_3 имеет вид

$$I_3(r, z) = 2|D(r, z_1)|^2n_1^2(\omega_3^2/\omega_1^2)(b_3^2 + b_5^2), \quad (25)$$

т. е. зависит только от b_3 и b_5 .

Таким образом, используя сначала линейно, а затем циркулярно поляризованные падающие пучки, т. е. экспериментально определяя угол $\varphi^* \approx \arctan(b_6/b_4)$ (или $\varphi^* \approx -\arctan(b_5/b_3)$) и I_3 , для различных значений $\omega_{1,2}$ можно непосредственно оценить компоненты тензора поверхностной квадратичной нелинейности изотропной гиротропной среды b_3, b_4, b_5 и b_6 .

4. Заключение

В нашей работе аналитически получены формулы, описывающие распределения интенсивности и поляризации в поперечном сечении пучка на суммарной частоте, отраженного от поверхности изотропной гиротропной среды при нормальном падении двух эллиптически поляризованных гауссовых пучков основного излучения. При расчетах принимались во внимание как локальный и нелокальный вклады квадратичной нелинейности толщи среды, так и нелинейный вклад ее поверхности в генерируемый сигнал. Соответствующий выбор поляризаций волн основного излучения позволяет отделить вклад поверхности среды от вклада её объема. Возникающие при этом особенности распределения поляризации в плоскости поперечного сечения сигнального пучка позволяют делать выводы о характере нелинейного отклика среды, а в ряде случаев извлекать количественную информацию о компонентах тензора, характеризующего квадратичную нелинейность поверхности.

Следует иметь в виду, что распределение поляризации в пучке на суммарной частоте может достаточно сильно меняться на небольших масштабах. Это, с одной стороны, может затруднять интерпретацию эксперимен-

тальных результатов (обсуждение возможности наблюдения поперечных пространственных распределений интенсивности и поляризации, аналогичных описанным в этой работе, содержится в [5, 6]), а с другой стороны позволяет говорить о возможной перспективности рассмотренного эффекта с точки зрения формирования неоднородно поляризованных световых пучков.

1. Дмитриев В.Г., Тарасов Л.В. *Прикладная нелинейная оптика* (М.: Физматлит, 2004).
2. Bagaev S.N., Krokhin O.N., Manenkov A.S. *J. Modern Opt.*, **52**, 1657 (2005).
3. Макаров В.А. *УФН*, **174**, 1131 (2004).
4. Ахманов С.А., Жариков В.И. *Письма в ЖЭТФ*, **6**, 644 (1967).
5. Волков С.Н., Макаров В.А., Пережогин И.А. *Квантовая электроника*, **36**, 860 (2006).
6. Makarov V.A., Perezhogin I.A. *Opt. Commun.*, **281**, 3906 (2008).
7. Волков С.Н., Макаров В.А., Пережогин И.А. *Вестник Моск. ун-та. Сер. Физика, астрономия*, № 1, 38 (2009).
8. Makarov V.A., Perezhogin I.A., Potravkin N.N. *Laser Phys.*, **19**, 197 (2009).
9. Ахманов С.А., Коротеев Н.И. *Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света* (М.: Наука, 1981).
10. Азаам Р., Башара Н. *Эллипсометрия и поляризованный свет* (М.: Мир, 1979).
11. Dellwig T., Ruppachter G., Unterhalt H., Freund H.-J. *Phys. Rev. Lett.*, **85**, 776 (2000).
12. Raschke M.B., Hayashi M., Lin S.H., Shen Y.R. *Chem. Phys. Lett.*, **359**, 367 (2002).
13. Roke S., Kleyn A.W., Bonn M. *Chem. Phys. Lett.*, **370** 227 (2003).
14. Kuhnke K., Hoffmann D.M.P., Wu X.C., Bittner A.M., et al. *Appl. Phys. Lett.*, **83**, 3830 (2003).
15. Hoffmann D.M.P., Kuhnke K., Kern K. *Rev. Sci. Instrum.*, **73**, 3221 (2002).
16. Florsheimer M., Brillert C., Fuchs H. *Mater. Sci. Engin.*, **8-9**, 335 (1999).
17. Lozovik Yu.E., Merkulova S.P., Nazarov M.M., Shkurinov A.P. *Phys. Lett. A*, **276** 127 (2000).
18. Ostroverkhov V., Waychunas G.A., Shen Y.R. *Phys. Rev. Lett.*, **94**, 046102 (2005).
19. Wei X., Hong S., Zhuang X., Goto T., Shen Y.R. *Phys. Rev. E*, **62**, 5160 (2000).
20. Lin S.H., Hayashi M., Islampour R., Yu V., et al. *Phys. B*, **22**, 191 (1996).
21. Maki J.J., Kauranen M., Persoons A. *Phys. Rev. B*, **51**, 1425 (1995).
22. Kauranen M., Verbiest T., Persoons A. *Nonlinear Opt. Princ. Mater. Phenom. Devices*, **8**, 243 (1994).
23. Van Elshocht S., Verbiest T., Kauranen M., et al. *J. Chem. Phys.*, **107**, 8201 (1997).
24. Kauranen M., Maki J. J., Verbiest T., et al. *Phys. Rev. B*, **55**, R1985 (1997).
25. Stolle R., Loddoch M., Marowsky G. *Nonlinear Opt. Princ. Mater. Phenom. Devices*, **8**, 79 (1994).
26. Shen Y.R. *Appl. Phys. B*, **68**, 295 (1999).
27. Волков С.Н., Коротеев Н.И., Макаров В.А. *Квантовая электроника*, **22**, 1220 (1995).
28. Koroteev N.I., Makarov V.A., Volkov S.N. *Nonlinear Opt. Princ. Mater. Phenom. Devices*, **17**, 247 (1997).
29. Koroteev N.I., Makarov V.A., Volkov S.N. *Opt. Commun.*, **138**, 113 (1997).
30. Волков С.Н., Коротеев Н.И., Макаров В.А. *Оптика и спектроскопия*, **85**, 309 (1998).
31. Голубков А.А., Макаров В.А. *Изв. РАН. Сер. физич.*, **59**, 93 (1995).
32. Голубков А. А., Макаров В. А. *УФН*, **165**, 339 (1995).
33. Bogdanovich P.M., Makarov V.A., in *Techn. Dig. of the XVII Intern. Conf. on Coherent and Nonlinear Optics* (Minsk, 2001, p. FB2).
34. Plocinik R.M., Simpson G.J. *Analytica Chimica Acta*, **496**, 133 (2003).