ПРИГЛАШЕННАЯ СТАТЬЯ

PACS 42.65.Ky; 42.70.Mp; 42.50.Dv

Последовательные трехчастотные волновые взаимодействия в нелинейной оптике периодически-неоднородных сред

А.С.Чиркин*, В.В.Волков**, Г.Д.Лаптев**, Е.Ю.Морозов*

Дан краткий обзор недавних достижений в области исследований двух связанных трехчастотных нелинейно-оптических процессов с кратными частотами, обладающих рядом особенностей по сравнению с традиционными трехчастотными процессами. Рассмотрена реализация попутных и встречных последовательных взаимодействий световых волн в кристалле LiNbO₃ с регулярной доменной структурой. Проанализирован энергообмен при последовательных взаимодействиях волн с частотами ω , 2ω и 3ω . Обсуждаются перспективы использования последовательных нелинейно-оптических процессов в квантовой электронике и нелинейной оптике.

Ключевые слова: последовательные взаимодействия, квазисинхронные процессы, неклассический свет, нелинейные кристаллы с регулярной доменной структурой.

| содержание |
|---|
| Введение |
| 1. Традиционные квазисинхронные взаимодействия световых волн |
| 2. Нелинейно-оптические среды с РДС |
| 3. Одновременная реализация двух квазисинхронных процессов. Попутные и встречные взаимодействия |
| 4. Последовательные трехчастотные взаимодействия волн с кратными частотами |
| 4.1. Генерация третьей гармоники 852 |
| 4.2. Генерация третьей субгармоники |
| 4.3. Параметрическое преобразование частоты |
| 4.4. Параметрическое усиление при низкочастотной накачке |
| 4.5. Встречные взаимодействия волн |
| 5. Генерация неклассического света при параметрическом усилении в поле низкочастотной накачки |
| 6. Эксперименты по генерации высших оптических гармоник |
| Заключение |
| Литература |

Введение

Термин «последовательные взаимодействия» был введен впервые, по-видимому, С.А.Ахмановым и Р.В. Хохловым в книге «Проблемы нелинейной оптики» [1], где отмечалось (с. 198), что «число параметрических эффектов в квадратичной среде может быть существенно расширено, если ее дисперсионные свойства допускают последовательные трехчастотные взаимодействия». Там же было указано, что при учете двух последовательных трехчастотных взаимодействий следует рассматривать взаимодействие волн с частотами ω_1 , ω_2 , ω_3 и ω_4 , удовлетворяющими соотношениям

$$\omega_{1} + \omega_{2} = \omega_{p},$$

$$\omega_{1} + \omega_{p} = \omega_{3},$$

$$\omega_{2} + \omega_{p} = \omega_{4},$$
(1)

*Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова, физический факультет, Россия, 119899 Москва, Воробьевы горы **Международный учебно-научный лазерный центр МГУ им. М.В. Ломоносова, Россия, 119899 Москва, Воробьевы горы

Поступила в редакцию 20 января 2000 г.

где ω_p – частота волны накачки. Первое из этих соотношений относится к процессу параметрического усиления при высокочастотной накачке, а два последних – к параметрическому преобразованию частоты. Заметим, что по отдельности эти процессы являются традиционными и хорошо исследованы.

В радиодиапазоне указанные взаимодействия изучались в конце 1950-х – начале 1960-х гг. (см., напр., [2–6]). Были, в частности, выявлены условия параметрического усиления при низкочастотной накачке (см. также [1]). Такой параметрический процесс нельзя, однако, осуществить только при одном трехчастотном взаимодействии, т. е. в отсутствие последовательных взаимодействий.

В работе [7] рассмотрено возбуждение третьей оптической гармоники в однородном квадратично-нелинейном кристалле с помощью последовательных процессов генерации второй гармоники $\omega + \omega = 2\omega$ и смешения оптических частот $2\omega + \omega = 3\omega$. Однако в однородном нелинейно-оптическом кристалле одновременно удовлетворить условиям коллинеарного синхронизма для рассмотренных процессов и процессов, в которых участвуют волны с кратными частотами (см. ниже), не удается, поскольку для этого необходимо, чтобы фазовые скорости трех волн с кратными частотами были одинаковыми (см. [1], с. 194).

Вместе с тем реализация последовательных взаимодействий в нелинейной оптике представляется заманчивой, т. к. в этом случае увеличивается число генерируемых частот без использования дополнительных каскадов нелинейно-оптического преобразования.

В нелинейно-оптических однородных кристаллах последовательные взаимодействия впервые, по-видимому, удалось реализовать в работе [8]. В кристалле LiNbO₃ при температуре 120°С, угле синхронизма 46.7° и накачке на длине волны $\lambda = 1.065$ мкм одновременно наблюдались невырожденная параметрическая генерация, удвоение частоты сигнальной волны и генерация разностной частоты. При этом длина волны второй гармоники при изменении температуры и угла кристалла перестраивалась в диапазоне 0.925–0.95 мкм.

В [9] аналогичные последовательные коллинеарные взаимодействия были реализованы в кристалле LiNbO₃ при комнатной температуре, длина сигнальной волны равнялась 1.889 мкм, а длина волны излучения с разностной частотой – 2.436 мкм. Однако эти эксперименты, проведенные с однородными нелинейными кристаллами, следует отнести к разряду экзотических.

В начале 1990-х гг. авторы работы [10] теоретически показали, что в последовательных трехчастотных процессах с кратными частотами ω , 2ω и 3ω возможно полное преобразование энергии интенсивной волны накачки с частотой 3ω в энергию волны с частотой 2ω . При этом одновременно протекают процессы вида $3\omega = 2\omega + \omega$ и $\omega + \omega = 2\omega$.

Выше уже отмечалось, что в однородных кристаллах для указанных процессов условия коллинеарного синхронизма одновременно не выполняются. Вместе с тем, как впервые было показано в [11], в периодически поляризованном кристалле LiNbO₃ (кристалл со 180-градусной регулярной доменной структурой (РДС)) можно одновременно удовлетворить условиям квазисинхронизма для процессов

$$2\omega = \omega + \omega, \quad \omega + 2\omega = 3\omega.$$
 (2)

На эту возможность для кристаллов LiNbO₃ и KTP обратили внимание также авторы работы [12].

Таким образом, оказалось, что в РДС-кристаллах с помощью изменения периода модуляции нелинейной восприимчивости и (или) выбора порядка квазисинхронизма можно одновременно компенсировать волновые расстройки в двух связанных между собой трехчастотных процессах типа (2). В частоности, в [13] была продемонстрирована возможность осуществления в РДСкристаллах высокоэффективного параметрического усиления при низкочастотной накачке в процессах типа (2).

Позднее в [14, 15] исследовались динамика энергообмена при последовательной квазисинхронной генерации третьей гармоники и третьей субгармоники, а также преобразование энергии волны с частотой 3ω в энергию волны с частотой 2ω . Следует отметить, что ряд аналогичных исследований для однородных нелинейных сред выполнен в [16, 17].

К настоящему времени последовательные квазисинхронные взаимодействия световых волн в РДС-кристаллах наблюдались в работах [12, 18–20], где исследовалась генерация третьей гармоники при попутном взаимодействии. В [19, 20] зарегистрирована последовательная квазисинхронная генерация третьей гармоники при встречном взаимодействии волн. Последовательное встречное взаимодействие волн при параметрическом усилении в поле низкочастотной накачки теоретически изучено в [21].

Цель настоящего обзора – рассмотреть физические особенности энергообмена волн с кратными частотами в двух последовательных трехчастотных взаимодействиях.

1. Традиционные квазисинхронные взаимодействия световых волн

Идея использования периодической модуляции квадратичной восприимчивости для компенсации расстройки волновых векторов взаимодействующих волн принадлежит Бломбергену [22, 23]. Позже такие процессы стали называть квазисинхронными. Принцип квазисинхронизма удобно пояснить на примере анализа генерации второй оптической гармоники. При наличии волновой расстройки $\Delta k_2 = k_2 - 2k_1 (k_j = k(j\omega) – волновое число$ *j*-йгармоники) амплитуда второй гармоники в приближении заданного поля изменяется согласно уравнению (см.,напр., [1])

$$\frac{\mathrm{d}A_2}{\mathrm{d}z} = -\mathrm{i}\beta' A_{10}^2 \exp(\mathrm{i}\Delta k_2 z),\tag{3}$$

где β' – коэффициент нелинейной связи волн; A_{10} – комплексная амплитуда основной волны с частотой ω . Из (3) получаем

$$A_2(z) = -i\beta' A_{10}^2 \frac{\sin(\Delta k_2 z/2)}{\Delta k_2/2} \exp(-i\Delta k_2 z/2).$$
(4)

На длине $z = l_c$ (где $l_c = \pi/|\Delta k_2|$ – так называемая когерентная длина) интенсивность второй гармоники $I_2 = |A_2|^2$ достигает максимального значения. При этом фазовый набег за счет волновой расстройки равен π . Если вслед за первым нелинейным кристаллом расположить второй нелинейный кристалл длиной l_c , имеющий в направлении распространения взаимодействующих волн такую же волновую расстройку Δk_2 , то амплитуда второй гармоники на выходе второго кристалла

$$A_2(z) = -(\beta' - \beta'') A_{10}^2 \frac{\sin(\Delta k_2 z/2)}{\Delta k_2/2}.$$
(5)

Здесь β'' – коэффициент нелинейной связи волн для второго кристалла. Ясно видно, что наибольшая амплитуда второй гармоники получается, если $\beta' = -\beta''$. Таким образом, изменение знака нелинейности второго кристалла компенсирует деструктивный фазовый набег.

Амплитуду и интенсивность второй гармоники при этом можно представить в виде

$$A_2 = -\frac{2}{\pi} \beta'(2l_c) A_{10}^2, \tag{6}$$

$$I_2 = \left[\frac{2}{\pi} \beta'(2I_c)\right]^2 I_{10}^2, \quad I_{10} = |A_{10}|^2.$$
(7)

Согласно (7) при квазисинхронном взаимодействии волн интенсивность второй гармоники изменяется, как в однородной среде с эффективным нелинейным коэффициентом $\beta_{\rm eff} = 2\beta'/\pi$. Из сравнения (4) и (6) следует, что фаза второй гармоники изменяется от слоя к слою в отличие



Рис.1. Нелинейный материал с РДС (*a*) и функция модуляции нелинейной восприимчивости (б); P_s – вектор поляризации, $\chi^{(2)}$ – нелинейная восприимчивость.

от однородной среды, где в отсутствие на входе второй гармоники фаза сразу принимает установившееся значение.

Выражение (5) соответствует первому порядку квазисинхронизма, в более общем случае, когда толщина отдельного слоя кристалла $l = ml_c$ (рис.1), условие квазисинхронизма имеет вид

$$\Delta k_2 = m\pi/l_c, \quad m = \pm 1, \pm 3, \dots$$
(8)

При этом $\beta_{\rm eff} = 2\beta'/\pi |m|$, т.е. с увеличением порядка квазисинхронизма *m* эффективный нелинейный коэффициент уменьшается.

Условие (8) допускает еще одну наглядную интерпретацию. Запишем коэффициент нелинейной связи в виде $\beta = \beta_2 g(z)$, где β_2 – модуль коэффициента, g(z) – знакопеременная периодическая функция (рис.1), равная +1 или –1 на толщине слоя *l*. Период возникающей при этом решетки $\Lambda = 2l$.

Разложим функцию g(z) в ряд:

$$g(z) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} g_m \exp(-\mathrm{i}mKz),$$

где $g_m = 2/(\pi |m|); K = 2\pi/\Lambda$ – модуль вектора обратной решетки. Подстановка (9) в (3) дает

$$\frac{dA_2}{dz} = -i\beta_2 A_{10}^2 \sum_{m=-\infty}^{\infty} g_m \exp[i(\Delta k_2 - mK)z].$$
(9)

Максимальный вклад в правую часть выражения (9) дает слагаемое, для которого $\Delta k_2 = mK$. Именно в этом случае волновая расстройка компенсируется вектором обратной решетки в *m*-м порядке.

Изложенный подход применим, когда так называемая нелинейная длина $L_{nl} = (\beta_2 |A_{10}|)^{-1} \gg l_c$. Если же $L_{nl} \simeq l_c$, то можно использовать приближение заданной интенсивности, которое справедливо до значений эффективности преобразования во вторую гармонику около 0.5 [24]. Одновременно следует иметь в виду, что приближенные аналитические методы не описывают правильно поведение фазовых соотношений между взаимодействующими волнами в РДС-кристаллах [25, 26]. В последних имеет место осцилляторный характер изменения фазовых соотношений, тогда как в однородных нелинейных средах фазы этих волн изменяются монотонно.

Использование квазисинхронных нелинейных взаимодействий в нелинейной оптике имеет определенные достоинства по сравнению с использованием синхронных взаимодействий, осуществляемыми за счет двулучепреломления кристаллов. При квазисинхронных взаимодействиях можно исключить влияние двулучепреломления на эффективность нелинейно-оптического процесса, а в случае вырожденного трехчастотного взаимодействия реализовать условие группового синхронизма [26].

В апериодически поляризованных нелинейных кристаллах можно также осуществить компрессию сверхкоротких световых импульсов. Так, в работе [27] при удвоении частоты чирпированного импульса в кристаллах LiNbO₃ с апериодической структурой получено уменьшение длительности этого импульса в 150 раз. Периодическая модуляция нелинейно-оптических коэффициентов сопровождается модуляцией электрооптических коэффициентов, что может нивелировать влияние фоторефрактивного эффекта на линейные процессы [28]. Отметим, что в случае использования РДС-кристаллов кардинально изменяются (по сравнению с однородными кристаллами) условия оптимальной фокусировки при генерации второй гармоники [29].

Однако наиболее важным с практической точки зрения является то, что при квазисинхронных взаимодействиях можно использовать наиболее высокий коэффициент нелинейности, выбрав соответствующим образом поляризации взаимодействующих волн. Например, в периодически поляризованном кристалле ниобата лития используют ее – е-взаимодействие (все волны необыкновенные), за которое ответственна компонента нелинейной восприимчивости d_{33} , превышающая на порядок другие компоненты этого кристалла (рис.2).

В настоящее время обычные квазисинхронные взаимодействия световых волн широко используются для генерации второй гармоники, генерации суммарных и разностных частот и параметрической генерации света (см., напр., обзоры [30, 31]). Таким образом, с помощью квазисинхронных взаимодействий получают когерентное излучение от ИК до УФ диапазона. При этом используют кристаллы типа LiNbO₃, KTP, LiTaO₃, RTA с РДСструктурами.



Рис.2. Зависимости нормированной интенсивности I_2 второй гармоники в кристалле LiNbO₃ от приведенной длины взаимодействия z/l_c для квазисинхронного ее –е-взаимодействия 1-го порядка (1) и синхронных оо –е- (2) и ое –е-взаимодействий (3). На рис.2, 5–12 интенсивности нормированы на интенсивность накачки.

Совсем недавно в работах [32, 33] реализован процесс квазисинхронного удвоения частоты в активно-нелинейных РДС-кристаллах, т.е. наряду с лазерной генерацией излучения имело место также и удвоение его частоты.

2. Нелинейно-оптические среды с РДС

Основной особенностью РДС-кристаллов является периодическое изменение направления полярной оси кристалла, приводящее к модуляции нелинейных свойств, характеризующихся периодическим изменением знака нелинейной восприимчивости (см. рис.1,*a*). Модуляция знака нелинейной восприимчивости и, соответственно, коэффициентов нелинейной связи взаимодействующих волн от слоя к слою создает «нелинейную» решетку. При квазисинхронном процессе волновая расстройка взаимодействующих волн компенсируется за счет вектора обратной «нелинейной» решетки.

В настоящее время используется несколько методов формирования РДС в нелинейных средах: диффузный метод, послеростовый метод (воздействие переменного электрического поля на кристалл, который протягивается через печь с градиентом температуры), «высоковольтный» метод, электронно-лучевой метод и ростовый метод.

Метод химической диффузии заключается в следующем. Кристалл с нанесенной литографским способом периодической маской помещают в некоторую среду, реагенты которой диффундируют в кристалл, создавая градиент концентрации в приповерхностном слое и инверсию доменов. В результате возникает периодическая структура высокого качества с периодом 3–8 мкм и глубиной 1–2 мкм [34, 35].

Другой способ создания РДС состоит в послеростовой электротермической обработке, когда кристалл подвергается воздействию переменного электрического поля при протягивании его через печь с градиентом температуры. Этот способ применим для создания объемных структур, минимальный период которых ограничен несколькими десятками микрометров.

Относительно новым методом является переполяризация кристаллов при комнатной температуре с помощью электрического поля, создаваемого периодическими электродами, нанесенными на поверхность кристалла [36]. Такой метод позволяет создавать структуры с минимальным периодом до 1.7 мкм. Однако он применим для переполяризации лишь тонких образцов толщиной 200 – 500 мкм. Существенным недостатком перечисленных методов является малая толщина получаемых структур, что делает невозможным реализацию некомпланарных нелинейно-оптических взаимодействий.

Известен электронно-лучевой способ переполяризации, связанный с воздействием электронного пучка на поверхность кристалла, при котором происходит локальная инверсия доменов [37, 38]. Этот способ позволяет формировать доменные структуры толщиной 500 мкм.

Многообещающим является метод получения объемных РДС непосредственно в ходе роста кристалла. Ростовая слоистая доменная структура присуща ряду сегнетоэлектриков, выращенных по методу Чохральского [39–41]. Она повторяет так называемую ростовую полосчатость – ростовый дефект, возникающий из-за колебаний скорости роста, и представляет собой локальные изменения химического состава кристалла.



Рис.3. Схематическое изображение кристалла, выращенного вдоль оси X(a), и «гранного» кристалла (δ) [43].

Модуляцию скорости роста можно осуществить, например, периодическим изменением температуры на фронте роста кристалла. Несомненным достоинством возникающей объемной РДС являются ее большие размеры, а недостатком – нестабильность периода, ограничивающая эффективную длину нелинейно-оптических взаимодействий несколькими миллиметрами. Ростовый метод позволяет формировать РДС с плоскими и тонкими границами в широком диапазоне периодов. Объем кристалла с РДС может достигать нескольких кубических сантиметров.

Особенности формирования периодической структуры за счет модуляции химического состава кристалла в процессе его выращивания методом Чохральского рассмотрены в работах [42, 43]. В случае, когда ось симметрии теплового поля не совпадает с осью вращения кристалла, происходит периодическое изменение температуры на фронте роста кристалла, что вызывает модуляцию его химического состава. Такая неоднородность состава приводит к образованию так называемых вращательных полос роста. При охлаждении, сопровождающемся переходом через точку Кюри, на ростовых полосах закрепляются сегнетоэлектрические домены. Их форма соответствует форме изотермы кристаллизации.

В кристаллах, выращиваемых в направлениях осей X, Y, Z, границы доменов искривлены, поскольку неплоскими в этом случае оказываются фронты роста, что является некоторым недостатком метода. С целью получения структуры с плоскими границами кристаллы иногда выращивают в направлении нормали к плотно упакованной грани – так называемый гранный кристалл (рис.3, δ). Наряду с гладкими и плоскими доменными стенками структура «гранного» типа характеризуется высокой степенью периодичности, отсутствием дефектов типа микродоменов и монодоменных участков.

Однако в этом случае направление спонтанной поляризации образует с доменными стенками угол 33° , что приводит к наличию на них связанного заряда и, как следствие, к скачку линейного коэффициента преломления. Такие скачки могут вызвать сбой фаз волн, участвующих в нелинейно-оптическом взаимодействии, и в целом понизить его эффективность. Эта особенность отсутствует в кристаллах, выращенных вдоль оси X(рис.3, *a*), поскольку направление спонтанной поляризации в них параллельно доменным стенкам, а решетка линейного показателя преломления не играет существенной роли.

Для реализации процессов параметрического преобразования и генерации гармоник привлекательным является использование органических полимеров, основное преимущество которых – большие нелинейности второго порядка (в несколько раз большие, чем в традиционных кристаллах). В [44] сообщается о результатах переполяризации тонких полимерных пленок и квазисинхронной генерации второй гармоники.

В последние годы большой интерес проявляется к созданию совершенных полупроводниковых структур с периодически изменяющейся вдоль направления распространения излучения ориентацией оси кристалла [45, 46]. Такие полупроводники прозрачны в диапазоне 1-12 мкм, обладают большим нелинейным коэффициентом $d_{14} = 90$ пм/В (в то время как наибольший нелинейный коэффициент LiNbO₃ $d_{33} = 34$ пм/В) и имеют высокий порог оптического пробоя. Это позволяет использовать данные полупроводниковые структуры для квазисинхронных преобразований излучения ближнего и среднего ИК диапазонов [47, 48].

3. Одновременная реализация двух квазисинхронных процессов. Попутные и встречные взаимодействия

Обратимся сначала к анализу взаимодействия попутных волн. Пусть два коллинеарных процесса (2) протекают с волновыми расстройками

$$\Delta k_3 = k_3 - k_2 - k_1, \quad \Delta k_2 = k_2 - 2k_1. \tag{10}$$

В условиях одновременного квазисинхронизма необходимо, чтобы

$$\Delta k_3 = 2\pi m_2 / \Lambda, \quad \Delta k_2 = 2\pi m_1 / \Lambda, \tag{11}$$

где *m*₁ и *m*₂ – порядки квазисинхронизма. Выражения (11) можно привести к виду

$$\Lambda = \frac{m_1 \lambda}{3n(3\omega) - 2n(2\omega) - n(\omega)} = \frac{m_2 \lambda}{2[n(2\omega) - n(\omega)]}, \quad (12)$$

где $\lambda = 2\pi c/\omega; n(j\omega)$ – показатель преломления для волны с частотой *j* ω . В случае $m_1 = m_2$ из (12) следует, что



Рис.4. Зависимости угла квазисинхронизма $\theta_q(a)$ и периода модуляции $\Lambda(\delta)$ от длины волны $\lambda = 2\pi c/\omega$ в случае попутного взаимодействия волн с частотами ω , 2ω , 3ω в кристалле Mg: Y:LiNbO₃ для порядков квазисинхронизма $m_1 = 1$, $m_2 = 3$ (l), $m_1 = 3$, $m_2 = 7$ (2), $m_1 = 3$, $m_2 = 5$ (3) и $m_1 = m_2 = 1$ (4).

$$4n(2\omega) = 3n(3\omega) + n(\omega). \tag{13}$$

Соответствующие выражения нетрудно получить и для $m_1 \neq m_2$. Впервые возможность выполнения соотношений (11) была продемонстрирована для случая распространения волн под углом 90° к оптической оси кристалла LiNbO₃ [11]. Условие (13) справедливо, например, при $\lambda = 0.355$ мкм, периоде модуляции нелинейности $\Lambda = 8.2$ мкм и температуре кристалла 24.5°C.

Другой путь выполнения соотношений (11) – изменение угла между оптической осью кристалла и нормалью к решетке модуляции нелинейной восприимчивости. Данный угол можно назвать углом квазисинхронизма [15]. Перестроечные кривые квазисинхронизма для попутного взаимодействия волн приведены на рис.4. Кривые построены для случая, когда волна с частотой ω имеет обыкновенную поляризацию, а волны с частотами 2ω и 3ω – необыкновенную. Обратим внимание на то, что для волн, принадлежащих к коротковолновой области спектра, требуются более высокие порядки квазисинхронизма. Заметим также, что для волн с одинаковыми поляризациями область перестройки оказывается существенно у́же.

Условия квазисинхронизма для процессов (2) в кристалле LiNbO₃ могут быть реализованы в случае не только попутных последовательных взаимодействий, но и встречных взаимодействий. Для этого необходимо выполнение следующих условий [21]:

$$\pm k_3 \mp k_2 \mp k_1 = 2\pi m_2 / \Lambda, \quad \pm k_2 \mp 2k_1 = 2\pi m_1 / \Lambda.$$
 (14)

В (14) верхний знак относится к волне, распространяющейся в положительном направлении оси *z*, а нижний знак – к обратной волне. При встречном взаимодействии по крайней мере одна из волн должна быть обратной. Для обратной волны с частотой ω соотношениям (14) можно одновременно удовлетворить при $m_1 = 2m_2$ и $n(2\omega) = n(3\omega)$. В случае обратной волны с частотой 2ω условия (14) выполняются при $m_1 = -m_2$ и, сответственно, $n(\omega) = n(3\omega)$.

Когда же обратная волна имеет частоту 3ω , то условия (14) удовлетворяются, если вырожденный трехчастотный процесс протекает синхронно $(n(\omega) = n(2\omega))$, а процесс смешения – квазисинхронно. При этом порядок квазисинхронизма $m_2 = -3[n(\omega) + n(3\omega)]\Lambda/\lambda$ ($|m_2| \gg 1$, поскольку обычно $\Lambda \gg \lambda$).

4. Последовательные трехчастотные взаимодействия волн с кратными частотами

В общем случае рассматриваемые трехчастотные процессы (2) описываются следующими укороченными уравнениями [21]:

$$\pm \frac{dA_{1}}{dz} = -i\beta_{3}g(z)A_{3}A_{2}^{*}\exp(-i\Delta k_{3}z)$$

$$-i\beta_{2}g(z)A_{2}A_{1}^{*}\exp(-i\Delta k_{2}z),$$

$$\pm \frac{dA_{2}}{dz} = -2i\beta_{3}g(z)A_{3}A_{1}^{*}\exp(-i\Delta k_{3}z)$$

$$-i\beta_{2}g(z)A_{1}^{2}\exp(i\Delta k_{2}z),$$

$$\pm \frac{dA_{3}}{dz} = -3i\beta_{3}g(z)A_{1}A_{2}\exp(i\Delta k_{3}z),$$

(15)

где A_j – комплексная амплитуда волны с частотой $j\omega$ (j = 1, 2, 3); β_2 и β_3 – модули коэффициентов нелинейной связи волн. С коэффициентом β_3 связано невырожденное трехчастотное взаимодействие, а с β_2 – вырожденное.

Система уравнений (15) в общем виде может быть решена только численно. Вместе с тем для понимания особенностей рассматриваемых далее процессов полезным оказывается следующее соотношение между интенсивностями волн $I_i = |A_i|^2$:

$$\pm I_3^{\pm}(z) \mp I_2^{\pm}(z) \mp I_1^{\pm}(z) = \text{const.}$$
 (16)

Верхний индекс +(-) относится к волне, распространяющейся в положительном (отрицательном) направлении оси z.

Соотношение (16) имеет смысл закона сохранения разности интенсивностей попутных и встречных волн. В случае традиционного невырожденного трехчастотного процесса ($\beta_2 = 0$), кроме соотношения (16) нетрудно получить еще одно:

$$\pm 2I_1^{\pm}(z) \mp I_2^{\pm}(z) = \text{const.}$$
(17)

Выражения (16) и (17) представляют собой фактически соотношения Мэнли–Роу для рассматриваемого процесса, из которых следует, что накачка, например, на частоте 3ω преобразуется в попутную волну с частотой ω с коэффициентом преобразования по интенсивности 1/3. Подобные ограничения при последовательных взаимодействиях отсутствуют, поскольку соотношение (17) в этом случае не выполняется. Данное обстоятельство принципиально отличает последовательные взаимодействия от традиционных трехчастотных взаимодействий.

Сравнение энергетических особенностей процессов, описываемых уравнениями (15), с традиционными трехчастотными процессами позволяет утверждать, что название «последовательные взаимодействия» [1] адекватно отражает основную суть этих взаимодействий. Заметим, что в настоящее время термин «последовательные взаимодействия» используют, например, и при анализе спектрального обогащения ударной волны в слабо диспергирующих средах [49].

Характер энергообмена между взаимодействующими волнами определяется, естественно, начальными условиями на входе и выходе нелинейного кристалла:

$$A_i(z=0) = A_{i0}, \quad A_i(z=L) = A_{iL}.$$

Можно выделить три типа попутных последовательных процессов:

1) генерация высших гармоник:

 $A_{10} \neq 0, \quad A_{20} = A_{30} = 0;$

2) преобразование частоты вниз:

$$A_{30} \neq 0$$
, $|A_{30}| \gg |A_{10}|, |A_{20}|$;

 параметрическое усиление при низкочастотной накачке:

$$A_{20} \neq 0, \quad |A_{20}| \gg |A_{10}|, |A_{30}|.$$

Ниже рассмотрена динамика энергообмена между взаимодействующими волнами для этих процессов. Заметим, что фазовые соотношения между взаимодействующими волнами имеют сложный и нерегулярный характер [15]: наблюдаются скачки фаз в области сильного



Рис.5. Зависимости нормированной интенсивности \tilde{I}_3 третьей гармоники от приведенной длины $z/L_{\rm nl}$ для отношения эффективных коэффициентов нелинейности r = 0.66 (1), 0.5 (2), 0.3 (3) и 1.0 (4).

энергообмена, а при неоптимальных фазовых соотношениях на входе периодически-неоднородной среды внутри среды они не стремятся к установившемуся значению.

4.1. Генерация третьей гармоники

Обратимся сначала к последовательной квазисинхронной генерации третьей гармоники. При поступлении на вход нелинейного кристалла с квадратичной нелинейностью интенсивной волны с частотой ω в нем происходит сначала генерация волны с частотой 2 ω . На следующем этапе при выполнении соответствующих условий квазисинхронизма волны с частотами ω и 2 ω возбуждают волну с частотой 3 ω . В результате энергия волны с частотой ω преобразуется в энергию третьей гармоники [14, 15]. Последняя при традиционном прямом умножении частоты в однородных квадратично-нелинейных кристаллах вообще отсутствует.

На рис.5 приведены интенсивности третьей гармоники при последовательном квазисинхронном ее возбуждении для различных отношений эффективных коэффициентов нелинейной связи волн $r = m_1\beta_3/m_2\beta_2$. Прежде всего отметим, что фаза волны накачки, как и в однородных средах, не влияет на коэффициент преобразования в третью гармонику. Вместе с тем максимальная эффективность преобразования в третью гармонику сильно зависит от отношения коэффициентов нелинейной связи волн и используемых порядков квазисинхронизма.

Для оптимального отношения нелинейных коэффициентов ($r \approx 0.67$) динамика энергообмена между волнами изображена на рис.6. Здесь энергия волны накачки практически полностью преобразуется в энергию третьей гармоники. Следует обратить внимание на то, что в рассмотренной генерации третьей гармоники, в отличие



Рис.6. Зависимости нормированных интенсивностей \tilde{I}_1 (*I*), \tilde{I}_2 (*2*), \tilde{I}_3 (*3*) волн с частотами ω , 2ω , 3ω соответственно от $z/L_{\rm nl}$ при генерации третьей гармоники в случае оптимального отношения эффективных нелинейностей r = 0.67.



Рис.7. Зависимости нормированных интенсивностей \tilde{I}_1 (1), \tilde{I}_2 (2), \tilde{I}_3 (3) волн с частотами ω , 2ω , 3ω соответственно от z/L_{nl} при генерации третьей субгармоники для $A_{30} = 1$, $A_{10} = i0.1$, $A_{20} = 0.1$.

от прямого ее возбуждения в среде с кубической нелинейностью, отсутствуют самовоздействие и кросс-взаимодействие. Именно благодаря этому обстоятельству при последовательной генерации третьей гармоники удается получить 100%-ную эффективность преобразования.

В эксперименте *L*_{nl} для кристалла ниобата лития может составлять несколько сантиметров.

4.2. Генерация третьей субгармоники

Этот процесс является одним из процессов преобразования частоты вниз при накачке на частоте 3ω . Динамика преобразования интенсивной волны с частотой 3ω в волну с частотой ω носит неустойчивый характер [14, 15]. Если фазовые соотношения на входе нелинейной среды не являются оптимальными для этого взаимодействия, то имеют место осцилляции интенсивности волн. При последовательной генерации третьей субгармоники существуют оптимальное начальное фазовое соотношение между накачкой и субгармоникой и оптимальное отношение эффективных нелинейных коэффициентов *r* для полной перекачки энергии накачки в волну субгармоники. Оптимальное *r* является таким же, как и в случае генерации третьей гармоники (*r* = 0.67).

При этом наиболее эффективная перекачка энергии волны с частотой 3ω в волну с частотой ω достигается, если начальные фазы взаимодействующих волн $\varphi_{20} = \varphi_{30} = 0$, а начальная фаза волны накачки $\varphi_{10} = \pi/2$. Это оптимальное фазовое соотношение отличается от такового для однородных сред: для однородной кубичнонелинейной среды существует несколько оптимальных фаз φ_{10} , которые в случае генерации третьей субгармоники различаются на $2\pi/3$ [51]. Для оптимальных условий генерации третьей субгармоники в РДС-кристалле поведение интенсивностей взаимодействующих волн показано на рис.7 (число слоев среды на нелинейной длине N = 10). Слабые осцилляции на кривых связаны с высокими порядками квазисинхронизма: $m_1 = 3$, $m_2 = 5$. Подчеркнем еще раз, что в отличие от среды с кубиче-



Рис.8. Зависимости нормированных интенсивностей \tilde{I}_1 (1), \tilde{I}_2 (2), \tilde{I}_3 (3) волн с частотами ω , 2ω , 3ω соответственно от $z/L_{\rm nl}$ при преобразовании энергии волны с частотой 3ω в энергию волны с частотой 2ω для $A_{30} = -1$, $A_{10} = 0.01$, $A_{20} = 0$.



Рис.9. Зависимости нормированных интенсивностей \tilde{I}_1 (*I*), \tilde{I}_2 (*2*), \tilde{I}_3 (*3*) волн с частотами ω , 2ω , 3ω соответственно от $z/L_{\rm nl}$ при параметрическом усилении в поле низкочастотной накачки с частотой 2ω для $A_{20} = 1$, $A_{10} = 4.27 \cdot 10^{-5}$, $A_{30} = 0$.

ской нелинейностью, где также возможна перекачка энергии в третью субгармонику, рассматриваемый процесс идет на квадратичной нелинейности.

4.3. Параметрическое преобразование частоты

Рассмотрим теперь преобразование энергии волны с частотой 3ω в энергию волны с частотой 2ω . Этот процесс в случае однородной среды подробно исследован в [10, 16, 17]. В [10] впервые была показана возможность полной перекачки энергии интенсивной волны с частотой 3ω в волну с частотой 2ω . В [14] было установлено, что, несмотря на квазисинхронный характер взаимодействия в РДС-кристаллах, поведение плоских волн (при данной длине взаимодействия) с ростом числа слоев все больше соответствует их поведению в однородной среде.

На рис.8 приведены зависимости интенсивностей волн от пространственной координаты в обсуждаемом последовательном квазисинхронном процессе при оптимальном начальном фазовом соотношении волн, $\beta_2/\beta_3 = 1$, $m_1 = m_2 = 1$ и числе слоев N = 30 на нелинейной длине L_{nl} , где $L_{nl} = 1/\beta_3 |A_{30}|$.

Перекачка энергии в волну с частотой 2 ω в РДСкристалле, в отличие от случая однородной среды, не является апериодической, и при ограниченном числе слоев она может быть высокоэффективной. В принципе может быть достигнута 100%-ная эффективность преобразования при очень большом числе слоев среды.

4.4. Параметрическое усиление при низкочастотной накачке

Рассмотрим далее квазисинхронное параметрическое усиление волны с частотой 3ω в поле волны накачки с частотой 2ω . Его динамика зависит от многих параметров: соотношения интенсивностей волны накачки на частоте 2ω и сигнальной волны, фазовых соотношений между взаимодействующими волнами, соотношения между эффективными нелинейными коэффициентами и т.п. [13–15]. Параметрическое усиление при низкочастотной накачке в случае однородной среды исследовалось в [2, 5, 6]. Для периодически-неоднородной нелинейной среды в [13] была впервые установлена возможность эффективного преобразования энергии накачки с частотой 2ω в энергию волны с частотой 3ω .

Динамику энергообмена при параметрическом усилении демонстрируют рис.9–11. Энергообмен между волнами имеет осцилляторный характер: после того, как энергия накачки с частотой 2ω почти полностью преобразуется в энергию волны с частотой 3ω , начинается обратная перекачка энергии в волну накачки. На рис.9



Рис.10. Зависимости нормированной интенсивности I_3 волны с частотой 3ω от z/L_{nl} при параметрическом усилении в поле низкочастотной накачки с частотой 2ω для $A_{20} = 1$, $A_{10} = 0$ и различных амплитуд A_{30} .

показано поведение волн при преобразовании частоты вверх ($A_{10} \neq 0, A_{30} = 0$) в случае эффективного взаимодействия при оптимальном начальном фазовом соотношении, $\beta_2/\beta_3 = 1, m_1 = m_2 = 1$ и числе слоев на нелинейной длине N = 10 (здесь $L_{nl} = 1/\beta_2 |A_{20}|$).

В случае параметрического усиления при низкочастотной накачке, т. е. при $A_{30} \neq 0$ и $A_{10} = 0$, максимум эффективности преобразования на частоте 3ω достигается на бо́льших длинах взаимодействия, чем при преобразовании частоты вверх [14]. Это связано с тем, что в нелинейной среде сначала возбуждается волна на разностной частоте ω , а затем идут вырожденное параметрическое усиление ($2\omega = \omega + \omega$) и преобразование частоты вверх ($\omega + 2\omega = 3\omega$).

На начальном этапе взаимодействия динамика волн сильно зависит от соотношения β_2 и β_3 , ответственных за обычные высокочастотное параметрическое усиление и смешение частот, и от начального фазового соотношения. В приближении заданного поля волны накачки и в предположении, что нелинейная среда однородна, изменение амплитуды волны с частотой 3ω дается выражением (ср. с разд.5)

$$A_3(z) = \sum_{j=1}^{2} B_j \sinh \Gamma_j z + C_j \cosh \Gamma_j z, \qquad (18)$$

где B_i и C_i задаются начальными условиями при z = 0 [13];

$$\Gamma_{1,2} = \frac{1}{2} \left[\beta_2 \pm \left(\beta_2^2 - 12\beta_3^2 \right)^{1/2} \right] |A_{20}| \tag{19}$$

– инкремент нарастания амплитуды. Видно, что при $\beta_2 \sim \beta_3$ действительная часть $\Gamma_{1,2}$ определяется коэффициентом β_2 , ответственным за вырожденное параметрическое усиление при высокочастотной накачке. Заметим, что структура выражения (18) типична для параметрического усиления при высокочастотной накачке.

При изменении параметров сигнальных волн с частотами ω и 3ω на входе периодически-модулированной нелинейной среды можно существенно изменить динамику энергообмена между волнами. На рис.10 и 11 показано изменение динамики параметрически усиленного сигнала в зависимости от соотношения интенсивностей и фаз входных сигналов. Кривые построены для N = 10, $m_1 = m_2 = 1$ и $\beta_2/\beta_3 = 1$. Из рис.10 и 11 видно, что, изменяя параметры сигнала на входе нелинейной среды, можно управлять динамикой процесса: слабое изменение на-





Рис.11. Зависимости нормированной интенсивности \tilde{I}_3 волны с частотой 3 ω от $z/L_{\rm nl}$ при параметрическом усилении в поле низкочастотной накачки с частотой 2 ω для $A_{20} = 1$, $A_{10} = 0$, $|A_{30}| = 3.26 \cdot 10^{-2}$ и различных фаз φ_{30} .

чальной амплитуды или фазы сигнала может приводить либо к полной перекачке энергии в волну с частотой 3ω на данной длине среды, либо к отсутствию сигнала на этой частоте, т. е. позволяет реализовать полностью оптическое переключение с одной частоты на другую. Видна также определенная периодичность в зависимости интенсивности сигнала от указанных параметров (см. [16]).

4.5. Встречные взаимодействия волн

Рассмотрим теперь квазисинхронное параметрическое усиление при низкочастотной обратной волне накачки [21], т.е. случай, когда волна накачки с частотой 2ω поступает на выход кристалла (z = L). Из (16) для интенсивностей взаимодействующих волн в этом случае получаем

$$I_1^+(0) + I_3^+(0) - I_2^-(0) = I_1^+(L) + I_3^+(L) - I_2^-(L)$$
. (20)

При отсутствии сигнала на входе среды ($I_3^+(0) = 0$) из (20) находим

$$I_{3}^{+}(L) = I_{2}^{-}(L) - I_{1}^{+}(L) + I_{1}^{+}(0) - I_{2}^{-}(0).$$
⁽²¹⁾

Если реализовать условия $I_1^+(L) = 0$ и $I_1^+(0) \simeq I_2^-(0)$, то энергия волны с частотой 2ω практически полностью преобразуется в энергию волны с частотой 3ω . Сказанное иллюстрирует рис.12, на котором приведены результаты расчета для N = 500 на нелинейной длине $L_{nl} = 1/\beta_3 |A_{20}|$ и $m_2 = 1$. Видно, что по мере распространения в нелиней-



Рис.12. Зависимости нормированных интенсивностей \tilde{I}_1 (1), \tilde{I}_2 (2), \tilde{I}_3 (3) волн с частотами ω , 2ω , 3ω соответственно от z/L_{nl} при встречном параметрическом усилении в поле низкочастотной накачки с частотой 2ω . Волна с частотой 2ω распространяется навстречу волнам с частотами ω и 3ω .

855

ной среде энергия волны с частотой 2ω перекачивается в волну с частотой 3ω при весьма малых входных интенсивностях волн на частотах ω и 3ω . В соответствии с (21) эффективный энергообмен между встречными волнами с частотами 2ω и 3ω может произойти также в случае $I_2^-(0) = 0$ при $I_1^+(L) \simeq I_1^+(0)$.

Из проведенного в [21] анализа параметрического усиления при низкочастотной накачке следует, что полная перекачка энергии волны с частотой 2ω в волну с частотой 3ω при встречном взаимодействии происходит на меньших длинах, чем при попутном взаимодействии, а роль фазовых соотношений между волнами возрастает. В таких процессах, в отличие от попутных взаимодействий, не удается, например, полностью преобразовать энергию интенсивной волны с частотой 3ω в энергию волны с частотой 2ω .

5. Генерация неклассического света при параметрическом усилении в поле низкочастотной накачки

Традиционные трехчастотные процессы параметрического усиления в поле высокочастотной накачки являются источниками неклассического или сжатого света (см., напр., [50–54]). Особенности использования квазисинхронных процессов для генерации сжатого света рассмотрены в обзоре [55]. В настоящее время интенсивно изучаются применения сжатого света в различных прецизионных оптико-физических измерениях и системах передачи и обработки оптической информации.

Параметрическое усиление света при низкочастотной накачке может быть одним из способов получения неклассического света, свойства которого отличаются от свойств такового, формируемого при параметрическом усилении в поле низкочастотной накачки. Проанализируем квантовые характеристики света, генерируемого при попутном параметрическом усилении в поле низкочастотной накачки. При рассмотрении этого процесса мы будем следовать работе [56], полагая, что условия квазисинхронизма выполнены, а нелинейная среда, тем не менее, однородна.

В приближении заданного поля классической низкочастотной накачки данный параметрический процесс описывается уравнениями

$$\frac{\mathrm{d}a_1}{\mathrm{d}z} = -\mathrm{i}\varkappa_3^* a_3 - \mathrm{i}2\varkappa_2 a_1^+,$$

$$\frac{\mathrm{d}a_3}{\mathrm{d}z} = -\mathrm{i}\varkappa_3 a_1,$$
(22)

где $a_j(z)$ и $a_j^+(z)$ – операторы уничтожения и рождения фотона с частотой $j\omega$, подчиняющиеся коммутационным соотношениям $[a_j, a_k^+] = \delta_{jk}$, $[a_j, a_k] = 0$; δ_{jk} – символ Кронекера; $\varkappa_j = \gamma_j D_2$; γ_2 и γ_3 – эффективные нелинейные коэффициенты связи; D_2 – классическая амплитуда волны накачки.

Решение уравнений (22) имеет вид, аналогичный выражению (18), в котором комплексные амплитуды нужно заменить на операторы (см. [56]). Заметим, что это решение аналогично также решению, полученному в случае квантового описания нелинейного асимметричного ответвителя волн с частотами ω и 2ω при интенсивной накачке на частоте второй гармоники [57].

В разд.4.4 было показано, что при параметрическом усилении в поле низкочастотной накачки с частотой 2ω сначала идет генерация фотонов с частотой ω , которые, складываясь с фотонами накачки, формируют фотоны с частотой 3ω . Первый процесс представляет собой вырожденное трехчастотное параметрическое усиление при низкочастотной накачке, в котором на частоте ω генерируется неклассический (квадратурно-сжатый) свет [51–54]. В связи с этим во втором процессе поле на частоте 3ω оказывается в неклассическом состоянии.

Рассмотрим поведение флуктуаций квадратурных компонент на частотах ω и 3 ω :

$$\begin{aligned} X_j(\theta_j) &= a_j \exp(i\theta_j) + a_j^+ \exp(-i\theta_j), \\ Y_j(\theta_j) &= i[a_j \exp(i\theta_j) - a_j^+ \exp(-i\theta_j)] \quad (j = 1, 3), \end{aligned}$$
(23)

где θ_j – фаза волны гетеродина, используемой для измерения *j*-й квадратурной компоненты. Операторы $X_j(\theta_j)$ и $Y_j(\theta_j)$ удовлетворяют коммутационным соотношениям $[X_j(\theta_j), Y_j(\theta_j)] = -2i.$

Анализ показал [56], что динамика квадратур зависит от многих параметров задачи. В частности, установлено, что флуктуации квадратур X_1 и X_3 в процессе взаимодействия волн уменьшаются при условиях

$$3\theta_1 = \theta_3, \quad \varphi_2 + 2\theta_1 = -\pi/2,$$
 (24)

где $\varphi_2 = \arg D_2$. В этом случае квадратурные компоненты определяются выражениями

$$X_1(z,\theta_1) = K_1(z)X_1 + K(z)X_3,$$

$$X_3(z,\theta_3) = -K(z)X_1 + K_3(z)X_3,$$
(25)

где

 \mathbf{v} (–

 \mathbf{O}

$$\begin{aligned} X_j &= X_j(z=0); \\ K_1(z) &= \left(\cosh\gamma z - \frac{|\varkappa_2|}{\gamma}\sinh\gamma z\right)\exp(-|\varkappa_2|z); \\ K_3(z) &= \left(\cosh\gamma z + \frac{|\varkappa_2|}{\gamma}\sinh\gamma z\right)\exp(-|\varkappa_2|z); \\ K(z) &= \frac{|\varkappa_3|}{\gamma}\exp(-|\varkappa_2|z)\sinh\gamma z; \\ \gamma &= \left(|\varkappa_2|^2 - |\varkappa_3|^2\right)^{1/2}. \end{aligned}$$

Функция K(z) связана с взаимным влиянием флуктуаций на генерируемых частотах. Для исходных полей на частотах ω и 3ω в вакуумном или когерентном состоянии дисперсии квадратур

$$V_j = \langle X_j^2 \rangle - \langle X_j \rangle^2 = Q_j(z), \qquad (26)$$

где

$$Q_{1,3}(z) = \frac{1}{\gamma^2} \left(|\varkappa_2|^2 \cosh 2\gamma z \mp |\varkappa_2| \gamma \sinh 2\gamma z - |\varkappa_3|^2 \right) \exp(-2|\varkappa_2|z);$$

$$(27)$$



Рис.13. Дисперсии $V_1(X_1)(a)$, $V_3(X_3)(\delta)$ квадратурных компонент на частотах ω и 3ω соответственно при попутном параметрическом усилении в поле низкочастотной накачки с частотой 2ω в зависимости от z/L_{nl} и отношения коэффициентов нелинейности $(|\varkappa_3|/|\varkappa_2|)^2$.

верхний знак в формуле (27) относится к $Q_1(z)$, нижний – к $Q_3(z)$. Дисперсия квадратур на входе в нелинейную среду $V_0 = 1$ (вакуумное или когерентное поле).

При $|\varkappa_3| = 0$, т.е. при традиционном параметрическом усилении в поле низкочастотной накачки, функция $Q_1(z) = \exp(-4|\varkappa_2|z)$, а $Q_3(z) = 1$. В этом случае в нелинейной среде дисперсия квадратуры $X_1(z)$ меньше амплитуды вакуумных флуктуаций, а дисперсия квадратуры $X_3(z)$ равна амплитуде вакуумных флуктуаций. В соответствии с квантовомеханическим соотношением неопределенностей дисперсия необсуждаемой квадратуры Y_1 превышает амплитуду вакуумных флуктуаций.

При $|\varkappa_3| \neq 0$ происходит параметрическое усиление как при низкочастотной, так и при высокочастотной накачке. При этом в силу выбранных фазовых соотношений дисперсии квадратур $X_1(z)$, $X_3(z)$ в нелинейной среде согласно (26), (27) уменьшаются, а дисперсии квадратур $Y_1(z)$, $Y_3(z)$, естественно, увеличиваются.

Поведение дисперсий квадратур $X_1(z)$ и $X_3(z)$ в нелинейной среде изображено на рис.13 при различных отношениях нелинейностей $|\varkappa_3|/|\varkappa_2|$. Видно, что с ростом пройденного расстояния дисперсии квадратур $X_1(z)$ и $X_3(z)$ уменьшаются, т. е. имеет место корреляция в подавлении флуктуаций квадратур. Однако флуктуации квадратуры $X_3(z)$ всегда больше, чем квадратуры $X_1(z)$. С ростом коэффициента нелинейности \varkappa_3 дисперсия квадратуры $X_3(z)$ уменьшается, а дисперсия квадратуры $X_1(z)$, напротив, несколько возрастает.

Таким образом, возможно подавление квантовых флуктуаций в квадратурных компонентах на кратных частотах в последовательных трехчастотных процессах, связанных между собой общей накачкой. При этом на одной из частот реализуется обычное вырожденное параметрическое усиление, а на другой – параметрическое усиление при низкочастотной накачке. В традиционном же методе генерации высших гармоник с помощью смешения частот когерентного излучения свет в неклассическом состоянии на суммарной частоте не формируется.

6. Эксперименты по генерации высших оптических гармоник

Исследования последовательных взаимодействий световых волн в нелинейной оптике начались сравнительно недавно и имеют преимущественно теоретический характер из-за сложности фазового согласования двух трехчастотных процессов. Однако к настоящему времени в связи с прогрессом в формировании структур с периодической модуляцией нелинейной восприимчивости уже появились сообщения об экспериментальной реализации последовательных взаимодействий. Речь идет пока о генерации высших оптических гармоник с помощью последовательных взаимодействий [12, 18 – 20].

В [18] исследуется генерация третьей гармоники в результате возбуждения второй гармоники ($\omega + \omega = 2\omega$) и последующего смешения частот ($\omega + 2\omega = 3\omega$) соответственно в 9-м и 33-м порядках квазисинхронизма. В эксперименте использовался кристалл LiNbO₃ : Y, выращенный методом Чохральского со сформированной в ходе роста РДС. Период модуляции нелинейной восприимчивости составлял 60 мкм, а длина кристалла равнялась 5 мм. В качестве накачки использовалось квазинепрерывное излучение Nd:YAG-лазера ($\lambda = 1.064$ мкм) со средней мощностью порядка 1 Вт (длительность импульсов 100 нс, частота повторения 1 кГц). Осуществлялись еее/еее-взаимодействия, что позволило использовать максимальный нелинейный коэффициент d_{33} .

Одновременная генерация второй и третьей гармоник лазерного излучения получена также в [12]. В этой работе использовалось излучение СО-лазера с длиной волны 3.6 мкм и мощностью около 195 мВт, которое фокусировалось в периодически поляризованный с периодом 31.5 мкм кристалл ниобата лития. В еее/еее-взаимодействиях эффективность преобразования во вторую гармонику составила 5.4 · 10⁻⁴ Вт⁻¹, а в третью – не более 10⁻⁶ Вт⁻².

Генерация второй и третьей гармоник при последовательном взаимодействии встречных волн как результат встречной генерации второй гармоники и последующего встречного смешения частот была реализована в [19, 20]. Волновод на основе кристалла КТіОРО₄ длиной 2.6 мм был переполяризован с периодом 4 мкм. Импульсное излучение накачки с длительностью 9 нс и длиной волны 1.230 мкм создавало внутри волновода интенсивность около 16.2 ГВт/см². Генерация второй и третьей гармоник происходила при m = 24 и 13 соответственно. При этом эффективность преобразования в третью гармонику составила около 0.4 %.

Заключение

Рассмотрен новый класс нелинейно-оптических взаимодействий – последовательные взаимодействия волн с кратными частотами. Такие взаимодействия удается реализовать в периодически-неоднородных кристаллах, в частности в РДС-кристаллах, благодаря выполнению условий квазисинхронизма для двух трехчастотных процессов на одной и той же «нелинейной» решетке.

Следует отметить, что РДС-кристаллы являются однородными по линейным оптическим свойствам. В этом состоит их существенное отличие от так называемых фотонных кристаллов, в которых в пространстве периодически изменяются как линейные, так и нелинейные свойства. Подробно рассмотренные квазисинхронные взаимодействия вида (2) позволяют утверждать, что при интенсивной волне накачки с частотой $\omega_{\rm p}$ возможно высокоэффективное преобразование энергии накачки в энергию волны с одной из частот $\omega_{\rm p}/3$, $2\omega_{\rm p}/3$, $3\omega_{\rm p}/2$, $3\omega_{\rm p}$.

РДС-кристаллы допускают также последовательные взаимодействия волн с кратными частотами вида [12, 15]

$$\omega + \omega = 2\omega, \quad 2\omega + 2\omega = 4\omega.$$

В этом случае, помимо хорошо известных в среде с квадратичной нелинейностью процессов, возможно эффективное преобразование энергии волны накачки с частотой ω_p в энергию волны с частотой $\omega_p/4$ или $4\omega_p$. Для генерации волн с указанными частотами в случае прямых преобразований необходима нелинейность четвертого порядка. Следует особо подчеркнуть, что высокоэффективное преобразование накачки в излучение с другими частотами в последовательных процессах не зависит от этих частот. В этом заключается существенное отличие рассмотенных процессов от традиционных.

Выполненные эксперименты по генерации третьей гармоники при последовательных квазисинхронных взаимодействиях - это лишь начало экспериментальных исследований нового класса взаимодействий в нелинейной оптике. В данном отношении наиболее интересной нам представляется возможность реализации параметрического усиления при низкочастотной накачке. К настоящему времени теоретически доказано, что этот процесс возможен как при попутном, так и при встречном взаимодействии волн. Параметрическое усиление при низкочастотной накачке может представить интерес также с точки зрения генерации неклассического света. Как показано в разд.5, в таком процессе формируется квадратурно-сжатый свет на частотах выше и ниже частоты накачки. При этом квантовые флуктуации разночастотных квадратур оказываются коррелированными, что важно для различных приложений.

Для высокоэффективного преобразования в последовательных квазисинхронных взаимодействиях волн важным является вопрос о влиянии случайных отклонений от периодичности. С другой стороны, в статистическинеоднородных средах со случайным пространственным изменением коэффициента нелинейной связи волн возможна, по-видимому, стохастическая реализация последовательных взаимодействий.

С точки зрения практической значимости последовательных взаимодействий на первое место безусловно выступает создание высокоэффективных преобразователей частоты лазерного излучения. Например, реализация последовательного процесса типа параметрического усиления при низкочастотной накачке, когда в качестве источника накачки используется излучение Nd:YAG-лазера ($\lambda = 1.064$ мкм), позволяет получить источник когерентного излучения, генерирующий одновременно на трех длинах волн: 1.064, 2.128 и 0.709 мкм.

Другое важное применение последовательных процессов – использование их в оптических переключателях. Это связано с тем, что данные процессы являются фазочувствительными, т. е. изменение фазы одной из взаимодействующих волн приводит к существенным изменениям амплитуд волн, участвующих в процессе. Детальное изучение этих явлений в последовательных квазисинхронных взаимодействиях – предмет дальнейших исследований. Последовательные взаимодействия следует отличать от каскадных квазисинхронных процессов, которые реализуются либо на основе двух кристаллов, расположенных один за другим и различающихся периодом нелинейной решетки [58], либо на основе двух нелинейных решеток в одном кристалле [59].

Авторы благодарят И.И.Наумову за полезное обсуждение проблем, связанных со способами формирования нелинейной решетки в средах. Мы признательны Н.В. Кравцову, настойчивость которого способствовала написанию настоящего обзора. Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (грант № 00-02-16040).

Примечание при корректуре

Недавно вышла в свет статья Chao Zhang et al. (*Optics Letts*, **25**, 436 (2000)), в которой теоретически рассмотрена последовательная генерация третьей гармоники в однородной среде. Основное внимание авторы уделили определению условий высокоэффективного преобразования основного излучения в третью гармонику. Полученное ими отношение коэффициентов нелинейной связи взаимодействующих волн, при котором происходит полное преобразование, с точностью до обозначений совпадает с результатами, полученными ранее в наших работах [14,15] (см. выше разд.4.1).

- 1. Ахманов С.А., Хохлов Р.В. Проблемы нелинейной оптики (М., ВИНИТИ АН СССР, 1964).
- Ахманов С.А., Дмитриев В.Г. Вестник Моск. ун-та. Сер. III, № 4, 32 (1963); Дмитриев В.Г. Канд.дис. (М., МГУ им. М.В.Ломоносова, 1964).
- 3. Tien P.K. J.Appl.Phys., 29, 1347 (1958).
- 4. Chang K., Bloom S. Proc. IRE, 46, 1383 (1958).
- 5. Ashkin A. J. Appl. Phys., 29, 1646 (1958).
- 6. Carrol J.E. J. Electronics and Control., 9, 231 (1961).
- Ахманов С.А., Дмитриев В.Г., Моденов В.П. Радиотехника и электроника, 9, 814 (1964).
- 8. Yarborough J.M., Ammann E.O. Appl. Phys. Letts, 18, 145 (1971).
- Bakker H.J., Planken P.C.M., Kuipers L., Lagendijk A. Optics Comms, 73, 398 (1989).
- Комиссарова М.В., Сухоруков А.П. Квантовая электроника, 20, 1025 (1993); Комиссарова М.В. Канд.дис. (М., МГУ им. М.В.Ломоносова, 1996).
- Aleksandrovski A.L., Chirkin A.S., Volkov V.V. J.Russ.Laser Res., 18, 101 (1997).
- Pfister O., Wells J.S., Hollberg L., Zink L., Van Baak D.A., Levenson M.D., Bosenberg W.R. *Optics Letts*, 22, 1211 (1997).
- 13. Волков В.В., Чиркин А.С. Квантовая электроника, 25, 101 (1998).
- 14. Чиркин А.С., Волков В.В. Изв. АН. Сер. физич., 62, 2354 (1998).
- 15. Chirkin A.S., Volkov V.V. J. Rus. Laser Res., 19, 409 (1998).
- Егоров О.А., Сухоруков А.П. Изв. АН. Сер. физич., 62, 2345 (1998).
- 17. Комиссарова М.В., Сухоруков А.П., Терешков В.А. *Изв. АН. Сер. физич.*, **61**, 2298 (1997).
- Волков В.В., Лаптев Г.Д., Морозов Ю.Е., Наумова И.И., Чиркин А.С. Квантовая электроника, 25, 1046 (1998).
- Gu M., Makarov M., Ding Y.J., Khurgin J.B., Risk W.P. Optics Letts, 24, 127 (1999).
- Gu M., Korotkov B.Y., Ding Y.J., Kang S.V., Khurgin J.B. Optics Comms, 155, 323 (1999).
- 21. Волков В.В., Чиркин А.С. Квантовая электроника, 26, 82 (1999).
- 22. Bloembergen N. USA patent 3 384433 (1968).
- Armstrong J.A., Bloembergen N., Ducuing J., Pershan P.S. *Phys. Rev.*, **127**, 1918 (1962).
- 24. Тагиев З.А., Чиркин А.С. ЖЭТФ, 73, 1271 (1977).
- Чиркин А.С., Юсупов Д.Б. Изв. АН СССР. Сер. физич., 45, 929 (1981).
 Чиркин А.С., Юсупов Д.Б. Квантовая электроника, 9, 1625
- (1982).27. Arbore M.A., Galvanauskas A., Harter D., Chou M.H., Fejer M.M.
- Optics Letts, 22, 1341 (1997).
 28. Ahfeld H. PhD Thesis (Royal Inst. Technology, Dept. Phys., Stockholm, 1994).

- 29. Чиркин А.С., Юсупов Д.Б. Квантовая электроника, 8, 440 (1981).
- Fejer M.M., Magel G.A., Jundt D.H., Byer R.L. *IEEE J. Quantum Electron.*, 28, 2631 (1992).
- 31. Byer R.L. J. Nonlinear Opt. Phys. and Materials, 6, 549 (1997).
- Sohler W. Technical Digest CLEO/Passific Rim'99 (Seul, Korea, 1999, FS1, p.1265).
- Кравцов Н.В., Лаптев Г.Д., Морозов Е.Ю., Наумова И.И., Фирсов В.В. Квантовая электроника, 29, 95 (1999).
- 34. Hsu F., Gupta M.C. Appl.Optics, 32, 2049 (1993).
- Mizuuchi K., Yamamoto K., Kato M. Appl.Phys.Letts, 70, 1201 (1997).
- 36. Ito H., Takyu C., Inada H. Electron. Letts, 27, 1221 (1991).
- 37. Fujimura M., Kintaka K. J. Light Wave Technology, 11, 1360 (1993).
- Ткачев С.В., Францев Д.Н., Рощупкин Д.В. Материалы электронной техники, № 2, 40 (1999).
- Tasson M., Legal H., Gay J.S., Peuzin J.C., Lissalde F.S. Ferroellectrics, 13, 479 (1976).
- 40. Feng D., Wang W., Zon Q., Geng Z. Chinese Phys. Letts, 4, 181 (1986).
- 41. Magel G.A., Fejer M.M., Byer R.L. Appl. Phys. Letts, 56, 108 (1990).
- 42. Глико О.А. Канд.дис. (М., МГУ им. М.В.Ломоносова, 1998).
- Naumova I.I., Evlanova N.F., Gliko O.A., Lavrishchev S.V. J. Crystal Growth, 181, 160 (1991).
- Jung J.H., Kinoshita T. Technical Digest CLEO/Passific Rim'99 (Seul, Korea, 1999, P2.101, p.1024).
- Gordon L.A., Zheng D., Wu Y.S., Eckardt R.C., Route A.K., Feigelson A.S., Fejer M.M., Byer R.L. *Annual report*. A.8 (CNOM, Stanford University, 1996).
- Eyres L.A., Eberdt C.B., Harris J.S., Fejer M.M. Annual report. C.1 (CNOM, Stanford University, 1996).
- Gordon L.A., Zheng D., Wu Y.S., Route A.K., Feigelson A.S., Fejer M.M., Byer R.L. *Annual report. B.1* (CNOM, Stanford University, 1998).
- Wu Y.S., Feigelson A.S., Route A.K., Zheng D., Gordon L.A., Fejer M.M., Byer R.L. Annual report. B.2 (CNOM, Stanford University,

1998).

- Виноградова М.Б., Руденко О.В., Сухоруков А.П. Теория волн (М., Наука, 1990).
- 50. Клышко Д.Н. Фотоны и нелинейная оптика (М., Наука, 1980).
- Ахманов С.А., Белинский В.А., Чиркин А.С. В сб. Новые физические принципы оптической обработки информации (М., Наука, 1990).
- Перина Я. Квантовая статистика линейных и нелинейных оптических явлений (М., Мир, 1987).
- Mandel L., Wolf E. Optical coherence and quantum optics (Cambridge Univ.Press, 1995).
- Walls D.F., Milburn G.J. *Quantum optics* (Berlin, Springer-Verlag, 1995).
- Levenson A., Vidakovich P., Simonneau J. Pure and Appl.Optics, 7, 81 (1998).
- 56. Чиркин А.С. Оптика и спектроскопия, 87, 627 (1999).
- 57. Perina J., Perina J. Jr. Quantum Semiclass. Opt., 7, 541 (1995).
- 58. Goldberg L., Klinear D.A.V. Optics Letts, 20, 1640 (1995).
- 59. Sundheimer M.L., Stegeman G.I. et al. Electron. Letts, 30, 975 (1994).

A.S.Chirkin, V.V.Volkov, G.D.Laptev, E.Yu.Morozov. Consecutive three-frequency wave interactions in nonlinear optics of periodically non-uniform media.

A brief review of recent advantages in the study of two coupled three-frequency nonlinear optical processes with multiple frequencies, possessing some specific features in comparison with conventional three-frequency processes, is presented. The realisation of consecutive interactions of co- and counterpropagating light waves in a LiNbO₃ cystal with a regular domain structure is considered. The energy exchange in consecutive interactions of waves with frequencies ω , 2ω , and 3ω is analysed. Potentialities of the use of consecutive nonlinear optical processes in quantum electronics and nonlinear optics are discussed.