

Диагностика неоднородного распределения квадратичной оптической восприимчивости по спектрам параметрического рассеяния света

Г.Х.Китаева, А.Н.Пенин

Предлагается новый метод измерения пространственного распределения квадратичной восприимчивости неоднородных нелинейных сред, основанный на однозначной связи фурье-гармоник этого распределения с формой линии сигнального излучения при параметрическом преобразовании частоты в линейном режиме. Анализ диагностических возможностей метода спонтанного параметрического рассеяния света проводится на основе моделирования спектров нелинейной дифракции в слоистых средах с различными профилями изменения квадратичной восприимчивости. Рассмотрены случаи ступенчатого и сглаженного изменения восприимчивости регулярных и нерегулярных доменных сверхрешеток (структур, образованных слоями оптически линейного и оптически нелинейного вещества), исследовано влияние поглощения света на холостой частоте. Приведены примеры экспериментальных спектров кристаллов с регулярной доменной структурой. Предложены различные варианты методик определения одномерной зависимости квадратичной восприимчивости от координаты в периодически поляризованных структурах и полидоменных кристаллах.

Ключевые слова: квазисинхронизм, регулярная доменная структура, параметрическое рассеяние, квадратичная восприимчивость, пространственная фурье-гармоника.

1. Введение

В последнее время существенно возрос интерес к нелинейно-оптическим процессам в средах с периодической пространственной модуляцией оптических параметров. Нелинейные среды с периодической модуляцией квадратичной восприимчивости, в том числе кристаллы с регулярной доменной структурой (РДС), широко используются для высокоэффективного преобразования частоты оптического излучения (удвоения, суммирования, вычитания, генерации частот более высокого порядка [1–8]) в различных схемах каскадных взаимодействий [9–11], параметрического распада [12–14] и т. д. Благодаря неоднородному распределению восприимчивости в таких структурах появляются новые условия эффективного преобразования частот, связанные с так называемым квазисинхронизмом. При квазисинхронизме ненулевая расстройка фаз волн, участвующих в преобразовании (как правило, связанная с недостаточным двулучепреломлением однородной среды), компенсируется за счет векторов обратной сверхрешетки, характеризующей неоднородное распределение восприимчивости. Среда с периодической пространственной модуляцией линейной восприимчивости могут образовывать структуры с фотонной запрещенной зоной (фотонные кристаллы) [15]. Помимо ряда других разнообразных приложений [15–17] эти среды также могут быть весьма перспективными для преобразования частот [18–22]. Условия высокоэффективного преобразования достигаются в средах такого типа за

счет как режима квазисинхронизма, так и увеличения плотности состояний поля при приближении частот взаимодействующих волн к границам запрещенных зон.

Исследование нелинейных оптических процессов в пространственно нерегулярных средах представляет самостоятельный интерес. Определенные типы квазирегулярных структур используются для эффективного преобразования излучения с широким спектром [23]. На основе параметрических процессов в нерегулярных средах могут быть развиты методы диагностики слоистых твердотельных структур, доменных систем, неоднородных кристаллов с двойниками, неоднородностями ростового происхождения и т. д. [24, 25]. Отдельный круг задач возникает при исследовании квадратичного по полю отклика структур, состоящих из чередующихся centrosимметричных материалов, макроскопическая квадратичная восприимчивость каждого из которых равна нулю.

Идея использования квазисинхронизма при параметрических взаимодействиях в регулярных структурах впервые была высказана еще Бломбергером в самом начале эры нелинейной оптики [26]. В первых экспериментах квазисинхронные структуры получались путем простого составления последовательности тонких кристаллических пластин с различной ориентацией кристаллографических осей, аналогично фильтру Шольца в линейной оптике.

Альтернативой элементам-преобразователям, состоящим из макроскопических слоев различных материалов, являются полидоменные кристаллы. Идея их использования выдвигалась уже на первых этапах разработки квазисинхронного преобразования частот [27, 28]. Первое сообщение об эксперименте по квазисинхронному удвоению частоты в полидоменном сегнетоэлектрическом кристалле было, по всей видимости, опубликовано в 1964 г. [29]. Однако использование полидоменных

Г.Х.Китаева, А.Н.Пенин. Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова, физический факультет, Россия, 119992 Москва, Воробьевы горы; e-mail: kit@qopt.phys.msu.ru

Поступила в редакцию 20 января 2004 г., после доработки – 27 апреля 2004 г.

кристаллов для достижения максимальной эффективности преобразования требовало создания в них слоистых доменных структур с одинаковой ориентацией доменных стенок и высокой степенью регулярности чередования доменов заданных размеров.

Различные методы получения таких структур были предложены в 80-е годы и продолжали активно развиваться в 90-х годах [1, 30]. В настоящее время безусловным лидером среди поликристаллических сред, способных осуществлять высокоэффективное параметрическое преобразование оптических волн в условиях квазисинхронизма, стал кристалл ниобата лития (LiNbO_3), как правило, легированный антифоторефрактивными примесями (Mg, Sc, Y и др.) для повышения лучевой стойкости [31, 32]. РДС в этих кристаллах может быть получена путем переполаризации монодоменных образцов [33–36] либо непосредственно в процессе роста [37–40]. Поперечные и продольные размеры образцов, получаемых ростовыми методами, могут достигать размеров обычных преобразователей частоты на основе монокристаллов.

В кристаллах с РДС при переходе от домена к домену происходит разворот на 180° полярной оси. При соответствующем выборе типа трехволнового взаимодействия это может приводить к изменению знака нелинейной поляризации среды на частоте сигнального излучения. В этом случае имеет место максимальная модуляция действующего значения квадратичной восприимчивости среды. Вместе с тем модуляция линейной восприимчивости и показателя преломления практически несущественна, поскольку глубина модуляции, как правило, меньше 0.01 % [41]. Таким образом, в кристалле формируется чисто нелинейная сверхрешетка, а распространение волн в ней при трехчастотном параметрическом взаимодействии может быть названо нелинейной дифракцией света [28, 42]. В условиях квазисинхронизма обычно используются максимальные по величине элементы тензора квадратичной восприимчивости кристалла, которые не могут быть задействованы при синхронном преобразовании в монодоменном образце. Становятся возможными высокоэффективная перекачка энергии сигнального излучения в нужный дифракционный порядок, одновременная реализация сразу нескольких трехчастотных процессов и получение оптических гармоник разных порядков в одном оптическом элементе [7, 8, 43, 44].

Для обеспечения эффективного преобразования частоты необходимо использовать объемные слоистые структуры, обладающие определенными свойствами, а именно плоскостностью слоев и строго выдержанной регулярностью их расположения, т. е. высокой точностью воспроизводства постоянной сверхрешетки. В ряде случаев (особенно при использовании сразу нескольких порядков нелинейной дифракции) предъявляются требования непосредственно к профилю распределения квадратичной восприимчивости в пределах одного периода нелинейной сверхрешетки. При использовании квазирегулярных структур (например, нелинейных решеток Фибоначчи [23]) необходимо соблюдение определенного закона изменения квадратичной восприимчивости вдоль заданного направления.

Все более актуальными становятся задачи разработки методов контроля качества нелинейных оптических сверхрешеток (как интегрального, так и дифференциального) с определением всех деталей изменения квадратич-

ной восприимчивости в пределах действующего объема нелинейного элемента. Применение для этого традиционных методов, базирующихся на химическом травлении поверхности (с последующим построением изображения в атомно-силовом микроскопе, исследованием поверхности с помощью профилометра и т. д. [45]), на рентгеновском анализе объемной структуры кристаллов [38], на исследовании электрооптического отклика, явно недостаточно, требуются оптические методы контроля всего действующего объема нелинейного элемента. Поскольку речь идет об исследовании нелинейной сверхрешетки, необходим метод, основанный на параметрических взаимодействиях. Эти задачи частично могут быть решены с использованием методов, в основе которых лежит сравнение интенсивностей излучения второй гармоники от разных участков кристалла. Выделение сигналов от отдельных участков проводится либо с помощью избирательного облучения этих участков кристалла [46], либо при построении изображения светящихся слоев в поле второй гармоники [24, 25]. Второй метод, получивший название микроскопа второй гармоники, может применяться для анализа доменных структур только в условиях интерференции сигналов от РДС и однородных образцов [24]. Одним из наиболее простых и действенных методов диагностики изменения оптической квадратичной восприимчивости в пределах всего объема кристалла, по-видимому, может стать метод, основанный на спонтанном параметрическом рассеянии (СПР) света.

СПР представляет собой спонтанный распад фотонов монохроматического излучения (накачки) на пары фотонов меньшей частоты, состоящие из «сигнальных», т. е. регистрируемых на выходе из среды, и сопряженных им «холостых» фотонов. В принципе, холостые и сигнальные фотоны при СПР равноправны и регистрироваться могут как те, так и другие. Распад происходит в среде без центра симметрии, обладающей квадратичной восприимчивостью [47]. В результате на выходе из среды появляется излучение с широким спектром. Единственное требование, которое в стационарных условиях накладывается на частоты рождающихся фотонов – это равенство их суммы частоте накачки. В настоящее время СПР широко применяется для получения бифотонных состояний в современной квантовой оптике [48–50], для измерения оптических и динамических параметров фононных поляритонов в спектроскопии [51–54], представляется также перспективным его использование для абсолютной калибровки яркости источников излучения и квантовой эффективности фотоприемников в квантовой фотометрии [55–59].

Цель настоящей работы – изучение СПР в кристаллах с пространственно-неоднородным распределением квадратичной восприимчивости, исследование особенностей двумерных частотно-угловых спектров СПР, связанных со структурой пространственной неоднородности и строением сверхрешетки, и, в итоге, анализ диагностических возможностей метода СПР для решения обратной задачи – определения пространственного распределения квадратичной восприимчивости в кристаллах с нелинейными сверхрешетками. При этом рассматриваются неоднородности в полидоменных кристаллах слоистого типа (одномерные нелинейные сверхрешетки), не только регулярные, но и с переменным периодом, различным числом слоев и возможным поглощением на частоте холостого излучения. Кроме того, рассмотрены особенности СПР в

структурах, образованных набором достаточно тонких, но макроскопического размера (1–100 мкм) слоев с нелинейными оптическими свойствами, разделенных слоями оптически линейного вещества.

2. Форма линии СПР в средах с нелинейными сверхрешетками

Теоретический анализ формы линии СПР в прозрачной среде с произвольным пространственным распределением квадратичной восприимчивости может быть проведен непосредственно в рамках квантовой теории возмущения. Этот метод уже применялся для частного случая нелинейной интерференции в слоях с чередующимися значениями квадратичной восприимчивости [60–64]. При необходимости учета поглощения холостых волн могут быть привлечены нелинейная флуктуационно-диссипационная теорема [47], как это было сделано в [64] для учета поглощения в нелинейных интерферометрах, или метод обобщенного закона Кирхгофа (ОЗК), разработанный Д.Н.Клышко [47, 65] для единого описания спонтанных и вынужденных трехволновых параметрических процессов в диссипативных средах. Метод ОЗК позволяет определять вторые корреляционные моменты полей на выходе нелинейной среды по вторым корреляционным моментам, заданным на входе. При этом постулируется линейная связь между гейзенберговскими операторами входных и выходных полей, формулируемая в терминах матрицы рассеяния.

В [66] приведены общие соотношения, полученные методом ОЗК и связывающие форму линии СПР с фурье-гармониками произвольного пространственного распределения квадратичной восприимчивости в нелинейной среде с поглощением. При наличии поглощения холостых волн выражение для дифференциальной мощности сигнального излучения СПР, приходящейся на единичные угловой и спектральный интервалы, имеет вид

$$\begin{aligned}
 P_{\omega_1, \Omega_1} = & C_0 \sum_{m=-\infty}^{\infty} |\chi_m|^2 g(\Delta_m, y_2) \\
 & + C_0 \sum_{m=-\infty}^{\infty} \sum_{\substack{m'=-\infty \\ m' \neq m}}^{\infty} (-1)^{n(m'-m)} \chi_m^* \chi_{m'} \\
 & \times \left[\frac{\exp(-i\Delta - y_2) - 1}{(y_2 + i\Delta - i2\pi mn)(y_2 + i\Delta - i2\pi m'n)} \right. \\
 & \left. + \frac{\exp(i\Delta - y_2) - 1}{(y_2 - i\Delta - i2\pi mn)(y_2 - i\Delta - i2\pi m'n)} \right], \quad (1)
 \end{aligned}$$

где $g(\Delta_m, y_2)$ – форм-фактор; χ_m – амплитуды пространственных гармоник фурье-спектра пространственного распределения квадратичной восприимчивости среды $\chi^{(2)}(z)$:

$$\begin{aligned}
 \chi^{(2)}(z) = & \sum_{m=-\infty}^{\infty} \chi_m \exp(imqz), \\
 \chi_m = & \frac{1}{d} \int_{-d/2}^{d/2} \chi^{(2)}(z) \exp(imqz) dz; \quad (2)
 \end{aligned}$$

d – период одномерной нелинейной сверхрешетки в случае регулярного распределения $\chi^{(2)}(z)$ или полная длина среды l вдоль направления z в случае нерегулярного

распределения; $n = l/d$ – число периодов d , укладываемых на полную длину l (образец длиной l с нерегулярной зависимостью $\chi^{(2)}(z)$ можно рассматривать как часть бесконечно протяженной регулярной решетки с периодом $d = l$, поэтому функцию $\chi^{(2)}(z)$ на ограниченном интервале от $-l/2$ до $+l/2$ можно разложить в ряд Фурье); $q \equiv 2\pi/d$ – модуль вектора обратной сверхрешетки, направленного вдоль оси z ; $k_i = \omega_i n_i / c$ – модули волновых векторов сигнальной ($i = 1$) и холостой ($i = 2$) волн, а также волны накачки ($i = 0$); ω_i – частоты; n_i – показатели преломления среды на частотах ω_i ; $\Delta \equiv l(k_{1z} + k_{2z} - k_{0z})$ – проекция на ось z безразмерной расстройки фазового синхронизма; $\Delta_m \equiv \Delta - 2\pi mn$ – расстройка так называемого фазового квазисинхронизма; $C_0 \equiv [\hbar \omega_1^4 \omega_2 / (c^5 n_0 n_1 \times n_2)] P_0 l^2 / \cos \vartheta_2$ – общий множитель, пропорциональный мощности накачки P_0 ; $y_2 \equiv \alpha_2 l / (2 \cos \vartheta_2)$; α_2 – коэффициент поглощения среды на частоте холостой волны; ϑ_1 и ϑ_2 – углы между нормалью к границам слоев и волновыми векторами сигнальной и холостой волн внутри кристалла, которые связаны с соответствующими углами θ_1 и θ_2 снаружи кристалла соотношениями Снеллиуса $\sin \theta_i = n_i \sin \vartheta_i$.

Соотношение (1) описывает форму линии сигнала – зависимость дифференциальной мощности от расстройки фазового синхронизма. Согласно (1) форма линии сигнала СПР определяется двумя слагаемыми. Первое представляет собой аддитивную сумму вкладов отдельных гармоник. Каждое слагаемое, входящее в эту сумму, характеризуется таким же распределением интенсивности сигнала относительно максимума квазисинхронизма ($\Delta_m = 0$), как и при рассеянии в однородной среде относительно максимума синхронизма ($\Delta = 0$). Однако положения новых линий максимумов (перестроечных кривых для каждого слагаемого) сдвинуты в координатной плоскости частота – волновой вектор в соответствии с условиями квазисинхронизма $\Delta(\omega_1, \vartheta_1) = mql$. Каждое слагаемое первой суммы пропорционально квадрату модуля амплитуды соответствующей гармоники. Второе слагаемое в (1) содержит произведение несовпадающих гармоник χ_m и является результатом их интерференции.

Выражение для форм-фактора $g(\Delta, y_2)$,

$$\begin{aligned}
 g(\Delta, y_2) \equiv & \frac{2}{(\Delta^2 + y_2^2)^2} [(\Delta^2 - y_2^2)(1 - e^{-y_2} \cos \Delta) \\
 & - 2y_2 \Delta e^{-y_2} \sin \Delta + y_2(\Delta^2 + y_2^2)], \quad (3)
 \end{aligned}$$

описывающее форму линии СПР в слое, впервые получено в [67]. Позднее в работе [68] было рассмотрено влияние эффектов отражения волн от границ слоя, приводящих к дополнительной модуляции интенсивности рассеяния из-за линейной и нелинейной интерференции отраженных волн. При выводе (1) в [66] не учитывались эффекты отражения как на входных гранях пространственно-неоднородной нелинейной среды, так и в ее толще, поскольку модуляция линейных оптических параметров считалась пренебрежимо малой. Такое приближение оправдано для «естественно-неоднородных» структур, содержащих домены, двойники, ростовые неоднородности, из-за которых кристаллы не могут представлять цельные образования при больших градиентах линейных параметров. Выражения для $g(\Delta_m, y_2)$, входящих в первую сумму в (1), описываются тем же соотношением (3), но с заменой $\Delta \rightarrow \Delta_m$.

В случае, когда поглощением среды можно пренебречь, соотношение (1) для формы линии сигнала СПР приобретает достаточно простой вид:

$$P_{\omega_1 \Omega_1} = C_0 \left| \sum_{m=-\infty}^{\infty} \chi_m \text{sinc}(\Delta_m/2) \right|^2. \quad (4)$$

Аналогичное выражение описывает частотно-угловое распределение квадрата модуля огибающей двухфотонного волнового пакета («амплитуды» бифотона) и изменение корреляции показаний детекторов холостого и сигнального излучения в зависимости от волновой расстройки. Характерно, что такое же выражение, но с учетом добавочного множителя, связанного с распределением яркости внешнего сигнала холостой частоты, справедливо и для формы линии любого трехчастотного параметрического процесса в прозрачной нелинейной сверхрешетке [66] (удвоения частоты, генерации сигнала суммарной или разностной частоты), если реализованы условия слабого усиления сигнала и линейного режима преобразования. Расстройка фазового квазисинхронизма Δ_m и в этом случае отличается от Δ на величину $2\pi m l$: $\Delta_m \equiv \Delta - 2\pi m l$. Характер процесса необходимо учитывать только при определении Δ , специфическом для каждого типа взаимодействия [69, 70].

Если перераспределение энергии между входными и выходными волнами имеет более интенсивный характер, то режим заданной накачки и линейного усиления не выполняется и задача расчета характеристик сигнала существенно усложняется. При этом не удается получить простых аналитических выражений типа (4), описывающих любые возможные профили модуляции нелинейной восприимчивости, а в ряде важных с точки зрения инженерной нелинейной оптики случаев возможен только численный расчет соответствующих высокоэффективных преобразователей излучения [5, 44].

Дополнительный учет модуляции линейной восприимчивости пространственно-неоднородной нелинейной среды необходим при рассмотрении параметрических процессов в «искусственных» нелинейных сверхрешетках, полученных путем соединения разнородных материалов. Простейшим вариантом такой одномерной сверхрешетки является последовательность плоскопараллельных пластин, каждая из которых представляет собой макроскопически однородный элемент с известными линейной и нелинейной восприимчивостями. В структурах с периодической модуляцией линейной восприимчивости возможны фотонные запрещенные зоны. Обычно при описании нелинейных эффектов в фотонных кристаллах пренебрегают пространственной модуляцией нелинейной восприимчивости [19, 71, 72]. Однако в ряде работ [18, 20, 73] достаточно малая модуляция квадратичной восприимчивости с прямоугольным профилем также принята во внимание.

В общем случае задача учета произвольной по форме модуляции как линейной, так и квадратичной восприимчивости до сих пор, по-видимому, не решена. Воспользовавшись подходом, описанным в [60] при рассмотрении СПР в условиях нелинейной интерференции, можно получить следующее соотношение, дающее общий ключ к определению формы линии сигнала на выходе произвольной последовательности однородных пластин:

$$P_{\omega_1 \Omega_1} = \frac{C_0}{l^2} \left| \sum_{j=1}^N \chi_j^{(2)} l_j \text{sinc}(\Delta^{(j)}/2) \exp\left(-i\Delta^{(j)}/2 + \right.$$

$$\left. + i \sum_{j'=1}^j \Delta^{(j')}\right)^2. \quad (5)$$

Здесь j – порядковый номер пластины; l_j – толщина; $\chi_j^{(2)}$ – эффективная квадратичная восприимчивость; $k_i^{(j)} = \omega_i \times n_i^{(j)}/c$ – модули волновых векторов сигнальной ($i = 1$) и холостой ($i = 2$) волн, а также волны накачки ($i = 0$) в j -й пластине; $n_i^{(j)}$ – показатель преломления пластины; $\Delta^{(j)} \equiv l_j(k_{1z}^{(j)} + k_{2z}^{(j)} - k_{0z}^{(j)})$ – безразмерная расстройка фазового синхронизма в каждой пластине (проекция на направление, перпендикулярное пластинам); $l = \sum_{j=1}^N l_j$ – общая толщина такой стопы. Соотношение (5) справедливо в режиме слабого усиления для полностью прозрачных сред, причем в тех случаях, когда отражением волн от границ пластин можно пренебречь. Если не учитывать различий в показателях преломления пластин, из (5) непосредственно следует соотношение (4).

Исследование частотно-углового распределения интенсивности сигнальной волны в режиме слабого усиления может быть положено в основу измерения пространственного распределения квадратичной восприимчивости в нелинейной среде. В принципе, для этого подходят любые трехволновые параметрические процессы, а также каскадные четырехволновые [9] вынужденные процессы преобразования частоты вверх и вниз. Однако при использовании вынужденных процессов всегда будет существовать проблема учета неравномерного заполнения входным излучением мод преобразователя (исследуемой среды). При использовании СПР этой проблемы нет. Равномерное заполнение входных мод холостого канала определяется вакуумными флуктуациями поля и гарантировано при соблюдении линейного по интенсивности накачки режима рассеяния. При этом метод СПР позволяет исследовать распределение $\chi^{(2)}(z)$ в толще исследуемого объекта.

3. Примеры экспериментальных спектров СПР

Рассмотрим некоторые характерные случаи периодического пространственного изменения $\chi^{(2)}$ в полидоменных кристаллах с доменами плоского вида. Как правило, в каждом плоском домене можно выделить три области: срединную, в которой величина и знак $\chi^{(2)}$ практически не меняются, и две пограничные (доменные стенки), которые непосредственно примыкают к соседним доменам (рис.1). В области доменных стенок эффективная величина $\chi^{(2)}$, определяющая интенсивность трехволнового процесса, претерпевает резкие изменения и может происходить смена ее знака. В последнем случае в пограничной области следует ожидать уменьшения абсолютной величины $\chi^{(2)}$ до нуля. Толщины переходных слоев определяются шириной области пространственного заряда около доменной стенки, а также профилем распределения примесей, дефектов и других дополнительных образований в кристалле. Размеры срединной области могут быть малы по сравнению с размерами переходных слоев в том случае, когда полные толщины доменов относительно невелики.

Остановимся подробнее на двух конкретных примерах распределения $\chi^{(2)}$ в полидоменных структурах, изучавшихся в экспериментах по параметрическому рассеянию света в легированных кристаллах ниобата лития (НЛ) $\text{LiNbO}_3:\text{Nd}:\text{Mg}$ и ниобата бария-натрия (НБН)

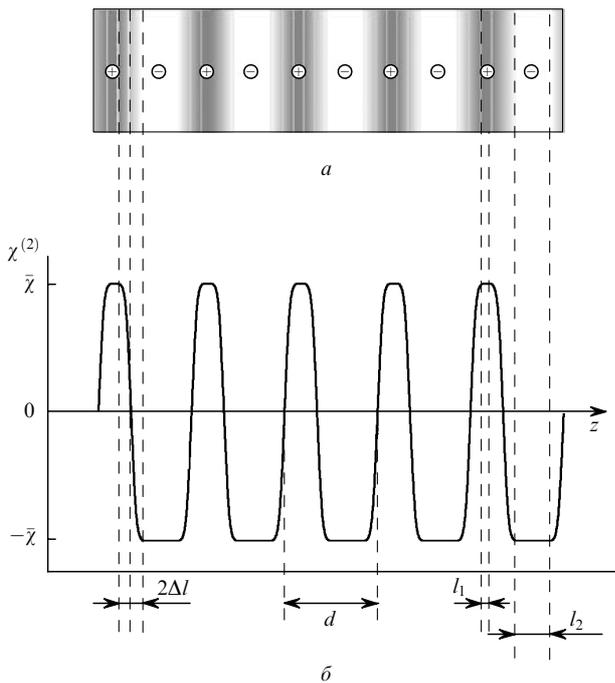


Рис. 1. Схематическое изображение полидоменного сегнетоэлектрика (а) (знаками «+» и «-» обозначены домены разного знака) и зависимость квадратичной восприимчивости $\chi^{(2)}$ от перемещения от домена к домену (б).

$\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$ с периодами доменной системы порядка 5–20 мкм. Структуру с пространственной модуляцией $\chi^{(2)}$ – объемную нелинейную дифракционную решетку – кристаллы приобретали в процессе специальной процедуры выращивания, основанной на методе Чохральского [38–40, 74–76]. Ориентация нормали к доменным слоям при такой процедуре совпадает с направлением роста. РДС образуется в тех областях легированных кристаллов НЛ со слоистой ростовой неоднородностью, где в процессе роста влияние локального градиента концентрации примеси было сильнее, чем влияние градиента температуры [38]. По мере роста кристалла примесь по-разному входит в различные участки кристалла, в итоге формируется градиент ее концентрации, периодически меняющий знак вдоль направления роста. При охлаждении выращенных кристаллов ниже температуры перехода в сегнетоэлектрическую фазу ($T_c \approx 830 - 850^\circ\text{C}$ для НБН и $1150 - 1180^\circ\text{C}$ для НЛ) в них образуется система плоских доменов, повторяющих конфигурацию регулярно чередующихся слоев роста.

Условия наблюдения СПР в кристаллах НЛ и НБН существенно отличались друг от друга. Образцы НЛ были выращены вдоль нормали к грани $\{01\bar{1}2\}$ [39, 76]. Угол между нормалью к поверхности доменов и кристаллографической осью второго порядка C составлял 57° . Этот («гранный») тип ориентации обеспечивает высокое оптическое качество доменных стенок: малую толщину и практически полное отсутствие кривизны. В процессе СПР волновой вектор необыкновенно поляризованной накачки k_0 был направлен перпендикулярно доменным слоям (под углом 57° к оси C). Параметрическое рассеяние наблюдалось в кристаллографической плоскости YZ . Плоскости слоев роста в образцах НБН были ориентированы почти перпендикулярно кристаллографической оси C [74, 75]. При СПР волновой вектор накачки k_0 был

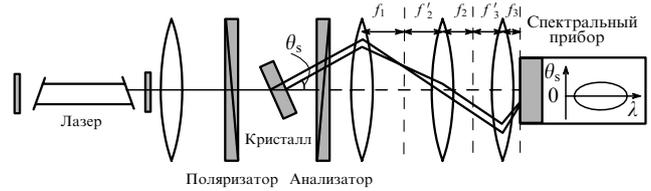


Рис. 2. Оптическая схема СПР-спектрографа.

ориентирован практически параллельно доменным слоям и перпендикулярно оси C .

Параметрическое рассеяние света исследовалось с помощью стандартного двухкоординатного СПР-спектрографа [54, 77], оптическая схема которого приведена на рис. 2. В качестве источников накачки применялись газовые лазеры непрерывного действия на основе $\text{He}-\text{Cd}$ (длина волны генерации $\lambda = 441.6$ нм, мощность $P \approx 40$ мВт) или Ar ($\lambda = 488.0$ нм, $P \approx 500$ мВт). Для создания плоского фронта волны накачки в кристалле использовалась длиннофокусная линза, компенсирующая угловую расходимость лазерного излучения в области перетяжки гауссова пучка. Необходимая поляризация выделялась призмой Глана – Томпсона. Такая же призма размещалась за кристаллом для выделения интересующей нас компоненты сигнального излучения. Сигнальное излучение с помощью трехлинзовой оптической системы, работающей в режиме фурье-оптики, фокусировалось на входную щель спектрографа ИСП-51. Подбором фокусных расстояний (f_{1-3}, f'_{1-3}) и относительных отверстий линз (или линзовых объективов) достигалось полное заполнение угла зрения спектрографа сигнальным излучением, рассеянным в диапазоне углов $\theta_1 = -12^\circ \dots 12^\circ$.

На выходе спектрографа смещение луча по направлению дисперсии спектрографа определялось частотой сигнального излучения и, тем самым, соответствующей частотой холостого излучения. Смещение луча вдоль входной щели было пропорционально углу, под которым распространялось сигнальное излучение. Плоскость, в которой располагался треугольник волновых векторов накачки, холостой и сигнальной волн, задавалась входной щелью спектрографа. Частотно-угловое распределение интенсивности регистрировалось на фотопленку. Фотографическая регистрация позволяла получать обзорные спектры СПР в широких частотном и угловом диапазонах.

3.1. Спектры СПР в кристаллах НБН

На рис. 3 показана часть спектра рассеяния на верхней поляритонной ветви в кристалле НБН [78, 79]. В отличие от спектра однородного кристалла, характеризующегося одной замкнутой перестроечной кривой, напоминающей по форме эллипс, на приведенном спектре видны участки четырех эллипсов, смещенных относительно друг друга. При этом интенсивность центрального эллипса, занима-

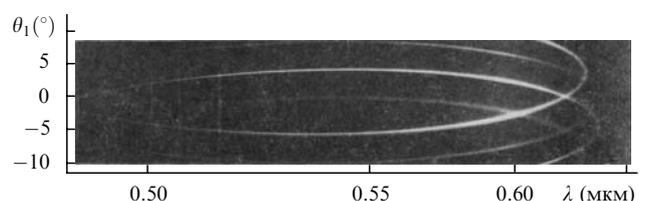


Рис. 3. Участок частотно-углового спектра параметрического рассеяния на верхней поляритонной ветви в кристалле НБН с РДС.

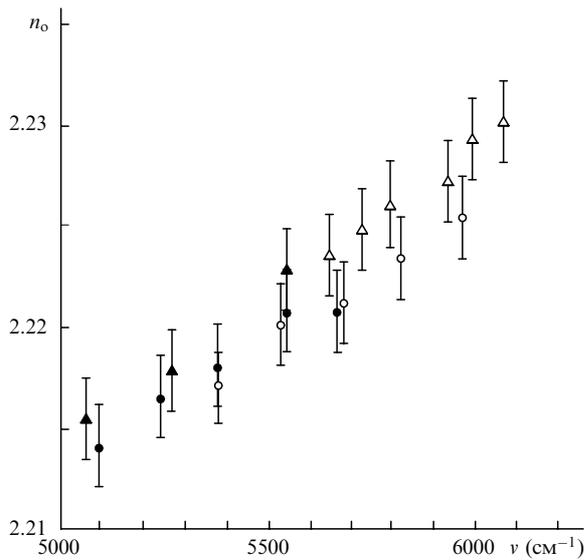


Рис.4. Дисперсия обыкновенного показателя преломления n_0 кристаллов НБН с различными параметрами РДС (кружки – толщина доменов 6.05 ± 0.05 мкм, угол между слоями и осью C $89.3^\circ \pm 0.2^\circ$, треугольники – толщина 9.1 ± 0.05 мкм, угол $87.7^\circ \pm 0.2^\circ$) в ИК диапазоне частот, рассчитанная по перестроечным кривым СПР в нулевом (темные точки) и первых (светлые точки) порядках нелинейной дифракции.

ющего то же симметричное относительно частотной оси положение в спектре, что и в случае однородного кристалла, гораздо меньше интенсивности двух соседних эллипсов, смещенных вверх и вниз относительно основного. Показанный спектр получен в условиях, когда линейная дифракция накачки отсутствует, а условие Брэгга для линейной дифракции сигнальной волны выполняется в ограниченном участке спектра и объясняет появление участка четвертого эллипса.

Появление трех замкнутых кривых в спектре слоистого кристалла хорошо описывается теорией нелинейной дифракции в простейшем случае, когда вклады интерференционных членов несущественны. Расчеты показателя преломления кристалла n_2 на частоте холостой волны, периода доменной структуры d и наклона вектора доменной сверхрешетки по отношению к нормали к передней грани образца на угол θ выполнялись в предположении, что наблюдаемые кривые суть перестроечные кривые нелинейной дифракции нулевого и ± 1 -го порядков. Определение величин θ и d , сделанное при разных значениях частоты сигнальной волны, дало совпадающие результаты: $\theta = 89.3^\circ \pm 0.2^\circ$, $d/2 = 6.05 \pm 0.05$ мкм.

На рис.4 приведены результаты определения дисперсии показателя преломления кристаллов НБН по каждой из смещенных перестроечных кривых для двух образцов с различной доменной структурой. Результаты хорошо совпадают в пределах ошибки измерения n_2 в третьем знаке. Это служит доказательством того, что наблюдаемые кривые действительно появляются вследствие нелинейной дифракции в соответствующие порядки.

Частотно-угловая форма линии рассеяния, число и взаимное расположение смещенных перестроечных кривых, образующих спектр СПР кристалла с РДС, позволяют определить спектр обратных векторов сверхрешетки. Интенсивность сигнала, рассеянного в нулевой порядок (рис.3), имеет гораздо меньшую величину, чем при рас-

сеянии в первые порядки. При этом рассеяние в остальные дифракционные порядки практически не наблюдается. Данный факт свидетельствует о том, что распределение $\chi^{(2)}(z)$ близко к гармоническому виду – $\chi^{(2)}(z) \approx \chi_0 + \chi_1 \cos(qz)$, причем $\chi_0 < \chi_1$. По отношению χ_0/χ_1 можно судить об униполярности исследованного участка образца, т.е. о том, насколько различаются суммарные толщины (или объемы) положительных и отрицательных доменов. Чем меньше χ_0/χ_1 , тем ближе друг к другу суммарные толщины. Отсутствие высших гармоник в спектре $\chi^{(2)}(z)$ свидетельствует о сравнимости толщин доменов и приграничных областей (доменных стенок), в которых происходит основное изменение квадратичной восприимчивости.

3.2. Спектры СПР в легированных кристаллах НЛ

На рис.5 приведены частотно-угловые спектры СПР в моно- и полидоменном образцах НЛ [9, 80]. Сравнительный анализ спектров показывает, что в спектре полидоменного кристалла появляются дополнительные перестроечные кривые, особенно хорошо заметные в области рассеяния на верхней поляритонной ветви (в области холостых частот $\nu_2 \geq 900$ см⁻¹). Дисперсионные кривые обыкновенного показателя преломления в области верхней поляритонной ветви в моно- и полидоменном образцах, определенные по перестроечным кривым, приведены на рис.6. На основании экспериментальных данных найден период доменной структуры $d = 5.6 \pm 0.2$ мкм. При этом было установлено, что дополнительная перестроечная кривая в спектре СПР полидоменного образца в области верхней поляритонной ветви отвечает пространственной гармонике χ_m с индексом $m = -1$.

Численные расчеты участка спектра, соответствующего рассеянию на нижней поляритонной ветви в окрестности фундаментального колебания Е-типа с частотой ~ 580 см⁻¹, показали, что ярко выраженная перестроечная кривая соответствует двум слившимся кривым, связанным с пространственными гармониками χ_m с индексами $m = \pm 1$. Малоинтенсивные участки перестроечной кривой, отвечающей значению $m = 0$, наблюдаются лишь

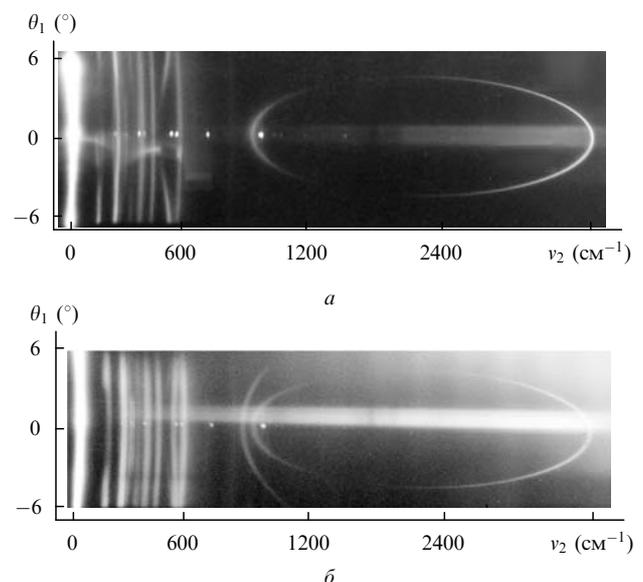


Рис.5. Частотно-угловые спектры параметрического рассеяния света в монодоменном (а) и полидоменном (б) кристаллах НЛ. Входные и выходные грани образцов вырезаны параллельно слоям роста.

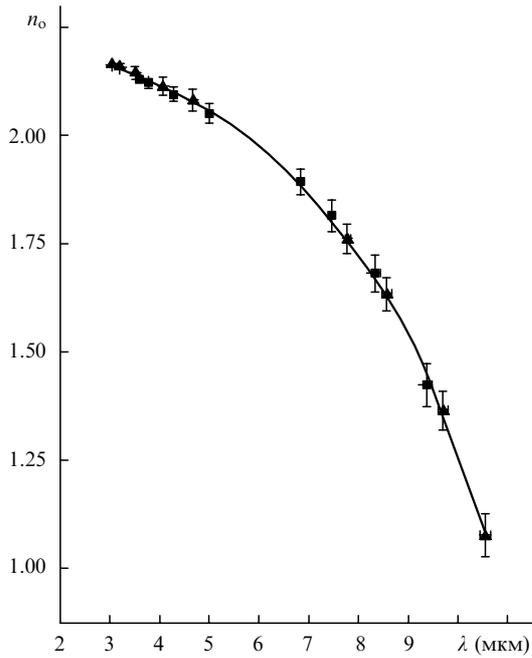


Рис.6. Дисперсия обыкновенного показателя преломления n_o кристаллов $\text{LiNbO}_3 : \text{Nd} : \text{Mg}$ в области верхней поляритонной ветви для полидоменного кристалла с молярной концентрацией неодима $0.33 \pm 0.05\%$ и магния $2.05 \pm 0.05\%$ (\blacktriangle), а также монодоменного кристалла с молярной концентрацией неодима $0.34 \pm 0.05\%$ и магния $2.56 \pm 0.05\%$ (\blacksquare).

в области больших углов рассеяния вблизи частоты фонона.

Похожие соотношения мощностей рассеяния в различные порядки нелинейной дифракции приведены в [41] для кристалла $\text{LiNbO}_3 : \text{Y} : \text{Mg}$ с аналогичной доменной структурой. Дополнительные перестроечные кривые, соответствующие более высоким порядкам нелинейной дифракции, не наблюдались. По всей видимости, причиной этого являются незначительные амплитуды соответствующих пространственных гармоник χ_m .

Отметим качественное различие спектров параметрического рассеяния в условиях нелинейной дифракции при ориентации доменных слоев почти вдоль волнового вектора накачки \mathbf{k}_0 (рис.3) и почти перпендикулярно ему (рис.5.б). В первом случае, когда $\mathbf{q} \perp \mathbf{k}_0$, наличие гармоник в спектре $\chi^{(2)}(z)$ приводит к появлению новых перестроечных кривых, близких по форме к перестроечным кривым в пространственно-однородном кристалле, но сдвинутых по углу. Во втором случае, когда $\mathbf{q} \parallel \mathbf{k}_0$, форма новых перестроечных кривых иная и заметного углового сдвига может не быть. Перестроечные кривые различных порядков чаще сдвинуты по частоте, что открывает возможность измерения параметров поляритонов в тех областях спектра, которые были недоступны для кристалла без нелинейной сверхрешетки. Причина в том, что условия квазисинхронизма $\Delta_m = 0$ могут выполняться там, где не выполнялось условие синхронизма $\Delta = 0$. Иллюстрацией этому служит участок спектра вблизи максимальной частоты (более 880 см^{-1}) продольного фонона в кристалле НЛ. Измерения показателя преломления по перестроечной кривой -1 -го порядка нелинейной дифракции позволили определить дисперсию поляритона в непосредственной близости к фононной области частот (см. рис.6).

Приведенные данные по наблюдению спектров СПР в слоистых кристаллах НБН и НЛ показали, что в кристаллах с периодом нелинейной сверхрешетки порядка 5–20 мкм спектр $\chi^{(2)}$ содержит только низшие гармоники. Отсюда следует, что срединные области однородного распределения $\chi^{(2)}$ в доменах такой толщины практически отсутствуют, а пространственное изменение квадратичной восприимчивости в переходных областях, занимающих всю толщу доменов, хорошо описывается синусоидальным распределением.

4. Моделирование спектров нелинейной дифракции в полидоменных кристаллах

Результаты исследования характера изменения квадратичной восприимчивости в 180-градусных доменных структурах позволяют существенно ограничить рассмотрение возможных видов зависимости $\chi^{(2)}(z)$. В большинстве случаев, включая варианты произвольного соотношения толщин переходных и срединных слоев, характер изменения $\chi^{(2)}(z)$ в пределах каждого периода доменной структуры $[-d/2, d/2]$ можно представить следующим образом:

$$\chi^{(2)}(z) = \begin{cases} \bar{\chi} \sin \frac{\pi(z+d/2)}{2\Delta l}, & -\frac{d}{2} < z < -\frac{d}{2} + \Delta l, \\ \bar{\chi}, & -\frac{d}{2} + \Delta l < z < -\frac{d}{2} + \Delta l + l_1, \\ \bar{\chi} \sin \frac{\pi(z+d/2-l_1)}{2\Delta l}, & -\frac{d}{2} + \Delta l + l_1 < z < -\frac{d}{2} + 3\Delta l + l_1, \\ -\bar{\chi}, & -\frac{d}{2} + 3\Delta l + l_1 < z < \frac{d}{2} - \Delta l, \\ \bar{\chi} \sin \frac{\pi(z-d/2)}{2\Delta l}, & \frac{d}{2} - \Delta l < z < \frac{d}{2}, \end{cases} \quad (6)$$

где $\bar{\chi}$, $-\bar{\chi}$ и l_1 , l_2 – квадратичные восприимчивости и толщины срединных слоев доменов разного знака соответственно; Δl – толщина приграничной области; $d \equiv l_1 + l_2 + 4\Delta l$ (рис.1). Очевидно, что данное соотношение не описывает те случаи, когда абсолютные величины $\chi^{(2)}$ различны в доменах разного знака. Для учета такого различия в большинстве случаев достаточно прибавить к правым частям (6) постоянную величину.

Спектр пространственных фурье-гармоник для периодической зависимости (6) имеет вид

$$\chi_m = \frac{\bar{\chi}(-1)^{mm}}{\pi m} \{ (-1)^m \sin(m\pi\rho) + i [(-1)^m \cos(m\pi\rho) - 1] \} \times \frac{\cos(m\pi\delta)}{1 - (2m\delta)^2}. \quad (7)$$

Параметр $\rho \equiv (l_1 - l_2)/d$ характеризует разницу толщин однородных участков доменов, а $\delta \equiv 2\Delta l/d$ – толщину неоднородных переходных слоев, локализованных у доменных стенок. Разложение (7) возможно при условии, когда $d/(4\Delta l) \equiv 1/(2\delta)$ не является целым числом. Подстановка амплитуд пространственных гармоник (7) в выражение для интенсивности сигнального излучения в прозрачном кристалле (4) приводит к следующей зависи-

мости дифференциальной мощности рассеяния от волновой расстройки в образце, содержащем n доменных периодов:

$$P_{\omega_1, \Omega_1} = 4C_0 \bar{\chi}^2 \sin^2(\Delta/2) \left\{ \left[\sum_{m=-\infty}^{\infty} \frac{(-1)^m \sin(\pi m \rho)}{\pi m (\Delta - 2\pi m n)} D_m(\delta) \right]^2 + \left[\sum_{m=-\infty}^{\infty} \frac{1 - (-1)^m \cos(\pi m \rho)}{\pi m (\Delta - 2\pi m n)} D_m(\delta) \right]^2 \right\}, \quad (8)$$

где

$$D_m(\delta) \equiv \frac{\cos(\pi m \rho)}{1 - (2m\delta)^2}$$

– фактор, учитывающий наличие переходных слоев на границах каждого домена. Если ширины переходных слоев пренебрежимо малы, $\delta = 0$, $D_m(\delta) = 1$, то пространственное распределение нелинейной восприимчивости имеет вид меандра, а форма линии сигнала описывается зависимостью

$$P_{\omega_1, \Omega_1} = C_0 \bar{\chi}^2 \frac{\text{sinc}^2(\Delta/2)}{\sin^2(\Delta/2n)} \left(1 - 2 \cos \frac{\rho \Delta}{2n} \cos \frac{\Delta}{2n} + \cos^2 \frac{\Delta}{2n} \right). \quad (9)$$

Если толщины доменов разного знака совпадают ($\rho = 0$), а переходные слои практически отсутствуют ($\delta = 0$), то наблюдается рассеяние только в нечетные порядки нелинейной дифракции. Исчезает и так называемая несмещенная перестроечная кривая, наблюдающаяся при рассеянии в однородных образцах с теми же значениями линейных оптических параметров. При этом форма линии сигнала имеет вид

$$P_{\omega_1, \Omega_1} = C_0 \bar{\chi}^2 \text{sinc}^2(\Delta/2) \tan^2 \frac{\Delta}{4n}. \quad (10)$$

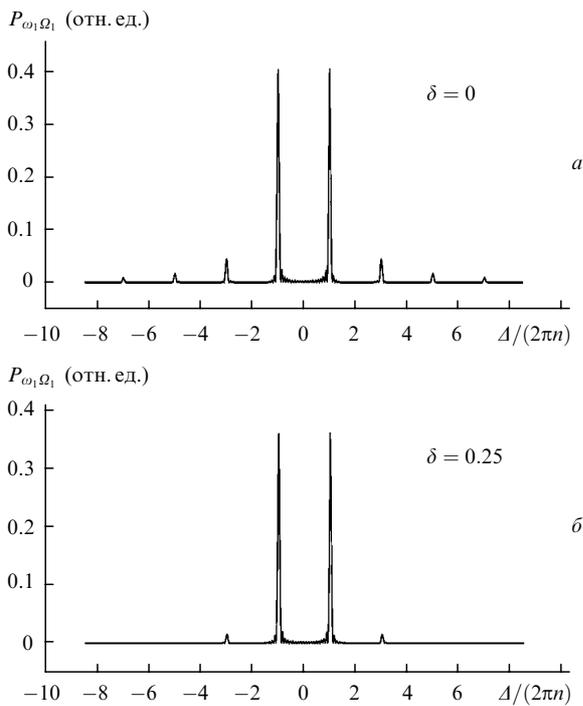


Рис.7. Форма СПР в прозрачном полидоменном сегнетоэлектрике с одинаковыми толщинами всех доменов без учета (а) и с учетом (б) переходных слоев между ними.

Этот случай иллюстрирует расчетная кривая (для $n = 10$), приведенная на рис.7,а. Видно, что максимумы нелинейной дифракции в порядки ± 1 существенно выше остальных. С увеличением порядка дифракции максимумы уменьшаются. Учет переходных слоев, сглаживающих резкое изменение $\chi^{(2)}$ на границах доменов, приводит к перераспределению интенсивности между дифракционными максимумами различных порядков, обуславливающему усиление первых и ослабление высших порядков по мере увеличения относительной толщины переходного слоя. На рис.7,б показана зависимость дифференциальной мощности сигнала от волновой расстройки при наличии переходных слоев, занимающих около половины каждого периода ($\delta \approx 0.25$). С дальнейшим ростом относительной толщины переходных слоев спектр постепенно приобретает черты, характерные для синусоидального распределения $\chi^{(2)}$, соответствующего предельному случаю $\delta = 0.5$. При этом срединные области однородного распределения $\chi^{(2)}$ отсутствуют, отсутствует также рассеяние в какие-либо дифракционные порядки кроме первых.

Качественно по-иному сказывается асимметрия пространственной структуры – неравенство толщин доменов разного знака, приводящая к нарушению униполярности всего кристалла. В этом случае $|\rho| \neq 0$ и может достигать значений вплоть до $1 - 2\delta$. На рис.8 изображены зависимости дифференциальной мощности сигнала от волновой расстройки при $\delta = 0$, $\rho = 0.25, 0.5, 0.6$ и 0.8 . Видно, что с ростом асимметрии доменов вначале наблюдается появление и относительное усиление чет-

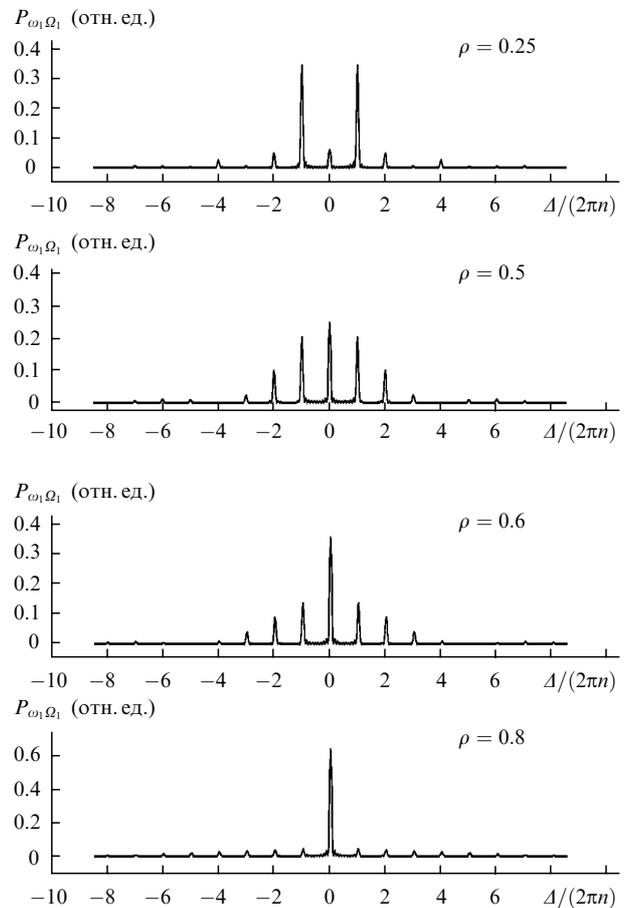


Рис.8. Влияние асимметрии доменов на форму линии СПР в прозрачном сегнетоэлектрике с РДС ($\delta = 0$).

ных порядков нелинейной дифракции. При соотношении толщин доменов разного знака 1 : 3 ($\rho = 0.5$) центральный несмещенный пик становится выше всех остальных максимумов. При дальнейшем увеличении разности толщин максимумы дифракции в ненулевые порядки становятся слабее. При этом наблюдается тенденция к их выравниванию между собой. Предельные значения $\rho = \pm 1$ соответствуют монодоменному кристаллу, форма линии параметрического рассеяния описывается известной зависимостью вида $\text{sinc}^2(\Delta/2)$ с главным пиком в точке $\Delta = 0$.

Наличие переходных слоев в асимметричных доменных системах качественно сказывается на спектрах сигнального излучения так же, как и в случае симметричных доменов. При увеличении относительной толщины переходного слоя исчезают дифракционные максимумы с номерами $m = \pm 2$ и выше. Однако даже если толщины средних слоев доменов любого знака равны нулю и значение ρ максимально, кристалл не становится монодоменным. Распределение $\chi^{(2)}(z)$ и форма линии сигнального излучения в случае $l_2 = 0$ показаны на рис.9 ($\rho = 0.6$, $\delta = 0.2$). Характерно отсутствие максимумов нелинейной дифракции с номерами $m = \pm 4$ и выше. Исчезновение максимумов высших порядков в спектрах сигнального излучения явно свидетельствует о наличии переходных слоев в доменной структуре кристалла.

Рассмотренные примеры иллюстрируют качественные выводы, следующие из общих выражений для величины дифракционных максимумов различных порядков I_m . Действительно, в общем случае периодического распределения квадратичной восприимчивости типа (6) из (8) следуют соотношения

$$I_m = (\bar{\chi}\rho)^2 \left[\frac{\cos(m\pi\delta)}{1 - (2m\delta)^2} \right]^2 \times \begin{cases} \left[\frac{\sin(m\pi\rho/2)}{m\pi\rho/2} \right]^2, & \text{если } m - \text{четное,} \\ \left[\frac{\cos(m\pi\rho/2)}{m\pi\rho/2} \right]^2, & \text{если } m - \text{нечетное,} \end{cases} \quad (11)$$

Здесь $I_m \equiv P_{\omega_1\Omega_1}|_{A_m=0}/C_0$ – измеренные в относительных единицах дифференциальной мощности рассеяния при $\Delta(\omega_1, \theta_1) = 2\pi m$. Из (11) видно, что в униполярных доменных системах с равными толщинами доменов разных знаков (т. е. при $\rho = 0$) четные порядки нелинейной дифракции отсутствуют. Различие в толщинах соседних доменов приводит к рассеянию в четные порядки, в том числе и к появлению несмещенной перестроенной кривой, характерной для монодоменного кристалла. При наличии переходных слоев достаточно заметной (в масштабах периода доменной системы) толщины, соотношение между интенсивностями различных пиков меняется. В случае, когда $m\pi\delta \ll 1$, учет переходных слоев приводит к простому уменьшению интенсивности пиков рассеяния в ненулевые порядки нелинейной дифракции:

$$I_m \approx \left(\frac{2\bar{\chi}}{\pi} \right)^2 \left(\frac{1}{m^2} - 1.87\delta^2 \right) \times \begin{cases} \sin^2 \frac{m\pi\rho}{2}, & \text{если } m - \text{четное,} \\ \cos^2 \frac{m\pi\rho}{2}, & \text{если } m - \text{нечетное,} \end{cases} \quad (12)$$

Приведенные соотношения для интенсивностей пиков во многом справедливы и в тех случаях, когда значения $\chi^{(2)}$ в толще доменов разного знака не совпадают. При этом появляется постоянная составляющая нулевой гармоники, вносящая дополнительный вклад только в максимум нулевого порядка.

5. Диагностика пространственного распределения $\chi^{(2)}$ по спектрам СПР

Основываясь на результатах предыдущих разделов, предложим две схемы анализа частотно-углового распределения интенсивности СПР с целью определения вида функции $\chi^{(2)}(z)$ в неоднородной структуре с априорно неизвестными характеристиками. Первая схема подходит для исследования параметров регулярных 180-градусных доменных структур, содержащих большое число доменов ($n \gg 1$), вторая – для определения нерегулярного распределения $\chi^{(2)}(z)$ в системах, содержащих небольшое число доменов ($n < 10$).

Анализ протяженных регулярных доменных структур проводится по первой схеме в несколько этапов:

1-й этап. Фиксируются отдельные перестроенные кривые, наблюдающиеся одновременно в двумерном частотно-угловом спектре рассеяния. Критерием является наблюдение нескольких (не менее двух) максимумов соизмеримой интенсивности при сканировании частоты или угла рассеяния. Наличие ряда максимумов свидетельствует о нелинейной дифракции на периодической доменной структуре. Для применимости дальнейшего рассмотрения требуется, чтобы ширины максимумов были суще-

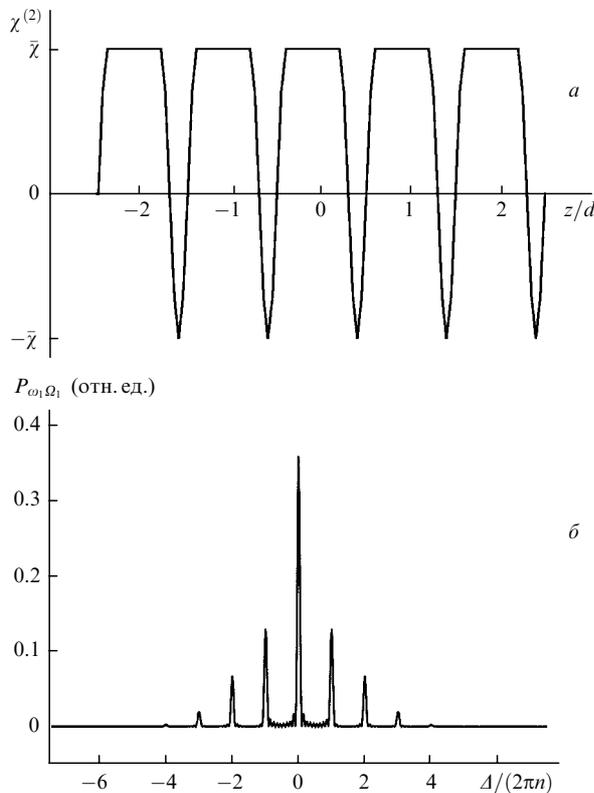


Рис.9. Распределение квадратичной восприимчивости $\chi^{(2)}(z)$ (а) и форма линии СПР в сегнетоэлектрике с предельно тонкими доменами одного знака (б) ($\rho = 0.6$, $\delta = 0.2$).

ственно меньше расстояния между ними. Данное условие может не выполняться в случае недостаточно высокой разрешающей способности регистрирующей аппаратуры, при сильном нарушении периодичности доменной системы либо в случае значительного поглощения или малого числа доменов $2n$ в исследуемом образце.

2-й этап. Измеряется зависимость дифференциальной мощности СПР P_{ω_1, Ω_1} от волновой расстройки фазового синхронизма $\Delta = \Delta(\omega_1, \theta_1)$. В эксперименте сканирование может вестись по любой комбинации параметров угол рассеяния – частота. Далее все же потребуется выразить переменную сканирования в терминах фазовой расстройки. Для этого необходимы сведения о дисперсии показателя преломления кристалла на частотах сигнала и холостого диапазонов, а также на частоте накачки. Часто такая априорная информация для частот холостого диапазона отсутствует. В этом случае фазовая расстройка на каждой частоте рассеяния может быть определена лишь с точностью до постоянной величины. Привязку начала координат можно сделать после идентификации порядковых номеров дифракционных максимумов m (см. следующий этап). Одновременно может быть вычислен и показатель преломления кристалла на частоте холостой волны.

3-й этап. Определяется номер порядка нелинейной дифракции, соответствующий каждому максимуму. Идентификация номера основана на симметрии спектров: максимумы с номерами $+m$ и $-m$ должны иметь одну и ту же величину. Несимметричность спектров указывает на наличие в кристалле блоков с разными показателями преломления. Спектры рассеяния в низшие порядки нелинейной дифракции должны быть эквидистантны. Неэквидистантность может свидетельствовать о присутствии нескольких доменных блоков с разными периодами в той области кристалла, которая участвует в формировании сигнала СПР. Анализ положения симметричных эквидистантных максимумов зависимости $P_{\omega_1, \Omega_1}(\Delta)$ в координатах частота – угол рассеяния позволяет найти положение центрального максимума, которое соответствует нулевому значению волновой расстройки Δ . После этого можно определить недостающие значения линейных оптических параметров кристалла и полностью задать шкалу волновых расстроек Δ .

4-й этап. Определяется соотношение между толщинами соседних доменов. Если в центре распределения $P_{\omega_1, \Omega_1}(\Delta)$ интенсивность рассеяния равна нулю, то спектр состоит только из нечетных порядков нелинейной дифракции. Это свидетельствует о равенстве толщин доменов разного знака (об униполярности кристалла). Появление в центре распределения $P_{\omega_1, \Omega_1}(\Delta)$ максимума нулевого порядка (не имеющего симметрично расположенного аналога) свидетельствует о неравенстве толщин доменов разного знака или о неодинаковости абсолютных величин $\chi^{(2)}$ в положительных и отрицательных доменах.

5-й этап. В зависимости от результатов предыдущего этапа возможны два варианта:

Вариант 1. Измерение параметров симметричной доменной системы (с равными толщинами доменов разного знака). В этом случае в спектре присутствуют интенсивные максимумы ± 1 -го порядка и существенно менее интенсивные максимумы более высоких нечетных порядков, максимумы ненулевых четных порядков отсутствуют. Расстояние между ближайшими нечетными максимумами на оси Δ равно $4\pi l / (d \cos \theta)$. На основании ре-

зультатов измерений частотного и углового смещений максимумов разных порядков относительно друг друга определяется размер доменов $d/2$ и угол их наклона θ к входной и выходной граням кристалла. Чем больше ширина переходной области на границах доменов, тем слабее выражены максимумы высших порядков. Отношение интенсивностей максимумов ± 1 -го и ± 3 -го порядков

$$\frac{I_1}{I_3} = \left[\frac{3 \cos(\pi\delta)}{\cos(3\pi\delta)} \frac{1 - (6\delta)^2}{1 - (2\delta)^2} \right]^2. \quad (13)$$

При $\delta \leq 0.1$ соотношение максимумов $I_1 : I_3 \approx 10 : 1$, с ростом относительной толщины переходного слоя δ это соотношение быстро возрастает, достигая $\sim 100 : 1$ при $\delta \approx 0.36$ и $\sim 1000 : 1$ при $\delta \approx 0.45$. При $\delta \geq 0.4$ в спектре СПР присутствуют практически только две перестроенные кривые рассеяния в ± 1 -е порядки и распределение $\chi^{(2)}(z)$ диагностируется как синусоидальное. В промежуточных случаях, аппроксимируя соотношение $I_1 : I_3$ с помощью выражения (11), можно в итоге определить толщину переходного слоя $2\Delta l \equiv \delta d$.

Вариант 2. Измерение параметров несимметричной доменной системы (с неравными толщинами доменов разного знака). В этом случае в спектре СПР присутствуют максимумы как четных, так и нечетных порядков. Отношение интенсивностей максимумов ± 1 -го и нулевого порядков определяется выражением

$$\frac{I_1}{I_0} = \left[\frac{\cos(\pi\delta)}{1 - (2\delta)^2} \frac{\cos(\pi\rho/2)}{\pi\rho/2} \right]^2, \quad (14)$$

справедливым при условии, что абсолютные величины $\chi^{(2)}$ в доменах разного знака одинаковы, а отношение интенсивностей максимумов ± 1 -го и ± 2 -го порядков – выражением

$$\frac{I_1}{I_2} = \left[\frac{\cos(\pi\delta)}{\cos(2\pi\delta)} \frac{1 - (4\delta)^2}{1 - (2\delta)^2} \frac{1}{\sin(\pi\rho/2)} \right]^2. \quad (15)$$

Таким образом, с увеличением разности доменных толщин относительный вес максимумов первого порядка быстро падает, тогда как с ростом толщины переходного слоя он возрастает. Аппроксимация измеренных соотношений $I_1 : I_0$ и $I_1 : I_2$ с помощью выражений (14) и (15) позволяет определить значения δ , ρ , толщину переходного слоя $2\Delta l$, а также размеры однородных областей в доменах разного знака $l_1 \equiv d(1 + \rho)/2$ и $l_2 \equiv d(1 - \rho)/2$.

В случае нерегулярного изменения $\chi^{(2)}(z)$ фурье-гармоники квадратичной восприимчивости ненулевых порядков определяют мощность рассеяния при $\Delta = 2\pi m$ ($m \neq 0$). Именно при таких значениях волновой расстройки дифференциальная мощность СПР в однородной среде $P_{\omega_1, \Omega_1} = C_0 [\chi \text{sinc}(\Delta/2)]^2$ обращается в нуль. Наличие ненулевого сигнала в прозрачной среде при выполнении условия $\Delta = 2\pi m \neq 0$ свидетельствует о неоднородном распределении квадратичной восприимчивости.

Вторая схема диагностики профиля пространственно-неоднородного распределения $\chi^{(2)}(z)$ применима для анализа структур, содержащих небольшое число доменов произвольной толщины. В этом случае при наложении полос нелинейной дифракции различного порядка может происходить сдвиг максимумов распределения интенсивности относительно положений, отвечающих условию квазисинхронизма. Благодаря этому открывается

возможность определения как амплитуд $|\chi_m|$, так и фаз φ_m различных гармоник квадратичной восприимчивости

$$\chi^{(2)}(z) = \sum_m |\chi_m| \exp[i(2\pi m z + \varphi_m)].$$

Общую схему анализа можно разделить на следующие этапы:

1-й этап. Измеряется зависимость дифференциальной мощности СПР $P_{\omega_1\Omega_1}$ от волновой расстройки фазового синхронизма $\Delta = \Delta(\omega_1, \theta_1)$. Измерения проводятся так же, как и на начальных этапах первой схемы.

2-й этап. Определяется соотношение амплитуд $|\chi_m|$. Для этого измеряется отношение интенсивностей I_0 и I_m при волновой расстройке $\Delta = 0$ и $2\pi m$ соответственно. Далее вычисляются относительные величины $|\chi_m|/\chi_0 = (I_m/I_0)^{1/2}$. Если рассеяние в несмещенном направлении отсутствует и $I_0 = 0$, то нормировку можно проводить по любому другому выбранному максимуму ненулевой интенсивности.

3-й этап. Определяется соотношение фаз φ_m путем аппроксимации экспериментально измеренной зависимости $P_{\omega_1\Omega_1}(\Delta)$ выражением

$$\frac{P_{\omega_1\Omega_1}(\Delta)}{C_0\chi_0^2} = \text{sinc}^2(\Delta/2) \left\{ \left[\sum_{m=-\infty}^{\infty} \frac{(-1)^m |\chi_m|/\chi_0}{1 - 2\pi m/\Delta} \cos \varphi_m \right]^2 + \left[\sum_{m=-\infty}^{\infty} \frac{(-1)^m |\chi_m|/\chi_0}{1 - 2\pi m/\Delta} \sin \varphi_m \right]^2 \right\} \quad (16)$$

последовательно на всех участках $2\pi m < \Delta < 2\pi(m+1)$ с учетом измеренных относительных амплитуд $|\chi_m|/\chi_0$ и соотношения $\varphi_m = -\varphi_{-m}$.

4-й этап. Вычисляется профиль изменения квадратичной восприимчивости в пределах всего рассеивающего объема по формуле

$$\chi^{(2)}(z) = \sum_m \frac{|\chi_m|}{\chi_0} \exp[i(2\pi m z + \varphi_m)].$$

6. Влияние поглощения на форму линии СПР в нелинейных периодических структурах

Наличие поглощения только на холостой частоте или на двух – сигнальной и холостой – частотах приводит к существенному изменению спектрального и углового распределений интенсивности сигнала. Это необходимо учитывать как при проведении диагностики пространственного распределения квадратичной восприимчивости, так и при расчетах характеристик параметрических устройств, работающих на основе квазисинхронных преобразователей и генераторов света.

Если спектр пространственных гармоник квадратичной восприимчивости известен, то расчет формы линии СПР в условиях поглощения удобно проводить по формуле, непосредственно следующей из (1):

$$P_{\omega_1\Omega_1} = 2C_0 \{ (e^{-\gamma_2} \cos \Delta - 1) [(y_2^2 - \Delta^2) Z'(y_2, \Delta) - Z''(y_2, \Delta) + (2y_2\Delta)^2 X'(y_2, \Delta)] + 2e^{-\gamma_2} y_2 \Delta \sin \Delta \times [Z'(y_2, \Delta) - (y_2^2 - \Delta^2) X'(y_2, \Delta) + X''(y_2, \Delta)] +$$

$$+ y_2 G(y_2, \Delta) \}, \quad (17)$$

где введены обозначения

$$Z^{(n)}(y_2, \Delta) \equiv [W^{(n)}(y_2, \Delta)]^2 - [2y_2 \Delta u^{(n)}(y_2, \Delta)]^2,$$

$$X^{(n)}(y_2, \Delta) \equiv 2u^{(n)}(y_2, \Delta) W^{(n)}(y_2, \Delta),$$

$$W^{(n)}(y_2, \Delta) \equiv (y_2^2 - \Delta^2) u^{(n)}(y_2, \Delta) + v^{(n)}(y_2, \Delta),$$

$$u'(y_2, \Delta) \equiv \sum_{m=-\infty}^{\infty} \frac{(-1)^m \chi'_m}{\varphi_m(y_2, \Delta)},$$

$$u''(y_2, \Delta) \equiv \sum_{m=-\infty}^{\infty} \frac{(-1)^m \chi''_m}{\varphi_m(y_2, \Delta)} 2\pi m n, \quad (18)$$

$$v'(y_2, \Delta) \equiv \sum_{m=-\infty}^{\infty} \frac{(-1)^m \chi'_m}{\varphi_m(y_2, \Delta)} (2\pi m n)^2,$$

$$v''(y_2, \Delta) \equiv \sum_{m=-\infty}^{\infty} \frac{(-1)^m \chi''_m}{\varphi_m(y_2, \Delta)} (2\pi m n)^3,$$

$$\varphi_m(y_2, \Delta) \equiv (y_2^2 + \Delta^2)^2 + 2(y_2^2 - \Delta^2)(2\pi m n)^2 + (2\pi m n)^4,$$

$$G(y_2, \Delta) \equiv \sum_{m=-\infty}^{\infty} \frac{|\chi'_m|^2 + |\chi''_m|^2}{y_2^2 + (\Delta - 2\pi m n)^2}, \quad \chi_m \equiv \chi'_m + i\chi''_m.$$

Рассмотрим форму линии СПР на нескольких конкретных примерах нелинейных периодических структур с отличным от нуля поглощением на холостой частоте. Для регулярных полидоменных кристаллов с равными толщинами доменов разного знака и распределением нелинейной восприимчивости типа меандра точный расчет по формуле (17) приводит к следующей зависимости:

$$P_{\omega_1\Omega_1} = 2C_0 \frac{\bar{\chi}^2}{y_2^2 + \Delta^2} \left\{ (e^{-\gamma_2} \cos \Delta - 1) \left[\frac{y_2^2 - \Delta^2}{y_2^2 + \Delta^2} \times \frac{\sin^2 \Delta'' - \sinh^2 y_2''}{(\cosh y_2'' + \cos \Delta'')^2} - 4 \frac{y_2 \Delta}{y_2^2 + \Delta^2} \frac{\sinh y_2'' \sin \Delta''}{(\cosh y_2'' + \cos \Delta'')^2} \right] - 2e^{-\gamma_2} \sin \Delta \left[\frac{y_2 \Delta}{y_2^2 + \Delta^2} \frac{\sin^2 \Delta'' - \sinh^2 y_2''}{(\cosh y_2'' + \cos \Delta'')^2} + \frac{y_2^2 - \Delta^2}{y_2^2 + \Delta^2} \frac{\sinh y_2'' \sin \Delta''}{(\cosh y_2'' + \cos \Delta'')^2} \right] + y_2 - 4n \left[\frac{y_2^2 - \Delta^2}{y_2^2 + \Delta^2} \times \frac{\sinh y_2''}{\cosh y_2'' + \cos \Delta''} + 2 \frac{y_2 \Delta}{y_2^2 + \Delta^2} \frac{\sin \Delta''}{\cosh y_2'' + \cos \Delta''} \right] \right\}. \quad (19)$$

Здесь

$$y_2'' \equiv \frac{\alpha_2(d/2)}{2 \cos \vartheta_2}, \quad \Delta'' \equiv \frac{d}{2} (|k_{1z}| + |k_{2z}| - |k_{0z}|)$$

– поглощение холостой волны и волновая расстройка на длине одного домена $d/2$. Полученное распределение мощности описывает нелинейную дифракцию в нечет-

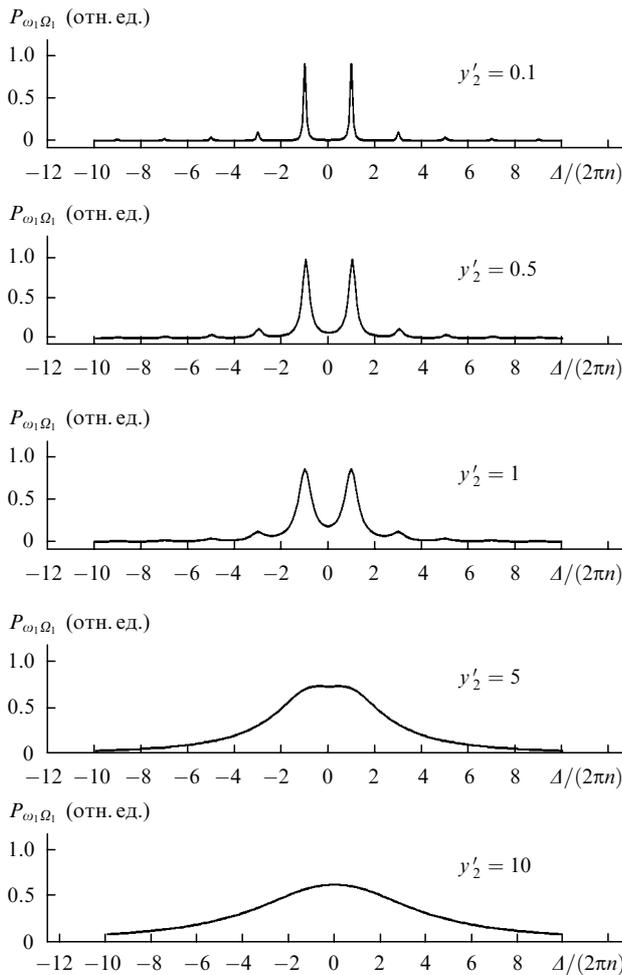


Рис.10. Влияние поглощения на форму линии СПР в сегнетоэлектриках с симметричной РДС (расчет проведен для $n = 10$).

ные порядки. Наличие поглощения на холостой частоте приводит к уширению каждого дифракционного максимума без изменения его положения (рис.10).

Как правило, толщины нелинейных кристаллов с РДС достаточно велики и включают в себя большое число периодов $n \equiv l/d$. В широком спектральном диапазоне может быть реализован случай, когда поглощение на длине одного домена незначительно, а весь кристалл как целое непрозрачен для холостых волн: $y_2/n \sim 1$, $y_2 \gg 1$, $n \gg 1$. Для доменов толщиной 1–10 мкм данные соотношения выполняются, например, в поляритонной части спектра, когда α_2 достигает значений порядка 10^3 см^{-1} и выше. Если при этом число доменов достаточно велико ($n \gg 1$) и $n \gg y_2/n$, для любого распределения квадратичной восприимчивости из (1) следует выражение

$$P_{\omega_1, \Omega_1} = 2C_0 y_2 \sum_{m=-\infty}^{\infty} \frac{|\chi_m|^2}{y_2^2 + (\Delta - 2\pi mn)^2}. \quad (20)$$

Ширина каждого пика нелинейной дифракции по шкале Δ в этом случае определяется поглощением y_2 на полной длине кристалла $l = nd$. Дифракционная структура видна, если поглощение на длине одного периода $y'_2 \equiv y_2/n$ остается небольшим. При этом теряется информация о фазах комплексных амплитуд χ_m . Все же по соотношению величин дифракционных максимумов может быть определено соотношение амплитуд $|\chi_m|$. Если поглоще-

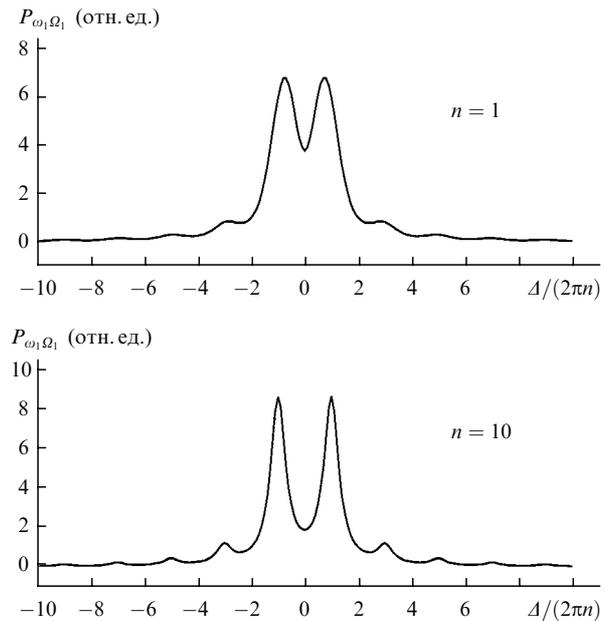


Рис.11. Влияние числа доменов на форму линии СПР в полидоменном кристалле, поглощающем холостое излучение ($y'_2 = 2, \rho = \delta = 0$).

ние на длине одного периода y'_2 велико, т. е. $y'_2 \gg 1$, полосы нелинейной дифракции практически полностью сливаются и минимумы дифракционной картины становятся неразличимыми. Линия параметрического рассеяния представляет собой один широкий максимум, имеющий вид лоренцевской кривой с центром в точке $\Delta = 0$:

$$P_{\omega_1, \Omega_1} \sim \frac{y_2}{y_2^2 + \Delta^2}. \quad (21)$$

В этом случае, как и для однородного монодоменного кристалла, полуширина максимума определяется полным поглощением кристалла y_2 . Влияние числа доменов на форму линии СПР ($y'_2 = 2$) иллюстрирует рис.11. Увеличение числа доменных периодов с 1 до 10 делает более ярко выраженной дифракционную структуру линии, если поглощение на одном домене невелико и структура, в принципе, еще видна. Дальнейшее увеличение числа доменов практически не сказывается на видности дифракционной картины. Если же поглощение велико и $y'_2 \geq 10$, то добиться удовлетворительной видности путем увеличения числа доменов невозможно.

В нелинейных интерферометрах, представляющих собой структуры, построенные из чередующиеся слоев оптически нелинейных ($\chi^{(2)} \neq 0$) и оптически линейных материалов, метод ОЗК позволяет учесть возможное поглощение как в линейных, так и нелинейных слоях. Полученные в предыдущих разделах соотношения справедливы в тех случаях, когда действительная и мнимая части диэлектрической проницаемости слоев мало отличаются друг от друга. Структуры из чередующихся оптически линейных и оптически нелинейных слоев с однородным распределением линейной восприимчивости можно получить, размещая последовательно плоскопараллельные пластины, вырезанные из одного и того же нелинейного кристалла, но под разными углами к кристаллографическим осям. Если толщины пластин одинаковы, то распределение мощности сигнала описывается выражением

$$P_{\omega_1, \Omega_1} = 4C_0 \frac{\bar{\chi}^2}{y_2^2 + \Delta^2} \left\{ (e^{-y_2} \cos \Delta - 1) \left[\frac{y_2^2 - \Delta^2}{y_2^2 + \Delta^2} \times \right. \right.$$

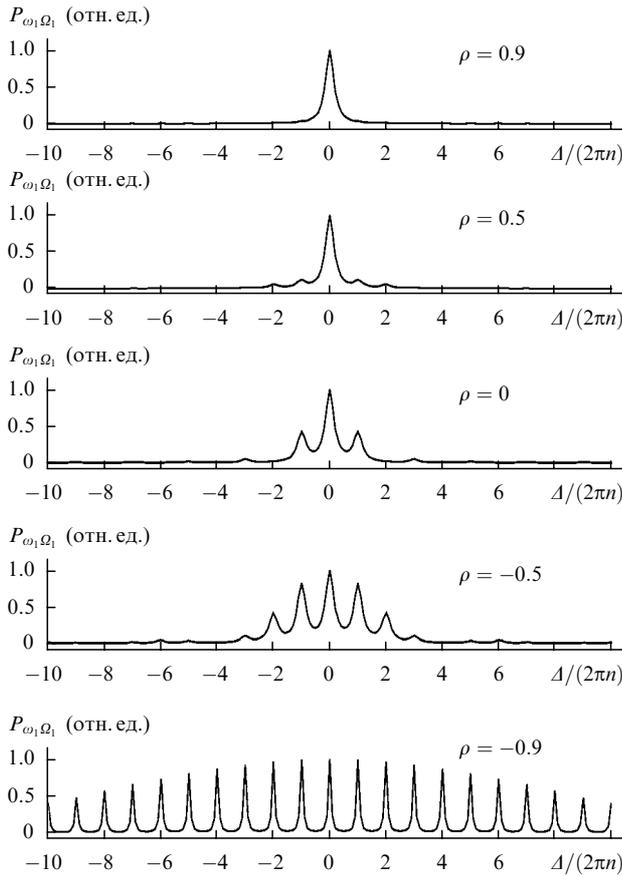


Рис. 12. Влияние соотношения толщин линейных и нелинейных слоев на форму линии СПР в нелинейном интерферометре ($n = 10, y'_2 = 1$).

$$\begin{aligned} & \times \left[\frac{1 + \cosh y''_2 \cos \Delta''}{(\cosh y''_2 + \cos \Delta'')^2} - \frac{2y_2 \Delta}{y_2^2 + \Delta^2} \frac{\sinh y''_2 \sin \Delta''}{(\cosh y''_2 + \cos \Delta'')^2} \right] \\ & - e^{-y_2} \sin \Delta \left[\frac{2y_2 \Delta}{y_2^2 + \Delta^2} \frac{1 + \cosh y''_2 \cos \Delta'_2}{(\cosh y''_2 + \cos \Delta'')^2} \right. \\ & \left. + \frac{y_2^2 - \Delta^2}{y_2^2 + \Delta^2} \frac{\sinh y''_2 \sin \Delta''}{(\cosh y''_2 + \cos \Delta'')^2} \right] + y_2 - 2n \left[\frac{y_2^2 - \Delta^2}{y_2^2 + \Delta^2} \right. \\ & \left. \times \frac{\sinh y''_2}{\cosh y''_2 + \cos \Delta''} + 2 \frac{y_2 \Delta}{y_2^2 + \Delta^2} \frac{\sin \Delta''}{\cosh y''_2 + \cos \Delta''} \right] \left. \right\}. \quad (22) \end{aligned}$$

Здесь $\bar{\chi}$ – квадратичная восприимчивость оптически нелинейного слоя. На рис.12 даны примеры линий рассеяния, характерных для симметричных и предельно асимметричных интерферометров ($n = 10, y'_2 = 1$). В случае максимальных $\rho > 0$, когда толщины нелинейных слоев (l_1) существенно больше толщин линейных прослоек (l_2), форма линии близка к распределению мощности в однородном нелинейном слое с той же суммарной шириной. При обратной ситуации, когда толщины нелинейных слоев предельно малы ($\rho < 0$), спектр состоит из очень слабых эквидистантных максимумов нелинейной дифракции.

В полидоменных регулярных кристаллах тонкие оптически нелинейные слои могут появляться вблизи доменных границ за счет изменения взаимной ориентации кристаллографических осей при переходе от домена к домену, даже если $\chi^{(2)} = 0$ в толще каждого домена. В этом случае при одинаковой толщине доменов периодическое

распределение $\chi^{(2)}(z)$ будет описываться чередующимися слоями с толщиной l_1 и восприимчивостью $\chi^{(2)} = \bar{\chi} \neq 0$ (переходные слои) и с l_2 и $\chi^{(2)} = 0$ (домены). При существенном различии толщин линейных и нелинейных слоев ($x \equiv l_1/d \ll 1$) расчет интенсивности сигнала можно вести, полагая $\chi_m \approx 2x(-1)^m \bar{\chi}$. При нечетном числе доменов n форма линии СПР будет определяться выражением

$$\begin{aligned} P_{\omega_1, \Omega_1} = & \frac{C_0(l_1/l)^2 \bar{\chi}^2 n}{\cosh y'_2 - \cos \Delta'} \left\{ 4 \sinh y'_2 + \frac{1}{2n(\cosh y'_2 - \cos \Delta')} \right. \\ & \times [(e^{-y_2} \cos \Delta - 1)(\sinh^2 y'_2 - \sin^2 \Delta') \\ & \left. + 2e^{-y_2} \sin \Delta \sin \Delta' \sinh y'_2] \right\}. \quad (23) \end{aligned}$$

Здесь Δ' – фазовая расстройка на длине одного периода. Полная интенсивность сигнала является результатом нелинейной интерференции сигналов от отдельных нелинейных слоев. В итоге распределение интенсивности имеет вид эквидистантных дифракционных максимумов. Как и в однородном кристалле, чем выше поглощение, тем больше ширина каждой линии рассеяния. В приближении тонких нелинейных слоев ($l_1/d \ll 1$) высота максимумов очень медленно уменьшается с ростом порядка дифракции.

7. Заключение

В данной работе приведены общие соотношения и рассмотрены различные частные случаи для распределения дифференциальной мощности СПР в пространственно-неоднородных нелинейных средах слоистого типа. Показана прямая связь между формой линии сигнала (зависимостью мощности от волновой расстройки) и пространственным фурье-спектром квадратичной восприимчивости среды. В оптически прозрачной среде эта связь одинакова для всех типов трехволновых процессов – как спонтанных, так и вынужденных и как при суммировании, так и при вычитании частоты. При этом наличие поглощения на частотах всех трех участвующих в СПР волн по-разному влияет на форму линии сигнала. Так как наиболее интересным с прикладной точки зрения является влияние поглощения на частотах холостых волн, в работе рассмотрены эффекты, связанные именно с этим поглощением.

Зависимость формы линии параметрического сигнала от пространственного распределения квадратичной восприимчивости может быть положена в основу метода томографии пространственного распределения $\chi^{(2)}$ полидоменных кристаллов, нелинейных интерферометров и других структур, характеризующихся существенным изменением эффективной величины $\chi^{(2)}$ по объему. Приведены алгоритмы диагностики одномерных нелинейных сверхрешеток в объемных кристаллах с РДС и схемы измерения нерегулярного распределения $\chi^{(2)}$ в относительно тонких слоях с переменной величиной $\chi^{(2)}$. Результатом использования каждой диагностической схемы может стать не только определение периода и ориентации РДС, но и восстановление полного профиля изменения $\chi^{(2)}$ по периоду РДС или нерегулярно-неоднородному слою. Необходимо отметить, что рассматриваемые измерения являются неразрушающими и характеризуют распределение $\chi^{(2)}$ по всему объему образца,

дающему вклад в нелинейный сигнал. Предложенные методики могут быть распространены и на диагностику трехмерных неоднородностей $\chi^{(2)}$ (возможные осложнения схем будут носить, по-видимому, только технический характер).

Полученные соотношения могут быть использованы для диагностики прозрачных неоднородных нелинейных сред по форме линии не только СПР, но и сигнала любого вынужденного трехволнового параметрического процесса. Благодаря большей интенсивности сигналов вынужденные процессы предпочтительнее при анализе нерегулярных распределений $\chi^{(2)}$ в тонких слоях и нелинейных интерферометрах. Однако несомненное преимущество спонтанного рассеяния заключается в том, что при использовании СПР-диагностики не требуется никакого дополнительного холостого излучения на входе в среду, при этом спектр сигнала чрезвычайно широк и определяется только характером пространственной неоднородности нелинейной среды и заранее известным спектром нулевых флуктуаций вакуума.

В случае же вынужденного процесса холостое излучение вводится извне, форма линии сигнала зависит не только от распределения $\chi^{(2)}$ по пространству, но и распределения яркости по модам холостого излучения. Как правило, для получения мощного сигнала используются лазерные источники холостого излучения, неравномерно заполняющего небольшой спектр мод холостого канала. Определение зависимости сигнала от фазовой расстройки требует сканирования частоты и/или угла падения внешнего излучения на кристалл. Это усложняет техническую сторону метода и требует тщательного контроля над тем, чтобы после каждого изменения параметров внешнего излучения сигнал собирался с одной и той же области пространственно-неоднородной среды. В отличие от этого, измерения формы линии сигнала в режиме СПР всегда проводятся для одного и того же участка структуры с равномерным заполнением мод поля холостого канала.

Работа выполнена в рамках исследований по гранту РФФИ (№ 03-02-16364) и гранту поддержки ведущих научных школ РФ (№ НШ-166.2003.02).

- Byer R.L. *Nonlinear Optics*, **7**, 235 (1994); Byer R.L. *J. Nonlinear Optical Physics & Materials*, **6**, 549 (1997).
- Lu Y., Mao L., Ming N. *Opt. Lett.*, **19**, 1037 (1994).
- Myers L.E., Miller G.D., Eckardt R.C., Fejer M.M., Byer R.L. *Opt. Lett.*, **20**, 52 (1995).
- Александровский А.Л. *Вестник Моск. ун-та. Сер. III*, **22**, 51 (1981); Александровский А.Л., Волков В.В. *Квантовая электроника*, **23**, 557 (1996).
- Бохин А.В., Дмитриев В.Г. *Квантовая электроника*, **32**, 219 (2002).
- Chen D.-W. *J. Opt. Soc. Am. B*, **20**, 1527 (2003).
- Чиркин А.С., Волков В.В., Лаптев Г.Д., Морозов Е.Ю. *Квантовая электроника*, **30**, 847 (2000).
- Кравцов Н.В., Лаптев Г.Д., Наумова И.И., Новиков А.А., Фирсов В.В., Чиркин А.С. *Квантовая электроника*, **32**, 923 (2002).
- Китаева Г.Х., Михайловский А.А., Пенин А.Н. *ЖЭТФ*, **112**, 2001 (1997).
- Vidaković P., Lovering D.J., Levenson J.A. *Opt. Lett.*, **22**, 277 (1997).
- Asobe M., Yokohama I., Itoh H., Kaino T. *Opt. Lett.*, **22**, 274 (1997).
- Serkland D.K., Fejer M.M., Byer R.L., Yamamoto Y. *Opt. Lett.*, **20**, 1649 (1995).
- Chirkin A.S. *J. Opt. B*, **4**, S91 (2002).
- Tanzilli S., De Riedmatten H., Tittel W., Zbinden H., Baldi P., De Micheli M., Ostrowsky D.B., Gisin N. *Electron. Lett.*, **37**, 26 (2001); *European Physical J. D*, **18**, 155 (2002).
- Yablonovitch E. *J. Phys.: Condens. Matter*, **5**, 2343 (1993).
- J. Opt. Soc. Am. B*, Special Issue, **10**, 279–413 (1993).
- D'Aguanno G., Centini M., Scalora M., Sibilia C., Dumeige Y., Vidaković P., Levenson J.A., Bloemer M.J., Bowden C.M., Haus J.W., Bertolotti M. *Phys. Rev. E*, **64**, 016609 (2001).
- Konotop V., Kuzmiak V. *Phys. Rev. B*, **66**, 235208 (2002).
- Haus J.W., Viswanathan R., Scalora M., Kalocsai A.G., Cole J.D., Theimer J. *Phys. Rev. A*, **57**, 2120 (1998).
- Balakin A.V., Bushuev V.A., Mantsyov B.I., Ozheredov I.A., Petrov E.V., Shkurinov A.P. *Phys. Rev. E*, **63**, 046609 (2001).
- Dumeige Y., Sagnes I., Mounier P., Vidaković P., Abram I., Meriadec C., Levenson J.A. *Phys. Rev. Lett.*, **89**, 043901 (2002).
- Dolgova T.V., Maidukovski A.I., Martemyanov M.G., Feduanin A.A., Aksipetrov O.A., Marowsky G., Yakovlev V.A., Mattei G., Ohta N., Nakabayashi S. *J. Opt. Soc. Am. B*, **19**, 2129 (2002).
- Zhu S.N., Zhu Y.Y., Qin Y.Q., Wang H.F., Ge C.Z., Ming N.B. *Phys. Rev. Lett.*, **78**, 2752 (1997); Qin Y.Q., Su H., Tang S.H. *Appl. Phys. Lett.*, **83**, 1071 (2003).
- Uesu Y., Kurimura S., Yamamoto Y. *Appl. Phys. Lett.*, **66**, 2165 (1995).
- Cudney R.S., Garces-Chavez V., Negrete-Regagnon P. *Opt. Lett.*, **22**, 439 (1997).
- Bloembergen N. *USA patent 3 384433* (1968); Armstrong J., Bloembergen N., Ducuing J., Pershan P.S. *Phys. Rev.*, **127**, 1918 (1962); Bloembergen N., Sievers A.J. *Appl. Phys. Lett.*, **17**, 483 (1970).
- Van der Ziel J.P., Bloembergen N. *Phys. Rev.*, **135**, A1662 (1964).
- Чиркин А.С. В сб.: *Нелинейная оптика* (Новосибирск: Наука, 1968, с. 202).
- Miller R.C. *Phys. Rev.*, **134**, A1313 (1964).
- Голенищев-Кутузов А.В., Голенищев-Кутузов В.А., Калимуллин Р.И. *УФН*, **170**, 697 (2000).
- Bryan D.A., Gerson R., Tomaschke H.E. *Appl. Phys. Lett.*, **44**, 847 (1984).
- Volk T., Wohlecke M., Rubinina N., Reichert A., Razumovsky N. *Ferroelectrics*, **183**, 291 (1996).
- Magel G.A., Fejer M.M., Byer R.L. *Appl. Phys. Lett.*, **56**, 108 (1990).
- Fejer M.M., Magel G.A., Jundt D.H., Byer R.L. *IEEE J. Quantum Electron.*, **28**, 2631 (1992).
- Ito H., Takyu C., Inaba H. *Electron. Lett.*, **27**, 1221 (1991).
- He J., Tang S.H., Qin Y.Q., Dong P., Zhang H.Z., Kang C.H., Sun W.X., Shen Z.X. *J. Appl. Phys.*, **93**, 9943 (2003).
- Lu Y., Xue C., Ming N. *Appl. Phys. Lett.*, **68**, 1467 (1996).
- Наумова И.И., Глико О.А. *Кристаллография*, **41**, 1 (1996).
- Евланова Н.Ф., Наумова И.И., Чаплина Т.О., Лаврищев С.В., Блохин С.А. *ФТТ*, **42**, 1678 (2000).
- Naumova I.I., Evlanova N.F., Gliko O.A., Lavrishchev S.V. *J. Cryst. Growth*, **180**, 160 (1997).
- Александровский А.Л., Глико О.А., Наумова И.И., Прялкин В.И. *Квантовая электроника*, **23**, 657 (1996).
- Freund I. *Phys. Rev. Lett.*, **21**, 1404 (1968).
- Гречин С.Г., Дмитриев И.Г., Юрьев Ю.В. *Квантовая электроника*, **26**, 155 (1999).
- Гречин С.Г., Дмитриев В.Г. *Квантовая электроника*, **26**, 151 (1999).
- Grilli S., Ferraro P., De Nicola S., Finizio A., Pierattini G., De Natale P., Chiarini M. *Optics Express*, **11**, 392 (2003).
- Holmgren S.J., Pasiskevicius V., Wang S., Laurell F. *Opt. Lett.*, **28**, 1555 (2003).
- Клышко Д.Н. *Фотоны и нелинейная оптика* (М.: Наука, 1980).
- Клышко Д.Н. *УФН*, **164**, 1187 (1994).
- Mandel L. *Rev. Mod. Phys.*, **71**, S274 (1999).
- Zeilinger A. *Rev. Mod. Phys.*, **71**, S288 (1999).
- Клышко Д.Н., Куцов В.Ф., Пенин А.Н., Полковников Б.Ф. *ЖЭТФ*, **62**, 1291 (1972).
- Поливанов Ю.Н. *УФН*, **126**, 185 (1978).
- Маврин Б.Н., Стерин Х.Е. *Письма в ЖЭТФ*, **16**, 265 (1972).
- Китаева Г.Х., Кузнецов К.А., Наумова И.И., Пенин А.Н. *Квантовая электроника*, **30**, 726 (2000).
- Клышко Д.Н. *Квантовая электроника*, **4**, 1056 (1977).
- Клышко Д.Н. *Квантовая электроника*, **7**, 1932 (1980).
- Клышко Д.Н., Пенин А.Н. *УФН*, **152**, 653 (1987).
- Аброскина О.А., Китаева Г.Х., Пенин А.Н. *ДАН СССР*, **280**, 584 (1985).

59. Penin A.N., Sergienko A.V. *Appl. Opt.*, **30**, 3582 (1991).
60. Клышко Д.Н. *ЖЭТФ*, **104**, 2676 (1993).
61. Бурлаков А.В., Кулик С.П., Пенин А.Н., Чехова М.В. *ЖЭТФ*, **113**, 1991 (1998).
62. Корыстов Д.Ю., Кулик С.П., Пенин А.Н. *Квантовая электроника*, **30**, 921 (2000).
63. Корыстов Д.Ю., Кулик С.П., Пенин А.Н. *Письма в ЖЭТФ*, **73**, 248 (2001).
64. Бурлаков А.В., Мамаева Ю.Б., Пенин А.Н., Чехова М.В. *ЖЭТФ*, **120**, 67 (2001).
65. Клышко Д.Н. *Изв. АН СССР. Сер. физич.*, **46**, 1478 (1982).
66. Китаева Г.Х., Пенин А.Н. *ЖЭТФ*, **125**, 307 (2004).
67. Клышко Д.Н. *ЖЭТФ*, **55**, 1006 (1968).
68. Китаева Г.Х., Клышко Д.Н., Таубин И.В. *Квантовая электроника*, **9**, 560 (1982).
69. Шен И.Р. *Принципы нелинейной оптики* (М: Наука, 1989).
70. Ахманов С.А., Хохлов Р.В. *Проблемы нелинейной оптики* (М.: Изд-во АН СССР, 1965).
71. Scalora M., Bloemer M.J., Manka A.S., Dowling J.P., Bowden C.M., Viswanathan R., Haus J.W. *Phys. Rev. A*, **56**, 3166 (1997).
72. Steel M.J., Martijn de Sterke C. *Appl. Opt.*, **35**, 3211 (1996).
73. Martijn de Sterke C., Sipe J.E. *Phys. Rev. A*, **38**, 5149 (1988).
74. Александровский А.Л., Леонтьева И.Н., Наумова И.И. *Вестник Моск. ун-та. Сер. III*, **20**, 30 (1979).
75. Александровский А.Л., Маскаев Ю.А., Наумова И.И. *ФТТ*, **17**, 3192 (1975).
76. Наумова И.И., Евланова Н.Ф., Лаврищев С.В., Блохин С.А., Чаплина Т.О., Черневич Т.Г., Шустин О.А. *Материалы электронной техники*, № 1, 30 (1999).
77. Китаева Г.Х., Кулик С.П., Пенин А.Н., Чехова М.В. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **1863**, 192 (1993).
78. Александровский А.Л., Китаева Г.Х., Кулик С.П., Пенин А.Н. *ЖЭТФ*, **90**, 1051 (1986).
79. Китаева Г.Х., Кулик С.П., Пенин А.Н. *ФТТ*, **34**, 3440 (1992).
80. Kitaeva G.Kh., Mikhailovsky A.A., Naumova I.I., Losevsky P.S., Penin A.N. *Appl. Phys. B*, **66**, 201 (1998).