

## ТРЕХФОТОННАЯ ИНТЕРФЕРЕНЦИЯ: СПЕКТРОСКОПИЯ ЛИНЕЙНЫХ И НЕЛИНЕЙНЫХ СРЕД

А. В. Бурлаков\*, С. П. Кулик\*, А. Н. Пенин, М. В. Чехова

Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова  
119899, Москва, Россия

Поступила в редакцию 1 декабря 1997 г.

Рассмотрен эффект нелинейной интерференции при трехфотонном спонтанном параметрическом рассеянии света. Рассчитывается частотно-угловая форма линии рассеяния для систем «нелинейный кристалл — линейная диспергирующая среда — нелинейный кристалл» и «нелинейный кристалл — нелинейный кристалл». Обсуждается вопрос о возможности использования нелинейной интерферометрии в спектроскопии.

### 1. ВВЕДЕНИЕ

Спектроскопия спонтанного параметрического рассеяния (СПР) света и рассеяния на поляритонах относится к традиционным методам исследования дисперсионных свойств кристаллов. Среди преимуществ этого вида спектроскопии можно выделить прежде всего простоту реализации и наряду с этим возможность измерения широкого набора величин: действительную (связанную с показателем преломления) и мнимую (связанную с поглощением) части диэлектрической проницаемости, действительные и мнимые части компонент восприимчивостей второго  $\chi^{(2)}$  и третьего  $\chi^{(3)}$  порядков. Перечисленные характеристики вещества измеряются в обширном спектральном диапазоне — от видимого до далекого ИК-диапазона, включая области собственных колебаний кристаллической решетки [1]. К недостаткам метода следует отнести ограниченность класса исследуемых веществ: спонтанное параметрическое рассеяние наблюдается только в нецентросимметричных средах, где  $\chi^{(2)} \neq 0$ .

Феноменологически эффект спонтанного параметрического рассеяния объясняется спонтанным распадом фотона лазерной накачки с частотой  $\omega_p$  на пару фотонов — сигнальный ( $\omega_s$ ) и холостой ( $\omega_i$ ) за счет квадратичной восприимчивости  $\chi^{(2)}$  [2]. В силу закона сохранения энергии сумма частот сигнального и холостого излучения в точности равна частоте накачки:

$$\omega_p = \omega_s + \omega_i, \quad (1)$$

а закон сохранения импульса

$$\mathbf{k}_p = \mathbf{k}_s + \mathbf{k}_i \quad (2)$$

обеспечивает связь частот и углов рассеянного света  $\omega_s(\theta_s)$ .

\*E-mail: postmast@qopt.ilc.msu.su

Условие пространственного синхронизма  $\sum \mathbf{k}_i = 0$  (2), присущее оптическим параметрическим процессам, можно интерпретировать как результат нелинейной интерференции взаимодействующих волн. Физически это условие эквивалентно стационарности суммарной фазы всех мод, обеспечивающей нарастание интенсивности в пространстве аналогично тому, как это имеет место при обычной линейной интерференции. Параметрические процессы характеризуются специфической формой линии [3], т. е. зависимостью эффективности преобразования от волновой расстройки  $\Delta = \sum_{i=1}^m \mathbf{k}_i$ , где  $m$  — число взаимодействующих мод. Эта зависимость для нелинейного слоя длиной  $L$  в приближении плоских волн имеет вид

$$g(\Delta) = \sin^2(\Delta L/2)/(\Delta L/2)^2 \equiv \text{sinc}^2(\Delta L/2). \quad (3)$$

При параметрическом рассеянии света, если поглощение на одной из частот<sup>1)</sup> велико

$$\alpha_i \gg 1/L, \quad (4)$$

форма линии рассеяния становится лоренцевой. При этом спонтанное параметрическое рассеяние переходит в рассеяние на поляритонах и в пределе  $\omega_i \rightarrow \Omega$  (где  $\Omega$  — частота оптического фонона) — в комбинационное рассеяние света [4]. Условие (4) означает, что сигнальные поля, родившиеся в пространственных точках, разделенных интервалом  $x \gg 1/\alpha_i$ , теперь являются несфазированными, т. е. складываются их интенсивности, а не амплитуды.

С интерференционной природой формирования частотно-углового спектра спонтанного параметрического рассеяния связаны два очевидных вопроса:

1) каким образом фазовые задержки, вносимые дополнительно в любую из мод  $\mathbf{k}_p$ ,  $\mathbf{k}_s$  и  $\mathbf{k}_i$ , влияют на форму линии спонтанного параметрического рассеяния  $g(\Delta)$ ;

2) возможно ли по форме линии сделать выводы о дисперсионных свойствах той среды, которая используется для внесения оптических задержек.

Ответ на первый вопрос (для различных параметрических процессов) известен давно. Так, еще в 1965 году был предложен метод измерения относительной фазы между излучением основной и второй гармоник [5]. Интерференция сигналов второй гармоники от двух нелинейных кристаллов, разделенных диспергирующей средой, легла в основу способа определения знака компонент квадратичной восприимчивости  $\chi_{ijk}^{(2)}$  [6]. Аналогично эффект нелинейной интерференции использовался при когерентном антистоксовом рассеянии (КАРС) [7], в том числе для определения компонент нерезонансных восприимчивостей третьего порядка  $\chi_{ijkl}^{(3)}$  в газах [8]. Нелинейная интерференция описывает также и квазисинхронные процессы: дополнительный фазовый сдвиг взаимодействующие волны испытывают в периодически-неоднородных нелинейных средах — при генерации второй гармоники [9], суммарной и разностной частот [10], КАРС [11].

Более драматично ситуация складывалась при интерпретации нелинейной интерференции в случае спонтанного параметрического рассеяния. Несмотря на то что

<sup>1)</sup> Обычно частоты накачки и сигнального излучения принадлежат полосе прозрачности кристалла, а холостые частоты попадают в ИК-диапазон, в том числе в области сильного решеточного поглощения.

нелинейно-оптические аспекты задачи к настоящему времени детально исследованы теоретически [12, 13] и экспериментально (см., например, [14, 15]), неожиданный всплеск интереса к интерференции при спонтанном параметрическом рассеянии произошел в квантовой оптике в середине 80-х годов. Парадоксальность проблемы отчасти вызвана тем, что спонтанное излучение по своей природе является шумовым и, казалось бы, вклады от макроскопических удаленных областей интерферировать не могут. И по сей день рассматриваются различные варианты экспериментальных схем, в которых модуляционная структура проявляется либо в интенсивности рассеянного света, либо в совпадениях фотоотчетов [16, 17]. Наблюдаемые особенности связываются с полумистической способностью фотонов при спонтанном параметрическом рассеянии нелокально влиять друг на друга [18]. Однако представляется, что наиболее последовательное описание нелинейной интерференции при таком рассеянии было проведено в работах [19, 20]. Отметим, что проблема формирования заданного частотно-углового спектра бифотонного поля рассматривается в контексте построения принципов квантовой криптографии и квантового компьютера [21].

Решение второго вопроса, тесно связанного с первым, составляет предмет нелинейной интерферометрии — метода спектроскопии, не нашедшего пока широкого применения. Между тем различные типы нелинейных интерферометров используются, например, при измерении фаз нелинейных восприимчивостей [22] (в том числе в тонких пленках [23]), в квантовой оптике при измерении времен распространения фотонов через диспергирующие среды [24]).

В настоящей работе предпринята попытка ответить на второй вопрос, т. е. оценить чувствительность нелинейной интерферометрии к изменению параметров среды<sup>2)</sup>, влияющих на фазу любой из трех мод, участвующих в процессе спонтанного параметрического рассеяния (трехфотонная интерферометрия). Мы ограничились случаем, когда пространственная неоднородность среды, вызывающая фазовые сдвиги, расположена вдоль волнового вектора накачки. Геометрия рассеяния с поперечной неоднородностью — нелинейная интерференция в схеме Юнга [19] — здесь не рассматривается.

Работа состоит из двух частей. В первой на основе общих соотношений для формы линии спонтанного параметрического рассеяния рассмотрен трехфотонный интерферометр Маха-Цендера. Частотно-угловая форма линии рассчитывается для системы «нелинейный кристалл — линейная диспергирующая прослойка — нелинейный кристалл». Отдельно рассматривается случай, когда в качестве прослойки выступает тонкая пленка с уединенным резонансом диэлектрической проницаемости. Во второй части получено выражение для формы линии спонтанного параметрического рассеяния системы «нелинейный кристалл — нелинейный кристалл», различающихся лишь дисперсией показателей преломления. Анализируется возможность трехфотонной интерферометрии для контроля линейных оптических свойств нелинейных кристаллов. Очевидно, что положительное решение затронутых проблем, с одной стороны, существенно расширило бы класс веществ, доступных традиционной СПР-спектроскопии, а с другой — привнесло бы новую методику (зачастую более удобную) определения закона дисперсии нецентросимметричных кристаллов.

<sup>2)</sup> Фактически речь идет о наборе параметров, к которым чувствительна частотная зависимость показателя преломления  $n_1(\omega)$  исследуемого вещества (в том числе линейного), — температуре, давлении, влажности, степени легирования, наличии примесей и проч.

## 2. СИСТЕМА «НЕЛИНЕЙНЫЙ КРИСТАЛЛ — ДИСПЕРГИРУЮЩАЯ ЛИНЕЙНАЯ СРЕДА — НЕЛИНЕЙНЫЙ КРИСТАЛЛ»

Рассмотрим два плоских нелинейных кристалла длиной  $L$ , между которыми помещена линейная среда  $L_1$  (рис. 1). Такая трехслойная система получила название нелинейного интерферометра Маха–Цендера [25] по аналогии с известной в линейной оптике схемой [26]. Здесь линейная среда вносит на всех трех частотах фазовые задержки, пропорциональные длине  $L_1$ :

$$\Phi_{1p} \propto n_{1p}(\omega_p)L_1/\lambda_p, \quad \Phi_{1s} \propto n_{1s}(\omega_s)L_1 \cos \vartheta_s/\lambda_s, \quad \Phi_{1i} \propto n_{1i}(\omega_i)L_1 \cos \vartheta_i/\lambda_i.$$

Выражение для формы линии спонтанного параметрического рассеяния для этого случая было получено в [13]:

$$g(\omega_s) = \left\{ \frac{\sin(\delta/2)}{\delta/2} \cos \left[ \frac{\delta + \delta_1}{2} \right] \right\}^2, \quad (5)$$

где  $\delta(\omega_s, \vartheta_s) = \Delta L = (k_p - k_s - k_i)L$ ,  $\delta_1(\omega_s, \vartheta_s) = \Delta_1 L_1 = (k_{1p} - k_{1s} - k_{1i})L_1$  — волновые расстройки в нелинейной и линейной средах соответственно,  $k$  — проекции волновых векторов на направление, перпендикулярное слоям,  $\vartheta_s$  — угол рассеяния внутри кристаллов. В дальнейшем нас будет интересовать случай, когда ориентации полярных осей в нелинейных кристаллах противоположны, что эквивалентно сдвигу фазы на  $\pi/2$  в аргументе косинуса в (5):

$$g(\omega_s, \vartheta_s) = \left\{ \text{sinc} \frac{\delta}{2} \sin \left[ \frac{\delta + \delta_1}{2} \right] \right\}^2, \quad (6)$$

в предположении, что сигнальные фотоны не выходят за пределы области взаимодействия (определяемой длиной кристалла  $L$  и диаметром пучка накачки  $d$  [19]):  $(2L + L_1) \text{tg} \vartheta_s \ll d$ . Это условие практически ограничивает угловой диапазон наблюдения эффекта: при увеличении расстояния между кристаллами вклад в интерференцию обусловлен малоугловым рассеянием. Поэтому в дальнейшем анализ формы линии будет проводиться для коллинеарного синхронизма. Нормировка в (6) выбрана так, чтобы при  $\delta_1 = 0$  и при одинаковом направлении полярных осей кристаллов интенсивность

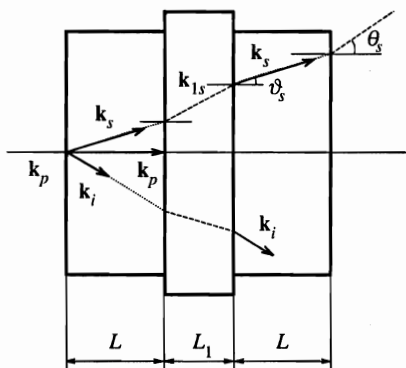


Рис. 1. Схема для наблюдения трехфотонной интерференции: два нелинейных кристалла ( $L$ ), разделенные линейной средой ( $L_1$ )

рассеяния в максимуме была равна единице. Выражение (6) имеет простой физический смысл: первый множитель описывает обычное параметрическое рассеяние в слое толщиной  $L$ . Второй множитель возникает из-за интерференции спонтанных полей, рождающихся в двух кристаллах, причем фаза интерференционной картины зависит от дисперсии линейной среды. Отметим две особенности, которые непосредственно следуют из вида (6). Во-первых, это выражение напоминает распределение интенсивности при обычной (линейной) дифракции плоской волны на экране с двумя щелями<sup>3)</sup> [26]. Во-вторых, оптические свойства линейной среды влияют только на второй множитель (6); роль первого множителя сводится лишь к фильтрации частотно-углового распределения

$$g_1 = \left\{ \sin \left[ \frac{\delta + \delta_1}{2} \right] \right\}^2 \quad (7)$$

посредством огибающей  $g_0 = \{\text{sinc}(\delta/2)\}^2$  в соответствии с условием пространственного синхронизма (2) в нелинейном кристалле толщиной  $L$ . Поэтому представляется разумным анализировать наглядные частотно-угловые распределения интенсивности (7), зависящие от диэлектрической проницаемости линейной и нелинейной сред, а учет реальной ширины синхронизма проводить на последнем этапе, непосредственно при сравнении с экспериментом. При этом длина нелинейных кристаллов как бы задает размер «окошка», через которое рассматривается модуляционная структура: чем меньше  $L$ , тем шире частотно-угловой диапазон наблюдаемой интерференционной картины.

В явном виде зависимости расстроек, фигурирующих в (6), от наблюдаемых параметров  $\omega_s$  и  $\theta_s$  имеют вид

$$\Delta(\omega_s, \theta_s) = 2\pi \left( n_p \omega_p - n_s \omega_s \sqrt{1 - \left[ \frac{\sin \theta_s}{n_s} \right]^2} - n_i \omega_i \sqrt{1 - \left[ \frac{\omega_s}{\omega_i n_s} \sin \theta_s \right]^2} \right), \quad (8)$$

$$\Delta_1(\omega_s, \theta_s) = 2\pi \left( n_{1p} \omega_p - n_{1s} \omega_s \sqrt{1 - \left[ \frac{\sin \theta_s}{n_{1s}} \right]^2} - n_{1i} \omega_i \sqrt{1 - \left[ \frac{\omega_s n_i}{\omega_i n_{1i} n_s} \sin \theta_s \right]^2} \right), \quad (9)$$

где  $\theta_s$  — внешний угол рассеяния. Выражения (8) и (9) вместе с (6) являлись исходными для расчета частотно-угловых распределений интенсивности спонтанного параметрического рассеяния.

Рисунок 2 отвечает случаю, когда между двумя кристаллами  $\text{LiNbO}_3$  одинаковой длины  $L = 1$  мм расположен вакуумный зазор шириной  $L_1 = 10$  см. Полярные оси кристаллов антипараллельны. Поглощением холостых волн в этом диапазоне можно пренебречь:  $\alpha_i L \ll 1$  [27]. В направлении коллинеарного синхронизма,  $\theta_s = 0$ ,  $\delta = \delta_1 = 0$ , независимо от длины  $L_1$ , согласно (6), наблюдается минимум интенсивности, так как вакуум не обладает дисперсией:

$$\Phi_{1p} = \Phi_{1s} = \Phi_{1i}.$$

<sup>3)</sup> При линейной дифракции первый множитель, также имеющий вид функции  $\text{sinc}(\pi b/\lambda)$ , описывает дифракцию плоской волны на одной щели  $b$ , а второй — интерференцию полей от двух источников:  $\cos(\pi d/\lambda)$ . Фаза интерференционной картины определяется расстоянием между щелями  $d$ .

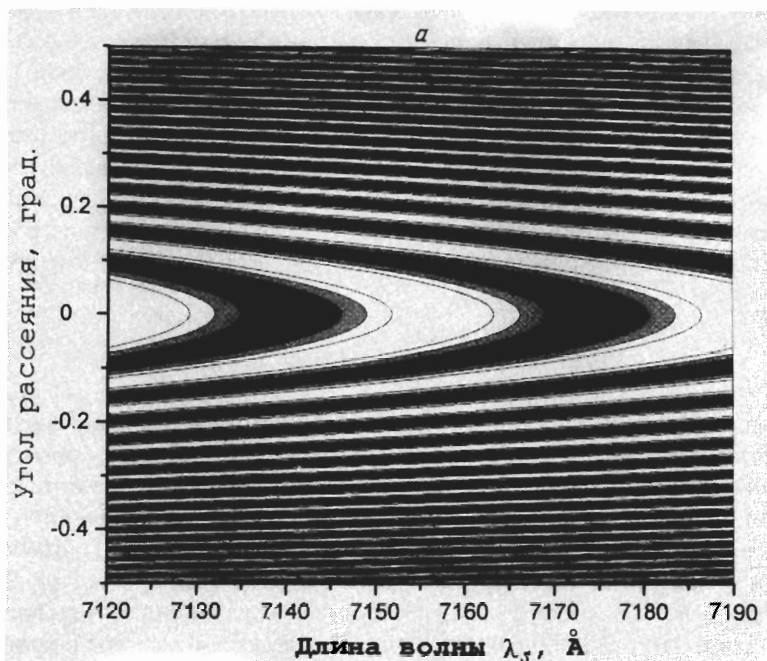


Рис. 2а. Частотно-угловое распределение интенсивности при трехфотонной интерференции: а — модуляционная функция (7), б — учет огибающей (пространственного синхронизма)

По мере увеличения угла рассеяния  $\theta_s$  растет волновая расстройка в зазоре  $\delta_1$  и возникает двумерная интерференционная картина. Рисунок 2а демонстрирует поведение модуляционной функции (7) для приведенных выше параметров, а рис. 2б — результат учета пространственного синхронизма. Обращаем внимание на внешнее сходство частотно-углового распределения рис. 2а с известными еще с начала века спектрами, полученными Рождественским [28] на выходе одноименного интерферометра при освещении его белым светом<sup>4)</sup>. Однако «освещение» нелинейного интерферометра обеспечивается широкополосным излучением спонтанного параметрического рассеяния, а линейного — внешним источником (лампой накаливания). Кроме того, в линейных схемах (интерферометр Маха-Цендера или близкий к нему интерферометр Рождественского) набег разности фаз когерентных волн происходит за счет различия оптических путей в плечах интерферометра. В нелинейном случае плечи пространственно вырождены, но волновая расстройка  $(\delta + \delta_1)$ , фигурирующая в (7), всегда является функцией частоты и угла. Только при точном коллинеарном синхронизме ( $\delta = 0, \theta_s = 0$ ) и вакуумном зазоре суммарный набег фаз  $\Phi_\Sigma = \Phi_{1p} - \Phi_{1s} - \Phi_{1i}$  обращается в нуль независимо от длины зазора  $L_1$ .

Рисунок 3 демонстрирует частотную форму линии рассеяния для конфигурации  $\text{LiNbO}_3$  — воздух —  $\text{LiNbO}_3$  при варьировании значения показателя преломления воз-

<sup>4)</sup> Оба семейства спектров получены по методу скрещенных дисперсий [28, 4].

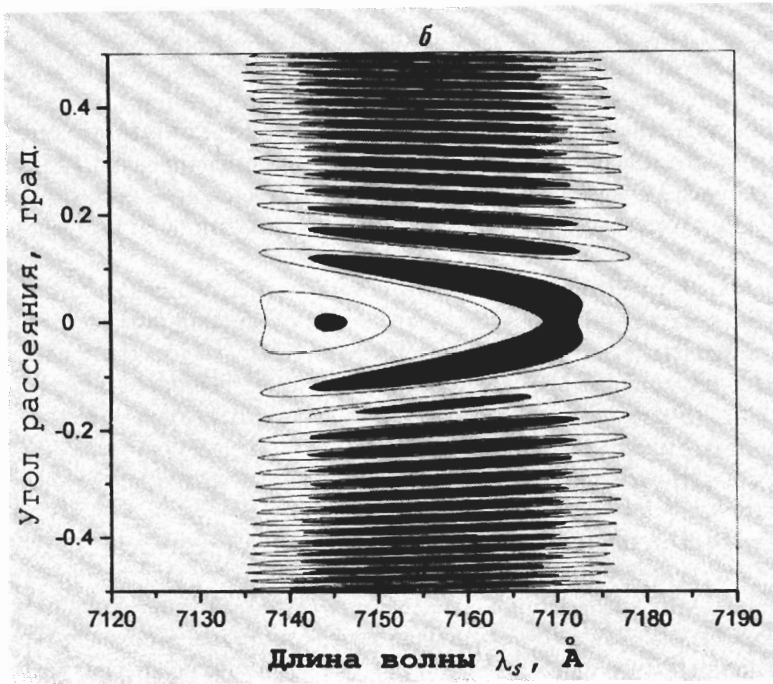


Рис. 26. Продолжение

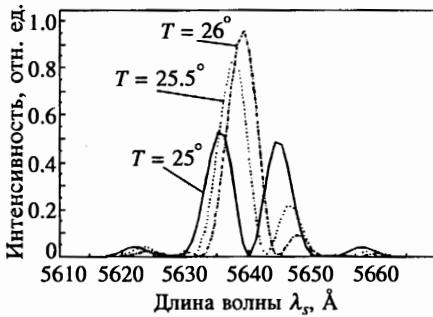


Рис. 3. Частотная форма линии параметрического рассеяния при изменении температуры воздуха между кристаллами (коллинеарный синхронизм)

душной прослойки на холостой частоте.

Вариации показателя преломления среды-прослойки сильно влияют на форму линии рассеяния. Например, если в конфигурации  $\text{LiNbO}_3$  — воздух —  $\text{LiNbO}_3$  длина каждого кристалла  $L = 1$  мм, а прослойки —  $L_1 = 10$  см, то фаза интерференции меняется на  $\pi$  при изменении показателя преломления на единицу четвертого знака. Не останавливаясь подробно на причинах, вызывающих отклонения показателя преломления, заметим, что кроме колебаний температуры, давления, влажности к этому может приводить и наличие всевозможных примесей — газов, мелких частиц и проч. Количественный анализ влияния этих факторов на дисперсию диэлектрической про-

нищаемости  $\epsilon_1(\omega)$  выходит за пределы данной работы. Нам же хотелось подчеркнуть сам факт резкой зависимости формы линии рассеяния от упомянутых параметров. В качестве единственной иллюстрации мы выбрали чувствительность формы линии к изменению температуры воздуха в той же конфигурации ( $L = 1$  мм,  $L_1 = 10$  см). Кроме дисперсии показателя преломления воздуха на всех трех частотах были учтены ее зависимости от атмосферного давления, температуры и парциального давления паров воды [26]. На рис. 3 показаны частотные сканы спектра спонтанного параметрического рассеяния при нулевом угле рассеяния. Трех кривым отвечают разные температуры воздуха в зазоре:  $25^\circ$ ,  $25.5^\circ$  и  $26^\circ$ .

Увеличение базы интерферометра до одного метра поднимает чувствительность формы линии к изменению показателя преломления до единицы шестого знака (а к изменению температуры до десятой доли градуса). Здесь возникает традиционный вопрос: насколько устойчива форма линии рассеяния к погрешности определения длины прослойки  $L_1$ . Иными словами, насколько сильно «замажется» интерференционная структура формы линии при флуктуациях расстояния между кристаллами. Для линейных интерферометрических устройств добавление к оптической длине плеча половины длины волны сдвигает фазу интерференционной картины на  $\pi$ . Совершенно иначе дело обстоит при трехфотонной интерференции. Смещения одного кристалла относительно другого (без изменения ориентации оптической оси) гораздо меньше сказываются на распределении интенсивности в интерференционной картине. Причиной этому служит пространственная вырожденность плеч интерферометра. Поскольку аргумент в (7) является функцией трех частот  $\omega_p$ ,  $\omega_s$  и  $\omega_i$ , то и набег фаз содержит вклады на всех частотах:

$$\Phi_{\Sigma} = 2\pi \{n_{1p}(\omega_p)/\lambda_p - n_{1s}(\omega_s) \cos \vartheta_s/\lambda_s - n_{1i}(\omega_i) \cos \vartheta_i/\lambda_i\} L_1 \quad (10)$$

(мы полагаем волновую расстройку  $\delta$  в нелинейной среде постоянной). При малых углах рассеяния и слабой дисперсии вещества выражение в фигурных скобках в формуле (10) незначительно отличается от нуля, поэтому для заметного изменения фазы необходимы большие возмущения длины  $L_1$ . Производные, определяющие чувствительность и устойчивость трехфотонного интерферометра, соответственно равны ( $\cos \vartheta_s \approx \cos \vartheta_i \approx 1$ )

$$\partial \Phi_{\Sigma} / \partial n_{1i} = -2\pi L_1 / \lambda_i, \quad (11)$$

$$\partial \Phi_{\Sigma} / \partial L_1 = 2\pi \{n_{1p}(\omega_p)/\lambda_p - n_{1s}(\omega_s)/\lambda_s - n_{1i}(\omega_i)/\lambda_i\}. \quad (12)$$

Выражение (11) отражает тот факт, что при увеличении базы  $L_1$  растет точность измерения показателя преломления; из (12) следует слабая зависимость формы линии от флуктуаций  $L_1$  (например, вызванных вибрацией).

Рисунок 4 демонстрирует один из вариантов схемы трехфотонного интерферометра. Здесь вместо двух нелинейных кристаллов, разделенных линейной средой, используется один кристалл и широкополосное металлическое зеркало, расположенное на расстоянии  $L_1/2$  от него. Такая схема эквивалентна обсуждавшейся выше (рис. 1) при работе в режиме, близком к коллинеарному синхронизму. При отражении от зеркала во всех трех модах добавляется сдвиг фаз  $\pi$ , и, таким образом, у изображения кристалла полярная ось оказывается развернутой на  $180^\circ$ . Для пространственного разделения ортогонально поляризованных накачки ( $p$ ) и сигнала ( $s$ ) используется призма Глана–Томсона. Схема, показанная на рис. 4, удобна тем, что избавляет от необходимости точного совмещения ориентации оптических осей двух кристаллов, а также значительно уменьшает



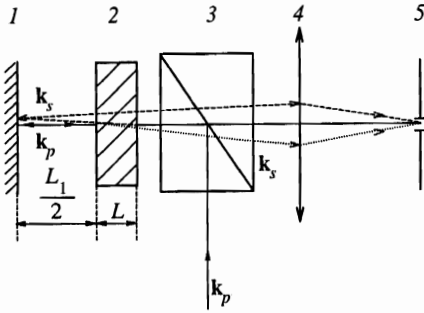


Рис. 4. Схема трехфотонного интерферометра: 1 — широкополосное зеркало, 2 — нелинейный кристалл, 3 — призма Глана-Томсона, 4 — собирающая линза, 5 — входная щель спектрографа

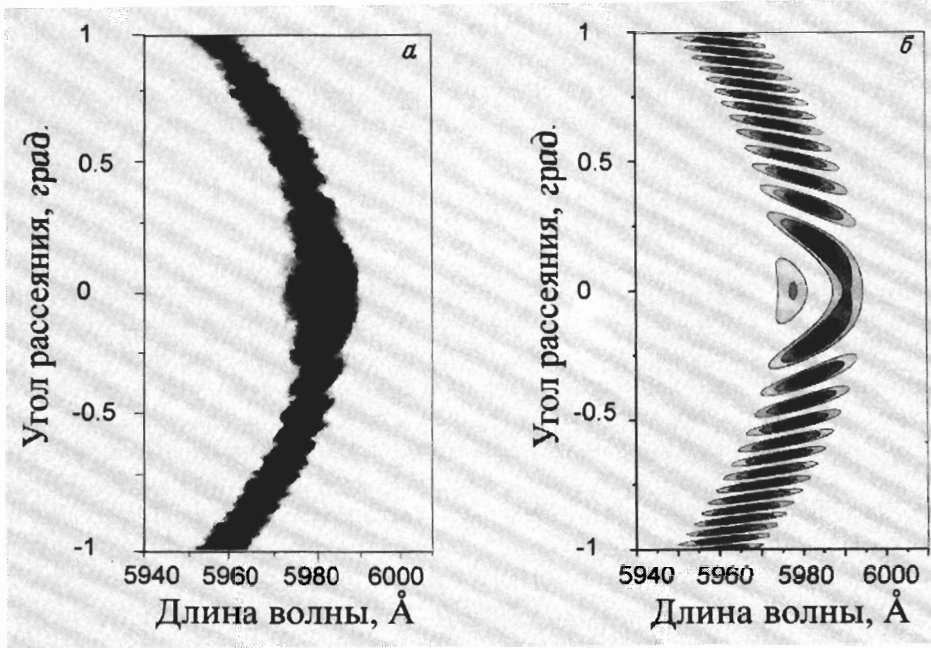


Рис. 5. а — Фотография спектра спонтанного параметрического рассеяния на выходе трехфотонного интерферометра (рис. 4). Кристалл  $\text{LiIO}_3$ . б — Расчетное частотно-угловое распределение интенсивности параметрического рассеяния на выходе интерферометра (рис. 4)

паразитные засветки, характерные для регистрации малоуглового рассеяния. Частотная перестройка осуществляется поворотом кристалла в плоскости, содержащей полярную ось.

На рис. 5а показан экспериментальный спектр спонтанного параметрического рассеяния на выходе трехфотонного интерферометра, собранного по схеме рис. 4<sup>5)</sup>. Кри-

<sup>5)</sup> Первая фотография частотно-углового спектра спонтанного параметрического рассеяния при нелинейной интерференции Маха-Цандера в двух кристаллах приводится в [20]. Сигнальные и холостые фотоны принадлежат видимому диапазону.

сталл иодата лития толщиной  $L = 1$  мм находился перед алюминиевым зеркалом. Между кристаллом и зеркалом — воздушная прослойка  $L_1/2 = 5$  мм. Накачкой служил аргоновый лазер мощностью 3 Вт с длиной волны  $\lambda_p = 4880 \text{ \AA}$ . Частота холостых фотонов, сопряженных наблюдаемым, равна  $3770 \text{ см}^{-1}$ , ширина синхронизма  $20 \text{ \AA}$ , что существенно превышает частотную ширину линии лазера. На рис. 5б показано расчетное частотно-угловое распределение интенсивности для указанных параметров. Хорошее согласие расчетного спектра с экспериментальным позволяет оптимистично оценить перспективу использования трехфотонного интерферометра.

До сих пор мы предполагали, что все три частоты  $\omega_p$ ,  $\omega_s$  и  $\omega_i$  попадают в диапазон прозрачности линейной среды, где дисперсия диэлектрической проницаемости мала. Широкий спектр спонтанного параметрического рассеяния дает, однако, возможность подойти вплотную к области сильной дисперсии. Рассмотрим поведение формы линии рассеяния в случае изолированного резонанса среды-прослойки.

Пусть частоты фотонов накачки и сигнала по-прежнему лежат в диапазоне прозрачности, а дисперсия среды на холостых частотах описывается в одноосцилляторном приближении:

$$\varepsilon_1(\omega_i) = \varepsilon_0 + S\omega_0^2 \frac{\omega_0^2 - \omega_i^2}{(\omega_0^2 - \omega_i^2)^2 + \omega_0^2\Gamma^2}. \quad (13)$$

Параметры  $\varepsilon_0$ , сила осциллятора  $S$ , собственная частота  $\omega_0$ , константа затухания  $\Gamma$ , фигурирующие в (13), были взяты из [29] для высокочастотного колебания О–Н-группы:  $\varepsilon_0 = 3.5$ ,  $S = 0.17$ ,  $\Gamma = 150 \text{ см}^{-1}$ ,  $\omega_0 = 2950 \text{ см}^{-1}$  ( $\lambda_s = 5701 \text{ \AA}$ ). На рис. 6а и б показаны частотно-угловые распределения модуляционной функции (7) и интенсивности рассеяния (6) соответственно. Врезка в правом верхнем углу на рис. 6а иллюстрирует частотную зависимость  $\varepsilon(\omega)$  для приведенных параметров. В окрестности резонанса поведение интерференционных полос (рис. 6а) аналогично «крюкам» Рождественского [28], которые наблюдаются вблизи областей с аномальной дисперсией. Для направления точного синхронизма, как следует из (10), частотное положение «крюка» ( $\partial\Delta_1/\partial\omega_s = 0$ ) отвечает равенству групповых скоростей сигнального и холостого фотонов в линейной среде:

$$\frac{\partial}{\partial\omega_s}(n_{1s}\omega_s) = \frac{\partial}{\partial\omega_i}(n_{1i}\omega_i).$$

Очевидно, что период следования полос в спектре вдоль оси длин волн уменьшается по мере приближения к резонансу:  $\omega_i \rightarrow \omega_0$ , так как  $\partial\Phi_2/\partial\omega_i \approx \partial n_{1i}/\partial\omega_i$ . Подчеркнем, что, согласно (12), уменьшение длины линейного слоя  $L_1$  может быть скомпенсировано сильной дисперсией диэлектрической проницаемости линейной среды. Отсюда следует важный вывод о возможности использования эффекта трехфотонной интерференции для исследования тонких диспергирующих пленок. Так, величина  $L_1$ , фигурирующая при расчете (рис. 6), составляет 10 мкм.

Одним из условий наблюдения трехфотонной интерференции в такой схеме является слабое поглощение холостых фотонов в нелинейных кристаллах (4). Другими словами, необходимо, чтобы холостые фотоны выходили из первого кристалла и попадали во второй. Поглощение уменьшает контраст интерференционной картины и практически не влияет на положение интерференционных максимумов. В настоящее время известен целый ряд нелинейных кристаллов, обладающих малым поглощением в ближнем ИК-диапазоне [30], и выбор конкретного образца не составит серьезных затруднений при практической реализации нелинейного интерферометра.

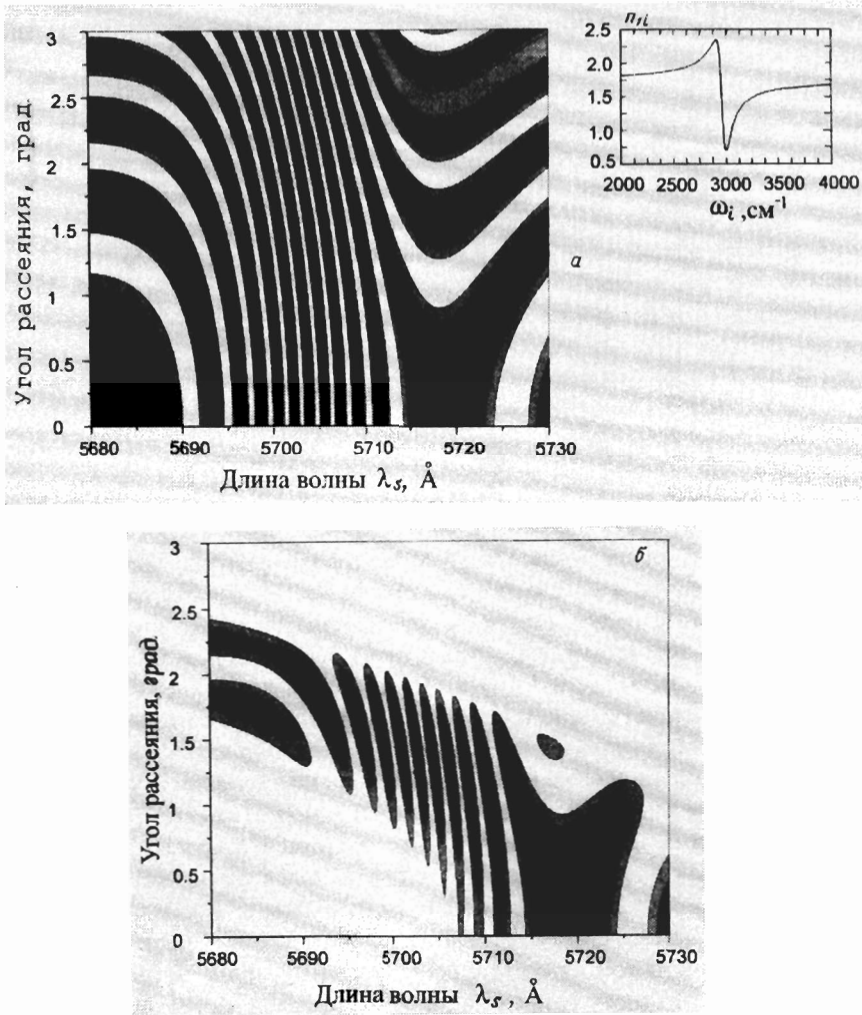


Рис. 6. Поведение модуляционной функции (а) и формы линии рассеяния  $g(\omega_s, \theta_s)$  (б) в окрестности резонанса диэлектрической проницаемости с параметрами  $\epsilon_0 = 3.5$ ,  $S = 0.17$ ,  $\Gamma = 150 \text{ см}^{-1}$ ,  $\omega_0 = 2950 \text{ см}^{-1}$ . Толщина линейной среды  $L_1 = 10 \text{ мкм}$

Другая причина уменьшения контраста возникает, когда характерные угловые и частотные масштабы модуляционной формы линии становятся меньше, соответственно, угловой расходимости и частотной ширины линии накачки. Например, учет конечной ширины линии накачки приводит к следующему ограничению:

$$l_{coh} \gg 2 \frac{c}{n_{1p}} L_1 \left( \frac{1}{u_s \cos \vartheta_{1s}} - \frac{1}{u_i \cos \vartheta_{1i}} \right), \quad (14)$$

где  $l_{coh}$  — длина когерентности накачки,  $c/n_{1p}$  — скорость света в линейном промежутке на частоте накачки,  $u_s, u_i$  — групповые скорости для сигнального и холостого излучения,  $\vartheta_{1s}, \vartheta_{1i}$  — соответствующие углы рассеяния внутри линейного слоя.

### 3. СИСТЕМА «НЕЛИНЕЙНЫЙ КРИСТАЛЛ — НЕЛИНЕЙНЫЙ КРИСТАЛЛ»

Для вычисления частотно-угловой формы линии спонтанного параметрического рассеяния системы «нелинейный кристалл — нелинейный кристалл» был использован подход, развитый в [31]. Квадратичные восприимчивости кристаллов полагались одинаковыми, в то время как показатели преломления различались. Такая ситуация возникает, например, при легировании образцов  $\text{LiNbO}_3$  атомами магния для предотвращения эффекта оптического повреждения [32]. Концентрация Mg сильно влияет на значения показателей преломления, особенно в ИК-области спектра [33]. Если длины кристаллов равны  $L$  и  $L_2$ , форма линии рассеяния имеет вид

$$g(\omega_s, \theta_s) = \frac{1}{(L + L_2)^2} \times \left[ L^2 \text{sinc}^2 \frac{L\Delta}{2} + L_2^2 \text{sinc}^2 \frac{L_2\Delta_2}{2} + 2LL_2 \text{sinc} \frac{L\Delta}{2} \text{sinc} \frac{L_2\Delta_2}{2} \cos \frac{L\Delta + L_2\Delta_2}{2} \right], \quad (15)$$

$\Delta = k_p - k_s - k_i$  и  $\Delta_2 = k_{2p} - k_{2s} - k_{2i}$  — расстройки волновых векторов в первом и во втором кристаллах, совпадающие с (8). Нормировка выбрана так, чтобы при  $\Delta = \Delta_2$  интенсивность рассеяния в максимуме была равна 1. Первые два члена в квадратных скобках (15) учитывают аддитивное наложение спектров рассеяния двух кристаллов, третий член — интерференционный. Фаза интерференции определяется «трехфотонной суммой» оптических путей  $(L\Delta + L_2\Delta_2)/2$ . Таким образом, нелинейная интерференция в рассматриваемой конфигурации проявляется только в области пересечения частотно-угловых спектров спонтанного параметрического рассеяния двух кристаллов. Заметим, что форма линии рассеяния особенно чувствительна к изменениям показателя преломления на любой из трех частот при больших длинах  $L$  и  $L_2$ . При этом, однако, уменьшается частотная ширина линии рассеяния. Так, например, для того чтобы обнаружить изменение показателя преломления  $\Delta n \sim 10^{-3}$  на холостой частоте  $\omega_i = 5000 \text{ см}^{-1}$ , достаточно использовать образцы длиной 1 мм, и в этом случае ожидаемая частотная ширина линии рассеянного света оказывается порядка  $50 \text{ см}^{-1}$ . Если же изменение показателя преломления на той же частоте составляет  $10^{-4}$ , придется работать с кристаллами длиной 10 мм, что соответствует на порядок меньшей частотной ширине спектра. В этом случае существенным может оказаться поглощение на холостой частоте. При наличии поглощения контраст интерференционной картины уменьшается; строго говоря, данное описание применимо при  $L, L_2 \ll 1/\alpha$ , где  $\alpha$  — коэффициент поглощения на холостой частоте. Все сказанное накладывает ограничение на точность измерения показателя преломления:

$$\Delta n_i \sim c\alpha/\omega_i,$$

т. е. действительную часть волнового вектора можно измерить лишь с точностью до его мнимой части. Аналогичная проблема возникает и в обычной спектроскопии поляритонного рассеяния, когда действительная часть диэлектрической проницаемости на данной частоте измеряется по положению максимума угловых спектров (с точностью порядка ширины линии) [34].

На рис. 7 показано семейство расчетных частотных распределений интенсивности спонтанного параметрического рассеяния при коллинеарном синхронизме. Оба кристалла — ниобаты лития ( $L = L_2 = 1 \text{ мм}$ ), легированные магнием [35]. Параметром

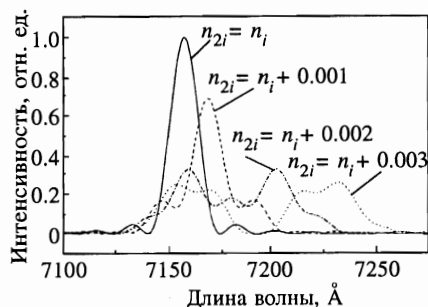


Рис. 7. Частотная форма линии при рассеянии в двух кристаллах  $\text{LiNbO}_3$  для различных значений показателя преломления на холостой частоте.  $L = L_2 = 1$  мм, длина волны накачки 4880 Å

выступало значение показателя преломления на холостой частоте во втором кристалле, наиболее чувствительное к изменению концентрации магния [33]. Видно, что отклонение показателя преломления на две единицы в третьем знаке после запятой заметно искажает форму линии рассеяния. При разнице  $\Delta n_i \geq 0.005$  влияние интерференционного члена существенно меньше из-за слабого перекрытия спектров двух кристаллов.

В заключение отметим, что эффект трехфотонной интерференции, в силу высокой чувствительности и устойчивости, мог бы оказаться полезным для контроля за наличием примесей в оптических материалах (особенно если примесь имеет резонансы в полосе прозрачности используемых кристаллов), исследования тонких диспергирующих пленок и проч.

Кроме того, мы надеемся, что использование трехфотонной интерферометрии поднимет точность стандартной СПР-спектроскопии по определению частотной зависимости показателя преломления в нелинейных кристаллах, в частности, при оценке степени их пространственной однородности, контроле двойниковой структуры. Наконец, такого рода интерферометры могут быть использованы для исследования наведенных изменений показателя преломления в фоторефрактивных кристаллах. В одном из возможных вариантов эксперимента исследуемый кристалл помещается в зазор между двумя образцами другого нелинейного кристалла, нечувствительного к излучению, и интерференционная картина наблюдается в зависимости от интенсивности накачки. Типичные величины изменения показателя преломления в слабо фоторефрактивных кристаллах (как, например, ниобаты лития с добавкой магния) в области прозрачности могут составлять  $10^{-4}$ – $10^{-5}$  [36], и для их обнаружения понадобятся кристаллы длиной 1–10 см.

Авторы благодарны Д. Н. Клышко за полезные советы. Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 97-02-17498).

## Литература

1. Ю. Н. Поливанов, УФН 126, 185 (1978).
2. Д. Н. Клышко, *Фотоны и нелинейная оптика*, Наука, Москва (1980).
3. G. D. Boyd and D. A. Kleinmann, J. Appl. Phys. 39, 3597 (1968).
4. Д. Н. Клышко, А. Н. Пенин, Б. В. Полковников, Письма в ЖЭТФ 11, 11 (1970).

5. J. Chang, J. Ducuing, and N. Blombergen, *Phys. Rev. Lett.* **15**, 6 (1965).
6. J. J. Wynne and N. Blombergen, *Phys. Rev.* **188**, 1211 (1969).
7. Y. Yacoby, R. Fitzgibbon, and B. Lax, *J. Appl. Phys.* **51**, 3072 (1980).
8. Jae Won Hahn and Eun Seony Lee, *J. Opt. Soc. Am. B* **12**, 1021 (1995).
9. N. Blombergen and A. J. Sievers, *Appl. Phys. Lett.* **17**, 483 (1970), I. Freund, *Phys. Rev. Lett.* **21**, 1404 (1968).
10. A. Szilagyı, A. Hordvik, and H. G. Schlossberg, *Appl. Phys.* **47**, 2025 (1975); M. Okada, T. Tarizana, and S. Ieiri, *Opt. Comm.* **18**, 331 (1976); Feug Duan, Ming Nai-Ben, Hong Jing-Fen et al., *Appl. Phys. Lett.* **37**, 607 (1980).
11. Г. Х. Китаева, А. А. Михайловский, А. Н. Пенин, *ЖЭТФ* **112**, 2001 (1997).
12. Г. Х. Китаева, Д. Н. Клышко, И. В. Таубин, *Квант. электр.* **9**, 167 (1982).
13. Д. Н. Клышко, *ЖЭТФ* **104**, 2676 (1993); **105**, 1574 (1994).
14. О. А. Акципетров, Г. Х. Китаева, Е. Д. Мишина, А. Н. Пенин, *ФТТ* **21**, 1834 (1979).
15. А. Л. Александровский, Г. Х. Китаева, С. П. Кулик, А. Н. Пенин, *ЖЭТФ* **90**, 1051 (1986); G. Kh. Kitaeva, S. P. Kulik, and A. N. Penin, *Ferroelectrics* **172**, 469 (1995).
16. X. Y. Zou, L. J. Wang, and L. Mandel, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 318 (1991); L. J. Wang, X. Y. Zou, and L. Mandel, *Phys. Rev. A* **44**, 4615 (1991).
17. T. J. Herzog, J. G. Rarity, H. Weinfurter, and A. Zeilinger, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 629 (1994).
18. Z. Y. Ou, X. Y. Zou, L. J. Wang, and L. Mandel, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 321 (1990); M. A. Horne, A. Shimony, and A. Zeilinger, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 2209 (1989).
19. A. V. Burlakov, M. V. Chekhova, D. N. Klyshko, S. P. Kulik, et al., *Phys. Rev. A* **56**, 3214 (1997).
20. А. В. Бурлаков, Д. Н. Клышко, С. П. Кулик, А. Н. Пенин, М. В. Чехова, *Письма в ЖЭТФ* **65**, 20 (1997).
21. Special issue on quantum communication, *J. Mod. Opt.* **41**, 12 (1994).
22. R. Stolle, G. Marowsky, E. Schwarzberg, and G. Berkovic, *Appl. Phys. B* **63**, 491 (1996).
23. О. А. Акципетров, Е. Д. Мишина, Т. В. Митсuryaев, А. А. Никulin et al., submitted to *Surf. Science* (1998).
24. A. M. Steinberg, P. G. Kwiat, and R. Y. Chiao, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 2421 (1992); A. M. Steinberg and R. Y. Chiao, *Phys. Rev. A* **51**, 3525 (1995).
25. B. Yurke, S. L. McCall, and J. R. Klauder, *Phys. Rev. A* **33**, 4033 (1986).
26. М. Борн, Э. Вольф, *Основы оптики*, Наука, Москва (1970).
27. Ю. С. Кузьминов, *Электрооптический и нелинейнооптический кристалл ниобата лития*, Наука, Москва (1987).
28. Д. С. Рождественский, *Работы по аномальной дисперсии в парах металлов*, изд-во Академии наук СССР, Москва (1951).
29. М. В. Chekhova, A. V. Zhdanov, T. V. Laptinskaya, and A. N. Penin, *Ferroelectrics Lett.* **9**, 131 (1988).
30. Д. Н. Никогосян, *Квант. электр.* **4**, 5 (1977).
31. Д. Н. Клышко, *УФН* **154**, 133 (1988).
32. U. Shrlab and K. Betzler, *Phys. Rev. B* **50**, 751 (1994).
33. G. Kh. Kitaeva, I. I. Naumova, A. A. Mikhailovsky, P. S. Losevsky, and A. N. Penin, *Appl. Phys. B* **66**, 201 (1998).
34. М. В. Chekhova and A. N. Penin, *J. Raman Spec.* **24**, 581 (1993).
35. А. Л. Александровский, Г. И. Ершова, Г. Х. Китаева, С. П. Кулик, И. И. Наумова, В. В. Тарасенко, *Квант. электр.* **18**, 254 (1991).
36. Т. Р. Волк, Н. М. Рубинина, *ФТТ* **33**, 1192 (1991).