ПАРАМЕТРИЧЕСКОЕ ПРЕОБРАЗОВАНИЕ СВЕТА В СЛОИСТЫХ НЕЛИНЕЙНЫХ СРЕДАХ

Г. Х. Китаева^{*}, А. Н. Пенин

Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова 119992, Москва, Россия

Поступила в редакцию 22 мая 2003 г.

Проведен теоретический расчет частотно-углового распределения интенсивности сигнального излучения при спонтанном параметрическом рассеянии света и параметрическом преобразовании частоты в пространственно-неоднородных нелинейных средах: при учете отражения волн от границ слоя, а также неоднородного распределения квадратичной восприимчивости регулярного и нерегулярного типа. В расчетах спонтанных и вынужденных процессов в диссипативных нелинейных средах использован единый подход, основанный на определении матриц рассеяния и применении обобщенного закона Кирхгофа. Исследуются эффекты интерференции нулевых флуктуаций электромагнитного вакуума, нелинейной интерференции и нелинейной дифракции при различном поглощении среды. Разработаны теоретические основы метода диагностики пространственно-неоднородного распределения квадратичной восприимчивости по форме линии нелинейного сигнала.

PACS: 42.65.Ky, 42.50.Nn, 42.50.Lc, 42.65.Lm

1. ВВЕДЕНИЕ

В последнее время большое внимание привлекают среды с изменяющимися по объему линейными и нелинейными оптическими свойствами [1, 2]. Они широко используются в нелинейной оптике и лазерной физике [3–9]. Существует устойчивый интерес к исследованию особенностей параметрических процессов в кристаллах с глубокой модуляцией квадратичной восприимчивости [3, 4, 6–8]. На наш взгляд, этот интерес будет иметь также большое значение для развития лазерной спектроскопии твердого тела и полимеров, поскольку параметрические процессы открывают принципиально новые возможности для анализа строения и структурных преобразований в неоднородных полидоменных кристаллах и полимерных материалах [9].

Пространственная (периодическая или случайная по объему конкретного образца) неоднородность оказывает существенное воздействие на нелинейные оптические процессы, основной особенностью которых является необходимое выполнение условий фазового синхронизма. Выполнение закона сохране-

ния энергии, который в стационарных условиях приобретает вид равенства нулю алгебраической суммы частот, участвующих в процессе взаимодействия волн, является строгим. В отличие от этого, закон сохранения импульса может выполняться с точностью до некоторой расстройки, когда часть импульса световых волн передается среде. В общем случае на параметрические процессы в пространственно-неоднородных средах оказывают влияние изменения линейных и нелинейных оптических параметров на границах отдельных областей, их форма, объем, характеристики границ, коэффициенты рассеяния, поглощения, нелинейного оптического преобразования и т. д. Учет суммарного воздействия всех причин на двумерный или, в общем случае, трехмерный спектр рассеяния (а это воздействие носит интегральный характер) представляется весьма сложным. В значительной мере упростить анализ позволяет использование в расчетах обобщенного закона Кирхгофа — нелинейного аналога закона Кирхгофа, который сформулировал Клышко [10, 11] в рамках разработки единого феноменологического подхода к описанию как спонтанных, так и вынужденных процессов параметрического взаимодействия в диссипативных средах со слабой нелинейно-

^{*}E-mail: kit@qopt.phys.msu.su

стью. Обобщенный закон Кирхгофа позволяет определить вторые корреляционные моменты полей на выходе нелинейной среды по соответствующим моментам, заданным на входе, а также рассчитать как частотно-угловое распределение интенсивности выходного поля (спектр рассеяния), так и его статистику. В расчетах такого вида постулируется линейная связь между гейзенберговскими операторами всех входных и выходных полей (за исключением накачки, считающейся классической волной заданной интенсивности). Эта связь формулируется в терминах матрицы рассеяния, причем сами элементы матрицы могут быть рассчитаны в рамках классической нелинейной оптики. В этом случае они связывают классические напряженности полей во всех входных и выходных модах излучения.

В данной работе представлены результаты применения обобщенного закона Кирхгофа к исследованию особенностей параметрических процессов в средах с пространственно-неоднородным распределением оптических параметров. Речь пойдет о трехволновых процессах спонтанного параметрического рассеяния света (СПР; spontaneous parametric down-conversion, SPDC) и параметрического преобразования частоты (ПП; parametric conversion, РС) в средах без центра инверсии [10]. Процесс СПР [12–14], предсказанный Клышко в 1966 г.¹⁾, представляет собой рассеяние (распад) фотонов монохроматического излучения (накачки) с частотой ω_0 на квантовых флуктуациях поля в среде с отличной от нуля квадратичной восприимчивостью $\chi^{(2)}$. В результате внутри среды возникает излучение, состоящее из пар коррелированных по времени и месту рождения фотонов. Частоты родившихся фотонов, ω_1 и ω_2 , связаны между собой соотношением

$$\hbar\omega_0 = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2. \tag{1}$$

Направления распространения определяются условием фазового синхронизма:

$$\mathbf{k}_0 = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \Delta \mathbf{k},\tag{2}$$

где \mathbf{k}_j — волновые векторы, $|\mathbf{k}_j| = n_j \omega_j/c$, n_j показатели преломления среды на частотах ω_j (j = 0, 1, 2). Излучение на частотах ω_1 , ω_2 рождается в широком диапазоне частот от нуля до ω_0 . По традиции, излучение на частотах, попадающих в диапазон от $\omega_0/2$ до ω_0 , называют сигнальным (ω_1) , а оставшуюся часть с частотами, лежащими в диапазоне от нуля до $\omega_0/2$ — холостым (ω_2). Как правило, в эксперименте реализуется ситуация, когда сигнальное излучение попадает в диапазон, удобный для последующей регистрации. Условие фазового синхронизма связывает волновые векторы \mathbf{k}_j в среде и выполняется с точностью до величины расстройки $\Delta \mathbf{k}$, зависящей от поглощения, размеров, формы освещенного (возбужденного) накачкой объема среды и дисперсии ее показателя преломления.

Появление фотонов на частотах ω_1 и ω_2 при СПР (в отсутствие каких-либо волн на этих частотах на входе) можно объяснить только в рамках последовательной квантовой теории. Вне области поглощения рассеянное излучение покидает среду и состоит из пар взаимно коррелированных фотонов — бифотонов [15, 16]. СПР можно трактовать как результат рассеяния накачки на флуктуациях электромагнитного вакуума в нелинейной среде. Если одна из частот попадает в область поглощения, например, ω_2 в область фононных резонансов, то рождается пара фотон-поляритон. В этом случае рассеяние идет не только на флуктуациях вакуума, но и на тепловых флуктуациях поля рассеивающей среды [17, 18]. Если кроме накачки на входе в среду присутствует входное поле на частотах сигнального или холостого диапазона, то наряду со спонтанным рассеянием будут идти процессы параметрического преобразования частоты накачки с образованием аналогичных пар. В отличие от СПР, описание ПП частоты возможно как в рамках квантового, так и классического подходов [19].

Ниже с помощью обобщенного закона Кирхгофа будет рассмотрен ряд конкретных вопросов, связанных с влиянием неоднородности среды на спектры СПР и ПП света. В разд. 2 обобщенный закон Кирхгофа будет применен для расчета формы линии сигнала в простейшем случае плоского слоя нелинейного вещества конечной толщины. Эта модель уже неоднократно рассматривалась ранее в рамках других подходов [10]. Приведенное рассмотрение, включающее расчет элементов матрицы рассеяния, представляет методический интерес для понимания последующего изложения. В разд. 3 описан расчет частотно-угловых спектров сигналов СПР и ПП в плоском слое с учетом отражения волн от его границ [20]. Анализируется тонкая интерференционная структура линии при различном поглощении средой сигнальных и холостых волн. Далее рассмотрено влияние на спектр СПР интерференции нулевых флуктуаций электромагнитного вакуума (разд. 4) и пространственного распределения эффективной ве-

¹⁾ Д. Н. Клышко, Доклад на Всесоюзном совещании по нелинейным свойствам сред, Черноголовка (1966).

личины квадратичной восприимчивости (разд. 5).

Основное внимание уделяется изучению особенностей протекания в пространственно-неоднородной среде трехволновых процессов СПР и параметрической генерации разностной частоты. Однако все результаты, полученные для генерации разностной частоты, с небольшими дополнениями применимы и для генерации оптических гармоник, суммарных частот, а также каскадных взаимодействий более высоких порядков в режиме заданной накачки и линейного усиления остальных волн.

2. МАТРИЦА РАССЕЯНИЯ И ФОРМА ЛИНИИ СИГНАЛА В ПЛОСКОМ СЛОЕ

Для трехволновых параметрических взаимодействий, согласно обобщенному закону Кирхгофа, среднее число фотонов в модах выходного излучения сигнального $N_{1'} \equiv \langle a_1^{\dagger}, a_{1'} \rangle$ и холостого $N_{2'} \equiv \langle a_{2'}^{\dagger}, a_{2'} \rangle$ диапазона равно

$$N_{1'} = \hat{U}_{1'1} (N_1 + N_0 + I) \hat{U}_{1'1}^{\dagger} + \hat{U}_{1'2} \left(\tilde{N}_2 - N_0 \right) \hat{U}_{1'2}^{\dagger} - N_0 - I, \quad (3)$$

$$N_{2'} = \hat{U}_{2'1} (\tilde{N}_1 + N_0 + I) \hat{U}_{2'1}^{\dagger} + \\ + \hat{U}_{2'2} (N_2 - N_0) \hat{U}_{2'2}^{\dagger} + N_0.$$
(4)

Здесь I — единичная матрица, $\hat{U}_{i'j}$ — составные элементы матрицы рассеяния

$$\hat{U} = \begin{pmatrix} \hat{U}_{1'1} & \hat{U}_{1'2} \\ \hat{U}_{2'1} & \hat{U}_{2'2} \end{pmatrix}$$

Индексы «1'» и «2'» пробегают по всем модам выходного сигнального и холостого излучения, индексы «1» и «2» — по всем соответствующим модам входного излучения;

$$(N_1)_{ij} \equiv \langle a_{1_i}^{\dagger} a_{1_j} \rangle, \quad (N_2)_{ij} \equiv \langle a_{2_i}^{\dagger} a_{2_j} \rangle$$

— матрицы, описывающие вторые моменты входного поля, \tilde{N}_1 , \tilde{N}_2 — транспонированные матрицы; a_k^{\dagger} и a_k — операторы рождения и уничтожения фотонов в модах k;

$$N_0 \equiv 1 / \left[\exp(\hbar \omega_f / kT) - 1 \right]$$

— температурный фактор, ω_f — частота фононного резонанса среды. При комнатной температуре, как правило, температурный фактор существенно меньше единицы и может не учитываться. Различие выражений (3) и (4) для сигнальных и холостых фотонов обусловлено тем, что предполагается наличие поглощения только на частотах холостого диапазона. В наиболее часто реализуемых условиях эта ситуация более вероятна, чем наличие поглощения на частотах сигнала и накачки.

Матрица рассеяния \dot{U} связывает как сами операторы, так и первые моменты операторов рождения и уничтожения падающих на среду ($\langle a_1^{\dagger} \rangle$, $\langle a_2 \rangle$) и выходящих из нее ($\langle a_1^{\dagger} \rangle$, $\langle a_{2'} \rangle$) полей:

$$\langle a_{1'}^{\dagger} \rangle = \hat{U}_{1'1} \langle a_{1}^{\dagger} \rangle + \hat{U}_{1'2} \langle a_{2} \rangle, \langle a_{2'} \rangle = \hat{U}_{2'1} \langle a_{1}^{\dagger} \rangle + \hat{U}_{2'2} \langle a_{2} \rangle.$$
 (5)

С точностью до общих нормировочных коэффициентов для каждой моды поля вне нелинейного плоского слоя справедливы соотношения

$$\langle a_j^{\dagger} \rangle \sim \langle a_j \rangle \sim A_j \equiv E_j \sqrt{\frac{\cos \theta_j}{\omega_j}}$$

где E_j — амплитуда напряженности поля, θ_j — угол падения волны на слой (угол между нормалью к поверхности слоя и волновым вектором). Если поглощения нет, то матрица рассеяния унитарна и удовлетворяет соотношению

$$\hat{U}\hat{\sigma}\hat{U}^{\dagger}=\hat{\sigma},$$

где $\sigma_{mn} = (-1)^{m+1} \delta_{mn}, \, \delta_{mn}$ — символ Кронеккера. Все элементы матрицы рассеяния могут быть определены экспериментально. Однако во многих случаях достаточным может быть теоретический расчет элементов матрицы рассеяния \hat{U} на основании уравнений для медленно меняющихся амплитуд полей. Подставив найденные элементы матрицы Ü в уравнение (3) и определив среднее число фотонов в каждой моде выходного излучения, можно рассчитать интенсивность $P_{\omega\Omega}$ выходного излучения (мощность, излучаемую в единичный телесный угол с единичной площадки и в единичный спектральный интервал) и ее зависимость от частоты и угла рассеяния (направления наблюдения), т. е. форму линии, или формфактор. Интенсивность сигнального излучения на выходе среды будет равна

$$P_{\omega_1\Omega_1} = \frac{\hbar\omega_1^3\cos\theta_1}{c^2v} N_{1'},\tag{6}$$

где v — объем, приходящийся на одну моду излучения в пространстве волновых векторов. Соответственно, сигнал на детекторе с квантовой эффективностью η_1 , расположенном в дальней зоне, составит

$$P_1 = \int_{\Delta\omega_{det}} d\omega_1 \int_{\Delta\Omega_{det}} d\Omega_1 \,\xi_1(\omega_1, \Omega_1) \,P_{\omega_1\Omega_1}, \quad (7)$$

где $\xi_1(\omega_1, \Omega_1) \equiv \eta_1 / \hbar \omega_1 c \cos \theta_1$. Интегрирование ведется по спектральной $(\Delta \omega_{det})$ и пространственной $(\Delta \Omega_{det})$ полосам пропускания детектора.

Корреляционный момент $K' \equiv \langle a_{1'} a_{2'} \rangle^*$, определяющий статистические свойства бифотонного поля на выходе из среды, равен

$$K' = \hat{U}_{2'1} \left(\tilde{N}_1 + N_0 + I \right) \tilde{\hat{U}}_{1'1} + \tilde{\hat{U}}_{2'2} (N_2 - N_0) \tilde{\hat{U}}_{1'2}.$$
 (8)

Моменты $N_{1'}$, $N_{2'}$ и коррелятор второго порядка K' задают четвертый момент рассеянного поля:

$$\langle a_{1'_i}^{\dagger} a_{1'_j} a_{2'_m}^{\dagger} a_{2'_n} \rangle = N_{1'_i 1'_j} N_{2'_m 2'_n} + K_{1'_i 2'_m} K_{1'_j 2'_n}^*,$$

который описывает корреляцию сигнальных и холостых фотонов. Для его определения необходимо измерить корреляционную функцию показаний детекторов сигнального и холостого каналов [15, 16].

Пусть на плоский слой нелинейного вещества толщиной ℓ падают интенсивная волна накачки $E_0 \exp(i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r} - i\omega_0 t)$ и две существенно менее интенсивные волны: сигнальная $E_{10} \exp(i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r} - i\omega_1 t)$ и холостая $E_{20} \exp(i\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r} - i\omega_2 t)$. Укороченные уравнения, описывающие данный процесс [21], в приближении заданной накачки имеют вид

$$\frac{dE_1(z)}{dz} + i\sigma_1 E_0 E_2^*(z) \exp\left(-\frac{iz\Delta}{\ell}\right) + \frac{y_1}{\ell} E_1(z) = 0,$$

$$\frac{dE_2(z)}{dz} + i\sigma_2 E_0 E_1^*(z) \exp\left(-\frac{iz\Delta}{\ell}\right) + \frac{y_2}{\ell} E_2(z) = 0.$$
(9)

Здесь

$$\Delta \equiv \ell \left(|k_{1z}| + |k_{2z}| - |k_{0z}| \right) \equiv \delta_1 + \delta_2 - \delta_0$$

— безразмерная волновая расстройка; $\sigma_j \equiv 2\pi\chi\omega_j/cn_j\cos\vartheta_j, \chi$ — свертка тензора квадратичной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$ с ортами поляризации сигнальной и холостой волн и волны накачки; $y_j \equiv \alpha_j \ell/2\cos\vartheta_j, \alpha_j$ — коэффициент поглощения вещества слоя на частоте ω_j, ϑ_j — угол между нормалью к поверхности и волновым вектором соответствующей волны внутри слоя. В случае слабого поглощения коэффициент α_j связан с мнимой частью диэлектрической проницаемости ε_j'' соотношением $\alpha_j = \omega_j \varepsilon_j''/cn_j$.

Взаимодействие волн $E_1(z)$, $E_2(z)$ и $E_0 \exp(i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r} - i\omega_0 t)$ может быть описано матрицей параметрического взаимодействия \hat{w} , связывающей плоские волны, удовлетворяющие условиям (1) и (2):

$$\begin{pmatrix} A_{1}(\ell/2) \\ A_{2}(\ell/2) \end{pmatrix} = \\ = \begin{pmatrix} w_{11} & w_{12} \\ w_{21} & w_{12} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A_{1}(-\ell/2) \\ A_{2}(-\ell/2) \end{pmatrix}.$$
(10)

Здесь

$$A_{1,2}\left(\pm\frac{\ell}{2}\right) \equiv E_{1,2}\left(\pm\frac{\ell}{2}\right)\sqrt{\frac{\cos\theta_{1,2}}{\omega_{1,2}}},$$

где $E_{1,2}(-\ell/2)$ — амплитуды волн на входе в среду, а $E_{1,2}(\ell/2)$ — на выходе. В рассматриваемом случае матрица \hat{w} совпадает с матрицей рассеяния \hat{U} , а ее элементы, как следствие (9), имеют вид

$$w_{11} = e^{-\mu} \left(\operatorname{ch} \gamma + \frac{\eta \operatorname{sh} \gamma}{\gamma} \right),$$

$$w_{22} = e^{-\mu^*} \left(\operatorname{ch} \gamma - \frac{\mu \operatorname{sh} \gamma}{\gamma} \right),$$

$$w_{12} = -i\beta e^{-y/2} \frac{\operatorname{sh} \gamma}{\gamma}, \quad w_{21} = i\beta^* e^{-y/2} \frac{\operatorname{sh} \gamma}{\gamma},$$

(11)

где введены следующие обозначения:

$$y \equiv y_1 + y_2, \quad \mu \equiv (y_1 + y_2 + i\Delta)/2,$$

$$\eta \equiv (-y_1 + y_2 + i\Delta)/2,$$

$$\gamma \equiv \sqrt{|\beta|^2 + |\eta|^2},$$

$$\beta \equiv \frac{2\pi\omega_1\omega_2\chi\ell E_0}{c^2\sqrt{k_{1z}k_{2z}}}\sqrt{\frac{\cos\theta_0}{n_0\cos\vartheta_0}}.$$
(12)

В важных с точки зрения эксперимента случаях можно ограничиться первыми членами разложения элементов матрицы \hat{w} по степеням поля накачки. Тогда имеем

$$w_{11} \approx e^{-y_1} + |\beta|^2 f_1(\eta), w_{22} \approx e^{-y_2} + |\beta|^2 f_2(\eta), w_{12} \approx i\beta f(\eta), \quad w_{21} \approx -i\beta^* f(\eta),$$
(13)

где

$$f_{1}(\eta) \equiv \frac{1}{(2\eta)^{2}} \left[e^{-y_{2}-i\Delta} - (1-2\eta) e^{-y_{1}} \right],$$

$$f_{2}(\eta) \equiv \frac{1}{(2\eta)^{2}} \left[e^{-y_{1}+i\Delta} - (1+2\eta) e^{-y_{2}} \right], \qquad (14)$$

$$f(\eta) \equiv \frac{1}{2\eta} \left[e^{-y_{2}-i\Delta/2} - e^{-y_{1}+i\Delta/2} \right].$$

Согласно обобщенному закону Кирхгофа, при поглощении на холостых частотах (см. (3)) энергетические характеристики сигнала СПР определяются следующим соотношением:

$$N_{1'}^{SPDC} = |w_{11}|^2 - 1.$$

Отсюда, с учетом (6) и (13), для интенсивности излучения СПР в линейном по интенсивности накачки приближении получим:

$$\left. P_{\omega_1 \Omega_1}^{SPDC} \right|_{\substack{y_1 = 0 \\ y_2 \neq 0}} = C_0 g(\Delta, y_2), \tag{15}$$

где

$$g(\Delta, y_2) \equiv \frac{2}{(\Delta^2 + y_2^2)^2} \left[(\Delta^2 - y_2^2)(1 - e^{-y_2} \cos \Delta) - 2y_2 \Delta e^{-y_2} \sin \Delta + y_2 (\Delta^2 + y_2^2) \right] \quad (15')$$

представляет собой формфактор, определяющий зависимость интенсивности сигнала от величины волновой расстройки. Коэффициент C_0 определяется интенсивностью накачки, P_0 , коэффициентом пропускания накачки входной поверхностью слоя, t_0^2 , толщиной слоя и эффективной величиной квадратичной восприимчивости χ :

$$C_0 \equiv \frac{\hbar\omega_1^4\omega_2}{c^5n_0n_1n_2} P_0 t_0^2 \chi^2 \ell^2 \frac{\cos\theta_0\cos\theta_1}{\cos\theta_0\cos\theta_1\cos\theta_2}$$

При ПП внешнего холостого излучения, яркость которого равна N_2 , суммарный сигнал $N_{1'} = N_{1'}^{SPDC} + N_{1'}^{PC}$ состоит из «шумового» спонтанного сигнала N^{SPDC} и сигнала ПП, равного $N_{1'}^{PC} = |w_{12}|^2 N_2$ в единицах числа фотонов на моду излучения. Интенсивность в линейном (спонтанно-вынужденном) режиме преобразования равна

$$P^{PC}_{\omega_1\Omega_1}\Big|_{\substack{y_1\neq 0\\y_2\neq 0}} = C_0 F(\Delta, y_1, y_2) N_2,$$
(16)

где

$$F(\Delta, y_1, y_2) \equiv \\ \equiv \frac{\exp(-2y_1) - 2\exp[-(y_1 + y_2)]\cos\Delta + \exp(-2y_2)}{(y_1 - y_2)^2 + \Delta^2}$$

— формфактор, описывающий наблюдаемый спектр сигнала с учетом возможного поглощения как на сигнальной, так и на холостой частоте. В частности, если поглощение отлично от нуля только для холостых волн, форма линии параметрического преобразования излучения, характеризуемого изотропным распределением интенсивности на входе (т.е. при равномерном заселении всех мод холостого канала), описывается функцией

$$F(\Delta, 0, y_2) \equiv = \frac{1 - 2 \exp(-y_2) \cos \Delta + \exp(-2y_2)}{y_2^2 + \Delta^2} . \quad (16')$$

Приведенные выражения (15') и (16') для формфакторов СПР и ПП свидетельствуют о том, что если поглощение на холостой волне присутствует, но достаточно мало ($y_2 \sim 1$), то формы линий СПР и ПП изотропного излучения не совпадают. При этом необходимо отметить, что поглощение на сигнальной частоте не приводит к подобному расхождению. Однако при большой величине поглощения холостых волн, когда $y_2 \gg 1$, формы линий СПР и ПП совпадают. В этом случае зависимости от волновой расстройки для обоих сигналов имеют вид лоренцевых кривых:

$$\left. P_{\omega_{1}\Omega_{1}}^{SPDC} \right|_{\substack{y_{1}=0\\y_{2}\gg1}} = C_{0} \left(\frac{2y_{2}}{y_{2}^{2} + \Delta^{2}} \right), \\
 P_{\omega_{1}\Omega_{1}}^{PC} \right|_{\substack{y_{1}=0\\y_{2}\gg1}} = C_{0}N_{2} \left(\frac{1}{y_{2}^{2} + \Delta^{2}} \right).$$
(17)

В случае прозрачной на всех частотах среды имеют место известные зависимости интенсивностей спонтанного [10] и вынужденного [19] сигналов от расстройки синхронизма:

$$P_{\omega_{1}\Omega_{1}}^{SPDC}\Big|_{\substack{y_{1}=0\\y_{2}=0}} = C_{0}\operatorname{sinc}^{2}\frac{\Delta}{2},$$

$$P_{\omega_{1}\Omega_{1}}^{PC}\Big|_{\substack{y_{1}=0\\y_{2}=0}} = C_{0}N_{2}\operatorname{sinc}^{2}\frac{\Delta}{2},$$
(18)

где sinc $x = \sin x / x$.

Угловые и частотные ширины линий сигналов в случае прозрачного слоя зависят только от его толщины, если же поглощение существенно и условие $y_i \ll 1$ нарушается (для j = 1 и/или j = 2), то ширины линий определяются как толщиной, так и коэффициентами поглощения α_i материала слоя. В качестве примера рассмотрим параметры формы линии сигнала на длине волны 625 нм при параметрическом взаимодействии типа оое в слое кристалла KDP, вырезанном параллельно оси z. Поляризация волны накачки является необыкновенной, длина волны 488 нм, направление распространения вдоль нормали к слою. Кристалл КDP практически прозрачен в видимом диапазоне, в области длин волн накачки и сигнала. Длина волны холостого излучения при этом составляет 2.23 мкм, коэффициент поглощения холостого излучения равен $\alpha_2 \approx 0.5 \text{ см}^{-1}$. Для слоев толщиной 0.1-2 см справедливы соотношения (18), форма линии определяется функцией $\operatorname{sinc}^2(\Delta/2)$. При этом спектральная ширина главного максимума частотной линии сигнала от образца толщиной 1 см составит 0.5 нм, соответствующая угловая ширина равна 0.03°. Если же толщина нелинейного слоя в десять раз меньше (1 мм), то эти ширины возрастают до 5.4 нм и 0.35°. При уменьшении

длины волны сигнала растет длина волны холостого излучения и быстро растет коэффициент поглощения α_2 . Так, при регистрации сигнала на длине волны 572 нм, длина волны холостого излучения составляет 3.32 мкм. При $\alpha_2 \approx 100$ см⁻¹ для слоев толщиной 0.5 см и выше справедливы соотношения (17). Измеренная по полувысоте спектральная ширина линии сигнала от образца толщиной 1 см составляет 2 нм, угловая ширина равна 0.2°.

3. МАТРИЦА РАССЕЯНИЯ И ФОРМА ЛИНИИ СИГНАЛА С УЧЕТОМ ОТРАЖЕНИЯ ВОЛН ОТ ГРАНИЦ ПЛОСКОГО СЛОЯ

Выше не учитывалось возможное отражение волн на границах слоя нелинейной среды. Ясно, что наличие отражения приведет к появлению интерференционных эффектов, которые скажутся и на форме линии рассеяния.

Моды накачки, сигнального и холостого излучения в отражающем слое и вне его могут быть разделены по принципу: «прямые» (направление распространения +z) и «обратные» (направление распространения -z) (рис. 1). Волновые векторы прямых и обратных волн одной и той же частоты различаются только знаками *z*-компонент. Волны с одинаковыми



Рис.1. Схематическое изображение волн, распространяющихся снаружи и внутри отражающего слоя

по величине, но различными по направлению волновыми векторами появляются при падении на слой сигнальных и холостых волн как слева, так и справа. Обозначим индексами «1» и «3» соответственно прямые $(k_{1z} > 0)$ и обратные $(k_{1z} < 0)$ сигнальные волны, индексами «2» и «4» — прямые и обратные холостые волны. По мере распространения в слое амплитуда каждой волны меняется вследствие параметрического взаимодействия. Кроме этого происходят изменения амплитуд, связанные с поглощением в слое и отражением на границах. Линейным рассеянием пренебрегаем. Обозначим через E_j (j = 1, 2, 3, 4) амплитуды выходящих из слоя прямых и обрат-

на слой, $E_j(z)$ — распространяющихся в слое. Граничные условия, связывающие амплитуды волн вне и внутри слоя ($z = \pm \ell/2$), могут быть представлены в виде [20]

ных сигнальных и холостых волн, E_{j0} — падающих

$$\mathbf{A}' + \hat{\rho}\mathbf{A}'' = \hat{\tau}\mathbf{A}_0, \quad \mathbf{A} = \hat{\tau}\mathbf{A}'' + \hat{\rho}^*\mathbf{A}_0, \tag{19}$$

где введены «векторы»

$$\mathbf{A}_{0} \equiv \{A_{10}, A_{20}^{*}, A_{30}, A_{40}^{*}\}, \quad \mathbf{A} = \{A_{1}, A_{2}^{*}, A_{3}, A_{4}^{*}\},$$
$$\mathbf{A}' \equiv \{A_{1}(-\ell/2), A_{2}^{*}(-\ell/2), A_{3}(\ell/2), A_{4}^{*}(\ell/2), \},$$
$$\mathbf{A}'' \equiv \{A_{1}(\ell/2), A_{2}^{*}(\ell/2), A_{3}(-\ell/2), A_{4}^{*}(-\ell/2), \}.$$

Диагональная матрица $\hat{\tau}$ имеет компоненты

$$\tau_1 = \tau_3 = t_1 \sqrt{\frac{n_1 \cos \vartheta_1}{\cos \vartheta_1}}, \quad \tau_2 = \tau_4 = t_2 \sqrt{\frac{n_2 \cos \vartheta_2}{\cos \vartheta_2}},$$

 t_1 и t_2 — амплитудные коэффициенты пропускания границы слоя. Отличные от нуля компоненты матрицы $\hat{\rho}$ имеют вид

$$\rho_{13} = \rho_{31} \equiv \rho_1 \equiv r_1 e^{i\delta_1}, \quad \rho_{24} = \rho_{42} \equiv \rho_2 \equiv r_2 e^{-i\delta_2},$$
$$\delta_j \equiv |k_{jz}|\ell = \frac{\ell n_j \omega_j}{c} \cos \vartheta_j,$$

 r_j — амплитудные коэффициенты отражения от границ слоя. Коэффициенты r_j и t_j определяются по формулам Френеля [22]; если вне слоя находится оптически менее плотная среда, то $r_j < 0$. При учете анизотропии коэффициенты r_j и t_j зависят как от направления падения, так и от поляризации падающих волн. Кроме того, возможно проявление эффектов двулучепреломления, когда каждой падающей плоской волне внутри слоя соответствуют две «прямые» и две «обратные» моды поля. Будем считать (для простоты дальнейшего рассмотрения), что в параметрическом взаимодействии участвуют только волны одной поляризации сигнальной волны и одной поляризации холостой волны. Такие условия достаточно легко реализовать в эксперименте, используя симметрию тензора квадратичной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$. Будем также предполагать, что ориентация оптических осей анизотропного слоя такова, что эффекты двулучепреломления отсутствуют и линейно поляризованные падающие волны при отражении и преломлении от границы слоя не меняют своей поляризации.

Укороченные уравнения типа (9) связывают попарно прямые волны $E_1(z)$ и $E_2(z)$, а также обратные волны $E_3(z)$ и $E_4(z)$. Единственное различие состоит в том, что при расчете полей $E_1(z)$ и $E_2(z)$ следует подставлять в (9) амплитуду $E_0^{(+)}$ прямой волны накачки внутри слоя, а при расчете полей $E_3(z)$ и $E_4(z)$ — амплитуду $E_0^{(-)}$ встречной волны накачки. Связь амплитуды падающей на слой волны накачки с амплитудами $E_0^{(+)}$ и $E_0^{(-)}$ внутри слоя определяется формулами Эйри

$$E_0^{(+)} = \frac{\iota_0}{1 - r_0^2 \exp(2i\delta_0)} E_0,$$
$$E_0^{(-)} = \frac{t_0 r_0 \exp(i\delta_0)}{1 - r_0^2 \exp(2i\delta_0)} E_0 = r_0 \exp(i\delta_0) E_0^{(+)}.$$

Взаимодействие волн $E_1(z)$, $E_2(z)$, $E_3(z)$ и $E_4(z)$ в присутствии накачек $E_0^{(+)}$ и $E_0^{(-)}$ может быть записано через общую матрицу параметрического взаимодействия $\mathbf{A}'' = \hat{w}\mathbf{A}'$, где

$$\hat{w} = \begin{pmatrix} w_{11} & w_{12} & 0 & 0 \\ w_{21} & w_{22} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & w_{11}^{(-)} & w_{12}^{(-)} \\ 0 & 0 & w_{21}^{(-)} & w_{22}^{(-)} \end{pmatrix}.$$
 (20)

Элементы w_{ij} при i = 1, 2 совпадают с элементами матрицы параметрического взаимодействия (11) в отсутствие отражения (после замены $E_0 \rightarrow E_0^{(+)}$). Элементы $w_{ij}^{(-)}$ описывают взаимодействие обратных волн и имеют такой же вид, как и w_{ij} , с той лишь разницей, что в выражении (12) для β следует заменить амплитуду E_0 амплитудой $E_0^{(-)}$. Связь $\hat{w}^{(-1)} = \hat{w}(-\ell)$ означает, что обратная матрица описывает преобразование волн в направлении -z.

Из (19) и (20) находится матрица рассеяния \hat{U} для слоя:

$$\mathbf{A} = \hat{U}\mathbf{A}_0, \quad \hat{U} = \hat{t}\hat{w}\left(\hat{I} + \hat{\rho}\hat{w}\right)^{-1}\hat{t} + \hat{\rho}^*.$$
(21)

Явные выражения для элементов матрицы \hat{U} приведены в [20]. Если поглощения на сигнальной и холостой волнах нет, то выполняется условие

$$U_{11}|^{2} + |U_{13}|^{2} - |U_{12}|^{2} - |U_{14}|^{2} = 1.$$
 (22)

Как следствие обобщенного закона Кирхгофа (в форме (3)), в слое, частично поглощающем холостое излучение и частично отражающем все волны, яркость сигнала СПР определяется выражением

$$N_{1'}^{SPDC} = |U_{11}|^2 + |U_{13}|^2 - 1.$$
(23)

При ПП внешнего холостого излучения, яркость которого составляет N_2 , имеем

$$N_{1'} = N_{1'}^{SPDC} + N_{1'}^{PC}, \quad N_{1'}^{PC} = |U_{12}|^2 N_2.$$
 (24)

В итоге для интенсивности сигнала СПР вместо (15) имеем выражение

$$P_{\omega_{1}\Omega_{1}}^{SPDC}\Big|_{\substack{y_{1}=0\\y_{2}\neq0}} = C_{0}\frac{1-R_{1}}{D_{0}D_{1}\tilde{D}_{2}}\left\{\tilde{D}_{2}(1+R_{0}R_{1})g(\Delta,y_{2})+\right.\\ \left.+\left[\tilde{R}_{2}(1+R_{0}R_{1})\left(\cos 2\delta_{2}-\tilde{R}_{2}\right)-2r_{0}r_{1}\tilde{r}_{2}\left(1-\tilde{R}_{2}\right)\times\right.\\ \left.\times\cos(\delta_{0}+\delta_{1})\cos\delta_{2}\right]g'(\Delta,y_{2})-\right.\\ \left.-\left[\tilde{R}_{2}(1+R_{0}R_{1})\sin 2\delta_{2}-2r_{0}r_{1}\tilde{r}_{2}\left(1+\tilde{R}_{2}\right)\times\right.\\ \left.\times\cos(\delta_{0}+\delta_{1})\sin\delta_{2}\right]g''(\Delta,y_{2})\right\}.$$
(25)

Здесь введены дополнительные функции, определяющие формфактор рассеянного излучения:

$$g'(\Delta, y_2) \equiv \frac{4}{(\Delta^2 + y_2^2)^2} \left[(\Delta^2 - y_2^2) \times (1 - \operatorname{ch} y_2 \cos \Delta) - 2y_2 \Delta \operatorname{sh} y_2 \sin \Delta \right],$$

$$g''(\Delta, y_2) \equiv \frac{4}{(\Delta^2 + y_2^2)^2} \left[(\Delta^2 - y_2^2) \operatorname{sh} y_2 \sin \Delta - (26) - 2y_2 \Delta (1 - \operatorname{ch} y_2 \cos \Delta) \right],$$

$$D_j = 1 - 2R_j \cos 2\delta_j + R_j^2,$$

$$\tilde{D}_j = 1 - 2\tilde{R}_j \cos 2\delta_j + \tilde{R}_j^2,$$

 $R_j \equiv r_j^2$ — коэффициент отражения, определяющий отношение интенсивностей отраженной волны и падающей на границу слоя волны частоты $\omega_j, \, \tilde{R}_j \equiv \tilde{r}_j^2, \, \tilde{r}_j \equiv r_j \exp(-y_i).$

Если среда прозрачна на частотах холостых волн, но частично поглощает сигнал, выражение для интенсивности СПР рассчитывается исходя из обобщенного закона Кирхгофа в форме (4). В этом случае вместо (25) имеем

$$P_{\omega_1\Omega_1}^{SPDC} \Big|_{\substack{y_1 \neq 0 \\ y_2 = 0}} = C_0 \frac{(1 - R_1)(1 - R_2)}{D_0 \tilde{D}_1 D_2} F(\Delta, y_1, 0) \times \\ \times \left\{ 1 + R_2 + R_0 \tilde{R}_1 + R_0 \tilde{R}_1 R_2 - \\ - 2r_0 \tilde{r}_1 r_2 \left[\cos(\Delta + 2\delta_0) + \cos \delta \right] \right\}.$$
(27)

Здесь величина $\delta \equiv \delta_2 - \delta_1 - \delta_0$ отлична от $\Delta \equiv \delta_2 + \delta_1 - \delta_0$.

В свою очередь, интенсивность сигнала ПП при произвольном поглощении и отражении волн в слое описывается выражением:

$$P^{PC}_{\omega_1\Omega_1}\Big|_{\substack{y_1\neq 0\\y_2\neq 0}} = C_0 N_2 \frac{(1-R_1)(1-R_2)}{D_0 \tilde{D}_1 \tilde{D}_2} F(\Delta, y_1, y_2) \times \left(1 - 2r_0 \tilde{r}_1 \tilde{r}_2 \cos \delta + R_0 \tilde{R}_1 \tilde{R}_2\right). \quad (28)$$

Видно, что форма линии ПП при наличии отражений не совпадает с формой линии СПР в отсутствие как поглощения на сигнальных частотах (ср. (25) и (28)), так и заметного поглощения на холостых частотах (ср. (27) и (28)).

Учет отражений в плоскопараллельном слое приводит к появлению тонких интерференционных структур линий СПР и ПП. В прозрачном кристалле помимо осцилляций, связанных с частотным или угловым изменением величины $\operatorname{sinc}^2(\Delta/2)$, появляются дополнительные осцилляции двух типов. Первый тип связан с поведением членов, содержащих $2\delta_1$ и $2\delta_2$. Эти же множители описывают линейную интерференцию Эйри сигнальных и холостых волн в плоском слое. Такая интерференция происходит при наложении падающих и отраженных от границ волн каждой частоты по отдельности, независимо от наличия волн других частот. Эта же интерференция проявляется и в спектрах нелинейного взаимодействия. Она приводит к двойной периодической модуляции спектров с периодами, определяющимися условиями $\delta_i = \pi n$ (где *n* — целое число). Глубина модуляции определяется величиной коэффициентов отражения R₁ и R_2 .

На рис. 2*a* приведен пример частотной (фиксировано направление наблюдения, изменяется частота сигнала) формы линии СПР при наличии линейной интерференции Эйри отраженных сигнальных волн в случае, когда $R_2 = 0$. Наличие или отсутствие отражения накачки при этом никак не сказывается на форме линии СПР. Соотношение между периодом модуляции Эйри и модуляцией, определяемой функцией sinc² ($\Delta/2$), определяется конкретными параметрами дисперсии среды. Основная часть интенсивности сигнала СПР сосредоточена в пределах главного максимума функции sinc² ($\Delta/2$), т.е. в пределах частотного интервала $\Delta\omega_{1s}$, определяемого, как и в слое без отражений, соотношением



Рис.2. Форма линии СПР в прозрачном слое, отражающем сигнальные волны $(r_1 = -0.3)$: a - в отсутствие отражения остальных волн; $\delta -$ при наличии отражения холостых волн $(r_2 = -0.5)$ и накачки $(r_0 = -0.5)$

$$\Delta\omega_{1s} \equiv \frac{\int P_{\omega_1\Omega_1} d\omega_1}{P_{\omega_{1s}\Omega_1}} = \frac{2\pi \cos(\vartheta_2 - \vartheta_0)}{\left|u_2^{-1} - u_1^{-1}\cos(\vartheta_1 - \vartheta_2)\right|\ell}, \quad (29)$$

где u_m — групповые скорости волн в кристалле. Для того чтобы наблюдать дополнительные максимумы на частотной форме линии рассеяния, необходимо выполнить условие $\Delta \omega_{m\ell} < \Delta \omega_{1s}$, где $\Delta \omega_{m\ell} = \pi u_m / \ell \cos \vartheta_m$ — частотный интервал между максимумами, определяемыми линейной интерференцией сигнальных или холостых волн. Аналогичные соотношения для угловых интервалов определяют условия наблюдения интерференции Эйри на угловой форме линии СПР. Например, в случае параметрического взаимодействия в слое кристалла KDP толщиной 1 см, рассмотренном в качестве примера в конце предыдущего раздела, период модуляции сигнала, связанный с линейной интерференцией волн, составляет 0.013–0.014 нм, тогда как спектральная ширина главного максимума существенно выше и равна 0.5 нм. При этом период интерференционной модуляции угловой формы линии того же порядка, что и угловая ширина главного максимума, и составляет 0.02°.

Второй тип дополнительной модуляции формы линии СПР, появляющийся благодаря отражению волн в слое, представляет больший интерес. Этот тип модуляции связан с изменением комбинаций параметров δ_i :

$$\Delta + 2\delta_0, \quad \delta, \quad 2(\delta_2 - \delta_1) \equiv 2(\delta + \delta_0),$$
$$2(\delta_1 + \delta_2) \equiv 2(\Delta + \delta_0).$$

Для его наблюдения необходимо наличие отражения как сигнальной, так и холостой волн на границах. При этом присутствие отраженной волны накачки несколько меняет общее распределение интенсивности, но не является необходимым условием наблюдения самой интерференции. Максимумы, связанные с изменением на целое число π расстройки δ (что эквивалентно изменению $\delta_2 - \delta_1$ на целое число π), следуют примерно так же часто, как и интерференционные максимумы Эйри. Например, для обратных значений частотных ширин максимумов Эйри, $\Delta \omega_{m\ell}$ и $\Delta \omega'_1$, справедливо соотношение

$$(\Delta \omega_1')^{-1} = (\Delta \omega_{1\ell})^{-1} + (\Delta \omega_{2\ell})^{-1} .$$
 (30)

Что же касается максимумов, связанных с изменением на целое число π расстройки $\Delta + 2\delta_0$ (а значит, и $\delta_2 + \delta_1$ при фиксированном значении δ_0), то их появление жестко связано с исходной шириной синхронизма. Этот тип интерференции может быть назван нелинейным, поскольку положение максимумов определяется взаимным соотношением фаз всех волн с различными частотами, участвующих в параметрическом взаимодействии. Частотная ширина полосы нелинейной интерференции, связанной с набегом фазы $2(\delta_1 + \delta_2) \equiv 2(\Delta + \delta_0)$, определяется соотношением

$$(\Delta\omega_{1n\ell})^{-1} = |(\Delta\omega_{1\ell})^{-1} - (\Delta\omega_{2\ell})^{-1}|.$$
 (31)

Период модуляции при этом в четыре раза меньше частотной ширины центрального максимума функции $\operatorname{sinc}^2(\Delta/2)$. Период нелинейной интерференции, связанной с набегом фазы $\Delta + 2\delta_0$, в два раза меньше



Рис.3. Форма линии СПР в отражающем слое $(r_0 = -0.5, r_1 = -0.3, r_2 = -0.5)$ при различных значениях коэффициентов поглощения на сигнальной (α_1) и холостой (α_2) частотах: $a - \alpha_1 \ell = 0$, $\alpha_2 \ell = 1$; $b - \alpha_1 \ell = 1$, $\alpha_2 \ell = 0$; $b - \alpha_1 \ell = 0$, $\alpha_2 \ell = 10$

частотной ширины того же центрального максимума. На рис. 2*б* приведен пример частотной линии рассеяния в случае отражения от границ сигнальных, холостых волн и волны накачки. Видно, что нелинейная интерференция приводит к периодическому изменению амплитуды высокочастотной модуляции спектра.

Эффект нелинейной интерференции происходит благодаря параметрическому взаимодействию прямых и обратных волн в слое и обычной линейной интерференции сигнальных волн одной и той же частоты ω_1 . Аналогичные эффекты наблюдались, например, в работах [23–26] при исследовании частотно-углового распределения интенсивности и корреляции интенсивностей излучения сигнального и холостого каналов СПР в последовательно расположенных пластинах, вырезанных из нелинейного кристалла, разделенных промежутками из оптически-линейного вещества.

На рис. 3 приведены кривые, которые показывают влияние поглощения сигнальных и холостых волн на вид интерференционной картины, наблюдающейся на частоте сигнального излучения. С ростом поглощения падает видность интерференционной картины, которая определяется линейной и нелинейной интерференцией поглощаемой волны. Изменение видности происходит на фоне таких же изменений основной формы линии, которые характерны для слоя в отсутствие отражения. Рост поглощения на обеих частотах приводит к постепенному уменьшению контраста и, в итоге, к исчезновению всей интерференционной структуры линии. Для экспериментального наблюдения влияния эффектов отражения на форму линии СПР необходимо обеспечение специальных условий. При использовании явления СПР в спектроскопии эти условия, как правило, не соблюдаются, что не мешает определению усредненных по объему рассеивающей среды показателей преломления и коэффициентов поглощения кристаллов на холостых частотах по сглаженному контуру линии рассеяния. Эффекты отражения должны учитываться в тех случаях, когда необходимо измерение интегральной интенсивности рассеяния. Например, такой учет эффектов отражения необходим при использовании СПР в фотометрии [20, 27–29].

4. ИНТЕРФЕРЕНЦИЯ НУЛЕВЫХ ФЛУКТУАЦИЙ ЭЛЕКТРОМАГНИТНОГО ВАКУУМА

Рассмотрим ситуацию, когда при СПР отражение на границах слоя на частотах сигнала и накачки отсутствует, а коэффициент отражения холостого излучения отличен от нуля. Возможно также поглощение холостой волны. На рис. 4 приведен пример частотной формы линии при различных значениях величины коэффициентов отражения r₂. Видно, что общий контур линии сигнального излучения промодулирован. При этом частота и амплитуда модуляции описываются линейной интерференцией Эйри, но не для сигнальных, а для холостых волн.

В принципе, эффективность каждого элементарного акта ПП помимо прочих факторов зависит от средних значений операторов полей в модах входного холостого и сигнального излучений [10]. При наблюдении СПР на кристалл подается только излучение накачки. Какое-либо другое дополнительное излучение, относящееся к холостому или сигнальному каналам, отсутствует. Тепловое заселение мод настолько мало, что не может обеспечить необходимой эффективности процесса рассеяния. Роль затравочного излучения в этом случае играют только квантовые флуктуации поля — так называемые нулевые флуктуации электромагнитного вакуума на



Рис.4. Форма линии СПР в слое с учетом отражения только холостых волн, $r_0 = r_1 = 0$: $a - r_2 = -0.5$; $\delta - r_2 = -0.9$

холостой частоте при регистрации сигнального излучения и на сигнальной частоте при регистрации холостого излучения. Напомним, что эффективная яркость нулевых флуктуаций вакуума в процессах ПП равна одному фотону в моде поля [30]. Если затравочное излучение заводить извне в виде так называемой свободной волны, «оторвавшейся» от источников, то его интенсивность внутри кристалла будет зависеть от коэффициентов поглощения и отражения среды на холостой частоте и тем самым влиять на спектр сигнала. При СПР поток холостого излучения появляется только в самом процессе распада накачки. Будучи «свободным», холостое излучение затем отражается от границ слоя и поглощается при распространении в среде. В приближении линейного усиления взаимодействие с накачкой родившегося холостого излучения слабо, обратная

связь практически отсутствует и холостое излучение не оказывает влияния на спектр сигнала, так что форма линии на рис. 4 не должна быть чувствительна непосредственно к распределению интенсивности рождающегося в среде холостого излучения. Таким образом, приведенная форма линии сигнала связана только с действием флуктуаций поля на холостой частоте — сначала в каждом элементарном акте рассеяния, а затем в процессе интерференции сигнальных полей, возникающих в разных точках нелинейной среды. Появление интерференционной структуры линии сигнального излучения с параметрами, определяющимися свойствами кристалла на холостой частоте, может быть названо эффектом интерференции нулевых флуктуаций вакуума [31].

Интерференционная структура спектральной формы линии сигнала или функции корреляции интенсивностей сигнальных и холостых волн отражает пространственную структуру вакуумных состояний поля в слое. В данном случае слой является примером пространственно-неоднородной двумерно-ограниченной среды. Наличие пространственной неоднородности должно учитываться при последовательном квантовом рассмотрении задачи уже на этапе квантования поля. При квантовании оператор напряженности поля в одной моде представляется в виде [32]

$$E_j(\mathbf{r},t) = \nu_j(\mathbf{r})a_j(t) + \nu_j^*(\mathbf{r})a_j^{\dagger}(t), \qquad (32)$$

где $a_j^{\dagger}(t) = a_j^{\dagger} \exp(i\omega_j t)$ и $a_j(t) = a_j \exp(-i\omega_j t)$ операторы рождения и уничтожения фотонов в моде j, а $\nu_i(\mathbf{r})$ — одна из ортогональных собственных функций соответствующей граничной задачи, описывающей пространственное распределение поля в рамках уравнений Максвелла и граничных условий для данной среды. Очевидно, одна и та же пространственная структура $\nu_i(\mathbf{r})$ будет у любого поля данной моды *j* в фиксированной пространственной конфигурации среды, в каком бы состоянии данное поле ни находилось — в фоковском состоянии с фиксированным числом фотонов, в смешанном или вакуумном состоянии и т.д. Наличие слоя с отражающими стенками приводит к появлению интерференционной структуры $\nu_i(\mathbf{r})$, такая же интерференционная структура будет у одномодового равновесного теплового поля и у поля в вакуумном состоянии. Поскольку входное (сигнальное и холостое) поле при СПР находится в вакуумном состоянии, в спектре сигнального излучения проявляется интерференционная структура вакуумных состояний поля на холостой частоте. Дополнительное появление на входе холостого канала поля в каком-либо другом состоянии может изменить частотную форму линии рассеяния. Однако это изменение будет иметь место только в случае неравномерного заполнения всех пространственных мод, т. е. когда числа заполнения мод (средние числа фотонов в модах) за счет дополнительного поля будут неодинаковыми в разных модах. В противном случае форма линии сигнала будет иметь такой же вид, как и при описанном здесь эффекте интерференции нулевых флуктуаций вакуума.

Выражение (25), взятое в приближении малых R_0, R_1, y_2 , описывает рассеяние света на интерференционных поляритонах [33] в тех частях спектра, где вклад в интенсивность рассеяния за счет мнимой части кубической восприимчивости (т.е. тензора комбинационного рассеяния) пренебрежимо мал. Именно параметрический вклад в рассеяние света на поляритонах является основным источником сигнала в спектральных областях, удаленных от частот фононных резонансов, когда разность волновых чисел холостой волны и фонона (в cm^{-1}) больше константы фононного затухания. По ходу перестроечных кривых, соединяющих интерференционные максимумы одного и того же порядка $m = \delta_2/\pi \equiv k_{2z}\ell/\pi$, можно определить закон дисперсии интерференционных поляритонов. В пределе $R_2 \rightarrow 1$ реализуются условия полного внутреннего отражения поляритонных волн, запертых в слое. Максимумы тонкой структуры формы линии соответствуют в этом случае рассеянию на волноводных поляритонах [33-35]. Такая ситуация реализуется, например, при параметрическом взаимодействии в кристаллах ниобата лития, когда холостая волна попадает на верхнюю поляритонную ветвь в область волновых чисел около 2000 см⁻¹. В этом случае для наблюдения линейной интерференции нулевых флуктуаций вакуума требуется либо приемная аппаратура с достаточно высоким спектральным разрешением, либо очень тонкие кристаллические пленки, поскольку расстояние между линиями будет порядка 0.2 см⁻¹ при толщине слоя 1 см и порядка 4 см^{-1} при толщине 500 мкм.

5. МАТРИЦА РАССЕЯНИЯ И ФОРМА ЛИНИИ СИГНАЛА В СРЕДАХ С ПРОСТРАНСТВЕННОЙ МОДУЛЯЦИЕЙ КВАДРАТИЧНОЙ ВОСПРИИМЧИВОСТИ

Рассмотрим параметрическое взаимодействие трех волн в образце, который представляет собой слоистую среду с меняющейся вдоль одного направления квадратичной восприимчивостью. Вначале ограничимся случаем, когда изменение величины $\chi^{(2)}$ носит периодический характер. Пусть при этом пространственная модуляция линейной восприимчивости невелика, так что эффектами, связанными с изменением показателя преломления и коэффициента поглощения, можно пренебречь. Приближение обосновано, например, при рассмотрении параметрических процессов в сегнетоэлектрических кристаллах с регулярной доменной структурой [1, 3, 4, 6–9]. В таких кристаллах изменение знаков спонтанной поляризации при переходе от домена к домену сопровождается изменением знака всех восприимчивостей четного порядка и не сказывается на величине нечетных восприимчивостей в разложении поляризации по степеням поля [36].

Периодическое изменение квадратичной восприимчивости можно описать рядом Фурье

$$\chi^{(2)}(\mathbf{r}) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} \chi_m \exp(i\mathbf{q}_m \cdot \mathbf{r})$$
(33)

с амплитудами пространственных гармоник

$$\chi_m = \frac{1}{d} \int_{-d/2}^{d/2} \chi^{(2)}(\mathbf{r}) \exp(-i\mathbf{q}_m \cdot \mathbf{r}) \, d\mathbf{r}, \qquad (34)$$

где d — период одномерной «нелинейной сверхрешетки» (период модуляции); $\mathbf{q}_m = \mathbf{q}m$ (m целое число) — векторы обратной сверхрешетки, $\mathbf{q} \equiv (2\pi/d) \mathbf{n}$, \mathbf{n} — единичный вектор нормали к границам слоев. В заданном приближении амплитуды прямых волн на входной границе в среде совпадают с амплитудами соответствующих волн на той же границе вне среды и матрица рассеяния совпадает с матрицей параметрического взаимодействия прямых волн. Выражение для нелинейной поляризации среды на частоте ω_1 имеет вид

$$P_1(\omega_1 = \omega_0 - \omega_2) =$$

= $\sum_{m=-\infty}^{\infty} \chi_m E_0 E_2^* \exp\left[i(\mathbf{k}_0 - \mathbf{k}_2 + \mathbf{q}_m) \cdot \mathbf{r}\right].$ (35)

Аналогичное соотношение справедливо для нелинейной поляризации среды и на частоте ω_2 . Соответствующие укороченные уравнения имеют вид

$$\frac{dE_1(z)}{dz} + i \sum_m \sigma_{1m} E_0 E_2^*(z) \exp\left(-\frac{i\Delta_m z}{\ell}\right) + \frac{y_1}{\ell} E_1(z) = 0,$$

$$\frac{dE_2(z)}{dz} + i \sum_m \sigma_{2m} E_0 E_1^*(z) \exp\left(-\frac{i\Delta_m z}{\ell}\right) + \frac{y_2}{\ell} E_2(z) = 0.$$
(36)

Здесь ось *z* направлена вдоль нормали к нелинейным слоям;

$$\Delta_m \equiv \ell(k_{1z} + k_{2z} - k_{0z} - q_m) \equiv \delta_1 + \delta_2 - \delta_0 - q_m \ell$$

— безразмерная волновая расстройка для гармоники с номером m; Δ_m/ℓ отличается от расстройки Δ/ℓ в пространственно-однородной среде на величину вектора обратной нелинейной сверхрешетки q_m ;

$$\sigma_{jm} \equiv 2\pi \chi_m \omega_j / cn_j \cos \vartheta_j \quad (j = 1.2).$$

При малой величине коэффициента ПП абсолютные значения параметров $\beta_{1m} \equiv i\sigma_{1m}E_0\ell$, $\beta_{2m} \equiv \equiv -i\sigma_{2m}^*E_0\ell$, определяющих эффективность взаимодействия волн в слое, малы: $|\beta_m| = \sqrt{\beta_{1m}\beta_{2m}} \ll 1$. Параметр β_m определяется так же, как и параметр β для однородной среды (см. (12)) с заменой $\chi \to \chi_m$.

Решение укороченных уравнений (36) определяет элементы матрицы рассеяния, которая в данном случае совпадает с матрицей параметрического взаимодействия волн в слоистой среде. В приближении линейного усиления (с точностью до членов порядка β_m^2) имеем

$$w_{11} \approx \exp(-y_1) + \sum_{m=-\infty}^{\infty} |\beta_m|^2 f_1(\eta_m) + \\ + \sum_{m=-\infty}^{\infty} \sum_{\substack{m'=-\infty\\m' \neq m}} \beta_{1m} \beta_{2m'} \frac{\exp(\eta_m - \eta_{m'} - y_1)}{2\eta_{m'}} \times \\ \times \left[\varphi(\eta_m) - \varphi(\eta_m - \eta_{m'})\right], \quad (37)$$

$$w_{12} \approx \sum_{m=-\infty}^{\infty} i\beta_m f(\eta_m),$$
e

где

$$\varphi(x) \equiv \frac{e^{-2x} - 1}{2x}.$$

Функции $f(\eta_m), f_1(\eta_m)$ определяются соотношениями (14) с заменой $\Delta \to \Delta_m, \eta \to \eta_m \equiv \equiv (-y_1 + y_2 + i\Delta_m)/2 = \eta - imq\ell$:

$$f_1(\eta_m) \equiv \frac{1}{(2\eta_m)^2} \left[\exp(-y_2 - i\Delta_m) - (1 - 2\eta_m) \exp(-y_1) \right] = \frac{\exp(-y_1) \left[\varphi(\eta_m) + 1 \right]}{2\eta_m}, \quad (38)$$

$$f(\eta_m) \equiv \frac{1}{2\eta_m} \left[\exp\left(-y_2 - \frac{i\Delta_m}{2}\right) - \exp\left(-y_1 + \frac{i\Delta_m}{2}\right) \right] = \exp\left(-y_1 + \frac{i\Delta_m}{2}\right) \varphi(\eta_m).$$

Из (37) видно, что элементы w_{12} состоят из сумм отдельных вкладов всех пространственных гармоник χ_m , причем вклад каждой гармоники описывается так же, как и в случае однородного образца (ср. (37) с (13)), но с заменой $\Delta \to \Delta_m$ и $\chi \to \chi_m$. В выражение для элемента w_{11} дополнительно входят слагаемые, описывающие интерференцию вкладов от различных пространственных гармоник χ_m , $\chi_{m'}$ ($m \neq m'$).

При наличии поглощения в холостом канале обобщенный закон Кирхгофа дает следующее выражение для интенсивности $P_{\omega\Omega}$ сигнального излучения при СПР:

$$P_{\omega_1\Omega_1} = C \sum_{m=-\infty}^{\infty} |\chi_m|^2 g(\Delta_m, y_2) + \\ + C \sum_{m=-\infty}^{\infty} \sum_{\substack{m'=-\infty\\m'\neq m}} (-1)^{n(m'-m)} \chi_m^* \chi_{m'} \times \\ \times \left[\frac{\exp(-i\Delta - y_2) - 1}{(y_2 + i\Delta - imq\ell)(y_2 + i\Delta - im'q\ell)} + \right. \\ \left. + \frac{\exp(i\Delta - y_2) - 1}{(y_2 - i\Delta - imq\ell)(y_2 - i\Delta - im'q\ell)} \right].$$
(39)

Коэффициент C совпадает с C_0/χ^2 в однородной среде (см. (15), (16), (25)-(28)), n — число периодов структуры, укладывающихся на длине среды ℓ : $n \equiv \ell/d$. Форма линии рассеяния в периодически-неоднородной нелинейной среде характеризуется двумя членами. Первый член представляет собой аддитивную сумму вкладов отдельных гармоник. Каждое слагаемое в нем имеет такое же распределение интенсивности относительно максимума, как и в случае однородной среды (функция $g(\Delta, y_2)$ в (15)). При этом положение новых максимумов сдвинуто для каждой компоненты в соответствии с условием квазисинхронизма $\Delta(\omega_1, \theta_1) = -q_m \ell \equiv -2\pi m n$. Величина каждого слагаемого пропорциональна квадрату модуля амплитуды соответствующей гармоники. Второй член в (39) содержит произведения гармоник χ_m с несовпадающими номерами и описывает их интерференцию.

Если поглощение отсутствует на частотах как



Рис. 5. Влияние соотношения толщин доменов на форму линии СПР в прозрачном сегнетоэлектрике с регулярной доменной структурой

сигнала, так и холостой волны, интенсивность СПР описывается простым соотношением:

$$P_{\omega_1\Omega_1}\Big|_{\substack{y_1=0\\y_2=0}} = C \left|\sum_{m=-\infty}^{\infty} \chi_m \operatorname{sinc}\left(\frac{\Delta_m}{2}\right)\right|^2.$$
(40)

На рис. 5 приведены примеры зависимостей сигнала СПР от фазовой расстройки $\Delta k/q \equiv \Delta/2\pi n$, рассчитанные по формуле (40) для простейшего случая периодического распределения квадратичной восприимчивости $\chi^{(2)}(z)$ типа меандра. Такое распределение имеет место в полидоменных кристаллах, когда на границах доменов происходит резкая смена знака квадратичной восприимчивости, причем толщина переходного слоя практически равна нулю по сравнению с толщинами ℓ_1 и ℓ_2 доменов разного знака. В этом случае расчет по формуле (40) дает следующее выражение для формы линии сигнала СПР:

$$\begin{aligned} P_{\omega_1\Omega_1}\Big|_{\substack{y_1=0\\y_2=0}} &= C\overline{\chi}^2 \frac{\operatorname{sinc}^2(\Delta/2)}{\sin^2(\Delta/2n)} \times \\ &\times \left(1 - 2\cos\frac{\rho\Delta}{2n}\cos\frac{\Delta}{2n} + \cos^2\frac{\Delta}{2n}\right), \end{aligned}$$

где $\rho \equiv (\ell_1 - \ell_2)/d$ — параметр, характеризующий асимметрию доменной системы, $d = \ell_1 + \ell_2 - \mathbf{ne}$ риод структуры. Спектральное и угловое расстояния между максимумами нелинейной дифракции тем больше, чем меньше период d нелинейной сверхрешетки и, в отличие от ширин самих максимумов, не зависят от полной толщины образца. Например, при коллинеарном параметрическом взаимодействии типа оое в кристалле ниобата лития с регулярной доменной структурой и стенками доменов, ориентированными параллельно кристаллографической плоскости xz, расстояния между кривыми квазисинхронизма нулевого и первого порядков будет около 100 см $^{-1},$ если толщина доменного слоя около 5 мкм. Соответственно, при толщине около 50 мкм это расстояние становится на порядок меньше. Данный расчет соответствует случаю, когда накачка на длине волны 488 нм распространяется под углом 57° к оси z в кристаллографических плоскостях yz доменов, пересекая их стенки. Коллинеарное взаимодействие наблюдается при этом в области длин волн сигнала около 510 нм.

В выражение (40) для распределения интенсивности сигнала входят амплитуды $|\chi_m|$ и фазы φ_m пространственных гармоник $\chi_m \equiv |\chi_m| \exp(i\varphi_m)$ (в общем случае комплексных). Когда мнимая часть квадратичной восприимчивости $\chi^{(2)}(\mathbf{r})$ отсутствует (вдали от резонансов среды), справедливы соотношения

$$\chi_m = (\chi_{-m})^*, \quad |\chi_m| = |\chi_{-m}|, \quad \varphi_m = -\varphi_{-m}.$$

Наличие прямой связи между формой спектра СПР и пространственной зависимостью квадратичной восприимчивости может быть положено в основу метода измерения пространственного распределения величины $\chi^{(2)}(\mathbf{r})$ в слоистых пространственно-неоднородных кристаллах и нелинейных структурах. Измеряя соотношение интенсивностей максимумов, связанных с нелинейной дифракцией в разных порядках квазисинхронного взаимодействия, т. е. при условиях $|\Delta| = 2\pi mn$, можно определить соотношение модулей пространственных гармоник $|\chi_m|$. Присутствие интерференционных членов, непосредственно связанных с фазами φ_m , приводит к перераспределению интенсивности сигнала в областях между квазисинхронными максимумами, когда расстройка $\Delta \neq 2\pi mn$. Интерференция проявляется наиболее ярко при рассеянии в объемах, содержащих не более нескольких периодов нелинейной сверхрешетки.

Наличие поглощения на холостой частоте приводит к уширению каждого максимума нелинейной дифракции без изменения его положения (рис. 6). Если $y_2 \gg 1$, число доменов достаточно велико и $n \gg y_2/n$, то из (39) следует

$$P_{\omega_1\Omega_1} = 2C_0 y_2 \sum_{m=-\infty}^{\infty} \frac{|\chi_m|^2}{y_2^2 + (\Delta - 2\pi mn)^2}.$$
 (41)

Ширина каждого пика нелинейной дифракции в шкале Δ определяется поглощением y_2 на полной длине кристалла nd, информация о фазах φ_m теряется. Тем не менее полосы нелинейной дифракции видны, если поглощение на длине одного периода, y_2/n , остается небольшим. Например, если размеры доменов, измеренные вдоль направления распространения холостой волны, не превышают 5 мкм, то картина дифракции будет наблюдаться вплоть до таких частот холостого излучения, при которых коэффициент поглощения $\alpha_2 \leq 2000 \text{ см}^{-1}$. Если же это поглощение велико, $y_2/n \gg 1$, то полосы нелинейной дифракции практически полностью сливаются и линия параметрического рассеяния представляет собой один широкий лоренцев максимум с центром в точке $\Delta = 0$. При таком поглощении исчезает возможность измерения и модулей $|\chi_m|$.

Методика определения полного профиля квадратичной восприимчивости $\chi^{(2)}(z)$ по спектрам СПР в слабопоглощающей среде может быть применена и в случае рассеяния в образце толщиной ℓ с произвольным непериодическим распределением квадратичной восприимчивости. Рассмотрим ситуацию, когда данный образец является частью протяженной периодической среды, период изменения величины $\chi^{(2)}(z)$ которой совпадает с ℓ . Если излучение накачки заполняет только ограниченный слой $\{-\ell/2, \ell/2\}$ такой среды, то сигнал параметрического рассеяния будет таким же, как и сигнал от образца толщиной ℓ . Распределение интенсивности СПР опишется выражениями (39), (40) при n = 1, причем

$$\chi_m = \frac{1}{\ell} \int_{-\ell/2}^{\ell/2} \chi^{(2)}(z) \exp\left(-i\frac{2\pi m}{\ell}z\right) dz.$$
 (42)

В принципе, для решения обратной задачи восстановления полного профиля $\chi^{(2)}(z)$ подходят лю-



Рис. 6. Влияние поглощения холостых волн на форму линии СПР в сегнетоэлектрике с регулярной доменной структурой (толщины доменов разного знака одинаковы). Полное поглощение y_2 и длина кристалла одинаковы, варьируется число доменных периодов n и, соответственно, поглощение на длине одного периода $y_2/n = y'_2$

бые трехволновые параметрические процессы, в том числе и вынужденные процессы преобразования частоты «вверх», генерации второй гармоники, каскадные взаимодействия [3, 4, 6–9]. Однако при использовании вынужденных процессов всегда будет стоять проблема недостаточного или неравномерного заполнения входным излучением мод преобразователя. Например, форма линии параметрического преобразования, определяемая через элементы w_{12} матрицы рассеяния, в общем случае произвольного поглощения будет определяться соотношением

$$P^{PC}(\omega_1, \theta_1) = P(\omega_2, \theta_2) \frac{\omega_1^3 \cos \theta_1}{\omega_2^3 \cos \theta_2} |w_{12}|^2 =$$
$$= CN(\omega_2, \theta_2) \left| \sum_{m=-\infty}^{\infty} \chi_m f(\eta_m) \right|^2, \quad (43)$$

где $N(\omega_2, \theta_2)$ — распределение числа фотонов в моде входного холостого излучения. Если же используется спонтанный процесс СПР в режиме линейного усиления, абсолютно равномерное заполнение входных мод холостого канала гарантировано (за счет нулевых флуктуаций вакуума). Информация о доменной структуре может быть получена даже при измерении формы линии в простейших условиях, когда интерференционные эффекты не существенны. По числу и относительной интенсивности смещенных перестроечных кривых можно определить число и соотношение модулей амплитуд пространственных гармоник $|\chi_m|$, а по направлению смещения и расстоянию между перестроечными кривыми — направление и период изменения квадратичной восприимчивости [9, 37-40].

9 ЖЭТФ, вып.2

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе применен общий подход к описанию частотно-угловых спектров спонтанного параметрического рассеяния и параметрического преобразования света. Этот подход основан на расчете матрицы рассеяния нелинейной среды и использовании обобщенного закона Кирхгофа. Он позволяет получить квантово-оптическое решение задачи без проведения формальной процедуры квантования поля в пространственно-неоднородной среде, включающей нелинейный кристалл и окружающее пространство. Не требуется предварительного определения явного вида собственных функций соответствующей волновой задачи, описывающей пространственное распределение с учетом уравнений Максвелла и граничных условий. Значения элементов матрицы рассеяния рассчитываются для классических волн, а затем учитываются уже в качестве коэффициентов, связывающих квантовые операторы входных и выходных мод поля. В основе такого подхода лежит совпадение уравнений Максвелла для классических полей и уравнений Гейзенберга для операторов поля в свободном пространстве. Таким образом может быть получено распределение интенсивности как классических сигналов параметрического преобразования частоты, так и сигналов чисто квантового происхождения, возникающих при спонтанном параметрическом рассеянии накачки на нулевых флуктуациях электромагнитного вакуума.

Хотя обобщенный закон Кирхгофа позволяет на этапе расчетов не учитывать явно особенности пространственной структуры мод поля, в итоге он дает правильную картину пространственно-частотного распределения интенсивности рассеяния. Так, например, в данной работе были получены выражения, описывающие СПР на интерференционных и волноводных поляритонах, без учета пространственной зависимости волновых функций соответствующих состояний поля в ограниченном слое. Результаты приведенных расчетов формы линии СПР в слое отражают особенности пространственной структуры $\nu_m(\mathbf{r})$ собственных мод поля в пространственно-неоднородных средах, включающих плоский слой кристалла с поглощением, полупрозрачными стенками или неоднородным распределением квадратичной восприимчивости. Помимо простого удобства существенным достоинством основанного на обобщенном законе Кирхгофа метода является возможность учета поглощения сигнальных или холостых волн. Так же как и при формулировке флуктуационно-диссипационных теорем,

поглощение учитывается на феноменологическом уровне. Отличие заключается в том, что обобщенный закон Кирхгофа оперирует с непосредственно измеряемыми параметрами — корреляционными моментами полей на входе и выходе нелинейной среды.

Следует отметить, что при расчете формы линии вынужденного сигнала генерации разностной частоты применение обобщенного закона Кирхгофа сводится к обычному классическому расчету интенсивности выходного поля по коэффициентам матрицы рассеяния, связывающим входные и выходные поля. Соотношения (16), (28), (43), описывающие форму линии вынужденного сигнала генерации разностной частоты в слоисто-неоднородных средах, были получены непосредственно решением укороченных уравнений для медленно меняющихся амплитуд полей. Аналогичные уравнения справедливы и при генерации суммарных частот (в том числе второй гармоники), и на каждом трехволновом этапе при вынужденных каскадных взаимодействиях более высоких порядков. При этом следует иметь в виду разницу в определении волновой расстройки Δ через параметры δ_i для процессов генерации суммарной частоты: волновые векторы сигнальной и холостой волн должны учитываться с разными знаками.

Исследование спектра интенсивности СПР может быть положено в основу измерения характера пространственного изменения линейной и нелинейной оптической восприимчивости. Преимущество использования СПР определяется его чрезвычайно широким спектром, задаваемым спектром нулевых флуктуаций вакуума, в то время как спектр сигнала при вынужденном преобразовании частоты всегда ограничен спектром падающего излучения. При этом метод, основанный на СПР, позволяет исследовать доменные структуры, расположенные в толще кристалла, искусственно созданные слоистые структуры, фотонные кристаллы. Приведенные в работе результаты могут применяться при диагностике одномерного неоднородного распределении квадратичной восприимчивости $\chi^{(2)}$ в средах с исчезающе малой вариацией линейной восприимчивости. Тем не менее возможности подхода, базирующегося на обобщенном законе Кирхгофа, этим не ограничиваются, и аналогичный подход может быть в дальнейшем распространен на неоднородно нелинейные среды с произвольным неравномерным распределением как показателей преломления, так и коэффициентов поглощения.

Работа выполнена в рамках исследований по грантам РФФИ (№№ 02-02-16843, 03-02-16364) и гранту поддержки ведущих научных школ Российской Федерации (№ НШ-166.2003.02).

ЛИТЕРАТУРА

- А. В. Голенищев-Кутузов, В. А. Голенищев-Кутузов, Р. И. Калимуллин, УФН 170, 697 (2000).
- G. D'Aguanno, M. Centini, M. Scalora et al., Phys. Rev. E 64, 016609 (2001).
- R. L. Byer, J. Nonlinear-Opt. Phys. Mater. 6, 549 (1997).
- 4. D. K. Serkland, M. M. Fejer, R. L. Byer, and Y. Yamamoto, Opt. Lett. 20, 1649 (1995).
- M. Scalora, M. J. Bloemer, A. S. Manka et al., Phys. Rev. A 56, 3166 (1997).
- 6. Н. В. Кравцов, Г. Д. Лаптев, И. И. Наумова и др., КЭ 32, 923 (2002).
- А. С. Чиркин, В. В. Волков, Г. Д. Лаптев, Е. Ю. Морозов, КЭ **30**, 847 (2000).
- 8. С. Г. Гречин, В. Г. Дмитриев, КЭ 26, 151 (1999).
- 9. Г. Х. Китаева, А. А. Михайловский, А. Н. Пенин, ЖЭТФ 112, 2001 (1997).
- Д. Н. Клышко, Фотоны и нелинейная оптика, Наука, Москва (1980).
- **11**. Д. Н. Клышко, Изв. АН СССР, сер. физ. **46**, 1478 (1982).
- 12. Д. Н. Клышко, ЖЭТФ 55, 1006 (1968).
- 13. Д. Н. Клышко, Письма в ЖЭТФ 6, 490 (1967).
- Д. Н. Клышко, Физические основы квантовой электроники, Наука, Москва (1986).
- **15**. Д. Н. Клышко, ЖЭТФ **83**, 1313 (1982).
- 16. Д. Н. Клышко, УФН 166, 613 (1996).
- **17**. Д. Н. Клышко, А. Н. Пенин, Б. Ф. Полковников, Письма в ЖЭТФ **11**, 11 (1970).
- **18**. Д. Н. Клышко, В. Ф. Куцов, А. Н. Пенин, Б. Ф. Полковников, ЖЭТФ **62**, 1291 (1972).
- **19**. И. Р. Шен, *Принципы нелинейной оптики*, Наука, Москва (1989).
- **20**. Г. Х. Китаева, Д. Н. Клышко, И. В. Таубин, КЭ **9**, 560 (1982).

- **21**. С. А. Ахманов, Р. В. Хохлов, *Проблемы нелинейной* оптики, Изд-во АН СССР, Москва (1965).
- **22.** М. Борн, Э. Вольф, *Основы оптики*, Наука, Москва (1970).
- 23. А. В. Бурлаков, С. П. Кулик, А. Н. Пенин, М. В. Чехова, ЖЭТФ 113, 1991 (1998).
- 24. Д. Ю. Корыстов, С. П. Кулик, А. Н. Пенин, КЭ 30, 921 (2000).
- 25. А. В. Бурлаков, Ю. Б. Мамаева, А. Н. Пенин, М. В. Чехова, ЖЭТФ 120, 67 (2001).
- 26. Д. Ю. Корыстов, С. П. Кулик, А. Н. Пенин, Письма в ЖЭТФ 73, 248 (2001).
- 27. Д. Н. Клышко, КЭ 4, 1056 (1977).
- 28. Д. Н. Клышко, КЭ 7, 1932 (1980).
- 29. Д. Н. Клышко, А. Н. Пенин, УФН 152, 653 (1987).
- 30. О. А. Аброскина, Г. Х. Китаева, А. Н. Пенин, ДАН СССР, серия Физика 280, 584 (1985).
- 31. Г. Х. Китаева, А. В. Сергиенко, А. Н. Пенин, ДАН СССР, серия Физика 293, 848 (1987).
- 32. Р. Глаубер, в сб. Квантовая оптика и квантовая радиофизика, под ред. О. В. Богданкевича и О. Н. Крохина, Мир, Москва (1966).
- Поверхностные поляритоны, под ред. В. М. Аграновича, Д. И. Миллса, Наука, Москва (1985), с. 91.
- 34. В. Н. Денисов, Т. А. Лескова, Б. Н. Маврин,
 В. Б. Подобедов, ЖЭТФ 94, 261 (1988).
- 35. Y. Sasaki and S. Ushioda, Phys. Rev. B 27, 1122 (1983).
- 36. А. Л. Александровский, О. А. Глико, И. И. Наумова,
 В. И. Прялкин, КЭ 23, 657 (1996).
- 37. А. Л. Александровский, Г. Х. Китаева, С. П. Кулик,
 А. Н. Пенин, ЖЭТФ 90, 1051 (1986).
- 38. Г. Х. Китаева, С. П. Кулик, А. Н. Пенин, ФТТ 34, 3440 (1992).
- 39. G. Kh. Kitaeva, S. P. Kulik, and A. N. Penin, Ferroelectrics 172, 469 (1995).
- 40. G. Kh. Kitaeva, A. A. Mikhailovsky, I. I. Naumova et al., Appl. Phys. B 66, 201 (1998).