

THREE-WAVE  
NONLINEAR OPTICAL  
INTERACTIONS

I. M. BAYANOV

*Nonlinear optical wave interaction based on squared electric-field dependence of dielectric polarisation is considered. Observation conditions of three-wave-interaction in nonlinear optical crystals are discussed.*

**Рассмотрено нелинейное взаимодействие световых волн, основанное на квадратичной зависимости диэлектрической поляризуемости вещества от напряженности электрического поля. Обсуждаются условия наблюдения трехволнового взаимодействия в нелинейных оптических кристаллах и основные свойства этих кристаллов.**

**ТРЕХВОЛНОВЫЕ  
ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ  
В НЕЛИНЕЙНОЙ ОПТИКЕ**

И. М. БАЯНОВ

Бирский государственный педагогический институт

**ВВЕДЕНИЕ**

Мы привыкли к тому, что обычный белый свет, проходя сквозь прозрачные тела, частично поглощается и окрашивается. Это происходит потому, что вещество пропускает излучение определенного цвета и поглощает излучение других цветов (цвет, как известно, определяется частотой излучения или длиной волны). Такое явление обычно и легко объяснимо с точки зрения классической (линейной) оптики. Но когда невидимый (инфракрасный) лазерный луч, проходя через специальный кристалл, становится, например, зеленым, это кажется по крайней мере любопытным. Такого рода явления привычны в нелинейной оптике – науке, изучающей нелинейные преобразования частотного спектра и пространственной формы пучка световой волны.

С созданием источника когерентного оптического излучения – лазера началась новая эпоха в изучении взаимодействия света с веществом. Если классическая оптика предполагает прямолинейное распространение света в оптически прозрачной изотропной среде без изменения частоты колебаний, то в нелинейной оптике это происходит иначе. В [1] нелинейные оптические явления рассмотрены на основе квантовой теории. В данной статье обсуждаются явления нелинейного преобразования частоты излучения в свете волновых представлений.

При прохождении электромагнитных волн с частотой  $\omega$  в среде возникают колебания не только на этой частоте, но и на других частотах, например кратных данной –  $2\omega$ ,  $3\omega$  и т.д. В оптическом диапазоне это явление наблюдается в мощных лазерных лучах в так называемых нелинейных оптических кристаллах. В этом случае диэлектрическая восприимчивость  $\chi$  и диэлектрическая поляризуемость вещества  $P$  сложным образом зависят от напряженности электрического поля  $E$  волны [2]:

$$P = \chi E_0 + \chi^{(2)} E^2 + \chi^{(3)} E^3 + \dots, \quad (1)$$

то есть реакция вещества на электрическое поле пропорциональна не только первой степени  $E$ , но и более высоким степеням (то есть нелинейная). Если учесть, что напряженность электрического поля световой волны является гармонической функцией времени, то очевидно, что произведение двух гармонических функций (например,  $E^2$ ) с одинаковой частотой приводит к функции с удвоенной частотой.

Это означает, что в выражении для поляризуемости вещества будут присутствовать колебания с частотой  $2\omega$ . Поэтому среда будет излучать волны и с частотой  $2\omega$ . Это явление называется генерацией второй гармоники.

В случае распространения двух волн с различными частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$  возникнут колебания волны с частотами  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$  и  $\omega_3' = \omega_1 - \omega_2$ . Тогда среда излучает волны с соответствующими частотами, и эти явления называют генерацией суммарной и разностной частот.

При прохождении через среду излучения с частотой  $\omega_3$  возможны колебания среды сразу на двух частотах  $\omega_1$  и  $\omega_2$ , таких, что  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ . Это явление называется параметрической генерацией света.

Все эти нелинейные процессы относятся к трехволновым взаимодействиям, основанным на квадратичной зависимости  $P$  от  $E$ .

Лазерное излучение в большинстве случаев имеет фиксированную частоту излучения  $\omega_0$  (за исключением лазеров на органических красителях и лазеров на сапфире с титаном, которые позволяют плавно перестраивать частоту излучения в относительно узком диапазоне  $\Delta\omega < \omega_0$ ). Трехволновые взаимодействия позволяют расширить диапазон частот генерируемых волн до величины, сравнимой с частотой генерации  $\Delta\omega \sim \omega_0$ !

Следует подчеркнуть, что здесь мы учитываем только квадратичную зависимость  $P$  от  $E$ , так как при повышении интенсивности излучения проявляется именно эта составляющая. Но кубическая и более высокой степени зависимости позволяют наблюдать еще более интересные явления, например генерацию высших гармоник (третьей, четвертой и т.д.). Это позволяет получать когерентное излучение с частотой, в десятки (!) раз превышающей частоту исходного излучения.

Для осуществления нелинейного взаимодействия требуется соответствующая среда, в которой поляризуемость вещества нелинейно зависит от напряженности электрического поля – нелинейный оптический кристалл. Какими свойствами он должен обладать и какие основные требования предъявляются для наблюдения трехволновых взаимодействий волн, выясним на конкретных явлениях.

## ГЕНЕРАЦИЯ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ

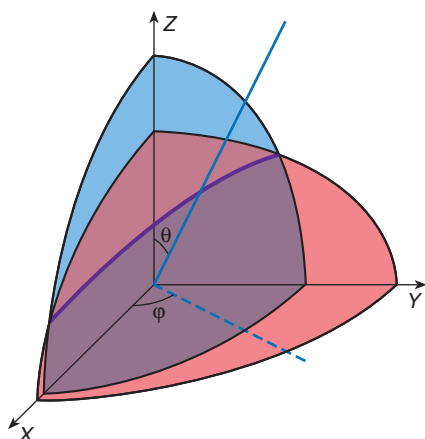
В нелинейном оптическом кристалле при выполнении определенных условий под действием мощного лазерного излучения наблюдается генерация второй гармоники (ГВГ). Для этого, во-первых, требуется достаточная интенсивность излучения (под интенсивностью излучения будем здесь понимать поток энергии излучения через единичную площадь за единицу времени). Из (1) видно, что, чем выше напряженность электрического поля волны (а значит, и интенсивность, пропорциональная

квадрату напряженности), тем больше вклад в поляризуемость нелинейных составляющих. Например, для инфракрасного (ИК) излучения неодимового лазера с длиной волны<sup>1</sup> 1,06 мкм излучение второй гармоники с длиной волны 0,53 мкм наблюдается при интенсивности  $I \sim 10^7$  Вт/см<sup>2</sup>. Чтобы получить такое значение интенсивности, обычно используют импульсный лазер, то есть лазер, который излучает короткие световые импульсы длительностью  $t$ . Кроме того, можно уменьшить площадь поперечного сечения светового пучка  $S$ . В этом случае требуемая интенсивность достигается при относительно небольших значениях энергии  $E$  светового импульса (например,  $t = 10^{-6}$  с,  $S = 0,1$  мм<sup>2</sup>,  $E = 10^{-6}$  Дж,  $I = 10^7$  Вт/см<sup>2</sup>). Современные лазеры позволяют генерировать световые импульсы длительностью до нескольких фемтосекунд ( $1$  фс =  $10^{-15}$  с), что непременно требует учета нелинейных эффектов при прохождении излучения через среду.

Во-вторых, важным условием ГВГ является одинаковая фазовая скорость двух волн с различными частотами в данной среде (это условие называется условием фазового синхронизма). Только в этом случае будет происходить эффективная передача энергии от одной волны к другой. В изотропных средах это условие невыполнимо, так как существует явление нормальной дисперсии (зависимости фазовой скорости от частоты волны). А в анизотропных кристаллах для линейно-поляризованных световых волн можно удовлетворить этому условию (линейно-поляризованным будем называть свет с ориентацией в определенной плоскости в пространстве вектора напряженности его электрического поля). Показатель преломления анизотропного кристалла (а значит, и фазовая скорость волн) зависит от направления распространения в кристалле. Эта зависимость различна для волн с различными плоскостями поляризации. Поэтому можно выбрать такое направление в кристалле, в котором показатели преломления двух волн с различными частотами и взаимно перпендикулярными плоскостями поляризации совпадут. Это направление называется направлением фазового синхронизма, а направляющие углы – углами синхронизма (рис. 1).

Условие фазового синхронизма в данном направлении в кристалле выполняется только для ГВГ данной частоты излучения. Другие виды нелинейного взаимодействия в этом направлении не удовлетворяют условию фазового синхронизма. Поэтому из всевозможных нелинейных процессов в этом случае доминирует ГВГ. Это говорит о том, что

<sup>1</sup> В данной статье при обсуждении трехволновых взаимодействий используется частота  $\omega$ , так как это удобно с точки зрения применения законов сохранения. Но по абсолютной величине частота световой волны велика ( $\sim 10^{14} - 10^{15}$  с<sup>-1</sup>), поэтому для расчетов чаще используется длина волны излучения.



**Рис. 1.** Направление в кристалле, удовлетворяющее условию фазового синхронизма. Углы синхронизма определяются пересечением эллипсоидов, являющихся зависимостью показателя преломления кристалла  $n(\theta, \varphi)$  для двух взаимно перпендикулярно поляризованных волн

поляризуемость и восприимчивость вещества резонансным образом зависят от частоты излучения.

В настоящее время существует достаточно большой выбор нелинейных оптических кристаллов, в которых можно получить ГВГ практически любого лазерного излучения [3]. От выбора кристалла зависит эффективность преобразования энергии излучения с одной частотой в излучение с другой частотой. Определяющими при этом являются следующие параметры:

- зависимость показателя преломления от направляющих углов и частоты  $n(\theta, \varphi, \omega)$  задает частоту взаимодействующих волн в данном направлении;
- частотный диапазон прозрачности кристалла ограничивает возможность применения кристалла для излучения с данной частотой;
- коэффициент  $\chi^{(2)}$  в выражении (1) определяет эффективность передачи энергии от одной волны к другой;
- оптическая прочность кристалла – способность вещества выдержать высокую плотность энергии излучения ограничивает поток энергии падающего излучения.

Только учтя все эти факторы можно выбрать оптимальный кристалл для данного излучения, что является важной задачей при построении генератора второй гармоники. Если принять во внимание, что данные параметры взаимосвязаны, например коэффициент  $\chi^{(2)}$  зависит от направления в кристалле, а оптическая прочность – от частоты излучения и т.д., то данная задача представляется достаточно сложной.

Все эти свойства кристалла и условия генерации второй гармоники играют определяющую роль и

для других видов трехволнового взаимодействия, о которых речь пойдет ниже.

### ГЕНЕРАЦИЯ СУММАРНОЙ И РАЗНОСТНОЙ ЧАСТОТ

Если обратиться к квантовой теории, то можно выявить новые закономерности трехволнового взаимодействия. В результате ГВГ два кванта с энергией  $\hbar\omega_1$  образуют квант с энергией  $\hbar\omega_2 = 2\hbar\omega_1$ . Это явление можно представить как генерацию суммарной частоты, когда два кванта с различными энергиями  $\hbar\omega_1$  и  $\hbar\omega_2$  образуют третий квант  $\hbar\omega_3 = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2$ . Так как в данном случае частота генерируемого излучения больше частоты исходного излучения, то это явление используется для получения когерентного излучения в той части ультрафиолетовой (УФ) области спектра, где отсутствует лазерное излучение. В нелинейных кристаллах возможна генерация УФ-света с длиной волны до 185 нм. Генерация суммарной частоты ИК-излучения  $\text{CO}_2$ -лазеров (длина волны 10,6 мкм) в видимой части спектра позволяет изучить такие характеристики исходного излучения, как, например, длительность и форма импульса, что затруднительно для ИК-диапазона.

Возможен также процесс генерации разностной частоты  $\hbar\omega_3 = \hbar\omega_1 - \hbar\omega_2$ . Здесь частота генерируемого излучения меньше, чем у исходного, поэтому данное явление используется для генерации света в среднем и далеком ИК-диапазоне вплоть до миллиметровых длин волн.

Выражения, связывающие энергии квантов, представляют собой закон сохранения энергии. Этот закон выполняется для всех видов трехволнового взаимодействия.

Для рассматриваемых явлений важен и другой закон сохранения. Фазовая скорость волны  $v = c/n$  связана с волновым числом

$$k = \frac{2\pi n}{\lambda} = \frac{2\pi}{\lambda/c} n/c = \frac{\omega}{v},$$

поэтому условие фазового синхронизма для ГВГ можно представить в виде  $2k_1 = k_2$ . В случае одинакового направления распространения волн это условие можно записать в векторном виде  $2\vec{k}_1 = \vec{k}_2$ .

Волновой вектор  $\vec{k}$  связан с импульсом кванта ( $\vec{p} = \hbar\vec{k}$ ), поэтому

$$\hbar\vec{k}_3 = \hbar\vec{k}_1 + \hbar\vec{k}_2.$$

Таким образом, условие фазового синхронизма выражает закон сохранения импульса для квантов. Этот закон выполняется также и при генерации суммарной и разностной частот.

Квантовый подход позволяет более наглядно представить еще один вид трехволнового взаимодействия, представленный в следующем разделе.

## ПАРАМЕТРИЧЕСКАЯ ГЕНЕРАЦИЯ СВЕТА

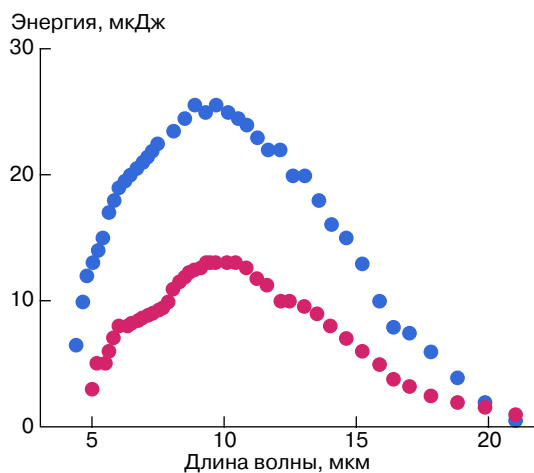
В рассмотренных выше явлениях два кванта создают третий. Возможен и обратный процесс, когда один квант с энергией  $\hbar\omega_3$  распадается на два кванта с энергиями  $\hbar\omega_1$  и  $\hbar\omega_2$  с соблюдением законов сохранения:

$$\hbar\omega_3 = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2,$$

$$\hbar\vec{k}_3 = \hbar\vec{k}_1 + \hbar\vec{k}_2.$$

Это явление называется параметрической генерацией света (ПГС). С одной стороны, ПГС, казалось бы, приводит к неопределенности – при заданной частоте  $\omega_3$  множество различных пар  $\omega_1$  и  $\omega_2$  могут удовлетворить закону сохранения энергии. С другой – это позволяет генерировать излучение практически с любой желаемой частотой. Генерируемые частоты определяются законом сохранения импульса, то есть направлением в кристалле, в котором удовлетворяется этот закон для данных частот. Следовательно, вращая кристалл можно плавно (!) изменять частоту генерируемого излучения в широких пределах.

При ПГС частоты генерируемого излучения, очевидно, всегда меньше частоты излучения накачки (накачкой называется мощное излучение на частоте  $\omega_3$ , из которого возникают два других излучения). Поэтому данное явление используется преимущественно для генерации перестраиваемого по частоте ИК-излучения. Так, путем поэтапной параметрической генерации можно получить перестраиваемое по частоте излучение в среднем и дальнем ИК-диапазоне спектра [4] (рис. 2).

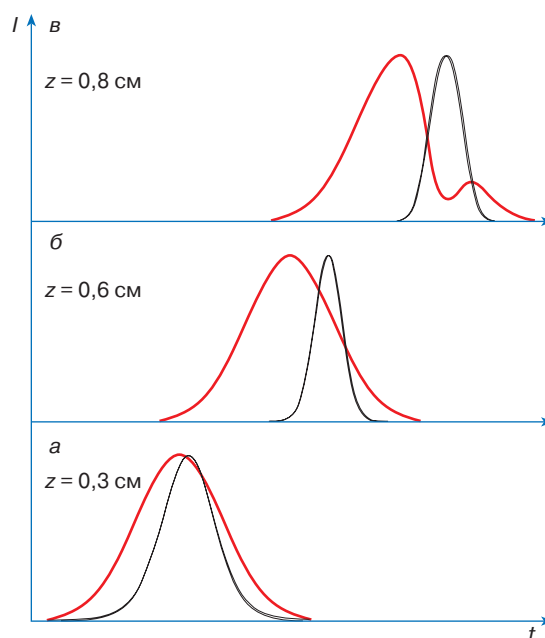


**Рис. 2.** Энергия генерируемых импульсов в зависимости от длины волны излучения в параметрическом генераторе света. Здесь в кристалле GaSe взаимодействуют световые волны  $\lambda_3 = 1,06$  мкм,  $\lambda_1 = 1,1-1,4$  мкм (плавно перестраиваемая). Верхняя кривая для кристалла длиной 4 мм, нижняя – 1,7 мм. Уменьшение энергии генерируемых световых импульсов с ростом длины волны обусловлено в основном уменьшением энергии кванта ( $\hbar\omega \sim 1/\lambda$ )

Волновое представление данного явления позволяет учесть влияние на эффективность передачи энергии от одной волны к другой групповых скоростей волн, дисперсионного расплывания импульсов и т.п. Эти факторы играют важную роль при параметрической генерации импульсов света с пикосекундной и фемтосекундной длительностью.

Световые импульсы помимо фазовой скорости обладают групповой скоростью – скоростью движения огибающей импульса. За редким исключением групповые скорости импульсов на разных частотах различны даже в случае совпадения фазовых скоростей. Этот фактор снижает эффективность перекачки энергии от одной волны к другой (рис. 3).

Дисперсионным расплыванием импульсов назовем увеличение длительности импульсов вследствие различия фазовых скоростей волн с разными частотами, составляющих данный импульс. Этот



**Рис. 3.** Движение взаимодействующих световых импульсов в нелинейном оптическом кристалле  $\text{LiV}_3\text{O}_5$  вдоль оси Z с различными групповыми скоростями при ПГС. Линиями различных цветов обозначены огибающие световых импульсов на трех длинах волн: черная –  $\lambda_1 = 1,08$  мкм и  $\lambda_2 = 1,46$  мкм (движутся с одинаковой скоростью), красная –  $\lambda_3 = 0,62$  мкм (импульс накачки). Максимум интенсивности каждого импульса нормирован на 1, так как импульсы на разных стадиях имеют сильно отличающиеся интенсивности. На графике (а) первый и второй импульсы только появились и находятся в центре третьего импульса, на графике (б) они сместились вперед относительно центра третьего импульса, а на графике (в) они оказались на переднем фронте третьего импульса, при этом существенная часть энергии импульса накачки перешла к генерируемым импульсам

эффект играет важную роль обычно в случае импульсов длительностью меньше 1 пикосекунды и приводит к снижению интенсивности световых импульсов, что, в свою очередь, уменьшает эффективность взаимодействия.

Оба явления зависят от дисперсионных свойств кристалла, в котором происходит взаимодействие, и, чтобы изменить их влияние, требуется по возможности уменьшить длину кристалла. Но уменьшение длины означает уменьшение времени перекачки энергии с одной волны на другую. Поэтому выбор оптимальной длины кристалла является еще одной важной задачей при построении нелинейного генератора.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В кратком обзоре невозможно рассмотреть все особенности трехволновых взаимодействий, в частности не обсуждается влияние пространственных эффектов — влияние формы профиля светового пучка, смещения пучков в анизотропном кристалле, самофокусировки пучков и т.п. Здесь также нет возможности обсудить влияние линейного и нелинейного поглощения излучения на рассматриваемые процессы. Тем не менее даже перечисленный комплекс основных факторов создает представление о том, насколько сложной задачей является нелинейное взаимодействие волн в среде и для расчетов и для экспериментального исследования. Несмотря на это, созданные к настоящему времени генераторы второй гармоники, разностной и суммарной частот, параметрические генераторы света являются обычными устройствами в научной оптической лаборатории.

Практически сразу после появления первого лазера в 1960 году в течение нескольких лет были построены первые действующие образцы перечисленных генераторов света, позволивших в дальнейшем сделать лазер универсальным инструментом нелинейной спектроскопии. Пионерами в создании данных генераторов были отечественные ученые — профессор С.А. Ахманов и академик Р.В. Хохлов, являющиеся одними из основоположников нелинейной оптики.

Во многих оптических экспериментах требуется лазерное излучение с плавно перестраиваемой в широком диапазоне частотой. Многие газы с многоатомными молекулами имеют широкие колебательные спектры поглощения в ИК-диапазоне, для изучения которых используется излучение параметрических генераторов света. Современные сложные полупроводниковые структуры, являющиеся элементной базой компьютеров нового поколения, тоже изучаются с применением перестраиваемого по частоте лазерного ИК-излучения. Главное преимущество такого излучения — возможность точной настройки по частоте на линию поглощения спектра исследуемого объекта.

В настоящее время новые нелинейные генераторы света на основе трехволнового взаимодействия получают широкое распространение, особенно лазеры в фемтосекундном диапазоне длительности световых импульсов и на базе новых нелинейных кристаллов, и можно ожидать многих открытий в данном направлении науки.

## РЕКОМЕНДУЕМАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. Делоне Н.Б. Нелинейная оптика // Соросовский Образовательный Журнал. 1997. № 3. С. 94–99.
2. Ахманов С.А., Вислоух В.А., Чиркин А.С. Оптика фемтосекундных лазерных импульсов. М.: Наука, 1988.
3. Dmitriev V.G., Gurzadyan G.G., Nikogosyan D.N. Handbook of Nonlinear Optical Crystals. Heidelberg: Springer-Verlag, 1991. 220 p.
4. Bayanov I.M., Danielius R., Heinz P., Seilmeier A. Intense Subpicosecond Pulses Tunable between 4  $\mu\text{m}$  and 20  $\mu\text{m}$  Generated by an All-Solid-State Laser System // Opt. Commun. 1994. Vol. 113. P. 99–104.

\* \* \*

Ильмир Масуилович Баянов, кандидат физико-математических наук, доцент Бирского государственного педагогического института, зав. кафедрой общей физики. Область научных интересов — физика сверхкоротких лазерных импульсов, физика нелинейных оптических кристаллов. Автор 27 научных публикаций, соавтор одной монографии.