

## Спонтанное параметрическое рассеяние света

Г. Х. Китаева, А. Н. Пенин<sup>1)2)</sup>

Физический факультет МГУ им. М. В. Ломоносова, кафедра квантовой электроники, 119899 Москва, Россия

Поступила в редакцию 19 июля 2005 г.

Основное внимание в этой статье уделено ретроспективному описанию спонтанного параметрического рассеяния (СПР) света в средах без центра инверсии и использованию этого явления в спектроскопии собственных колебательных состояний кристаллической решетки – оптических фононов. Авторам представляется, что метод спектроскопии СПР оценен еще далеко не должным образом. Мы надеемся снова привлечь внимание читателей к одному из самых интересных квантовых явлений нелинейной оптики, не имеющего классического аналога. Есть полная уверенность в том, что возможности спектроскопии СПР, особенно в настоящее время, будут востребованы как в фундаментальной науке, так и в технологии новых материалов.

PACS: 42.65.Lm, 42.70.Mр, 77.84.–s

Первое сообщение о теоретической возможности спонтанного параметрического рассеяния (СПР) света (в то время использовался термин “параметрическая люминесценция”) было сделано Д. Н. Клышко на Всесоюзном совещании по нелинейным свойствам сред в Черногловке в 1966 г. Первая журнальная публикация – в “Письмах в ЖЭТФ” в 1967 г. [1]. И в том же году явление было экспериментально обнаружено одновременно в трех исследовательских группах [2–4]. Отметим, что в англоязычной литературе СПР именуется как “spontaneous parametric down-conversion”. История открытия рассеяния полна драматизма; к сожалению, в данной публикации не представляется возможным уделить ей достаточно места. В 1983 г. Д. Н. Клышко вместе с двумя своими учениками был удостоен Государственной премии СССР “За открытие и исследование явления параметрического рассеяния света и его применение в спектроскопии и метрологии”. Практически с самого момента открытия явление СПР начало эффективно использоваться, сначала в спектроскопии, а затем – в квантовой метрологии и квантовой оптике. В настоящее время большинство работ по квантовой оптике и квантовой информатике, связанных с исследованием и применением квантовых особенностей электромагнитного поля, основываются именно на СПР. Свойства процесса позволяют генерировать специфические состояния поля, лежащие в основе ряда протоколов квантовых вычислений и защиты квантовой информации [5].

Сложилось так, что использование СПР в квантовой оптике получило хорошую известность и широкое распространение, а между тем значительно менее известными остались перспективы его применения для спектроскопии кристаллов, особенно в области низкочастотных оптических фононов и поляритонов в диапазоне длин волн от десятков микрон до миллиметров. В той области частот, в которой расположены оптические фононы, спектры СПР плавно соединяются со спектрами комбинационного рассеяния света на фононных поляритонах (КРСП) [6, 7]. При всей внешней схожести этих процессов имеет место их принципиальное физическое различие. СПР может трактоваться как процесс рассеяния света на нулевых флуктуациях электромагнитного вакуума (НФВ) в среде за счет ее квадратичной по полю оптической восприимчивости. Тогда как спонтанное КРСП – это рассеяние за счет мнимой части кубичной по полю оптической восприимчивости. Как правило, компоненты тензора комбинационного рассеяния (КР) быстро уменьшаются до нуля при отстройке частоты поляритона от частоты оптического фонона, так что основной вклад в интенсивность рассеянного на поляритонах света получается за счет СПР. В центросимметричных средах параметрический вклад отсутствует и спонтанное рассеяние света является чисто “комбинационным”, при этом КР может наблюдаться лишь непосредственно на фонах или на очень узких прилегающих участках поляритонных ветвей.

Как было показано Клышко [8, 9], СПР света может быть описано только в рамках последовательной квантовой теории. С точки зрения наблюдателя, СПР представляет собой оптический параметричес-

<sup>1)</sup> Член редколлегии “Писем в ЖЭТФ” с 1998 г. по настоящее время.

<sup>2)</sup> e-mail: penin@qopt.phys.msu.ru

кий процесс спонтанного распада фотонов падающего на среду монохроматического излучения (накачки) с частотой  $\omega_0$  на пары фотонов – сигнальный (частоты  $\omega_1$ ) и холостой (частоты  $\omega_2$ ):

$$\hbar\omega_0 \rightarrow \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2. \quad (1)$$

Сумма частот родившихся фотонов равна частоте накачки. Естественно, при нестационарной или квази-монохроматической накачке это условие выполняется с точностью до спектральной ширины накачки. Частоты родившихся фотонов лежат в широких пределах, в принципе, от нуля до частоты накачки. Традиционно принято считать, что частота “сигнального” фотона  $\omega_1$  лежит в пределах  $\omega_0 > \omega_1 \geq \omega_0/2$ , а частота “холостого” фотона  $\omega_2$  – в пределах  $0 < \omega_2 \leq \omega_0/2$ . Максимальная эффективность распада достигается при выполнении закона сохранения импульса, который в данном процессе имеет вид условия пространственного (фазового) синхронизма

$$\Delta\mathbf{k} \equiv \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_0 = 0. \quad (2)$$

Здесь  $\mathbf{k}_i$  ( $i = 0, 1, 2$ ) – волновые векторы накачки сигнальной и холостой волны, а  $\Delta\mathbf{k}$  – фазовая расстройка.

В случае, когда оба фотона имеют частоты, попадающие в область прозрачности рассеивающей среды, на выходе из среды генерируется бифотонное поле, представляющее собой поток пар коррелированных фотонов. Пара фотонов – бифотон – является единым квантовым объектом, представляющим собой так называемое перепутанное (entangled) состояние. Это состояние описывается единой волновой функцией и обладает целым рядом уникальных статистических свойств. Фотоны в паре жестко связаны между собой местом и моментом рождения, частотами и направлением разлета. Интенсивность потока бифотонов напрямую связана с яркостью нулевых флуктуаций электромагнитного вакуума. В случае, когда  $\omega_1 = \omega_2 = \omega_0/2$  и  $\mathbf{k}_1 = \mathbf{k}_2 = \mathbf{k}_0/2$ , реализуется уникальная с точки зрения экспериментальной квантовой оптики ситуация: сигнальный и холостой фотоны становятся неразличимыми.

Если частота одного фотона из пары, холостого, попадает в область сильного фоновонного поглощения, на выходе из рассеивающего объекта остается только сигнальный фотон каждой пары. При этом реализуются условия рассеяния света на поляритонах. Интенсивность потока сигнальных фотонов может определяться в таком случае не только нулевыми флуктуациями электромагнитного вакуума, но и тепловыми флуктуациями поля на холостой частоте, имеющими место в поглощающей среде при достаточно

высокой температуре. Жесткая корреляция между частотами и направлениями фотонов, рождающихся при СПР, приводит к тому, что спектры пространственного и частотного распределений интенсивности сигнального излучения, регистрируемые в видимом диапазоне, несут информацию об оптических и динамических параметрах собственных состояний рассеивающей среды в диапазонах частот ИК, далекого ИК и терагерцового диапазонов, трудно доступных для непосредственного наблюдения. Можно говорить о своеобразном процессе гетеродинамирования низкочастотных флуктуационных полей длинноволнового диапазона в диапазон видимых частот. Гетеродинамическим излучением в данном случае выступает излучение накачки. Двумерный спектр СПР, представляющий собой распределение интенсивности сигнального излучения в координатной плоскости частота – угол рассеяния, может быть зарегистрирован с помощью спектрографической системы со скрещенными частотной и угловой дисперсиями. На входной плоскости спектрографа при этом строится фурье-образ потока сигнального излучения [10].

При феноменологическом рассмотрении яркость сигнального излучения определяется макроскопическими параметрами среды и интенсивностью накачки. В частности, если тепловые флуктуации пренебрежимо малы, яркость сигнала в единицах фотонов на моду сигнальной волны на выходе из рассеивающего кристалла составляет [9]

$$N_1 = F(\mathbf{k}_1)(N_2 + 1), \quad (3)$$

где  $N_2$  – число фотонов “свободного” поля в моде холостой волны на входе в кристалл; 1 в скобках – эффективная яркость нулевых флуктуаций электромагнитного вакуума в единицах фотонов на моду холостого излучения,  $F$  – коэффициент параметрического преобразования; в прозрачном кристалле

$$F = 4\pi^2 c^{-2} \omega_1 \omega_2 |\chi(\omega_1 = \omega_0 - \omega_2)|^2 |E_0|^2 l_\Delta^2,$$

$\chi(\omega_1 = \omega_0 - \omega_2)$  – свертка тензора квадратичной восприимчивости кристалла с ортами поляризации накачки, сигнальной и холостой волн;  $E_0$  – напряженность поля накачки;  $l_\Delta$  – длина когерентного взаимодействия (когерентная длина). Яркость сигнального излучения СПР, наблюдаемого только за счет нулевых флуктуаций электромагнитного вакуума (то есть при  $N_2 = 0$ ), может быть достаточно высокой. Так, эффективная яркостная температура достигает примерно 1500 К при интенсивности излучения накачки 1 Вт, длине монокристалла ниобата лития ( $\text{LiNbO}_3$ ) 1 см, длине волны накачки 0.51 мкм и дли-

не волны сигнала 0.6 мкм. Можно заметить, что яркость обычной 100-ваттной лампочки накаливания не превышает этого значения. В случае, когда  $N_2 \neq 0$ , формула (3) описывает также и вынужденный процесс – линейное (по интенсивности и яркости) параметрическое преобразование входного холостого излучения. В [11] был экспериментально доказан тот факт, что поглощение на холостой волне не влияет на интегральную интенсивность сигнала, а только изменяет частотную и угловую (в  $\mathbf{k}$ -пространстве) форму линии. Это доказательство положило конец спорам об основных свойствах СПР и КРСР (см., например, [12]) и привело к развитию спектроскопии СПР. Позднее было экспериментально показано, что эффективная яркость НВФ в параметрических процессах равна единице, даже если нелинейная среда поглощает и частично отражает падающее извне излучение [13].

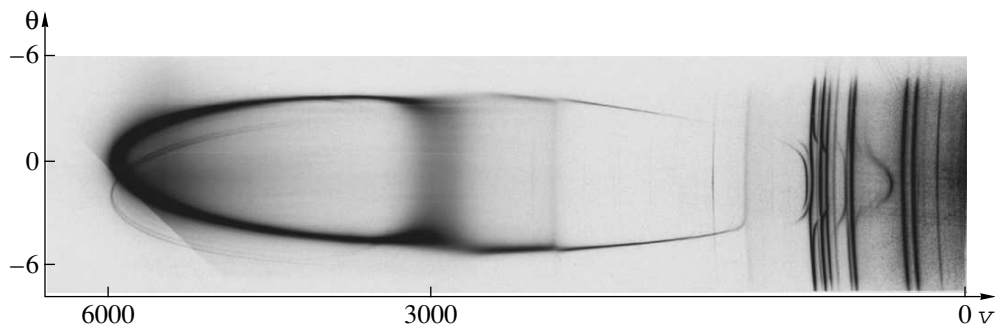
Интерес к спектроскопии СПР связан с тем, что по частотно-угловым спектрам можно определить величины целого ряда линейных и нелинейных оптических параметров среды, а также динамических параметров кристаллической решетки. В частности, можно измерить показатели преломления и поглощения во всем диапазоне существования рассеяния. Для решения этой задачи необходимо лишь знать значения показателей преломления в видимом диапазоне спектра, на частоте накачки и сигнала. Ход перестроечной кривой (зависимость интенсивности сигнального излучения в координатах частота – угол рассеяния при нулевой величине волновой расстройки) позволяет определить вклад конкретных фононов в оптические параметры кристаллов и определить не только их частоты, константы затухания, но и силы их осцилляторов. Измерение интенсивности рассеяния позволяет определить значения квадратичной и мнимой частей кубичной восприимчивости среды. Частотная и угловая ширины перестроечной кривой однозначно связаны с коэффициентом поглощения на частоте холостой волны (в предположении малого поглощения на частоте сигнала и накачки). Отметим, что в спектрах СПР проявляются и колебания, активные только в ИК поглощении, и колебания, активные только в КР, а также те колебания, для которых альтернативный запрет снят. Такая “неразборчивость” рассеяния к типу активности колебаний приводит к тому, что спектры СПР крайне чувствительны к наличию даже чрезвычайно слабых (по своему вкладу в восприимчивость кристалла) колебательных состояний решетки. Например, были зарегистрированы колебания высших порядков, не имеющие активности КР (нелинейность третьего по полю порядка была

близка к нулю) и обладающие рекордно малой силой осциллятора (характеризующей дипольный момент и активность колебания в ИК поглощении) – порядка  $10^{-8}$  [14].

Помимо практически важных сведений о дисперсии оптических параметров кристаллов в ИК диапазоне, об изменении дисперсионных кривых при легировании, варьировании состава и структуры дефектов кристаллов (см., например, [15–17]), за время своего существования спектроскопия СПР позволила получить ряд нетривиальных и зачастую уникальных результатов, интересных с фундаментальной точки зрения. Напомним о некоторых из них.

*Сегнетоэлектрический фазовый переход в кристалле дигидрофосфата калия (KDP, химическая формула  $\text{KN}_2\text{PO}_4$ ).* Спектры СПР позволили обнаружить, что в окрестности точки сегнетоэлектрического фазового перехода в KDP ( $T_c \sim 123\text{ K}$ ) изменяются силы осциллятора колебаний – не только мягкой моды, сила осциллятора которой резко растет и определяет изменение теплоемкостей на нулевых частотах, но и ряда других фононов [18]. Это относится в первую очередь к колебаниям группы  $\text{PO}_4$  в диапазоне частот  $900\text{--}950\text{ см}^{-1}$ , сила осциллятора которых резко уменьшается при приближении к температуре Кюри в сегнетоэлектрической фазе. Можно быть уверенным в том, что этот факт принципиально важен для развития теории фазовых переходов. Было обнаружено, что образующаяся в сегнетоэлектрической фазе доменная структура приводит к существенному изменению колебательного спектра: проявлению новых колебаний первого и более высокого порядка, нарушению поляризационных правил отбора [19]. Данные эффекты до сих пор не объяснены в рамках существующих теорий сегнетоэлектрических фазовых переходов и образования доменных структур.

*Концентрационный фазовый переход в твердом растворе  $\text{KN}_2\text{D}_{2(1-x)}\text{PO}_4$ .* При уменьшении концентрации  $x$  протона и замене его дейтроном наблюдается изменение обыкновенного показателя преломления. В пределах значений концентрации протона  $x = 1 - 0.25$  зависимость носит линейный характер. Однако при дальнейшем увеличении концентрации дейтронов появляется излом в зависимости, характерный для фазовых переходов. Шкала  $x$  разбивается на два диапазона с качественно различным поведением показателя преломления при изменении концентрации дейтронов. Надо отметить, что положение этого излома совпадает с таким значением  $x$ , при котором имеет место инверсия валентных колебаний ОН и ОД связей (их частоты лежат в диапазоне частот



Частотно-угловой спектр СПР в кристалле йодноватой кислоты. По горизонтали: волновое число холостой волны  $\nu$ ,  $\text{см}^{-1}$ , по вертикали: угол рассеяния в градусах

$1500\text{--}1800\text{ см}^{-1}$ , а спектральные ширины достигают  $200\text{ см}^{-1}$ ) [20].

*Ангармонизм колебательных состояний кристаллической решетки.* Пожалуй, наиболее ярко возможности спектроскопии СПР проявляются при изучении анггармонизма фононов, взаимодействия колебаний первого порядка с колебаниями высших порядков – резонанса Ферми, и интерференции восприимчивостей разных порядков, в частности, антирезонанса Фано. Если в спектрах КР совпадение частот состояний первого и второго или более высоких порядков является достаточно редким явлением, то в спектрах СПР оно является обычным. Связано это с широкой частотной полосой фононных поляритонов. Наличие колебаний высших порядков, таких как бифононы, суммарные и разностные комбинационные колебания, зоны несвязанных многочастичных состояний, приводит к изменению оптических параметров кристаллов в поляритонной области и, тем самым, к заметному изменению хода перестроечной кривой спектра СПР.

Достаточно полная теоретическая картина этих явлений была дана в ряде работ Аграновича (см., например, [21]) и Стрижевского ([22]) с соавторами. Экспериментально резонанс Ферми и антирезонанс Фано проявляются в спектрах практически всех кристаллов, в которых рассеяние наблюдалось к настоящему времени (см., например, [14–16, 23, 24]). Особенно ярко эти эффекты проявляются в спектрах кристаллов, в структуре которых имеет место водородная связь, таких как формиат лития, йодноватая кислота, пентаборат калия, КДР и многие другие. На рисунке приведен пример характерного спектра СПР.

*Исследование эффектов электрон-фононного взаимодействия.* Как известно, благодаря электрон-фононному взаимодействию, в кристаллах-диэлектриках может происходить локализация свободных электронов и образование поляронных состояний,

приводящее к изменению спектра поглощения кристалла в области прозрачности, различным фотоиндуцированным эффектам, образованию голографических структур и т.д. Сопутствующие изменения на уровне фононной подсистемы до последнего времени не исследовались теоретически в достаточной мере и, по нашим сведениям, нигде не наблюдались экспериментально. Недавно при исследовании спектров СПР в химически редуцированных кристаллах легированного ниобата лития  $\text{Mg:LiNbO}_3$  было обнаружено, что образование поляронов приводит к изменению дисперсии диэлектрической проницаемости кристаллов в области края фононного поглощения [25]. Изменения нарастают по мере увеличения концентрации поляронов и по мере приближения к области фононных резонансов; природа этих явлений пока не установлена.

Все, о чем говорилось выше, относится к протеканию СПР в пространственно-однородных образцах, имеющих вид плоского слоя. Ситуация существенно усложняется, если образец имеет либо регулярное, либо стохастическое пространственное строение. Отражение от внутренних границ между отдельными областями приводит к существенному усложнению спектра. Возможны различные ситуации, когда на внутренних границах терпят существенный скачок только линейные параметры – показатель преломления и коэффициент поглощения. Либо имеют место только изменения квадратичной восприимчивости или восприимчивости более высокого порядка, например, изменения знака четных по полю нелинейных восприимчивостей в полидоменных сегнетоэлектриках. Либо и те, и другие эффекты вместе. Для того, чтобы адекватно описать вид спектра СПР при наличии пространственной неоднородности, можно использовать обобщенный нелинейный закон Кирхгофа (ОЗК), сформулированный Клышко для единого описания спонтанных и вынужденных

параметрических процессов в поглощающих средах [9, 26].

Если кроме накачки на входе в среду присутствует поле на каких-либо частотах сигнального ( $\omega_1$ ) или холостого ( $\omega_2$ ) излучений, то наряду со спонтанным процессом будут идти и процессы вынужденного преобразования фотонов накачки с образованием аналогичных бифотонных пар. При условии, что внешние поля достаточно малы и коэффициент параметрического преобразования значительно меньше единицы, ОЗК описывает суммарное поле на выходе трехволнового параметрического преобразователя и, по сути, является решением кинетических уравнений для вторых моментов поля, учитывающих при последовательно квантовом рассмотрении как тепловые, так и квантовые шумы среды. Согласно ОЗК, среднее число фотонов в модах выходного излучения сигнального диапазона  $N_{1'} \equiv \langle a_{1'}^+ a_{1'} \rangle$  при параметрическом рассеянии равно

$$N_{1'} = \hat{U}_{1'1}(N_1 + N_0 + I)\hat{U}_{1'1}^+ - \hat{U}_{1'2}(\tilde{N}_2 - N_0)\hat{U}_{1'2}^+ - N_0 - I. \quad (4)$$

Здесь  $\hat{U}_{i'j}$  – 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' пробегает по всем модам выходного сигнального и холостого излучений, индексы 1 и 2 – по всем модам входного сигнального и холостого излучений, соответственно;  $I$  – единичная матрица;  $a_i^+$  и  $a_i$  – операторы рождения и уничтожения фотонов в соответствующих модах поля. Матрицы  $(N_1)_{ij} \equiv \langle a_{1i}^+ a_{1j} \rangle$  и  $(N_2)_{ij} \equiv \langle a_{2i}^+ a_{2j} \rangle$  описывают вторые моменты входного поля. Температурный фактор  $N_0 \equiv 1/(\exp(\hbar\omega/kT) - 1)$  описывает вклад тепловых флуктуаций среды; как правило, при комнатных температурах даже на самых низких холостых частотах он существенно меньше единицы (то есть вклад НФВ) и может не учитываться.

Среднее число фотонов в модах выходного излучения холостого диапазона  $N_{2'} \equiv \langle a_{2'}^+ a_{2'} \rangle$  определяется выражением

$$N_{2'} = \hat{U}_{2'1}(\tilde{N}_1 + N_0 + I)\hat{U}_{2'1}^+ - \hat{U}_{2'2}(N_2 - N_0)\hat{U}_{2'2}^+ + N_0. \quad (5)$$

Отличие выражений (4) и (5) для сигнальных и холостых фотонов связано с тем, что предполагается поглощение только на частотах холостого излучения. При этом корреляционный момент  $K' \equiv \langle a_{1'} a_{2'} \rangle^*$ , определяющий статистические свойства выходного бифотонного поля, будет равен

$$K' = \hat{U}_{2'1}(\tilde{N}_1 + N_0 + I)\hat{U}_{1'1} + \hat{U}_{2'2}(N_2 - N_0)\hat{U}_{1'2}. \quad (6)$$

Формулировка ОЗК в форме, представленной соотношениями (4)–(6), была названа “поляритонным” законом Кирхгофа [9].

Метод ОЗК позволяет определять вторые корреляционные моменты полей на выходе нелинейной среды по вторым корреляционным моментам, заданным на входе. С помощью этого метода были получены общие соотношения, описывающие зависимость формы линии спонтанного параметрического рассеяния света от пространственного распределения квадратичной восприимчивости в нелинейной среде [27]. В этих расчетах постулируется лишь линейная связь между гейзенберговскими операторами входных и выходных полей. Для слоистой среды с пространственной модуляцией квадратичной восприимчивости  $\chi \equiv \chi(\omega_1 = \omega_0 - \omega_2)$  вдоль одного направления ( $Z$ ) рассчитана двумерная матрица рассеяния  $U_{ij}$ , описывающая параметрическое преобразование входных сигнальных и холостых волн в выходные в приближении линейного усиления и заданной накачки. Полученные с помощью ОЗК выражения позволяют описать частотно-угловое распределение сигнального излучения СПР в среде с произвольной зависимостью  $\chi(z)$ . Координатная зависимость  $\chi(z)$  представляется фурье-спектром пространственных гармоник:

$$\chi(z) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} \chi_m \exp(imqz) \quad (7)$$

с амплитудами

$$\chi_m = \frac{1}{d} \int_{-d/2}^{d/2} \chi(z) \exp(-imqz) dz. \quad (8)$$

Для среды с регулярной периодической зависимостью  $\chi(z)$   $d$  – это период одномерной нелинейной сверхрешетки,  $q \equiv 2\pi/d$  – модуль вектора обратной сверхрешетки, направленного вдоль оси  $Z$ . Если образец длиной  $l$  характеризуется нерегулярной, стохастической зависимостью  $\chi(z)$ , то он может рассматриваться как один период бесконечно протяженной регулярной решетки. В этом случае  $d = l$  и формально число периодов  $n \equiv l/d$  нелинейной решетки равно 1. С учетом поглощения среды на частотах холостых волн общее выражение для интенсивности сигнала СПР, приходящейся на единичный угловой и спектральный интервалы, имеет вид

$$P_{\omega_1 \Omega_1} = C_0 \sum_{m=-\infty}^{\infty} |\chi_m|^2 g(\Delta_m, y_2) + C_0 \sum_{m=-\infty}^{\infty} \sum_{\substack{m'=-\infty \\ m' \neq m}}^{\infty} (-1)^{n(m'-m)} \chi_m^* \chi_{m'} \times \left[ \frac{e^{-i\Delta - y_2} - 1}{(y_2 + i\Delta - i2\pi m n)(y_2 + i\Delta - i2\pi m' n)} + \frac{e^{i\Delta - y_2} - 1}{(y_2 - i\Delta - i2\pi m n)(y_2 - i\Delta - i2\pi m' n)} \right], \quad (9)$$

где  $\Delta_m \equiv \Delta - 2\pi mn$  – расстройка фазового квазисинхронизма для  $m$ -го порядка нелинейной дифракции. В нулевом порядке расстройка  $\Delta_0 \equiv \Delta \equiv (\Delta \mathbf{k})_z l$  совпадает с расстройкой фазового синхронизма в пространственно-однородной среде и вычисляется, согласно (2), через проекции на ось  $Z$  волновых векторов сигнала, холостой волны и накачки.  $C_0 \equiv (\hbar\omega_1^4\omega_2/c^5n_0n_1n_2)P_0l^2/\cos\vartheta_2$  – общий множитель, пропорциональный мощности падающей накачки  $P_0$ ,  $y_2 \equiv \alpha_2 l/2 \cos\vartheta_2$ ,  $\alpha_2$  – бугеровский коэффициент поглощения на частоте холостой волны,  $\vartheta_2$  – угол между нормалью к плоскости нелинейных слоев и волновым вектором холостой волны. Частотно-угловая форма линии рассеяния описывается двумя вкладами.

Первый вклад представляет собой аддитивную сумму вкладов отдельных гармоник квадратичной восприимчивости. Каждое слагаемое имеет то же распределение мощности сигнала относительно максимума, что и рассеяние в однородной среде, описываемое функцией

$$g(\Delta, y_2) \equiv \frac{2}{(\Delta^2 + y_2^2)^2} [(\Delta^2 - y_2^2)(1 - e^{-y_2 \cos \Delta}) - 2y_2 \Delta e^{-y_2 \sin \Delta} + y_2(\Delta^2 + y_2^2)].$$

При этом положение новых линий максимумов – перестроечных кривых для каждого слагаемого – смещено относительно максимумов рассеяния в однородной среде в соответствии с условием “квазисинхронизма”  $\Delta(\omega_1, \theta_1) = mql \equiv 2\pi mn$ , когда в условие волнового синхронизма вводится дополнительно вектор обратной решетки. Величина каждого слагаемого пропорциональна квадрату модуля амплитуды соответствующей гармоники.

Второй вклад в (9) содержит произведения несопадающих гармоник  $\chi_m$  и является результатом их интерференции.

Исследование частотно-углового распределения интенсивности сигнала может быть положено в основу измерения характера периодического пространственного изменения квадратичной нелинейности в кристаллических структурах [28]. В принципе, для этого подходят любые трехволновые параметрические процессы, в том числе и вынужденные процессы преобразования частоты “вверх”, генерации второй гармоники [29]. Однако при использовании вынужденных процессов всегда будет стоять проблема учета неравномерного заполнения мод преобразователя входным излучением. Если же используется спонтанный процесс СПР, абсолютно равномерное заполнение входных мод холостого канала гарантировано (при соблюдении режима линейного усиления).

Метод СПР позволяет исследовать островки неоднородной структуры, которые расположены в толще кристалла, а также характеризовать весь объем образца в целом. В этом заключается его основное преимущество перед методами химического травления, атомно-силовой или электросиловой микроскопии, сканирующей электронной микроскопии, рентгенографии и других методов, применяющихся для исследования лишь поверхности образцов. Можно получать нелинейно-оптическое “томографическое” изображение образцов и определять наиболее пригодные для использования в реальных устройствах области. В [30] приведен пример построения карты распределения качества нелинейно-оптической сверхрешетки по входной поверхности периодически поляризованного образца на основе кристалла  $\text{Y:LiNbO}_3$ .

Таким образом, метод спектроскопии СПР является простым и чувствительным методом характеристики важнейших микро- и макроскопических параметров нелинейных сред. Можно с уверенностью предсказать, что в ближайшее время интерес к спектроскопии СПР будет возрастать в связи с активно происходящим освоением длинноволновой области спектра и, в особенности, диапазона терагерцовых частот [31]. Уже были продемонстрированы уникальные возможности генерации и детектирования терагерцового излучения в периодически поляризованных нелинейно-оптических кристаллах [32]. Спектроскопия СПР чрезвычайно перспективна в этом диапазоне – диапазоне нижней поляритонной ветви. На базе СПР будут созданы схемы измерения дисперсионных характеристик, пространственного строения, поиска и исследования новых высокоэффективных нелинейных структур.

Работа выполнена при поддержке гранта Российского фонда фундаментальных исследований # 05-02-16391 и гранта ведущих научных школ Российской Федерации (# НШ-166.2003.02).

1. Д. Н. Клышко, Письма в ЖЭТФ **6**, 490 (1967).
2. С. А. Ахманов, В. В. Фадеев, Р. В. Хохлов, О. Н. Чунаев, Письма в ЖЭТФ **6**, 575 (1967).
3. S. T. Harris, M. R. Oshman, and R. L. Byer, Phys. Rev. Lett. **18**, 732 (1967).
4. D. Mage and H. Mare, Phys. Rev. Lett. **18**, 905 (1967).
5. *Физика квантовой информации* (пер. с англ.), сб. под ред. Д. Боумейстера, А. Экерта, А. Цайлингера, М.: Постмаркет, 2002.
6. C. H. Henry and J. J. Hopfield, Phys. Rev. Lett. **15**, 964 (1965).
7. S. P. S. Porto, P. Tell, and T. C. Damen, Phys. Rev. Lett. **16**, 450 (1966).

8. Д. Н. Клышко, *ЖЭТФ* **55**, 1006 (1968).
9. Д. Н. Клышко, *Фотоны и нелинейная оптика*, М.: Наука, 1980.
10. G. Kh. Kitaeva, S. P. Kulik, A. N. Penin, and M. V. Chekhova, *Proceedings of SPIE* **1863**, 192 (1993).
11. Д. Н. Клышко, Б. Ф. Полковников, А. Н. Пенин, *Письма в ЖЭТФ* **11**, 11 (1970).
12. T. G. Giallorensi and C. L. Tang, *Phys. Rev.* **184**, 353 (1969); C. H. Henry and C. G. V. Garrett, *Phys. Rev.* **171**, 1058 (1968).
13. О. Н. Аброскина, Г. Х. Китаева, А. Н. Пенин, *ДАН СССР* **280**, 584. (1985).
14. В. М. Иванов, Т. В. Лаптинская, А. Н. Пенин, *ДАН СССР* **260**, 321 (1981).
15. О. А. Акципетров, Г. Х. Китаева, А. Н. Пенин, *ФТТ* **19**, 127 (1977).
16. О. А. Акципетров, Г. Х. Китаева, А. Н. Пенин, *ФТТ* **20**, 402 (1978).
17. G. Kh. Kitaeva, K. A. Kuznetsov, A. N. Penin, and A. V. Shepelev, *Phys. Rev. B* **65**, 054304 (2002).
18. О. А. Акципетров, Г. Х. Китаева, А. Н. Пенин, *ФТТ* **19**, 1001 (1977).
19. Г. Х. Китаева, С. П. Кулик, А. Н. Пенин, *ФТТ* **34**, 3440 (1992).
20. И. В. Митюшева, Е. Д. Мишина, А. Н. Пенин, *ФТТ* **22**, 2476 (1980).
21. В. М. Агранович, И. И. Лалов, *ЖЭТФ* **13**, 656 (1971).
22. В. Л. Стрижевский, *ЖЭТФ* **62**, 1446 (1972); В. Л. Стрижевский, Г. Понат, Ю. Н. Яшкир, *Оптика и Спектроскопия* **31**, 388 (1971).
23. Л. И. Кузнецова, Л. А. Кулевский, К. А. Прохоров, Ю. Н. Поливанов, *Квантовая электроника* **2**, 2095 (1975).
24. Ю. Н. Поливанов, *УФН* **126**, 185 (1978).
25. G. Kh. Kitaeva, K. A. Kuznetsov, V. F. Morozova et al., *Appl. Phys. B* **78**, 759 (2004).
26. Д. Н. Клышко, *Изв. АН СССР, сер. физ.* **46**, 1478 (1982).
27. Г. Х. Китаева, А. Н. Пенин, *ЖЭТФ* **125**, 307 (2004).
28. Г. Х. Китаева, А. Н. Пенин, *Квантовая электроника* **34**, 597 (2004).
29. G. Kh. Kitaeva, V. V. Tishkova, and A. N. Penin, *J. Raman Spectroscopy* **36**, 116 (2005).
30. G. Kh. Kitaeva, V. V. Tishkova, I. I. Naumova et al., *Appl. Phys. B*, to be published (2005).
31. J. Shan, A. Nahata, and T. F. Heinz, *J. Nonlinear Optical Phys. & Mater.* **11**, 31 (2002).
32. G. H. Ma, G. Kh. Kitaeva, I. I. Naumova, and S. H. Tang, <http://arxiv.org/abs/physics/0503173>.