Лекция 9

Общая формулировка задачи о трехволновом параметрическом взаимодействии

В предыдущих лекциях мы подробно рассматривали частные случай трехчастотного параметрического взаимодействия. Теперь рассмотрим общую формулировку задачи о трехчастотном параметрическом взаимодействии на квадратичной нелинейности $\chi_{ijk}^{(2)}$.

У нас есть волновое уравнение стандартной формы $\frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2\left\{\vec{E} + 4\pi\vec{P}\right\}}{\partial t^2} = 0$, в котором поляризация имеет вид: $\vec{P} = \vec{P}^L + \vec{P}^{NL}$. Полное ЭМ поле, входящее в это уравнение в квадратичной нелинейной среде, имеет вид $\vec{E} = \vec{E}_1 + \vec{E}_2 + \vec{E}_3$. Если мы ограничимся случаем плоских монохроматических волн для компонент полного поля, т.е. перейдем к фурье-компонентам с частотами $\omega_1, \omega_2, \omega_3$, для которых справедливо равенство $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$, и волновыми векторами $\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{k}_3$, то мы можем применить хорошо развитую выше методику перехода от волнового уравнения к системе уравнений для медленно меняющихся амплитуд. т.е. нелинейную поляризацию рассматриваем в виде:

$$\vec{P}^{NL} = \hat{\chi}^{(2)}\vdots\vec{E}\vec{E} = \hat{\chi}^{(2)}\vdots\left(\vec{E}_1 + \vec{E}_2 + \vec{E}_3\right)\left(\vec{E}_1 + \vec{E}_2 + \vec{E}_3\right), \qquad ()$$

а решение для полного поля ищем в виде:

$$\begin{aligned} E &= A_1(\mu z)e^{i(\omega_1 t - k_1 z)} + A_2(\mu z)e^{i(\omega_2 t - k_2 z)} + A_3(\mu z)e^{i(\omega_3 t - k_3 z)} + K.C. \\ &= A_{10}(\mu z)e^{i\varphi_1}e^{i(\omega_1 t - k_1 z)} + A_{20}(\mu z)e^{i\varphi_2}e^{i(\omega_2 t - k_2 z)} + A_{30}(\mu z)e^{i\varphi_3}e^{i(\omega_3 t - k_3 z)} \end{aligned} \qquad ()$$

По стандартной процедуре подставим данный вид решения () в волновое уравнение для полного поля с нелинейной поляризацией вида () и, пренебрегая членами порядка μ^2, избавимся от вторых частных производных. Руками учтем поглощение на всех трех частотах. Система уравнений для медленно меняющихся (действительных) амплитуд для трехволнового параметрического взаимодействия приобретает вид:

$$\boxed{\begin{cases} \dfrac{dA_{10}}{dz} + \delta_1 A_{10} + \sigma_1 A_{20} A_{30} \sin\Phi = 0 \\ \dfrac{dA_{20}}{dz} + \delta_2 A_{20} + \sigma_2 A_{10} A_{30} \sin\Phi = 0 \\ \dfrac{dA_{30}}{dz} + \delta_3 A_{30} - \sigma_3 A_{10} A_{30} \sin\Phi = 0 \\ \dfrac{d\Phi}{dz} - \left|\vec{\Delta}\right| + \left(\sigma_1 \dfrac{A_{20}A_{30}}{A_{10}} + \sigma_2 \dfrac{A_{10}A_{30}}{A_{20}} - \sigma_3 \dfrac{A_{10}A_{20}}{A_{30}}\right)\cos\Phi = 0 \end{cases}}, \qquad ()$$

где эффективная фаза - $\Phi = \varphi_1 + \varphi_2 - \varphi_3 - \left|\vec{\Delta}\right| z$, фазовая расстройка - $\vec{\Delta} = \vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{k}_3$, для частот справедливо $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$, δ_i - коэффициенты поглощения на частотах ω_i и $\sigma_i = \dfrac{2\pi\omega_i^2\chi^{(2)}(\omega_i)}{c^2 k_i}$, набор параметров, описывающий нелинейность среды, который может быть, в силу известных пространственно-частотных перестановочных соотношений, трансформирован в такие соотношения: $\sigma_i = \frac{2\pi\chi^{(2)}}{c}\frac{\omega_i}{n(\omega_i)}$.

Интегралы движения для системы медленно меняющихся амплитуд

Система укороченных уравнений () в отсутствии поглощения имеет два интеграла движения: первый интеграл описывает сохранение энергии, а второй соответствует соотношениям Мэнли-Роу.

Действительно при $\delta_i = 0$ система () для действительных амплитуд принимает вид:

$$\boxed{\begin{cases} \frac{dA_{10}}{dz} + \sigma_1 A_{20} A_{30} \sin\Phi = 0 \\ \frac{dA_{20}}{dz} + \sigma_2 A_{10} A_{30} \sin\Phi = 0 \\ \frac{dA_{30}}{dz} - \sigma_3 A_{10} A_{30} \sin\Phi = 0 \end{cases}}$$

1. Закон сохранения энергии.

Домножим каждое из уравнений на необходимую комбинацию $n(\omega_i)A_{i0}$, чтобы при сложении всех трех уравнений получить следующее дифференциальное соотношение: $\frac{d}{dz}\left(\sum_{i=1}^{3} n(\omega_i)A_{i0}^2\right) = 2A_{10}A_{20}A_{30}\sin\Phi \times (n_1\sigma_1 + n_2\sigma_2 - n_3\sigma_3) \equiv 0$. Последнее тождество верно, т.к. $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$. Если теперь в выражении $\frac{d}{dz}\left(\sum_{i=1}^{3} n(\omega_i)A_{i0}^2\right) \equiv 0$ обе части домножить на $c/8\pi$, то получим для интенсивностей интегральное соотношение $W_1 + W_2 + W_3 = const$ в любом сечении z, что и соответствует закону сохранения энергии.

2. Соотношения Мэнли-Роу.

Первое уравнение системы () домножим на $\sigma_2 A_{10}$, второе уравнение домножим на $\sigma_1 A_{20}$ и вычтем второе из первого. В результате имеем: $\frac{d}{dz}\left(\sigma_2 A_{10}^2 - \sigma_1 A_{20}^2\right) = 0$, что означат $\left(\sigma_2 A_{10}^2 - \sigma_1 A_{20}^2\right) = const$ или , что в любом сечении справедливо: $\left(\frac{n_1 A_{10}^2}{\omega_1} - \frac{n_2 A_{20}^2}{\omega_2}\right) = const'$. Иными словами: $\left(\frac{W_1(z)}{\omega_1} - \frac{W_2(z)}{\omega_2}\right) = const' = \left(\frac{W_1(0)}{\omega_1} - \frac{W_2(0)}{\omega_2}\right)$, что приводит к соотношению: $\left(\frac{W_1(z) - W_1(0)}{\omega_1} = \frac{W_2(z) - W_2(0)}{\omega_2}\right)$. Или иначе $\left(\frac{\Delta W_1}{\omega_1} = \frac{\Delta W_2}{\omega_2}\right)$. Для другой пары уравнений получим $\left(\frac{\Delta W_2}{\omega_2} = -\frac{\Delta W_3}{\omega_3}\right)$ (отметим, что накачка входит с другим знаком).

Сопоставляя два последних выражения получим соотношения Мэнли-Роу для этого частного случая параметрического процесса:

$$\boxed{\left(\frac{\Delta W_1}{\omega_1}=\frac{\Delta W_2}{\omega_2}=-\frac{\Delta W_3}{\omega_3}\right)}.$$

3. **Основные параметрические трехчастотные процессы**

Напомним еще раз, какие основные параметрические трехчастотные процессы в квадратичных средах мы рассмотрели с той или иной степенью подробности.

Итак, нелинейная поляризация $\vec{P}^{NL}(\omega_3)=\hat{\chi}^{(2)}(\omega_3=\omega_1\pm\omega_2):\vec{E}(\omega_1)\vec{E}(\omega_2)$ для монохроматических плоских волн $\vec{E}(\omega_1)\infty e^{i\left(\omega_1 t-\vec{k}_1\vec{r}\right)}$; $\vec{E}(\omega_2)\infty e^{i\left(\omega_2 t-\vec{k}_2\vec{r}\right)}$, $\vec{E}(\omega_3)\infty e^{i\left(\omega_3 t-\vec{k}_3\vec{r}\right)}$ ответственна за следующие процессы:

1. Генерация суммарных и разностных частот $\omega_1\pm\omega_2\to\omega_3$.

2. При условии $\omega_1=\omega_2=\omega$ этот процесс трансформируется либо в генерацию ВГ, $\omega_1+\omega_2=\omega+\omega\to 2\omega$, либо в оптическое выпрямление (появление статической поляризации), $\omega_1-\omega_2\to 0$.

3. Параметрический распад фотонов, параметрическое рассеяние, параметрическое усиление $2\omega\to\omega_1+\omega_2$, которое при выполнении условия $\omega_1=\omega_2=\omega$ может быть названо процессом генерации субгармоники $2\omega\to\omega\ \ +\omega$.

4. Электрооптический эффект, когда одно из ЭМ полей имеет нулевую частоту (т.е. случай наложения электростатического поля): $\omega\ +0\to\omega$.

Четырехволновые параметрические процессы

Кратко коснемся четырехволновых параметрических процессов на кубической нелинейности, которые, конечно же, более разнообразны , чем параметрические процессы в квадратичных средах. Нелинейная поляризация имеет вид:

$$\vec{P}^{NL}(\omega_4)=\hat{\chi}^{(3)}(\omega_4=\omega_1+\omega_2+\omega_3)\vec{E}(\omega_1)\vec{E}(\omega_2)\vec{E}(\omega_3)+K.C.,$$

где для частот взаимодействующих волн справедливо соотношение $\omega_4=\omega_1+\omega_2+\omega_3$ или более наглядно для положительных частот это могут быть всевозможные комбинации знаков в алгебраической сумме с единственным требованием равенства нулю $\mp\omega_4\pm\omega_1\pm\omega_2\pm\omega_3=0$.

Общие законы сохранения (энергии и импульса) для этих процессов имеют вид: $\mp\hbar\omega_4\pm\hbar\omega_1\pm\hbar\omega_2\pm\hbar\omega_3=0$; $\vec{k}_4=\vec{k}_1+\vec{k}_2+\vec{k}_3$.

Некоторые частные случаи четырехволновых процессов.

1. Генерация третьей гармоники:

случай когда частоты трех из взаимодействующих волн совпадают, $\omega_1=\omega_2=\omega_3=\omega$ и $\omega_4=3\omega$.

$$\vec{P}^{NL}(3\omega)=\hat{\chi}^{(3)}(3\omega=\omega+\omega+\omega)\vec{E}(\omega)\vec{E}(\omega)\vec{E}(\omega)+K.C.$$

2. **Генерация электроиндуцированной ВГ гармоники**: случай когда частоты двух из взаимодействующих волн совпадают, $\omega_1=\omega_2=\omega$, одна из "волн" имеет нулевую частоту $\omega_3=0$ (т.е. случай наложения электростатического поля) и $\omega_4=2\omega$.

$$\vec{P}^{NL}(2\omega)=\hat{\chi}^{(3)}(2\omega=\omega+\omega+0)\vec{E}(\omega)\vec{E}(\omega)\vec{E}^{static}(0)+K.C.$$

2. Когерентное антистоксово рассеяние света (КАРС).

Модуль $\chi^{(3)}_{ijkl}$ резонансно возрастает в области промежуточных резонансов, когда один из виртуальных уровней совпадает с реальным.

Наиболее интересны случаи двухфотонных резонансов, когда, с одной стороны, каждая из частот взаимодействующих волн попадает в область прозрачности, но, с другой стороны, выполняется следующее условие:
$\omega_1 \pm \omega_2 = \omega_3 \pm \omega_4 \cong \Omega_0$, где Ω_0, например, частота колебательного молекулярного резонанса.

Рассмотрим случай, когда на среду с кубической нелинейностью подает излечение двух лазеров с частотами ω_1 и ω_2, такими, что $(\omega_1 > \omega_2)$. Пусть частота одного из лазеров может перестраиваться так, что $\omega_2 = \omega_1 - \Omega_0$. При этом компоненты $\chi^{(3)}_{ijkl}$ для следующих комбинаций частот: $\chi^{(3)}_{ijkl}(\omega_1 = \omega_1 - \omega_2 + \omega_2)$, $\chi^{(3)}_{ijkl}(\omega_2 = \omega_2 - \omega_1 + \omega_1)$, $\chi^{(3)}_{ijkl}(\omega_{ASt} = 2\omega_1 - \omega_2)$, $\chi^{(3)}_{ijkl}(\omega_{St} = 2\omega_2 - \omega_1)$ испытывают резонанс за счет фазирования и раскачки молекулярных колебаний в поле бигармонической накачки.

Для антистоксова сигнала интенсивность определяется выражением:

$$\boxed{I_{ASt}(\omega_{ASt}) = \left(\frac{4\pi}{c}\right)^4 \frac{\omega_{ASt}^2 l^2 I_1(\omega_1) I_2(\omega_2)}{n_1^2 n_2 n_{ASt}} \times \left|\chi^{(3)}_{N\,\mathrm{Re}s} + \chi^{(3)}_{\mathrm{Re}s}(\omega_{ASt} = 2\omega_1 - \omega_2)\right|^2}. \qquad ()$$

3. Обращение волнового фронта.

Пусть в среде с кубической нелинейностью при частотной комбинации $\chi^{(3)}_{ijkl}(\omega = \omega + \omega - \omega\ )$ имеется монохроматическая стоячая волна накачки (так называемая "опорная" волна), т.е. интерференция волн с частотой ω, для которых волновые вектора связаны соотношением $\vec{k}_2 = -\vec{k}_1$. Тогда при попадании на среду третьей плоской волны с частотой ω и волновым вектором $\vec{k}_3$, распространяющейся в произвольном направлении, рождается четвертая волна с частотой ω и волновым вектором $\vec{k}_4 = \vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{k}_3 = -\vec{k}_4$, т.е. волна, распространяющаяся в обратном направлении с без изменения "формы" волнового фронта (как бы распространяющаяся в инвертированном времени). В случае произвольного пространственного распределения "третьего" ЭМ поля, оно будет состоять из набора фурье-компонент $\{\vec{k}_3\}$. каждая из которых порождает обратную волну с обращенным волновым фронтом. Это приведет к "восстановлению" исходного распределения ЭМ поля с той же формой волнового фронта, но распространяющегося точно в обратном направлении. Этот эффект называется обращением волнового фронта (ОВФ) эквивалентен преобразованию $t \to -t$. На практике ОВФ используется для коррекции искажений волнового фронта после прохождения неоднородных (рассеивающих) сред.