

ГЕНЕРАЦИЯ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ В ОБЪЕМЕ ИЗОТРОПНОЙ СРЕДЫ С КВАДРАТИЧНОЙ НЕЛИНЕЙНОСТЬЮ СФОКУСИРОВАННЫМ НЕОДНОРОДНО ПОЛЯРИЗОВАННЫМ ПУЧКОМ НАКАЧКИ

С. Н. Волков, Н. И. Коротеев, В. А. Макаров*

*Физический факультет и Международный лазерный центр
Московского государственного университета имени М. В. Ломоносова
119899, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 16 сентября 1997 г.

Теоретически исследована зафиксированная ранее экспериментально генерация второй гармоники (ГВГ) в объеме изотропной среды сфокусированным пучком накачки. Показано, что пространственная дисперсия квадратичного оптического отклика вещества может быть ответственной за этот нелинейный процесс даже при наличии у среды макроскопического центра инверсии. Установлено, что данный эффект, невозможный в плосковолновом приближении, не осуществим также и при использовании гауссова пучка накачки с однородным распределением состояния поляризации поля волны по поперечному сечению, однако присутствие в пучке накачки высших поперечных мод с отличной от основной моды поляризацией может привести к появлению сигнала ГВГ. Выяснены условия возникновения волны на удвоенной частоте, получены аналитические зависимости ее электрического поля и полной мощности от координаты распространения, степени фокусировки и других параметров задачи, сформулированы требования к оптимальной геометрии эксперимента. Исследована зависимость мощности сигнального пучка от величины расстройки волновых векторов и показано, что интерференционные эффекты могут привести к исчезновению волны на второй гармонике при нормальном законе дисперсии в области между основной и удвоенной частотами.

1. ВВЕДЕНИЕ

Преобразование лазерного излучения накачки во вторую гармонику в объеме нецентросимметричных кристаллов известно с первых дней нелинейной оптики [1]. Генерация второй гармоники (ГВГ) широко используется также в спектроскопии поверхностей и границ раздела сред [1–3], поскольку значительной эффективности этого трехволнового процесса можно добиться лишь при отсутствии макроскопического центра инверсии у изучаемого объекта. Объемная ГВГ возможна и в изотропной среде, например в жидкости или газе, при наложении на среду статического электрического поля [1], снимающего у нее центр инверсии. В то же время при отсутствии внешних полей появление сигнала на удвоенной частоте за счет локальной электродипольной оптической восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$ запрещено не только в центросимметричных, но и в нецентросимметричных жидкостях и газах, поскольку соответствующий тензор $\hat{\chi}^{(2)}$ равен нулю в силу симметрии относительно перестановки двух его последних индексов [4, 5]. Тем не менее несколько лет назад ГВГ была экспериментально реализована в объеме нецентросимметричного раствора арабинозы при неколлинеарном взаимодействии двух

*E-mail: koroteev@nik.phys.msu.su

лазерных пучков с одинаковой частотой [6, 7]. Этот результат объясняется тем, что был получен не квадратичный, а четвертого порядка по полю волны накачки сигнал на второй гармонике, который обязан своим появлением нелинейной оптической восприимчивости $\hat{\chi}^{(4)}(2\omega; \omega, \omega, \omega, -\omega)$.

В последнее время опубликован ряд экспериментальных работ [8–14], в которых наблюдался сигнал на удвоенной частоте, порождаемый одним пучком накачки, в суспензии произвольно ориентированных фрагментов пурпурных мембран *Halobacterium Halobium*, содержащих хиральные молекулы бактериородопсина. В ряде случаев при исследовании крупных (~ 1 мкм в диаметре) фрагментов мембран появление второй гармоники может быть отнесено на счет частично когерентного гиперрэлеевского рассеяния [8–11]. Действительно, каждый фрагмент мембраны представляет собой упорядоченную структуру значительных размеров, которая может породить когерентный сигнал ГВГ. При усреднении по объему раствора суммарный сигнал на удвоенной частоте не обращается в нуль из-за макроскопичности размеров излучающих его фрагментов мембран (порядка длины волны используемого лазерного излучения). Основанная на данной модели теория частично когерентного гиперрэлеевского рассеяния была построена в статье [15]; ее выводы неплохо описывают указанные эксперименты по исследованию суспензии достаточно крупных фрагментов пурпурных мембран [8–11]. Однако далеко не все экспериментальные результаты удается объяснить таким образом. В работах [12–14] использовались фрагменты мембран, измельченные до ~ 50 нм; при этом диаграмма направленности зарегистрированного сигнала ГВГ и его поляризационные зависимости не согласовывались с предположением о его возникновении за счет гиперрэлеевского рассеяния (как полностью некогерентного, так и частично когерентного). Кроме того, в этих экспериментах было отчетливо зафиксировано присутствие в сигнале на удвоенной частоте двух составляющих, интерферирующих между собой: квадратичной и четвертого порядка по полю волны накачки.

Относительно природы квадратичной по полю компоненты сигнала ГВГ среди исследователей до сих пор нет единого мнения, и тем более не существует удовлетворительной теории, способной объяснить все полученные к настоящему времени экспериментальные результаты. В предлагаемой статье мы намерены показать, что причиной наблюдавшейся в работах [12–14] квадратичной по полю части сигнальной волны может оказаться пространственная дисперсия нелинейнооптического отклика объема вещества, поскольку даже при размерах исследовавшихся фрагментов мембран, много меньших длин волн взаимодействующих полей (~ 50 нм), нелокальность нелинейного оптического отклика может быть значительной. Теоретическое рассмотрение данного явления — непростая задача, требующая учета пространственной ограниченности пучка накачки и неоднородности состояния его поляризации по поперечному сечению, поскольку в плосковолновом приближении, как будет видно из приводимых ниже формул, такой эффект невозможен.

2. ОСНОВНЫЕ СООТНОШЕНИЯ

В настоящей работе мы рассмотрим ту составляющую сигнала на второй гармонике, генерируемого в объеме непоглощающей однородной изотропной среды, которая квадратична по полю монохроматического пучка накачки. Материальное уравнение для обобщенной поляризации среды на удвоенной частоте с учетом пространственной дис-

персии квадратичной нелинейности можно записать в следующем виде:

$$P_i^{(2)}(\mathbf{r}) = \gamma_{ijkl}^{(2)} E_l(\mathbf{r}) \frac{\partial}{\partial r_j} E_k(\mathbf{r}), \quad (1)$$

где $\mathbf{E}(\mathbf{r}) \propto \exp(-i\omega t)$ — электрическое поле пучка накачки. Как уже отмечалось выше, локальная электродипольная оптическая восприимчивость $\hat{\chi}^{(2)}$ в рассматриваемом нами случае равна нулю даже при отсутствии у среды макроскопического центра инверсии.

В этой работе мы используем подход к электродинамике сплошных сред, в котором индукция магнитного поля тождественно равна его напряженности. При этом обобщенная поляризация среды однозначно описывает оптический отклик последней, являясь единственной причиной возникновения сигнальной электромагнитной волны. Все магнитные эффекты полностью учитываются в рамках предположения о наличии пространственной дисперсии в зависимости $\mathbf{P}(\mathbf{E})$. Мы будем всюду ограничиваться членами, линейными по малому параметру пространственной дисперсии d'/λ (d' — характерный масштаб нелокальности оптического отклика, λ — длина световой волны). С учетом этого для описания квадратичного оптического отклика вещества в нашей задаче достаточно знать лишь тензор $\hat{\gamma}^{(2)}$ (еще раз напомним, что $\hat{\chi}^{(2)} = 0$).

В литературе часто предпринимаются попытки разделения обобщенной поляризации на электродипольный, магнитодипольный, электроквадрупольный и т. д. вклады. При таком подходе $\hat{\gamma}^{(2)}$ оказался бы представлен через ряд тензоров, описывающих нелинейнооптический отклик «различной природы». Следует отметить, что это возможно не для любых сред и далеко не во всех случаях (см. [16]). Кроме того, даже при допустимости такого разделения тензор $\hat{\gamma}^{(2)}$ может включать в себя не только слагаемые магнитодипольного и электроквадрупольного происхождения, но и члены, обязанные своим появлением нелокальности электродипольного отклика, вызванной взаимодействием составляющих вещество диполей (см., например, работу [17]). К тому же это разделение оказывается весьма условным и произвольным, поскольку в правую часть волнового уравнения в качестве источника электромагнитной волны входит именно обобщенная поляризация среды, включающая в себя как электродипольный, так и все другие возможные вклады. В связи с этим в рассматриваемом нами случае получить больше спектроскопической информации, чем содержится в независимых компонентах тензора $\hat{\gamma}^{(2)}$, принципиально невозможно. Вот почему использование введенного в соответствии с формулой (1) тензора $\hat{\gamma}^{(2)}$ представляется нам наиболее удобным и корректным способом описания нелокальности квадратичного оптического отклика вещества в исследуемой задаче.

Материальный тензор $\hat{\gamma}^{(2)}$ не обладает никакой дополнительной внутренней симметрией, а потому для рассматриваемых нами сред с симметрией $\infty\infty$ или $\infty\infty t$ у него есть три независимые декартовы компоненты, которые мы обозначим

$$\gamma_1^{(2)} = \gamma_{xyxy}^{(2)}, \quad \gamma_2^{(2)} = \gamma_{xyyx}^{(2)}, \quad \gamma_3^{(2)} = \gamma_{xyxy}^{(2)}.$$

С учетом этого материальное уравнение (1) может быть записано в векторном виде следующим образом:

$$\mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{r}) = \frac{1}{2} \gamma_1^{(2)} \nabla(\mathbf{E}\mathbf{E}) + \gamma_2^{(2)} \mathbf{E}(\nabla\mathbf{E}) + \gamma_3^{(2)} (\mathbf{E}\nabla)\mathbf{E}, \quad (2)$$

где $\nabla = \partial/\partial\mathbf{r}$, а аргумент \mathbf{r} у поля \mathbf{E} для краткости всюду опущен. Отметим, что, подставляя $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ в формулу (2), следует использовать приближение заданной накачки, по-

скольку мы хотим ограничиться исследованием лишь квадратичного по полю оптического отклика среды. Учет воздействия сигнального пучка на волну накачки, а также самовоздействия последней не повлияет на вид квадратичных по полю слагаемых в выражении для поляризации среды, а лишь добавит члены, пропорциональные более высоким степеням поля пучка накачки.

Посмотрим, какой вклад в поле сигнальной волны дает каждое из трех слагаемых в правой части формулы (2). Первое из них является градиентом скалярной функции, а потому представляет собой чисто потенциальное¹⁾ векторное поле поляризации среды. Создаваемое им электрическое поле на удвоенной частоте находится из уравнения Максвелла $\operatorname{div} \mathbf{D} = 0$:

$$\mathbf{E}_{pot}^{(2)}(\mathbf{r}) = -\frac{4\pi}{\varepsilon_{SH}} \mathbf{P}_{pot}^{(2)}(\mathbf{r}). \quad (3)$$

(Именно к такому виду сводится волновое уравнение для продольных плоских электромагнитных волн (см. [1, разд. 3.3]), а следовательно, и для пучков потенциального типа.) Здесь ε_{SH} — диэлектрическая проницаемость среды на удвоенной частоте, индекс «*pot*» напоминает о потенциальном характере поля (potential field). Последняя формула показывает, что потенциальное поле вектора $\mathbf{P}_{pot}^{(2)}$ порождает электромагнитную волну потенциального типа, которая, как известно, не может распространяться свободно, а существует лишь внутри среды, будучи «привязанной» к волне $\mathbf{P}_{pot}^{(2)}(\mathbf{r})$ соотношением (3). Встретившись с поверхностью среды, $\mathbf{E}_{pot}^{(2)}$ даст вклад в свободную волну в силу требования о выполнении граничных условий для электромагнитного поля, но этот вклад должен учитываться [1] (и учитывается — см., например, работы [18, 19]) как часть сигнала ГВГ от поверхности. В настоящей статье мы будем рассматривать электромагнитные волны на удвоенной частоте только вихревого типа, так как лишь они представляют собой чисто «объемный» эффект (т. е. сигнал образуется в толще среды).

Второе слагаемое в уравнении (2) пропорционально $\operatorname{div} \mathbf{E}$, а потому равно нулю, что следует из уравнения Максвелла $\operatorname{div} \mathbf{D} = 0$ с учетом приближения заданной накачки. Таким образом, интересующий нас сигнал ГВГ может быть порожден только вихревой составляющей третьего слагаемого в формуле (2). Ниже мы займемся более подробным его исследованием.

¹⁾ Понятия «продольная» или «поперечная» поляризация векторного поля удобны лишь для случая плоских волн. Пучок можно представить себе как суперпозицию плосковолновых пространственных фурье-гармоник, волновые векторы которых слегка неколлинеарны, а потому даже если поле в пучке поляризовано поперек его оси, то оно все равно имеет небольшую составляющую вдоль почти каждого из этих волновых векторов. Достаточно очевидным обобщением понятий «продольной» и «поперечной» плоских электромагнитных волн являются пучки «потенциального» и «вихревого» типа, задаваемые, соответственно, условиями $\operatorname{rot} \mathbf{E} = 0$ и $\operatorname{div} \mathbf{E} = 0$. Несложно заметить, что при таком определении каждая пространственная фурье-гармоника пучка потенциального или вихревого типа является соответственно продольной или поперечной плоской волной, а потому все специфические свойства продольных или поперечных электромагнитных волн будут «унаследованы» соответственно пучками потенциального или вихревого типа. Отметим, что пучок потенциального типа имеет небольшую составляющую поля, направленную поперек его оси, а пучок вихревого типа — небольшую продольную компоненту. Эти составляющие являются величинами первого порядка малости по углу расходимости пучка. Понятия «потенциальный» и «вихревой» применимы к волновым пучкам любой векторной величины, в том числе и к волне поляризации среды.

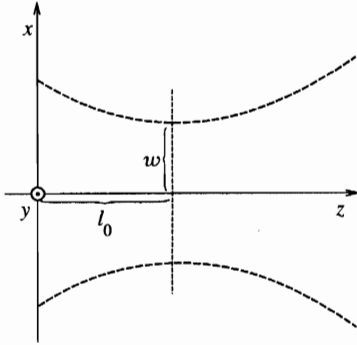


Рис. 1. Распространение пучка накачки при ГВГ в объеме среды. В плоскости $z = 0$ поставлены нулевые начальные условия для поля сигнальной волны; w — полуширина пучка на основной частоте в плоскости перетяжки $z = l_0$

Предварительно отметим, что случай отсутствия у среды макроскопического центра инверсии (симметрия $\infty\infty$) отличается от случая центросимметричного вещества наличием в среде линейной гирации. Это приводит, в частности, к тому, что собственные волны с правой и левой циркулярными поляризациями имеют в такой среде различные волновые векторы. Однако это отличие является поправкой первого порядка малости по параметру пространственной дисперсии d'/λ , а потому его учет приведет лишь к появлению в формуле (2), куда уже входит линейный по малому параметру пространственной дисперсии тензор $\hat{\gamma}^{(2)}$, дополнительных, квадратичных по d'/λ , членов, которые выходят за рамки точности нашего рассмотрения. Таким образом, учет влияния линейной гирации не изменит общего вида выражения для $\mathbf{P}^{(2)}$, а следовательно, не сможет повлиять на вывод о возможности или невозможности ГВГ в той или иной конкретной ситуации. Разумеется, если возникающий при этом поворот эллипса поляризации на расстояниях порядка длины среды достаточно велик, его следует учитывать при выписывании выражения для поля пучка накачки и волнового уравнения, с тем чтобы правильно описать характеристики сигнальной волны (особенно ее поляризацию). Однако в настоящей работе мы будем считать линейное вращение эллипса поляризации малым на всех интересующих нас длинах, что вполне хорошо согласуется с реальной ситуацией, имевшей место в упомянутых выше экспериментах по исследованию суспензии фрагментов пурпурных мембран. С учетом сказанного пренебрежем влиянием линейной гирации для частного случая изотропной нецентросимметричной среды. Это делает наши дальнейшие расчеты для изотропных сред с симметрией $\infty\infty$ (центр инверсии отсутствует) и $\infty\infty m$ (центросимметричная среда) полностью идентичными.

Если рассматривать плоскую волну накачки с волновым вектором \mathbf{k} , то третье слагаемое в уравнении (2) примет вид $i\gamma_3^{(2)}(\mathbf{E}\mathbf{k})\mathbf{E}$, что равно нулю в силу поперечности поля свободной плоской волны. Как будет видно из последующих формул, гауссов пучок с однородным распределением состояния поляризации волны по его сечению также не может породить сигнала ГВГ, поэтому мы будем считать, что помимо нулевой (гауссовой) моды $\mathbf{E}_G(\mathbf{r})$ волна накачки содержит дополнительно две высшие поперечные моды $\mathbf{E}^{X,Y}(\mathbf{r})$, причем все эти три составляющие могут иметь различную поляризацию. Ось z системы координат xyz направим вдоль оси пучка (см. рис. 1), а все дальнейшие формулы будем выписывать с точностью до линейных по $1/kw$ членов включительно ($k = n\omega/c$ — волновое число волны накачки в среде, $n = \sqrt{\epsilon}$ — показатель преломления, а ϵ — диэлектрическая проницаемость среды на частоте ω при отсутствии линейного

поглощения, w — полуширина гауссовой моды пучка накачки). Итак, поле пучка на основной частоте имеет вид

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_G(\mathbf{r}) + \mathbf{E}^X(\mathbf{r}) + \mathbf{E}^Y(\mathbf{r}), \quad (4)$$

где

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_G(\mathbf{r}) &= E_0 \left[\mathbf{e}_0 - \frac{\mathbf{e}_z}{ik} (\mathbf{e}_0 \nabla) \right] e_G(\mathbf{r}), \\ \mathbf{E}^X(\mathbf{r}) &= E_0^X \left[\mathbf{e}_0^X - \frac{\mathbf{e}_z}{ik} (\mathbf{e}_0^X \nabla) \right] \frac{x}{w\beta(z)} e_G(\mathbf{r}), \\ \mathbf{E}^Y(\mathbf{r}) &= E_0^Y \left[\mathbf{e}_0^Y - \frac{\mathbf{e}_z}{ik} (\mathbf{e}_0^Y \nabla) \right] \frac{y}{w\beta(z)} e_G(\mathbf{r}). \end{aligned} \quad (5)$$

Здесь $e_G(\mathbf{r})$ описывает скалярный нормированный гауссов пучок:

$$e_G(\mathbf{r}) = \frac{1}{\beta(z)} \exp \left[-i\omega t + ik(z - l_0) - \frac{r_{\perp}^2}{w^2\beta(z)} \right], \quad (6)$$

где $\beta(z) = 1 + i(z - l_0)/l_d$, $l_d = kw^2/2$ — дифракционная длина гауссова пучка, l_0 — расстояние от плоскости $z = 0$ до его перетяжки, \mathbf{r}_{\perp} — составляющая радиус-вектора \mathbf{r} , лежащая в плоскости xy . В формулах (5) E_0 , $E_0^{X,Y}$ — скалярные амплитуды, а \mathbf{e}_0 , $\mathbf{e}_0^{X,Y}$ — векторы поляризации трех рассматриваемых поперечных мод пучка накачки, абсолютные величины этих векторов равны единице. Все шесть указанных величин, вообще говоря, комплексны, а \mathbf{e}_0 , $\mathbf{e}_0^{X,Y} \perp \mathbf{e}_z$, где \mathbf{e}_z — орт вдоль оси z . Все три поперечные моды пучка с частотой ω удовлетворяют, в рамках сделанных допущений, не только волновому уравнению, но и условию $\text{div}\mathbf{E} = 0$, следующему из уравнения Максвелла $\text{div}\mathbf{D} = 0$ при учете приближения заданной накачки. Именно поэтому, как уже отмечалось в сноске 1, поля этих трех мод $\mathbf{E}_G(\mathbf{r})$, $\mathbf{E}^{X,Y}(\mathbf{r})$, являющихся свободными волнами вихревого типа, имеют составляющие вдоль оси z , представляющие собой линейные по малому параметру $1/kw$ добавки к основным (x -й и y -й) компонентам поля соответствующей поперечной моды.

Подставив поле $\mathbf{E}(\mathbf{r})$, задаваемое формулой (4) с учетом соотношений (5) и (6), в третье слагаемое материального уравнения (2), мы получим, что это слагаемое в нашем случае с учетом сделанных приближений будет иметь чисто вихревой характер. Выше было показано, что ни первый, ни второй члены формулы (2) не дают вклада в вихревую составляющую векторного поля поляризации среды, а потому

$$\begin{aligned} \mathbf{P}_{vort}^{(2)}(\mathbf{r}) &= \gamma_3^{(2)}(\mathbf{E}\nabla)\mathbf{E} = \gamma_3^{(2)} \frac{e_G^2(\mathbf{r})}{w\beta(z)} \left\{ E_0 E_0^X [\mathbf{e}_x [\mathbf{e}_0^X \mathbf{e}_0]] + \right. \\ &\quad \left. + E_0 E_0^Y [\mathbf{e}_y [\mathbf{e}_0^Y \mathbf{e}_0]] - \frac{\mathbf{r}_{\perp}}{w\beta(z)} E_0^X E_0^Y (\mathbf{e}_z [\mathbf{e}_0^X \mathbf{e}_0^Y]) \right\}, \end{aligned} \quad (7)$$

где $\mathbf{e}_{x,y}$ — орты вдоль осей x, y , соответственно. Индексом «vort» мы обозначили вихревую часть векторного поля $\mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{r})$ (vortex field). Только $\mathbf{P}_{vort}^{(2)}$ может породить свободную, вихревого типа, электромагнитную волну в объеме среды, поскольку потенциальная составляющая $\mathbf{P}_{pot}^{(2)}$ вклада в нее не дает (это следует из вида волнового уравнения, который можно найти в уже цитированной книге [1, разд. 3.3]).

3. РЕШЕНИЕ ВОЛНОВОГО УРАВНЕНИЯ И АНАЛИЗ ПОПЕРЕЧНОГО РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ПОЛЯ СИГНАЛЬНОЙ ВОЛНЫ ПО СЕЧЕНИЮ ПУЧКА

Волновое уравнение для электромагнитного поля $\mathbf{E}_{vor}^{(2)}$ на удвоенной частоте, порождаемого поляризацией среды $\mathbf{P}_{vor}^{(2)}$, мы запишем в укороченном виде, для чего введем медленно меняющуюся амплитуду $\mathbf{A}_{vor}^{(2)}$ по формуле:

$$\mathbf{E}_{vor}^{(2)}(\mathbf{r}) = \mathbf{A}_{vor}^{(2)}(\mathbf{r}) \exp[-2i\omega t + ik_{SH}(z - l_0)], \quad (8)$$

где $k_{SH} = 2n_{SH}\omega/c$, а $n_{SH} = \sqrt{\varepsilon_{SH}}$ — показатель преломления среды на удвоенной частоте. Укороченное волновое уравнение для $\mathbf{A}_{vor}^{(2)}$ имеет следующий вид:

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} - \frac{i}{2k_{SH}} \Delta_{\perp} \right) \mathbf{A}_{vor}^{(2)}(\mathbf{r}) = \frac{2\pi i k_{SH}}{\varepsilon_{SH}} \exp[2i\omega t - ik_{SH}(z - l_0)] \mathbf{P}_{vor}^{(2)}(\mathbf{r}), \quad (9)$$

где $\Delta_{\perp} = \partial^2/\partial x^2 + \partial^2/\partial y^2$, а $\mathbf{P}_{vor}^{(2)}$ задается формулой (7) с учетом выражения (6).

Поскольку в настоящей работе сигнал ГВГ от поверхности не является предметом рассмотрения, при $z = 0$ (граница среды) мы поставим для уравнения (9) нулевые начальные условия. Его точное решение можно записать в квадратурах в следующем виде:

$$\begin{aligned} \mathbf{A}_{vor}^{(2)}(\mathbf{r}) = & \frac{2\pi i k_{SH} \gamma_3^{(2)}}{\varepsilon_{SH} w} \int_0^z dz' \left\{ E_0 E_0^X [\mathbf{e}_x [\mathbf{e}_0^X \mathbf{e}_0]] + E_0 E_0^Y [\mathbf{e}_y [\mathbf{e}_0^Y \mathbf{e}_0]] \right\} - \\ & - \frac{\mathbf{r}_{\perp}}{w} \left[\beta(z') - 4i \frac{z' - z}{k_{SH} w^2} \right]^{-1} E_0^X E_0^Y (\mathbf{e}_z [\mathbf{e}_0^X \mathbf{e}_0^Y]) \left\{ \left[\beta(z') - 4i \frac{z' - z}{k_{SH} w^2} \right]^{-1} \times \right. \\ & \left. \times \frac{1}{\beta^2(z')} \exp \left\{ i\Delta k(z' - l_0) - \frac{2r_{\perp}^2}{w^2} \left[\beta(z') - 4i \frac{z' - z}{k_{SH} w^2} \right]^{-1} \right\} \right\}, \quad (10) \end{aligned}$$

где $\Delta k = 2k - k_{SH}$ — величина расстройки волновых векторов. К счастью, путем наложения не слишком обременительных ограничений на параметры задачи можно добиться значительного упрощения формулы (10) и записать полученный результат в аналитическом виде через спецфункции. Потребуем, чтобы для всех z внутри среды выполнялось условие

$$|\Delta k| |z - l_0| \ll k_{SH} l_d. \quad (11)$$

Поскольку обычно $|\Delta k|/k_{SH} \ll 1$ (малая расстройка волновых векторов), этим приближением можно с очевидностью пользоваться при толщине среды L , по крайней мере, в несколько дифракционных длин (при условии нахождения перетяжки пучка накачки внутри среды). А при $|z - l_0|/l_d \gg 1$ подынтегральное выражение в формуле (10) мало по сравнению со своим значением в плоскости перетяжки, т.е. как и следовало ожидать, столь далекие от перетяжки области среды дают лишь незначительный вклад в процесс ГВГ. Поэтому есть все основания предполагать, что во всех практически важных случаях приводимая ниже упрощенная формула для $\mathbf{A}_{vor}^{(2)}(\mathbf{r})$ справедлива даже при $L \gg l_d$:

$$\begin{aligned} \mathbf{A}_{vor}^{(2)}(\mathbf{r}) = & i \frac{\pi k k_{SH} w}{\varepsilon_{SH}} \gamma_3^{(2)} \left\{ E_0 E_0^X [\mathbf{e}_x [\mathbf{e}_0^X \mathbf{e}_0]] + E_0 E_0^Y [\mathbf{e}_y [\mathbf{e}_0^Y \mathbf{e}_0]] \right\} - \\ & - \frac{\mathbf{r}_{\perp}}{w \beta_{SH}(z)} E_0^X E_0^Y (\mathbf{e}_z [\mathbf{e}_0^X \mathbf{e}_0^Y]) \left\{ \frac{1}{\beta_{SH}(z)} \exp \left[-\frac{2r_{\perp}^2}{w^2 \beta_{SH}(z)} \right] \mathcal{J}^{(2)}(-l_0, z - l_0), \right\} \quad (12) \end{aligned}$$

где

$$\beta_{SH}(z) = 1 + i \frac{z - l_0}{l_d} \frac{2k}{k_{SH}}$$

фактически представляет собой аналог коэффициента $\beta(z)$ для гауссова пучка на удвоенной частоте с полушириной $w/\sqrt{2}$, а через $\mathcal{F}^{(2)}$ обозначен следующий безразмерный интеграл:

$$\begin{aligned} \mathcal{F}^{(2)}(z_1, z_2) &= \int_{z_1/l_d}^{z_2/l_d} \frac{\exp(i\nu\zeta)}{(1+i\zeta)^2} d\zeta = \\ &= i \left\{ \frac{1}{1+i\zeta} \exp(i\nu\zeta) - \nu \exp(-\nu) \text{Ei}(i\nu\zeta + \nu) \right\} \Big|_{\zeta=z_1/l_d}^{\zeta=z_2/l_d}, \end{aligned} \quad (13)$$

где $\nu = \Delta k l_d$ — безразмерный параметр, характеризующий величину расстройки волновых векторов, а

$$\text{Ei}(x) = \int_{-\infty}^x (e^t/t) dt$$

— интегральная показательная функция.

Следует отметить, что интеграл, подобный выражению (13), встречался при рассмотрении четырехволновых процессов (в частности, генерации третьей гармоники) в сфокусированных гауссовых пучках в работах [20–22]. В то же время соответствующий интеграл для случая ГВГ в слабонеизотропной среде [20] заметно отличается от полученной нами формулы для $\mathcal{F}^{(2)}$. Причина этого отличия заключается в том, что в рассматриваемой нами задаче ГВГ происходит не под действием гауссова пучка, как в работе [20], а за счет взаимодействия различных поперечных мод многомодового пучка накачки. Отсюда и достаточно неожиданная аналогия с генерацией третьей гармоники в изотропных средах, к чему мы еще вернемся в разд. 4.

Как следует из основного выражения (12), ГВГ в объеме изотропной среды в рассматриваемом в настоящей работе случае возможна лишь при несовпадающих векторах поляризации у трех поперечных мод пучка накачки. Генерация второй гармоники невозможна в случае одномодового, например чисто гауссова, пучка с однородной по сечению поляризацией. Из формулы (12) также следует, что распределение поля по поперечному сечению сигнального пучка такое же, как если бы он состоял из гауссовой и высших поперечных мод, однако зависимость от z у $\mathbf{A}_{\nu or}^{(2)}(\mathbf{r})$ благодаря множителю $\mathcal{F}^{(2)}(-l_0, z - l_0)$ иная, нежели у свободной электромагнитной волны. Если предположить, что структура пучка накачки такова, что $\mathbf{E}^{X,Y}(\mathbf{r})$ составляют лишь небольшую добавку к $\mathbf{E}_G(\mathbf{r})$, то из выражения (12) следует, что и в сигнальном пучке будет доминировать гауссова составляющая. Интересно отметить также, что две высшие поперечные моды в сигнале ГВГ формируют осесимметричное распределение состояния поляризации волны типа «солнышко», при котором вектор электрического поля в любой точке поперечного сечения пучка направлен вдоль его радиуса. Суммарная поляризация сигнального пучка будет, вообще говоря, эллиптической, причем параметры эллипса поляризации различны в разных точках поперечного сечения.

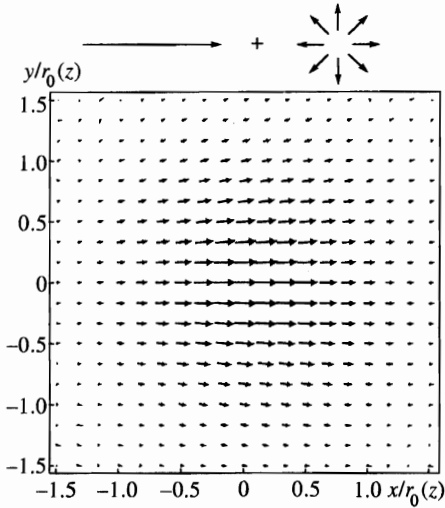


Рис. 2. Поперечное распределение электрического поля пучка накачки по его сечению в дальней зоне дифракции. Стрелки показывают относительную амплитуду и направление линейной поляризации поля в точке с соответствующими координатами x, y ; последние нормированы на полуширину гауссовой моды пучка накачки $r_0(z)$. Над рисунком схематически проиллюстрирована поперечная модовая структура пучка накачки, в котором преобладает нулевая (гауссова) мода, однородно и линейно поляризованная вдоль оси x , а также содержится небольшая добавка первой моды, направление линейной поляризации которой в каждой точке перпендикулярно оси пучка

Рисунок 2 иллюстрирует поперечное пространственное распределение электрического поля трехмодового пучка накачки в дальней зоне дифракции. При построении этого рисунка мы считали, что поле гауссовой составляющей пучка направлено вдоль оси x , а небольшая добавка из двух высших поперечных мод с поляризацией типа «солнышко» имеет относительно поля гауссовой моды фазовый сдвиг $\pi/2$, с тем чтобы поляризация волны во всех точках рисунка была строго линейной, а не эллиптической (это сделано лишь для большей наглядности изображения). Иными словами, рис. 2 построен при следующих значениях параметров, характеризующих пучок накачки:

$$E_0^X = E_0^Y = 0.2iE_0, \quad \mathbf{e}_0 = \mathbf{e}_0^X = \mathbf{e}_x, \quad \mathbf{e}_0^Y = \mathbf{e}_y$$

($\mathbf{e}_{x,y}$ — единичные векторы, направленные вдоль координатных осей x, y). По осям координат на рисунке отложены $x/r_0(z)$ и $y/r_0(z)$, где $r_0(z) = 2|z - l_0|/kw$ — полуширина гауссовой моды пучка накачки в дальней зоне дифракции. Приведенное на рис. 2 поперечное распределение поля в пучке накачки примечательно тем, что поперечное распределение поля создаваемой им сигнальной волны в дальней зоне дифракции будет иметь почти такой же вид (с точностью до некоторого фазового множителя), лишь полуширина пучка на удвоенной частоте будет примерно в $\sqrt{2}$ раз меньше.

4. ФОРМУЛА ДЛЯ МОЩНОСТИ СИГНАЛА ГВГ И ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Получим сначала выражения, связывающие мощность пучка накачки W с амплитудами трех его поперечных мод. В результате интегрирования интенсивности волны с частотой ω , выражение для которой легко найти из формул (4), (5) и (6), по поперечному сечению пучка оказывается, что W равна сумме мощностей этих трех мод W_G, W^X, W^Y (т. е. эти три моды, в некотором смысле, ортогональны):

$$W = \frac{cn}{8\pi} \iint |\mathbf{E}(\mathbf{r})|^2 d\mathbf{r}_\perp = W_G + W^X + W^Y, \tag{14}$$

где

$$W_G = \frac{cn}{16} w^2 |E_0|^2, \quad (15)$$

$$W^{X,Y} = \frac{cn}{64} w^2 |E_0^{X,Y}|^2.$$

Все мощности в соотношениях (14), (15) не зависят от z , что связано с использованием приближения заданной накачки.

Полная мощность сигнала ГВГ получается аналогично интегрированием квадрата медленной амплитуды поля на удвоенной частоте $A_{\text{вот}}^{(2)}(\mathbf{r})$, задаваемой формулой (12), по поперечному сечению пучка:

$$W^{(2)}(z) = \frac{128\pi^2 k^4}{cn_{SH}\varepsilon^2} |\gamma_3^{(2)}|^2 \left\{ W_G W^X |[\mathbf{e}_0^X \mathbf{e}_0]|^2 + W_G W^Y |[\mathbf{e}_0^Y \mathbf{e}_0]|^2 + \right. \\ \left. + W^X W^Y |[\mathbf{e}_0^X \mathbf{e}_0^Y]|^2 \right\} |\mathcal{I}^{(2)}(-l_0, z - l_0)|^2. \quad (16)$$

Если на выходе из среды поставить анализатор, пропускающий лишь x -поляризованную компоненту электрического поля сигнальной волны (как это было сделано в эксперименте, описанном в работе [14]), то мощность прошедшего пучка на удвоенной частоте будет определяться следующим выражением:

$$W_X^{(2)}(z) = \frac{128\pi^2 k^4}{cn_{SH}\varepsilon^2} |\gamma_3^{(2)}|^2 \left\{ W_G W^Y |[\mathbf{e}_0^Y \mathbf{e}_0]|^2 + \right. \\ \left. + \frac{1}{2} W^X W^Y |[\mathbf{e}_0^X \mathbf{e}_0^Y]|^2 \right\} |\mathcal{I}^{(2)}(-l_0, z - l_0)|^2. \quad (17)$$

В формулах (16), (17) множители в фигурных скобках описывают зависимость мощности сигнала ГВГ от состояний поляризации трех поперечных мод пучка накачки, а квадрат модуля безразмерного интеграла $\mathcal{I}^{(2)}$ определяет закон изменения $W^{(2)}$ и $W_X^{(2)}$ от координаты z и положения перетяжки l_0 .

Рисунок 3 изображает нормированные зависимости мощностей $W^{(2)}$ и $W_X^{(2)}$ от параметра φ , задающего состояние поляризации гауссовой составляющей пучка накачки согласно соотношению

$$\mathbf{e}_0 = \mathbf{e}_x \cos \varphi + i \mathbf{e}_y \sin \varphi.$$

Для наглядности вдоль оси φ символически показаны состояния поляризации этой гауссовой моды, соответствующие некоторым значениям φ : горизонтальные стрелки изображают электрическое поле, линейно поляризованное вдоль оси x , вертикальные — вдоль оси y , окружности со стрелкой отвечают правой или левой циркулярным поляризациям. При построении рис. 3 мы считали, что две поперечные моды $\mathbf{E}^{X,Y}(\mathbf{r})$ имеют постоянную (не зависящую от φ) поляризацию типа «солнышко», причем $W^{X,Y} = 0.01 W_G$, что соответствует соотношению амплитуд этих мод, использованному при построении рис. 2.

Приведенные на рис. 3 теоретические кривые находятся в качественном соответствии с недавно полученными экспериментальными зависимостями мощности сигнала «объемной» ГВГ от состояния поляризации пучка накачки [14], хотя детального количественного согласия между ними нет. Дело в том, что в работе [14] помимо квадратичной

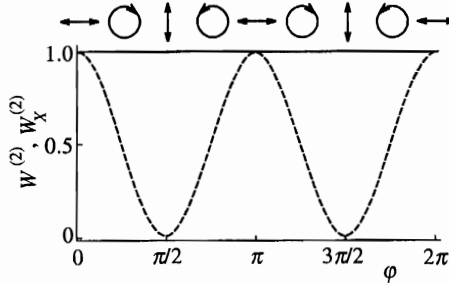


Рис. 3. Нормированные зависимости полной мощности сигнальной волны $W^{(2)}$ (сплошная линия) и мощности ее x -поляризованной компоненты $W_X^{(2)}$ (штриховая кривая) от параметра φ , определяющего состояние поляризации гауссовой поперечной моды пучка накачки согласно формуле $\mathbf{e}_0 = \mathbf{e}_x \cos \varphi + i \mathbf{e}_y \sin \varphi$, где \mathbf{e}_0 — вектор поляризации этой гауссовой моды, $\mathbf{e}_{x,y}$ — орты вдоль осей x, y . Состояния поляризации гауссовой составляющей пучка накачки при различных φ схематически изображены в верхней части рисунка. Предполагалось, что первая поперечная мода пучка на основной частоте значительно слабее гауссовой, а направление линейной поляризации ее электрического поля в любой точке поперечного сечения и при любых φ перпендикулярно оси пучка

по полю компоненты сигнала была зафиксирована также и значительная по величине составляющая четвертого порядка относительно поля волны накачки. Последняя возникает благодаря наличию нелинейной оптической восприимчивости $\hat{\chi}^{(4)}$ в изотропной нецентросимметричной среде, а возможно также и из-за некоторых каскадных процессов. Указанные эффекты до сих пор практически остаются теоретически неисследованными, тем более в том случае, когда речь идет о пространственно ограниченных волновых пучках. Именно поэтому провести окончательную интерпретацию полученных в работе [14] экспериментальных результатов в настоящий момент не представляется нам возможным. Тем не менее обращает на себя внимание тот факт, что в приведенных на рис. 3 зависимостях сигнал ГВГ присутствует даже при циркулярной поляризации волны накачки (в нашем случае речь идет, конечно, о ее основной, гауссовой, моде). Этот эффект наблюдался в эксперименте [11, 14], но в отношении работы [14] он до сих пор не получил теоретического объяснения. Проведенные в настоящей статье теоретические расчеты позволяют объяснить появление такого «дважды запрещенного» по выражению авторов работ [11, 14] сигнала на удвоенной частоте, создаваемого в объеме изотропной среды (почти) циркулярно поляризованным пучком накачки.

Оставшиеся четыре рисунка построены в предположении, что $z = L$, т. е. рассматривается сигнал ГВГ на выходе из среды. На этих рисунках приведены зависимости безразмерного коэффициента $|\mathcal{F}^{(2)}|^2$, входящего в выражения (16), (17), от длины среды L , от координаты плоскости перетяжки пучка накачки l_0 и от параметра $\nu = \Delta k l_d$, характеризующего величину расстройки волновых векторов. Напомним, что $|\mathcal{F}^{(2)}|^2$ полностью определяет зависимость мощности сигнальной волны от L , l_0 и ν .

На рис. 4 изображены зависимости $|\mathcal{F}^{(2)}(-L/2, L/2)|^2$ от L при следующих значениях ν : -2 (кривая 1); -0.5 (2); 0 (3); 0.5 (4); 1 (5); 3 (6). Данный случай соответствует фокусировке пучка накачки в центр среды ($l_0 = L/2$) при всех значениях L . Можно заметить, что при $\nu \approx 1$ имеет место своего рода квазисинхронизм, характеризующийся увеличением относительной амплитуды сигнала ГВГ. На обсуждении данного факта

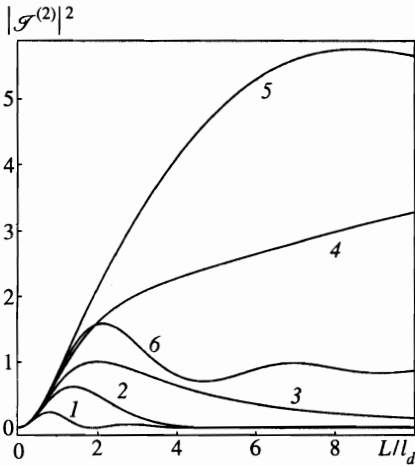


Рис. 4

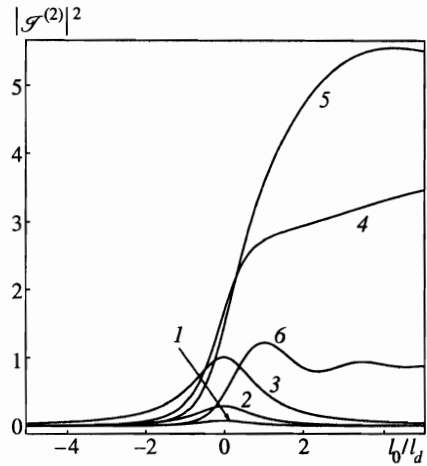


Рис. 5

Рис. 4. Зависимости $|\mathcal{F}^{(2)}(-L/2, L/2)|^2$ — безразмерной мощности сигнала ГВГ при фокусировке пучка накачки в центр среды — от длины среды L , нормированной на дифракционную длину пучка накачки l_d . Значения параметра $\nu = \Delta k l_d$, характеризующего величину расстройки волновых векторов Δk для процесса ГВГ, были взяты следующими: -2 (кривая 1); -0.5 (2); 0 (3); 0.5 (4); 1 (5); 3 (6)

Рис. 5. Зависимости безразмерной мощности волны на удвоенной частоте $|\mathcal{F}^{(2)}(-l_0, +\infty)|^2$ от расстояния от плоскости перетяжки пучка накачки до поверхности длиной среды l_0 , нормированного на дифракционную длину пучка накачки l_d . Значения параметра ν взяты такими же, как и при построении соответствующих кривых на рис. 4

мы подробнее остановимся ниже, при исследовании зависимости $\mathcal{F}^{(2)}$ от параметра ν . Рисунок 5 показывает зависимости $|\mathcal{F}^{(2)}(-l_0, +\infty)|^2$ от l_0 при тех же значениях ν . Разумеется, в реальных условиях длина среды конечна; здесь нам важно лишь то, чтобы она была достаточно большой, чтобы $|\mathcal{F}^{(2)}|^2$ мало отличалось от своего асимптотического значения при $L \rightarrow +\infty$. Как можно понять из рис. 4, для соблюдения этого требования достаточно взять L равным нескольким десяткам дифракционных длин l_d .

Рисунки 4 и 5 показывают, что большая часть сигнала ГВГ, как и следовало ожидать, образуется в области перетяжки пучка накачки. Действительно, увеличение длины среды L свыше нескольких дифракционных длин уже не приводит к росту мощности волны на удвоенной частоте, а если мы выводим область перетяжки за пределы среды (отрицательные l_0 на рис. 5), то относительная величина $W^{(2)}$ резко уменьшается. В силу интерференционных эффектов оказывается, что максимальной мощности сигнала ГВГ от объема можно добиться, помещая перетяжку пучка накачки вблизи (на расстоянии от нуля до нескольких l_d — в зависимости от значения ν) поверхности среды (плоскость $z = 0$). И если при положительных значениях ν такое требование к геометрии задачи не является критическим для появления второй гармоники, то при $\nu \leq 0$ мощность волны на удвоенной частоте, образующейся в объеме (достаточно длинной)

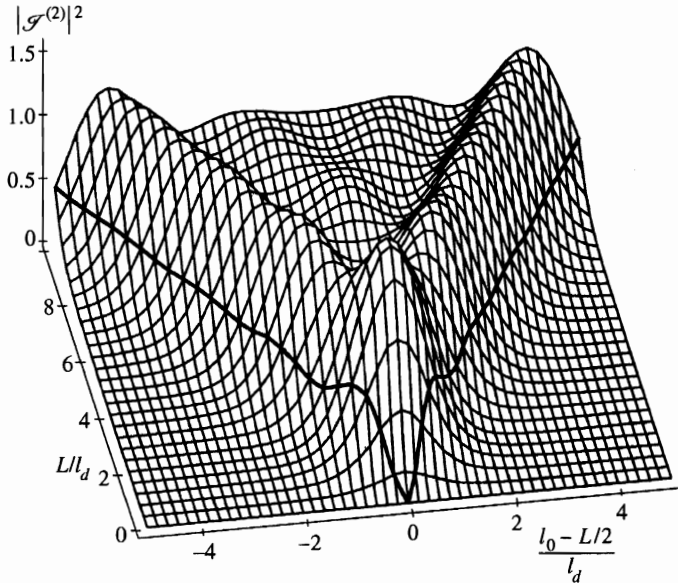


Рис. 6. Зависимость безразмерной мощности сигнала ГВГ $|\mathcal{S}^{(2)}(-l_0, L - l_0)|^2$ от длины среды L и от расстояния от перетяжки пучка накачки до центра среды $l_0 - L/2$, выраженных в дифракционных длинах пучка накачки l_d . Две утолщенные линии соответствуют таким L и $l_0 - L/2$, при которых плоскость перетяжки пучка накачки совпадает с одной из поверхностей среды. Рисунок построен при безразмерной расстройке волновых векторов $\nu = 3$

среды упадет до нуля при значительном удалении плоскости перетяжки от поверхности среды. Все эти обстоятельства следует учитывать при постановке эксперимента. Для выбора оптимальной геометрии последнего может оказаться полезным построение трехмерных зависимостей мощности сигнала ГВГ от L и l_0 , с тем чтобы найти те значения параметров, при которых мощность максимальна. На рис. 6 приведена зависимость безразмерного коэффициента $|\mathcal{S}^{(2)}(-l_0, L - l_0)|^2$ от длины среды L и от расстояния от перетяжки пучка накачки до центра среды $l_0 - L/2$, построенная при $\nu = 3$. Две утолщенные линии на рис. 6 соответствуют тем значениям L и $l_0 - L/2$, при которых эта плоскость перетяжки совпадает с одной из поверхностей среды. Рисунок 6 наглядно подтверждает выводы, которые мы сделали выше на основании анализа рисунков 4 и 5.

Рисунок 7 иллюстрирует зависимость мощности сигнала ГВГ от параметра $\nu = \Delta k l_d$, характеризующего величину расстройки волновых векторов. Сплошная кривая соответствует положению перетяжки пучка накачки в глубине достаточно длинной среды (т.е. расстояния от плоскости перетяжки до обеих поверхностей составляют, по крайней мере, несколько десятков дифракционных длин — см. пояснения к рис. 5). Штриховая кривая построена для случая, когда плоскость перетяжки совпадает с входной поверхностью (плоскость $z = 0$) достаточно длинной среды. Интересной особенностью исследуемого нами явления, на которую указывает вид сплошной кривой на рис. 7, является то, что сигнал ГВГ в случае нахождения перетяжки пучка накачки в глубине среды полностью исчезает при $\nu \leq 0$, т.е. при $n_{SH} \geq n$, что соответствует нормальной дисперсии в области частот от ω до 2ω . Аналитическая формула для указанной зависимости задается квадратом следующего выражения:

$$\mathcal{F}^{(2)}(-\infty, +\infty) = \begin{cases} 2\pi\nu e^{-\nu}, & \nu \geq 0, \\ 0, & \nu < 0. \end{cases} \quad (18)$$

Исчезновение сигнала ГВГ при отрицательных ν происходит из-за деструктивной интерференции волн на удвоенной частоте, порождаемых в различных точках среды, освещаемой пучком накачки. При $\nu > 0$ эта интерференция становится конструктивной и мы можем увидеть сигнальную волну даже при нахождении перетяжки пучка накачки в глубине объема среды. Когда плоскость перетяжки приближается к поверхности среды, часть источников волны на второй гармонике как бы исчезает, что позволяет частично избавиться от «разрушительного» влияния интерференции. Именно поэтому в случае, когда перетяжка пучка накачки находится на поверхности среды, сигнал ГВГ появляется даже при отрицательных ν , что демонстрирует штриховая кривая на рис. 7.

Разумеется, говорить о полном исчезновении сигнала в случае $\nu < 0$ при фокусировке пучка накачки в толщу среды можно только с точностью до используемых в настоящей статье приближений. На практике следует ожидать лишь значительного ослабления волны на удвоенной частоте. Кроме того, при очень больших значениях $|\nu|$, когда нарушается неравенство $|\Delta k|/k \ll 1$, наши формулы могут стать несправедливыми из-за несоблюдения условия (11) и неприменимости метода медленно меняющихся амплитуд. Последние ограничения, однако, представляются нам неактуальными, поскольку при значительном увеличении $|\nu|$ получить сколь-нибудь ощутимый сигнал ГВГ невозможно из-за резкого уменьшения длины когерентного взаимодействия для этого нелинейнооптического процесса.

Сплошная кривая на рис. 7 достигает своего максимума при $\nu = 1$. При этом значении ν наблюдается своего рода квазисинхронизм, при котором преобразование излучения накачки во вторую гармонику происходит с наибольшей эффективностью. Такой квазисинхронизм, возникающий при ненулевой величине расстройки волновых векторов, отмечался и в упоминавшихся выше работах [20–22], посвященных исследованию четырехволновых процессов в сфокусированных гауссовых пучках. Более того, формула (18) полностью аналогична соответствующему выражению, полученному в указанных статьях для случая генерации третьей гармоники. Этот факт является следствием отмеченного в разд. 3 математического сходства некоторых формул, описывающих две весьма различные задачи. Приведем качественное объяснение явления квазисинхронизма при ГВГ в сфокусированном пучке, основывающееся на рассуждениях авторов

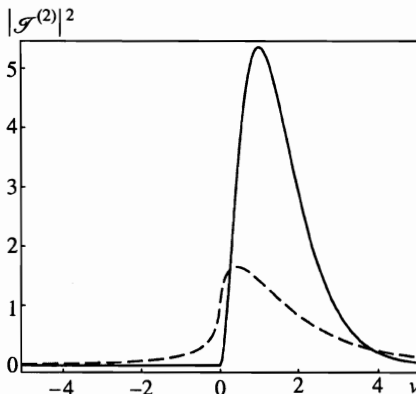


Рис. 7. Зависимости безразмерной мощности сигнальной волны в случае фокусировки пучка накачки в центр длинной среды ($|\mathcal{F}^{(2)}(-\infty, +\infty)|^2$, сплошная кривая) и при его фокусировке на входную поверхность длинной среды ($|\mathcal{F}^{(2)}(0, +\infty)|^2$, штриховая кривая) от параметра $\nu = \Delta k l_d$, характеризующего величину расстройки волновых векторов Δk (l_d — дифракционная длина пучка накачки)

статьи [20]. Волновые векторы пространственных фурье-гармоник пучка накачки наклонены как к оси пучка, так и друг относительно друга. Каждая пара этих плосковолновых гармоник генерирует свой вклад в сигнальную волну на удвоенной частоте. Фазовый синхронизм при этом достигается при некотором неотрицательном значении расстройки модулей волновых векторов ($2k \geq k_{SH}$), поскольку взаимодействие двух пространственных фурье-гармоник пучка накачки, вообще говоря, неколлинеарное. Средний угол между волновыми векторами различных гармоник пучка с полушириной w порядка $1/kw$, поэтому фазовый квазисинхронизм для процесса ГВГ достигается при величинах расстройки волновых векторов

$$\Delta k \sim 2k [1 - \cos(1/kw)] \sim 1/kw^2 \sim 1/l_d,$$

что хорошо согласуется по порядку величины с полученным выше точным значением $\nu = \Delta k l_d = 1$.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе впервые исследована генерация второй гармоники в объеме изотропной среды, происходящая благодаря наличию пространственной дисперсии квадратичной оптической нелинейности. Когерентный сигнал на удвоенной частоте возникает при этом в результате взаимодействия различных поперечных мод пучка накачки, обладающего неоднородной по сечению поляризацией. Может показаться, что описанный механизм ГВГ малореалистичен из-за того, что амплитуда сигнала пропорциональна сразу трем малым параметрам: параметру пространственной дисперсии, углу расходимости пучка накачки и величине $\sqrt{W^{X,Y}/W}$, характеризующей долю высших поперечных мод в полной мощности накачки. На самом деле обнаружение такого слабого сигнала — отнюдь не безнадежная задача, поскольку, как показано в настоящей статье, более эффективные механизмы возникновения квадратичного по полю сигнала ГВГ в объеме изотропной среды запрещены в силу тех или иных причин. Действительно, локальная электродипольная оптическая восприимчивость изотропной среды $\hat{\chi}^{(2)}$ равна нулю даже при отсутствии у среды центра инверсии. Пространственная дисперсия квадратичного оптического отклика вещества также не может привести к появлению сигнала объемной ГВГ, если накачка представлена плоской световой волной или гауссовым пучком, однородно поляризованным по сечению. Причина здесь в том, что образующаяся при этом волна поляризации среды на удвоенной частоте имеет чисто потенциальный характер и не может породить свободную электромагнитную волну в объеме среды. Исследование зависимости мощности сигнала на второй гармонике от величины расстройки волновых векторов Δk показало, что при некотором ненулевом значении $\Delta k > 0$, обратно пропорциональном дифракционной длине пучка l_d , наблюдается квазисинхронизм. Вблизи него процесс ГВГ происходит наиболее эффективно, поэтому подбор оптимальных Δk и степени фокусировки пучка накачки может значительно облегчить экспериментальную регистрацию данного эффекта. Кроме того, нами весьма детально изучен вопрос оптимизации других геометрических параметров задачи.

Хочется выразить надежду, что наша работа будет способствовать дальнейшему продвижению экспериментальных исследований ГВГ в объеме изотропных жидкостей. В последующих экспериментах было бы желательно разделить сигнал на две составляющие: квадратичную и четвертого порядка по полю. В этом случае характеристики

квадратичной по полю части пучка на удвоенной частоте (т. е. зависимости мощности сигнала ГВГ от состояний поляризации пучка накачки и сигнальной волны, поперечные распределения интенсивности и состояния поляризации последней, зависимости мощности сигнала ГВГ от параметров, задающих геометрию эксперимента) могли бы быть соотнесены с полученными в настоящей работе формулами. Это дало бы возможность проверить справедливость нашей гипотезы о том, что вторая гармоника в объеме среды в рассмотренном нами случае возникает благодаря присутствию в пучке накачки высших поперечных мод. Не менее важно и дальнейшее теоретическое исследование ГВГ в объеме изотропной нецентросимметричной среды. В частности, ближайшей задачей авторы видят изучение сигнала на удвоенной частоте, обязанного своим происхождением оптической восприимчивости четвертого порядка $\hat{\chi}^{(4)}$. Может дать интересные результаты и исследование вклада некоторых каскадных нелинейнооптических процессов в экспериментально наблюдаемый сигнал ГВГ. Решение указанных задач позволило бы, на наш взгляд, вплотную подойти к интерпретации экспериментальных данных — как уже ждущих своего объяснения, так и тех, что наверняка будут получены в ближайшем будущем.

Авторы благодарят А. П. Шкуринова и А. В. Пакулева за полезные дискуссии, а также Российский фонд фундаментальных исследований за частичную финансовую поддержку настоящей работы (код проекта 96-02-16596).

Литература

1. И. Р. Шен, *Принципы нелинейной оптики*, Наука, Москва (1989).
2. S. A. Akhmanov, N. I. Koroteev, and I. L. Shumay, *Nonlinear Optical Diagnostics of Laser-Excited Semiconductor Surfaces*, Harwood Academic Press, Chur-London-Paris-New York-Melbourne (1989).
3. Y. R. Shen, *Nature* **337**, 519 (1989).
4. J. A. Giordmaine, *Phys. Rev. A* **138**, 1599 (1965).
5. Н. И. Коротеев, *ЖЭТФ* **106**, 1260 (1994).
6. А. В. Дубровский, Н. И. Коротеев, А. П. Шкуринов, *Письма в ЖЭТФ* **56**, 570 (1992).
7. А. Р. Шкурин, А. В. Дубровский, и Н. И. Коротеев, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 1085 (1993).
8. P. K. Schmidt and G. W. Rayfield, *Appl. Opt.* **33**, 4286 (1994).
9. Q. Song, C. Wan, and C. K. Johnson, *J. Phys. Chem.* **98**, 1999 (1994).
10. E. Hendrickx, K. Clays, A. Persoons et al., *J. Am. Chem. Soc.* **117**, 3547 (1995).
11. P. Allcock, D. L. Andrews, S. R. Meech, and A. J. Wigman, *Phys. Rev. A* **53**, 2788 (1996).
12. А. В. Балакин, Д. Буше, Н. И. Коротеев и др., *Письма в ЖЭТФ* **64**, 668 (1996).
13. А. В. Балакин, D. Boucher, E. Fertein et al., *Opt. Commun.* **141**, 343 (1997).
14. А. В. Балакин, Д. Буше, Н. И. Коротеев и др., *ЖЭТФ* **112**, 97 (1997).
15. D. L. Andrews, P. Allcock, and A. A. Demidov, *Chem. Phys.* **190**, 1 (1995).
16. С. Р. де Гроот, Л. Г. Сатторп, *Электродинамика*, Наука, Москва (1982), гл. 2.
17. С. Н. Волков, Н. И. Коновалов, Н. И. Коротеев, В. А. Макаров, *Квант. электр.* **22**, 71 (1995).
18. С. Н. Волков, Н. И. Коротеев, В. А. Макаров, *Квант. электр.* **22**, 1220 (1995).
19. N. I. Koroteev, V. A. Makarov, and S. N. Volkov, *Nonlinear Opt. Princ. Mater. Phenom. Devices* **17**, 247 (1997).
20. J. F. Ward and G. H. C. New, *Phys. Rev.* **185**, 57 (1969).
21. R. V. Miles and S. E. Harris, *IEEE J. Quant. Electron.* **QE-9**, 470 (1972).
22. G. Bjorklund, *IEEE J. Quant. Electron.* **QE-11**, 287 (1975).