

УДК 535.015

## **МНОГОЧАСТИЧНАЯ ГЕНЕРАЦИЯ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ И СУПЕРКОНТИНУУМА В СПЛОШНОЙ СРЕДЕ**

В.М. МЫХИТАРЯН<sup>1</sup>, А.А. АВETИСЯН<sup>1</sup>, Ар.А. КИРАКОСЯН<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Институт физических исследований НАН Армении, Аштарак

<sup>2</sup>Ереванский государственный университет, Армения

(Поступила в редакцию 20 декабря 2011 г.)

Теоретически и экспериментально исследован новый механизм нелинейного распространения оптического излучения в сплошной среде, обусловленный взаимодействием излучения со многими частицами среды – многочастичным взаимодействием. На примере кристалла кальцита, который обладает центром симметрии и не проявляет квадратичной нелинейности, экспериментально продемонстрирована многочастичная генерация второй гармоники и суперконтинуума лазерного излучения на длине волны 1.06 мкм.

### **1. Введение**

Уже 50 лет, как в оптике исследуется явление генерации гармоник и широкополосного непрерывного спектра лазерного излучения в нелинейных средах, имеющее большое научное и прикладное значение [1-6]. Эти исследования открыли новые физические свойства как взаимодействия лазерного излучения со средой, так и самых оптических материалов.

Впервые, без условия фазового синхронизма, генерация второй гармоники (ГВГ) излучения рубинового лазера в тонких пластинках кварца была получена Франкеном [7] в 1961 г. А генерация широкополосного непрерывного спектра в пористом боросиликате в диапазоне длин волн 0.4–0.7 мкм была получена Альфано и Шапиро [8,9] в 1970 г.

В рамках современных представлений [1-6] эти явления обусловлены многофотонным взаимодействием лазерного излучения со средой, когда одна частица, являющаяся нелинейным осциллятором (диполь, атом), поглощает и излучает больше одного фотона. Если лазерное излучение имеет узкополосный спектр (мономатический), то наблюдается генерация второй и высших гармоник. При широкополосном спектре излучения лазера, вследствие возникновения фазовой самомодуляции из-за хроматической дисперсии среды, генерируется более широкополосный или сверхширокополосный непрерывный спектр излучения – континуум либо суперконтинуум (спектр шире двух октав). Считается, что генерация суперконтинуума (ГСК) обусловлена различными нелинейными процессами в среде, такими как вынужденное комбинационное рассеяние,

само модуляция и перекрестная модуляция фазы, четырехволновое смешение, образование солитонов высших порядков и параметрическое смешение фаз мод при синхронизме в многомодовом оптическом волокне. Все эти проявления оптической нелинейности материалов, приводящие к ГВГ и ГСК, существенно зависят как от длины волны, ширины полосы и мощности лазерного излучения, так и от хроматической дисперсии среды.

Генерация гармоник и континуума возникает также при рассеянии лазерного излучения в суспензиях и микро- и нано-структурированных средах [3]. Теория оптической нелинейности при рассеянии лазерного излучения в неоднородных средах впервые была предложена Адлером [10] в 1964 г. В этой и последующих работах [11-14] теоретические модели были основаны на нелинейной зависимости поляризации частицы от приложенного электрического поля и учитывали возникновение квадрупольного и высших моментов у рассеивающей частицы. При этом во всех моделях предполагалось, что сама среда никак не проявляет оптической нелинейности, а возникновение оптической нелинейности, опять же, обусловлено многофотонным взаимодействием с рассеивающей частицей. Но экспериментальные исследования и сравнение с теоретическими результатами выявили существенную разницу в результатах этих модельных теорий и экспериментов [15-17].

В 2000 г. Биркс и др. [18] продемонстрировали ГСК при очень низких мощностях излучения титан-сапфирового лазера в обычном оптоволокне для связи, которое нагревом было растянуто до диаметра 2 мкм. Результаты исследований такого волокна показали, что высокая мощность или структурирование не являются причиной проявления столь высокой нелинейности в плавленом кварце. Эти свойства особенно явно проявились с началом широкого применения лазерного излучения цилиндрической симметрии с радиальной и азимутальной поляризацией пучка для изучения нелинейных свойств оптических материалов [19]. Исследования при воздействии неоднородно поляризованного лазерного излучения выявили явное отличие характерных нелинейных оптических свойств материалов, не проявляющихся при воздействии обычного, однородно поляризованного лазерного излучения.

Несмотря на явную зависимость проявленных нелинейных оптических свойств микро- и нано-структурированных материалов от неоднородности поляризации лазерного излучения и/или самой среды, современное описание не учитывает данного фактора. В случае неоднородной поляризации лазерного излучения и/или среды нелинейные процессы описываются многофотонным взаимодействием (приближение нелинейного осциллятора). А неоднородность поляризации среды рассматривается только как причина формирования пространственных мод излучения, но не как причина возникновения самой оптической нелинейности в сплошной среде.

В данной работе представлены результаты теоретических и экспериментальных исследований нового механизма нелинейного распространения лазер-

ного излучения в сплошной среде, обусловленного взаимодействием одного фотона со многими частицами среды – многочастичным взаимодействием.

В отличие от многофотонных процессов, когда поглощение и излучение многих фотонов происходит одной частицей (рис.1a) из-за нелинейного смещения заряда одной частицы, при многочастичном взаимодействии оптическая нелинейность обусловлена излучением и поглощением одного фотона многими частицами сплошной среды (рис.1b).

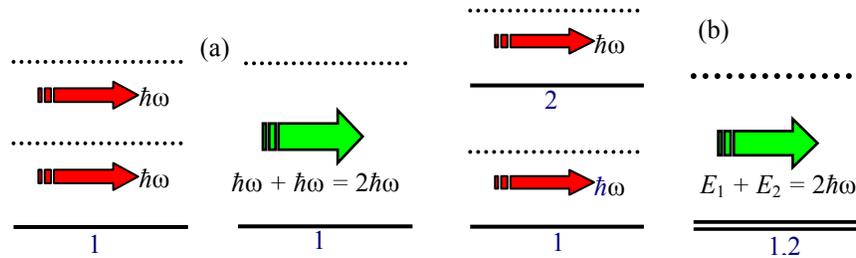


Рис.1. Многофотонное (a) и многочастичное (b) взаимодействия в сплошной среде.

В данном случае сама среда линейна и представляется как набор гармонических осцилляторов (диполь, атом), но создаются условия для совместного поглощения и излучения одного фотона многими частицами. В частности, если два близких диполя (рис.2a) сплошной среды поглотили по фотону с энергией  $E_1 = E_2 = \hbar\omega$  с разными поляризациями и в результате образовали квадруполь (рис.2b,c,d), то они имеют возможность совместно (уже как квадруполь) излучать один фотон с энергией  $E_1 + E_2 = 2\hbar\omega$  (рис.1b). То есть, если среда неоднородно поляризована, то возможно коллективное поглощение и излучение одного фотона образующими мультипольные моменты частицами сплошной среды.

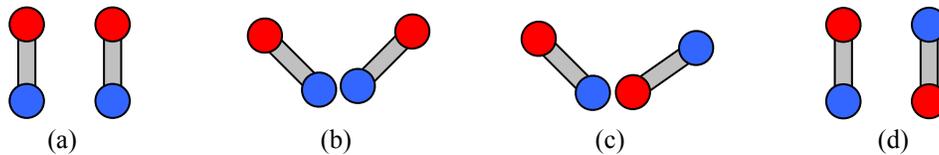


Рис.2. Поляризация диполей при неоднородной поляризации сплошной среды.

Говоря же о симметрии среды, находящейся во взаимодействии с полем лазерного излучения, следует учитывать, что при взаимодействии играет роль не симметрия самой (неполяризованной) среды, а симметрия системы "поле + среда". Например, когда однородная и изотропная среда взаимодействует с радиально поляризованным лазерным пучком (рис.3a), то неоднородно поляризованную этим пучком среду (рис.3b,c) уже нельзя рассматривать как однородную и изотропную.

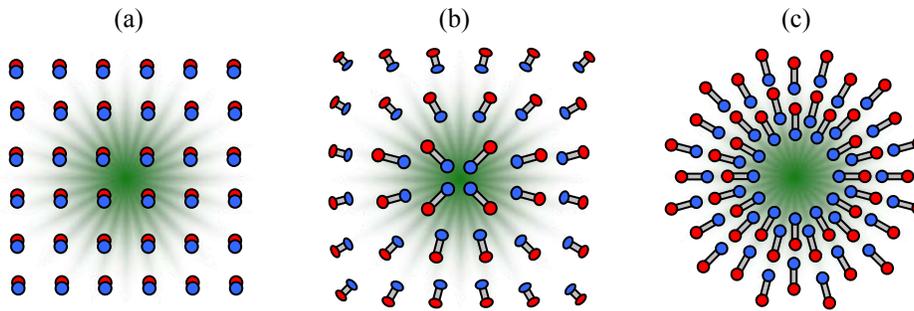


Рис.3. Поляризация однородной и изотропной среды радиально поляризованным лазерным пучком

Точно так же, наличие центральной симметрии среды никак не определяет симметрию взаимодействия неоднородно поляризованного лазерного излучения – она уже определяется симметрией поляризации лазерного пучка. Соответственно, при неоднородной поляризации лазерного излучения в среде возникают квадрупольные и высшие мультипольные моменты, которые и обуславливают генерацию второй и высших гармоник, широкополосного и сверхширокополосного непрерывного спектра излучения.

Очевидно, что характер описанных оптических нелинейностей таков, что они не могут быть представлены известными моделями нелинейного осциллятора или другими, сводящимися к описанию оптических нелинейностей многофотонными процессами. В настоящей работе приведены соответствующее многочастичным взаимодействиям описание оптических нелинейностей и экспериментальная демонстрация ГВГ и ГСК в центросимметричной среде (в кристалле кальцита).

## 2. Точные выражения для плотностей заряда и тока в сплошной среде

В классической электродинамике сплошных сред электромагнитные свойства диэлектриков, после соответствующих усреднений полей и плотностей заряда и тока, описываются с помощью векторов электрической  $\mathbf{P}$  и магнитной  $\mathbf{M}$  поляризации среды. Эти векторы являются, соответственно, электрическим и магнитным дипольным моментом единицы объема среды [20]. Такое описание является следствием предположения, что в диэлектриках при любом воздействии электромагнитных полей и поляризации среды отсутствуют объемные заряды. Это предположение оправдано при однородных смещениях зарядов среды, когда заряды возникают только на поверхности диэлектриков, а их средняя плотность внутри остается компенсированной – нулевой (рис.4а).

При неоднородной поляризации, в частности, при цилиндрической или сферической симметрии смещений зарядов среды (например, в поле точечного заряда) (рис.4b), пространственная плотность зарядов никак не может быть постоянной и меняется при сжатии цилиндра или сферы радиуса  $R$  пропорционально  $\sim 1/R$  или  $\sim 1/R^2$ , соответственно.

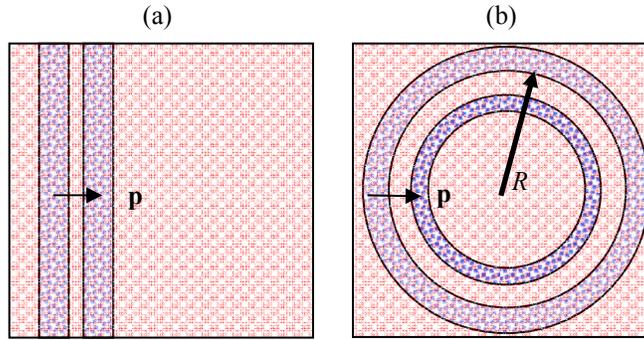


Рис.4. Изменение плотности заряда при однородной (а) и неоднородной (цилиндрической) (b) поляризации среды.

Верно, что при образовании дипольного момента в среде не возникают объемные заряды, но при неоднородной поляризации среды, когда образуются квадрупольные и высшие мультипольные моменты, возникает и объемный заряд.

Во многих задачах дипольное приближение может быть вполне достаточным и можно пренебречь эффектами, вызванными неоднородностью поляризации среды. Однако, когда эти неоднородности имеют порядок длины волны лазерного излучения или рассматривается поведение микро- и наноструктур в среде, возникшие в среде высшие мультипольные моменты могут играть существенную роль при взаимодействии с лазерным излучением. Это становится особенно существенным в случае лазерных пучков с цилиндрической (конической) симметрией при фокусировке в среде и распространении в оптическом волокне [19].

Для вывода точных выражений для плотностей заряда  $\rho$  и тока  $\mathbf{J}$  в сплошной среде воспользуемся уравнением непрерывности

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div} \mathbf{J} = 0, \quad (1)$$

предполагая, что независимо от процедур усреднения, уравнение непрерывности для этих усредненных величин всегда имеет место.

Такое уравнение связи позволяет вместо четырех переменных  $\rho$  и  $\mathbf{J}$  описать среду тремя переменными. Для этого введем, пока что формально, векторную переменную  $\mathbf{\Pi}$  – вектор поляризации среды, с помощью которого плотность заряда представляется как  $\rho = \text{div} \mathbf{\Pi}$ . Из (1) получим  $\mathbf{J} = \partial \mathbf{\Pi} / \partial t$ .

Переменная  $\mathbf{\Pi}$  определена с точностью до произвольной  $c \text{rot} \mathbf{M}_0$ , где  $c$  – скорость света, а  $\mathbf{M}_0$  – произвольная векторная функция, описывающая собственный магнитный момент среды (например, в магнетиках). Далее рассматриваются не намагниченные среды, когда  $\mathbf{M}_0 = 0$ .

Если плотности заряда и тока среды представлены вектором поляризации  $\mathbf{\Pi}$ , то волновое уравнение для электрического поля  $\mathbf{E}$  примет вид

$$\left(\Delta - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}\right) \mathbf{E} = 4\pi \left(-\text{grad div} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}\right) \mathbf{\Pi}. \quad (2)$$

Таким образом, среду можно полноценно описать с помощью вектора поляризации среды  $\mathbf{\Pi}$ , а плотности заряда  $\rho$  и тока  $\mathbf{J}$  выразить через вектор  $\mathbf{\Pi}$  формулами  $\rho = \text{div} \mathbf{\Pi}$  и  $\mathbf{J} = \partial \mathbf{\Pi} / \partial t$ .

Теперь предстоит явным образом выразить вектор поляризации среды  $\mathbf{\Pi}$  через смещения и скорости заряженных частиц среды. Это необходимо для решения самосогласованной задачи электродинамики, так как из уравнений движения находятся именно смещения и скорости заряженных частиц.

В рамках подхода Эйлера представим заданную плотность заряженных частиц как результат перемещения и перераспределения начального равномерного (или другого желаемого) распределения частиц (рис.5). То есть принимается, что распределение заряда с плотностью  $\rho(\mathbf{r})$  в точке  $\mathbf{r}$  получилось в результате смещения заряда с начальной плотностью  $\rho'(\mathbf{r}') = \rho_0(\mathbf{r}')$  из точки  $\mathbf{r}'$  на  $\mathbf{u}(\mathbf{r}) = \mathbf{r} - \mathbf{r}'$ .

Тогда для заданного поля смещений  $\mathbf{u}(\mathbf{r})$  преобразования Эйлера имеют вид

$$\mathbf{r}' = \mathbf{r} - \mathbf{u}(\mathbf{r}), \quad x'_i = x_i - u_i(\mathbf{r}). \quad (3)$$

Индекс  $i$  здесь и далее принимает значения 1, 2, 3, а по повторяющимся индексам подразумевается суммирование.

Так как количество заряда сохраняется, то можно записать

$$\begin{aligned} \rho(\mathbf{r}) dV &= \rho'(\mathbf{r}') dV' = \rho_0(\mathbf{r} - \mathbf{u}) \frac{D(\mathbf{r} - \mathbf{u})}{D(\mathbf{r})} dV = \\ &= \rho_0(\mathbf{r} - \mathbf{u}) \begin{vmatrix} \frac{\partial x'}{\partial x} & \frac{\partial x'}{\partial y} & \frac{\partial x'}{\partial z} \\ \frac{\partial y'}{\partial x} & \frac{\partial y'}{\partial y} & \frac{\partial y'}{\partial z} \\ \frac{\partial z'}{\partial x} & \frac{\partial z'}{\partial y} & \frac{\partial z'}{\partial z} \end{vmatrix} dv = \rho_0(\mathbf{r} - \mathbf{u}) \begin{vmatrix} 1 - \frac{\partial u_x}{\partial x} & \frac{\partial u_x}{\partial y} & \frac{\partial u_x}{\partial z} \\ \frac{\partial u_y}{\partial x} & \frac{\partial u_y}{\partial y} & \frac{\partial u_y}{\partial z} \\ \frac{\partial u_z}{\partial x} & \frac{\partial u_z}{\partial y} & \frac{\partial u_z}{\partial z} \end{vmatrix} dV. \end{aligned} \quad (4)$$

Якобиан преобразования  $D(\mathbf{r} - \mathbf{u})/D(\mathbf{r})$  можно представить в виде

$$\begin{aligned} 1 - \left(\frac{\partial u_x}{\partial x} + \frac{\partial u_y}{\partial y} + \frac{\partial u_z}{\partial z}\right) + \left(\frac{\partial u_x}{\partial x} \frac{\partial u_y}{\partial y} - \frac{\partial u_x}{\partial y} \frac{\partial u_y}{\partial x}\right) + \left(\frac{\partial u_x}{\partial x} \frac{\partial u_z}{\partial z} - \frac{\partial u_x}{\partial z} \frac{\partial u_z}{\partial x}\right) + \\ + \left(\frac{\partial u_y}{\partial y} \frac{\partial u_z}{\partial z} - \frac{\partial u_y}{\partial z} \frac{\partial u_z}{\partial y}\right) - \left(\frac{\partial u_x}{\partial x} \frac{\partial u_y}{\partial y} \frac{\partial u_z}{\partial z} - \frac{\partial u_x}{\partial y} \frac{\partial u_y}{\partial x} \frac{\partial u_z}{\partial z}\right) - \\ - \left(\frac{\partial u_x}{\partial z} \frac{\partial u_y}{\partial x} \frac{\partial u_z}{\partial y} - \frac{\partial u_x}{\partial y} \frac{\partial u_y}{\partial z} \frac{\partial u_z}{\partial x}\right) - \left(\frac{\partial u_x}{\partial y} \frac{\partial u_y}{\partial x} \frac{\partial u_z}{\partial z} - \frac{\partial u_x}{\partial x} \frac{\partial u_y}{\partial z} \frac{\partial u_z}{\partial y}\right). \end{aligned} \quad (5)$$

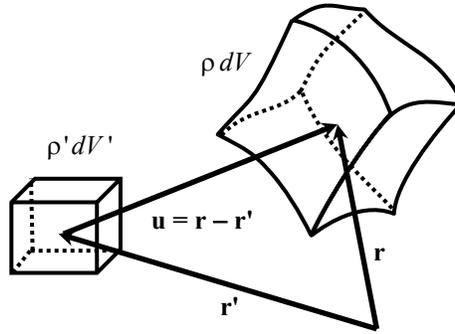


Рис.5. Представление плотности заряда  $\rho(\mathbf{r})$  в объеме  $dV$  как результат изменения плотности заряда  $\rho'(\mathbf{r}')$  в объеме  $dV'$  при смещении на  $\mathbf{u}(\mathbf{r}) = \mathbf{r} - \mathbf{r}'$ .

Гидродинамика и теория упругости сплошных сред основаны на аналогичных подходах представления плотностей массы и потока частиц [21], но учитывается только линейное приближение. Выражение (5) обладает тем свойством, что его всегда можно представить как дивергенцию вектора

$$\frac{D(\mathbf{r} - \mathbf{u})}{D(\mathbf{r})} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left( \frac{1}{3} x_i - u_i + \frac{1}{2} \left( u_i \frac{\partial u_k}{\partial x_k} - u_k \frac{\partial u_i}{\partial x_k} \right) - \frac{1}{3} \varepsilon_{ijk} \varepsilon_{lmn} u_l \frac{\partial u_m}{\partial x_j} \frac{\partial u_n}{\partial x_k} \right). \quad (6)$$

Выбирая начальное распределение как равномерное,  $\rho_0(\mathbf{r} - \mathbf{u}) = \rho_0 = \text{const}$ , для вектора поляризации  $\mathbf{\Pi}$  получим

$$\Pi_i = -\frac{1}{3} \rho_0 (x_i - x_{0i}) + \rho_0 u_i - \frac{1}{2} \rho_0 \left( u_i \frac{\partial u_k}{\partial x_k} - u_k \frac{\partial u_i}{\partial x_k} \right) + \frac{1}{3} \rho_0 \varepsilon_{ijk} \varepsilon_{lmn} u_l \frac{\partial u_m}{\partial x_j} \frac{\partial u_n}{\partial x_k}. \quad (7)$$

Как видим, в рамках подхода Эйлера, когда сплошная среда описывается полем смещений  $\mathbf{u}(\mathbf{r})$ , плотность заряда  $\rho(\mathbf{r})$  можно представить как дивергенцию выражения (7) и тем самым выразить вектор поляризации среды  $\mathbf{\Pi}$  через смещения зарядов  $\mathbf{u}(\mathbf{r})$ . Четыре слагаемых этого выражения описывают источники поля по характеру изменений пространственного распределения зарядов – перемещение, сжатие, сдвиг, кручение.

Подчеркнем, что полученное выражение является точным математическим выражением и представление зависимости вектора поляризации  $\mathbf{\Pi}$  от смещений  $\mathbf{u}(\mathbf{r})$  выражением (7) никак не ограничено малостью какого-либо параметра разложения или величиной и характером самих смещений.

Далее, в рамках данного изложения, рассматривается только двумерный случай поляризации среды, а с изложением более общих подходов можно ознакомиться в работах [22,23].

Если среда представляет собой нейтральную систему подвижных электронов на фоне равномерно распределенных неподвижных ионов, то в двумерном случае имеем

$$\mathbf{\Pi} = \rho_0 \mathbf{u} - \rho_0 (\mathbf{u}(\nabla \cdot \mathbf{u}) - (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u}) / 2. \quad (8)$$

Представляя плотность дипольного момента как  $\mathbf{P} = \rho_0 \mathbf{u}$ , имеем

$$\rho = -\operatorname{div} \left( \mathbf{P} + (\mathbf{P}(\nabla \cdot \mathbf{P}) - (\mathbf{P} \cdot \nabla) \mathbf{P}) / 2\rho_0 \right), \quad (9)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{J} &= \frac{\partial}{\partial \tau} \left( \mathbf{P} + \frac{\mathbf{P}(\nabla \cdot \mathbf{P}) - (\mathbf{P} \cdot \nabla) \mathbf{P}}{2\rho_0} \right) = \\ &= \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial \tau} - \frac{1}{\rho_0} \left( \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial \tau} \operatorname{div} \mathbf{P} - \left( \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial \tau} \cdot \nabla \right) \mathbf{P} \right) + \frac{1}{2\rho_0} \operatorname{rot} \left[ \mathbf{P} \times \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial \tau} \right]. \end{aligned} \quad (10)$$

Как видим, в выражение для плотности тока  $\mathbf{J}$  естественно включено и выражение плотности магнитного дипольного момента среды  $\mathbf{M}$  в виде

$$\mathbf{M} = \frac{1}{2\rho_0 c} \left[ \mathbf{P} \times \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} \right] = \frac{\rho_0}{2c} \left[ \mathbf{u} \times \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} \right] = \frac{\rho_0}{2c} [\mathbf{u} \times \mathbf{v}] = \frac{1}{2c} [\mathbf{u} \times \mathbf{j}], \quad (11)$$

где  $\mathbf{j}$  – плотность тока диполей:  $\mathbf{j} = \rho_0 \mathbf{v} = \rho_0 \partial \mathbf{u} / \partial t = \partial \mathbf{P} / \partial t$ .

### 3. Многофотонное и многочастичное взаимодействия в среде

Используя представления (9) и (10), из (2) имеем

$$\left( \Delta - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \mathbf{E} = -4\pi \left( \operatorname{grad} \operatorname{div} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \left( \mathbf{P} + \frac{\mathbf{P}(\nabla \cdot \mathbf{P}) - (\mathbf{P} \cdot \nabla) \mathbf{P}}{2\rho_0} \right) \quad (12)$$

– общий вид волнового уравнения для электрического поля  $\mathbf{E}$  в произвольно поляризованной среде с учетом нелинейностей любого характера (в двумерном случае).

Для описания оптических нелинейностей среды, обусловленных многофотонными процессами, обычно пользуются уравнениями [1]

$$\left( \Delta - \frac{\varepsilon \mu}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \mathbf{E} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{\text{NL}}}{\partial t^2}, \quad (13)$$

где  $\mathbf{P}_{\text{NL}}$  – нелинейная часть зависимости плотности дипольного момента  $\mathbf{P}$  от электрического поля  $\mathbf{E}$ . Уравнения (13) являются частным случаем уравнений (12) в случае однородно поляризованной поперечной электромагнитной волны лазерного излучения.

Если нелинейности обусловлены только многочастичными процессами, то в случае линейной среды, в приближении  $\mathbf{P} = \chi \mathbf{E}$ , можно воспользоваться уравнениями

$$\left( \Delta - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \mathbf{E} = -4\pi \left( -\operatorname{grad} \operatorname{div} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \left( \chi \mathbf{E} + \chi^2 \frac{\mathbf{E}(\nabla \cdot \mathbf{E}) - (\mathbf{E} \cdot \nabla) \mathbf{E}}{2\rho_0} \right), \quad (14)$$

где  $\chi$  – диэлектрическая восприимчивость среды.

Таким образом, общую задачу нахождения электромагнитных полей в среде можно разделить на две: 1) динамическую (микроскопическую) – нахождение смещения зарядов (поляризации) в среде в зависимости от приложенных к нему сил (полей), 2) кинематическую (макроскопическую) – нахождение электромагнитных полей в зависимости от смещений зарядов (поляризации) среды.

В первом случае в уравнениях поля фигурирует разложение по динамическим величинам (поля), а во втором – разложение по кинематическим величинам (смещения). Соответственно, при описании электромагнитных полей в среде различаются нелинейности двух типов.

**I. Динамические (микроскопические) нелинейности,** описываемые нелинейной зависимостью плотности дипольного момента среды  $\mathbf{P}$  от приложенного электрического поля  $\mathbf{E}$ :

$$\mathbf{P} = \hat{\chi}^{(1)} \cdot \mathbf{E} + \hat{\chi}^{(2)} : \mathbf{E} \times \mathbf{E} + \hat{\chi}^{(3)} : \mathbf{E} \times \mathbf{E} \times \mathbf{E} + \dots, \quad (15)$$

где  $\hat{\chi}^{(n)}$  – тензорный коэффициент зависимости плотности дипольного момента  $\mathbf{P}$  от  $n$ -ой степени электрического поля  $\mathbf{E}$ . Разложение обусловлено нелинейной зависимостью смещения одного заряда от приложенного к нему поля  $\mathbf{E}$  и определяется динамикой этой частицы. Решения уравнений поля при разложении (15) описывают процессы поглощения и излучения многих фотонов одной частицей – многофотонные процессы [1].

**II. Кинематические (макроскопические) нелинейности,** описываемые нелинейной зависимостью электрического поля  $\mathbf{E}$  от плотности дипольного момента среды  $\mathbf{P}$ :

$$\mathbf{E} = \hat{\alpha}^{(1)} \cdot \mathbf{P} + \hat{\alpha}^{(2)} : \mathbf{P} \times \mathbf{P} + \hat{\alpha}^{(3)} : \mathbf{P} \times \mathbf{P} \times \mathbf{P} + \dots, \quad (16)$$

где  $\hat{\alpha}^{(n)}$  – тензорный коэффициент зависимости электрического поля  $\mathbf{E}$  от  $n$ -ой степени плотности дипольного момента  $\mathbf{P}$ . Разложение обусловлено нелинейной зависимостью электрического поля  $\mathbf{E}$  от плотности дипольного момента среды  $\mathbf{P}$  и определяется динамикой ансамбля частиц. Решения уравнений поля при разложении (16) описывают процессы совместного поглощения и излучения одного фотона многими частицами – многочастичные процессы.

С формальной точки зрения может показаться, что разложения поляризации  $\mathbf{P}$  по  $\mathbf{E}$  или поля  $\mathbf{E}$  по  $\mathbf{P}$  равноценны и волновое уравнение к новым решениям не приведет. Но так как в волновое уравнение поле и поляризация среды входят не одинаково, то пространственно-временные характеристики решений, обусловленные правой частью волнового уравнения (12) при разложении (16), никак не могут быть сведены к случаям решений волнового уравнения (13) при разложении (15).

Например, в обладающей центром симметрии ( $\chi^{(2)} = 0$ ) среде динамические нелинейности не могут привести к возникновению второй гармоники, а кинематические нелинейности делают возможным процесс ее формирования в таких средах. При этом решение волнового уравнения (14), описывающее возбуждение второй гармоники в среде, отвечает процессу поглощения двумя ато-

мами среды по одному фотону с энергией  $\hbar\omega_0$  и последующему совместному излучению одного фотона с энергией  $\hbar\omega_1 = 2\hbar\omega_0$ .

Нами для очевидности экспериментальной демонстрации многочастичных взаимодействий в среде специально был выбран обладающей центром симметрии кристалл кальцита. Хотя и в кальците обеспечивается условие фазового синхронизма, но для centrosymmetric среды  $\chi^{(2)} = 0$  и ГВГ двухфотонным взаимодействием невозможна. С учетом же механизма многочастичного взаимодействия ГВГ возможна.

В случае кристалла кальцита можно быть уверенным, что если наблюдается ГВГ, то это не является результатом многофотонного взаимодействия.

#### 4. Формирование неоднородно поляризованных пучков

Для формирования неоднородно поляризованных пучков лазерного излучения нами использовался кристалл кальцита –  $\text{CaCO}_3$  (исландский шпат). Этот обратно двулучепреломляющий, одноосный и обладающий центральной симметрией кристалл ( $\chi^{(2)} = 0$ ) прозрачен в области 0.35–2.3 мкм. Для расчетов показателя преломления для обыкновенной  $n_o$  и необыкновенной  $n_e$  волн применялись уравнения Селмейера в виде (длина волны  $\lambda$  выражена в мкм)

$$n_o^2 = 2.69705 + 0.0192064/(\lambda^2 - 0.01820) - 0.0151624 \times \lambda^2,$$

$$n_e^2 = 2.18438 + 0.0087309/\lambda^2 - 0.01018 - 0.0024411 \times \lambda^2.$$

Расчетные значения угла синхронизма и показателей преломления для  $\lambda = 1.064$  мкм и  $\lambda = 0.532$  мкм равны  $\varphi = \pm 20.7^\circ$ ,  $n_e = n_o = 1.64$ .

Формирование неоднородно поляризованных пучков сначала представим на примере оптической призмы из кальцита, оптическая ось которой параллельна грани прямого угла (рис.6). Линейно поляризованный пучок параллельно оптической оси попадает на плоскость призмы и после полного внутреннего отражения, перпендикулярно оптической оси, выходит из призмы (рис.6а). Плоскость поляризации пучка выбирается такой, чтобы после полного внутреннего отражения она составляла угол  $45^\circ$  относительно оптической оси.

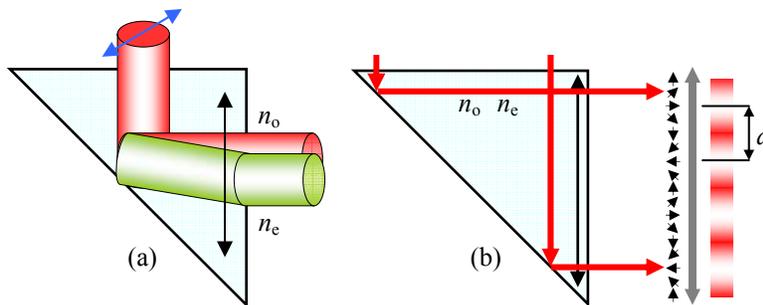


Рис.6. Формирование неоднородно поляризованного пучка призмой из кальцита.

На выходе призмы, из-за разницы оптических путей обыкновенной и необыкновенной волн, по направлению оптической оси образуется неоднородная поляризация с периодической структурой (рис.6b) – от линейной поляризации до круговой и наоборот. Если на выходе призмы поставить поляризатор, то при длине волны лазерного излучения, равной  $\lambda = 0.53$  мкм, на экране будут видны интерференционные полосы с периодом  $d = 0.5\lambda n/\Delta n = 0.5 \times 0.53 \times 1.64/0.17 \approx 2.6$  мкм.

Из-за двулучепреломления на выходе призмы оси обыкновенного и необыкновенного пучков смещены (рис.6a), и неоднородная поляризация наблюдается только в области перекрытия пучков. Перед фокусировкой такого пучка следует диафрагмой выделить область перекрытия. В противном случае при фокусировке пространственно смещенных пучков фокусы будут пространственно разделены.

Для синтеза радиально и азимутально поляризованных пучков был использован аксикон из кристаллического кальцита, у которого оптическая ось кристалла ориентирована по оси аксикона (рис.7a). При прохождении циркулярно поляризованного пучка через такой двулучепреломляющий аксикон на выходе получают два смещенных по оси конических пучка с равными углами раскрытия, с радиальной и азимутальной поляризациями. При фокусировке таких пучков получают два круга с разными радиусами и соответствующими поляризациями (рис.7b).

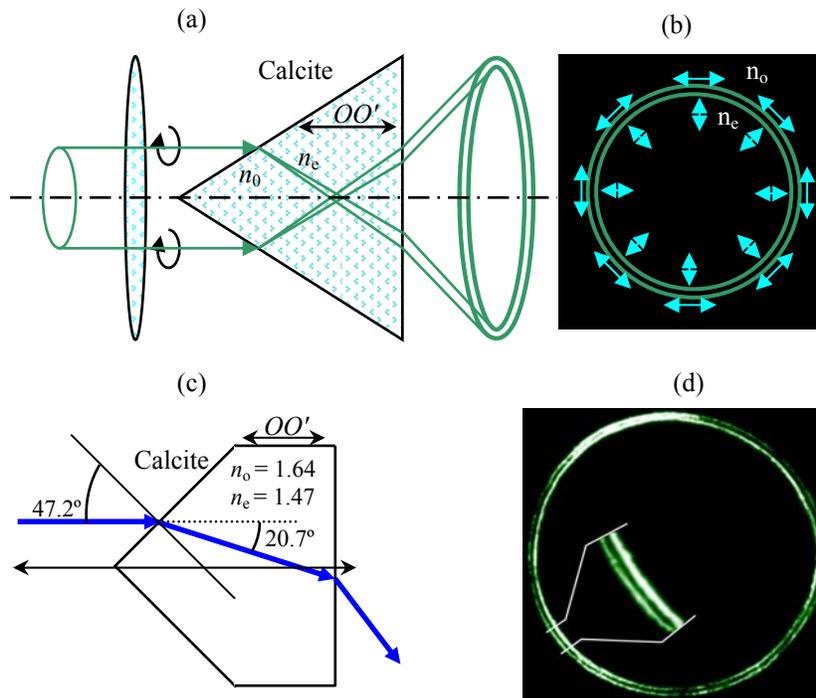


Рис.7. Формирование радиально и азимутально поляризованных пучков аксиконом из кальцита.

Для обеспечения условия фазового синхронизма в самом аксиконе угол образующей аксикона составлял  $47.2^\circ$  (рис.7с). В этом случае пучок после преломления распространяется в аксиконе под углом фазового синхронизма  $20.7^\circ$ . Результат фокусировки циркулярно поляризованного пучка лазера с длиной волны  $\lambda = 0.53$  мкм после прохождения экспериментального образца аксикона приведен на рис.7d. Внутри приведено увеличенное изображение участка картины.

Такой аксикон из кальцита одновременно формирует пространственно разделенные радиально и азимутально поляризованные пучки и обеспечивает в самом аксиконе условие фазового синхронизма для генерации второй гармоники.

Отметим, что свойства взаимодействия такого пучка не зависят от того, используется ли весь круг (широкий пучок, рис.7d) или только его малая часть (дуга, узкий пучок). В данном случае свойства взаимодействия определяются ближним порядком локальной неоднородности рассматриваемой точки, поэтому и свойства взаимодействия в данной точке аксикона при прохождении узких пучков будут такими же.

Рассмотренные выше примеры формирования неоднородно поляризованных пучков позволяют сделать заключение и для случая взаимодействия лазерного излучения с порошком кристалла кальцита. При рассеянии лазерного излучения в порошке образуется весьма неоднородно поляризованное излучение, что существенно меняет характер взаимодействия рассеянного лазерного излучения с порошком и со средой окружения. Как видим, в традиционном порошковом методе Куртца для оценки нелинейности оптических материалов [24], многочастичные процессы могут вносить существенный вклад в оценку величины оптической нелинейности материала. Поэтому в традиционном понимании "линейные" оптические материалы, стекла и металлы проявляют неожиданно большие нелинейности в виде порошков и суспензий.

## 5. ГВГ и ГСК в кристалле кальцита

Для экспериментального исследования ГВГ и ГСК в кристалле кальцита использовался импульсный пикосекундный лазер YAG:Nd<sup>+3</sup> на длине волны 1.06 мкм длительностью 50 пс. Максимальная мощность излучения составляла 10 МВт с частотой следования до 50 Гц, а диаметр линейно поляризованного пучка на выходе излучателя составлял 1 мм. Изготовленные образцы аксиконов из кристаллического кальцита соответствовали описанию в разделе 4 и имели диаметр 10 мм. Для контроля качества материала и качества изготовления аксиконов из того же кристалла кальцита были также изготовлены плоскопараллельные пластины. Толщина пластин составляла 2–3 мм, а оптическая ось кристалла была ориентирована перпендикулярно поверхности.

В эксперименте (рис.8а) направление лазерного пучка было параллельно оси аксикона, а поляризация пучка в точке вхождения со стороны вершины аксикона была параллельна поверхности. В этом случае после преломления в ак-

сиконе распространялся необыкновенный пучок с азимутальной поляризацией на длине волны 1.06 мкм и условие синхронизма обеспечивалось для обыкновенного пучка с радиальной поляризацией на длине волны 0.53 мкм.

При такой конфигурации наблюдалась ГВГ (рис.8b) в очень широком диапазоне плотности мощности излучения на длине волны 1.06 мкм вплоть до 1 ГВт/м<sup>2</sup>. При плотности мощности большей 0.1 ГВт/м<sup>2</sup> выходное излучение приобретало структурные изменения (рис.9a) и генерировалось широкополосное излучение (рис.10a).

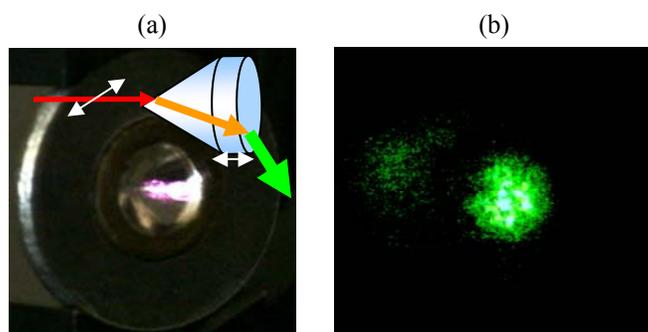


Рис.8. Схема прохождения пучка лазерного излучения через аксикон (a) и ГВГ в кристалле кальцита (b).

Дальнейшее увеличение плотности мощности приводило к сглаживанию структуры излучения (рис.9b,c) и к ГСК с почти равномерным спектральным распределением (рис.10b,c).

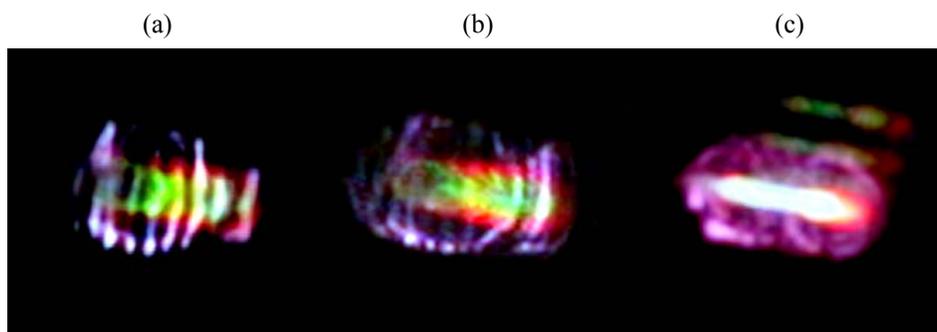


Рис.9. Структура ГСК в кристалле кальцита.

Проверка возможной генерации излучения гармоник и суперконтинуума в таких же условиях на контрольных пластинах под углом фазового синхронизма показала их полное отсутствие.

Оценки оптической нелинейности порошка кальцита, возникающего из-за многочастичных процессов в среде, проводились методом Куртца [24] для порошка используемого образца кристалла кальцита с размерами частиц  $40 \pm 5$

мкм. При облучении лазерным излучением  $1 \text{ ГВт/м}^2$  на длине волны  $1.06 \text{ мкм}$  (рис.11), такой порошок проявлял нелинейность порядка  $\chi(2) \sim 10^{-9}$ .

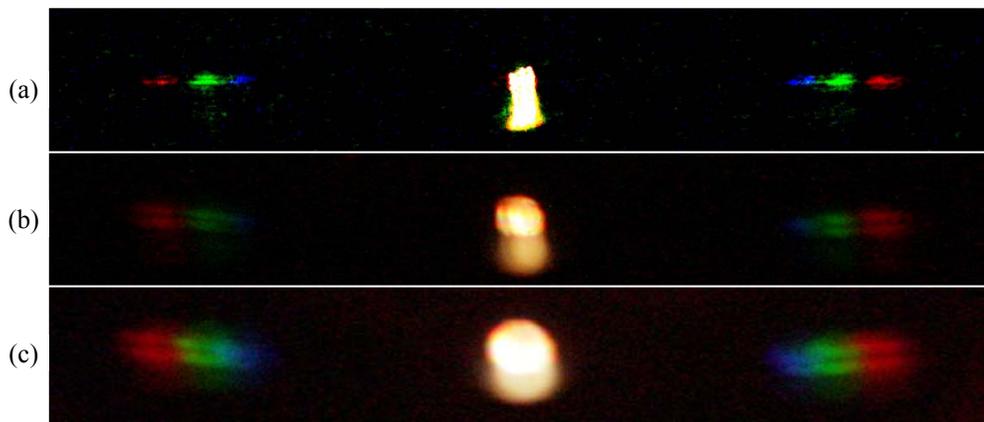


Рис.10. Спектры ГСК в кристалле кальцита.



Рис.11. ГВГ в порошке кристалла кальцита.

## 6. Обсуждение и выводы

Теоретически и экспериментально исследован новый механизм нелинейного распространения оптического излучения в сплошной среде, обусловленный взаимодействием излучения со многими частицами среды – многочастичное взаимодействие.

В результате теоретических исследований получены точные выражения для плотностей заряда и тока в сплошной среде, позволяющие полностью описать электромагнитные свойства среды и взаимодействие излучения со сплошной средой как коллективное, многочастичное взаимодействие. В отличие от многофотонных процессов, когда поглощение и излучение фотонов происходит одной частицей по причине нелинейного смещения, при многочастичном взаимодействии оптическая нелинейность обусловлена излучением и поглощением

одного фотона многими частицами сплошной среды. При неоднородной поляризации лазерного излучения в среде возникают квадрупольные и высшие мультипольные моменты, которые и обуславливают излучение и генерацию второй и высших гармоник, широкополосного и сверхширокополосного непрерывного спектра.

Результаты теоретических исследований экспериментально продемонстрированы на примере кристалла кальцита, обладающего центром симметрии. Коэффициент квадратичной нелинейной восприимчивости таких сред равен нулю и в них теоретически невозможна ГВГ двухфотонным процессом. Однако при неоднородной, азимутальной поляризации пучка пикосекундного лазера на длине волны 1.06 мкм, в кальците под углом синхронизма  $20.7^\circ$  наблюдается ГВГ с радиальной поляризацией на длине волны 0.53 мкм. При превышении плотности мощности лазерного излучения  $0.1 \text{ ГВт/м}^2$  возникает генерация широкополосного и сверхширокополосного непрерывного спектра (ГСК) излучения в диапазоне 0.4–1.06 мкм.

ГВГ в кальците была также продемонстрирована порошковым методом Куртца для оценки нелинейности оптических материалов. В этом случае неоднородная поляризация в кристаллах порошка естественно возникает за счет хаотичного, многократного отражения и преломления исходного однородного, линейно поляризованного пучка в слое исследуемого порошка.

Таким образом, описанное проявление оптической нелинейности кристалла кальцита не может быть интерпретировано как результат многофотонных взаимодействий и обусловлено многочастичным взаимодействием в сплошной среде.

Авторы признательны профессору Л.Х. Мурадян за помощь в организации постановки эксперимента и академику Ю.С. Чилингаряну за постоянный интерес и представление результатов исследований на слушаниях в НАН РА. Авторы признательны также профессору В.О. Чалтыкяну за полезные обсуждения и помощь при подготовке рукописи.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. **R.W.Boyd**. Nonlinear Optics. 3th edn., Oxford, Elsevier, 2008.
2. **G.P.Agrawal**. Nonlinear Fiber Optics. 3th edn., San Diego, Academic Press, 2001.
3. **M.A.Foster, A.C.Turner, M.Lipson, A.L.Gaeta**. Opt. Express, **16**, 1300 (2008).
4. **Y.S.Kivshar, G.P.Agrawal**. Optical Solitons: From Fibers to Photonic Crystals. Oxford, Elsevier, 2003.
5. Supercontinuum Generation in Optical Fibers. **J.M.Dudley, J.R.Taylor (ed.)**. New York, Cambridge, 2010.
6. The Supercontinuum Laser Source: Fundamentals with Updated References. **R.R.Alfano (ed.)**. New York, Springer-Verlag, 2006.
7. **P.A.Franken, A.E.Hill, C.W.Peters, G.Weinreich**. Phys. Rev. Lett., **7**, 118 (1961).
8. **R.R.Alfano, S.L.Shapiro**. Phys. Rev. Lett., **24**, 584 (1970).
9. **R.R.Alfano, S.L.Shapiro**. Phys. Rev. Lett., **24**, 592 (1970).
10. **E.Adler**. Phys. Rev. A, **134**, 728 (1964).
11. **G.S Agrawal, S.S.Jha**. Solid State Commun., **41**, 499 (1982).

12. **X.M.Hua, J.I.Gersten.** Phys. Rev. B, **33**, 3756 (1986).
13. **J.I.Dadap, J.Shan, T.F.Heinz.** J. Opt. Soc. Am. B, **21**, 1328 (2004).
14. **N.K.Balla, P.T.C.So, C.J.R.Sheppard.** Opt. Express, **18**, 21603 (2010).
15. **V.A.Mel'nikov, L.A.Golovan, S.O.Konorov, D.A.Muzychenko, A.B.Fedotov, A.M. Zheltikov, V.Yu.Timoshenko, P.K.Kashkarov.** Appl. Phys. B, **79**, 225 (2004).
16. **E.V.Makeev, S.E.Skipetrov.** Opt. Comm., **224**, 139 (2003).
17. **S.Faez, P.M.Johnson, D.A.Mazurenko, A.Legendijk.** Opt. Soc. Am. B, **26**, 235 (2009).
18. **T.A.Birks, W.J.Wadsworth, P.St.J.Russell.** Opt. Lett., **25**, 1415 (2000).
19. **Q.Zhan,** Adv. Op. Photon., **1**, 1 (2009); <http://www.opticsinfobase.org/viewmedia.cfm?uri=aop-1-1-1&seq=0>.
20. **L.D.Landau, E.M.Lifshitz, L.P.Pitaevskii.** Electrodynamics of Continuous Media. Oxford, Butterworth-Heinemann, 1984.
21. **L.D.Landau, E.M.Lifshitz,** Theory of Elasticity, Oxford, Butterworth-Heinemann, 1986.
22. **V.M.Mekhitarian, V.E.Mkrtchian.** El. J. Theor. Phys., **1**, 1 (2004); <http://lanl.arxiv.org/abs/physics/0412004v1>.
23. **V.M.Mekhitarian, V.E.Mkrtchian,** <http://lanl.arxiv.org/abs/math-ph/0401045v2>, 2004.
24. **S.K.Kurtz, T.T.Perry.** J. Appl. Phys., **39**, 3798 (1968).

ԲԱԶՄԱՄԱՍՆԻԿԱՅԻՆ ԵՐԿՐՈՐԴ ՀԱՐՄՈՆԻԿԻ  
ԵՎ ԳԵՐԼԱՅՆԱՇԵՐՏ ՍԵՐՈՒՄ ՀՈԾ ՄԻՋԱՎԱՅՐՈՒՄ

Վ.Մ. ՄԽԻԹԱՐՅԱՆ, Ա.Ա. ԱՎԵՏԻՍՅԱՆ, Ար.Ա. ԿԻՐԱԿՈՍՅԱՆ

Տեսականորեն և փորձնականորեն ուսումնասիրված է հոծ միջավայրում օպտիկական ճառագայթման ոչ գծային տարածման նոր, միջավայրի շատ մասնիկների հետ ճառագայթման փոխազդեցությամբ պայմանավորված մեխանիզմ՝ բազմամասնիկային փոխազդեցություն: Կալցիտի բյուրեղի օրինակով, որն օժտված է կենտրոնական սիմետրիայով և չի դրսևորում քառակուսային ոչ գծայնություն, փորձով ցուցադրված է 1.06 մկմ ալիքի երկարությամբ լազերային ճառագայթման բազմամասնիկային երկրորդ հարմոնիկի և գերլայնաշերտ սերումը:

MULTIPARTICLE GENERATION OF SECOND HARMONIC  
AND SUPERCONTINUUM IN CONTINUOUS MEDIA

V.M. MEKHITARIAN, A.A. AVETISSIAN, Ar.A. KIRAKOSSIAN

We study theoretically and experimentally a novel mechanism of nonlinear propagation of optical radiation in a continuous medium caused by interaction of radiation with many particles of medium, i.e., multiparticle interaction. On the example of calcite crystal, which has a center of symmetry and does not exhibit quadratic nonlinearity, we experimentally demonstrate multiparticle generation of the second harmonic and supercontinuum of the laser radiation at the wavelength of 1.06  $\mu\text{m}$ .