

МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ  
имени М.В. ЛОМОНОСОВА

*На правах рукописи*

Копылов Денис Александрович

**Генерация оптических гармоник в нелинейных кристаллах от широкополосного излучения вынужденного параметрического рассеяния**

01.04.21 — лазерная физика

**АВТОРЕФЕРАТ**

диссертации на соискание учёной степени  
кандидата физико-математических наук

Москва — 2019

Работа выполнена на кафедре квантовой электроники физического факультета  
МГУ имени М.В.Ломоносова

Научный руководитель: **Мурзина Татьяна Владимировна**  
доктор физико-математических наук  
физический факультет МГУ имени М.В.Ломоносова  
доцент кафедры квантовой электроники

Официальные оппоненты: **Фёдоров Михаил Владимирович**  
доктор физико-математических наук, профессор  
Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН  
профессор, главный научный сотрудник

**Чиркин Анатолий Степанович**  
доктор физико-математических наук, профессор  
физический факультет МГУ имени М.В.Ломоносова  
профессор кафедры общей физики и волновых процессов

**Тихонова Ольга Владимировна**  
доктор физико-математических наук, профессор  
физический факультет МГУ имени М.В.Ломоносова  
профессор кафедры атомной физики,  
физики плазмы и микроэлектроники

Защита диссертации состоится 19 сентября 2019 г. в 15:00 на заседании диссертационного совета МГУ.01.13 Московского государственного университета имени М.В.Ломоносова по адресу: 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 62, корпус нелинейной оптики, аудитория им. С.А. Ахманова.

E-mail: [diss.sov.31@physics.msu.ru](mailto:diss.sov.31@physics.msu.ru)

С диссертацией можно ознакомиться в отделе диссертаций научной библиотеки МГУ имени М.В.Ломоносова (Москва, Ломоносовский проспект, д. 27) и на сайте ИАС "ИСТИНА": <https://istina.msu.ru/dissertations/209208501/>.

Автореферат разослан «     » июля 2019 г.

Ученый секретарь  
диссертационного совета МГУ.01.13  
кандидат физико-математических наук

А.А. Коновко

## Общая характеристика работы

Диссертационная работа посвящена исследованию нелинейно-оптических эффектов, наблюдающихся в нелинейных кристаллах при воздействии на них излучения широкополосного многомодового излучения вынужденного параметрического рассеяния (ВПР). Экспериментально определены статистические и спектральные свойства излучения ВПР, а также рассмотрены эффекты генерации второй, третьей и четвертой оптических гармоник при воздействии на них многомодового широкополосного излучения ВПР, определены механизмы данных явлений; впервые экспериментально продемонстрирован эффект статистического выигрыша при генерации оптических гармоник видимого спектрального диапазона при использовании в качестве накачки неклассического излучения ВПР. Выполнено сравнение экспериментальных данных с теоретическими расчётами, в основе которых использовано описание нелинейно-оптического взаимодействия в формализме мод Шмидта для излучения ВПР.

**Актуальность** работы обусловлена высоким интересом к исследованию нелинейно-оптических эффектов при воздействии на нелинейную среду неклассического электромагнитного поля, что связано с возможностью использования нелинейно-оптических методов для приготовления, преобразования и детектирования неклассических состояний света [1—3]. На сегодняшний день основным неклассическим источником света является излучение спонтанного параметрического рассеяния (СПР), возникающее при нелинейно-оптическом взаимодействии в средах с квадратичной нелинейной восприимчивостью. Данный эффект был обнаружен в 1967 году [4—6]. В процессе СПР фотон накачки в нелинейной среде распадается на два: сигнальный и холостой фотоны. Таким образом, свет на выходе из нелинейной среды является преимущественно двухфотонным, и пары фотонов, генерируемые при СПР, являются скоррелированными. В экспериментальной квантовой оптике излучение СПР позволяет приготавливать перепутанные двухфотонные [7; 8] и однофотонные [9] состояния. Несмотря на то, что число фотонов в одной моде излучения СПР мало, его использование в качестве накачки для нелинейно-оптических процессов приводит к появлению новых эффектов, связанных с квантовой природой электромагнитного поля. Одним из таких эффектов является линейная зависимость нелинейно-оптического отклика второго порядка от интенсивности излучения СПР, что было экспериментально показано для двухфотонного поглощения и интенсивности второй гармоники в работах [10; 11]. В работах [12; 13] на основе генерации суммарной частоты реализованы двухфотонные детекторы для излучения СПР, являющиеся сверхбыстрым аналогом стандартной схемы совпадений.

Возможна экспериментальная реализация другого режима параметрического рассеяния (ПР): вынужденный режим параметрического рассеяния (ВПР)<sup>1</sup>

---

<sup>1</sup> ВПР часто называется параметрической сверхлюминесценцией, и в англоязычной литературе принят термин преобразование частоты вниз с большим коэффициентом параметрического усиления (high-gain parametric down conversion). В соответствии с книгой [1] в рамках диссертационной

. ВПР наблюдается при интенсивном излучении накачки, когда число фотонов, рожденных в процессе СПР вблизи входной грани нелинейного кристалла, увеличивается экспоненциально по мере распространения излучения в нелинейной среде. При этом на выходе из кристалла получается свет с большим числом фотонов в моде излучения ВПР, и среднее значение числа фотонов в моде может достигать значений  $\langle N \rangle \approx 10^{13}$  [14]. Несмотря на высокую яркость, излучение ВПР не может быть корректно описано в рамках классической электродинамики. Прежде всего, это связано с тем, что при ВПР «затравочным» излучением являются фотоны СПР, возникающие за счёт вакуумных флуктуаций электромагнитного поля в нелинейной среде и которые могут быть описаны только в рамках квантового подхода. Во-вторых, излучение параметрического рассеяния является сжатым, и такой свет не имеет аналогов в классической теории [15]. При большом коэффициенте параметрического усиления итоговое состояние называется ярким сжатым вакуумом, основные свойства которого рассмотрены, например, в работе [16]. Важно отметить, что излучение ВПР обладает уникальными корреляционными свойствами; например, для яркого сжатого вакуума нормированные корреляционные функции  $n$ -ого порядка  $g^{(n)}(0) = (2n - 1)!!$  [17]. Соответствующие значения нормированных корреляционных функций второго порядка были измерены в работах [14; 18].

Вышеперечисленные свойства излучения ВПР определяют перспективность его использования в качестве неклассического, сильно-флуктуирующего излучения оптической накачки для изучения нелинейно-оптических эффектов. Так, например, в работах [19—22] изучались пространственные и временные характеристики излучения ВПР при генерации второй гармоники (ВГ) в нелинейных кристаллах в условиях фазового синхронизма. При этом эксперименты по генерации ВГ от излучения ВПР проводились только в условиях фазового синхронизма, и генерация третьей и четвёртой оптических гармоник от излучения ВПР экспериментально не изучалась. Применение излучения параметрического рассеяния представляет интерес для нелинейной корреляционной спектроскопии, что показано, например, в теоретических работах [23; 24].

При генерации оптических гармоник под действием флуктуирующих источников накачки возможно наблюдение эффекта статистического выигрыша [25]: при наличии флуктуаций интенсивности накачки средняя интенсивность оптических гармоник увеличивается по сравнению с интенсивностью гармоник, генерируемых при воздействии на нелинейную среду когерентного излучения. В нерезонансной среде увеличение эффективности нелинейно-оптических процессов пропорционально нормированной корреляционной функции соответствующего порядка [26; 27]; так, при использовании теплового (хаотического) света в качестве излучения накачки можно ожидать увеличения средней интенсивности генерации  $n$ -ой оптической гармоники в  $n!$  раз по сравнению с когерентным лазерным излучением. Основной трудностью экспериментального получения статистического

---

работы будет использоваться термин ВПР. Когда в тексте диссертации речь идёт об «излучении ПР», подразумеваются как спонтанный, так и вынужденный режимы.

выигрыша в нелинейно-оптических процессах оптического диапазона является приготовление флуктуирующих источников с заданными статистическими параметрами, поэтому в большинстве соответствующих экспериментальных работ использовалось интенсивное излучение одномодовых и многомодовых лазеров. Экспериментальный статистический выигрыш для излучения с тепловой статистикой был продемонстрирован, например, для многофотонной ионизации [28; 29], генерации второй гармоники [30; 31] и для многофотонного поглощения [32]. Ранее экспериментально не изучался эффект статистического выигрыша при генерации оптических гармоник от излучения ВПР. Использование излучения ВПР в качестве накачки для генерации оптических гармоник позволяет получить больший статистический выигрыш по сравнению с тепловым источником.

Таким образом, изучение нелинейно-оптических эффектов при использовании излучения параметрического рассеяния является актуальной задачей.

**Целью** диссертационной работы является исследование нелинейно-оптических эффектов, таких как генерация второй, третьей и четвёртой оптических гармоник, при воздействии на нелинейные кристаллы широкополосного многомодового излучения вынужденного параметрического рассеяния (ВПР).

В рамках диссертационной работы были поставлены и решены следующие задачи:

1. Генерация излучения вынужденного параметрического рассеяния в ближнем инфракрасном диапазоне с центральной длиной волны 1600 нм, определение спектральных и корреляционных свойств ВПР.
2. Теоретическое описание спектров второй, третьей и четвёртой гармоник от многомодового широкополосного излучения ВПР с использованием формализма мод Шмидта.
3. Изучение спектральных свойств излучения оптических гармоник при воздействии на нелинейный кристалл широкополосного излучения вынужденного параметрического рассеяния с центральной длиной волны 1600 нм.
4. Экспериментальное исследование эффекта статистического выигрыша при генерации второй, третьей и четвёртой оптических гармоник в нелинейном кристалле при использовании флуктуирующего излучения ВПР в качестве накачки.

**Научная новизна** работы состоит в следующем:

1. Впервые получена генерация излучения вынужденного параметрического рассеяния в области аномальной дисперсии групповых скоростей кристалла ВВО с центральной длиной волны 1600 нм и высоким коэффициентом параметрического усиления (до 11.5), частотно-угловые спектры которого имеют кольцевую форму.

2. Впервые в нелинейном кристалле наблюдалась генерация третьей и четвертой оптических гармоник от широкополосного излучения вынужденного параметрического рассеяния; экспериментально продемонстрировано наличие когерентного вклада в спектрах четвертой гармоники и его отсутствие в спектре третьей гармоники.
3. Обнаружено, что увеличение коэффициента параметрического усиления при генерации ВПР приводит к увеличению спектральной ширины когерентного вклада в спектре второй гармоники.
4. Впервые предложен экспериментальный метод определения числа мод Шмидта излучения параметрического рассеяния, основанный на измерении отношения спектральной ширины некогерентного и когерентного вкладов в спектре второй гармоники излучения параметрического рассеяния.
5. Впервые продемонстрирован эффект статистического выигрыша при генерации второй, третьей и четвертой оптических гармоник в нелинейном кристалле от одномодового и многомодового излучения вынужденного параметрического рассеяния.

**Достоверность** результатов обусловлена повторяемостью и хорошей воспроизводимостью экспериментальных данных, полученных с использованием современного лабораторного оборудования, применением современных теоретических представлений при описании изучаемых эффектов, хорошим согласием полученных экспериментальных и теоретических результатов, а также публикацией результатов в рецензируемых научных журналах.

**Практическая значимость** работы заключается в исследовании нелинейно-оптических эффектов при использовании флуктуирующего неклассического излучения накачки; результаты диссертационной работы в дальнейшем могут найти своё применение в задачах нелинейной корреляционной спектроскопии. В частности, эффект статистического выигрыша, получаемый при генерации оптических гармоник от излучения ВПР, может быть использован для увеличения нелинейного сигнала в конфокальной микроскопии при изучении микроструктур и молекул, чувствительных к падающей мощности излучения накачки.

**Основные положения**, выносимые на защиту

1. Генерация суммарной частоты при вынужденном параметрическом рассеянии приводит к уменьшению флуктуаций интенсивности излучения вынужденного параметрического рассеяния.
2. Когерентный и некогерентный вклады в спектрах оптических чётных гармоник от излучения параметрического рассеяния обусловлены нелинейно-оптическим взаимодействием одинаковых и различных мод Шмидта, соответственно.

3. При генерации второй гармоники от широкополосного частотно-вырожденного коллинеарного излучения параметрического рассеяния отношение спектральных ширин некогерентного вклада к когерентному вкладу второй гармоники равно числу мод Шмидта излучения параметрического рассеяния.
4. Статистический выигрыш при генерации второй, третьей и четвёртой оптических гармоник от излучения вынужденного параметрического рассеяния в прозрачных нелинейных кристаллах равен значению нормированной корреляционной функции второго, третьего и четвёртого порядка излучения вынужденного параметрического рассеяния, соответственно.

### **Личный вклад автора**

Все результаты диссертационной работы, как экспериментальные, так и теоретические, получены автором лично или при его непосредственном участии. Автор активно участвовал в подготовке публикаций в рецензируемых научных изданиях, а также представлял результаты работы на международных конференциях.

**Апробация** результатов работы проводилась на международных конференциях:

- DPG-Frühjahrstagung (Ганновер, Германия, 29 февраля – 4 марта 2016 г.),
- SPIE Optics and Optoelectronics (Прага, Чехия, 24-27 апреля 2017 г.),
- CLEO/Europe-EQEC 2017 (Мюнхен, Германия, 25-29 июня 2017 г.),
- 18th International Conference on Laser Optics “ICLO 2018” (Санкт-Петербург, Россия, 4-8 июня 2018 г.),
- “Science and Progress 2018” (Санкт-Петербург, Россия, 12-14 ноября 2018 г.),

а также на семинарах кафедры квантовой электроники физического факультета МГУ им. М.В. Ломоносова. Результаты, представленные в диссертационной работе, являются оригинальными и опубликованы в трех печатных работах в рецензируемых научных журналах, индексируемых Web of Science.

### **Структура и объем работы**

Диссертационная работа состоит из введения, четырёх глав, заключения и списка цитируемой литературы. Объем работы составляет 133 страницы, включая 36 рисунков и 2 таблицы. Список цитируемой литературы содержит 165 наименований и 6 авторских публикаций, из которых 3 опубликованы в журналах, индексируемых Web of Science.

## Содержание работы

**Первая глава** содержит обзор литературы по теме диссертационной работы и состоит из двух частей. В первой части рассматриваются нелинейно-оптические эффекты преобразования частоты в рамках классической оптики: генерация оптических гармоник от сфокусированных пучков и эффект параметрического усиления. Отдельное внимание уделено работам по исследованию эффекта статистического выигрыша. В рамках диссертационной работы статистическим выигрышем  $\eta_n$  называется рост средней интенсивности  $n$ -ой гармоники  $\langle I_{n\omega, f} \rangle$  за счет наличия флуктуаций интенсивности излучения накачки по сравнению со средней интенсивностью  $n$ -ой гармоники  $\langle I_{n\omega, c} \rangle$  от когерентного излучения такой же средней интенсивности:  $\eta_n = \langle I_{n\omega, f} \rangle / \langle I_{n\omega, c} \rangle$ .

Во второй части обзора литературы рассматриваются нелинейно-оптические эффекты, связанные с квантовыми свойствами излучения, основные теоретические методы описания нелинейно-оптических процессов в рамках квантовой механики. Представлены два метода описания генерации излучения параметрического рассеяния: приближение плоской монохроматической волны накачки и формализм мод Шмидта. Проведён обзор экспериментальных и теоретических работ, посвященных нелинейно-оптическим процессам с участием излучения параметрического рассеяния.

**Вторая глава** диссертационной работы содержит экспериментальные результаты по генерации излучения вынужденного параметрического рассеяния с центральной длиной волны 1600 нм в кристалле бета бората бария (ВВО) от излучения титан-сапфирового лазера: центральная длина волны 800 нм, длительность импульса 1.6 фс, частота повторения импульсов 5 кГц, максимальная энергия импульса 500 мкДж.

На рисунке 1(а, б) представлены экспериментальные частотно-угловые спектры излучения ВПР для двух разных углов распространения излучения накачки относительно оптической оси кристалла ВВО:  $19.87^\circ$  и  $19.98^\circ$ , которые соответствуют частотно-вырожденному коллинеарному фазовому синхронизму ВПР и частотно-невырожденному неколлинеарному фазовому синхронизму ВПР, соответственно. Спектры измерялись при энергии импульса накачки 220 мкДж. Как видно на рисунке 1(а, б), спектр ВПР является ограниченным как по углу, так и по длинам волн, что обусловлено аномальной дисперсией групповой скорости кристалла ВВО на длине волны 1600 нм. На рисунке 1(в, г) представлен теоретический спектр ВПР, рассчитанный для углов  $19.87^\circ$  и  $19.98^\circ$  с использованием формализма плоской монохроматической волны накачки [20].

Для частотно-вырожденного режима ПР в коллинеарном направлении для узкого диапазона длин волн ( $1600 \pm 5$ ) нм была измерена зависимость интенсивности излучения параметрического рассеяния от энергии импульса накачки (рисунки 2(а)). Первые шесть точек зависимости аппроксимировались выражением  $\langle N \rangle = A \operatorname{sh}^2(B\sqrt{T})$ , что позволило экспериментально определить коэффициент

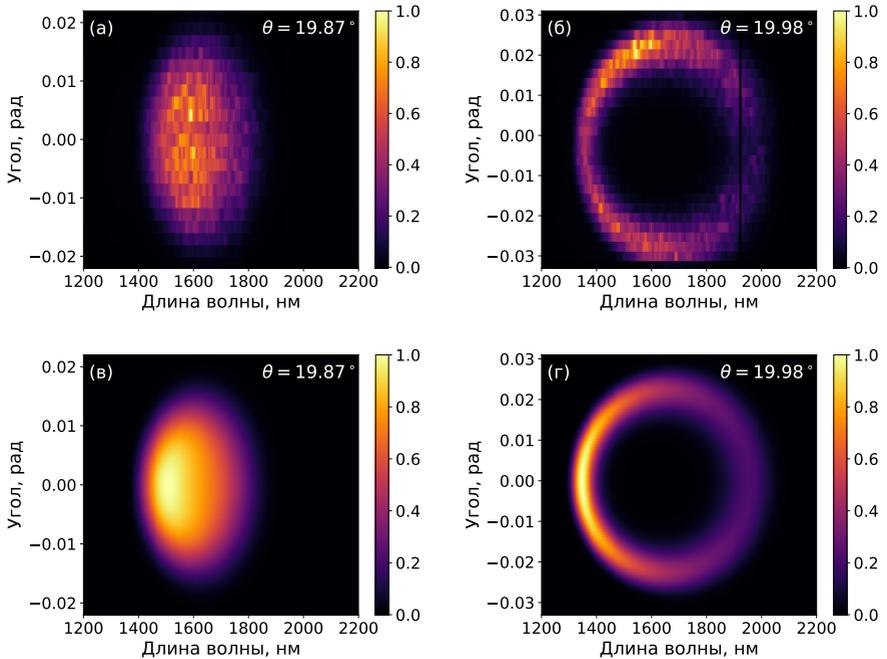


Рис. 1: Экспериментальные (а, б) и теоретические (в, г) частотно-угловые спектры излучения ВПР для коэффициента параметрического усиления  $g = 11.5$  для углов фазового синхронизма (а, в)  $\theta = 19.87^\circ$  и (б, г)  $\theta = 19.98^\circ$  в кристалле ВВО.

параметрического усиления  $\Gamma = B\sqrt{I}$ . Для энергии импульса накачки 220 мкДж коэффициент параметрического усиления составил 11.5.

При энергии импульса накачки большей 220 мкДж экспериментальная зависимость отклоняется вниз от теории, и говорить о величине коэффициента параметрического усиления становится некорректно. Отклонение теоретической зависимости от экспериментальной вызвано, в том числе, каскадными нелинейно-оптическими процессами, возникающими при генерации ВПР. Так, при генерации ВПР было экспериментально обнаружено излучение видимого диапазона в окрестности длин волн 533 нм и 800 нм. Соответствующие частотно-угловые спектры видимого излучения представлены в диссертационной работе. Излучение с полупорной частотой накачки (533 нм) было интерпретировано как излучение параметрического усиления при низкочастотной накачке [33]. Излучение с центральной длиной волны 800 нм было интерпретировано как излучение каскадной генерации суммарной частоты от излучения ВПР. Схематичное изображение процессов, проходящих в нелинейном кристалле при генерации излучения ВПР, представлено на рисунке 2(б).

Излучение ВПР, изученное в данной главе, использовалось в последующих главах в качестве излучения накачки для генерации оптических гармоник. Как

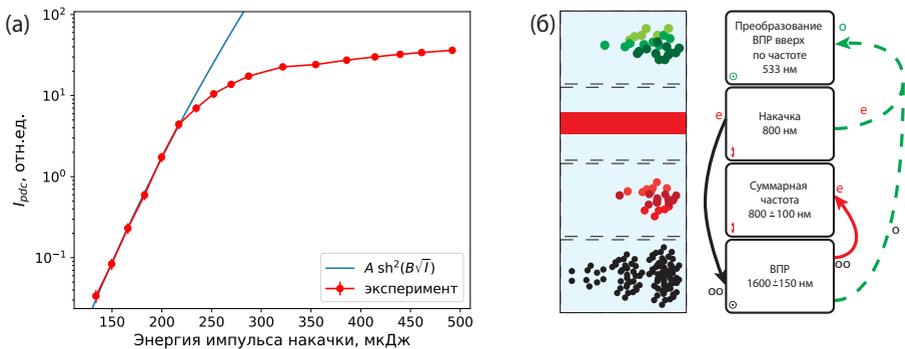


Рис. 2: (а) Экспериментальная зависимость интенсивности ВПР для частотно-вырожденной коллинеарной моды от средней мощности накачки (красные точки) при угле синхронизма  $\theta = 19.87^\circ$ . Синяя линия соответствует аппроксимации первых шести экспериментальных точек зависимостью  $A \text{sh}^2(B\sqrt{T})$ . (б) Схема нелинейно-оптических процессов второго порядка, возникающих при генерации ВПР в кристалле ВВО.

показано в главе 4, наличие сопутствующих нелинейно-оптических процессов ограничивает не только эффективность генерации ВПР, но и изменяет его корреляционные свойства.

**Третья глава** диссертационной работы содержит результаты по генерации оптических гармоник от широкополосного излучения параметрического рассеяния.

В первой части третьей главы представлен оригинальный подход по расчёту спектров второй, третьей и четвёртой гармоник от сфокусированного излучения параметрического рассеяния с использованием формализма мод Шмидта [34]. Генерация оптических гармоник описывалась в приближении заданной волны накачки [35]. Ранее генерация оптических гармоник описывалась для излучения параметрического рассеяния с узким спектром накачки [20; 35; 36]. Для спектров второй, третьей и четвёртой гармоник от излучения ПР были получены аналитические выражения, справедливые как для излучения спонтанного, так и для вынужденного параметрического рассеяния. Представленный метод также позволяет учитывать частотно-зависимые потери в излучении ПР, дисперсионное расплывание волновых пакетов излучения ПР и фазу Гуи, возникающую при фокусировки излучения накачки в нелинейную среду.

В диссертационной работе проведён анализ теоретических спектров оптических гармоник от излучения ПР с центральной длиной волны 1600 нм. При моделировании использовались параметр: длительность импульса накачки 1.2 пс и кристалл ВВО длиной 1 см. С использованием разработанного подхода показано, что спектры чётных гармоник от излучения ПР состоят из двух вкладов: узкого когерентного и широкого некогерентного, что согласуется с результатами работ [20; 35; 36]. Показано, что когерентные вклады возникают за счёт взаимодействия мод Шмидта самих с собой, то есть при взаимодействии кор-

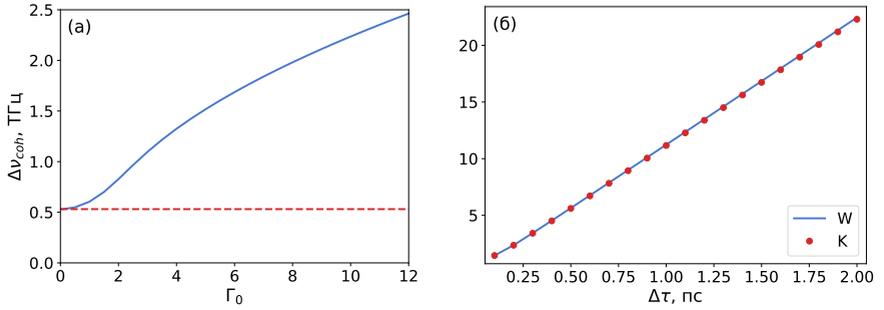


Рис. 3: (а) Зависимость спектральной ширины когерентного вклада от коэффициента параметрического усиления  $\Gamma_0$ . Красной пунктирной линией обозначена спектральная ширина излучения накачки. (б) Теоретическая зависимость числа мод Шмидта  $K$  и параметра  $W$  от длительности импульса излучения накачки  $\Delta\tau$ .

релированных фотонов. Некогерентный вклад, в свою очередь, возникает при взаимодействии разных мод Шмидта, то есть нескоррелированных фотонов. Отсутствие когерентного пика в спектрах нечётных гармоник обусловлено тем, что как минимум один из участвующих в нелинейно-оптическом процессе фотонов будет некоррелирован с остальными.

Использование формализма мод Шмидта для описания излучения ПР, в отличие от подходов [20; 35; 36], позволяет изучать влияние конечной спектральной ширины корреляций на спектры оптических гармоник. В диссертационной работе показано, что во-первых, при увеличении коэффициента  $\Gamma_0$  ширина когерентного вклада в спектре второй гармоники увеличивается (рисунок 3(а)), что связано с уменьшением числа мод Шмидта. Ранее, например в работе [37], когерентный пик в спектре второй гармоники интерпретировался как способ реконструкции излучения накачки. Для СПР при  $\Gamma_0 \rightarrow 0$  ширина когерентного вклада соответствует спектральной ширине излучения накачки ПР, однако в режиме ВПР спектральная ширина когерентного пика больше спектральной ширины накачки.

Во-вторых, в диссертационной работе показано, что отношение ширин некогерентного к когерентному вкладов в спектре второй гармоники  $W = \Delta\nu_{incoh}/\Delta\nu_{coh}$  пропорционально числу мод Шмидта  $K$  излучения ВПР, что было проверено путем численного моделирования спектров второй гармоники путем изменения длительности импульса накачки для ВПР. Результаты расчёта приведены на рисунке 3(б). Соответственно, из спектра второй гармоники от ПР можно определить число мод Шмидта излучения ПР, что является аналогом метода определения числа мод Шмидта, рассмотренного в разделе [38].

В главе 3 представлены также экспериментальные результаты по генерации второй, третьей и четвёртой гармоник от многомодового широкополосного излучения ВПР, частотно-угловые спектры которого изучались в главе 2. На рисунке 4(а) представлена схема экспериментальной установки. При изучении генерации оптических гармоник использовалось излучение ВПР, соответствующее

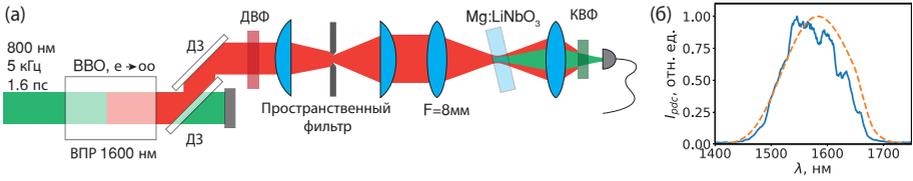


Рис. 4: (а) экспериментальная установка по генерации суммарной частоты от многомодового излучения параметрического рассеяния. (б) экспериментальный (синяя сплошная линия) и теоретический (оранжевый пунктир) спектры излучения ВПП.

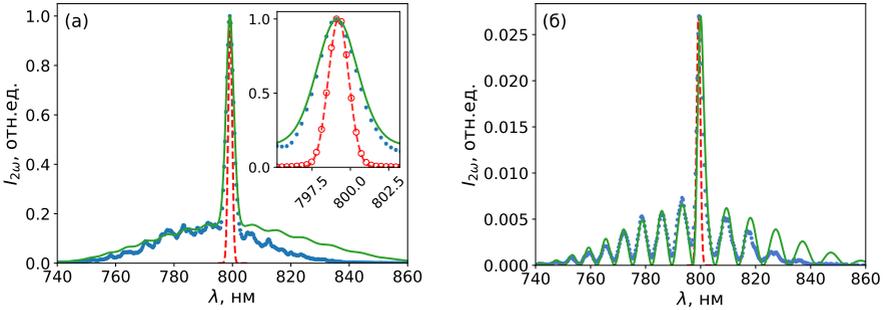


Рис. 5: Спектр излучения второй гармоники при фокусировке (а) на переднюю грань кристалла Mg:LiNbO<sub>3</sub>, (б) в центр кристалла Mg:LiNbO<sub>3</sub>. Синими точками представлены экспериментальные спектры, зеленые сплошные линии соответствуют теоретическому спектру, красные точки – экспериментальный спектр излучения накачки, красная пунктирная линия – аппроксимация экспериментального спектра накачки.

частотно-вырожденному фазовому синхронизму с коэффициентом параметрического усиления  $\Gamma_0 = 10.5$ . Фильтра пространственных частот был необходим для выделения коллинеарной моды излучения ВПП, которое затем фокусировалось линзой с фокусным расстоянием 8 мм на кристалл Mg:LiNbO<sub>3</sub> длиной 1 мм. Таким образом, размер пучка в перетяжке составляет  $2w_0 \approx 6$  мкм, а конфокальный параметр  $b \approx 40$  мкм. Оптическая ось кристалла Mg:LiNbO<sub>3</sub> была параллельна поверхности. Поляризация излучения ВПП и оптических гармоник была параллельна оси кристалла, так что в кристалле Mg:LiNbO<sub>3</sub> происходило нелинейно-оптическое взаимодействие необыкновенных волн  $e \rightarrow ee$  за счёт использования эффективной нелинейной восприимчивостью  $\chi^{(2)} = 2d_{33} \approx 60$  пм/В.

На рисунке 5 представлены экспериментальные и теоретические спектры интенсивности второй гармоники при фокусировке излучения ВПП (а) на поверхность и (б) в центр нелинейного кристалла. Спектры второй гармоники были рассчитаны с учётом особенностей фокусировки излучения ПР, а также с использованием дисперсионных зависимостей для кристалла Mg:LiNbO<sub>3</sub>. Как видно из графиков, положение перетяжки накачки влияет как на интенсивность второй гармоники, так и на форму спектра. В обоих случаях можно выделить узкий пик в области 800 нм, соответствующий когерентному вкладу, и широкий фоновый

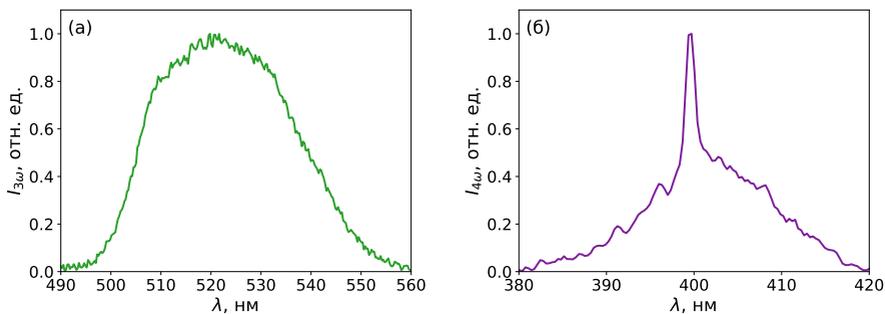


Рис. 6: Спектр (а) третьей и (б) четвертой оптических гармоник при фокусировке широкополосного излучения ВПР на поверхность кристалла  $\text{Mg:LiNbO}_3$ .

сигнал, соответствующий некогерентному. При фокусировке излучения ВПР на поверхность кристалла осцилляции, наблюдаемые при фокусировке излучения ВПР в объеме среды и являющиеся аналогом мейкеровских биений в частотном диапазоне, пропадают, как в эксперименте, так и в теории. В соответствии с методом определения числа мод Шмидта по спектру второй гармоники для излучения ВПР, полученного в эксперименте число мод Шмидта  $K_{exp} = 12.7$ .

Одним из преимуществ, связанных с фокусировкой излучения накачки на поверхность нелинейной среды, является возможность наблюдения высших оптических гармоник: в данной работе проводилось измерение третьей ( $e \rightarrow eee$ ) и четвертой гармоник ( $e \rightarrow eeee$ ) от излучения ВПР. Экспериментальные спектры третьей и четвертой гармоник представлены на рисунке 6(а, б). В отличие от второй и четвертой гармоник в спектре третьей гармоники не наблюдается когерентного пика.

**Четвёртая глава** диссертационной работы содержит результаты по изучению эффекта статистического выигрыша при генерации оптических гармоник от излучения ВПР. При генерации оптической гармоники  $n$ -ого порядка в прозрачных нелинейных кристаллах теоретическое значение статистического выигрыша равно нормированной корреляционной функции  $n$ -ого порядка:  $\eta_n = g^{(n)}(0)$ . Для когерентного излучения, теплового и излучения ВПР нормированные корреляционные функции  $n$ -ого порядка равны  $g^{(n)}(0) = 1$ ,  $g^{(n)}(0) = n!$  и  $g^{(n)}(0) = (2n - 1)!!$ , соответственно.

Для экспериментального измерения статистического выигрыша в нелинейно-оптических процессах необходимо уметь контролируемым образом изменять и измерять статистику излучения накачки. В первой части четвертой главы рассмотрены экспериментальные методы измерения нормированных корреляционных функций импульсного излучения ВПР и управления статистикой излучения ВПР. Во второй части четвертой главы представлена схема экспериментальной установки и экспериментальные результаты.

Для экспериментального изучения эффекта статистического выигрыша использовалось излучение ВПР, частотно-угловые спектры которого представлены

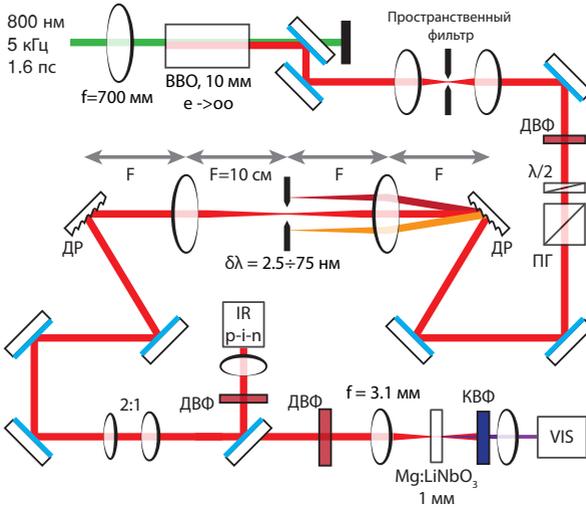


Рис. 7: Схема экспериментальной установки по изучению статистического выигрыша. Подробное описание представлено в основном тексте. Используются следующие обозначения: ДР – дифракционная решетка, ПГ – призма Глана-Тейлора, ДВФ – длинноволновые фильтры, пропускающие излучение с длинами волн большими 1200 нм, КВФ – коротковолновые фильтры (для каждой гармоники использовался свой набор фильтров.), IR p-i-n – инфракрасный детектор, VIS – детектор видимого диапазона.

в главе 2. В качестве накачки для ВПР использовалось излучение титан-сапфирового лазера с центральной длиной волны 800 нм, длительностью импульса 1.6 фс и частотой повторения импульсов 5 кГц. В кристалле ВВО происходила генерация излучения ВПР с центральной длиной волны 1600 нм, шириной спектра 150 нм и длительностью импульса, сравнимой с длительностью излучения накачки.

Для детектирования излучения ВПР ближнего ИК диапазона использовался InGaAs фотодиод (Hamamatsu G12180-020A) с квантовой эффективностью 85% на длине волны 1600 нм. Детектор был синхронизирован с лазером накачки и позволял измерять энергию отдельного импульса излучения ВПР. Измерив энергию  $N$  последовательных импульсов, получался набор значений  $\{I_j\}$ , который использовался для расчёта средней энергии за импульс и нормированной корреляционной функции  $g_m^{(n)}$  по формуле

$$g_m^{(n)} = \frac{1}{\langle I \rangle^n} \sum_j I_j^n. \quad (1)$$

Корректное измерение нормированной корреляционной функции таким методом возможно только в режиме одномодового детектирования, который реализуется если длительность измеряемого импульса порядка времени когерентности  $\tau_{pulse} \lesssim \tau_{coh}$ . Аналогичным образом измерялся и сигнал  $n$ -ой оптической гармоники  $\{I_j\}_{nw}$ .

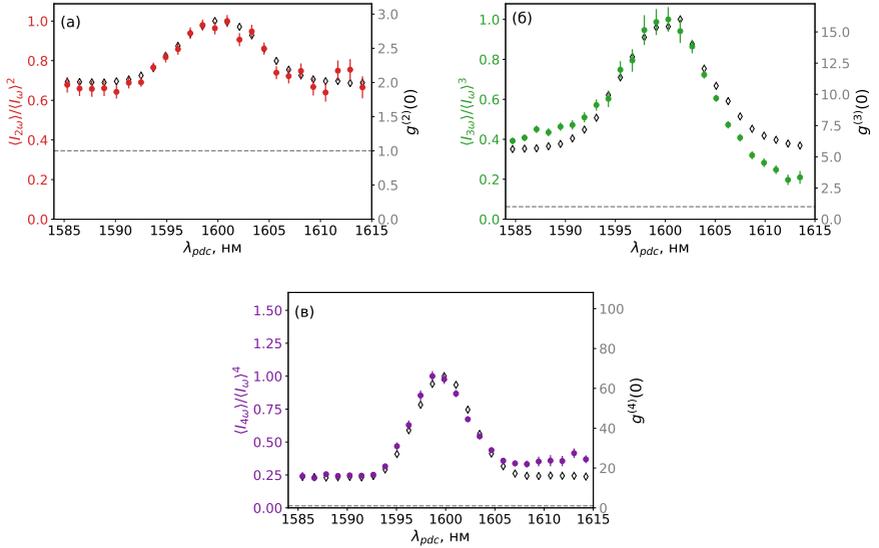


Рис. 8: Зависимость нормированной интенсивности (а) второй, (б) третьей и (в) четвертой гармоник от длины волны ВПР, а также измеренные величины  $g_m^{(n)}(\lambda)$ .

Излучение ВПР является в общем случае многомодовым, соответственно для выделения одной моды излучения необходима пространственная и частотная фильтрация исходного излучения ВПР. В экспериментальной установке, изображенной на рисунке 7, для получения одномодового излучения ВПР был собран пространственный фильтр, состоящий из линзы с фокусным расстоянием 20 см и вертикальной щели с шириной 50 мкм. Прошедшее излучение коллимировалось цилиндрической линзой. Пространственное положение щели соответствовало коллинеарному режиму генерации ВПР. Для выделения одной частотной моды излучения был собран частотный фильтр, представляющий собой двойной монохроматор с вычитанием дисперсии, состоящий из двух дифракционных решеток, двух сферических линз с фокусным расстоянием 10 см и щели с настраиваемой шириной, позволяющей получать излучение ВПР со спектральной шириной в диапазоне от 2.5 нм до 75 нм.

Особенностью излучения ВПР является корреляция между разными спектральными компонентами, поэтому выделение узкого спектрального диапазона в общем случае разрушает такую корреляцию, за исключением частотно-вырожденной коллинеарной моды, для которой  $g^{(n)}(0) = 3$ , тогда как при отстройке от неё  $g^{(n)}(0) = 2$ . Таким образом изменение центральной частоты одномодового излучения ВПР позволяет изменять величину  $g^{(n)}(0)$ . На рисунке 8 представлена зависимость средней интенсивности оптических гармоник, нормированных на среднюю интенсивность накачки  $\langle I_{n\omega} \rangle / \langle I_{\omega} \rangle^n$ . Видно, что при изменении дли-

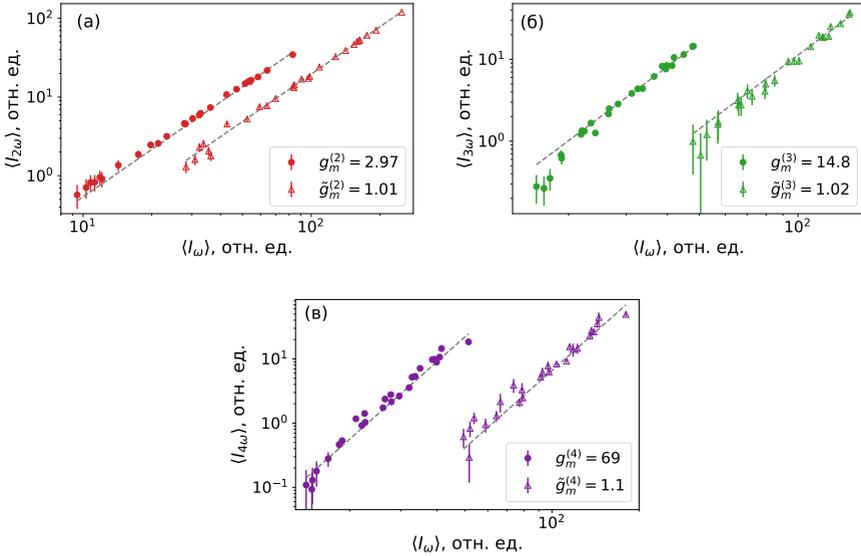


Рис. 9: Зависимость интенсивности (а) второй, (б) третьей и (в) четвертой гармоник от интенсивности излучения накачки при использовании частотно-вырожденной моды ВПР, а также от псевдо-когерентной статистики, полученной методом постселекции.

ны волны излучения ВПР интенсивность второй гармоники повторяет поведение  $g_m^{(2)}(\lambda)$ , третьей гармоники –  $g_m^{(3)}(\lambda)$  и четвертой гармоники  $g_m^{(4)}(\lambda)$ .

Вторым методом изменения статистики излучения ВПР, применённый в диссертационной работе, является метод постселекции, заключающийся в том, что для расчета средних значений используется лишь некоторая выборка из экспериментальных наборов  $\{I_j\}_\omega$  и  $\{I_j\}_{2\omega}$ . Например, можно провести выборку значений из набора  $\{I_j\}_\omega$ , которые попадают в некоторый наперед заданный интервал интенсивности накачки и соответствующие им значения из набора  $\{I_j\}_{2\omega}$ . В итоге получается два новых набора данных  $\{\tilde{I}_j\}_\omega$  и  $\{\tilde{I}_j\}_{2\omega}$ , для которых таким же образом можно определить средние значения энергии излучения накачки и  $\langle \tilde{I}_\omega \rangle$  и гармоники  $\langle \tilde{I}_{2\omega} \rangle$ , а также величину нормированной корреляционной функции  $\tilde{g}_m^{(2)}$ . В общем случае  $\tilde{g}_m^{(2)} \leq g_m^{(2)}$ , таким образом, выбирая достаточно узкий интервал значений при постселекции, можно получить псевдо-когерентную статистику с  $\tilde{g}_m^{(2)} \approx 1$ .

На рисунке 9 представлены зависимости средней интенсивности второй, третьей и четвёртой оптических гармоник от средней интенсивности частотно-вырожденной моды излучения ВПР до и после постселекции. Результаты измерения статистического выигрыша  $\eta_m$  для второй, третьей и четвёртой гармоник составили  $2.86 \pm 0.08$ ,  $13.6 \pm 0.8$  и  $71 \pm 6$ , соответственно.

Третий метод управления статистикой излучения заключается в уменьшении флуктуаций интенсивности за счет нелинейного поглотителя. При прохождении

флуктуирующего излучения через такую среду эффективность поглощения тем больше, чем больше мгновенная интенсивность поля, и как следствие происходит уменьшение амплитуды флуктуаций. Данный метод позволяет подавлять не только флуктуации от импульса к импульсу, но и уменьшать амплитуду внутриимпульсных флуктуаций, что было использовано при изучении статистического выигрыша от многомодового излучения ВПР. Для экспериментального изучения влияния внутриимпульсных флуктуаций на генерацию оптических гармоник использовалось излучение ВПР со спектральной шириной  $\sim 75$  нм и центральной длиной волны 1600 нм. Таким образом, время когерентности такого излучения  $\tau_{coh} \sim 80$  фс, тогда как длительность импульса  $\tau_{pulse} \sim 1.6$  пс. Для второй, третьей и четвертой гармоник многомодового излучения ВПР статистический выигрыш составил  $3.1 \pm 0.1$ ,  $15.2 \pm 0.8$  и  $102 \pm 7$ , соответственно.

## Заключение

**Основные результаты** диссертационной работы заключаются в следующем:

1. В кристалле ВВО в области аномальной дисперсии групповых скоростей получена генерация излучения ВПР с центральной длиной волны 1600 нм со спектральной шириной излучения ВПР  $\sim 200$  нм и коэффициентом параметрического усиления до 11.5. Показано, что при генерации ВПР с коэффициентом параметрического усиления большим 11.5 возникает генерация суммарной частоты, уменьшающая флуктуации интенсивности излучения ВПР, что приводит к уменьшению нормированной корреляционной функции излучения ВПР  $g^{(2)}(0)$  от  $2.97 \pm 0.06$  до  $1.55 \pm 0.05$ ,  $g^{(3)}(0)$  от  $14.8 \pm 0.6$  до  $3.5 \pm 0.2$  и  $g^{(4)}(0)$  от  $108 \pm 9$  до  $7.1 \pm 0.5$ .
2. Развита описание спектров излучения второй, третьей и четвертой оптических гармоник от широкополосного многомодового излучения параметрического рассеяния, основанное на формализме мод Шмидта, учитывающее влияние конечной ширины корреляций и фокусировки излучения ПР в нелинейную среду. С использованием данного метода показано, что увеличение коэффициента параметрического усиления приводит к уширению спектра когерентного вклада второй гармоники излучения ВПР за счёт уменьшения числа мод Шмидта, что также продемонстрировано в эксперименте. Показано, что отношение спектральных ширин некогерентного и когерентного вкладов равняется числу мод Шмидта, что может быть использовано в качестве экспериментального метода по определению числа мод Шмидта.
3. Экспериментально изучены спектры излучения второй, третьей и четвертой оптических гармоник в кристалле  $\text{Mg}:\text{LiNbO}_3$  от широкополосного излучения ВПР с центральной длиной волны 1600 нм; продемонстрировано наличие когерентного вклада в спектрах четных гармоник и его отсутствие

в спектре нечетных. В отсутствие фазового синхронизма в спектре второй гармоники наблюдаются спектральные осцилляции, являющиеся аналогом мейкеровских биений, при этом осцилляции подавлены при фокусировке излучения накачки на поверхность нелинейного кристалла.

4. При генерации второй, третьей и четвертой оптических гармоник от излучения ВПР экспериментально получен эффект статистического выигрыша как для одномодового, так и для многомодового излучения ВПР. Для второй, третьей и четвертой гармоник одномодового излучения ВПР со спектральной шириной 3.3 нм по сравнению с когерентным излучением статистический выигрыш составил  $2.86 \pm 0.08$ ,  $13.6 \pm 0.8$  и  $71 \pm 6$ , соответственно. Для второй, третьей и четвертой гармоник для многомодового излучения ВПР со спектральной шириной 75 нм статистический выигрыш составил  $3.1 \pm 0.1$ ,  $15.2 \pm 0.8$  и  $102 \pm 7$ , соответственно.

## Список публикаций по теме диссертации

### Публикации в журналах, индексируемых Web of Science

- 1 *K.Yu. Spasibko, D.A. Kopylov, T.V. Murzina, G. Leuchs, M.V. Chekhova*, Ring-shaped spectra of parametric downconversion and entangled photons that never meet // *Optics Letters* – 2016 – Vol. 41, no. 12 – P. 2827 (Impact Factor: 3.866)
- 2 *K.Yu. Spasibko, D.A. Kopylov, V.L. Krutyanskiy T.V. Murzina, G. Leuchs, M.V. Chekhova*, Multiphoton effects enhanced due to ultrafast photon-number fluctuations // *Physical Review Letters* – 2017 – Vol. 119, no. 22 – P. 223603 (Impact Factor: 9.227)
- 3 *D.A. Kopylov, K.Yu. Spasibko, T.V. Murzina, M.V. Chekhova*, Study of broadband multimode light via non-phase-matched sum frequency generation // *New Journal of Physics* – 2019 – Vol. 21, no. 3 – P. 033024 (Impact Factor: 3.773)

### Публикации в сборниках трудов конференций

- 4 *D.A. Kopylov, K.Y. Spasibko, V.L. Krutyanskiy, T.V. Murzina, G. Leuchs, M. V. Chekhova* Optical harmonic generation enhanced due to ultrafast intensity fluctuations (Conference Presentation) // *Proceedings SPIE. – Vol. 10228 Nonlinear Optics and Applications X* – 2017
- 5 *K.Y. Spasibko, D.A. Kopylov, V.L. Krutyanskiy, T.V. Murzina, G. Leuchs, M. V. Chekhova* Optical harmonic generation from bright squeezed vacuum // *2017 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe & European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC)* – 2017
- 6 *D.A. Kopylov, K.Yu. Spasibko, G. Leuchs, T.V. Murzina, M.V. Chekhova* Non-phaseshifted sum frequency generation from tightly focused high gain parametric down conversion // *2018 International Conference Laser Optics (ICLO)*. – 2018 – P.8

## Список литературы

1. *Клышко Д. Н.* Фотоны и нелинейная оптика. — Москва «Наука», 1980. — 259 с.
2. *Перина Я.* Квантовая статистика линейных и нелинейных оптических явлений. — Москва «Мир», 1987. — 368 с.
3. *Mandel L., Wolf E.* Optical Coherence and Quantum Optics. — Cambridge University Press, 1995. — 1194 pp.

4. *Клышко Д. Н.* Когерентный распад фотонов в нелинейной среде // Письма в ЖЭТФ. — 1967. — Т. 6, № 5. — С. 490—492.
5. *Harris S. E., Oshman M. K., Byer R. L.* Observation of Tunable Optical Parametric Fluorescence // *Physical Review Letters*. — 1967. — May. — Vol. 18, no. 18. — Pp. 732–734.
6. *Magde D., Mahr H.* Study in Ammonium Dihydrogen Phosphate of Spontaneous Parametric Interaction Tunable from 4400 to 16000 Å // *Physical Review Letters*. — 1967. — May. — Vol. 18, no. 21. — Pp. 905–907.
7. *Shih Y.* Entangled biphoton source - property and preparation // *Reports on Progress in Physics*. — 2003. — May. — Vol. 66, no. 6. — Pp. 1009–1044.
8. *Horodecki R., Horodecki P., Horodecki M., Horodecki K.* Quantum entanglement // *Reviews of Modern Physics*. — 2009. — June. — Vol. 81, no. 2. — Pp. 865–942.
9. *Mosley P. J., Lundeen J. S., Smith B. J., Wasylczyk P., U'Ren A. B., Silberhorn C., Walmsley I. A.* Heralded Generation of Ultrafast Single Photons in Pure Quantum States // *Physical Review Letters*. — 2008. — Apr. — Vol. 100, no. 13. — P. 133601.
10. *Georgiades N. P., Polzik E. S., Edamatsu K., Kimble H. J., Parkins A. S.* Nonclassical Excitation for Atoms in a Squeezed Vacuum // *Physical Review Letters*. — 1995. — Nov. — Vol. 75, no. 19. — Pp. 3426–3429.
11. *Dayan B., Pe'er A., Friesem A. A., Silberberg Y.* Nonlinear Interactions with an Ultrahigh Flux of Broadband Entangled Photons // *Physical Review Letters*. — 2005. — Feb. — Vol. 94, no. 4. — P. 043602.
12. *Pe'er A., Bromberg Y., Dayan B., Silberberg Y., Friesem A. A.* Broadband sum-frequency generation as an efficient two-photon detector for optical tomography // *Optics Express*. — 2007. — Vol. 15, no. 14. — Pp. 8760–8769.
13. *Schwarz S., Bessire B., Stefanov A., Liang Y.-C.* Bipartite Bell inequalities with three ternary-outcome measurements—from theory to experiments // *New Journal of Physics*. — 2016. — Feb. — Vol. 18, no. 3. — P. 035001.
14. *Iskhakov T. S., Pérez A. M., Spasibko K. Y., Chekhova M. V., Leuchs G.* Superbunched bright squeezed vacuum state // *Optics Letters*. — 2012. — May. — Vol. 37, no. 11. — Pp. 1919–1921.
15. *Walls D. F.* Squeezed states of light // *Nature*. — 1983. — Nov. — Vol. 306, no. 5939. — Pp. 141–146.
16. *Chekhova M., Leuchs G., Żukowski M.* Bright squeezed vacuum: Entanglement of macroscopic light beams // *Optics Communications*. — 2015. — Feb. — Vol. 337. — Pp. 27–43.
17. *Janszky J., Yushin Y.* Many-photon processes with the participation of squeezed light // *Physical Review A*. — 1987. — Aug. — Vol. 36, no. 3. — Pp. 1288–1292.

18. *Boitier F., Godard A., Dubreuil N., Delaye P., Fabre C., Rosencher E.* Photon extrabunching in ultrabright twin beams measured by two-photon counting in a semiconductor // *Nature Communications*. — 2011. — Aug. — Vol. 2. — P. 425.
19. *Abram I., Raj R. K., Oudar J. L., Dolique G.* Direct Observation of the Second-Order Coherence of Parametrically Generated Light // *Physical Review Letters*. — 1986. — Nov. — Vol. 57, no. 20. — Pp. 2516–2519.
20. *Brambilla E., Jedrkiewicz O., Lugiato L. A., Gatti A.* Disclosing the spatiotemporal structure of parametric down-conversion entanglement through frequency up-conversion // *Physical Review A*. — 2012. — June. — Vol. 85, no. 6. — P. 063834.
21. *Jedrkiewicz O., Blanchet J.-L., Brambilla E., Trapani P. D., Gatti A.* Detection of the Ultranarrow Temporal Correlation of Twin Beams via Sum-Frequency Generation // *Physical Review Letters*. — 2012. — June. — Vol. 108, no. 25. — P. 253904.
22. *Allevi A., Jedrkiewicz O., Brambilla E., Gatti A., Peřina J., Haderka O., Bondani M.* Coherence properties of high-gain twin beams // *Physical Review A*. — 2014. — Dec. — Vol. 90, no. 6. — P. 063812.
23. *Raymer M. G., Marcus A. H., Widom J. R., Vitullo D. L. P.* Entangled Photon-Pair Two-Dimensional Fluorescence Spectroscopy (EPP-2DFS) // *The Journal of Physical Chemistry B*. — 2013. — Oct. — Vol. 117, no. 49. — Pp. 15559–15575.
24. *Dorfman K. E., Schlawin F., Mukamel S.* Nonlinear optical signals and spectroscopy with quantum light // *Reviews of Modern Physics*. — 2016. — Dec. — Vol. 88, no. 4. — P. 045008.
25. *Ахманов С. А., Дьяков Ю. Е., Чиркин А. С.* Введение в статистическую радиофизику и оптику. — Москва «Наука», 1981. — 640 с.
26. *Shen Y. R.* Quantum Statistics of Nonlinear Optics // *Physical Review*. — 1967. — Mar. — Vol. 155, no. 3. — Pp. 921–931.
27. *Agarwal G. S.* Field-Correlation Effects in Multiphoton Absorption Processes // *Physical Review A*. — 1970. — May. — Vol. 1, no. 5. — Pp. 1445–1459.
28. *Shiga F., Imamura S.* Experiment on relation between two-photon absorption and coherence of light // *Physics Letters A*. — 1967. — Nov. — Vol. 25, no. 10. — Pp. 706–707.
29. *Lecompte C., Mainfray G., Manus C., Sanchez F.* Laser temporal-coherence effects on multiphoton ionization processes // *Physical Review A*. — 1975. — Mar. — Vol. 11, no. 3. — Pp. 1009–1015.
30. *Qu Y., Singh S.* Second-harmonic generation and photon bunching in multimode laser beams // *Physical Review A*. — 1993. — Apr. — Vol. 47, no. 4. — Pp. 3259–3263.

31. *Qu Y., Singh S.* Measurements of photon statistics in second-harmonic generation // *Physical Review A*. — 1995. — Mar. — Vol. 51, no. 3. — Pp. 2530–2536.
32. *Jechow A., Seefeldt M., Kurzke H., Heuer A., Menzel R.* Enhanced two-photon excited fluorescence from imaging agents using true thermal light // *Nature Photonics*. — 2013. — Oct. — Vol. 7, no. 12. — Pp. 973–976.
33. *Ахманов С. А., Хохлов П. В.* Проблемы нелинейной оптики. — Москва, 1964. — 298 с.
34. *Sharapova P., Pérez A. M., Tikhonova O. V., Chekhova M. V.* Schmidt modes in the angular spectrum of bright squeezed vacuum // *Physical Review A*. — 2015. — Apr. — Vol. 91, no. 4. — P. 043816.
35. *Dayan B.* Theory of two-photon interactions with broadband down-converted light and entangled photons // *Physical Review A*. — 2007. — Oct. — Vol. 76, no. 4. — P. 043813.
36. *Масалов А. В.* Сжатый свет в процессах многофотонного взаимодействия // *Оптика и спектроскопия*. — 1991. — Т. 70, вып. 3, № 3. — С. 648–652.
37. *Jedrkiwicz O., Blanchet J.-L., Gatti A., Brambilla E., Trapani P. D.* High visibility pump reconstruction via ultra broadband sum frequency mixing of intense phase-conjugated twin beams // *Optics Express*. — 2011. — June. — Vol. 19, no. 14. — Pp. 12903–12912.
38. *Mikhailova Y. M., Volkov P. A., Fedorov M. V.* Biphoton wave packets in parametric down-conversion: Spectral and temporal structure and degree of entanglement // *Physical Review A*. — 2008. — Dec. — Vol. 78, no. 6. — P. 062327.