

УДК 543.42

ОБ ИЗМЕРЕНИИ ЗАТУХАНИЯ ПОЛЯРИТОНОВ ИЗ СПЕКТРОВ КОГЕРЕНТНОГО АНТИСТОКСОВА КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ СВЕТА

С. Н. Орлов, Ю. Н. Поливанов

Представлены результаты теоретического анализа влияния длины свободного пробега когерентных поляритонов и конечной ширины синхронизма для четырехфотонного процесса на форму и ширину линии КАРС на поляритонах. Показано, что эти факторы могут накладывать существенные ограничения на интервал возможных величин затуханий поляритонов, которые могут быть измерены из спектров КАРС.

В настоящее время спектроскопия когерентного антистоксова комбинационного рассеяния света (КАРС) активно используется для решения широкого круга как научных, так и прикладных задач. С помощью этой методики исследуются и фононные поляритоны [1 – 14], которые, согласно правилам отбора, активны в спектрах КАРС в кристаллах без центра симметрии.

Спектры КАРС на поляритонах характеризуются целым рядом особенностей в сравнении со спектрами рассеяния на неполярных возбуждениях среды. Эти особенности обусловлены, в частности, тем, что поляритоны обладают значительной дисперсией в центре зоны Бриллюэна и являются возбуждениями, способными распространяться в среде на макроскопические расстояния. Кроме этого, генерация КАРС сигнала в кристаллах без центра симметрии происходит как за счет двухступенчатых трехфотонных процессов, обусловленных квадратичной нелинейностью, так и за счет прямых четырехфотонных процессов, обусловленных кубичной нелинейностью. В результате, спектр КАРС зависит не только от затухания поляритонов, но и от относительных вкладов и спектральных ширин синхронизма прямых и каскадных процессов. Все это приводит к

определенным трудностям и требует особого внимания при извлечении информации о затухании поляритонов из спектров КАРС.

Настоящая работа посвящена теоретическому анализу спектров КАРС на поляритонах, направленному на определение условий, при которых из спектров КАРС можно извлекать информацию о затухании поляритонов. При анализе рассматриваются два основных фактора, влияющих на ширину линии КАРС: уширение, обусловленное распространением поляритонов, и ограничение ширины, обусловленное конечной шириной синхронизма для четырехфотонного взаимодействия.

Исходные соотношения. В процессе КАРС на поляритонах происходит возбуждение когерентной поляритонной волны $E_p(\omega, k)$ в поле двух падающих на кристалл волн $E_l(\omega_l, k_l)$ и $E_s(\omega_s, k_s)$ за счет квадратичной нелинейности кристалла $\chi^{(2)}(\omega = \omega_l - \omega_s)$ с последующим нелинейно-оптическим сложением частот когерентно-возбужденной поляритонной $E_p(\omega, k)$ и пробной $E_\pi(\omega_\pi, k_\pi)$ волн. Здесь ω_j и k_j – частоты и волновые вектора соответствующих волн E_j ; в дальнейшем будем считать, что $\omega_\pi = \omega_l$.

Поле когерентно-возбужденной поляритонной волны представляет собой суперпозицию вынужденной (с волновым вектором $k_l - k_s$) и свободной (с волновым вектором k_p) волн [15]:

$$E_p(\omega, k) = 4\pi \frac{\chi^{(2)}(\omega_p = \omega_l - \omega_s)}{\frac{k^2 c^2}{\omega^2} - \epsilon(\omega)} E_l E_s^* (e^{i(k_l - k_s)z} - e^{ik_p z}) e^{-i\omega t}, \quad (1)$$

где $k_p = k'_p + ik''_p = \sqrt{\epsilon(\omega)} = \sqrt{\epsilon'(\omega) + i\epsilon''(\omega)}$, $\omega = \omega_l - \omega_s$, $\Delta k'_p = k - k'_p \equiv k_l - k_s - k'_p$, $\epsilon(\omega)$ – комплексная диэлектрическая проницаемость кристалла. Заметим, что обычно при анализе спектров КАРС свободная поляритонная волна не учитывается, что исключает из рассмотрения влияние распространения поляритонов на спектры КАРС.

Уравнение для амплитуды антистоксовой волны на частоте ω_a в приближении заданных амплитуд плоских падающих волн имеет вид

$$\frac{\partial E_a}{\partial z} = \frac{2\pi i \omega_a^2}{c^2 k_a} [\chi^{(3)}(\omega_a = 2\omega_l - \omega_s) E_l E_\pi E_s^* e^{i\Delta k_a z} + \chi^{(2)}(\omega_a = 2\omega_l - \omega_s) E_\pi E_p e^{i(k_\pi + k_p - k_a)z}], \quad (2)$$

где $\chi^{(3)}$ – кубичная нелинейная восприимчивость, $\Delta k_a = k_l + k_\pi - k_s$, а $E_p(\omega, k)$ описывается выражением (1). Первое слагаемое в правой части описывает прямой четырехфотонный процесс, а второе – двухступенчатые (или каскадные) трехфотонные процессы. Далее, ради простоты, ограничимся рассмотрением спектральной области, в которой частота поляритона отстоит от дипольно-активных фононных резонансов на расстояние

в несколько ширин фотонных линий. В этой области $k_p'' \ll k_p'$, $\Delta k_p' \ll k_p'$ и при расчете можно также пренебречь мнимыми частями нелинейных восприимчивостей. При этих условиях из (2) получаем

$$\frac{|E_a|^2}{|E_l^2 E_s^*|^2} = |A_a|^2 L^2 \left| \eta \frac{e^{i\Delta k_a L} - 1}{\Delta k_a L} + \frac{1}{(\Delta k_p' - ik_p'')L} \left(\frac{e^{i\Delta k_a L} - 1}{\Delta k_a} - \frac{e^{i(\Delta k_a - \Delta k_p')L - k_p''L} - 1}{\Delta k_a - \Delta k_p' + ik_p''} \right) \right|^2, \quad (3)$$

где L - длина кристалла, $A_a = \frac{4\pi\omega_a^2\omega^2}{c^4 k_a k_p'} \chi^{(2)}(\omega_a = \omega_l + \omega) \chi^{(2)}(\omega = \omega_l - \omega_s)$, $\eta = \frac{c^2 k_p'}{2\pi\omega^2} \frac{\chi^{(3)}(\omega_a=2\omega_l-\omega_s)}{\chi^{(2)}(\omega_a=\omega_l+\omega)\chi^{(2)}(\omega=\omega_l-\omega_s)}$. Параметр η определяет относительные вклады прямых четырехфотонных и каскадных трехфотонных процессов в результирующий сигнал КАРС.

Выражение (3) позволяет выявить многие особенности спектров КАРС на поляритонах. В данной работе мы будем рассматривать k -спектр КАРС, т.е. зависимость интенсивности КАРС сигнала от фазовой расстройки $\Delta k_p'$ при заданной частоте ω в предположении, что вклад прямых четырехфотонных процессов пренебрежимо мал по сравнению с вкладом двухступенчатых трехфотонных процессов, т.е. $\eta = 0$. В этом случае k -спектр будет описываться, согласно (3), следующим выражением:

$$S(\Delta k_p') = \left| \frac{1}{(\Delta k_p' - ik_p'')L} \left(\frac{e^{i\Delta k_a L} - 1}{\Delta k_a} - \frac{e^{i(\Delta k_a - \Delta k_p')L - k_p''L} - 1}{\Delta k_a - \Delta k_p' + ik_p''} \right) \right|^2. \quad (4)$$

Форма и ширина линии k -спектров КАРС на поляритонах. При анализе k -спектров КАРС на поляритонах предположим для определенности, что поляритоны возбуждаются по коллинеарной схеме с геометрией взаимного расположения волновых векторов взаимодействующих волн, приведенной на рис. 1. Заметим, что k -спектры КАРС в анизотропном кристалле могут быть получены, например, путем регистрации КАРС сигнала при вращении исследуемого кристалла [6] (изменяя угол θ , т.е. $\Delta k_p' = \Delta k_p'(\theta)$), если одна из возбуждающих волн поляризована как необыкновенная.

Вначале рассмотрим вопрос о влиянии распространения поляритонов на спектры КАРС. Предположим, что в процессе записи k -спектра "поддерживается" условие $\Delta k_a = 0$. Из (4) следует, что в пределе слабого поглощения поляритонов ($k_p'' \ll 1$), т.е. когда длина свободного пробега когерентных поляритонов $L_p = 1/2k_p'' \equiv 1/\alpha_p$ много больше длины исследуемого кристалла ($L_p \gg L$), контур k -спектра КАРС описывается зависимостью

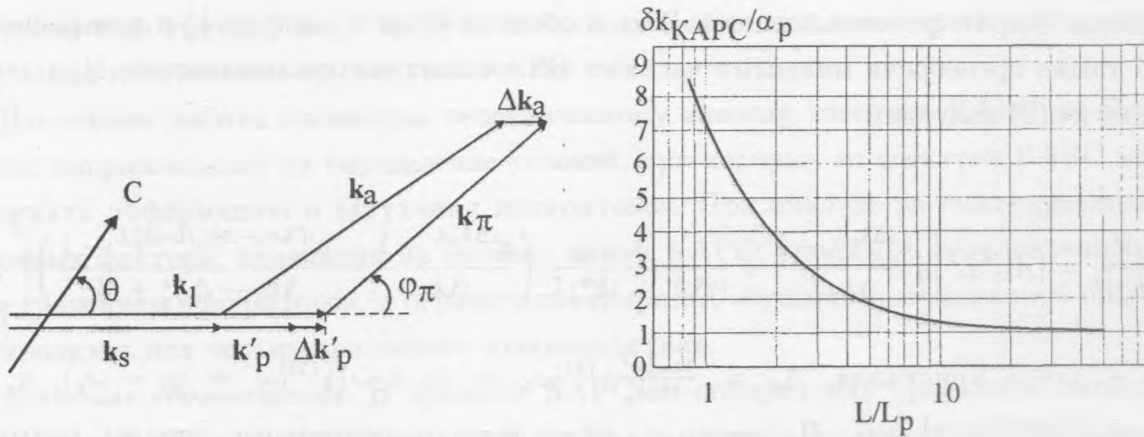


Рис. 1. Взаимное расположение волновых векторов взаимодействующих волн и оптической оси кристалла C при КАРС с возбуждением поляритонов в коллинеарной геометрии.

Рис. 2. Зависимость отношения ширины линии КАРС $\delta k_{\text{КАРС}}$ к затуханию поляритонов α_p от L/L_p .

$$S(\Delta k'_p, \alpha_p = 0) = (1 - 2 \sin c(\Delta k'_p L) + \sin^2 c(\Delta k'_p L/2)) / \Delta k_p'^2 \quad (5a)$$

и имеет полную ширину на полувысоте, равную

$$\delta k(\alpha_p = 0) \approx 6.954/L. \quad (5б)$$

В другом предельном случае, т.е. в случае очень сильного поглощения ($k_p'' L \gg 1$ или $L_p \ll L$), форма линии становится лоренцевой:

$$S(\Delta k'_p) = \frac{1}{\Delta k_p''^2 + k_p''^2} \quad (6)$$

с шириной линии

$$\delta k_p = 2k_p'' = \alpha_p.$$

Таким образом, в пределе сильного затухания поляритонов ($L_p \ll L$) ширина линии КАРС определяется поглощением поляритонов (6), тогда как при очень слабом затухании ($L_p \gg L$) ширина линии КАРС вообще не содержит, как следует из (5), информации о затухании поляритонов. В общем случае форма линии является промежуточной между лоренцевой (6) и описываемой формулой (4), а ширина линии зависит от величины $k_p'' L$,

т.е. от соотношения между длиной кристалла и длиной свободного пробега поляритонов. На рис. 2 приведена зависимость отношения ширины линии КАРС $\delta k_{КАРС}$ к затуханию поляритонов α_p от L/L_p , рассчитанная на основании формулы (4). Видно, например, что при $L = L_p$ ширина линии КАРС примерно в 7.3 раза больше, чем затухание поляритонов, и даже в этом случае практически невозможно определить затухание поляритонов из спектров КАРС. Уширение спектров КАРС, обусловленное распространением поляритонов, не превышает 10%, если $L > 22 \cdot L_p$ или $\alpha_p > 22/L$. Это условие можно записать и через ширину линии КАРС при нулевом затухании поляритонов, определяемую выражением (5а): $\alpha_p > 3.2 \cdot \delta k(\alpha_p = 0)$. Заметим, что значительное уширение спектров КАРС на поляритонах, обусловленное распространением поляритонов (точнее "выбеганием" поляритонов из области перекрытия взаимодействующих пучков при неколлинеарном возбуждении поляритонов) наблюдалось в эксперименте, описанном в работе [14]

Рассмотрим теперь вопрос о влиянии конечной ширины синхронизма для четырехволнового процесса, обусловленного изменением Δk_a в процессе сканирования $\Delta k'_p$. Допустим, что затухание поляритонов достаточно сильное (т.е. выполняется условие $L > 22 \cdot L_p$ и, следовательно, ширина линии КАРС определяет затухание поляритонов при $\Delta k_a = 0$) и точное выполнение условий синхронизма для трех- и четырехфотонных процессов ($\Delta k'_p = \Delta k_a = 0$) выполняется при одном и том же угле $\theta = \theta_c$ (что достигается выбором угла φ_π , см. рис. 1). В этом случае из (4) получаем

$$S(\Delta k'_p) = \frac{1}{\Delta k_p'^2 + k_p'^2} \cdot \sin^2 \frac{\Delta k_a L}{2}. \quad (7)$$

Видно, что если ширина синхронизма δk_a для четырехфотонного процесса, определяемая функцией $\text{sinc}^2(\Delta k_a L/2)$, является сопоставимой с α_p , то ширина линии КАРС $\delta k_{КАРС}$ становится меньше чем α_p и мы вновь сталкиваемся с проблемой правильного определения затухания поляритонов из спектров КАРС. На рис. 3 приведена расчетная зависимость отношения ширины линии КАРС к затуханию поляритонов $\delta k_{КАРС}/\alpha_p$ от отношения ширины синхронизма для четырехфотонного взаимодействия к затуханию поляритонов $\delta k_a/\alpha_p$. Из этой зависимости следует, что сужение линии КАРС не будет превышать 10% при условии, если $\delta k_a/\alpha_p > 2.3$.

Таким образом, объединяя ограничения, обусловленные распространением поляритонов и конечной шириной синхронизма для четырехфотонного взаимодействия, получаем, что ширина линии КАРС будет соответствовать затуханию поляритонов с точностью 10% только в том случае, если измеряемая величина затухания лежит в интервале

$0.43 \cdot \delta k_a > \alpha_p > 22/L = 3.2 \cdot \delta k(\alpha_p = 0)$. Величины δk_a и $\delta k(\alpha_p = 0)$ определяются показателями преломления кристалла на частотах взаимодействующих волн, а волновой вектор поляритонов может быть определен по положению максимума КАРС спектра. Это дает возможность провести оценку интервала для величины затухания поляритонов, при которых ширины линий КАРС дают правильную информацию о затухании поляритонов.

Рассмотрим конкретный пример КАРС на обыкновенных поляритонах симметрии E_1 верхней дисперсионной ветви с частотой 1237 см^{-1} кристалла $LiIO_3$ длиной $L = 1 \text{ см}$ при возбуждении спектров излучением второй гармоники $Nd:ИАГ$ -лазера ($\lambda_l = \lambda_\pi = 0.532 \text{ мкм}$) и излучением лазера с $\lambda_s = 0.5695 \text{ мкм}$ с использованием геометрии, приведенной на рис. 1. Условия синхронизма $\Delta k'_p = \Delta k_a = 0$ в кристалле $LiIO_3$ при указанной геометрии рассеяния выполняется при $\theta = \theta_c = 21.06^\circ$, $\varphi_\pi = 0^\circ$, когда волны E_l и E_a поляризованы как необыкновенные, а E_s и E_π – как обыкновенные. Необходимые параметры кристалла $LiIO_3$ взяты из [16].

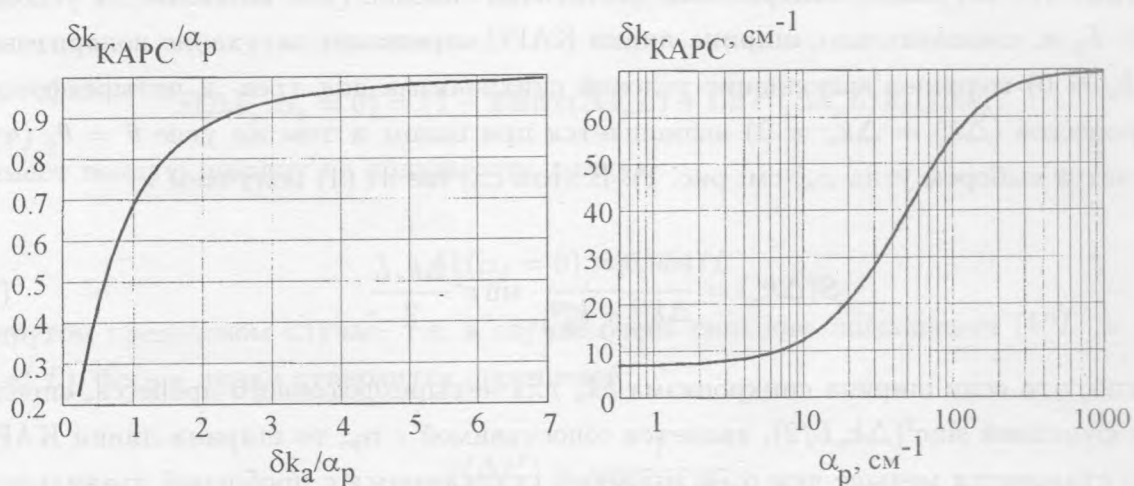


Рис. 3. Зависимость отношения ширины линии КАРС к затуханию поляритонов $\delta k_{КАРС}/\alpha_p$ от отношения ширины синхронизма для четырехфотонного взаимодействия к затуханию поляритонов $\delta k_a/\alpha_p$.

Рис. 4. Зависимость ширины линии КАРС $\delta k_{КАРС}$ от величины затухания поляритонов α_p для кристалла $LiIO_3$ (см. пояснения в тексте).

В условиях такого эксперимента зависимость ширины линии КАРС от величины затухания поляритонов, рассчитанная на основании выражения (4), имеет вид, показанный на рис. 4. Если затухание поляритонов мало, то ширина спектра КАРС будет

определяться величиной $\delta k(\alpha_p = 0)$, равной в данном случае примерно 7 см^{-1} . При больших затуханиях ширина линии стремится к величине $\delta k_a \approx 70 \text{ см}^{-1}$. Из полученной зависимости следует, что интервал значений затухания поляритонов, при которых ширина линии КАРС соответствует затуханию поляритонов ($\delta k_{\text{КАРС}} = \alpha_p$), с ошибкой $\leq 10\%$ равен $35 \text{ см}^{-1} > \alpha_p > 15 \text{ см}^{-1}$. Заметим, что границы интервала можно менять, изменяя длину исследуемого кристалла, поскольку $\delta k(\alpha_p = 0)$ и δk_a пропорциональны $1/L$, т.е. интервал в зависимости от длины кристалла в данном случае будет $35/L > \alpha_p > 15/L$.

Рассмотренный пример показывает, что интервал измеряемых величин затухания поляритонов, при которых ширина линии КАРС соответствует затуханию поляритонов, может оказаться достаточно узким. Это требует определенного внимания при извлечении информации о затухании поляритонов из спектров КАРС. Одним из путей расширения интервала доступных измерению с помощью КАРС величин затухания поляритонов является использование расходящегося пробного пучка. Расходимость пробного пучка не приводит к уширению спектра возбуждения поляритонов, но значительно увеличивает ширину синхронизма δk_a для четырехфотонного процесса и тем самым смещает верхнюю границу интервала для доступных измерению величин поглощения. Оценки показывают, что в рассматриваемом конкретном примере введение расходимости пробного пучка в 0.3° приводит к увеличению δk_a примерно в 10 раз по сравнению со случаем плоской волны.

В результате проведенного анализа показано, что, с одной стороны, распространение поляритонов приводит к уширению спектров КАРС, которое (в случае коллинеарного возбуждения поляритонов плоскими волнами) не превышает 10% только в том случае, если длина свободного пробега когерентных поляритонов примерно в 22 раза меньше длины исследуемого кристалла ($L > 22/\alpha_p$). С другой стороны, конечная ширина синхронизма δk_a для четырехфотонного взаимодействия приводит к сужению линии КАРС, которое не превышает 10%, если $\delta k_a > 2.3 \cdot \alpha_p$. Это накладывает ограничение сверху и снизу на величину затухания, которая может быть измерена по ширине линии спектра КАРС. В рассмотренном конкретном примере спектра КАРС на поляритонах в кристалле LiIO_3 величина измеряемого затухания должна лежать в достаточно узком интервале $35/L > \alpha_p > 15/L$, что создает значительные трудности и требует определенного внимания при измерении затухания из спектров КАРС, т.к. заранее затухание поляритонов, вообще говоря, неизвестно. В таких случаях предлагается использовать расходящийся пробный пучок, что позволяет существенно сдвинуть верхнюю границу

указанного интервала.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проект N 00-02-17069) и МПНТ РФ (проект "Фундаментальная спектроскопия", госконтракт N 108-2(00)-П(252)).

ЛИТЕРАТУРА

- [1] А х м а н о в С. А., К о р о т е е в Н. И. Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света. М., Наука, 1981.
- [2] C o f f i n e t J. P. and D e M a r t i n i F. Phys. Rev. Letts, **22**, 60 (1969).
- [3] W у н н е J. J. Phys. Rev. Letts, **29**, 650 (1972); Comments Sol. State Phys., **7**, 7 (1975).
- [4] С т р и ж е в с к и й В. Л., Я ш к и р Ю. Н. Квантовая электроника, **2**, 995 (1975).
- [5] F l y t z a n i s Chr. and B l o e m b e r g e n N. Prog. Quant. Electr., **4**, 271 (1976).
- [6] П о л и в а н о в Ю. Н., С а я х о в Р. Ш., С у х о д о л ь с к и й А. Т. Краткие сообщения по физике ФИАН, N 12, 16 (1976).
- [7] П о л и в а н о в Ю. Н., С у х о д о л ь с к и й А. Т. Письма в ЖЭТФ, **25**, 240 (1977); Квантовая электроника, **5**, 1689 (1978).
- [8] К и т а е в а Г. Х., Л о с е в с к и й П. С., М и х а й л о в с к и й А. А., П е н и н А. Н. ЖЭТФ, **112**, 441 (1997).
- [9] G a l e G. M., V a l l e e F., and F l y t z a n i s C. Phys. Rev. Letts, **57**, 1867 (1986).
- [10] V a l l e e F., G a l e G. M., and F l y t z a n i s C. Phys. Rev. Letts, **61**, 2102 (1988).
- [11] V a l l e e F. and F l y t z a n i s C. Phys. Rev. B, **46**, 13799 (1992); Phys. Rev. Letts, **74**, 3281 (1995).
- [12] Q i u T i e q u n and M a i e r M. Phys. Rev. B, **56**, 5717 (1997).
- [13] О р л о в С. Н., П о л и в а н о в Ю. Н. Квантовая электроника, **25**, 175 (1998).
- [14] О р л о в С. Н., П о л и в а н о в Ю. Н. Квантовая электроника, **25**, 899 (1998).
- [15] Ш е н И. Р. Принципы нелинейной оптики. М., Наука, 1980.
- [16] П о л и в а н о в Ю. Н. Успехи физ. наук., **126**, 185 (1978).