

КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА НА ПОЛЯРИТОНАХ В УСЛОВИЯХ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ МЕЖДУ ФОНОННЫМИ МОДАМИ

Ю.Н. Поливанов

Рассмотрено комбинационное рассеяние света на поляритонах, образующихся при взаимодействии фотонов с двумя связанными фоновыми модами. Получены соотношения, описывающие дисперсию квадратичной и кубической нелинейных восприимчивостей в области резонансов двух взаимодействующих (связанных) осцилляторов.

В инфракрасных (ИК) спектрах и спектрах комбинационного рассеяния (КР) света кристаллов часто наблюдаются аномалии, которые удается описать лишь при учете взаимодействия между оптическими фононами. Особенно часто такая ситуация возникает при изучении температурного поведения мягких мод. Первое рассмотрение ИК дисперсии диэлектрической проницаемости в рамках модели двух связанных осцилляторов было проведено в работе [1]. В настоящее время имеется большое число работ, посвященных анализу ИК и КР спектров при учете взаимодействия между фононами (см., напр., [1-4]).

Настоящая работа посвящена рассмотрению КР света на поляритонах в условиях, когда поляритоны образуются в результате взаимодействия фотонов с двумя связанными фоновыми модами.

При описании будем исходить из уравнений движения двух связанных дипольно-активных осцилляторов [1] на которые (в отличие от линейной по полю задачи, рассмотренной в [1]) действует "нелинейная сила", обусловленная воздействием на систему двух монохроматических полей E_1 и E_s с частотами ω_1 и ω_s такими, что разность $\omega_1 - \omega_s$ попадает в область резонансов осцилляторов:

$$\begin{aligned} \ddot{q}_1 + (\gamma_1 + \gamma_{12}) \dot{q}_1 - \gamma_{12} \dot{q}_2 + \omega_1^2 q_1 &= z_1 E + \alpha_1 E_1 E_s^*, \\ \ddot{q}_2 + (\gamma_2 + \gamma_{12}) \dot{q}_2 - \gamma_{12} \dot{q}_1 + \omega_2^2 q_2 &= z_2 E + \alpha_2 E_1 E_s^*. \end{aligned} \quad (1)$$

Здесь $q_{1,2}$ — смещения, $\gamma_{1,2}$ и $\omega_{1,2}$ — константы затухания и резонансные частоты осцилляторов в отсутствие взаимодействия, определяемого постоянной γ_{12} .

Для учета поляритонного характера дипольно-активных возбуждений уравнения движения должны быть дополнены волновым уравнением, описывающим поле E [5], которое при рассмотрении только поперечной компоненты можно записать (полагая $E \sim \exp(ikr - i\omega t)$) в виде:

$$[k^2 - \epsilon_\infty \omega^2 / c^2]^2 E = (4\pi\omega^2 / c^2) \chi_e^{(2)} [E_1 E_s^* + z_1 q_1 + z_2 q_2]. \quad (2)$$

В линейном по полю приближении решение системы уравнений (1) и (2) приводит к следующему закону дисперсии поляритонов:

$$\frac{k_p^2 c^2}{\omega^2} = \epsilon_\infty + 4\pi z_1^2 \frac{G_1 + 2i\omega\gamma_{12}\mu G_1 G_2 + \mu^2 G_2}{1 + \omega^2 \gamma_{12}^2 G_1 G_2} \equiv \epsilon(\omega), \quad (3)$$

где $G_1 = [\omega_1^2 - \omega^2 - i\omega(\gamma_1 + \gamma_{12})]^{-1}$, $G_2 = [\omega_2^2 - \omega^2 - i\omega(\gamma_2 + \gamma_{12})]^{-1}$. Правая часть выражения (3) описывает дисперсию диэлектрической проницаемости в области резонансов двух взаимодействующих фононов и в точности совпадает с полученным в [1] результатом.

Нелинейная задача может быть решена методом последовательных приближений (считая при этом E_l и E_s заданными), полагая $q_{1,2} = q_{1,2}^{(1)} + q_{1,2}^{(2)}$ и $E = E^{(1)} + E^{(2)}$, где индекс "1" сверху означает решение в линейном приближении. В результате для $E^{(2)}$ получаем:

$$[k^2 - \epsilon(\omega) \omega^2/c^2] E^{(2)} = (4\pi\omega^2/c^2) \chi^{(2)}(\omega) E_l E_s^*,$$

откуда находим, что $E^{(2)} = 4\pi\chi^{(2)}(\omega) E_l E_s^*/(k^2 c^2/\omega^2 - \epsilon(\omega))$.

Здесь

$$\chi^{(2)}(\omega) = \chi_e^{(2)} + \alpha_1 z_1 \frac{G_1 + i\omega\gamma_{12}(\mu + \lambda)G_1 G_2 + \mu\lambda G_2}{1 + \omega^2\gamma_{12}^2 G_1 G_2} \quad (4)$$

описывает дисперсию квадратичной нелинейной восприимчивости, $\lambda = \alpha_1/\alpha_2$, $\omega \equiv \omega_l - \omega_s$, $k \equiv k_l - k_s$. Для $q_1^{(2)}$ приходим к соотношению

$$q_1^{(2)} = \frac{z_1 G_1 + i\omega\gamma_{12} z_2 G_1 G_2}{1 + \omega^2\gamma_{12}^2 G_1 G_2} E^{(2)} + \frac{\alpha_1 G_1 + i\omega\gamma_{12}\alpha_2 G_1 G_2}{1 + \omega^2\gamma_{12}^2 G_1 G_2} E_l E_s^* \quad (5)$$

Выражение для $q_2^{(2)}$ получается из (5), если в нем произвести взаимную замену нижних индексов $1 \leftrightarrow 2$.

Рассмотрим вопрос о взаимодействии распространяющихся вдоль z волн E_l и E_s через посредство описанной выше поляритонной волны (возбуждаемой как разностная частота $\omega_l - \omega_s$), считая поле E_l заданным, а амплитуду E_s — медленно меняющейся. Будем считать, что разница $\omega_l - \omega_s$ попадает в окрестность дипольно активных резонансов, где свободная поляритонная волна сильно затухает (длина пробега свободной волны много меньше длины взаимодействия полей E_l и E_s), и поэтому для дальнейшего рассмотрения достаточно ограничиться учетом только вынужденных волн $E^{(2)}$, $q_{1,2}^{(2)}$. В результате для E_s приходим к следующему уравнению:

$$dE_s/dz = i(2\pi\omega_s/n_s c) [\chi_e^{(2)} E_l E^{(2)*} + \alpha_1 E_l q_1^{(2)*} + \alpha_2 E_l q_2^{(2)*} + \chi_\infty^{(3)} |E_l|^2 E_s].$$

Подставляя в это уравнение выражения для $q_{1,2}^{(2)}$ и $E^{(2)}$, получаем:

$$dE_s/dz = -i(2\pi\omega_s/n_s c) \chi_{eff}(\omega, k) |E_l|^2 E_s, \quad (6)$$

где

$$\chi_{eff}(\omega, k) = 4\pi [\chi^{(2)}(\omega)]^2 / (k^2 c^2/\omega^2 - \epsilon(\omega)) + \chi^{(3)}(\omega), \quad (7)$$

$$\chi^{(3)}(\omega) = \chi_\infty^{(3)} + \alpha_1^2 \frac{G_1 + 2i\omega\gamma_{12}\lambda G_1 G_2 + \lambda^2 G_2}{1 + \omega^2\gamma_{12}^2 G_1 G_2}$$

Уравнение (6) имеет экспоненциальное решение, т.е. в результате нелинейного взаимодействия двух волн через поляритонную происходит усиление интенсивности стоксовской волны с коэффициентом

$$g_s = (8\pi^2 \omega_s I_l / n_l n_s c^2) \text{Im} \chi_{eff}(\omega, k). \quad (8)$$

Зная g_s , можно получить также и выражение для дифференциальной мощности спонтанного КР света на поляритонах, если воспользоваться следующим соотношением [6]:

$$d^2 P_s / d\omega_s d\Omega_s = B_{s0} (N + 1) V g_s, \quad (9)$$

где $B_{s0} = \hbar \omega_s^3 n_s^2 / 8\pi^3 c^2$ — яркость вакуумных флуктуаций электромагнитного поля на частоте ω_s с одним фотоном в моде одной поляризации, $N = [\exp(\hbar\omega/kT) - 1]^{-1}$ — фактор Бозе, V — рассеивающий объем и l — длина области взаимодействия вдоль z .

Заметим, что, переходя в (7) к пределу $kc/\omega \gg 1$, мы приходим к спектру КР света на поперечных оптических фононах, вид которого определяется, как это следует из (7), (8) и (9), функцией $\text{Im}\chi^{(3)}(\omega)$. Получаемое таким образом выражение совпадает, в частности, с используемым в [7] для описания низкочастотных фононных спектров кристалла KN_2PO_4 (см. также [2]).

Можно показать также, что рассеяние света на продольных оптических фононах описывается аналогичными соотношениями, если в них $\chi_{\text{eff}}(\omega, k)$ заменить на $\chi_{\text{eff}}^L(\omega) = -4\pi[\chi^{(2)}(\omega)]^2 / \epsilon(\omega) + \chi^{(3)}(\omega)$, которое уже не зависит от k , причем $\chi_{\text{eff}}^L(\omega) = \chi_{\text{eff}}(\omega, k=0)$.

Из сравнения (4) с (3) и (7) видно, что дисперсия квадратичной нелинейной восприимчивости может быть полностью определена по дисперсии $\epsilon(\omega)$ и $\chi^{(3)}(\omega)$ (неопределенным остается только нерезонансный вклад $\chi_e^{(2)}$). Таким образом, зная $\epsilon(\omega)$ и $\text{Im}\chi^{(3)}(\omega)$, т.е. спектр ТО-фононов, можно описать поляритонный спектр, а также угловую дисперсию фононов в спектрах КР анизотропных кристаллов. Такая процедура использовалась нами для интерпретации соответствующих экспериментально полученных угловых зависимостей спектров КР кристалла KN_2PO_4 .

Полученные соотношения для дисперсии линейной и нелинейных восприимчивостей могут быть использованы также и для описания соответствующих спектров, проявляющихся в таких, например, процессах, как когерентное антистоксово КР и КР света на когерентно возбужденных поляритонах.

ЛИТЕРАТУРА

1. Barker A.S., Jr, Hopfield J.J. Phys. Rev., 135, 1732 (1964).
2. Scott J.F. Rev. Mod. Phys., 46, 83 (1974).
3. Wehner R.K., Steigmeier E.F. RCA Rev., 36, 70 (1975).
4. Light scattering near phase transition, eds. H.Z. Cummins and A.P. Levanyuk. Amsterdam — New York — Oxford, North-Holland Publ. Company, 1983.
5. Поливанов Ю.Н. УФН, 126, 185 (1978).
6. Клышко Д.Н. Фотоны и нелинейная оптика, М., Наука, 1980.
7. Lagakos N., Cummins H.Z. Phys. Rev. B, 10, 1063 (1974).

Институт общей физики АН СССР

Поступила в редакцию 3 марта 1990 г.