

КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА НА ПОЛЯРИТОНАХ В КРИСТАЛЛЕ БРОМАТА КАЛИЯ

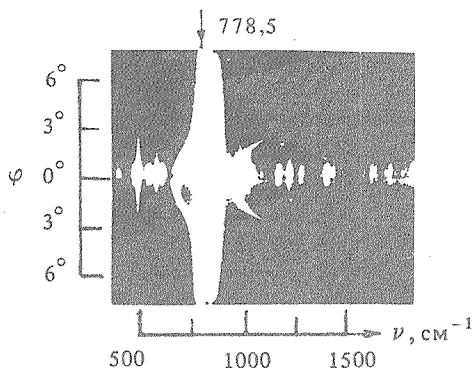
О.А. Доильницына, Б.И. Кидяров, Ю.Н. Поливанов

УДК 535.375.54

Впервые получены спектры и измерено частотно-угловое распределение интенсивности КР света на поляритонах в кристалле $KBrO_3$. Из проведенных измерений определена дисперсия квадратичной нелинейной восприимчивости в области решеточных резонансов.

В работе излагаются результаты первого экспериментального исследования комбинационного рассеяния (КР) света на поляритонах в одноосном кристалле бромата калия ($KBrO_3$). Образцы выращивались из водно-солевых растворов методом охлаждения в интервале температур $50-20^\circ C$ и имели ромбоэдрическую или призматическую форму с размерами до $7 \times 7 \times 12 \text{ мм}^3$. Кристалл $KBrO_3$ принадлежит точечной группе симметрии C_{3v} с одной формульной единицей в элементарной ячейке, и его оптические фононы, изученные в работе [1], разлагаются по типам симметрии $3A_1(z) + A_2 + 4E(x, y)$.

Спектры КР света под малыми углами (на поляритонах) возбуждались излучением аргонового лазера ($514,5 \text{ нм}$) и регистрировались на спектрографе ИСП-51 с использованием фотографической методики, описанной в



Р и с. 1. Частотно-угловой спектр КР света на поляритонах: ν — частота поляритонов; φ — угол рассеяния, отсчитываемый внутри кристалла.

/2/, причем тройка волновых векторов взаимодействующих волн располагалась в кристаллографической плоскости xz . Возбуждающее излучение распространялось под углом $\theta = 45^\circ$ к оптической оси кристалла и было поляризовано как необыкновенная волна. Соответствующий частотно-угловой спектр приведен на рис. 1. Симметрия спектра относительно линии $\varphi = 0^\circ$ свидетельствует о проявлении в рассеянии обыкновенных поляритонов (симметрии $E(y)$) и, следовательно, эффективная нелинейная восприимчивость, определяющая интенсивность рассеяния, имеет вид /3/: $\chi(\nu) = \chi_{223}(\nu) \sin \theta$.

Из измерений частотно-углового распределения интенсивности КР света на поляритонах по отношению к эффективности КР света в бензоле, которые проводились на той же установке /2/, но с использованием вместо фотоплёнки оптического многоканального анализатора /4, 5/, была определена дисперсия компоненты тензора нелинейной восприимчивости $\chi_{223}(\nu)$. В основе измерения χ_{223} лежит выражение для эффективности КР света на поляритонах

$$\sigma_s(\nu) = \frac{P_s(\nu)}{P_i} = \frac{(2\pi)^6 \hbar c \nu_s^2 \nu^2 |\chi(\nu)|^2 (N+1)}{n_i^2 \nu_i \sin \varphi |\partial \varphi / \partial \nu|},$$

где P_i , ν_i и n_i — мощность, частота и показатель преломления возбуждающего ($i = i$) или рассеянного ($i = s$) излучения; $N = [\exp(\hbar\omega/kT) - 1]^{-1}$; ν — частота поляритона. Измеряя частотную зависимость $\sigma_s(\nu)$, можно определить дисперсию компоненты тензора нелинейной восприимчивости $\chi_{223}(\nu)$. Результаты таких измерений представлены точками на рис. 2.

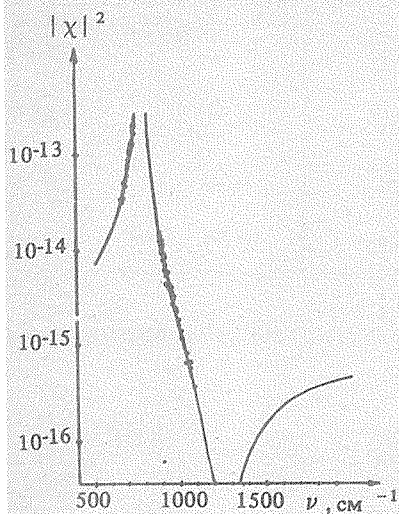
Для описания дисперсии нелинейной восприимчивости воспользуемся соотношением /6/:

$$\chi(\nu) = \chi^E + \sum_f^m \frac{\nu_f^2 \chi(Q_f)}{\nu_f^2 - \nu^2 + i\nu\Gamma_f} = \chi^E \left(1 + \sum_f^m \frac{C_f \nu_f^2}{\nu_f^2 - \nu^2 + i\nu\Gamma_f} \right), \quad (1)$$

где χ^E — электронный (нерезонансный) и $\chi(Q_f)$ — электронно-решеточный (резонансный) вклады в нелинейную восприимчивость; ν_f и Γ_f — частоты и затухания оптических фононов; суммирование проводится по всем колебаниям рассматриваемого типа симметрии. При восстановлении дисперсии, описываемой соотношением (1), можно воспользоваться значениями $\chi(Q_f)$, полученными из измерений эффективности КР света на оптических фононах, и χ^E — из экспериментов по генерации второй гармоники, либо значениями C_f из относительных эффективностей КР света на продольных (ЛО) и поперечных (ТО), оптических фононах. В обоих случаях эти данные дают по два значения и, поэтому для хода дисперсии $\chi(\nu)$ получается (как следует из

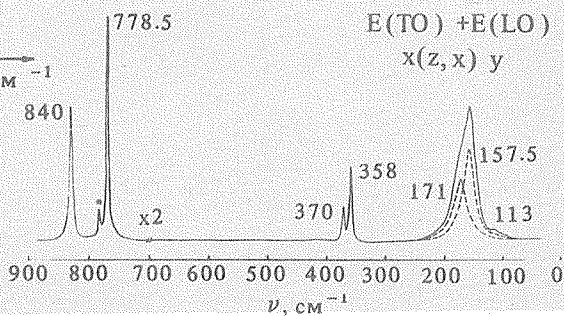
(1)), 2^m вариантов, где m — число фононных мод рассматриваемого типа симметрии. Эта неопределенность может быть устранена при использовании результатов измерения частотно-углового распределения интенсивности КР света на поляритонах.

В данном случае для определения величин и знаков C_f измерялись относительные эффективности КР света на LO и TO фононах симметрии E, которые одновременно проявлялись в рассеянии при геометрии $x(z,x)y$.



Р и с. 2. Дисперсия компоненты $\chi_{223}(\nu)$ тензора квадратичной нелинейной восприимчивости (в ед. СГСЭ). Точки — результаты, полученные из поляритонных спектров рассеяния; кривая — результат расчета по формуле (3) с использованием параметров, полученных из спектров КР света на оптических фононах и поляритонах.

Р и с. 3. Спектр КР света на оптических фононах симметрии E, полученный при геометрии рассеяния $x(y,z)y$.



Соответствующий спектр был получен на стандартном КР спектрометре и приведен на рис. 3. Полоса перекрывающихся линий в области $\sim 160 \text{ см}^{-1}$ была разделена численно на два лоренцевских контура: ν_{TO} ($157, 5 \text{ см}^{-1}$) и ν_{LO} (171 см^{-1}). Линия ν_{LO} ($142, 5 \text{ см}^{-1}$) не выделялась из-за ее малой интенсивности (она проявляется в виде слабо выраженного плеча у полосы). Результаты измерений относительных эффективностей КР света на LO и TO фононах $\sigma_{f,L}/\sigma_{f,T}$, а также, взятые из $1/\nu$ значения частот и сил осцилляторов, приведены в таблице.

Частоты ν_f , силы осцилляторов S_f , отношения эффективностей КР света на ЛО и ТО фонах симметрии E и постоянные Фауста — Генри C_f кристалла $KBrO_3$

$\nu_{TO}, \text{см}^{-1}$	$\nu_{LO}, \text{см}^{-1}$	S_f	σ_L/σ_T	C_f
113	142,5	2,847	—	0,88
157,5	171	0,238	0,51	1,66
358	370	0,207	0,50	0,47
778,5	840	0,443	0,69	1,45

Используя явные выражения для эффективностей рассеяния света на ЛО и ТО фонах, получаем

$$\frac{\sigma_{f,L}}{\sigma_{f,T}} = \left(\frac{\nu_l - \nu_{f,L}}{\nu_l - \nu_{f,T}} \right)^4 \frac{(N_{f,T} + 1) 2S_f}{(N_{f,T} + 1) \nu_f} \left| C_f^{-1} + \sum_{j=1}^m \frac{\chi(Q_j) \nu_j^2}{\chi(Q_f) [\nu_j^2 - \nu_{f,L}^2]} \right|^2 \times \left(\frac{\partial \nu}{\partial \epsilon} \right)_{\nu_{f,L}}, \quad (2)$$

где

$$\left(\frac{\partial \epsilon}{\partial \nu} \right)_{\nu_{f,L}} = \sum_{j=1}^m \frac{2S_j \nu_j^2 \nu_{f,L}}{\nu_j^2 - \nu_{f,L}^2}, \quad N_f = \left[\exp\left(\frac{\hbar \omega_f}{kT}\right) - 1 \right]^{-1}.$$

Систему (2) из m уравнений необходимо разрешить относительно C_f . Для этого при определении постоянной Фауста — Генри C_1 для колебания $778,5 \text{ см}^{-1}$ в силу достаточной удаленности всех остальных колебаний в первом приближении можно воспользоваться одноосцилляторной моделью и тогда из (2) с учетом данных, приведенных в таблице, получим два значения C_1 : 1,36 и 0,09. Для устранения неоднозначности воспользуемся

зультатами измерений интенсивности КР света на поляритонах, которые свидетельствуют о провале в интенсивности рассеяния на частоте $\nu_{\min} \approx 1200 \text{ см}^{-1}$ (рис. 1, 2). Получаем $C_1 = (\nu_{\min}/\nu_{1,T})^2 - 1 = 1,37$.

Для остальных колебаний постоянные Фауста — Генри выражаются через C_1 ($C_f = C_1 V_f$, где $V_f = \chi(Q_f)/\chi(Q_1)$) и определяются с точностью до знака из относительных измерений эффективностей КР света на ТО фонах. Подставляя эти данные в правые части уравнений системы (4), подберем такую комбинацию знаков V_f , чтобы получить наилучшее согласие рассчитанных значений $\sigma_{f,L}/\sigma_{f,T}$ с измеренными.

В проведенном анализе величина C_1 найдена в одноосцилляторном приближении. Для уточнения C_1 с учетом вкладов всех остальных колебаний и абсолютной калибровки электронно-решеточных вкладов использовались данные по дисперсии нелинейной восприимчивости $\chi_{223}(\nu)$. При этом относительные величины и знаки $\chi(Q_f)$ оставались неизменными, а варьировались величины C_1 и χ^E . Наилучшая аппроксимация экспериментальных данных была достигнута для кривой, приведенной на рис. 2. Параметры, описывающие эту кривую в соответствии с (1), даны в табл. 1.

Исходя из полученного значения величины электронного вклада $\chi_{223}^E = (3,0 \pm 1) \cdot 10^{-8}$ ед. СГСЭ для константы, ответственной за генерацию второй гармоники, получаем $d_{32}^{\omega} = \chi_{223}^E/4 = (7,5 \pm 2,5) \cdot 10^{-9}$ ед. СГСЭ. Проведенные измерения позволяют также оценить и электрооптическую константу $\gamma_{42} / 2$: $\gamma_{42} = -4\pi l^{-4} \chi_{223}(0) = -4\pi l^{-4} \chi_{223}^E (1 + \sum_f^m C_f) = -(1 \pm 0,3) \cdot 10^{-9} \text{ см/В}$. Отметим, что данные прямых измерений указанных констант в литературе отсутствуют.

Поступила в редакцию 26 марта 1985 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. Unger B., Haussühl S. Phys. Stat. Sol. (b), 84, 183 (1972).
2. Поливанов Ю.Н. УФН, 126, 185 (1978).
3. Loudon R. Adv. Phys., 13, 432 (1964).
4. Доильницына О.А., Поливанов Ю.Н., Прохоров К.А. Квантовая электроника, 8, 2268 (1981).
5. Доильницына О.А., Поливанов Ю.Н. Квантовая электроника, 11, 2178 (1984).
6. Henry C.H., Garrett C.G.V. Phys. Rev., 171, 1058 (1968).