Краткие сообщения по физике № 2 1978

ИЗМЕРЕНИЕ ДИСПЕРСИИ КУБИЧЕСКОЙ НЕЛИНЕЙНОЙ ВОСПРИИМЧИВОСТИ КРИСТАЛЛА LLIO3

Ю. Н. Поливанов. А. Т. Суходольский

УДК 539.287

Измерена дисперсия компонент С₁₁ и С₁₅ тензора кубической нелинейной восприимчивости кристалла іd10₃ методом трехволнового оптического смещения.

В связи с интересом, который проявляется в последнее время к процессам, описываемым нелинейными восприимчивостями высших порядков (см., например, /I/), важным представляется вопрос о измерении величины и дисперсии нелинейной восприимчивости третьего порядка (.). Одной из трудностей, возникающих при измерении нелинейных восприимчивостей (.) в кристаллах без центра симметрии методом' генерации гармоник, является разделение прямых и каскадных процессов, участвующих в образовании исследуемого сигнала. Кроме этого, обычно измеряются не отдельные компоненты тензора нелинейной восприимчивости, а эффективные нелинейности "кас.

В данной работе сообщается о первом измерении дисперсии отдельных компонент тензора кубической нелинейной восприимчивости кристалла LAIO₂ методом трехволнового оптического смешения.

Нами проводалось исследование зависимости интенсивности излучения на частоте $\omega_a = 2\omega_1 - \omega_2$ от величины $\omega_1 - \omega_2$ при неколлинеарном смешении излучения лазеров с частотами $\omega_1 - \omega_2$ и Наибольшая эффективность такого процесса достигается при выполнении условия фазового синхронизма

$$\Delta k_{a} \equiv k_{a} - (2k_{1} - k_{2}) = 0, \quad (I)$$

где \mathbf{k}_a , \mathbf{k}_1 \mathbf{k}_2 - волновые вектора излучения на частотах $\boldsymbol{\omega}_a$, $\boldsymbol{\omega}_1$ и $\boldsymbol{\omega}_2$ соответственно. Заметим, что в интенсивность сигнала \mathbf{I}_a на частоте $\boldsymbol{\omega}_a$ в общем случае могут давать вклад как прямые, так и

2

каскадные (или двухступенчатые) процессы. Однако, в работе /2/ было показано, что каскадные процессы можно исключить соответствующим выбором геометрии взаимодействующих волн, что и реализовано в данном случае.



Рис. I. (а) Геометрия взаимного расположения волновых векторов взаимодействующих волн. (б) Перестроечные кривые для трехволнового смещения при геометриях, указанных на рисунке (а). Сплошные кривые – результаты расчета, кружки – экспериментальные значения

Исследования проводились при смешении излучения второй гармоники лазера на YAG:Nd³⁺ ($\lambda_1 = 0.532$ мкм) и излучения лазера на красителе родамин 6 \mathbb{X} ($\lambda_2 = 0.56 - 0.62$ мкм), при взаимодействии $\mathbf{k}_a^e = \mathbf{k}_1^e + \mathbf{k}_1^o - \mathbf{k}_2^o$, где о и е обозначают поляризации волн - обыкновенную и необыкновенную соответственно. Установка описана в работе /3/.

При коллинеарном взаимодействии световых волн эффективная нелинейная восприимчивость для данного типа взаимодействия в кристалле Liloz имеет вид /4/

$$\chi_{\Theta\Phi}^{(3)} = \frac{c_{11}}{3}\cos^2\theta + c_{16}\sin^2\theta,$$
 (2)

где Θ – угол между направлением распространения взаимодействующих волн и оптической осью кристалла. Для измерения отдельных компонент тензора C_{II} и C_{I6} нами была измерена зависимость I от $\omega_1 - \omega_2$ при двух различных геометриях взаимодействия, показан-



Рис. 2. Экспериментальные зависимости интенсивности сигнала І_а от частоты $\vartheta \equiv \vartheta_1 - \vartheta_2$, полученные при двух геометриях взаимодействующих волн, показанных на рис. Іа

ных на рис. Ia. При этом переход от геометрии I к геометрии П осуществлялся поворотом кристалла на 180° относительно падающих лучей. Кристалл толщиной 3 мм был вырезан под углом 21° к оптической оси.

Перестроечные кривые для указанных геометрий взаимодействия представлены на рис. Іб (при $\varphi = 1^{\circ}$). При этом угол φ выбирался таким образом, чтобы исключить влияние каскадных процессов /2/ в области частот $\Im \equiv \Im_1 - \Im_2 = (\omega_1 - \omega_2)/2\pi c = 1000 \div 2500 \text{ см}^{-1}$. Зависимости интенсивностей I_a от \Im_1 нормированные на интенсивность лазеров, представлены на рис. 2. Из этих зависимостей с учетом перестроечных кривых (рис. Іб) можно получить отношенся





С_{II}/С_{I6} в исследуемом диапазоне частот ∂_{y} а также ход дисперсии этих величин в относительных единицах. При двух различных геометриях взаимодействия интенсивности регистрируемого сигнала на некоторой частоте ∂_{y} можно представить в виде

$$\begin{split} \mathbf{I}_{a}^{(\mathbf{I})}(\vartheta') &\sim \left(\frac{c_{11}}{3}\cos^{2}\theta_{1} + c_{16}\sin^{2}\theta_{1}\right)^{2} \mathbf{I}_{1}^{2}\mathbf{I}_{2}, \\ &\vdots \\ \mathbf{I}_{a}^{(\mathbf{I})}(\vartheta') &\sim \left(\frac{c_{11}}{3}\cos^{2}\theta_{2} + c_{16}\sin^{2}\theta_{2}\right)^{2} \mathbf{I}_{1}^{2}\mathbf{I}_{2}. \end{split}$$
(3)

При этом, решая систему уравнений (3) с учетом полученных из эксперимента данных, можно определить на каждой частоте по четыре независимых корня для С_{II} и С_{I6}. Если воспользоваться результатами работи /5/ по измерению величины и знака $(\simeq 1.9 \cdot 10^{-13} \text{ СГСЭ}, при угле <math>\Theta = 22,5^{\circ}$ и $\Im = 2300 \text{ см}^{-1})$, то можно исключить две пары корней системы (3), которые дают отрицательные знаки для $\chi_{30}^{(3)}$ и определить значения C_{II} и C_{I6} в абсолютных единицах. Из оставшихся двух пар корней была выбрана та из них, в которой величина C_{I6} лучше согласуется с результатами измерений, выполненных методом генерации третьей гармоники /6/. Результаты, полученные таким образом, представлены на рис. 3.

Как видно из рис. 3, обе компоненты ($C_{II} \ \kappa \ C_{I6}$) тензора кубической нелинейной восприимчивости уменьшаются по мере приближенля частоти $\vartheta = \vartheta_1 - \vartheta_2$ к области фононного спектра кристалла. Более того, компонента C_{I6} обращается в ноль при $\vartheta = 1200 \ cm^{-I}$ и меняет знак на отрицательний при $\vartheta < 1200 \ cm^{-I}$. Такой характер зависимости $C_{II} \ \kappa \ C_{I6}$ от частоты ϑ объясняется интерференцией решеточного и электронного вкладов в нелинейную восприимчивость третьего порядка. Интересно сравнить частоты, при которых происходит компенсация электронных и решеточных вкладов в нелинейную восприимчивость второго (d_{31}) и третьего (C_{I6}) порядков. Они равны ~1010 см^{-I} и ~ 1200 см^{-I} соответственно.

> Поступила в редакцию 2 декабря 1977 г.

Литература

- 1. S. Akhmanov. "Nonlinear Spectroscopy". Enrico Fermi Summer School, Varenna, Italy, 1975.
- 2. Ю. Н. Поливанов, Р. Ш. Саяхов, А. Т. Суходольский, Краткие сообщения по физике ФИАН, # 12, 16 (1976).
- Ю. Н. Поливанов, А. Т. Суходольский, "Квантовая электроника" (в печати, Труды У Вавиловской конференции).
- 4. J. E. Midwinter, J. Warner, Brit J. Appl. Phys., <u>16</u>, 1667 (1965).
- 5. Ю. Н. Поливанов, А. Т. Суходольский, Письма ЖЭТФ, <u>24</u>, 240 (1977).
- 6. M. Okada, Appl. Phys. Lett., 18, 451 (1971).
- L. A. Kulevsky, Yu. N. Polivanov, S. N. Poluektov, J. Reman Spectr., <u>3</u>, 239 (1975).

II