

О ВОЗМОЖНОСТИ РАЗДЕЛЕНИЯ ПРЯМЫХ И КАСКАДНЫХ ПРОЦЕССОВ ПРИ АКТИВНОЙ СПЕКТРОСКОПИИ КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ СВЕТА НА ПОЛЯРИТОНАХ

Ю. Н. Подиванов, Р. Ш. Саяхов, А. Т. Сухолольский

УДК 543.42

На примере кристалла  $\text{LiIO}_3$  экспериментально продемонстрирована возможность разделения прямых и каскадных процессов при активной спектроскопии комбинационного рассеяния (АСКР) света на поляритонах. Наблюдалась также генерация инфракрасного излучения при когерентном возбуждении поляритонов в диапазоне от 4 до 7,6 мкм.

Метод активной спектроскопии комбинационного рассеяния (АСКР) света на поляритонах основан на раскачке поляритонных возбуждений в поле двух достаточно интенсивных лазерных лучей с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$ , разность которых равна частоте поляритонов  $\omega_p$ . Если теперь на среду направить пробное поле частоты  $\omega$  (в качестве пробной волны можно использовать одну из волн, участвующих в когерентной раскачке поляритонов; пусть  $\omega = \omega_1$ ), то будет происходить рассеяние пробной волны на сфазированных по объему поляритонах на частоте  $\omega_a = \omega_1 + \omega_p$  (для антистоксова рассеяния). Интенсивность рассеяния пробной волны в этом случае можно описать следующим выражением  $I/I_0$ :

$$I_a(\omega_a) \sim I_1^2(\omega_1) I_2(\omega_2) \cdot |\chi|^2 l^2 \left( \frac{\sin \Delta k_a l/2}{\Delta k_a l/2} \right)^2, \quad (1)$$

где  $I$  - интенсивность излучения на соответствующей частоте,  $\Delta k_a = k_1 + k_1 - k_2 - k_a$ ,  $l$  - длина кристалла,

$$\chi = \chi^{(3)} + \left[ \frac{4\pi}{\left( \frac{\Delta kc}{\omega_1 - \omega_2} \right)^2 - \epsilon(\omega_p)} \right] [\chi^{(2)}]^2, \quad (2)$$

$$\Delta \bar{k} = \bar{k}_1 - \bar{k}_2 \quad \text{и}$$

$$\varepsilon(\omega_p) = \varepsilon_\infty + \sum_j \frac{S_j \omega_j^2}{\omega_j^2 - \omega_p^2 - i\omega_p \Gamma_j}. \quad (3)$$

Здесь  $k$  - соответствующие волновые векторы,  $\varepsilon_\infty$  - высокочастотная диэлектрическая постоянная,  $S_j$ ,  $\omega_j$  и  $\Gamma_j$  - сила осциллятора, частота и константа затухания  $j$ -го дипольно-активного оптического фонона.

Теория АСКР света на поляритонах рассматривается в /1, 3, 4/, а о результатах экспериментального наблюдения поляритонов методом АСКР сообщается в работах /5, 6/. В /5/ на примере кубического двухатомного кристалла GaP показана возможность получения спектров АСКР изменением величины  $\Delta k$  (угла между лучами лазеров) при постоянной частоте  $\omega_p = \omega_1 - \omega_2$  ( $k$ -спектроскопия). В /6/ исследовалась зависимость интенсивности рассеяния пробного луча в кристалле  $\text{LiNbO}_3$  от величины разницы частот  $\omega_1 - \omega_2$ .

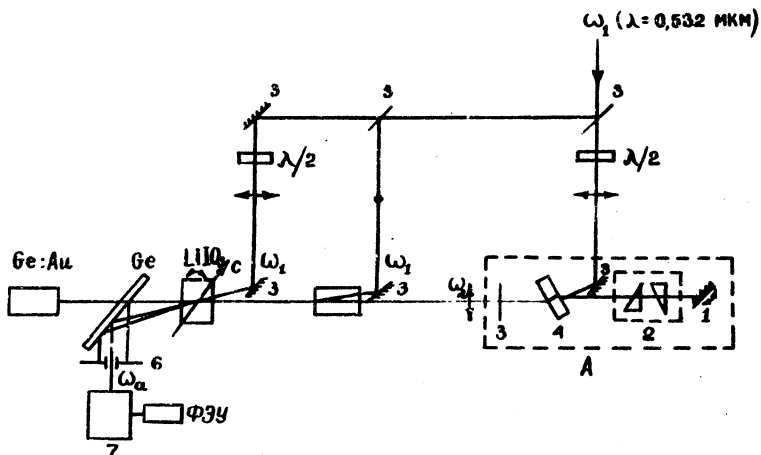
Интенсивность спектров АСКР, согласно (1) и (2), определяется нелинейной восприимчивостью третьего порядка  $\chi^{(3)}$ , описывающей прямой четырехфотонный процесс рассеяния, и нелинейной восприимчивостью второго порядка  $\chi^{(2)}$ , описывающей каскадные процессы. Целью настоящего сообщения является исследование возможности разделения прямых и каскадных процессов рассеяния.

Максимум рассеяния при фиксированном значении  $\omega_1 - \omega_2$  за счет прямых процессов, согласно (1) - (3), возникает при условии  $\Delta k_a = 0$ , в то время как вклад каскадных процессов будет максимальным при условии

$$\Delta k = k_p \equiv \frac{\omega_p}{c} \left( \varepsilon_\infty + \sum_j \frac{S_j \omega_j^2}{\omega_j^2 - \omega_p^2} \right). \quad (4)$$

Причем, если кристалл обладает достаточной прозрачностью на частоте поляритонов, то при выполнении условия (4) когерентное возбуждение поляритонов будет сопровождаться инфракрасным излучением /7/. Таким образом, по инфракрасному излучению можно контролировать выполнение условия (4). В связи с этим нами проводились исследования в области спектра, где частота поляритонов находилась вблизи инфракрасного края полосы поглощения кристалла.

Схема экспериментальной установки для исследования спектров АСКР представлена на рис. 1. Когерентное возбуждение  $E_1$ -поляризованных верхней дисперсионной ветви кристалла  $LiIO_3$  осуществля-

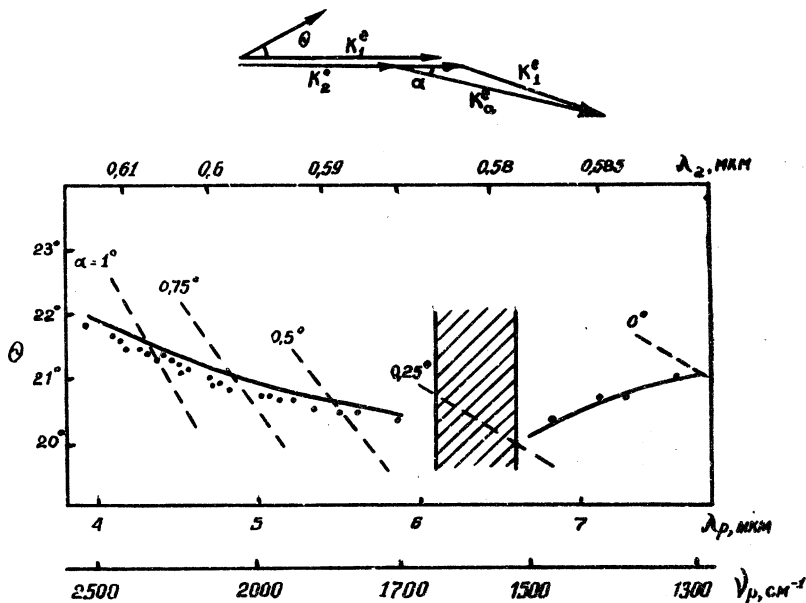


Р и с. 1. Схема экспериментальной установки для исследования спектров АСКР. Стрелками указаны направления поляризации соответствующих лучей, 1 - дифракционная решетка; 2 - призмный телескоп; 3 - зеркала; 4 - прокачная кювета с красителем родамин 6Ж; 5 - кристалл кальцита, вырезанный под углом  $45^\circ$  к оптической оси; 6 - диафрагма; 7 - монохроматор ДМР-4

лось излучением второй гармоники ( $\omega_1$ ) лазера модулированной добротности на иттрий-алюминиевом гранате с неодимом, работающего в режиме ТЕМ<sub>00</sub> моды с частотой повторения до 50 гц и излучением перестраиваемого по частоте лазера на красителе родамин 6Ж ( $\omega_2$ ). Лазер на красителе с прокачкой возбуждался излучением второй гармоники  $\omega_1$  и перестраивался вращением дифракционной решетки (1) (1200 шт/мм). Для улучшения работы решетки внутрь резонатора помещался 10-кратный призмный телескоп (2), что обеспечивало получение ширины линии генерации  $\leq 1 \text{ см}^{-1}$  при мощности до 10 квт в импульсе. Инфракрасное излучение возбуждалось в кристалле  $LiIO_3$  при коллинеарном распространении излучения

второй гармоники  $\omega_1$  и лазера на красителе  $\omega_2$  и регистрировалось фотоприемником Ge:Аи.

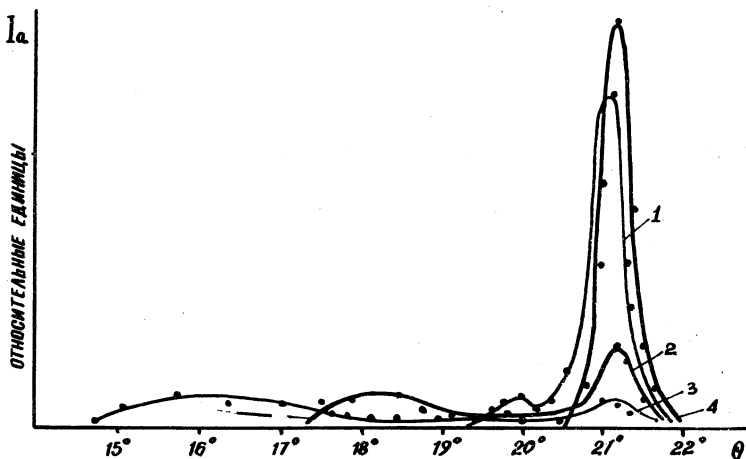
Выполнение условия синхронизма (4) обеспечивалось выбором угла  $\theta$  между оптической осью кристалла  $s$  и волновым вектором



Р и с. 2. Кривые синхронизма для когерентного возмущения поляритонов (сплошные кривые) и для четырехфотонного взаимодействия (пунктирные кривые) при различных значениях угла  $\alpha$ . Точки - экспериментальные данные, полученные по наблюдению инфракрасного излучения. Затрихованная область соответствует полосе поглощения кристалла  $\text{LiIO}_3$ , обусловленной фононным спектром второго порядка. Вверху показана также геометрия рассеяния

необыкновенного луча второй гармоники  $k_1^e$ . Излучение лазера на красителе и пробного луча были поляризованы в кристалле как обыкновенные волны. На рис. 2 сплошными кривыми представлены расчетные кривые синхронизма, определяемые уравнением (4), для генерации инфракрасного излучения. Данные по дисперсии поляри-

тонов и показателей преломления, необходимые при расчете, взяты соответственно из /8/ и /9/. Точками представлены результаты экспериментального наблюдения инфракрасного излучения при когерентном возбуждении полиаритнов. Пунктирными кривыми представлены



Р и с. 3. Зависимость интенсивности рассеяния пробного луча  $I_a$  от  $\theta$  (угол между направлением волнового вектора  $\vec{k}_1^0$  и оптической осью кристалла) при  $\lambda_2 = 0,6$  мкм и значениях  $\alpha = 1^\circ$  (кривая 1),  $\alpha = 1,5^\circ$  (кривая 2) и  $\alpha = 2^\circ$  (кривая 3), кривая 4 - зависимость интенсивности инфракрасного излучения от  $\theta$

кривые синхронизма для прямого четырехфотонного процесса ( $\Delta k_a = 0$ ) при различных значениях угла  $\alpha$  между волновыми векторами  $k_1^0$  и  $k_a^0$  (геометрия рассеяния показана в верхней части рис. 2). Точки пересечения пунктирных кривых со сплошными соответствуют одновременному выполнению условий синхронизма для каскадных и прямых процессов, и в этом случае наблюдается максимальная интенсивность рассеяния пробного луча.

Изменение геометрии рассеяния, соответствующее, например, "движению" по пунктирной кривой (рис.2) не должно, согласно (1)-(3), приводить к изменению интенсивности рассеяния за счет прямых процессов, а интенсивность рассеяния за счет каскадных процессов должна спадать как  $1/(\Delta k - k_p)^2$  по мере удаления от сплош-

ной кривой. Таким образом, выход на постоянный уровень интенсивности при "движении" по пунктирной кривой будет соответствовать выделению прямых четырехфотонных процессов рассеяния.

Нами исследовалась зависимость интенсивности рассеяния пробного луча  $I_a$  от угла  $\theta$  (изменяемого вращением кристалла LiIO<sub>3</sub>) при фиксированном значении  $\omega_1 - \omega_2$  и различных значениях угла  $\chi_1$ . Соответствующие зависимости при частоте поляритона  $\nu_p \approx 2130 \text{ см}^{-1}$  представлены на рис. 3.

Максимум при  $2I, 2^v$  (рис. 3) соответствует выполнению условия (4) при  $\Delta k_a \neq 0$ , причем с ростом  $\Delta k_a$ , что соответствует в данном случае росту  $\alpha$ , интенсивность рассеяния  $I_a$  уменьшается. Появление этого максимума сопровождается также возникновением инфракрасного излучения. Второй максимум соответствует случаю  $\Delta k - k_p \neq 0$  при  $\Delta k_a = 0$ . Из рис. 3 видно, что интенсивность этого максимума не зависит от величины  $\Delta k - k_p$  и, следовательно, определяется только прямыми четырехфотонными процессами рассеяния.

Таким образом, нами экспериментально продемонстрирована возможность разделения прямых и каскадных процессов в АСКР на поляритонах. Это дает возможность измерять отношение  $\chi^{(3)}/\chi^{(2)}$ . Измерения этой величины при различных длинах волн лазера на красителе (частотах поляритонов) позволяют получать данные по дисперсии нелинейной восприимчивости третьего порядка, если известна дисперсия нелинейной восприимчивости второго порядка, которая может быть легко получена из спектров спонтанного комбинационного рассеяния света на поляритонах /10/.

Поступила в редакцию  
7 июля 1976 г.

#### Л и т е р а т у р а

1. J. J. Wynne. Comments Sol. State Phys., 2, 7 (1975).
2. Н. Бломберген. Нелинейная оптика. Изд-во "Мир", М., 1966 г.
3. Д. Н. Клышко. Квантовая электроника, 2, 265 (1975).
4. В. Л. Стрижевский, Ю. Н. Яшкир. Квантовая электроника, 2, 995 (1975).

5. J. P. Coffinet, F. De Martini. Phys. Rev. Lett., 22, 60 (1969).
6. J. J. Wynne. Phys. Rev. Lett., 29, 650 (1972).
7. F. De Martini. Phys. Rev., B 4, 4556 (1971).
8. S. Umeagaki, S. L. Tanaka, T. Uchiyama, S. Y. Yabumoto. Opt. Commun., 3, 244 (1971).
9. L. A. Kulevsky, Yu. N. Polivanov, S. N. Poluektov. J. Raman Spectr., 2, 239 (1975).
10. O. A. Акинпетров, Г. М. Георгиев, Т. В. Лаптевская, А. Г. Михайловский, А. Н. Пеня. Квантовая электроника, 3, 926 (1976).