

ДИНАМИЧЕСКИЕ РЕШЕТКИ КВАДРАТИЧНОЙ ПОЛЯРИЗУЕМОСТИ В ПОЛИДИАЦЕТИЛЕНЕ PTS

Г.А.Виноградов, Б.Я.Зельдович, А.М.Котегов, А.Н.Чудинов

*Челябинский государственный технический университет
454080, Челябинск, Россия*

Поступила в редакцию 24 июня 1992 г.

После переработки 10 сентября 1992 г.

Монокристалл полидиацетилена PTS облучался $\langle E^3 \rangle$ - когерентными пикосекундными импульсами ($\lambda_\omega = 1,06$ мкм) и импульсами второй гармоники ($\lambda_{2\omega} = 0,53$ мкм), сходящимися под углом $\theta = 4 \cdot 10^{-3}$ рад. Обнаруженная дифракция пучка λ_ω на углы $-\theta$, $-\theta$, -5θ интерпретируется в терминах записи решетки квадратичной поляризуемости и последующей генерации на ней сигнала $2\omega - \omega$.

Поле вида $\frac{1}{2}[E_\omega(\mathbf{r})e^{-i\omega t} + E_{2\omega}(\mathbf{r})e^{-i2\omega t} + \text{к.с.}]$ обладает в данной точке \mathbf{r} полярной асимметрией. Она проявляется, в частности, в том, что среднее значение куба поля $\langle E^3 \rangle = \frac{3}{8}(E_\omega^2 E_{2\omega}^* + E_\omega^* E_{2\omega})$ отлично от нуля. Эффекты воздействия такого поля на среду многообразны; например, запись голографических решеток квадратичной поляризуемости $\delta\chi^{(2)} = \beta E_\omega^*(\mathbf{r})E_{2\omega}(\mathbf{r}) + \text{к.с.}$ в волокнах и стеклах¹, полярная асимметрия вылета электронов при интерференции процессов одно- и двухфотонной ионизации².

В настоящей статье мы сообщаем экспериментальные результаты по воздействию таких полей на монокристалл полидиацетилена PTS, которые указывают на запись решетки $\delta\chi^{(2)} E_{2\omega} E_\omega^* + \text{к.с.}$ и ее считывание в процессе генерации сигнала разностной частоты $2\omega - \omega$. Отметим, что запись решеток $\delta\chi^{(2)}$ в геометрии встречных волн и при том, для раствора полидиацетилена 4ВСМУ исследовалась экспериментально в работе³.

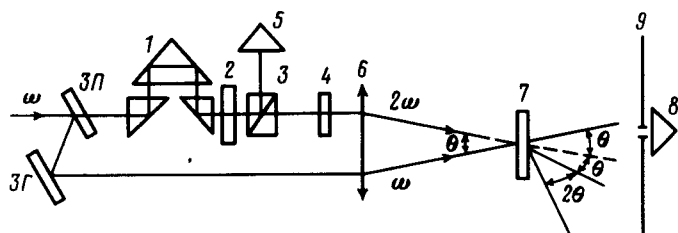


Рис.1. Схема экспериментальной установки: 1 - оптическая задержка; 2 - нелинейно-оптический кристалл КТР; 3 - призма Глана; 4 - фильтр СЗС-23; 5 - фотодиод; 6 - линза ($f = 140$ см); 7 - образец кристалла полидиацетилена PTS; 8 - фотодиод; 9 - диафрагма

В эксперименте использовался YAG :Nd³⁺-лазер с пассивной синхронизацией мод. Длительность отдельного пучка в цуге импульсов была около 50 пс. Расходимость лазерного излучения составляла $4 \cdot 10^{-4}$ рад. Схема эксперимента представлена на рис.1. Излучение лазера на частоте ω делилось полупрозрачным зеркалом ЗП на два пучка. Прошедшее излучение через оптическую задержку попадало на нелинейно-оптический кристалл 2, в котором происходило удвоение частоты. Призма Глана 3 и соответствующий светофильтр позволяли получать сигнал только на частоте 2ω с вектором поляризации, параллельным оси X. Расходимость излучения второй гармоники не превышала

величину $4 \cdot 10^{-4}$ рад. Отраженный от зеркала ЗП импульс ω еще раз отражался от "глухого" зеркала ЗГ и направлялся вместе с импульсом на частоте 2ω линзой 6 на образец полидиацетилена PTS (фокусное расстояние линзы было 140 см). Диаметр пучков с частотами ω и 2ω на входе линзы не превышало 1,5 мм. Угол схождения двух пучков был $\theta_c = 4 \cdot 10^{-3}$ рад. Направление вектора поляризации обоих лучей было параллельно нитям полимеризации в кристалле PTS.

Для измерения интенсивности дифрагировавшего излучения в дальней зоне на частоте ω , был использован фотодиод 8, который перемещался в плоскости схождения лучей. Фотодиод имел щелевую диафрагму 9, шириной 200 мкм. Расстояние от образца до фотодиода составляло 150 см. Фотодиод 5 использовался для контроля падающего излучения.

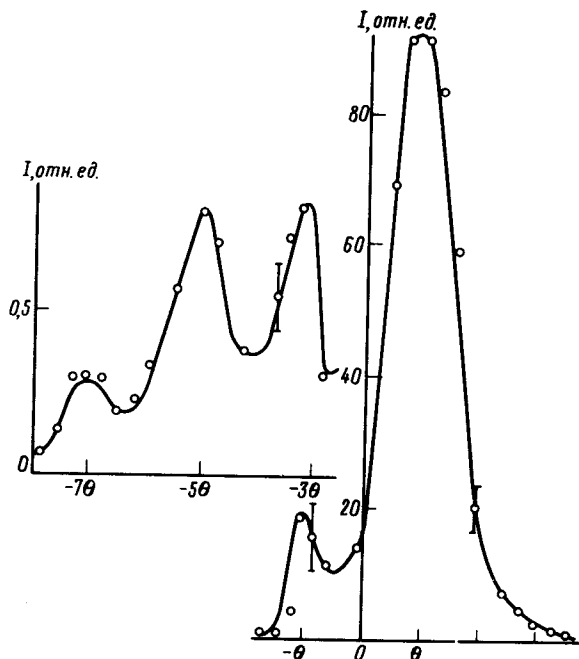


Рис.2. Угловое распределение интенсивности в дальней зоне излучения на частоте ω

Экспериментальная зависимость углового распределения интенсивности дифрагировавшего излучения на частоте ω представлена на рис.2. При измерении данной зависимости, мы контролировали дифракцию на частоте 2ω путем замены интерференционного светофильтра на фотодиоде 8. Следует сразу сказать, что за исключением слабого рассеяния в нулевой порядок, мы не наблюдали дифракции на частоте 2ω ни в какой другой угол. Полимерный кристалл PTS на длине волны второй гармоники неодимового лазера имеет коэффициент поглощения: $\sigma = 2 \cdot 10^{+5} \text{ см}^{-1}$ ⁴. Поэтому, если и есть какое-либо рассеяние на частоте 2ω , то оно будет полностью поглощаться в толще кристалла. Отметим, что на частоте ω поглощение было менее 1%.

Для объяснения полученной экспериментальной зависимости рассмотрим следующие три механизма образования дифрагировавших волн на углы $-\theta$, -3θ , -5θ (см. рис.2).

Излучение на частоте ω , E_{ω}^0 , проникая в кристалл может генерировать вторую гармонику, например, на квадрупольном механизме. Взаимодействуя с

падающей второй гармоникой $E_{2\omega}^0$, оба излучения могут приводить к образованию решетки диэлектрической проницаемости $\delta\epsilon$, волновой вектор которой $q = k_{2\omega} - 2k_\omega$. На этой решетке происходит дифракция падающего излучения как на частоте ω , так и на частоте 2ω . Последнюю, в нашем случае, обнаружить не представляется возможным ввиду вышеприведенной причины. Дифракция на частоте ω происходит в режиме Рамана-Натта, и именно на углы $\pm 2\theta$, $\pm 4\theta$ и так далее относительно направления падающего E_ω^0 . Интенсивность дифрагировавшего излучения в +1 дифракционный максимум, I_ω^{+1} , будет зависеть от интенсивности падающего излучения на частоте ω , I_ω^0 , следующим образом $I_\omega^{+1} (I_\omega^0)^3$.

Другим вероятным механизмом возникновения дифрагировавших волн может быть следующий. Одновременное освещение образца когерентными волнами на частоте ω и 2ω может приводить к решетке квадратичной нелинейной поляризуемости $\delta\chi^{(2)} = \beta E_{2\omega} E_\omega^{*2} \exp(iq r) + \text{к.с.}$, где $q = k_{2\omega} - 2k_\omega$ вектор решетки. На этой решетке происходит генерация разностной частоты $E_{2\omega} E_\omega^*$. Как нетрудно показать, рассеяние на разностной частоте происходит в направлении угла -4θ относительно E_ω^0 , совпадающим с направлением -3θ на рис.2. Причем, ввиду того, что $n_\omega > n_{2\omega}$, вектор решетки наклонен таким образом, что расстройка волнового вектора меньше в направлении -3θ , чем $+\theta$. Рассеяние на векторе решетки $2q$ приводит к появлению волны в направлении -5θ . Расстройка волнового вектора еще меньше. В направлении же $+3\theta$ расстройка увеличивается, что приводит к резкому уменьшению рассеянной волны. Данный механизм не объясняет появление волны на частоте ω в направлении $-\theta$. С другой стороны, интенсивность рассеянного сигнала в этом направлении линейным образом зависела от интенсивности I_ω^0 . Поэтому и первый механизм не подходит для объяснения.

Следует заметить, что в направлении $-\theta$ может генерироваться разностная частота $E_{2\omega} E_\omega^*$ на квадрупольном механизме. Причем, в этом случае интенсивность сигнала будет линейно зависеть от интенсивности входного сигнала на частоте ω .

Суммируя сказанное, в кристалле PTS, на передней грани, генерируется волна разностной частоты $E_{2\omega} E_\omega^*$ в направлении $-\theta$ (см. рис.2). Одновременное освещение кристалла электромагнитным полем в котором $\langle E^3 \rangle = 0$ приводит к появлению $\delta\chi^{(2)}$ -решетки, на которой происходит рассеяние разностной частоты. Причем, на этой же решетке возможна генерация разностной частоты в углы $+\theta$, -3θ , -5θ , и так далее. Рассеяние в положительные углы менее вероятно, чем в отрицательные. Следует отметить, что в эксперименте мы не смогли обнаружить какое-либо рассеяние на частоте ω при углах наблюдения больше чем θ .

Таким образом, в кристалле PTS экспериментально обнаружена динамическая решетка квадратичной поляризации, природа которой пока не ясна.

1. U.Osterberg and M.Margulis, Opt. Lett. 11, 516 (1986); V.M.Churikov, Yu.E.Kapitzky, V.N.Lukyaynov, and B.Ya.Zel'dovich. Sov. Lightwave Commun. 1, 389 (1991); E.V.Anoikin, E.M.Dianov, P.G.Kazansky, and D.Ya.Stepanov, Optics Lett. 15, 834 (1990).
2. Н.Б.Баранова, Б.Я.Зельдович, А.Н.Чудинов, А.А.Шульгинов, ЖЭТФ 98, 1857 (1990); Н.Б.Баранова, И.М.Бегеров, Б.Я.Зельдович и др., Письма в ЖЭТФ 55, 431 (1992); H.G.Muller, P.H.Bucksbaum, D.W.Schumacher, and A.Zavriyev, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 23, 2761 (1990).
3. F.Charra and J.-M.Nunzi, J. Opt. Soc. Am. B 8, 570 (1991).
4. M.Thukur, R.C.Frye, and B.I.Greene, Appl. Phys. Lett. 56, 1187 (1990).