

АКТИВНАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ КРИСТАЛЛОВ БЕЗ ЦЕНТРА СИММЕТРИИ В УСЛОВИЯХ ДВОЙНОГО ω - k -РЕЗОНАНСА

А.Т.Суходольский

Изучается новая модификация спектроскопии трехволнового смешения вида $2\omega_1 - \omega_2 \rightarrow \omega_\alpha$, когда наряду с условиями частотного комбинационного резонанса реализуются условия волнового резонанса (синхронизма) для генерации второй гармоники. На примере кристалла формиата лития демонстрируется возможность измерения величин и знаков резонансной и нерезонансной кубической нелинейности кристалла.

Возможности спектроскопии нелинейного оптического смешения трех волн на частотах ω_1 , ω_2 и ω_3 , при которой сигнал на частоте $\omega_\alpha =$

$= \omega_1 - \omega_2 + \omega_3$ анализируется в условиях интерференции двух резонансных вкладов, были продемонстрированы ранее на примере двойного комбинационного [1], комбинационного и однофотонного [2] или двухфотонного [3] электронных резонансов. При этом, условия двойного частотного оптического резонанса реализовались за счет подбора частот $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ [4]. В данной работе анализируется новая модификация спектроскопии трехволнового смещения (вида $2\omega_1 - \omega_2 \rightarrow \omega_a$), которая возможна в кристаллах без центра симметрии. Если, наряду с условиями частотного комбинационного резонанса $\omega_1 - \omega_2 \approx \Omega$, где Ω — частота комбинационно-активного фонона (ω -резонанс) выполняются условия волнового резонанса ("синхронизма") для генерации второй гармоники $\Delta \mathbf{k}_m = 2\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_m = 0$, где $-\mathbf{k}_1$ и \mathbf{k}_m волновые вектора излучения на частотах ω_1 и $\omega_m = 2\omega_1$ соответственно (k -резонанс), то вследствие когерентности процесса в спектре сигнала на частоте наблюдается не простое сложение резонансных вкладов, а результат интерференции между ними [5]. Это позволяет по спектрам, полученным в ω - и k -пространствах в условиях двойного резонанса, определять знаки и измерять величины как резонансной, так и нерезонансной кубической нелинейной восприимчивости по известной величине квадратичной нелинейности.

В условиях двойного ω - k -резонанса в образовании сигнала на частоте ω_a участвуют два механизма: а) прямое четырехфотонное смещение, обусловленное кубической нелинейной восприимчивостью, б) последовательные трехфотонные (каскадные) процессы, обусловленные квадратичной нелинейностью [5]. Процесс а) описывается в рамках теории активной спектроскопии комбинационного рассеяния [6]. Определить величину вклада, связанного с процессами б) можно решая (в приближении заданных полей накачки на частотах ω_1 и ω_2) укороченные уравнения для амплитуд полей на частотах ω_m и ω_a , полученные на основе стандартной процедуры нелинейной оптики [7]. При условии, что $\Delta \mathbf{k} = 2\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_a = 0$, эффективную кубическую нелинейность среды можно представить в виде

$$\chi_{ijkl}^{\Sigma} = \chi_{ijkl}^{NR} + \chi_{ijkl}^R + \chi_{ijkl}^K. \quad (1)$$

Здесь χ_{ijkl}^{NR} — нерезонансная электронная кубическая восприимчивость кристалла; χ_{ijkl}^R — резонансный вклад, обусловленный комбинационным резонансом, который для уединенного оптического фонона с полушириной Γ на частоте Ω имеет вид [6]

$$\chi_{ijkl}^R = \bar{\chi}_{ijkl}^R (-i - \Delta)^{-1}, \quad (2)$$

$$\Delta = (\omega_1 - \omega_2 - \Omega)/\Gamma, \quad \bar{\chi}^R = \frac{N}{2M} (2\Gamma \Omega)^{-1} \left(\frac{\partial a_{ij}}{\partial Q_0} \right) \left(\frac{\partial a_{kl}}{\partial Q_0} \right),$$

где M — приведенная масса элементарной ячейки и $(\partial a / \partial Q)_0$ — тензор комбинационного рассеяния, N — количество элементарных ячеек в еди-

нице объема кристалла. Вклад каскадных процессов в интенсивность исследуемого сигнала описывается в (1) тензором четвертого ранга, который дается выражением

$$\chi_{ijkl}^K = \bar{\chi}^K 2(ir + e^{-ir} - 1) (ir^2)^{-1}; \quad (3)$$

$$\bar{\chi}^K = \frac{L\pi\omega_m^2}{k_m c^2} \chi_{ijp}^{(2)} \chi_{pkl}^{(2)}$$

где $\tau = \Delta k_m L$, L — длина кристалла, $\chi_{ijp}^{(2)}$ — тензор квадратичной нелинейной восприимчивости кристалла.

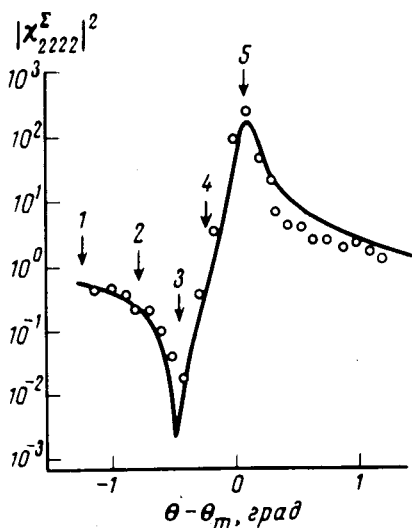


Рис. 1. Зависимость интенсивности сигнала на частоте ω_a от угла θ (k -спектр) полученная при $\omega_1 - \omega_2 \neq \Omega$. Кружочки — экспериментальные данные, сплошная кривая — результат расчета. Стрелками отмечены значения тех углов при которых получены ω -спектры (см. рис. 2)

Эксперимент проводился в кристалле формиата лития, при смешении излучения второй гармоники ($\lambda_1 = 0,53$ мкм) лазера модулированной добротности на иттрий-алюминиевом гранате, работающего в режиме TEM_{00} -моды с частотой повторения 10 Гц и перестраиваемого лазера на красителе ($\lambda_2 = 0,56 - 0,62$ мкм) с шириной линии генерации до 1 см⁻¹. Взаимодействующие волны распространялись в плоскости XZ кристалла. Излучение с длиной волны λ_1 и волновым вектором \mathbf{k}_1 распространялось под углом θ к оси X и было поляризовано по оси y (обыкновенная (0) волна). Волновой вектор излучения лазера на красителе \mathbf{k}_2 , поляризованного как обыкновенная волна, составлял угол ϕ с направлением вектора \mathbf{k}_1 . Угол ϕ выбирался таким образом, чтобы реализовались условия фазового синхронизма для четырехфотонного взаимодействия $000-0$ $\Delta\mathbf{k} = 2\mathbf{k}_1^o - \mathbf{k}_2^o - \mathbf{k}_a^o = 0$. Для выбранной геометрии смешения, условие волнового резонанса $2\mathbf{k}_1 = \mathbf{k}_m$ выполняется при изменении угла θ вблизи $\theta_m \approx 39,5^\circ$. При этом вклад в интенсивность сигнала на частоте ω_a возникает за счет двух трехфотонных процессов при взаимодействии $00-e$ и $e0-0$. Отметим, что в данном случае, выполнение условия фазового синхронизма для четырехфотонного взаимо-

действия не зависит от угла θ . Следовательно, перестройкой частоты лазера на красителе и изменением угла θ , условия для резонанса в ω - и k -пространствах можно выбирать независимо.

Для анализа закономерностей, возникающих при активной спектроскопии в условиях двойного ω - k -резонанса, были получены зависимости интенсивности сигнала ω_a от частоты ω_2 (ω -спектр) и угла θ (k -спектр). Представленная на рис. 1 зависимость была получена при $\omega_1 - \omega_2 \neq \Omega$, т. е. для "одиночного" k -резонанса.

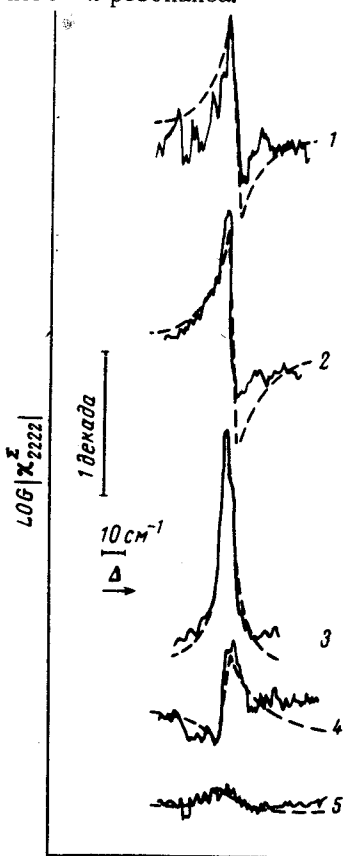


Рис. 2. ω -спектры полученные при изменении $\Delta = (\omega_1 - \omega_2)/2\pi c$ вблизи частоты $\Omega = 1070 \text{ см}^{-1}$ комбинационно-активного колебания формиата лития. Цифрами обозначаются спектры полученные при различных углах θ отмеченных на рис. 1 стрелками. Сплошные линии — экспериментальные, пунктирные — результат расчета

На рис. 2 представлены спектры полученные в ω -пространстве при различных значениях волновой расстройки Δk_m , которые демонстрируют влияние интерференции различных вкладов в условиях двойного ω - k -резонанса. Экспериментально полученные спектры сравнивались с расчетными зависимостями, полученными из соотношений (Г) — (З). Отметим, что, так как знак $\bar{\chi}_{ijkl}^k$ в (З) не зависит от знака квадратичной нелинейной восприимчивости, то по положению "провала" в ω - и k -спектрах можно определить знак резонансной и нерезонансной кубической нелинейной восприимчивости. Кроме этого, вид спектров существенным образом зависит от соотношения величин $\chi^{NR} \bar{\chi}^R$ и $\bar{\chi}^K$. Следовательно, из спектров, полученных в условиях двойного ω - k -резонанса, зная одну из этих величин можно определить две другие. При этом, неизвестная величина τ определяется (в том же эксперименте) по угловой ширине синхронизма для генерации второй гармоники. Значение для полуширины линии комбинационного рассеяния Γ определяется из ω -спектра,

полученного при условии "компенсации" нерезонансного фона (кривая 3 на рис. 2). Величина $\chi^{(2)}$ измеряется достаточно точно по генерации второй гармоники, и чаще всего бывает известна [8], поэтому по ней удобнее всего калибровать неизвестные величины резонансной и нерезонансной кубической нелинейности.

Измерение χ^{NR} и $\bar{\chi}^R$ производится в два этапа: по $\chi^{(2)}$ из k -спектра определяется χ^{NR} , и, зная χ^{NR} , по ω -спектру определяется χ^R . При этом процедура измерения аналогична описанной в [9].

Произведенные измерения по спектрам полученным в кристалле формата лития дали следующие значения для компонент тензора (при $d_{24} = 2,98 \cdot 10^{-9}$ CGSE взятом из [10]) резонансной и нерезонансной кубической нелинейности вблизи линии $\Omega = 1070 \text{ см}^{-1}$) $\bar{\chi}_{2222}^R + 1,1 \cdot 10^{-12}$ CGSE, $\chi_{2222}^{NR} = +5,5 \cdot 10^{-13}$ CGSE.

Используя в выражениях (1) – (3) полученные таким образом значения для χ^{NR} и $\bar{\chi}^R$, были рассчитаны теоретические ω - и k -спектры (рис. 1,2), а также построена зависимость сигнала от ω и k в ω - k -пространстве (рис. 3).

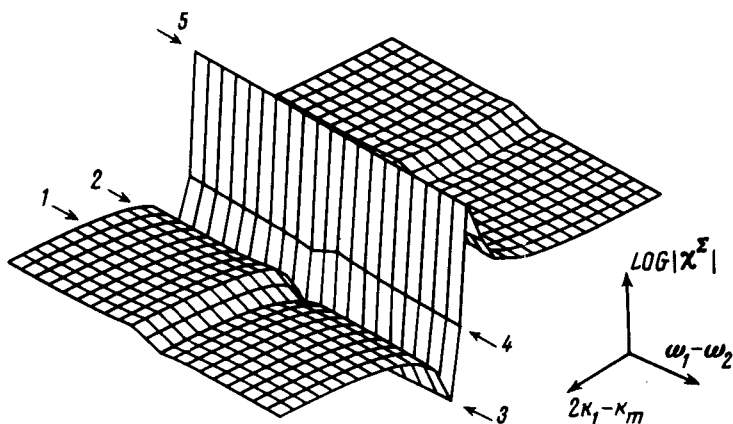


Рис. 3. Расчетная зависимость антистоксового сигнала от величин частотной и волновой растройки полученная из соотношений (1) – (3) на основании измеренных величин χ^{NR} и χ^R

В заключение, автор выражает благодарность Л.А.Кулевскому за поддержку работы, Ю.Н.Поливанову и К.А.Прохорову за полезные обсуждения.

Физический институт
им. П.Н.Лебедева
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
27 декабря 1977 г.

¹⁾ Отметим, что согласно [11], эта линия слабо проявляется в ИК спектрах. Следовательно, параметрическими процессами, связанными с возбуждением аномальной продольной волны [12], можно пренебречь.

Литература

- [1] Haim Lotem, R.T.Lynch, Jr., N.Bloembergen. Phys. Rev., A14, 1748, 1976.
- [2] А.Ф.Бункин, С.Г.Иванов, Н.И.Коротеев. Письма в ЖЭТФ, 24, 468, 1976.
- [3] S.D.Kramer, N.Bloembergen. Phys. Rev., B14, 4654, 1976.
- [4] R.T.Lynch, Jr., S.D.Kramer, Haim Lotem, N.Bloembergen. Opt. Comm., 16, 372, 1976.
- [5] В.Л.Стрижевский, Ю.Н.Яшкир. Квантовая электроника, 2, 995, 1975; Ю.Н.Поливанов, А.Т.Суходольский. Письма в ЖЭТФ, 25, 240, 1977.
- [6] С.А.Ахманов, Н.И.Коротеев. ЖЭТФ, 67, 1306, 1974.
- [7] С.А.Ахманов, Р.В. Хохлов. Проблемы нелинейной оптики, М., ВИНТИ, АН СССР, 1964 г.
- [8] Ф.Цернике, Дж. Мидвинтер. Прикладная нелинейная оптика, М., 1976 г.
- [9] M.D.Levenson, C.Flytsanis, N.Bloembergen. Phys. Rev., B6, 3962, 1972.
- [10] S.Singh, W.A.Bonner, J.R.Potopowicz, L.G.Van Uiret. Appl. Phys. Lett., 17, 292, 1970.
- [11] R.Vierne, M.Cadene. Ferroelectrics, 5, 256, 1973.
- [12] В.Л.Стрижевский. ЖЭТФ, 62, 1447, 1972.
-