

## НАБЛЮДЕНИЕ ИНТЕРФЕРЕНЦИИ ПРЯМЫХ И КАСКАДНЫХ ПРОЦЕССОВ ПРИ АКТИВНОЙ СПЕКТРОСКОПИИ ПОЛЯРИТОНОВ

*Ю.Н.Поливанов, А.Т.Суходольский*

Экспериментально обнаружено, что интерференция трех- и четырех-фотонных процессов приводит к деформации формы линии и появлению дублетной структуры в спектрах АСКР света на поляритонах. Определен знак и величина эффективной нелинейной восприимчивости третьего порядка  $\chi_{\text{эфф}}^{(3)} \approx 1,9 \cdot 10^{-13}$  CGSE для кристалла  $\text{LiIO}_3$ .

При обычной активной спектроскопии комбинационного рассеяния (АСКР) света генерация сигнала происходит через промежуточное нераспространяющееся состояние [1]. Однако, в кристаллах без центра симметрии возможна также АСКР на дипольно-активных колебаниях,

которые вследствие сильной связи с поперечным электромагнитным полем трансформируются в поляритоны, собственные частоты которых зависят от величины и направления волнового вектора [2 - 4]. В связи с этим генерация сигнала АСКР в данном случае происходит через нелокальное промежуточное состояние и сигнал зависит не только от разности частот возбуждающих полей, но и от разности волновых векторов. Наблюдение этой зависимости было названо Де-Мартини [2] спектроскопией в  $k$ -пространстве.

В нецентросимметричных кристаллах в интенсивность сигнала АСКР дают вклад как прямые четырехфотонные процессы, так и каскадные трехфотонные процессы, идущие через поляритонные состояния. Вследствие когерентности рассеяния различные вклады не суммируются, а интерferируют, приводя, вообще говоря, к значительной деформации спектров АСКР как в  $\omega$ -, так и  $k$ -пространствах.

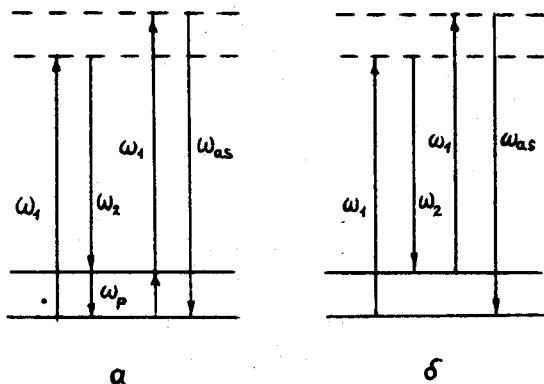


Рис. 1. Схема, иллюстрирующая каскадные трехфотонные (а) и прямые четырехфотонные (б) процессы, возникающие при АСКР света на поляритонах

Поясним, что каскадные трехфотонные процессы при АСКР света на поляритонах представляют собой два последовательных трехфотонных процесса: (а) возбуждение поляритонов частоты  $\omega_p$  в поле двух лазерных лучей с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$  ( $\omega_1 - \omega_2 = \omega_p$ ) и (б) рассеяние пробной волны частоты  $\omega_1$  на возбужденных таким образом поляритонах ( $\omega_{as} = \omega_p + \omega_1 = 2\omega_1 - \omega_2$ ) (рис. 1, а). Каждый из указанных процессов обусловлен квадратичной нелинейностью кристалла  $\chi^{(2)}$ , а их наибольшая эффективность достигается при выполнении условий синхронизма:  $k_p - (k_1 - k_2) \equiv \Delta k_p = 0$  и  $k_p - (k_{as} - k_1) \equiv \Delta k = 0$ , где  $k_1$ ,  $k_2$ ,  $k_p$  и  $k_{as}$  — соответствующие волновые вектора. Прямой четырехфотонный процесс представляет собой смешение полей излучения трех лазеров ( $\omega_{as} = 2\omega_1 - \omega_2$ ), обусловленное кубической нелинейной восприимчивостью кристалла  $\chi^{(3)}$  (рис. 1, б). Максимальная эффективность этого процесса достигается при условии  $k_{as} - (2k_1 - k_2) \equiv \Delta k_{as} = 0$ .

Настоящая работа посвящена первому экспериментальному исследованию влияния эффектов интерференции прямых и каскадных процессов на спектры АСКР света на поляритонах.

Исследование спектров АСКР света на поляритонах проводилось в кристалле  $\text{LiIO}_3$ , поляритонные спектры которого хорошо изучены [5]. Возбуждение поляритонов осуществлялось излучением второй гармоники (частота  $\omega_1$ ) лазера модулированной добротности на иттрий-алюминиевом гранате, работающем в режиме  $TEM_{00}$  моды с частотой повторе-

ния до 20  $\mu$ , и излучением перестраиваемого лазера на красителе родамина-6G (частоты  $\omega_2$ ) с ширинами линий генерации 0,2 и 1  $\text{см}^{-1}$  соответственно. Излучение на частоте  $\omega_{as} = 2\omega_1 - \omega_2$  регистрировалось с помощью ФЭУ-79. Сигналы с ФЭУ интегрировались и после логарифмирования подавались на самописец перемещение ленты которого осуществлялось синхронно с изменением длины волны лазера на красителе или с вращением исследуемого кристалла. Использование такой схемы регистрации позволило нам непосредственно записывать спектры АСКР в  $\omega$ - и  $k$ -пространстве.

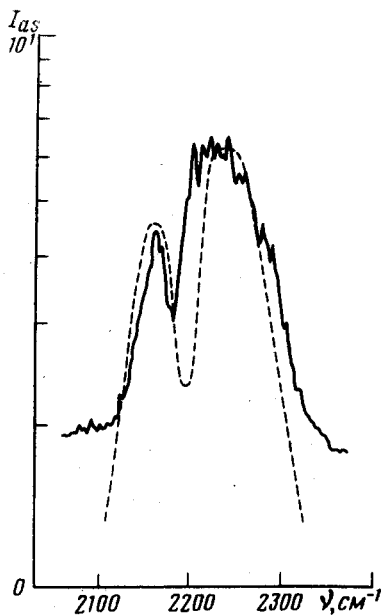


Рис. 2. Спектр АСКР в  $k$ -пространстве: сплошная кривая — экспериментальная, пунктирная — результат расчета,  $\theta_L$  — угол между волновым вектором излучения частоты  $\omega_1$  и оптической осью кристалла. Спектр получен при фиксированном значении  $\nu$  ( $\approx 2300 \text{ см}^{-1}$ )  $I_{as}$  — интенсивность сигнала АСКР в относительных единицах,  $\nu \equiv \omega/2\pi c = (\omega_1 - \omega_2)/2\pi c$

На рис. 2 представлен спектр АСКР света на поляритонах в  $k$ -пространстве, полученный путем изменения направления волновых векторов излучения лазеров по отношению к оптической оси кристалла, что осуществлялось вращением исследуемого образца при неизменной геометрии рассеяния. В данном случае ширина синхронизма в  $k$ -пространстве для прямых четырехфотонных процессов существенно превышала ширину синхронизма для каскадных трехфотонных процессов. Спектр был получен при условии совпадения центров синхронизмов для обоих процессов.

В  $\omega$ -пространстве, однако, ширины синхронизмов для прямых и каскадных процессов близки по величине и, поэтому, эффекты интерференции должны слабо проявляться для рассматриваемых процессов [6]. В связи с этим, для наблюдения эффектов интерференции в  $\omega$ -пространстве нами был получен спектр (рис.3) при незначительном (т. е. в пределах ширины синхронизма) рассогласовании центров синхронизма.

Сильная асимметрия и наличие провалов в спектрах, представленных на рисунках 2 и 3, свидетельствуют о влиянии эффектов интерференции прямых и каскадных процессов на спектры АСКР света на поляритонах.

На основе результатов теоретической работы [6] нами был проведен также расчет спектров АСКР. Результаты расчетов представлены на рисунках пунктирными кривыми. При этом использовались соотноше-

ния, соответствующие случаю слабой накачки и слабого поляритонного поглощения, который реализовывался в эксперименте. Данные по дисперсии поляритонов и показателям преломления для кристалла  $\text{LiIO}_3$  были взяты из работ [5, 7]. Заметим, что вид спектра существенным образом зависит от относительных вкладов прямых и каскадных процессов, определяемых в [6] параметром  $\rho'$ . Очевидно, например, что интерференция исчезает, если исключить один из механизмов рассеяния. Поэтому параметр  $\rho'$  подбирался таким образом, чтобы получить наилучшее согласие между экспериментальными и расчетными данными. Исходя из полученного таким образом значения  $\rho' \approx 0,15$  и известной величины нелинейной константы второго порядка  $d_{31} \approx 1,6 \cdot 10^{-8} \text{CGSE}$  [8] мы оценили величину эффективной нелинейной восприимчивости

третьего порядка  $\chi_{\text{эфф}}^{(3)} = \frac{c_{11}}{3} \cos^2 \theta_L + c_{16} \sin^2 \theta_L$  [9]:  $2,1 \cdot c_{11} + c_{16} \approx$

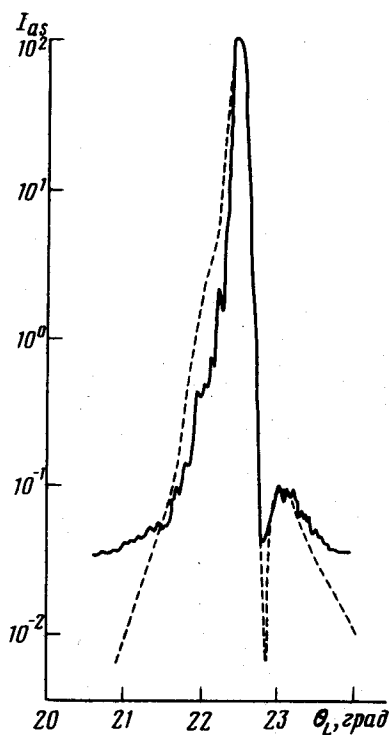


Рис. 3. Спектр АСКР в  $\omega$ -пространстве: сплошная кривая — экспериментально полученный спектр при  $\theta_L = 22,5^\circ$ , пунктирная — результат расчета

$\approx + 7,3 \cdot 10^2 d_{31}^2 = + 1,9 \cdot 10^{-13} \text{CGSE}$ . Отметим, что поскольку  $\chi_{\text{эфф}}^{(3)}$  определяется по отношению к квадрату величины  $d_{31}$ , то по знаку  $\rho'$  мы определяем абсолютный знак величины  $\chi_{\text{эфф}}^{(3)}$ .

В заключение еще раз подчеркнем, что согласно полученным экспериментальным результатам, для правильной интерпретации спектров АСКР света на поляритонах необходимо учитывать возможность появ-

ления нескольких максимумов за счет интерференции трех- и четырех-фотонных механизмов образования рассеянных волн.

Авторы благодарны Л.А.Кулевскому за поддержку работы и Г.Ф.Добржанскому за предоставление образцов кристалла  $\text{LiIO}_3$ .

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

Поступила в редакцию  
24 января 1977 г.

### Литература

- [1] С.А.Ахманов, Н.И.Коротеев. ЖЭТФ, 67, 1306, 1974; J.J.Wynne. Comm., Solid State Phys., 6, 31, 1974.
  - [2] J.P.Coffinet, F.De Martini. Phys. Rev. Lett., 22, 60, 1969.
  - [3] J.J.Wynne. Comm. Solid State Phys., 7, 7, 1975.
  - [4] Ю.Н.Поливанов, Р.Ш.Саяхов, А.Т.Суходольский. Краткие сообщения по физике (ФИАН) №12, 1976.
  - [5] L.A.Kulevsky, Yu. N.Polivanov, S.N.Poluektov. J. Raman Spectrosc., 3, 239, 1975.
  - [6] В.Л.Стрижевский, Ю.Н.Яшкир. Квантовая электроника, 2, 995, 1975.
  - [7] S.Umegaki, S.I.Tanaka, T.Uchiyama, S.Yabumoto. Opt. Comm., 3, 244, 1971.
  - [8] О.А. Акципетров, Г.М.Георгиев, Т.В.Лаптинская, А.Г.Михайловский, А.Н.Пенин. Квантовая электроника, 3, 926, 1976.
  - [9] J.E.Medwinter, J.Warner. Brit. J. Appl. Phys., 16, 1667, 1965.
-