УДК 543.42

КОГЕРЕНТНОЕ ЧЕТЫРЕХФОТОННОЕ РАССЕЯНИЕ НА НАКЛОННЫХ ПОЛЯРИТОНАХ В КРИСТАЛЛЕ *Li IO*,

К. Б. ПЕТРОСЯН, К. М. ПОХСРАРЯН

НИИ физики конденсированных сред ЕГУ

(Поступила в редакцию 15 мая 1984 г.)

Приведены результаты экспериментального исследования когерентного четырехфотонного рассеяния на поляритонах в Li IO₃ вблизи фононных резонансов. Измерение интенсивности антистоксовой волны в k-пространстве позволило определить коэффициент затухания поляритонной волны и оценить вклад двухкаскадного трехфотонного процесса в эффективную нелинейную воспринмчивость.

В последнее время техника когерентного четырехфотонного рассеяния находит широкое применение в спектроскопии твердого тела (см., напрамер, [1]).

Наличие когерентной поляритонной волны, возникшей в нецентросимметричном кристалле в процессе генерации разностной частоты, можно регистрировать либо прямым детектированием волны $v_n = v_2 - v_1$ ($v_1, v_2 - v_1$ частоты опорных волн, v_n — частота поляритонной волны), лежащей в ИК диапазоне [2], либо с помощью процесса четырехфотонного когерентного рассеяния [3, 4]. Несмотря на более высокий порядок нелинейного процесса, второй способ является более удобным, так как дает возможность преобразовать частоту поляритонной волны в видимую область спектра, где поглощение кристалла мало. Кроме этого указанный процесс представляет самостоятельный физический интерес, в частности, позволяет исследовать интерференцию между нелинейными восприимчивостями различных порядков [5]. Когерентное антистоксово рассеяние на поляритонах верхней ветви в кристалле $Li IO_3$ было исследовано в работах [6, 7].

Настоящая работа посвящена когерентному четырехфотонному рассеянию на наклонных поляритонах в LilO, в непосредственной близости от фононных резонансов.

Схема экспериментальной установки приведена на рис. 1а. В качестве задающего генератора использовался лазер на АИГ: Nd^{3+} , работающий в режиме пассивной синхронизации мод и излучающий цуг сверхкоротких импульсов. С помощью ячейки Поккельса из цуга выделялся один импульс, который затем усиливался двумя каскадами усилителей на АИГ: Nd^{3+} . Параметры основного излучения перед каскадами преобразования частоты были следующими: частота $v_1 = 9396,7$ см⁻¹, энергия — 70 мДж, длительность ~ 40 пс (измерялась методом пучка второй гармоники [8]), диаметр пучка — 4 мм, расходимость — 0,8 мрад. Частота основного излучения удваивалась в кристалле KDP длиной 15 мм (тип взаи-154 модействия оо—е, эффективность преобразования — 60%). Излучение второй гармоники с частотой v = 18793,5 см⁻¹ использовалось для накачки параметрического генератора света (ПГС) на двух кристаллах КDP длиной 40 мм. (тип взаимодействия е—ео, эффективность преобразования — 15%). Область перестройки частоты ПГС составляла 7143— 11905 см⁻¹.

В качестве опорных волн при когерентном возбуждении поляритонов использовались волна основного излучения и сигнальная волна ПГС с



Рис. 1. а) Схема экспериментальной установки: 1— задающий генератор ультракоротких импульсов на АИГ: Nd^{3+} , 2— электрооптический затвор Поккельса, 3— усилители на АИГ: Nd^{3+} , F— различные светофильтры, L— цилиндрические линзы, $\lambda/2$ — полуволновая пластинка, M— 100% зеркало на длине волны $\lambda_1 = 1,064$ мкм. 6) Взаимная ориентация волновых векторов взаимодействующих волн.

частотой v₂, перестранваемая в диапазоне 9396,7—11905 см⁻¹, а в качестве пробной — волна второй гармоники.

Следует отметить, что использование ПГС в схемах активной спектроскопии позволяет изменять расстройку между частотами опорных волн, начиная с нуля, что существенно при исследовании низкочастотных колебаний (обычно для этой цели используют два лазера на красителях [4]).

В выбранной нами схеме излучение второй гармоники и колинеарно с ней сигнальная волна ПГС направлялись на исследуемый кристалл перпендикулярно входному торцу. Основное излучение отводилось 100% зеркалом M и направлялось на кристалл под углом β . В экспериментах регнстрировалась антистоксова волна зондирующего излучения. Взаимная ориентация волновых векторов взаимодействующих волн представлена на рис. 16. Изменением угла β обеспечивалось выполнение условия четырехво лнового синхронизма: $\Delta \mathbf{k}_a \equiv \mathbf{k} + \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_a \equiv 0$ (\mathbf{k}_1 , \mathbf{k}_2 , \mathbf{k} , \mathbf{k}_a -вол новые векторы соответственно основного излучения, параметрической волны, второй гармоники и антистоксова излучения). Все волны имели обыкновенную поляризацию, т. е. осуществлялось взаемодейстие $o_1 o_2 o - o_2$.

11

В экспериментах использовался образец кристалла LilO, длиной 15 мм, вырезанный под углом $\vartheta = 30^\circ$ к оптической оси z.

Чтобы избежать возможных искажений активных спектров на входе в кристалл интенсивности основного излучения и второй гармоники ограничивались на уровне 10—15 МВт/см², а интенсивность сигнальной волны ПГС — на уровне 1 МВт/см². В этих условиях имела место линейная зависимость интенсивности антистоксова излучения от интенсивностей опорных волн и волны зондирующего излучения.

Как известно, в нецентросимметричных кристаллах, когда волна разностной частоты попадает в поляритонную область, т. е. $v_2 - v_1 = v_n$, одновременно с четырехфотонным процессом $v_a = v + v_2 - v_1$ могут идти также и двухкаскадные процессы с квадратичной нелинейностью. Наибольшая эффективность указанных процессов достигается, когда кроме $\Delta \mathbf{k}_a = 0$ выполняется также условие фазового синхронизма для промежуточного трехфотонного процесса: $\Delta \mathbf{k}_n = \mathbf{q} - \mathbf{k}_n$ (\mathbf{k}_n — волновой вектор поляритовной волны, определяемый из дисперсионного уравнения, $\mathbf{q} = \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$).

Дисперсионное уравнение наклонных поляритонов в Li IO₃ можно представить в следующем виде [9]

$$\frac{4\pi^2 v_n^2}{|\mathbf{k}_n|^2} = \frac{\sin^2 \vartheta_n}{\varepsilon_A} + \frac{\cos^2 \vartheta_n}{\varepsilon_{E_1}}, \qquad (1)$$

где ϑ_n — угол распространения поляритонной волны относительно оптической оси z, $\varepsilon_{E_1}(v_n)$ и $\varepsilon_A(v_n)$ — диэлектрические проницаемости среды соответственно для обыкновенной (E_1) и необыкновенной (A) поляритонных волн.

Ив дисперсионного уравнения следует, что в выбранной нами геометрии рассеяния в Li IO, возможно когерентное возбуждение наклонного поляритона с частотой $v_n = 783,5 \text{ см}^{-1}(\vartheta_n = 75,5^\circ, |\mathbf{k}_n| = 13899 \text{ см}^{-1}), при. втом угол между волнами бигармонической накачки <math>\psi = 5,19^\circ$ (см. рис. 16).

На рис. 2 представлена измеренная в эксперименте зависимость относительной интенсивности антистоксова излучения $I_a/I_1I_2I \sim |\chi_{s\phi}^{(3)}|^2$ от частотной расстройки $\Delta v = v_2 - v_1$ между опорными волнами в области 750—800 см⁻¹, что соответствует изменению угла β в интервале 9,47— 9,80° (I_1 , I_2 , I, I_a — интенсивности соответственно основного излучения, параметрической волны, второй гармоники и антистоксова излучения, $\chi_{s\phi}^{(3)}$ — эффективная нелинейная восприимчивость). Первый максимум соответствует частоте $\Delta v = 769$ см⁻¹, которая является одной из собственных частот поперечного оптического фонона симметрии E_1 [10]. Проявление максимума, по-видимому, связано с резонансным вкладом втого фонона в прямой четырехфотонный процесс. Второй максимум приходится на частоту $\Delta v = 783$ см⁻¹ и связан с выполнением условия фазового синхронизма $\Delta k_n = 0$, что приводит к каскадному рассеянию.

Характерная особенность наклонных поляритонов — зависимость их частоты от направления волнового вектора — позволяет при фиксированной частотной расстройке Δv исследовать зависимость интенсивности антистоксовой волны от $|\Delta \mathbf{k}_n|$, сохраняя при этом $|\mathbf{q}| = |\mathbf{k}_n|$.

156

Если вращать кристалл Li IO, на малые углы в плоскости анизотропии (при выполнении $\Delta \mathbf{k}_a = 0$), будет меняться только направление q и, следовательно, условие фазового синхронизма для промежуточного каскад-



Рис. 2. Активный спектр кристалла LilO, в @-пространстве.

ного рассеяния. Естественно, вращение кристалла не должно влиять на интенсивность четырехфотонного антистоксова рассеяния на поперечном оптическом фононе.

На рис. 3 показана зависимость интенсивности антистоксова излучения от угла вращения кристалла Дф при фиксированных расстройках



Рис. 3. Активные спектры кристалла *Li IO*₃ в k-пространстве для частотных расстроек между волнами бигармопической накачке △у=769 см⁻¹ () и △у = 783 см⁻¹ (○).

 $\Delta v = 769 \text{ см}^{-1}$ и $\Delta v = 783 \text{ см}^{-1}$. Как и следовало ожидать, при $\Delta v = 769 \text{ см}^{-1}$ интенсивность антистоксова сигнала не меняется, а при

 $\Delta v = 783 \, \mathrm{cm^{-1}}$ имеет место заметная зависимость от $\Delta \phi$, причем максимум приходится на угол $\Delta \phi = 0$, при котором наблюдался второй максимум на рнс. 2. Это обстоятельство свидетельствует о том, что при $\Delta v = 783 \, \mathrm{cm^{-1}}$ происходит когерентное каскадное рассеяние на сфазированных по объему поляритонах. Исследование активных спектров в k-пространстве позволяет разделить резонансы на $\Delta v = 769 \, \mathrm{cm^{-1}}$ и $\Delta v = 783 \, \mathrm{cm^{-1}}$ и тем самым исследовать характеристики наклонных поляритонов.

Согласно Де Мартини [3] при когерентном четырехфотонном рассеянии на поляритонах выражение для интенсивности антистоксова излучения имеет вид

где l — длина взаимодействия, d_E , d_Q — коэффициенты нелинейной связи, N — объемная плотность элементарных ячеек, v_0 — частота поперечного оптического фонона, Γ — коэффициент затухания осциллятора, μ — приведенная масса элементарной ячейки, e — эффективный заряд осциллятора, ε — высокочастотная диэлектрическая проницаемость, ε_0 — статистическая диэлектрическая постоянная.

В эксперименте выполнялось условие $\Delta \mathbf{k}_a = 0$, поэтому $I_a(|\Delta \mathbf{k}_n|)$ эпределяется функцией $|\mathcal{R}|^2$. Последняя представляет собой лоренцову кривую с максимумом при $|\Delta \mathbf{k}_n| = 0$, полная ширина которой дает коэффициент затухания поляритонной волны $\alpha = 2 |\mathbf{k}_n|$. Измеренный нами коэффициент затухания поляритонной волны с частотой $\nu_n = 783$ см⁻¹ составил $\alpha = 42$ см⁻¹.

Изменением угла $\Delta \varphi$ при смещении от направления синхронной генерации наклонного поляритона ($\Delta \mathbf{k}_n = 0$) можно исключить влияние трехфотонного каскадного рассеяния и оценить тем самым его вклад в эффективную нелинейную восприимчивость $\chi_{3\Phi}^{(3)}$. Как видно на рис. 3, нарушение условия $\Delta \mathbf{k}_n = 0$ приводит к уменьшению $\chi_{3\Phi}^{(3)}$ в ~ 1,3 раза. Характерный «пьедестал» на рис. 3 при $\Delta v = 783$ см⁻¹ обусловлен прямым четырехфотонным рассеянием.

Таким образом, полученные результаты показывают, что исследование четырехфотонного когерентного рассеяния в анизотропных нецентросимметричных кристаллах позволяет определить различные характеристики наклонных поляритонов.

ЛИТЕРАТУРА

1. Нелинейная спектроскопия. Под ред. Н. Бломбергена. Изд. Мир, М., 1979.

158

2, De Martini F. Phys. Lett., 30A, 319 (1969).

3. Coffinet J. P., De Martini F. Phys. Rev. Lett., 22, 60 (1969).

4. Wynne J. J. Phys. Rev. Lett., 29, 650 (1972).

5. Стрижевский В. Л., Яшкир Ю. Н. Квантовая электроника. 2, 995 (1975).

6. Поливанов Ю. Н., Суходольский А. Т. Письма в ЖЭТФ, 25, 240 (1977). 7. Поливанов Ю. Н., Суходольский А. Т. Квантовая электроника, 5, 1689 (1978).

8. Janszky J., Corradi G., Gyuzalian R. N. Opt. Commun., 23, 293 (1977).

9. Поливанов Ю. Н. УФН, 126, 185 (1978).

10. Otaguro W. et al. Phys. Rev., B4, 4542 (1971).

ԹԵՔՎԱԾ ՊՈԼՅԱՐԻՏՈՆՆԵՐԻ ՎՐԱ ՔԱՌԱՖՈՏՈՆԱՅԻՆ 40266665 86060 Lilos 6306660.050

4. Բ. ՊԵՏՐՈՍՅԱՆ, Կ. Մ. ՓՈԽՍՐԱՐՅԱՆ

Բերված են Բերված պոլյարիտոնների վրա ֆոնոնային ռեզոնանսների մոտակալթում բառաֆոտոնային կոճերենտ ցրման փորձնական ճետաղոտությունների արդյունըները։ Է-ապեկարոսկոպիայի միջոցով որոչված է թեթված պոլլարիտոնների կլանման գործակիցը, գնամատdus & they while as a smith chimin they actual ban from the stand of t

COHERENT FOUR-PHOTON SCATTERING ON OBLIQUE POLARITONS IN THE Lilo, CRYSTAL

K. B. PETROSYAN, K. M. POKHSRARYAN

Results of experimental investigation of coherent four-photon scattering on oblique polaritons in L1/O, crystal in the vicinity of resonances are given. The coefficient of oblique polaritons absorption is defined by means of k-spectroscopy and the contribution of a three-photon process to efficient nonlinear susceptibility is estimated.