УДК 535.375

СУПЕРПОЗИЦИЯ ПРОЦЕССОВ КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ И ЧЕТЫРЕХФОТОННОГО ПАРАМЕТРИЧЕСКОГО РАССЕЯНИЯ ПРИ ВКР ПИКОСЕКУНДНЫХ ИМПУЛЬСОВ СВЕТА В КРИСТАЛЛЕ *Lilo*₃

Г. Г. ГРИГОРЯН

Институт физических исследований АН АрмССР

(Поступила в редакцию 14 июня 1989 г.)

Экспериментально исследовано подавление усиления вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) в кристалле LilO₃, обусловленное суперпозицией процессов комбинационного рассеяния (КР) и четырехфотонного параметрического рассеяния (ЧПР). Дана количественная интерпретация наблюдаемой угловой структуры антистоксова излучения при различных геометриях рассеяния. Контрольным экспериментом с использованием ВКР назад подтверждено, что подавление усиления ВКР в исследуемом случае обусловлено суперпозвцией процессов КР и ЧПР.

Суперпозиция процессов комбинационного рассеяния (КР) и четырехфотонного параметрического рассеяния (ЧПР) при вынужденном комбинационном рассеянии (ВКР) на колебательных переходах впервые теоретически исследовалась в работе [1], а для случая поляритонного ВКР в [2]. Было показано, что суперпозиция указанных процессов пј чводит к подавлению процесса ВКР в направлениях точного фазового синуронизма для процесса ЧПР. Согласно теории, механизм подавления состоит в следующем. Одним из каналов, связывающих основной и возбужденный энергетические уровни колебательной системы, является процесс КР ($w_H \rightarrow w_c + \Omega$), в котором поглощается фотон на частоте накачки w_H , излучается фотон на стоксовой частоте w_c , и система переходит в возбужденное колебательное состояние.

В нелинейной среде, при выполнении условий фазового согласования ($\Delta \mathbf{K} = 2 \mathbf{K}_H - \mathbf{K}_c - \mathbf{K}_a$) может эффективно протекать процесс ЧПР ($2 \omega_H \rightarrow \omega_c + \omega_a$), в котором два кванта накачки рассеиваются в фотоны на стоксовой и антистоксовой частоте. Благодаря сильно связанным волнам, генерируемым в процессе ЧПР, возникает второй канал, связывающий те же уровни энертии.

Этим каналом является процесс КР ($\omega_a \rightarrow \omega_H + \Omega$), в котором поглощается фотон на антистоксовой частоте ω_a , излучается фотон на частоте накачки ω_H и система переходит в возбужденное состояние

Интерференция этих двух каналов рассеяния приводит к тому, что вероятность перехода между колебательными уровнями, а, следовательно, и интенсивность стоксовой и антистоксовой воли существенно зависят от относительных фаз взаимодействующих воли. В условиях фазового синхронизма ($\Delta \mathbf{K} = 0$) эта интерференция является деструктивной, т. е. в этих направлениях не генерируются ни стоксовы, ни антистоксовы волны.

Экспериментально этот интерференционный эффект должен проявляться в виде «провалов» интенсивности в угловом распределении излучения ВКР. Для случая стоксова излучения это явление впервые наблюдалось в работе [3]. Трудность экспериментального обнаружения этого эффекта в антистоксовом излучении, отмеченная в работе [1], заключается в малой угловой величине области подавления (по оценкам [1] $\sim 10^{-4}$ рад), что предъявляет жесткие требования к расходимости возбуждающего излучения. В работе [4] нами впервые был обнаружен провал интенсивности в угловом распределении антистоксового излучения при исследовании ВКР на поляритонах в кристалле йодата лития. В дальнейшем это явление наблюдалось авторами [5] при ВКР в сжатом водороде и дейтерии.

В настоящей работе исследовано подавление усиления ВКР, возбуждаемого пикосекундными импульсами света в кристалле LiIO₃ при различных геометриях рассеяния.

ВКР возбуждалось излучением второй гармоники пикосекундного лазера на фосфатном неодимовом стекле с пассивной синхронизацией мод. Излучение задающего генератора представляло собой цуг из $25 \div 30$ импульсов с длительностью ~ 30 пс каждый — и полной энертией ~ 3 мДж. Для сужения спектра излучения в резонатор в качестве селектирующего элемента помещалась плоскопараллельная стеклянная пластинка. Преобразование во вторую гарсмнику осуществлялось в кристалле КДП по схеме коллинеарного синхронизма типа $eo \rightarrow e$ с ковффициентом преобразования по энергии ~ 25%. Спектральная ширина излучения второй гармоники ($\lambda = 527$ нм) составляла ~ 3 см⁻¹.

Для исследования угловой структуры излучения ВКР в направлении вперед, излучение накачки тщательно коллимировалось с помощью телескопической системы из двух линз с фокусными расстояниями + 30 см и — 8 см. ВКР возбуждалось коллимированным пучком диаметром 1,5 мм, с интенсивностью 1÷2 Гвт/см². Использовались элементы кристалла йодата лития X, У и Z-срезов длиной 30 мм.

В элементах X и У-срезов ВКР возбуждалось на е-поляритонах, связанных с колебанием моды 795 см⁻¹ симметрии A(z). В элементах Z-среза ВКР развивалось на фононах частоты 820 см⁻¹.

Утловое распределение ВКР, при распространении возбуждающего излучения вдоль осей X или Y, исследовалось при обыкновенной и необыкновенной поляризациях волны накачки. Исследование угловой структуры стоксова и антистоксова излучения ВКР, а также контроль углового распределения возбуждающего излучения всуществлялись с помощью спектрографа ИСП-51 с камерой УФ-89 при снятой входной щели. Излучение, выходящее из кристалла, фокусировалось линзой с фокусным расстоянием f = 94 мм на плоскость входной щели спектрографа. Спектрально-утловое распределение рассеянного излучения контролировалось с помощью дифракционного спектрографа ДФС-8 по стандартной фотографической методике [6]. Для кристаллов X и У-срезов результаты исследования углового распределения ВКР оказались идентичными. В обоих случаях при обыкновенной поляризации накачки в угловом распределении первой антистоксовой компоненты ВКР наблюдалась отчетливая дублетная структура. Отметим, что возбуждающее излучение имело гладкое угловое распределение с расходимостью ~ 0,6 мрад (здесь и далее все угловые величины приведены для излучения внутри кристалла). Антистоксовое излучение имело вид двух концентрических колец с центром на линии волнового вектора накачки с угловыми радиусами 17 \pm 0,2 мрад и 18,3 \pm 0,2 мрад.

Угловой радиус центра темного кольца был равен 17,6±02 мрад. Соотношение интенсивностей двух колец зависит от плоскости рассеяния: в плоскости, содержащей оптическую ось (XOZ или YOZ) интенсивности практически одинаковы, а в перпендикулярной ей плоскости ХОУ внешнее кольцо в 2,5±0,5 раза ярче внутреннего. Угловое распределение излучения первой антистоксовой компоненты и его микрофотограмма, в плоскости ХОУ показаны на рис. 1.



Рис. 1. а), Угловое распределение излучения антистоксовой компоненты при распространении накачки вдоль оси У. 5) Микрофотограмма углового распределения антистоксовой компоненты в плоскости УОХ.

Дублетная угловая структура не наблюдалась при необыкновенной поляризации накачки. В этих случаях антистоксово излучение состояло из одного кольца с угловым раднусом $15,3\pm0,2$ мрад. В случае распространения накачки вдоль оптической оси кристалла ($K_H \parallel Z$), соответствующем рассеянию на фононах 820 см⁻¹, антистоксовое излучение также представляло собой одно кольцо с угловым радиусом $18,6\pm0,2$ мрад. В угловом распределении излучения первой стоксовой компоненты провал интенсивности в виде темного кольца отчетливо наблюдался для всех указанных выше геометрий рассеяния.

Частотный сдвиг первой стокссвой компоненты составлял 759— — 778 см⁻¹ для углов рассеяния 0÷35 мрад (в кристалле) при о—накачке, 740÷772 см⁻¹ для углов рассеяния 0÷31 мрад при с-накачке. Приведенные значения углов рассеяния соответствуют случаю коллимированной накачки. При распространении возбуждающего излучения вдоль оси Z частотный сдвиг составлял 820 см⁻¹ для всех углов рассеяния.

Для интерпретации наблюдаемых закономерностей была использована теория поляритонного ВКР с учетом суперпозиции процессов КР и ЧПР [2]. С помощью ЭВМ были рассчитаны коэффициент усиления и интенсивность антистоксова излучения I_a по формулам [2]

$$G = \frac{1}{\sqrt{2}} \left| -\Delta_2^2 + \mu \,\Delta_2 + \sqrt{\left(-\Delta_2^2 + \mu \,\Delta_2 \right)^2 + 4 \,\Delta_2^2 \,g_{\ell}^2} \right|^{1/2}, \quad (1)$$

$$I_{u} \sim \frac{g_{c} \left[q'^{2} + \left(\frac{\Delta k}{2} + q'' \right)^{2} \right]}{8 q' \left[q^{2} \right]} \exp \left(Gl \right), \qquad (2)$$

здесь $\mu = \varphi + 2 \tau g_c$, $\varphi = \frac{8 \pi w_c^{2/2} |A_H|^2}{c^2 K c y}$, $z = \frac{|K_H - K_c|^2 - {K'_n}^2}{K_n^2}$

—играет роль расстройки процесса поляритонного КР, γ — эффективная кубическая нелинейная поляризуемость, A_H — комплексная амплитуда заданной волны накачки, $g_c = \frac{g_c^{max}}{1 + \tau^3}$ — коэффициент усиления поляритонного ВКР без учета ЧПР с участием антистоксовой волны $(g_c^{max}$ не зависит от τ), $K'_n = 2\pi \tilde{\nu}_n \varepsilon'_n$, $K''_n = 2\pi \tilde{\nu}_n \varepsilon'_n$, $\varepsilon_n = \varepsilon'_n + i\varepsilon''_n$

дивлектрическая проницаемость среды на частоте поляритона, v_a — частота поляритона в см⁻¹. $Kc y = Kc \cdot \cos \theta_c$, $\Delta_2 \equiv \Delta K = 2K_H - K_c - K_a$ — расстройка ЧПР.

$$q' = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{|\Delta K|}{2} [A_1 - \mu]}, \qquad q'' = -\frac{1}{2} \sqrt{\frac{|\Delta K|}{2} [A_1 + \mu]} \cdot \operatorname{sign} \Delta K,$$
$$\operatorname{sign} \Delta K = \begin{cases} 1 \Delta K > 0 \\ -1 \Delta K < 0 \end{cases},$$
$$q|^2 = q'^2 + q''^2 = \frac{|\Delta K|}{4} \cdot A_1, \qquad A_1 \equiv \sqrt{\frac{\mu^2 + 4 g_c^2}{2}}.$$

Обе величины рассчитывались как функции двух переменных частоты поляритона $\hat{\omega}_n$ и угла рассеяния θ .

На рис. 2 приведены результаты расчета интенсивности антистоксова излучения $I_a(\tilde{\omega}_n, \theta)$ для рассеяния в плоскости ХОУ в случае о—накачки с интенсивностью $1\frac{\Gamma s m}{c m^2}$.

Характерным свойством семейства кривых $I_a(\omega_n, \theta)$ на рис. 2 является наличие двух максимумов в угловой зависимости интенсивности антистоксовой компоненты при фиксированной частоте поляритона. Один из максимумов соответствует положительной расстройке от положения точного синхронизма ЧПР, другой — отрицательной. В обеих областях имеется локальный максимум для определенной частоты, который и соответст-

вует тому углу и частоте (θ , ω_n), которые выходят в рассеяние в плоскости ХОУ. Из этих кривых получены следующие параметры углового распределения антистоксового излучения: угловой радиус провала θ_0^{α} , — угловые радусы внешнего θ_1^{α} и внутреннего θ_2^{α} колец, отношение их интенсивно-



Рис. 2. Кривые зависимости интенсивности антистоксовой компоненты (в относительных единицах) от угла рассеяния и частоты поляритона.

стей I₁/I₂ в плоскости ХОУ. Согласие с экспериментом удовлетворительное, что видно из таблицы.

| | эксперимент | расчет |
|-----------------------------|-------------------|--------|
| 0 ^a (мрад) | 17,6±0,2 | 18,0 |
| θ ^a ₁ | 18,3 <u>+</u> 0,2 | 18,3 |
| θ ^a ₂ | 17,0±0,2 | 17,5 |
| I_1 / I_2 | 2,5 <u>+</u> 0,5 | 3,4 |
| | | |

Отметим, что наблюдаемое явление суперпозиции и процессов рассеяния в поле цуга УКИ, в принципе не отличается от такого в поле одиночного импульса накачки, поскольку интервал между импульсами (~7 нс) намного превышает характерные времена релаксации исследуемой среды ($\lesssim 10^{-12}$ сек).

Однако при сравнении экспериментальных данных с расчетами, следует учитывать, что разброс интенсивности импульса вдоль цуга может привести к некоторому «размазыванию» угловой структуры рассеянного излучения. Расчеты по формуле (2) показали, в частности, что увеличение интенсивности накачки от І Гвт/см² до 1,5 Гвт/см² приводит к увеличению угловой ширины провала от 0,8 мрад до 1,4 мрад.

В частотно-угловом распределении антистоксового излучения провал интенсивности по частоте не наблюдался, что по всей вероятности, связано с достаточно широким спектром накачки (~3 см⁻¹) превышающим ожидаемую ширину провала ~ 1 см⁻¹ (рис. 2).

Расчеты, проведенные для случая е-накачки, показали, что коэффициент усиления в области положительных расстроек в несколько раз больше значения для области отрицательных расстроек. Этот «выброс» усиления приводит к огромной разнице в интенсивности внешнего и внутреннего кольца. Этим, по-видимому, и объясняется отсутствие дублетной структуры антистоксова излучения в случае е-накачки.

Отметим, что в случае о-накачки различие кооффициентов усиления для внешнего и внутреннего колец не превышает 5%.

Для проверки предположения о том, что провал интенсивности в угловом распределении стоксового и антистоксового излучения — результат суперпозиции процессов ВКР и ШПР был поставлен контрольный эксперимент. Идея контрольного эксперимента — проверить, будет ли наблюдаться провал интенсивности, если каким-либо образом исключить ШПР. Этого можно достичь при возбуждении ВКР в направлении назад относительно накачки, так как в этом случае ШПР отсутствует из-ва большой величины фазовой расстройки $\Delta K = 2 K_H + K_c + K$.

Как следует из результатов работ [7—9] режим ВКР, при котором обратное рассеяние превалирует над попутным, реализуется в том случае, когда инкремент попутного рассеяния уменьшается из-за параметрической связи стоксовых и антистоксовых волн. Это имеет место, если нормированная волновая расстройка достаточно мала: $\Gamma = \Delta_2/2 \pi GI \leq 0,1$ [7], где $\Delta_2 = |2 K_H - K_c - K_a|$, I— интенсивность накачки. Для достижения достаточной интенсивности обратного ВКР в контрольном эксперименте излучение накачки фокусировалось в кристалл $Li / 0_3$ линзой с f = 91 мм.

Контрольный эксперимент дал следующие результаты: в случаях (К_H $|X, E_H| Y$) и (К_H $|Y, E_H| X$) в излучении, рассеянном назад, в регистрируемом диапазоне углов рассеяния $0 \div 39,2 \pm 0,2$ мрад провал интенсивности отсутствовал; в направлении вперед в рассеянном излучении наблюдался провал интенсивности под углом 19,2±0,8 мрад шириной ~ 8 мрад.

Бо́льшая, по сравнению со случаем возбуждения ВКР коллимированным пучком (~ 5 мрад), ширина провала интенсивности обусловлена расходимостью излучения накачки при его фокусировке в кристалл.

Строго говоря, в случае поляритонного ВКР рассеяние в направлении вперед и назад происходит на разных участках поляритонной ветви (что обусловлено зависимостью частоты поляритона от величины волнового вектора). В условиях нашего эксперимента частотный сдвиг излучения, рассеянного вперед составлял 759 см⁻¹, а назад — 778 см⁻¹. Расчетные значения углов, соответствующих провалам интенсивности, определяемые из условия $\Delta \mathbf{K} = 0$ для этих частотных сдвигов весьма близки и равны 19,4 и 19,9 мрад, соответственно.

В случае фононного ВКР (К_H || Z) излучение, рассеянное вперед и назад имеет одну и ту же частоту. Как и в случае поляритонного ВКР, в излучении рассеянном назад провал не наблюдался, несмотря на то, что регистрируемый диапазон углов рассеяния ~ 41 мрад перекрывал ожидаемую угловую величину провала (~ 21 мрад). В излучении, рассеянном вперед, провал интенсивности наблюдался под углом 20,4±0,8 мрад к направлению излучения накачки. На рис. 3 приведены микрофотограммы у-



ловых распределений излучения, расссянного вперед и назад для случая

Рис. 3. Микрофотограммы углового

пределения первой стоксовой компоненты

для ВКР вперед (а) и ВКР назад (б) (метка — 10 мрад ссответствует угловым размерам в кристалле).

cac-

фононного ВКР. Таким образом, результаты контрольного эксперимента подтверждают, что подавление усиления ВКР в исследуемом случае действительно обусловлено суперпозицией процессов КР и ЧПР.

Автор искренне благодарен профессору Стрижевскому В. Л. и Согомоняну С. Б. за полезные обсуждения.

ЛИТЕРАТУРА

- 1. Bloembergen N. Shen Y. R. Phys. Rev. Leit., 12, 504 (1964).
- 2. Панарин А.М., Стрижевский В. Л. Квантовая электроника, 5, 1694 (1978).
- 3. Chiao R., Stoicheff B. P. Phys. Rev. Lett., 12, 290 (1964).
- 4. Григорян Г. Г., Согомонян С. Б., Стрижевский В. Л. Оптика и спектроскопия, 61, 998 (1986).
- :5. Dancan M. D. et al. Optics Lett., 11, 803 (1986).

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

7. Иванов В. Б. п. др. Квантовая электроника, 13, 857 (1986).

8. Дьяков Ю. Е., Никитин С. Ю. Квантовая электроника, 9, 1258 (1982).

9. Карпухин С. И., Яшин К. Е. Квантовая электроника, 11, 1992 (1984).

LilO₃ ԲՑՈՒՐԵՂՈՒՄ ԿՈՄԲԻՆԱՑԻՈՆ ՑՐՄԱՆ ԵՎ ՔԱՌԱՖՈՏՈՆ ՊԱՐԱՄԵՏՐԻ ՑՐՄԱՆ ՊՐՈՑԵՍՆԵՐԻ ՎԵՐԱԴՐՈՒՄԸ ԼՈՒՑՍԻ ՊԻԿՈՎԱՐԿՑԱՆԱՑԻՆ ԱԶԴԱԿՆԵՐԻ ՀԱՐԿԱԴՐԱԿԱՆ ԿՈՄԲԻՆԱՑԻՈՆ ՑՐՄԱՆ ԺԱՄԱՆԱԿ

Գ. Գ. ԳՐԻԳՈՐՅԱՆ

Φηρδωμμώτορδύ ζωσωματιμο ξ LilO3 ριαιράσιο ζωρματρομμώ ματρίωσματ σράσω (248) αισδημοσιώ δυγματο μαιτομικό ματρίωση το διατρομάτου το διατοματικό το διατοματικό ωμοματικό το διατοματικό το διατοματικό το διατοματικό το διατοματικό το διατοματικό ματοματικό το διατοματικό το δια το διατοματικό το διατοματί το διατοματικό το διατοματικό το διατικό το διατοματί το διατοματομομομομομο το διατοματί το διατοματί

THE SUPERPOSITION OF RAMAN SCATTERING AND PARAMETRIC FOUR-WAVE MIXING IN LiIO₃ GRYSTAL UNDER SRS OF PICOSECOND PUMP PULSES

G. G. GRIGORYAN

The gain suppression of stimulated Raman scattering in $LiIO_3$ crystal due to the superposition of Raman scattering and parametric four-wave mixing processes has been experimentally investigated. A quantitative interpretation of the observed angular structure of anti-Stokes emission for various soattering geometries is given. As was verified with a check-up experiment using the backward Raman scattering, the SRS gain suppression was due to the superposition of the processes of Raman scattering and four-wave mixing.

Изв. АН Армянской ССР, Физика, т. 25, вып. 2, 81-87 (1990)

УДК 539.186.22:546.32

ВЛИЯНИЕ БУФЕРНОГО ГАЗА НА ФИОЛЕТОВЫЕ ИЗЛУЧЕНИЯ, ВОЗНИКАЮЩИЕ В ПАРАХ КАЛИЯ ПРИ ДВУХФОТОННОМ ВОЗБУЖДЕНИИ

М. Е. МОВСЕСЯН, А. В. ПАПОЯН, С. В. ШМАВОНЯН

Институт физических исследований АН АрмССР

(Поступила в редакцию 15 апреля 1989 г.)

Исследовано влияние буферного газа на возникающие при двухфотонном возбуждении паров калия излучения на переходах $5P_{3/2}$, $_{1/2} \rightarrow 4S_{1/2}$. Приводятся зависимости энергий этих излучений от плотности паров калия, давления буферного газа, энергии возбуждающего излучения, а также их временные характеристики. С повышением давления буферного газа энергия и длительность фиолетовых излучений уменьшаются, а зависимость энергии от плотности паров калия из квадратичной приближается к экспоненциальной. Экспериментальные результаты сравниваются с теорией.