УДК 535.375.5+621.373 : 535

ДИХРОИЗМ В СПЕКТРАХ ВЫНУЖДЕННОГО КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ СВЕТА В КРИСТАЛЛАХ

А. М. Панарин и *В. Л. Стрижевский*

Существование собственных поляризаций стоксова излучения и отвечающих им собственных значений коэффициента усиления при вынужденном комбинационном рассеянии (ВКР) линейно поляризованного света обусловливает возникновение характерного дихроизма ВКР, аналогичного таковому в случае поглощения в анизотропных кристаллах (однако при ВКР речь идет о пространственном усилении, а не поглощении волн). Этот дихроизм вызван деформацией диэлектрической проницаемости среды полем накачки и проявляется как в изотропных, так и в кристаллических средах. Для неполносимметричных колебаний в кубических кристаллах, а также невырожденных колебаний в анизотропных кристаллах произвольного класса симметрии установлена связь параметров, описывающих данный эффект, с ориентацией вектора поляризации накачки $\mathbf{e}_0$ по отношению к кристаллографическим осям и элементами соответствующего тензора спонтанного комбинационного рассеяния. В случае кубических кристаллов при избранных ориентациях $\mathbf{e}_0$ симметрия накаченной среды, проявляющаяся в дихроизме ВКР, оказывается аксиальной, в общем же случае она отвечает двухосному кристаллу. При рассеянии на невырожденных колебаниях (в обычно справедливом предположении слабой собственной анизотропии кристалла на частоте рассеяния) симметрия накаченного кристалла является аксиальной при любой ориентации $\mathbf{e}_0$.

1. Одна из важных особенностей явления вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) света при возбуждении линейно поляризованной накачкой заключается в возникновении характерного дихроизма. В произвольном направлении могут возбуждаться рассеянные волны, обладающие вполне определенными собственными линейными поляризациями [1, 2], заданными ортами $\mathbf{e}_s^{(1,2)}$ ($\mathbf{e}_s^{(1)} \perp \mathbf{e}_s^{(2)}$, $\mathbf{e}_s^{(1,2)} \perp \mathbf{k}_s = \mathbf{n}_s\omega_s/c$, $\mathbf{k}_s$ — волновой вектор рассеянного излучения). Каждой из них отвечает соответствующее собственное значение коэффициента усиления $g_{1,\,2}$. Это свойство имеет место не только в анизотропных, но и в кубических кристаллах, а также в изотропных средах. При произвольной промежуточной между $\mathbf{e}_s^{(1,2)}$ поляризации рассеянного света $\mathbf{l}_s$ спектральная плотность поверхностной яркости излучения ВКР у выходной грани слоя (толщиной L) прозрачного слабо анизотропного рассеивающего вещества в стационарном режиме в приближении заданного поля накачки может быть найдена следующим образом:

$$B_s(\Omega_s, \omega_s) = B_s^0[\pi_1(e^{g_1L}-1)+\pi_2(e^{g_2L}-1)], \quad B_s^0=\frac{\hbar\omega_s^3 n_s^2}{8\pi^3c^2}, \quad \pi_{1,\,2}=(\mathbf{e}_s, \mathbf{e}_s^{(1,\,2)})^2, \quad \Omega_s=\frac{\mathbf{k}_s}{k_s}.$$

Указанное свойство аналогично дихроизму анизотропных кристаллов, связанному с анизотропией поглощения, только в данном случае речь идет о пространственном усилении, а не поглощении волн. Поэтому целесообразно говорить о дихроизме вынужденного комбинационного рассеяния. Причина возникновения дихроизма заключается в том, что поле накачки деформирует диэлектрическую проницаемость среды на частоте рассеяния ω_s, сообщая ей дополнительное слагаемое, пропорциональное тензору [1]

$$\lambda_{ij}=\sum_{\nu}\sum_{k,\,m} a_{ik}^{(\nu)}a_{jm}^{(\nu)}e_{0k}e_{0m}. \tag{1}$$

Здесь $\alpha_{ik}^{(\nu)}$ — тензор спонтанного комбинационного рассеяния в расчете на одну элементарную ячейку объемом v_0 (в случае кристаллов), индекс ν нумерует взаимно вырожденные по частоте колебания (если таковые имеются), e_{ok} составляющие по осям орта поляризации накачки e_0. В изотропных средах необходимо дополнительно усреднить (1) по всем ориентациям рассеивающих центров; ниже нас будет интересовать лишь случай кристаллов. Тензор λ_{ij} симметричен и веществен.

2. Если при отсутствии накачки среда оптически изотропна или слабо анизотропна на частоте рассеяния (таковыми можно считать большинство анизотропных кристаллов), свойства симметрии накачанной среды целиком определяются тензором λ_{ij}. Его главные оси выступают в роли главных осей тензора диэлектрической проницаемости накачанной среды и обычным образом (так же как в линейной кристаллооптике) определяют собственные поляризации $\mathbf{e}_s^{(1,2)}$. Для нахождения последних достаточно привести к главным осям двумерный тензор $\lambda_{\alpha\beta}$, где индексы α и β нумеруют составляющие λ_{ij} в плоскости, перпендикулярной $\mathbf{k}_s$. Обозначим главные значения этого двумерного тензора через $\bar{\lambda}_{1,2}$. Величины $g_{1,2}$, как нетрудно убедиться, используя результаты работы [1], выражаются через $\bar{\lambda}_{1,2}$ следующим образом:

$$g_{1,2}=G\bar{\lambda}_{1,2},\quad G=\frac{16\pi^2\omega_s I_e}{c^2 n_e n_s\cos\theta\hbar\tilde{\gamma}_f v_0(1+\varphi^2)},\quad \varphi=\frac{1-x^2}{\beta x},\quad \beta=\frac{\tilde{\gamma}_f}{\omega_f},\quad x=\frac{\omega_e-\omega_s}{\omega_f}.$$

Здесь n_e — показатель преломления на частоте накачки ω_e, I_e — ее интенсивность, θ — угол рассеяния, $\omega_f-i\tilde{\gamma}_{f/2}$ — частота колебания. Особенно просто обстоит дело в случае аксиальной симметрии тензора λ_{ij} (1), когда два из трех его главных значений $\lambda_{1,2,3}$ равны друг другу, например, $\lambda_1=\lambda_2=\lambda_\perp\neq\lambda_3=\lambda_\parallel$. При этом

$$g_1=G(\lambda_\perp+\Delta\lambda\sin^2\vartheta),\quad g_2=G\lambda_\perp,\quad \Delta\lambda=\lambda_\parallel-\lambda_\perp, \tag{2}$$

ϑ — угол между $\mathbf{k}_s$ и главной осью тензора λ_{ij}, которой отвечает главное значение $\lambda_\parallel$. Эта ось играет роль оптической оси накачанного кристалла C_H, причем орт $\mathbf{e}_s^{(1)}$ лежит в плоскости, проходящей через $\mathbf{k}_s$ и C_H («необыкновенная» рассеянная волна), а $\mathbf{e}_s^{(2)}$ перпендикулярен этой плоскости («обыкновенная» волна).

3. В работе [1] изучен, в частности, случай изотропных сред и полносимметричных колебаний кубических кристаллов, а в [2] — ВКР на полярных колебаниях. В то же время ВКР на неполносимметричных неполярных колебаниях кубических кристаллов требует дополнительного рассмотрения, результаты которого изложены ниже.

Рассмотрим сначала двукратно вырожденные колебания типа E в классах T, O и T_d или E_g в классах T_h и O_h. Пользуясь известными результатами исследования структуры тензоров $\alpha_{ij}^{(\nu)}$ ($\nu=1,2$) [3] и формулой (1), находим $\lambda_{ij}=2b^2\lambda_{ij}^0$, причем $\lambda_{ij}^0=2e_{0i}^2$, если $i=j$, и $\lambda_{ij}^0=-e_{0i}e_{0j}$, если $i\neq j$, а b — фигурирующая в [3] скалярная константа, которая определяет значения отличных от нуля элементов тензора $\alpha_{ij}^{(\nu)}$. Все три главных значения тензора λ_{ij}^0 (обозначим их как $\lambda_{1,2,3}^0$) в общем случае различны

$$\lambda_1^0=0,\quad \lambda_{2,3}^0=1\mp(1-f_1),\quad f_1=3(e_{01}^2e_{02}^2+e_{01}^2e_{03}^2+e_{02}^2e_{03}^2).$$

Это означает, что симметрия накачанного кристалла, вообще говоря, не является аксиальной. Орты собственных поляризаций рассеянного излучения $\mathbf{e}_s^{(1,2)}$ и соответствующие значения $\bar{\lambda}_{1,2}$ выражаются через $\lambda_{1,2,3}=2b^2\lambda_{1,2,3}^0$ обычными формулами линейной кристаллооптики для случая двухосных кристаллов, поэтому мы их здесь не выписываем. Особо следует выделить случай $f_1=0$. Это возможно, только если $\mathbf{e}_0$ параллельно одному из ребер куба. При этом $\lambda_1^0=\lambda_2^0=0$, $\lambda_3^0=2$, $C_H\parallel\mathbf{e}_0$ и, согласно (2), $g_1=4Gb^2\sin^2\vartheta$, $g_2=0$.

Рассмотрим теперь трехкратно вырожденные колебания. Сюда относятся типы симметрии F_g (класс T_h), F_2 (класс O) и F_{2g} (класс O_h), отвечающие неполярным колебаниям (а также F (класс T) и F_2 (класс T_d), отвечающие полярным колебаниям, если ограничиться областью достаточно больших углов рассеяния θ, в которой параметрические поляритонные процессы несущественны [2]). Используя вновь результаты [3] и обозначая через d константу, определяющую, согласно [3], значения отличных от нуля компонент тензоров $\alpha_{ij}^{(\nu)}$ ($\nu=1, 2, 3$), находим $\lambda_{ij}=d^2\lambda_{ij}^0$, где $\lambda_{ij}^0=1-e_{0i}^2$ при $i=j$ и $\lambda_{ij}^0=e_{0i}e_{0j}$ при $i\neq j$. Главные значения тензора λ_{ij}^0 определяются как корни уравнения $\lambda^0(\lambda^0-1)^2-f_2=0$, в котором $f_2=(2e_{01}e_{02}e_{03})^2$. При произвольной ориентации орта $\mathbf{e}_0$ все три корня $\lambda_{1,2,3}^0$ различны.

Отдельно следует выделить здесь случай, когда $\mathbf{e}_0$ лежит в плоскости σ одной из граней куба, образуя с одним из ребер a в плоскости σ угол ψ. В этом случае $f_2=0$ и $\lambda_1^0=\lambda_2^0=1$, $\lambda_3^0=0$, т. е. симметрия накачанного кристалла является аксиальной. Нетрудно убедиться, что ось $\mathbf{C}_H$ также расположена в плоскости σ и образует с ребром a угол $180° - \psi$. В частности, при $\psi=0$ или $90°$ $\mathbf{C}_H \parallel \mathbf{e}_0$. Соответствующие выражения для $g_{1,2}$, согласно (2), таковы: $g_1=Gd^2\cos^2\vartheta$ и $g_2=Gd^2$.

4. Обсудим еще случай невырожденных колебаний в слабо анизотропных на стоксовой частоте кристаллах произвольного класса симметрии. Здесь исследование тензора λ_{ij} (1) особенно упрощается, поскольку

$$\lambda_{ij}=\Lambda_i\Lambda_j, \Lambda_i=\sum_k \alpha_{ik}e_{0k}. \tag{3}$$

Нетрудно убедиться, что для такого тензора

$$\lambda_1=\lambda_2=\lambda_\perp=0, \quad \lambda_3=\lambda_\parallel=\Lambda_1^2+\Lambda_2^2+\Lambda_3^2. \tag{4}$$

Следовательно, симметрия «накачанной» среды здесь всегда аксиальная. «Оптическая ось» $\mathbf{C}_H$ может быть задана вектором

$$\mathbf{C}_H=(\Lambda_1, \Lambda_2, \Lambda_3). \tag{5}$$

Величины Λ_i при произвольных ориентациях $\mathbf{e}_0$ легко вычислить, пользуясь известными результатами исследования структуры тензора α_{ij} [3]. Для некоторых частных случаев соответствующие расчеты [без использования мультипликативного представления (3)] были проведены в [1]. Отметим, что в таблицах, содержащихся в [1], имеется несколько неточностей для некоторых невырожденных колебаний, однако уточнения, видимо, не требуются, поскольку задача определения величин $\lambda_{\parallel,\perp}$ и $\mathbf{C}_H$ на основе полученных здесь формул (3)—(5) становится совсем простой.

В заключение отметим, что в случае анизотропных кристаллов условие слабости анизотропии обозначает малость относительных разностей главных значений тензора диэлектрической проницаемости линейной теории на частоте ω_s. Этого, обычно справедливого, условия достаточно, благодаря тому что взаимно перпендикулярно поляризованные волны флуктуационного происхождения, выступающие в роли источников рассеянного излучения, почти некогерентны и поэтому не интерферируют между собой. В противном случае пришлось бы еще разлагать векторы $\mathbf{e}_s^{(1,2)}$ по собственным поляризациям ненакачанного кристалла и учитывать возникновение разности фаз обеих компонент на длине L. Для применимости полученных выше формул потребовалось бы тогда дополнительное условие малости L. Учет этого обстоятельства необходим, по-видимому, в случае усилителей на вынужденном комбинационном излучении, в которых исходный уровень стоксова излучения задается волной внешнего происхождения на входе нелинейной среды, однако этот случай здесь не рассматривается. Заметим, что дихроичные свойства усилителя на вынужденном комбинационном излучении в изотропной среде учтены в работе [4].

Литература

[1] В. Л. Стрижевский, В. В. Обуховский, А. М. Панарин. ЖЭТФ, *59*, 1667, 1970.
[2] В. Л. Стрижевский. ЖЭТФ, *62*, 1446, 1972.
[3] R. Loudon. Adv. Phys., *13*, 423, 1964; *14*, 621, 1965.
[4] В. Т. Платоненко, Р. В. Хохлов. Опт. и спектр., *18*, 369, 1965.

Поступило в Редакцию 8 февраля 1972 г.