

О ДОПОЛНИТЕЛЬНОМ ИЗЛУЧЕНИИ
КОМПОНЕНТ ВКР В КАЛЬЦИТЕ

М. А. Кажлаев, Б. М. Атаев и М. И.-А. Штанчаев

Обнаружены новые максимумы в угловом распределении антистоксовых компонент ВКР в кальците в специальных условиях возбуждения. Проведен расчет углов дополнительного излучения антистоксовых компонент на основе теории ВКР, развитой в [2]. Показано, что углы экспериментально наблюдаемых максимумов находятся в хорошем согласии с расчетными углами.

Одним из интересных явлений, сопровождающих ВКР света, в случае, когда исследуемое вещество находится вне лазерного резонатора, является направленное по образующим конусов излучение высших компонент [1]. В настоящее время имеется несколько точек зрения на эту особенность углового распределения компонент ВКР. Одна из этих точек зрения предполагает, что в среде одновременно с плоской волной рассеиваемого излучения существуют плоские (во всем объеме) волны рассеянного излучения [2]. Предсказываемые этим подходом углы излучения компонент ВКР (по отношению к направлению волнового вектора накачки), а также соответствующие им углы поглощения в 1-й стоксовой компоненте определяются следующими условиями для волновых векторов [2]:

$$\left. \begin{aligned} k_m - k_{m-1} &= k_0 - k_{-1}^{(m)}, \\ k_{m+1} - k_m &= k_0 - k_{-1}^{(-m)}, \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

где k_0 , k_{-1} , k_m , k_{-m} — соответственно волновые векторы излучения лазера, 1-й стоксовой, m -й антистоксовой и m -й стоксовой компонент.

В работах [3], основанных на анализе поля излучения отдельных молекул-диполей, получены другие выражения для тех же углов

$$\left. \begin{aligned} k_m + mk_{-1}^{(m)} &= (m+1)k_0, \\ k_{-m} + (m-1)k_0 &= mk_{-1}^{(-m)}. \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

Расчетные значения углов, вычисленных на основе соотношений (1) и (2) для изотропных веществ с нормальной дисперсией, совпадают с точностью ошибки измерения с экспериментально измеренными значениями [4]. В анизотропных кристаллах при взаимодействии различных типов волн наблюдаются дополнительные максимумы в угловом распределении компонент ВКР [3], расчетные значения для которых из соотношений (1) и (2) существенно различаются между собой. Экспериментальное исследование углового распределения компонент ВКР в анизотропных кристаллах с целью получения дополнительного излучения проведено в [5]. Было показано, что в случае использования кристаллов со скошенными торцами наблюдается картина «чистого» рассеяния и углы дополнительного излучения находятся в хорошем согласии с соотношениями (2), а в случае кристаллов с плоскопараллельными торцами картина дополнительного излучения становится более сложной. В то же время в [3]

отмечалась возможность реализации предположений, заложенных в основе модели [2], когда исследуемое вещество находится в резонаторе и волновой вектор лазерного луча образует требуемый соотношениями (1) угол с осью резонатора. При больших уровнях накачки, когда $\alpha L \gg 1$, необходимость в специальном резонаторе отпадает.

Мы реализовали эту возможность и наблюдали отличные от наблюдавшихся ранее максимумы в угловом распределении антистоксовых компонент ВКР в кальците. Результаты эксперимента сравнивались с расчетными данными, полученными на основе соотношений (1).

Расчет дополнительных максимумов излучения антистоксовых компонент ВКР в одноосных кристаллах

Расчет углов дополнительного излучения компонент ВКР для одноосных кристаллов на основе соотношений (2) проведен в [3]. Ниже мы приведем аналогичный расчет на основе соотношений (1) для антистоксовых компонент ВКР.

Направления излучения антистоксовых компонент ВКР в одноосных кристаллах определяются обобщением верхней строки равенств (1)

$$\mathbf{k}_{m,\beta} - \mathbf{k}_{m-1,\beta} = \mathbf{k}_{01} - \mathbf{k}_{-1,\alpha}^{(m,\beta)}, \quad (3)$$

где второй нижний индекс — тип волны в кристалле (1 — обыкновенная, 2 — необыкновенная волна); $\alpha, \beta = 1, 2$; луч накачки предполагается обыкновенным. Из соотношения (3) вытекает, что если в активной среде присутствуют плоская волна накачки и волна $(m-1)$ -й антистоксовой частоты, то определяются одновременно два угла между направлениями волновых векторов: 1) первой стоксовой волны и волны накачки — $\Theta^{(m)}$; 2) m -й антистоксовой волны и волны накачки — Θ_m . Предварительно необходимо задать угол γ между плоскостями векторов $\mathbf{k}_0, \mathbf{k}_{m-1}$ и векторов $\mathbf{k}_0, \mathbf{k}_{-1}^{(m)}$. Вообще говоря, γ может принимать любые значения в интервале углов от $-\pi$ до π и это обстоятельство является существенным при рассмотрении общей картины углового распределения компонент ВКР [3]. В проведенных экспериментах наиболее четкая картина наблюдалась в направлении пересечения плоскости плоскости между оптической осью кристалла и волновым вектором волны накачки с антистоксовыми конусами. Этому направлению соответствует угол $\gamma = 0$. При этом из равенства (3) вытекает следующая система соотношений, определяющая углы $\Theta_m^{\alpha\beta}$,

$$\left. \begin{aligned} \sin \Theta_m^{\alpha\beta} &= \frac{k_{m-1,\beta}(\Theta_{m-1}^{\alpha\beta}) \Theta_{m-1}^{\alpha\beta}}{k_{01} + k_{m-1,\beta}(\Theta_{m-1}^{\alpha\beta})} + \\ &+ \left[\frac{2k_{-1\alpha}(\Theta_{\alpha\beta}^{(m)})}{k_{m\beta}(\Theta_m^{\alpha\beta})} \frac{k_{m\beta}(\Theta_m^{\alpha\beta}) + k_{-1\alpha}(\Theta_{\alpha\beta}^{(m)}) - k_{01} - k_{m-1,\beta}(\Theta_{m-1}^{\alpha\beta})}{k_{01} + k_{m-1,\beta}(\Theta_{m-1}^{\alpha\beta})} + \right. \\ &\left. + \frac{k_{m-1,\beta}(\Theta_{m-1}^{\alpha\beta}) k_{01} k_{-1\alpha}(\Theta_{\alpha\beta}^{(m)}) (\Theta_{m-1}^{\alpha\beta})^2}{k_{m\beta}(\Theta_m^{\alpha\beta}) (k_{01} + k_{m-1,\beta}(\Theta_{m-1}^{\alpha\beta}))^2} \right]^{1/2}, \\ \sin \Theta_{\alpha\beta}^{(m)} &= \frac{k_{m\beta}(\Theta_m^{\alpha\beta}) \Theta_m^{\alpha\beta} - k_{m-1,\beta}(\Theta_{m-1}^{\alpha\beta}) \Theta_{m-1}^{\alpha\beta}}{k_{-1,\alpha}(\Theta_{\alpha\beta}^{(m)})}. \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

$\Theta_{\alpha\beta}^{(m)}$. Здесь $k_{m\alpha} = \omega_m n_\alpha(\omega_m)/c$. В систему (4) входят также углы поглощения в первой стоксовой компоненте ($\Theta_{\alpha\beta}^{(m)}$). Соотношения (3), (4) допускают ряд возможных случаев. При $\alpha = \beta = 1$ имеем основное излучение. Остальные три случая ($\alpha \neq \beta, \alpha = \beta = 2$) соответствуют дополнительному излучению. Рассмотрим только один (реализованный в эксперименте) случай, допускаемый соотношениями (3), (4); луч накачки и первой стоксовой компоненты распространяется обыкновенными волнами, а исследуемая анти-

стоксова компонента является необыкновенной волной ($\alpha=1, \beta=2$). Приближенные значения соответствующих углов θ_m^{12} определяются из равенств (4) и для одноосных кристаллов подчиняются следующим соотношениям:

$$\theta_m^{12} = \frac{k_{m-1,2}(\theta_{m-1}^{12})\theta_{m-1}^{12}}{k_{01} + k_{m-1,2}(\theta_{m-1}^{12})} + \left[\frac{2k_{-11}}{k_{m2}(\theta_m^{12})} \frac{k_{m2}(\theta_m^{12}) + k_{-11} - k_{01}k_{m-1,2}(\theta_{m-1}^{12})}{k_{01} + k_{m-1,2}(\theta_{m-1}^{12})} + \frac{k_{m-1,2}(\theta_{m-1}^{12})k_{01}k_{-11}(\theta_{m-1}^{12})^2}{k_{m2}(\theta_m^{12})(k_{01} + k_{m-1,2}(\theta_{m-1}^{12}))^2} \right]^{1/2}, \quad (5)$$

$$k_{m\alpha}(\theta) = \frac{\omega_m}{c} n_\alpha(\omega_m, \vartheta), \quad \vartheta = \nu + \theta,$$

$$n_1(\omega, \vartheta) = n_1(\omega), \quad n_2(\omega, \vartheta) = \left[\frac{\sin^2 \vartheta}{n_{\parallel}^2(\omega)} + \frac{\cos^2 \vartheta}{n_{\perp}^2(\omega)} \right]^{-1/2}.$$

Здесь n_{\perp} — показатель преломления обыкновенной волны; $n_{\parallel} = \sqrt{\epsilon^{(0)}}$; ν — угол между оптической осью (ось x) и волновым вектором накачки. При малых значениях углов θ и ν можно ограничиться первым приближением из разложения показателя преломления n_2 в ряд по степеням величины ϑ^2

$$n_2(\omega_m) - n_2(\omega_m) = -\frac{n_1(\omega_m)}{2} \frac{n_{\perp}^2(\omega_m) - n_{\parallel}^2(\omega_m)}{n_{\parallel}^2(\omega_m)} \vartheta^2. \quad (6)$$

$\nu \cdot 10^2$, рад.	Значения Q_2^{12} (в единицах $\cdot 10^{-2}$ рад.)	
	эксперимент	теория
2.12	2.75	2.74
3.18	2.52	2.53
4.24	2.28	2.32
5.30	2.15	2.12
6.88	1.81	1.80

Относительная погрешность при вычислении разности $n_2 - n_1$ по формуле (6) не превышает значения $\vartheta^2/2$. Решение системы (5), определяющее вещественные положительные корни для θ_m^{12} , в общем случае затруднительно. Расчет углов дополнительного излучения 2-й антистоксовой компоненты в зависимости от угла ν мы провели на ЭВМ «Одра». Для численного расчета углов θ_2^{12} при $\gamma=0$ использовались данные о показателях преломления кальцита [6], частота перехода $\omega_0 = 1086 \text{ см}^{-1}$ соответствует полносимметричным колебаниям ионов CO_3^{2-} [7], частота падающей волны — частоте рубинового лазера. Величины n_{\perp} и n_{\parallel} для нужных длин волн были получены аппроксимацией $n_{\perp}(\lambda)$ и $n_{\parallel}(\lambda)$ по данным [6]. Полученные таким образом расчетные значения углов θ_2^{12} для нескольких фиксированных величин ν приведены в таблице.

Результаты эксперимента

В экспериментальной работе использовалась та же лазерная установка и методика регистрации антистоксовых компонент, что и в работе [5]. Отличие состояло лишь в том, что монокристаллы кальцита ориентировались таким образом, чтобы, во-первых, линейно поляризованный лазерный луч проходил через кристалл обыкновенной волной и, во-вторых, ось, перпендикулярная входному и выходному торцам кристалла, образовала требуемыми соотношениями (1) угол ($\sim 1.7^\circ$) с направлением волнового вектора накачки при каждом фиксированном угле ν между направлением этого же вектора и оптической осью кристалла. В проведенных таким образом экспериментах нам удалось сфотографировать достаточно четкую картину углового распределения 1-й и 2-й антистоксовых компонент. Типичные картины рассеяния, полученные при различных ν , приведены на рис. 1 и 2. На этих рисунках видны концентрические с пятном лазерного луча окружности основного излучения 1-й и 2-й антистоксо-

вых компонент. Углы этого типа излучения Θ_m^{11} не зависят от ν . Смещенные (относительно лазерного пятна) кольца соответствуют дополнительному излучению тех же компонент. Углы этого типа излучения зависят от ν . С увеличением ν соответствующие углы дополнительного излучения уменьшаются. Величины углов этого типа излучения находятся в хорошем согласии с расчетными углами, вычисленными на основе соотношений (2) [3-5].

На эти рисунках слева можно видеть полукольца дополнительного излучения другого типа. Наиболее четкая картина этого типа излучения наблюдалась лишь для 2-й антистоксовой компоненты. Расщепление этих полуколец от соответствующих колец основного излучения начинает проявляться при $\nu > 1.5^\circ$ и с дальнейшим увеличением угла ν растет

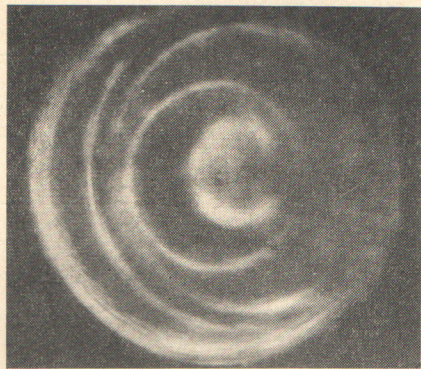


Рис. 1. Картина антистоксовых компонент ВКР в кальците, наблюдаемая при $\nu = 4.24 \cdot 10^{-2}$.

Видны концентрические с лазерным пятном окружности основного излучения 1-й и 2-й антистоксовых компонент, смещенные вправо окружности дополнительного излучения тех же компонент и полукольцо дополнительного излучения 2-й антистоксовой компоненты.

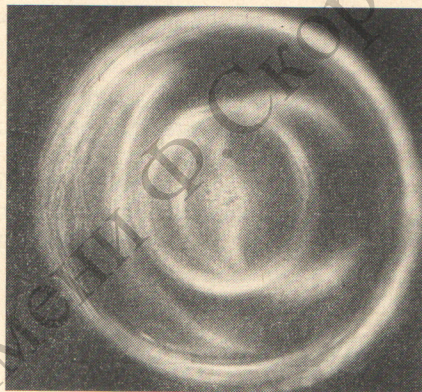


Рис. 2. Картина антистоксовых компонент ВКР в кальците, наблюдаемая при $\nu = 6.88 \cdot 10^{-2}$.

Видны концентрические с лазерным пятном окружности основного излучения 1-й и 2-й антистоксовых компонент, смещенные вправо окружность и полукольцо дополнительного излучения 2-й антистоксовой компоненты и характерный для углов $\nu > 5.3 \cdot 10^{-2}$ максимум в излучении 2-й антистоксовой компоненты, проходящей через лазерное пятно.

смещение и одновременно уменьшаются углы Θ_2^{12} . Видно также, что это излучение происходит вдоль образующих конических поверхностей более сложных форм, чем конусы вращения. Мы измеряли (при нескольких фиксированных ν) углы дополнительного излучения этого типа Θ_2^{12} в направлении пересечения плоскости между оптической осью кристалла и волновым вектором волны накачки с антистоксовыми конусами. Данные этих измерений приведены в таблице и находятся в хорошем согласии с расчетом, основанным на соотношениях (1). В то же время при $\nu > 5^\circ$ в угловом распределении 2-й антистоксовой компоненты проявляется еще один дополнительный максимум (на рис. 2 он проходит через лазерное пятно), природа которого неясна.

В заключение заметим, что в случае возбуждения ВКР вне лазерного резонатора в плоскопараллельных образцах анизотропных кристаллов соответствующей ориентации удается одновременно наблюдать дополнительные максимумы излучения антистоксовых компонент, подчиняющиеся как соотношениям (1), так и (2). По-видимому, это связано с тем, что в указанных условиях полное излучение первой стоксовой частоты состоит одновременно из генерируемых колебаний (согласно [2]) и набора статистически независимых сферических волн, излучаемых затравочными источниками (согласно [3]).

Литература

- [1] R. W. Terhune. Bull. Am. Phys. Soc., 8, 359, 1963; Sol. Stat. Design, 4, 38, 1963.
- [2] E. Garmire, F. Pandarese, C. H. Townes. Phys. Rev. Lett., 11, 160, 1963.
- [3] В. Н. Луговой. ЖЭТФ, 51, 931, 1966; Введение в теорию вынужденного комбинационного рассеяния. Изд. «Наука», М., 1968.
- [4] В. Н. Луговой. Препринт ФИАН, № 147, 1966.
- [5] Б. М. Атаев, В. Н. Луговой. ЖЭТФ, Письма в Редакцию, 7, 52, 1968; ФТТ, 7, 1991, 1968; Опт. и спектр., 26, 1045, 1969.
- [6] J. W. Gifford. Proc. Roy. Soc., 70, 329, 1902.
- [7] R. Chiao, B. P. Stoicheff. Phys. Rev. Lett., 12, 290, 1964.

Поступило в Редакцию 27 ноября 1974 г.

ЕПОЗИТОРИЙ ГГУ имени Ф. Скорин