

## ПАРАМЕТРИЧЕСКАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ ИНТЕНСИВНОСТЕЙ КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ СВЕТА

*Н. И. Лихолит, В. Л. Стрижевский и Ю. Н. Яшикир*

Теоретически и экспериментально исследованы закономерности параметрической спектроскопии интенсивностей спонтанного комбинационного рассеяния (КР) света, при которой излучение, возбуждающее КР, повторно используется для параметрического преобразования (ПП) рассеянного излучения с повышением его частоты. Найдены выражения, описывающие частотно-угловое распределение интенсивности рассеянного в нецентросимметричном кристалле на поляритонах или фонах излучения после ПП последнего в том же кристалле. Учет того обстоятельства, что как возникновение рассеянного света, так и его ПП происходит постепенно вдоль всего кристалла, обуславливает своеобразные закономерности в спектрах интенсивности детектируемого сигнала. Предсказания теории удовлетворительно согласуются с экспериментальными данными, полученными применительно к кристаллу ниобата лития. Предложена схема внутривибрационной параметрической спектроскопии КР и изучены ее преимущества, связанные с выигрышем в интенсивности сигнала. Методом параметрической спектроскопии также исследована зависимость интегральной интенсивности КР на верхней поляритонной ветви от частоты рассеяния в кристалле селенида галлия и обнаружен аномальный рост интенсивности рассеяния, обусловленный эффектом синхронизма групповых скоростей.

Недавно авторами реализован новый вариант нелинейной спектроскопии колебаний — параметрическая спектроскопия комбинационного рассеяния (ПСКР) света [1], суть которой состоит в том, что излучение накачки  $\omega_1$ , возбуждающее спонтанное комбинационное рассеяние (КР) света, используется одновременно для параметрического преобразования (ПП) стоксова излучения с генерацией суммарной частоты  $\omega_a = \omega_1 + \omega_s$ . Такая генерация может осуществляться в том же кристалле, в котором происходит КР, или в другом последовательно расположенном кристалле, если рассеивающая среда неактивна относительно ПП, непрозрачна в области частот  $\omega_a$  и др. ПСКР открывает новые возможности в спектроскопии КР, связанные прежде всего с тем, что в качестве накачки  $\omega_1$  можно использовать инфракрасное (ИК) излучение, что весьма актуально для сред, непрозрачных в видимом диапазоне. Важным примером последних могут быть многие полупроводники, спектры КР которых при традиционном возбуждении излучением видимого диапазона образуются за счет рассеяния лишь в тонком приповерхностном слое (с толщиной порядка длины поглощения) и снимаются в направлении назад [2]. Правда, рядом авторов уже исследовалось КР при возбуждении в ИК диапазоне посредством прямой регистрации рассеянного излучения [3-7], однако число работ этого рода крайне ограничено ввиду характерных трудностей регистрации слабых световых потоков в ИК области. В то же время методика ПСКР фактически устраняет эти трудности, поскольку в ней (при  $\omega_1$  в ближней ИК области) регистрируется излучение  $\omega_a$  в видимом диапазоне, где техника детектирования слабых световых потоков гораздо эффективнее и проще. Впрочем, изучение КР, возбуждаемого в ИК области, представляет, конечно, интерес и в средах, прозрачных в видимой области.

Из других достоинств ПСКР укажем здесь еще на значительное облегчение детектирования КР под предельно малыми углами рассеяния. Это



обусловлено устранением засветки накачкой, возбуждающей КР, поскольку она отсекается при ПП благодаря пространственной селекции нелинейно-оптических процессов преобразования частот [8].

В работе [1] обсуждались частотно-угловые характеристики рассеяния при ПСКР. В то же время почти не исследовалась спектроскопия интенсивностей. Эта проблема изучается в настоящей работе. В разд. 1 изложена разработанная нами теория интенсивностей при ПСКР в кристаллах на поляритонах или фононах в случае, когда КР и ПП происходят в одном и том же (нецентросимметричном) кристалле. Здесь своеобразно переплетаются стохастические процессы КР на шумовых возмущениях среды и когерентные параметрические процессы преобразования рассеянного излучения с повышением частоты [8, 9]. Если КР и ПП происходят в различных кристаллах, можно использовать известные методы и результаты расчетов ПП ИК сигналов [8, 10], поскольку в задаче о ПП с повышением частоты конкретное происхождение детектируемого сигнала несущественно. В разд. 2 приведены соответствующие экспериментальные результаты, выполненные применительно к кристаллу  $\text{LiNbO}_3$ , в частности, в целях сравнения теории с экспериментом. Экспериментальные данные удовлетворительно согласуются с предсказаниями теории. Наконец, разд. 3 посвящен исследованию интенсивности рассеяния на верхней поляритонной ветви кристалла  $\text{GaSe}$ , в котором наблюдался эффект синхронизма групповых скоростей, предсказанный ранее и обнаруженный в кристалле  $\text{LiJO}_3$  [11, 12].

## 1. Теория интенсивностей при параметрической спектроскопии комбинационного рассеяния света

Пусть в нелинейной рассеивающей среде (немагнитный кристалл без центра инверсии), расположенной между плоскостями  $z=0$  и  $z=L$ , распространяется заданная линейно поляризованная монохроматическая волна накачки  $\mathbf{E}_1(\mathbf{r}, t) = \mathbf{e}_1 A_1 \exp(i\mathbf{k}_1 \mathbf{r} - i\omega_1 t) + \text{с. с.}$  Здесь и далее  $\mathbf{e}$  — орты линейной поляризации взаимодействующих волн;  $A$  — скалярные амплитуды;  $\mathbf{k}$  — волновые вектора (в случае волн  $\omega_{1,s,a}$ );  $n$  — показатели преломления. Предположим сначала, что речь идет о КР на обыкновенных (о) поляритонах. Будем считать, что благодаря условиям синхронизма эффективно взаимодействуют волны фиксированных линейных поляризаций. На частотах  $\omega_{1,s,a}$  среду считаем прозрачной на поляритонной частоте  $\omega_p$  — поглощающей (в поляритонной области обычно имеет место сильное поглощение). Задачу рассматриваем как стационарную и поперечно однородную.

В среде одновременно происходит два процесса: КР и ПП с повышением частоты. Последовательное описание КР требует введения флуктуационных источников [13]. В работах [14, 15] была развита флуктуационно-диссипационная методика расчета интенсивностей КР, которой мы будем здесь следовать. Рассматривая полевые величины на частотах  $\omega_{s,p,a}$  как операторы в представлении Гейзенберга, разложим их в соответствии с симметрией задачи в интегралы Фурье по переменным  $x, y, t$

$$\mathbf{E}_\nu(\mathbf{r}, t) = \int_0^\infty d\omega_\nu \int d^2k_\nu \mathbf{e}_\nu A_\nu(z, \mathbf{k}_\nu, \omega_\nu) \exp(i\mathbf{k}_\nu \mathbf{r} - i\omega_\nu t) + \text{с. с.}, \quad \nu = s, p, a,$$

где

$$\mathbf{k}_{\nu\tau} = (k_{\nu x}, k_{\nu y}, 0), \quad k_{\nu z} = \sqrt{k_\nu^2 - k_{\nu\tau}^2}, \quad k_\nu^2 = \frac{\omega_\nu^2}{c^2} n_\nu^2 (\nu = s, a), \quad \mathbf{k}_p = \mathbf{w} = \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_s.$$

Фурье-образы обозначены как  $\mathbf{e}_\nu A_\nu(z, \mathbf{k}_\nu, \omega_\nu) \exp(i\mathbf{k}_\nu \mathbf{z})$ . Из стационарности задачи вытекает, что эффективно взаимодействуют волны, для которых  $\omega_p = \omega_1 - \omega_s$ ,  $\omega_a = \omega_1 + \omega_s$ , а из поперечной однородности — ана-



логичные условия  $\mathbf{k}_{p\tau} = \mathbf{k}_{1\tau} - \mathbf{k}_{s\tau}$ ;  $\mathbf{k}_{a\tau} = \mathbf{k}_{1\tau} + \mathbf{k}_{s\tau}$  (индекс  $\tau$  означает составляющую в плоскости  $z=0$ ), которые уже учтены при записи поля  $E_p$ . Отметим во избежание недоразумений, что  $\mathbf{k}_p = \mathbf{w}$  не есть волновой вектор свободных поляритонных волн  $\omega_p$ .

Величины  $A_s$  удовлетворяют системе укороченных уравнений, которые получаются на основе стандартной методики [16], и имеют следующий вид:

$$\frac{\partial A_s}{\partial z} = \frac{2\pi i q_s^2}{k_{sz}} (\chi_s A_1 A_p^+ + \chi_a A_s A_1^* e^{i\tau z}), \quad (1)$$

$$\frac{\partial A_a}{\partial z} = \frac{2\pi i q_a^2}{k_{az}} \chi_a A_1 A_s e^{-i\tau z}, \quad (2)$$

$$A_p^+ = 4\pi q_p^2 d_p^+ (\omega^2 - q_p^2 n_p^{*2})^{-1} e^{i\omega_p z}. \quad (3)$$

Здесь  $q_s = \omega_s/c$ ,  $\tau = k_{az} - k_{1z} - k_{sz}$ ,  $\chi_s = e^i e_1^j e_p^k \chi_{ijk}(\omega_1, -\omega_p)$ ,  $\chi_a = e^i e_1^j e_s^k \chi_{ijk}(\omega_1, \omega_s) \simeq e^i e_s^j e_1^k \chi_{ijk}(\omega_a, -\omega_1)$ ;  $\chi_{ijk}(\omega_1, \omega_2)$  — квадратичная нелинейная поляризуемость, ответственная за генерацию волны  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$  [16, 8]; по повторяющимся тензорным индексам подразумевается суммирование. Отметим, что первое слагаемое в (1) ответственно за прирост стоксова излучения, образующегося в ходе КР, а второе — за его истощение вследствие ПП. Оба процесса происходят одновременно в одной и той же среде, причем первый существенно влияет на второй.

Несколько более подробных пояснений требует уравнение для  $A_p$ . Оно записано в предположении, что на частоте  $\omega_p$  имеет место достаточно сильное поглощение, в результате чего: 1) коэффициент поглощения  $\alpha_p$  значительно превышает коэффициент усиления  $g$ , который обычно вводится в теории вынужденного КР или его предельного случая — спонтанного КР [14, 17], и описывает пространственное нарастание волн  $\omega_{s,p}$ , образующихся при рассеянии накачки  $\omega_1$ ; 2)  $\alpha_p L \gg 1$ . В этих условиях при спонтанном КР волна  $\omega_p$  практически не зависит от накачки и стоксовой волны и определяется в каждой точке среды равновесными флуктуациями поляризации на частоте  $\omega_p$ . Последние описываются величинами  $d_p(z, k_{p\tau}, \omega_p)$ , определенными аналогично  $A_s$  Фурье-компонентами флуктуационной части удельной поляризации среды. Величины  $A_p$  известны из теории равновесных электромагнитных флуктуаций [13], однако удобнее выразить их при помощи соответствующего укороченного уравнения, из которого по указанным выше причинам следует вычеркнуть слагаемые, ответственные за взаимодействие волн (они содержат нелинейность и пространственную производную от  $A_p$ ) сохранив лишь величины, отвечающие равновесным флуктуациям и пропорциональные  $d_p$ . Именно так и получено уравнение (3).

Далее, необходимо проинтегрировать уравнения (1)–(3) при граничных условиях  $A_{s,a}(0) = A_{s,a}^0$ , где  $A_{s,a}^0$  — известные вакуумные операторы полей [14]. Для перехода к наблюдаемым энергетическим характеристикам поля рассеянного излучения, преобразованного в результате ПП, следует затем образовать корреляционную функцию вида [14]

$$\langle A_a^+(L, k_{a\tau}, \omega_a) A_a(L, k'_{a\tau}, \omega'_a) \rangle = \varphi_a(L, k_{a\tau}, \omega_a) \delta(k_{a\tau} - k'_{a\tau}) \delta(\omega_a - \omega'_a). \quad (4)$$

Фигурирующая здесь величина  $\varphi_a$  непосредственно определяет, согласно [14], спектральную плотность поверхностной яркости у выходной грани кристалла в области частот  $\omega_a$

$$B_a(L, \mathbf{k}_{a\tau}, \omega_a) = \frac{cn_a}{2\pi} k_a^2 \cos \theta_a \varphi_a(L, \mathbf{k}_{a\tau}, \omega_a).$$

Величина  $B_a(L, \mathbf{k}_{a\tau}, \omega_a)$  представляет собой световой поток, излучаемый единицей видимой поверхности выходной грани кристалла в единичный телесный угол вблизи направления, образующего угол  $\theta_a$  с осью  $z$ ,



в расчете на единичный спектральный интервал вблизи данной частоты  $\omega_a$ . Корреляторы вида  $\langle d_p d_p^+ \rangle$  и др., необходимые при расчете (4), известны из теории равновесных электромагнитных флуктуаций [13, 14].

Проводя надлежащие расчеты, получаем следующий результат:

$$B_a = B_s^{\text{KР}} v_{\Omega} \tilde{\eta}_{\Omega} \quad (5)$$

Здесь  $B_s^{\text{KР}}$  — спектральная плотность поверхностной яркости у выходной грани кристалла, которая соответствовала бы процессу КР при отсутствии ПП. Эта величина может быть представлена в виде (ср. с [14])

$$B_s^{\text{KР}} = B_{sg}^0 L, \quad B_s^0 = \frac{\hbar \omega_s^3 n_s^2}{8\pi^3 c^2}, \quad g = \frac{16\pi^2 q_s^2 \gamma_s^2 |A_1|^2}{\epsilon_p'' k_{sz} (1 + \Delta^2)}, \quad \Delta = \frac{\omega^2 - q_p^2 \epsilon_p'}{q_p^2 \epsilon_p''}.$$

$B_s^0$  имеет смысл спектрально-угловой плотности соответствующего «квантового шума» в области частот  $\omega_s$ ;  $g$  — коэффициент усиления. Далее,  $v_{\Omega} = k_a^2 \cos \theta_a / k_s^2 \cos \theta_s$  ( $\theta_s$  — угол между  $\mathbf{k}_s$  и осью  $z$ ) — фактор, передающий угловое сжатие излучения на частотах  $\omega_a$  по сравнению с исходным излучением на частотах  $\omega_s$ . Такое сжатие является простым следствием сложения волновых векторов  $\mathbf{k}_a = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_s$ : при данном угловом разбросе на частоте  $\omega_s$  угловой разброс на частотах  $\omega_a$  будет, очевидно, тем меньше, чем больше длина вектора  $\mathbf{k}_1$ . Наконец, фактор  $\tilde{\eta}_{\Omega}$  имеет смысл энергетической эффективности преобразования  $\omega_s \rightarrow \omega_a$ . Выделив множитель  $\omega_a / \omega_s$ , введем квантовую эффективность преобразования  $\tilde{\eta}_{\text{к}}$ :  $\tilde{\eta}_{\text{к}} = \omega_a \tilde{\eta}_{\Omega} / \omega_s$ . Последняя определяется следующими выражениями

$$\tilde{\eta}_{\text{к}} = \eta_{\text{к}} f, \quad \eta_{\text{к}} = \frac{4\pi^2 \omega_a \omega_s \gamma_s^2 |A_1|^2 L^2}{c^2 n_a n_s \cos^2 \theta_a}, \quad (6)$$

$$f = 2 \frac{\Lambda - \sin \Lambda}{\Lambda^3}, \quad \Lambda = \sqrt{4\eta_{\text{к}} \frac{\cos \theta_a}{\cos \theta_s} + (\tau L)^2}.$$

Величина  $\eta_{\text{к}}$  формально совпадает с квантовой эффективностью ПП  $\omega_s \rightarrow \omega_a$  плоской волны  $\omega_s$  в условиях точного синхронизма при слабом преобразовании и при волне  $\omega_s$ , поступающей на вход кристалла извне (ср. с [8]). То обстоятельство, что волна  $\omega_s$  на самом деле рождается внутри кристалла и одновременно испытывает ПП в нем в области частот  $\omega_a$  при наличии волновой расстройки  $\tau$ , отображено фактором  $f$ . Тем самым физический смысл формулы (5) полностью ясен.

Как видно из (6), квантовая эффективность ПП  $\tilde{\eta}_{\text{к}}$  оказывается весьма своеобразной. Проанализируем ее, полагая для простоты, что реализуется квазиколлинеарная схема взаимодействия, т. е.  $\theta_a \approx \theta_s$ . При  $\Lambda \ll 1$ , т. е. при малых  $\eta_{\text{к}}$  и  $\tau L$ , будет  $f \approx 2/3$  и  $\tilde{\eta}_{\text{к}} \approx 2\eta_{\text{к}}/3$ . Если же  $\Lambda \gg 1$ , то  $f \approx 2/\Lambda^2$  и  $\tilde{\eta}_{\text{к}} \approx (2 + (\tau L)^2/2\eta_{\text{к}})^{-1}$ . Отметим, что, хотя  $\eta_{\text{к}}$  по своему виду формально и совпадает с квантовой эффективностью ПП для волны, поступающей в кристалл извне, в области  $\eta_{\text{к}} \ll 1$  (при  $\tau=0$ ) эта величина в формулах (6) вовсе не обязана быть малой; естественно, что если неравенство  $\eta_{\text{к}} \ll 1$  нарушено, величина  $\eta_{\text{к}}$  теряет вышеуказанный физический смысл и может быть названа квантовой эффективностью ПП лишь чисто формально. При  $\eta_{\text{к}} \gg 1$  и  $\eta_{\text{к}} \gg (\tau L)^2$  будет  $\tilde{\eta}_{\text{к}} \approx 1/2$ . Если  $\eta_{\text{к}} \ll 1$ , зависимость  $\Lambda$  от  $\eta_{\text{к}}$  можно пренебречь.

Поведение фактора  $\tilde{\eta}_{\text{к}}$  как функции  $\eta_{\text{к}}$  при  $\tau=0$  проиллюстрировано рис. 1. Как видно,  $\tilde{\eta}_{\text{к}}$  сначала возрастает от нуля, а затем совершает асимптотически затухающие осцилляции вокруг уровня 0.5. Последнее ясно из того, что при  $\tau=0$ , как вытекает из (6),  $\tilde{\eta}_{\text{к}} - 1/2 = -(1/2) \sin x/x$ , где  $x = 2\sqrt{\eta_{\text{к}}}$ . Отсюда вытекает также, что наибольшее значение  $\tilde{\eta}_{\text{к}}$ , равное  $0.5 + (1/3\pi) \approx 0.6$ , реализуется при  $x = 3\pi/2$ , т. е. при  $\eta_{\text{к}} = 9\pi^2/16 \approx 5.5$ . При этом накачка используется наиболее экономично. Тот факт, что значения  $\tilde{\eta}_{\text{к}}$ , большие, чем 0.6, недостижимы, является следствием того, что излучение КР и его ПП происходят в одном и том же кристалле: излучение КР сначала должно образоваться, а потом уже испытывать ПП. Интенсивность



излучения  $B_a$  растет с  $|A_1|^2$ , а также с  $L$  и в области, где  $\tilde{\eta}_k \approx 0.5$ , поскольку  $B_a$  пропорционально фактору  $|A_1|^2 L$ , который содержится в  $B_{KP}$ .

В области больших  $\xi = \tau L$  величина  $\tilde{\eta}_k$  убывает как  $\xi^{-2}$ . Область значений  $\xi$ , в которой  $\tilde{\eta}_k$  существенно отлично от нуля, можно оценить как  $\delta = 2\xi_0$ , где  $\xi_0$  — корень уравнения  $y = \tilde{\eta}_k(\xi)/\tilde{\eta}_k(0) = 1/2$  (при малых  $\eta_k$  можно положить  $\tilde{\eta}_k(0) \approx 2/3$ ). На рис. 1 показана также зависимость  $y = y(\xi)$ .

Зная  $\delta$ , нетрудно для конкретного кристалла вычислить угловую  $\Delta\theta$  и спектральную  $\Delta\omega$  ширины синхронизма, например

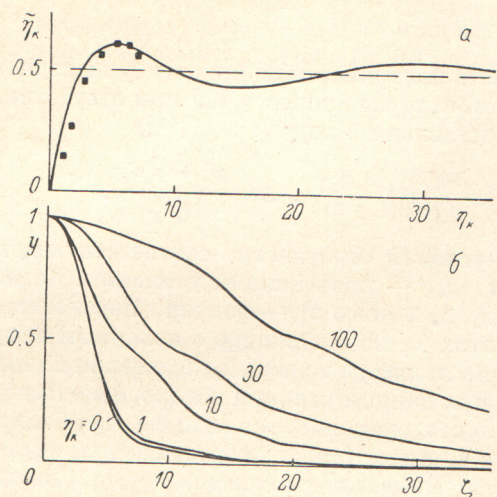


Рис. 1. Зависимость эффективности ПП при ПСКР в одном кристалле от параметра  $\eta_k$  в центре линии ( $\tau=0$ ) (а) и «форма линии» фактора  $\tilde{\eta}_k$  (зависимость  $y = \tilde{\eta}_k(\xi)/\tilde{\eta}_k(0)$  от величины расстройки  $\xi$  при разных значениях параметра  $\eta_k$ ) (б).

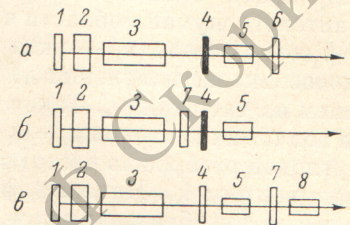


Рис. 2. Экспериментальные схемы для исследования ПСКР внутри (а) и вне (б и в) резонатора лазера.

1 — «глухое» по частоте  $\omega_1$  зеркало, 2 — модулятор добротности, 3 — активный элемент YAG-Nd<sup>3+</sup>, 4 — фильтр ИКС-7, 5 и 8 — идентичные образцы кристалла LiNbO<sub>3</sub>, 6 — «глухое» по частоте  $\omega_1$  и прозрачное на частоте  $\omega_a$  зеркало, 7 — выходное (оптимальное) зеркало лазера.

$\Delta\omega = 2|\omega_0 - \bar{\omega}|$ , где  $\omega_0$  и  $\bar{\omega}$  — корни уравнений  $\tau(\omega_0) = 0$  и  $\tau(\bar{\omega}) = \delta/2L$ .

В заключение отметим, что формула (5) справедлива как для поляртонного, так и для фононного рассеяния в произвольных анизотропных кристаллах, если использовать надлежащие значения коэффициента усиления  $g$ , который хорошо изучен [14, 15, 17 и др.]. В этом нетрудно убедиться, проводя расчеты, аналогичные описанным выше, но с учетом анизотропии и процессов КР, описываемых кубичной нелинейной поляризуемостью. Последние актуальны в фононной области [15]. Ради краткости соответствующие промежуточные расчеты, ход которых понятен из сравнения с работами [14, 15, 17 и др.], мы здесь не приводим.

## 2. Сравнение теории с экспериментальными данными

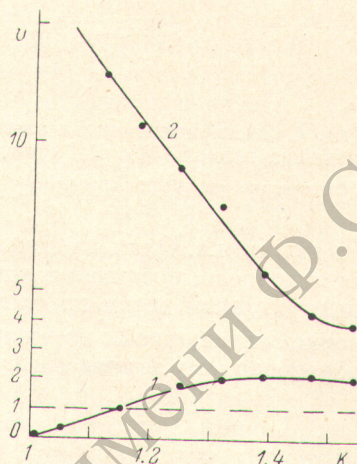
В целях сравнения теории с экспериментальными данными мы исследовали экспериментально закономерности параметрической спектроскопии интенсивностей на примере коллинеарного рассеяния излучения лазера на алюмо-иттриевом гранате ЛТИПЧ-7 ( $\lambda_1 = 1.064$  мкм) в кристалле LiNbO<sub>3</sub> с ПП рассеянного излучения в этом же кристалле. Обыкновенная волна накачки распространялась под углом  $\varphi = 78^\circ \pm 10'$  к оптической оси, возбуждая стоксову  $o$ -волну с  $\lambda_s = 1.123$  мкм, что отвечает КР на  $o$ -поляритоне (в зоне колебания  $E$ -типа  $586$  см<sup>-1</sup>) с  $\omega_p = 495$  см<sup>-1</sup> ( $\pm 5$  см<sup>-1</sup>). При этом выполняются условия синхронизма ( $\tau=0$ ) для процесса  $\omega_s + \omega_1 = \omega_a$  коллинеарного ПП типа  $oo \rightarrow e$ . Излучение на суммарной частоте ( $\lambda_a = 0.5464$  мкм) регистрировалось с помощью монохроматора ФЭС-1 (спектральная ширина щели  $\sim 13$  см<sup>-1</sup>), фотоумножителя ФЭУ-79 и осциллографа С1-15.



Схема экспериментальной установки представлена на рис. 2, а. С целью повышения интенсивности накачки и обеспечения больших  $\eta_k$  нелинейный кристалл 5 помещался внутрь лазерного резонатора, запертого по частоте накачки  $\omega_1$  (зеркала 1 и 6 полностью отражают излучение  $\omega_1$ ). Излучение  $\omega_a$  практически свободно выходило через зеркало 6, почти прозрачное на частоте  $\omega_a$ . Измерялась зависимость интенсивности  $P_a$  сигнала  $\omega_a$  от интенсивности накачки  $P_1$ ; величина  $P_1$  определялась по интенсивности генерации несинхронной второй гармоники. Отношение  $P_a/P_1$  с точностью до некоторого постоянного множителя  $\beta$  определяет, очевидно, эффективность преобразования  $\tilde{\eta}_k$ . На рис. 1 нанесены полученные таким образом экспериментальные точки, причем множитель  $\beta$  подбирался из условия равенства максимальных значений экспериментального и теоретического  $\tilde{\eta}_k$ . Величина  $\eta_k$  вычислялась для каждого  $P_1$  по формуле (6) с использованием соответствующих данных по  $n_{a,s}$  и  $\chi$  [18]. Видно, что теория удовлетворительно согласуется с экспериментом.

Попутно была изучена зависимость от уровня  $K$  электрической накачки

Рис. 3. Зависимость параметра  $v$  (описывающего выигрыш в интенсивности сигнала ПСКР, возникающий при помещении нелинейного кристалла внутрь лазерного резонатора) от электрической накачки лазера  $K$ .



лазера<sup>1</sup> выигрыша  $v$  в интенсивности сигнала ПСКР при помещении нелинейного кристалла внутрь лазерного резонатора по сравнению с внерезонаторной ПСКР. Для определения  $v$  интенсивность внутррезонаторной ПСКР  $P_a$  сопоставлялась с интенсивностью  $P_a^0$  соответствующего сигнала в случае внерезонаторной ПСКР (рис. 2, б) при замене «глухого» по частоте  $\omega_1$  зеркала 6 оптимальным для данного  $K$  зеркалом  $\gamma$  ( $v = P_a/P_a^0$ ). Зависимость  $v$  от  $K$  представлена на рис. 3 (кривая 1). Выигрыш от помещения кристалла внутрь резонатора лазера, очевидно, тем больше, чем меньше потери, вносимые в резонатор нелинейным кристаллом. В нашем случае такие потери были относительно большими главным образом за счет отражений от непросветленных граней кристалла и составляли  $\sim 30\%$  на одном проходе. Тем не менее выигрыш  $v$  оказался существенным и достигал величины  $\sim 2.3$ .

Чтобы судить о предельно достижимой величине выигрыша, которая имела бы место при отсутствии потерь в резонаторе, обусловленных введением в него нелинейного кристалла, мы исследовали также выигрыш в схеме, показанной на рис. 2, в. Здесь при внерезонаторной ПСКР помимо рабочего кристалла 8 использовался идентичный вспомогательный кристалл 5, помещенный внутрь лазерного резонатора, но выведенный из синхронизма небольшим поворотом. Тем самым потери в резонаторе при вне- и внутррезонаторной ПСКР были одинаковыми. Зеркало 7, как и в случае рис. 2, б, оптимизировалось. Соответствующий выигрыш, представленный кривой 2 на рис. 3, хотя и не равен предельно достижимому, но будет, по-видимому, ближе к нему, чем в случае рис. 2, б.

<sup>1</sup> Нормированная электрическая накачка лазера  $K$  определялась как  $K = (U/U_0)^2$ , где  $U$  — напряжение на накопительной емкости лазера, а  $U_0$  — его пороговое значение.



### 3. Параметрическая спектроскопия комбинационного рассеяния света на верхней поляритонной ветви селенида галлия

Методом ПСКР нами было также впервые исследовано поведение интенсивностей КР света на верхней поляритонной ветви в кристалле селенида галлия. Схема экспериментальной установки представлена на рис. 4. Излучение задающего лазера 1 (ЛТИПЧ-7) разделялось пластинкой 2

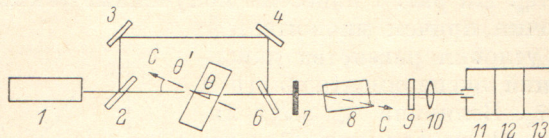


Рис. 4. Экспериментальная схема для исследования поляритонного КР в кристалле селенида галлия (5) с ПП стокова излучения вверх в кристалле издата лития (8).

Оптические оси обозначены через  $C$  (в случае GaSe  $C$  совпадает с нормалью к входной грани).

на два пучка. Один из них, составляющий около 20% по интенсивности от исходного, поступал в кристалл GaSe 5 и вызывал в нем КР на верхней поляритонной ветви по схеме  $e \rightarrow o + o$ , ( $\omega_1 = \omega_s + \omega_p$ ). Рассеянное излучение совмещалось с другим пучком, который «обходил» кристалл по пути, образованному зеркалами 3, 4, и 6. Оба пучка поступали в нелинейный

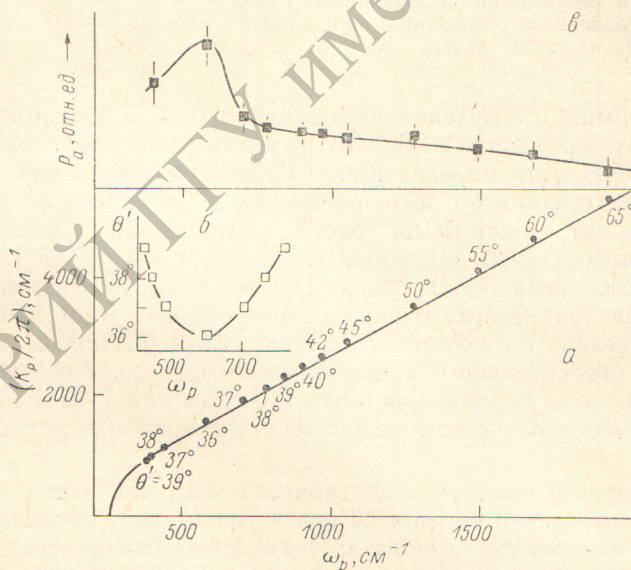


Рис. 5. Параметрическая спектроскопия интенсивностей КР света на верхней поляритонной ветви кристалла селенида галлия.

$a$  — дисперсионная ветвь;  $b$  — зависимость поляритонной частоты рассеяния  $\omega_p$  от ориентации ( $\theta'$ ) кристалла GaSe;  $\epsilon$  — зависимость интегральной интенсивности  $P_a$  от частоты центра линии  $\omega_p$  в окрестности группового синхронизма.

кристалл 8 ( $\text{LiJO}_3$ ), в котором происходило ПП излучения КР по схеме  $\omega_s + \omega_1 = \omega_a$  при типе взаимодействия  $oo \rightarrow e$ .

Необходимость использования для ПП вспомогательного кристалла 8 диктовалась тем, что GaSe непрозрачен в области частот  $\omega_a$ . Целесообразность того, чтобы большая часть (около 80% по интенсивности) исходного пучка обходила рассеивающий кристалл 5, обусловлена, во-первых, недостаточной лучевой прочностью последнего и, во-вторых, искажением поперечной структуры излучения  $\omega_1$  в кристалле 5 ввиду недостаточно высокого



его оптического качества. Фильтры 7 и 9 подавляли соответственно излучение лампы-вспышки лазера 1 и несинхронную вторую гармонику  $2\omega_1$ , возникающую в кристалле 8. Излучение  $\omega_a$  регистрировалось блоком из призмённого монохроматора 11, фотоэлектронного умножителя 12 и осциллографа 13.

Методом ПСКР детектировалось излучение, возникающее при поляритонном КР в GaSe в направлении «вперед». Вращением кристалла в главной плоскости осуществлялась перестройка частоты рассеяния. При каждой фиксированной ориентации образца GaSe кристалл-преобразователь 8 подстраивался поворотом до положения синхронного ПП.

Сначала был исследован закон дисперсии поляритонов на верхней ветви в диапазоне  $400 \div 2000 \text{ см}^{-1}$  (в части этого диапазона данная ветвь изучалась ранее в [1]). Непосредственно измерялась зависимость  $\omega_a(\theta')$  (угол  $\theta'$  указан на рис. 4; спектральная ширина щели монохроматора составляла при этом около  $20 \text{ см}^{-1}$ ), которая затем пересчитывалась в зависимость  $\omega_p(k_p)$  на основе известных дисперсионных данных для GaSe в окрестности  $1 \text{ мкм}$  [18] ( $k_p$  — длина волнового вектора поляритона без учета диссипации). Найденная таким образом верхняя поляритонная ветвь представлена точками на рис. 5, а. Экспериментальные данные хорошо согласуются с расчетной кривой, построенной с учетом известных характеристик GaSe в инфракрасной области [19].

Необходимо отметить, что при данном  $\theta'$  в рассеяние выходит две частоты  $\omega_p$  (см. подробнее об этой особенности КР на верхней поляритонной ветви в [11]). Взаимосвязь  $\theta'$  и  $\omega_p$  отражена на рис. 5, б. При уменьшении  $\theta'$  обе частоты сближаются и в окрестности точки, отвечающей  $\theta' = 36^\circ$ , сливаются. Как показано в [11], при этом реализуется синхронизм групповых скоростей взаимодействующих в кристалле волн, что приводит к резкому уширению и соответственно росту интегральной интенсивности линий рассеяния. Этот эффект был обнаружен ранее в кристалле  $\text{LiIO}_3$  [12]. В настоящей работе он был зафиксирован нами в GaSe при измерении частотного хода интегральной интенсивности КР. Спектральная ширина щели монохроматора 11 устанавливалась при этом около  $80 \text{ см}^{-1}$ , что примерно отвечало максимальной ширине линии  $\sigma$ . Одновременное ПП в кристалле 8 спектрального участка  $\sigma$  обеспечивалось конечной приемной угловой апертурой, которая составляла  $\sim 15'$ . Спектральная ширина синхронизма коллинеарного ПП была примерно на порядок меньше  $\sigma$  (это сказывалось, естественно, на эффективности ПП), однако ПП спектрального участка  $\sim \sigma$  обеспечивалась тем, что приемная угловая апертура примерно на порядок превосходила угловую ширину синхронизма. Соответствующие результаты представлены на рис. 5, в. Виден резкий рост интенсивности рассеяния в окрестности точки группового синхронизма.

### Литература

- [1] Н. И. Лихолит, В. Л. Стрижевский, Ю. Н. Яшкир. Письма ЖЭТФ, 28, 633, 1978.
- [2] J. H. Parker, D. W. Feldman, M. Ashkin. Phys. Rev., 155, 712, 1967.
- [3] C. K. N. Patell, R. E. Slusher. Phys. Rev. Lett., 22, 282, 1969.
- [4] M. Nirpus. J. Raman Spectrosc., 6, 2, 1977.
- [5] M. Nirpus, R. Claus. Z. Naturforsch., 32a, 731, 1977.
- [6] M. Nirpus, R. Claus. Opt. Comm., 22, 318, 1977.
- [7] Л. К. Водопьянов, Л. В. Голубев, Ю. А. Алещенко, К. Р. Аллахавердиев, З. Ю. Салаев. ФТТ, 20, 2803, 1978.
- [8] Э. С. Воронин, В. Л. Стрижевский. Усп. физ. наук, 127, 99, 1979.
- [9] Ю. Н. Поливанов. Усп. физ. наук, 126, 185, 1978.
- [10] А. В. Бобров, Д. Н. Никогосян. Квант. электрон., 1, 1242, 1974.
- [11] V. V. Obukhovskii, H. Ponath, V. L. Strizhevskii. Phys. Stat. Sol., 41, 837, 1970.
- [12] V. L. Strizhevskii, Yu. N. Yashkir, H.-E. Panath. Phys. Stat. Sol. (b), 69, 673, 1975.
- [13] Л. Д. Ландау. Электродинамика сплошных сред. М., 1959.



- [14] В. Л. Стрижевский, В. В. Обуховский, Г. Э. Понат. ЖЭТФ, 61, 537, 1971.
- [15] V. L. Strizhevskii, V. V. Obukhovskii. Phys. Stat. Sol. (b). 53, 603, 1972.
- [16] С. А. Ахманов, Р. В. Хохлов. Проблемы нелинейной оптики. ВИНТИ, М., 1964.
- [17] В. Л. Стрижевский. ЖЭТФ, 62, 1446, 1972.
- [18] Д. Н. Никогосян. Квант. электрон., 4, 5, 1977.
- [19] R. Le Toullec, N. Riccioli, M. Mejatty, M. Balkanski. Nuovo Cimento, 38B, 159, 1977.

Поступило в Редакцию 13 августа 1979 г.

---

РЕПОЗИТОРИЙ ГГУ имени Ф. Скоринны