

Ж  
У  
Р  
Н  
А  
Л

989

3 ок-1  
443

ISSN 0514-7506

# ПРИКЛАДНОЙ (СПЕКТРОСКОПИИ)

05  
207622

3

МАРТ

ТОМ  
50

ИГТУ имени Ф. СКОРИНЫ

3. Breitbarth F. W., Tiller H. J., Reinhardt R. // Plasma Chemistry and Plasma Processing, 1985. V. 5. N 4. P. 293—316.  
 4. Linn J. H., Swartz W. E. // Spectroscopy Letters, 1985. V. 18. N 5. P. 335—352.  
 5. Pearce W. B., Gaydon A. G. The identification of molecular spectra. London, 1976.  
 6. Зайдель А. Н., Прокофьев В. В., Райский С. М. и др. Таблицы спектральных линий. М., 1977.  
 7. Стриганов А. Р., Свентицкий Н. С. Таблицы спектральных линий. М., 1966.  
 8. Кузнецова Л. А., Кузьменко Н. Е., Кузяков Ю. Я., Пластинин Д. А. // УФН. 1974. Т. 113, № 2. С. 285—325.

Поступила 17.02.88.

УДК 621.378.3

Б. В. Бокуть, Н. С. Казак, А. С. Лугина, Е. М. Миклавская,  
 А. В. Надененко, В. К. Павленко, Ю. А. Санников

### ГЕНЕРАЦИЯ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ В УСЛОВИЯХ БРЭГГОВСКОЙ ДИФРАКЦИИ В КРИСТАЛЛАХ СО СВЕТОИНДУЦИРОВАННЫМИ РЕШЕТКАМИ ПОКАЗАТЕЛЯ ПРЕЛОМЛЕНИЯ

Величина волновой расстройки между волной нелинейной поляризации и генерируемой электромагнитной волной определяет эффективность процессов нелинейного удвоения частоты оптического излучения. Впервые на возможность использования ультразвуковой (УЗ) волны для осуществления фазовой синхронизации процесса нелинейного преобразования частоты было указано в работе [1]. Теоретическое описание влияния УЗ поля на процесс генерации второй гармоники (ГВГ) было развито в работах [2, 3]. Однако в этих работах рассмотрение проводилось в приближении заданного поля, без учета истощения падающего светового излучения как из-за дифракции на ультразвуке, так и из-за ГВГ. Экспериментальные исследования ГВГ в условиях акустооптического взаимодействия проводились в [2, 4]. В этих работах изучены различные варианты дифракции света на УЗ решетке и оценены эффективности как процесса ГВГ, так и акустооптического взаимодействия. Оказалось, что приближение заданного поля, на котором базируется работа [3], не соответствует реальной эффективности рассматриваемых процессов. Эксперименты по ГВГ при векторном синхронизме дифрагированных на ультразвуке световых волн в теллуре [2] указывают на необходимость учета истощения накачки, по крайней мере из-за дифракции. В работе [5] анализируется процесс ГВГ при коллинеарной дифракции основного излучения на стоячей УЗ волне. Авторы считают, что к. п. д. нелинейного преобразования невелик, а процесс акустооптической дифракции протекает достаточно эффективно. В результате процесс ГВГ и процесс акустооптического взаимодействия рассматриваются как два отдельных процесса. В работах [6, 7] исследуются процессы нелинейного преобразования частоты лазерного излучения в условиях брэгговской дифракции света на УЗ волне с учетом взаимных перекачек при ГВГ и дифракции. В этих работах получена и проанализирована система уравнений для действительных амплитуд взаимодействующих волн. В результате сделан вывод о том, что для фиксированной волновой расстройки и длины взаимодействия соответствующим выбором акустической мощности можно добиться увеличения к. п. д. преобразования во вторую гармонику по сравнению с ГВГ в отсутствие УЗ поля при том же значении волновой расстройки. Показано, что оптимальная величина наведенного за счет УЗ поля изменения диэлектрической проницаемо-

сти среды  $\Delta\epsilon$ , необходимого для компенсации волновой расстройки  $\Delta K$ , определяется соотношением:

$$\Delta\epsilon = \frac{\lambda_2 n_{2e} \Delta K}{\pi}, \quad (1)$$

где  $\lambda_2$  — длина волны дифрагированного света;  $n_{2e}$  — показатель преломления среды для  $\lambda_2$ . Согласно численным оценкам, например, для длины взаимодействия  $l=2$  см и величины фазового рассогласования  $\Delta K=2,6$  см<sup>-1</sup> необходимо обеспечить за счет УЗ поля изменение показателя преломления  $\Delta n=2,1 \cdot 10^{-5}$ . Это изменение показателя преломления в кристалле LiNbO<sub>3</sub> может быть достигнуто при плотности акустической мощности 265 Вт/см<sup>2</sup>. Постановка эксперимента при таких мощностях связана с большими трудностями.

В настоящей работе экспериментально исследуется ГВГ в условиях брэгговской дифракции излучения удвоенной частоты на светоиндуцированных решетках показателя преломления. В этом случае с использованием фоторефрактивного эффекта в LiNbO<sub>3</sub> можно получить  $\Delta n$  того же порядка. Теоретическое рассмотрение данной ситуации аналогично проведенному в работах [6, 7], отличие состоит только в механизме изменения диэлектрической проницаемости  $\Delta\epsilon$  нелинейной среды.

При записи светоиндуцированной решетки в кристаллах классов 4m и 3m двумя лазерными пучками, распространяющимися как обыкновенные волны, изменение диэлектрической проницаемости будет определяться [8]

$$\Delta\epsilon = -\frac{\epsilon_e^2}{4} r_{33} \Delta E_0, \quad (2)$$

где  $\epsilon_e$  — диэлектрическая проницаемость среды для необыкновенной волны;  $r_{33}$  — коэффициент электрооптического тензора  $r_{ij}$ . Изменение электрического поля среды  $\Delta E_0$  под воздействием лазерного освещения выражается как [8]:

$$\Delta E_0 = -\left(\frac{\alpha \Phi W}{\hbar \omega}\right) \frac{e \Lambda}{\epsilon_0} [1 + (\kappa \Lambda)^2]^{-1/2}, \quad (3)$$

где  $\Phi$  — квантовая эффективность процесса возбуждения фотоэлектронов;  $\alpha$  — коэффициент поглощения;  $W=2I \cdot t$  — суммарная оптическая энергия, падающая на кристалл за время экспозиции  $t$ ;  $\Lambda$  — длина дрейфа фотоэлектронов;  $\hbar \omega$  — энергия фотона. Для оценки времени экспозиции  $t$ , необходимого для наведения изменения показателя преломления  $\Delta n$ , с целью компенсации волновой расстройки  $\Delta K$  при ГВГ полезно ввести параметр фоторефрактивной чувствительности материала  $dn_e/dW$ . Фоторефрактивная чувствительность определяется как изменение показателя преломления среды под действием поглощенной энергии в единице объема. Используя (2) и (3), имеем

$$\frac{dn_e}{dW} = e \Lambda \frac{n_e^3}{2} \frac{r_{33}}{\epsilon_0 \epsilon_{33}} [1 + (\kappa \Lambda)^2]^{-1/2} \frac{\Phi}{\hbar \omega}. \quad (4)$$

Используя приведенные выше соотношения, оптимальное время экспозиции  $t$  выражается в виде:

$$t = \frac{\lambda_2 \Delta K S}{\pi \alpha I dn_e/dW}, \quad (5)$$

где  $I/S$  — плотность мощности записывающего излучения. Фоторефрактивная чувствительность для кристалла LiNbO<sub>3</sub> определялась экспериментально в работе [9] и составила величину  $dn_e/dW=1,4 \cdot 10^{-5}$  см<sup>3</sup>/Дж.

Например, как уже указывалось, для величины фазового рассогласования  $\Delta K = 2,6 \text{ см}^{-1}$  требуется обеспечить  $\Delta n = 2,1 \cdot 10^{-5}$ . При записи светондуцированной решетки показателя преломления в кристалле  $\text{LiNbO}_3$  это соответствует времени экспозиции  $t = 13$  с при  $I = 0,5 \text{ Вт}$ ,  $\alpha = 0,1 \text{ см}^{-1}$  и  $S = 0,2 \text{ см}^2$ . Схема экспериментальной установки приведена на рис. 1. В качестве нелинейной среды был выбран кристалл  $\text{LiNbO}_3$ , обладающий ярко выраженными фоторефрактивными свойствами. Поскольку эффективность светондуцированного изменения показателя преломле-

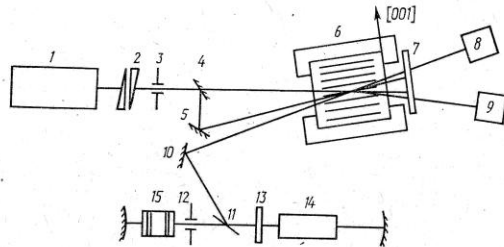


Рис. 1. Схема эксперимента: 1 — аргонный лазер ЛГН-503; 2 — кварцевые клинья; 3, 12 — диафрагмы; 4, 5, 10 — зеркала; 6 — кристалл  $\text{LiNbO}_3$  в термостате; 7 — светофильтр; 8, 9 — измеритель мощности ИМО-2Н; 11 — тонкопленочный поляризатор; 13 — фазовая пластинка  $\lambda/4$ ; 14 — АИГ:  $\text{Nd}^{3+}$ ; 15 — электрооптический затвор

ния сильно зависит от наличия примесей в кристалле, то производился отбор из нескольких образцов по максимальной дифракционной эффективности. Для записи светондуцированной решетки в кристалл  $\text{LiNbO}_3$  6 направлялись два пучка излучения аргонного лазера 1 с  $\lambda_3 = 0,488 \text{ мкм}$ , суммарная мощность пучков 750 мВт. Записывающие пучки формировались зеркалами 4, 5 и пересекались в кристалле под углом  $2\theta_{\text{Бр}} = 5^\circ 20'$ . Их поляризация соответствовала необыкновенной волне. Подстройка плоскости поляризации пучков осуществлялась при помощи кварцевых клиньев 2. Зависимость дифракционной эффективности при считывании записанной решетки излучением с  $\lambda_3$  от времени экспозиции для выбранного кристалла представлена на рис. 2 (кривая а). Дифракционная эффективность определялась экспериментально как  $\eta = I_1 / (I_0 + I_1)$ , где  $I_0$  — мощность пучка в 0 порядке;  $I_1$  — мощность пучка в 1 порядке. На кривой б представлена зависимость наведенного изменения показателя преломления за счет фоторефрактивного эффекта от времени освещения кристалла. Кривая б получена путем пересчета кривой а с учетом конкретных экспериментальных параметров по формуле

$$\Delta n_e = \frac{\lambda_3 \cos \theta_{\text{Бр}}^1 \arcsin \sqrt{\eta / e^{-\alpha l}}}{\pi l}, \quad (6)$$

где  $\lambda_3 = 488 \text{ нм}$ ;  $\theta_{\text{Бр}}^1 = 2^\circ 40'$ ;  $l = 2 \text{ см}$ ;  $\alpha = 0,1 \text{ см}^{-1}$ .

Для исследования ГВГ в условиях брэгговской дифракции использовалось излучение АИГ:  $\text{Nd}^{3+}$ -лазера с длиной волны генерации  $\lambda_1 = 1,06 \text{ мкм}$ . Лазер на АИГ:  $\text{Nd}^{3+}$  работал в режиме модулированной добротности, осуществляемой электрооптическим затвором 15, с длительностью импульса генерации  $\tau = 15 \text{ нс}$ . Частота повторения импульсов 10 Гц. Энергия импульса составляла  $15 \cdot 10^{-3} \text{ Дж}$ . Телескопический неустойчивый резонатор позволял получить одну поперечную моду с расходимостью лазерного излучения, близкой к дифракционной. Размер

моды излучения с  $\lambda_1$  уменьшался до 1/3 размера записывающего пучка с  $\lambda_3$  соответствующим выбором диаметра отверстия диафрагмы 12 в резонаторе лазера и составлял 1 мм. Излучение с  $\lambda_3$  направлялось на решетку показателя преломления в кристалле  $\text{LiNbO}_3$  под углом  $\theta_{\text{Бр}}^2$ , равным углу Брэгга для излучения с  $\lambda_2 = 0,53 \text{ мкм}$ . В кристалле осуществлялся  $oo-e$  тип нелинейного взаимодействия с температурной подстройкой фазового синхронизма. Для этого кристалл помещался в волновой термостат с точностью поддержания температуры  $0,1^\circ \text{C}$ . Мощ-

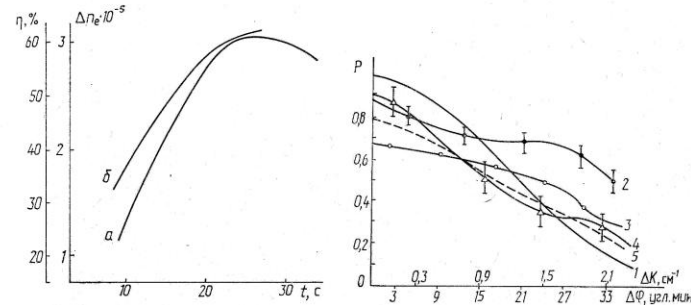


Рис. 2. Эффективность дифракции (а) и светондуцированное изменение показателя преломления (б) в  $\text{LiNbO}_3$

Рис. 3. Зависимость мощности ВГ от угловой разбюстировки кристалла (1), суммарная мощность ВГ в 0 и 1 порядках дифракции при  $\Delta l = 2,5 \cdot 10^{-5}$  (2, 3) и  $\Delta l = 1,5 \cdot 10^{-5}$  (4, 5)

ность излучения с  $\lambda_2$ , генерируемого в 0 и 1 брэгговские максимумы, контролировалась при помощи измерителей мощности ИМО-2Н. Температура кристалла во время измерения поддерживалась постоянной. Волновая расстройка  $\Delta K$  в процессе генерации второй гармоники изменялась поворотом кристалла на угол, больший угловой ширины брэгговского контура дифракции, которая составляла 8 мин. При каждом угловом положении кристалла излучением с  $\lambda_3$  записывалась новая решетка показателя преломления. Экспозиция каждой последующей записи увеличивалась на  $\sim 5$  с с целью поддержания дифракционной эффективности на постоянном уровне. Время первичной экспозиции 15 с. Дифракционная эффективность контролировалась при каждом цикле записи по излучению  $\lambda_3$ .

Следует отметить необходимость сохранения одинаковых условий проведения эксперимента, так как, например, температура точного синхронизма изменялась по сечению кристалла от  $53$  до  $64,5^\circ \text{C}$  из-за наличия неоднородностей и свиелей в кристалле. Дифракционная эффективность записанных решеток колебалась в пределах  $18-62\%$  в зависимости от места записи в кристалле.

Экспериментально полученная зависимость суммарной мощности излучения второй гармоники, распространяющегося в направлении 0 и 1 брэгговских порядков дифракции, от угла поворота кристалла при фиксированной дифракционной эффективности представлена на рис. 3. Кривая 1 соответствует экспериментальной и теоретической зависимости угловой ширины температурного синхронизма в кристалле  $\text{LiNbO}_3$  в отсутствие светондуцированной решетки показателя преломления;  $\Delta \varphi$  — угол поворота кристалла относительно направления точного синхронизма, приводящий к расстройке  $\Delta K$ . Расчетная зависимость получена путем численного решения системы уравнений, описывающих процесс ГВГ в условиях брэгговской дифракции на наведенной решетке показателя преломления при  $\Delta l = 0$ . Подробный анализ системы уравне-

ний и ее вид приведены в [6, 7]. Для сопоставления теоретических и экспериментальных результатов в систему вводилось измеренное на опыте светоиндуцированное изменение показателя преломления решетки (рис. 2). Условие компенсации волновой расстройки при ГВГ выражается в виде [6]

$$M_2 = \Delta K, \quad (7)$$

или

$$M_2 = \frac{\pi \Delta \varepsilon}{\lambda_2 n_{2e}},$$

где  $M_2$  — параметр, определяющий соотношение между процессом ГВГ и дифракцией. На кривой 2 представлена экспериментальная зависимость суммарной мощности второй гармоники в 0 и I порядках дифракции от угла поворота кристалла относительно направления точного синхронизма. Температура точного синхронизма  $T=64,1^\circ\text{C}$ . Дифракционная эффективность записанной решетки при считывании излучением с  $\lambda_2$  составляла 47%. На кривой 3 показана теоретическая зависимость суммарного выхода ВГ от расстройки ДК с учетом светоиндуцированного изменения показателя преломления  $\Delta n=2,5 \cdot 10^{-5}$ . Это значение  $\Delta n$  соответствует дифракционной эффективности, полученной в эксперименте. Кривая 4 отражает экспериментальное поведение суммарной гармоники на выходе кристалла при  $\Delta n=1,5 \cdot 10^{-5}$ . Кривая 5 получена путем решения системы при том же значении  $\Delta n$ . Зависимость 4 снижалась при температуре кристалла  $T=53,3^\circ\text{C}$ , соответствующей точному фазовому синхронизму. Эффективность дифракции на решетке при считывании излучением с  $\lambda_2$  составляла 22%.

Наблюдается соответствие в поведении кривых 2—3 и 4—5, причем для кривых 2—3 при  $\Delta K=1,6 \text{ см}^{-1}$  эффективность процесса ГВГ в условиях брэгговской дифракции увеличивается почти в 2 раза по сравнению с эффективностью ГВГ при той же расстройке в отсутствие дифракции. Контур угловой ширины процесса генерации второй гармоники в условиях ее дифракции как бы расплывается. Расчеты показывают, что при достижении изменения показателя преломления  $\Delta n=5 \cdot 10^{-5}$  или более возможно смещение контура угловой ширины в сторону больших расстроек.

Таким образом, для фиксированной волновой расстройки и длины взаимодействия существует оптимальная величина наведенного показателя преломления решетки, дифракция на которой приводит к увеличению эффективности процесса генерации второй гармоники по сравнению с генерацией второй гармоники в отсутствие этой решетки при том же значении волновой расстройки.

В работе была предпринята также попытка осуществить компенсацию фазового рассогласования при неколлинеарном нелинейном взаимодействии волн [10]. С этой целью лазерный пучок основной частоты направлялся на записанную в кристалле  $\text{LiNbO}_3$  светоиндуцированную решетку показателя преломления. Угол между пучками излучения лазера, дифрагировавшими в 0-й и 1-й порядки, соответствовал углу для достижения векторного фазового синхронизма для ГВГ  $oo$ -е типов взаимодействия при комнатной температуре. Далее предполагалось ввести фазовую расстройку и попытаться скомпенсировать ее за счет записи новой светоиндуцированной решетки показателя преломления, подобно тому как это делалось в описанном выше эксперименте. Однако, как оказалось, существенно падает эффективность дифракции излучения основной частоты на записанной решетке по сравнению с эффективностью брэгговской дифракции на этой же решетке излучения второй гармоники. Отчасти это связано с большей угловой расходимостью лазера с  $\lambda_1=1,06 \text{ мкм}$ . В нашем случае эффективность дифракции составляла не более 1%, соответственно этому низка эффективность процесса

ГВГ. Это не позволило четко зафиксировать увеличение выхода второй гармоники при компенсации фазовой расстройки записью светоиндуцированной решетки показателя преломления.

### Summary

A problem on the second harmonic generation under the conditions of its Bragg diffraction on a light-induced grating of the refractive index is considered. It is shown experimentally that for the fixed wave detuning and fixed interaction length in a  $\text{LiNbO}_3$  crystal there is the grating with an optimal value of the induced refractive index the diffraction on which leads to an increase in the efficiency of the second harmonic generation process in the absence of this grating at the same value of wave detuning.

### Литература

1. Harris S. E., Wallace R. W., Quate C. F. // IEEE J. Quant. Electron. 1968. V. QE4, N 3. P. 354—355.
2. Fukuda S., Ikeda S., Shiosaki T. et al. // Ultrason. Symp. Proc. Cherry Hill, N. J. 1978. P. 82—86.
3. Nelson D. F., Lax M. // Phys. Rev. 1971. V. B3, N 8. P. 2795—2812.
4. Boyd J. D., Nash F. R., Nelson D. F. // Phys. Rev. Lett. 1970. V. 24, N 23. P. 1298—1301.
5. Бокуть Б. В., Хило Н. А., Кондратенко В. И., Хило П. А. // Докл. АН БССР. 1983. Т. 27, № 2. С. 114—116.
6. Казак Н. С., Миклавская Е. М., Павленко В. К., Сергиенко М. И. // ЖПС. 1984. Т. 41, № 1. С. 138—144.
7. Казак Н. С., Миклавская Е. М., Павленко В. К., Сергиенко М. И. // Лазеры и оптическая нелинейность. 1984. С. 129—133.
8. Dvon der Linder, Glass A. M. // Appl. Phys. 1975. V. 8, N 2. P. 85—100.
9. Glass A. M., Peterson G. E., Negran T. J. // N. B. S. Special Publication N 372, Symposium on Damage in Laser Materials, Col., 1972.
10. Казак Н. С., Миклавская Е. М., Сергиенко М. И. // ЖПС. 1986. Т. 44, № 5. С. 761—769.

Поступила 06.01.88.

УДК 535.37

И. М. Гулис, А. И. Комяк, К. А. Саечников, В. А. Цвирко

### ФЛУОРЕСЦЕНТНАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ ОХЛАЖДЕННЫХ В СВЕРХЗВУКОВОЙ СТРУЕ МОЛЕКУЛ 3-АМИНОФТАЛИМИДА

В спектроскопии сложных молекул все шире применяется метод получения тонкоструктурных электронно-колебательных спектров, основанных на адиабатическом охлаждении молекул в сверхзвуковой струе [1, 2] (далее — СЗС спектроскопия). Благодаря высокой информативности метод предоставляет уникальные возможности для исследования широкого круга фотофизических процессов в изолированных сверххолодных молекулах [1, 2] и ван-дер-ваальсовских комплексах сложных органических молекул с простыми молекулами (типа молекул растворителя) [1—3].

В настоящей работе исследуются особенности структуры спектров возбуждения и флуоресценции охлажденных в сверхзвуковой струе молекул 3-аминофталимида (3-АФ). Имея основной перспективной задачей исследование межмолекулярных взаимодействий в ван-дер-ваальсовских комплексах, мы выбрали в качестве объекта исследования 3-АФ как соединение, бесструктурные электронно-колебательные спектры которого широко исследовались в растворах; по существу, 3-АФ является классическим объектом для изучения спектроскопических проявлений межмолекулярных взаимодействий [4]. Отметим, что в сверхзвуковой струе спектры возбуждения 3-АФ впервые получены в [5].