

В. Ф. КИТАЕВА, Л. А. КУЛЕВСКИЙ, Ю. Н. ПОЛИВАНОВ, С. Н. ПОЛУЭКТОВ
СПОНТАННОЕ ПАРАМЕТРИЧЕСКОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ И РАССЕЯНИЕ
СВЕТА НА ПОЛЯРИТОНАХ В КРИСТАЛЛЕ α -НЛО₃

(Представлено академиком А. М. Прохоровым 4 IV 1972)

Ранее нами исследовалось спонтанное параметрическое излучение (с.п.и.) в кристалле α -НЛО₃ для случая коллинеарного взаимодействия световых волн (¹, ²). Было обнаружено, что по мере приближения одной из параметрических частот к инфракрасному краю поглощения кристалла в перестроечных кривых возникают аномалии, которые мы связывали с аномальной дисперсией показателей преломления.

Настоящее сообщение посвящено исследованию с.п.и. при неколлинеарном взаимодействии световых волн в кристалле α -НЛО₃ в случае, когда одна из параметрических частот попадает в область фононного спектра кристалла (³). Параметрически возбуждаемая световая волна и инфракрасноактивные фононы сильно взаимодействуют друг с другом, если они обладают близкими значениями частот и волновых векторов. В результате возникают возбуждения смешанной электромагнитно-механической природы, которые по установившейся терминологии называются поляритонами (см., например, (⁴, ⁵)). Поляритонный характер возбуждений проявляется при наблюдении коротковолнового с.п.и. под малыми углами к направлению распространения возбуждающего излучения.

Для наблюдения с.п.и. под малыми углами мы пользовались фотографической методикой (⁶⁻⁸), при которой щель спектрографа помещается в фокальной плоскости линзы, расположенной после исследуемого кристалла. На фотопленке получается зависимость частоты ν_1 коротковолнового с.п.и. (сигнала) от угла θ между волновыми векторами сигнала \mathbf{k}_1 и возбуждающего излучения \mathbf{k}_3 . Эта зависимость определяется условием

$$k_3^2 + k_1^2 - 2k_1k_3 \cos \theta = k_2^2, \quad \nu_3 = \nu_2 + \nu_1, \quad (1)$$

где \mathbf{k}_2 и ν_2 — соответственно волновой вектор и частота длинноволнового с.п.и. или поляритона. На рис. 1 представлены частотно-угловые спектры с.п.и. при возбуждении кристалла α -НЛО₃ излучением аргонового лазера ($\lambda_3 = 5145 \text{ \AA}$). Рис. 1а соответствует случаю, когда волновой вектор \mathbf{k}_3 лежит в плоскости XZ и составляет угол $\Theta_3^{XZ} \approx 54^\circ$ с осью Z ; волновые векторы \mathbf{k}_1 и \mathbf{k}_2 также лежат в плоскости XZ . Рис. 1б соответствует случаю, когда $\Theta_3^{XZ} \approx 53^\circ$, а волновые векторы \mathbf{k}_1 и \mathbf{k}_2 лежат в плоскости Yk_3 . На рис. 1в, г представлены спектрограммы для случая, когда волновой вектор \mathbf{k}_3 лежит в плоскости YZ . Когда все три волновых вектора \mathbf{k}_1 , \mathbf{k}_2 и \mathbf{k}_3 лежат в одной из главных плоскостей кристалла, эффективная нелинейная константа, описывающая процессы с.п.и. и рассеяние света на поляритонах для взаимодействия $\mathbf{e} = \mathbf{o} + \mathbf{e}^*$, имеет вид

$$d_{\text{эф}} = e_i^1 d_{ijk} e_j^3 e_k^2 = d_{YXZ} \cos \Theta_3^{XZ} \sin \Theta_2^{XZ} + d_{YZX} \cos \Theta_2^{XZ} \sin \Theta_3^{XZ} \quad (2)$$

для главной плоскости XZ и

$$d_{\text{эф}} = d_{XYZ} \cos \Theta_3^{YZ} \sin \Theta_2^{YZ} + d_{XZY} \cos \Theta_2^{YZ} \sin \Theta_3^{YZ} \quad (3)$$

* Если двусосный кристалл α -НЛО₃ расположен таким образом, что световые волны распространяются в одной из его главных плоскостей YZ или XZ , то по своим электрооптическим свойствам он подобен одноосному отрицательному кристаллу: ось Z в качестве «оптической оси». При этом луч, электрический вектор которого лежит в главной плоскости, ведет себя как необыкновенный «е-луч», а луч с перпендикулярной поляризацией — как обыкновенный «о-луч».

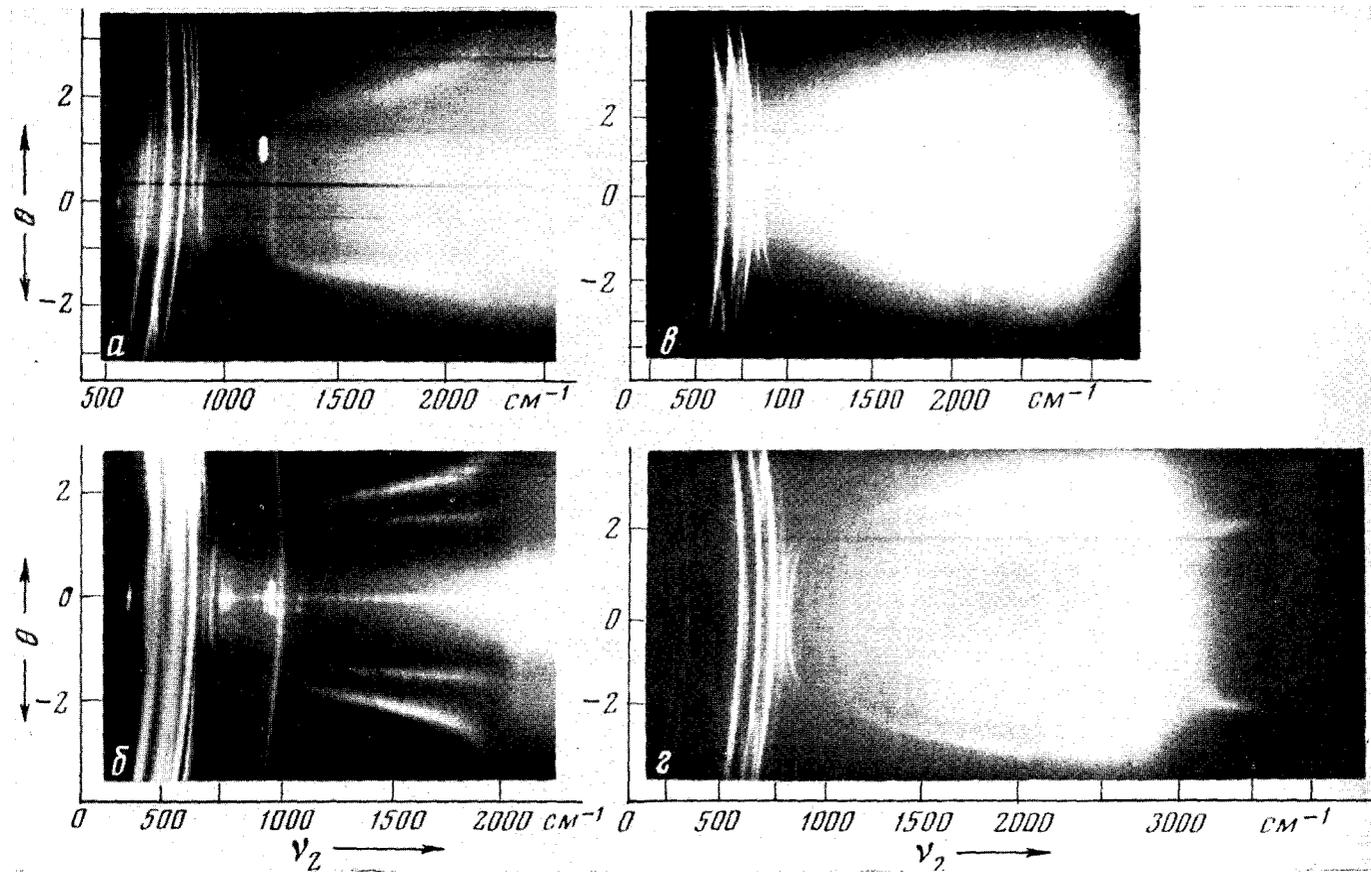


Рис. 1. Частотно-угловой спектр с.п.и. θ — угол рассеяния, $\nu_2 = \nu_3 - \nu_1$; регистрация ведется на частоте ν_1 . Волновой вектор k_3 в плоскости XZ (а, б) и YZ (в, г). а — $\Theta^{XZ} \approx 54^\circ$; векторы k_1 и k_2 лежат в плоскости XZ. б — $\Theta^{XZ} \approx 53^\circ$; векторы k_1 и k_2 лежат в плоскости YZ. в — $\Theta^{YZ} \approx 47^\circ$; векторы k_1 и k_2 лежат в плоскости YZ. г — $\Theta^{YZ} \approx 66^\circ$; векторы k_1 и k_2 лежат в плоскости XZ.

для главной плоскости YZ , где Θ_2 — угол между \mathbf{k}_2 и осью Z , e' — орт поляризации волны с волновым вектором \mathbf{k} . Для взаимодействия типа $e = o + o$ во всех главных плоскостях кристалла $d_{\text{эф}}^2 = 0$.

Таким образом, на рис. 1а, в спектры с.п.и. соответствуют взаимодействию типа $e = o + e$. Однако при выходе одного из волновых векторов \mathbf{k}_i из главной плоскости $d_{\text{эф}}^2$ становится отличным от нуля и для другого типа взаимодействия. Этим объясняется появление второй ветви в области $1200\text{--}2200\text{ см}^{-1}$ на рис. 1б и, по-видимому, появление «усов» в области $\sim 3500\text{ см}^{-1}$ на рис. 1г, которые не наблюдаются при расположении всех трех волновых векторов в одной из главных плоскостей кристалла и появляются лишь при выходе из нее (сравни рис. 1а и б).

Из рис. 1 также видно, что в случаях а, в наблюдается асимметрия спектрограмм по отношению к знаку угла θ в отличие от случаев б, г. Такое поведение объясняется угловой дисперсией волновых векторов в двуосных кристаллах, описываемой уравнением Френеля⁽⁹⁾:

$$|c^2(k_\alpha k_\beta - k^2 \delta_{\alpha\beta}) + \omega_k^2 \epsilon_{\alpha\beta}(\omega_k, \mathbf{k})| = 0. \quad (4)$$

Асимметрия в интенсивностях по отношению к знаку θ на рис. 1а и в обязана угловой зависимости $d_{\text{эф}}^2$ (2), (3). Наиболее отчетливо она проявляется при рассеянии света на поляритонах в области $500\text{--}800\text{ см}^{-1}$ (рис. 1а). Наличие инфракрасноактивных колебаний в области $2200\text{--}2900\text{ см}^{-1}$ приводит к аномалиям и «скачкам» в перестроечных кривых, а также к уширениям спектра с.п.и. (10, 11). Провал в интенсивности спектра в области $\sim 1000\text{ см}^{-1}$ обусловлен взаимной компенсацией электронного и решеточного вкладов в нелинейную константу (7, 12).

Сложные аномалии также наблюдаются в частотно-угловом поляритонном спектре в области $300\text{--}800\text{ см}^{-1}$ (см., например, разрыв в поляритонной ветви в области $\sim 650\text{ см}^{-1}$ на рис. 1в), детальное исследование которых требует аппаратуры более высокого разрешения. Интересно отметить появление большого числа резонансов в области $\sim 1200\text{--}2000\text{ см}^{-1}$ на рис. 1б.

Из сравнения рисунков видно, что изменение направления распространения возбуждающего излучения в кристалле влияет на зависимость частоты ν_1 от угла рассеяния. Так, например, из рис. 1в, г видно, что в области частот $\nu_2 \approx 500\text{ см}^{-1}$ $\nu_2(\theta = 0^\circ)$ при $\Theta_3^{xz} \approx 47^\circ$ (рис. 1в) больше, чем $\nu_2(\theta = 0^\circ)$ при $\Theta_3^{xz} \approx 66^\circ$ (рис. 1г). Это объясняется наличием угловой дисперсии волновых векторов (4) и угловой зависимостью энергии фотон-фононного взаимодействия, обусловленной симметрией кристалла.

Следует отметить, что кристалл $\alpha\text{-HfO}_3$ может быть предложен в качестве нового материала для создания перестраиваемых по частоте источника света инфракрасного диапазона на основе процесса вынужденного комбинационного рассеяния света на поляритонах.

В заключение авторы выражают благодарность Н. Н. Соболеву за поддержку, Д. Н. Клышко и А. Н. Пенину за полезные обсуждения и Г. Ф. Добржанскому за предоставление образцов кристалла $\alpha\text{-HfO}_3$.

Физический институт им. П. Н. Лебедева
Академии наук СССР
Москва

Поступило
3 III 1972

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

- ¹ Г. Ф. Добржанский, В. Ф. Китаева и др., Письма ЖЭТФ, 12, в. 11, 505 (1970). ² В. А. Киселев, В. Ф. Китаева и др., ЖЭТФ, 62, № 4, 1291 (1972). ³ L. Couture, M. Krauzman, J. P. Mathieu, C. R., 269, № 24, B1278 (1969). ⁴ М. М. Сушинский, Спектры комбинационного рассеяния молекул и кристаллов, «Наука», 1969. ⁵ Light Scattering Spectra of Solids, Proc. of the Intern. Confer., N. Y., 1969. ⁶ J. P. Budin, B. Godard, J. Ducuing, IEEE J. Quantum Electr., 4, 831 (1968). ⁷ Д. Н. Клышко, А. Н. Пенин, Б. Ф. Полковников, Письма ЖЭТФ, 11, в. 1, 11 (1970). ⁸ Д. Н. Клышко, А. Н. Пенин, Б. Ф. Полковников, Сборн. Квантовая электроника, № 5, 122 (1971). ⁹ Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, Электродинамика сплошных сред, 1959. ¹⁰ Д. Н. Клышко, ЖЭТФ, 55, в. 3(9), 1006 (1968). ¹¹ В. Я. Зельдович, ЖЭТФ, 58, № 4, 1348 (1970). ¹² W. L. Faust, C. H. Henry, Phys. Rev. Lett., 17, № 25, 1265 (1966).