

ГИПЕРКОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА НА ГОРЯЧИХ ФОНОННЫХ ПОЛЯРИТОНАХ

*Л.Е. Зубкова, А.А. Мохнатюк, Ю.Н. Поливанов,
К.А. Прохоров, Р.Ш. Саяхов*

Сообщается о первом экспериментальном наблюдении гиперкомбинационного рассеяния света на горячих поляритонах, возбуждаемых перестраиваемым по частоте CO_2 -лазером, что позволило поднять интенсивность рассеяния на несколько порядков и исследовать контуры линий поляритонов.

Гиперкомбинационное рассеяние (ГКР) света представляет собой нелинейно-оптический процесс, при котором квант рассеянного излучения $\hbar\omega_s$ рождается за счет двух квантов (обычно одинаковых) $\hbar\omega_l$ возбуждающего излучения: $\omega_s = 2\omega_l \pm \omega_p$, где ω_p – частота рассеивающего возбуждения среды. Использование такого процесса позволяет получать информацию, недоступную традиционным методам спектроскопии и, в частности, исследовать фононные поляритоны в нецентросимметричных средах ¹⁻³. Однако регистрация спектров ГКР связана с экспериментальными трудностями, обусловленными чрезвычайно низкой эффективностью ГКР, что в значительной степени сдерживает развитие экспериментальных работ и практически исключает возможность получения количественных данных о форме и ширине линий поляритонных спектров.

В связи с этим представляет интерес изучение процесса ГКР на поляритонах при их когерентном возбуждении внешним излучением ИК-лазера (ГКР на горячих поляритонах). Настоящая работа посвящена первой реализации такого эксперимента. Оценки, проведенные в работе ⁴, показывают, что выигрыш в интенсивности ГКР на горячих поляритонах по сравнению с ГКР на шумовых поляритонах в реальных ситуациях может составлять $10^4 - 10^5$. Кроме того, при измерении ширины линий значительная дисперсия поляритонов $\omega_p = \omega_p(\mathbf{k})$ приводит к необходимости иметь не только высокое спектральное разрешение регистрирующей аппаратуры, но и высокое разрешение в пространстве волновых векторов (в \mathbf{k} -пространстве), т. е. требуется регистрировать рассеянный на поляритонах свет в очень малом телесном угле. С этой точки зрения ГКР на горячих поляритонах также весьма привлекательно, поскольку при этом как спектральное, так и угловое разрешение определяются параметрами лазерных источников.

Процесс ГКР на горячих поляритонах можно рассматривать как четырехволновое нелинейно-оптическое смешение типа $\omega_s = \omega_l + \omega_i - \omega_p$. На частотах ω_l и ω_s среду будем считать прозрачной, а сильное поглощение ИК волны на частотах ω_p , попадающих в область решеточных резонансов, можно учесть, вводя комплексный волновой вектор поляритона $\mathbf{k}_p = \mathbf{k}'_p + i\mathbf{k}''_p$, где \mathbf{k}''_p определяет пространственное затухание поляритонной волны. Использование стандартной методики нелинейной оптики в этих предположениях дает следующее выражение для интенсивности рассеяния:

$$I_s \sim |e_s \chi^{(3)} (\omega_s = 2\omega_l - \omega_p) e_l e_l e_p|^2 I_l^2 I_p (\Delta k^2 + \mathbf{k}''^2)^{-1}.$$

Здесь $\chi^{(3)}$ — тензор кубической нелинейной восприимчивости кристалла, $\Delta \mathbf{k} \equiv \mathbf{k} - \mathbf{k}'_p = (2\mathbf{k}_l - \mathbf{k}_s) - \mathbf{k}'_p$, e_i — орты поляризации, а \mathbf{k}_i — волновые вектора соответствующих полей; индексы l, s, p относятся к пробной, рассеянной и поляритонной волнам соответственно.

Из формулы видно, что форма линии ГКР на горячих поляритонах в \mathbf{k} -пространстве имеет лоренцевский профиль с шириной на полувысоте, равной коэффициенту поглощения поляритонов $\alpha_p = 2\mathbf{k}''_p$ и с максимумом при $\Delta \mathbf{k} = 0$. Изменяя величину $\Delta \mathbf{k}$ (геометрией рассеяния), можно при различных фиксированных значениях ω_p получить спектры в \mathbf{k} -пространстве, из которых непосредственно измерить действительную и мнимую части волнового вектора поляритона. Это позволяет полностью восстановить дисперсию комплексной диэлектрической проницаемости $\epsilon(\omega, \mathbf{k})$.

В экспериментах в качестве пробной волны использовалось излучение лазера на иттрий-алюминиевом гранате с неодимом (длина волны $\lambda_l = 1,06$ мкм), работающего в режиме модулированной добротности с частотой следования 10 Гц. Поляритоны возбуждались импульсным ТЕА CO_2 -лазером с дискретной перестройкой по колебательно-вращательным переходам в диапазоне частот $940 - 1080 \text{ см}^{-1}$. Импульсы лазеров были синхронизованы во времени и их излучение падало коллинеарно на исследуемый кристалл. Рассеянный свет, распространяющийся в этом же направлении, регистрировался с помощью стробируемого ФЭУ-79, работающего в аналоговом режиме.

В качестве объекта исследования использовался центросимметричный одноосный кристалл кальцита CaCO_3 . Поляритонные спектры в \mathbf{k} -пространстве были получены при вращении кристалла, т. е. при изменении угла θ между оптической осью и четверкой волновых векторов взаимодействующих волн, за счет угловой зависимости показателя преломления необыкновенной волны. В эксперименте было реализовано взаимодействие $\Delta \mathbf{k} = \mathbf{k}_l^o + \mathbf{k}_l^e(\theta) - \mathbf{k}_s^e(\theta) + \mathbf{k}_p^o$, где индекс o означает обыкновенную, а e — необыкновенную волну.

На рис. 1 приведены экспериментально полученные описанным выше способом спектры ГКР на горячих поляритонах при различных фиксированных частотах "подсветки" поляритонов. Волновые вектора и поглощение участвующих в рассеянии поляритонов определялись путем аппроксимации полученных спектров лоренцевским контуром в соответствии с при-

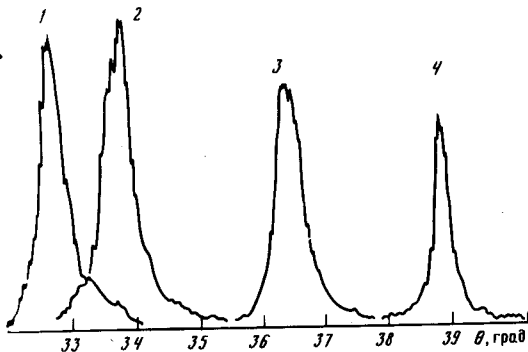


Рис. 1

Рис. 1. Линии ГРК, полученные при возбуждении поляритонов излучением CO_2 -лазера, генерирующего на частотах: 1 – $940,5 \text{ см}^{-1}$ (P_{24}), 2 – $978,5 \text{ см}^{-1}$ (R_{24}), 3 – $1039,4 \text{ см}^{-1}$ (P_{28}), 4 – $1081,1 \text{ см}^{-1}$ (R_{24}). θ – внутренний угол между оптической осью кристалла и направлением распространения взаимодействующих волн

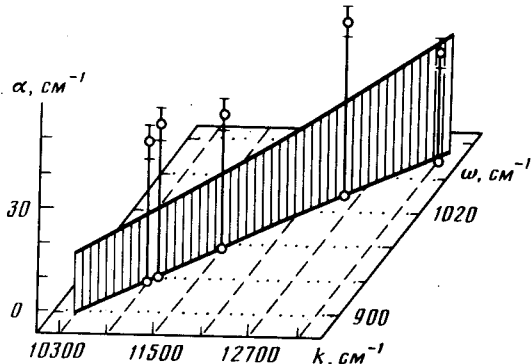


Рис. 2

Рис. 2. Дисперсия поляритонов $\omega_p(k)$ и дисперсия коэффициента поглощения $\alpha_p(\omega, k)$. Точки – результат эксперимента, сплошные кривые – расчет на основе ИК данных

веденной выше формулой. Результаты представлены на рис. 2, из которого видно, что данные по дисперсии поляритонов $\omega_p(k)$ хорошо согласуются с результатами расчета, проведенного на основании ИК данных⁵. Однако данные по $\alpha_p(\omega, k)$ значительно отличаются от расчета, проведенного в модели квазигармонических осцилляторов с частотнезависящими константами затухания. Это различие можно объяснить приближенным характером модели, не учитывающей частотную зависимость функции плотности двухфононных состояний, которая в действительности проявляется в спектрах ИК пропускания кристалла кальцита⁵.

Литература

1. Поливанов Ю.Н., Саяхов Р.Ш. Краткие сообщения по физике, 1979, №1, 23.
2. Денисов В.Н., Маврин Б.Н., Подобедов В.Б., Стерин Х.Е. Письма в ЖЭТФ, 1980, 31, 111.
3. Inoue K., Asai N., Sameshima T. J. Phys. Soc. Japan, 1980, 48, 1787.
4. Лихолит Н.И., Стрижевский В.Л., Яшкир Ю.Н. Укр. физ. журн., 1980, 25, 460.
5. Hellwege K.H., Lesch W., Plihal M., Schaack G. Z. Physik, 1970, 232, 61.