

## МНОГОКОМПОНЕНТНОЕ РАССЕЯНИЕ НА УДВОЕННОЙ ЛАЗЕРНОЙ ЧАСТОТЕ, ВОЗБУЖДАЕМОЕ В ZnSe ОДИНОЧНЫМ ПИКОСЕКУНДНЫМ ИМПУЛЬСОМ СВЕТА

В.А. Зюльков, В.П. Грибковский

Впервые наблюдалось многокомпонентное рассеяние на удвоенной лазерной частоте при возбуждении одиночным пикосекундным импульсом первой гармоники Nd-лазера монокристаллов ZnSe.

В нецентросимметричных кристаллах при высоких уровнях возбуждения могут развиваться вынужденное комбинационное рассеяние света на поляритонах (ВКРП) и генерация второй гармоники<sup>1</sup>, вследствие чего возможна ситуация, когда вторая гармоника является пробной волной для зондирования ВКРП. В настоящей работе впервые сообщается о наблюдении такого рассеяния.

Образец монокристаллического селенида цинка в виде плоскопараллельной пластинки толщиной  $\sim 1$  мм ( $T = 300$  К) возбуждался одиночным пикосекундным импульсом ( $\tau_{\text{и}} \cong \cong 8$  пс) первой гармоники ( $\hbar\omega_l = 1,17$  эВ) неодимового лазера. Рассеянный в направлении „вперед” свет на удвоенной лазерной частоте регистрировался фотографически на спектрографе или с помощью ФЭУ и осциллографа.

Интегральная интенсивность сигнала в полосе возле  $2\omega_l$  растет квадратично с мощностью возбуждающего излучения, выходя на насыщение при высоком уровне накачки. Спектр излучения при интенсивности возбуждения  $I_{\omega_0} \cong 8$  ГВт/см<sup>2</sup> состоит из линии на частоте соответствующей  $2\omega_l$  и двух смещенных полос: стоксовой и антистоксовой. Интенсивность последней значительно выше интенсивности стоксовой компоненты (рис.1 (1)). С увеличением мощности накачки число смещенных полос возрастает. Спектр расширяется как в об-

ласть низких, так и высоких частот. Интенсивности стоксовых и антистоксовых компонент выравниваются, причем в нечетных полосах более интенсивны антистоксовы компоненты, а в четных — стоксовы. Интенсивность полос с увеличением их порядка уменьшается немо-  
 нотонным образом:  $I_a^{(7)} > I_a^{(6)}$ ,  $I_a^{(5)} > I_a^{(4)}$ ,  $I_c^{(2)} > I_c^{(1)}$  и т.д. (рис. 1 (3, 4)). Наряду с дискретными линиями наблюдается широкая бесструктурная полоса с максимумом возле  $2\omega_l$  (рис. 2). При  $I_\omega = 28 I_{\omega_0}$  регистрируется до девяти стоксовых и семи антистоксовых компонент.

Возникновение многокомпонентного излучения в полупроводнике в области удвоенной лазерной частоты при мощной накачке одиночными импульсами пикосекундной длительности можно объяснить одновременным развитием в кристалле процессов генерации второй гармоники и рассеяния излучения  $2\omega_l$  на когерентных поляритонах, возбуждаемых посредством параметрического взаимодействия трех связанных нелинейностью среды волн: накачки ( $\omega_l$ ), стоксовой ( $\omega_{lc}$ ) и поляритонной ( $\omega_p$ ) (каскадные трехфотонные процессы), а также рассеяния удвоенной частоты вследствие прямых четырехфотонных процессов, в которых поляритонные возбуждения не проявляются. Первый тип рассеяния обусловлен квадратичной  $\chi^{(2)}$ , а второй — кубической  $\chi^{(3)}$  нелинейными восприимчивостями среды. Связь между частотами для взаимодействий, приводящих к генерации первых стоксовых и антистоксовых компонент, выглядит так:

$$\left. \begin{array}{l} \omega_l + \omega_l = \omega_\pi \quad (\text{а}) \\ \omega_l = \omega_{lc}^{(1)} + \omega_p \quad (\text{б}) \\ \omega_l + \omega_p = \omega_{la}^{(1)} \quad (\text{в}) \\ 2\omega_l = \omega_{lc}^{(1)} + \omega_{la}^{(1)} \quad (\text{г}) \end{array} \right\} \begin{array}{l} \nearrow \\ \rightarrow \\ \searrow \end{array} \left\{ \begin{array}{l} \omega_\pi = \omega_c^{(1)} + \omega_p \quad (\text{д}) \\ \omega_\pi + \omega_p = \omega_a^{(1)} \quad (\text{е}) \\ \omega_{lc}^{(1)} + \omega_\pi = \omega_l + \omega_c^{(1)} \quad (\text{ж}) \\ \omega_l + \omega_\pi = \omega_{lc}^{(1)} + \omega_a^{(1)} \quad (\text{з}) \\ \omega_l + \omega_{lc}^{(1)} = \omega_c^{(1)} \quad (\text{и}) \\ \omega_l + \omega_{la}^{(1)} = \omega_a^{(1)} \quad (\text{к}) \end{array} \right.$$

Стоксово излучение  $\omega_c^{(1)}$  создается за счет трехфотонных (б, д, и) и четырехфотонных (ж) процессов. Антистоксова волна  $\omega_a^{(1)}$  генерируется в основном посредством прямого четырехфотонного процесса (з).

Вследствие когерентности рассеяния, интерференция трехфотонных и четырехфотонных процессов может приводить к усложнению структуры линий при высоких уровнях возбуждения<sup>2</sup>. Этот эффект хорошо виден в спектрах (рис. 1 (3, 4)).

Более высокая интенсивность волны  $\omega_a^{(1)}$  по сравнению с  $\omega_c^{(1)}$  (рис. 1 (1)) указывает на доминирующий вклад четырехфотонного процесса (з) в рассеяние пробной волны, ибо процесс (ж) может давать вклад в волну  $\omega_c^{(1)}$  лишь в комбинации с соответствующим трехфотонным процессом (б). Это наблюдается в области малых накачек, когда происходит обычное спонтанное КР пробной волны на флуктуационных поляритонах<sup>3</sup>. С повышением уровня возбуждения достигается порог ВКРП, спектр рассеянного излучения значительно уширяется, а интенсивность стоксовых и антистоксовых компонент выравнивается. Однако, по-прежнему вклад в рассеяние от прямых четырехфотонных процессов значительнее, что проявляется в большей интенсивности антистоксовых компонент в нечетных полосах и в нарушении монотонного уменьшения интенсивности смещенных полос с ростом их номера, характерного для обычного каскадного ВКР. Преобладание четырехфотонных процессов можно объяснить резонансным характером взаимодействий ж, з так как  $\omega_\pi + \omega_l = 3,51 \text{ эВ} > E_g$  ( $E_g = 2,71 \text{ эВ}$  — ширина запрещенной зоны ZnSe). Схемы переходов для процессов, приводящих к генерации высших порядков когерентного антистоксового рассеяния приведены на рис. 3.

Появление бесструктурной полосы при мощном возбуждении, по-видимому, обусловлено вкладом в рассеяние излучения нерезонансной электронной кубической восприимчивости.

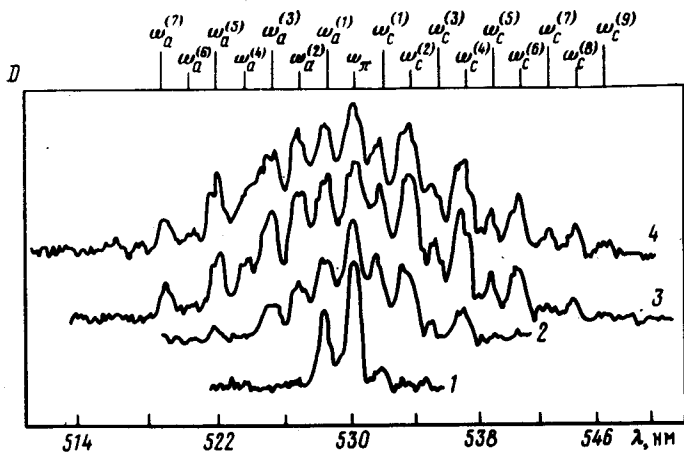


Рис.1. Микрофотограммы спектров нелинейного рассеяния в ZnSe:  $I_{\omega} = 8$  (1), 45 (2), 90 (3), 220 (4) ГВт/см<sup>2</sup>

Рис.2. Фотографии спектров нелинейного рассеяния:  $I_{\omega} = 220$  (1), 60 (2), 90 (3) ГВт/см<sup>2</sup>. Сверху и снизу нанесен калибровочный спектр железа

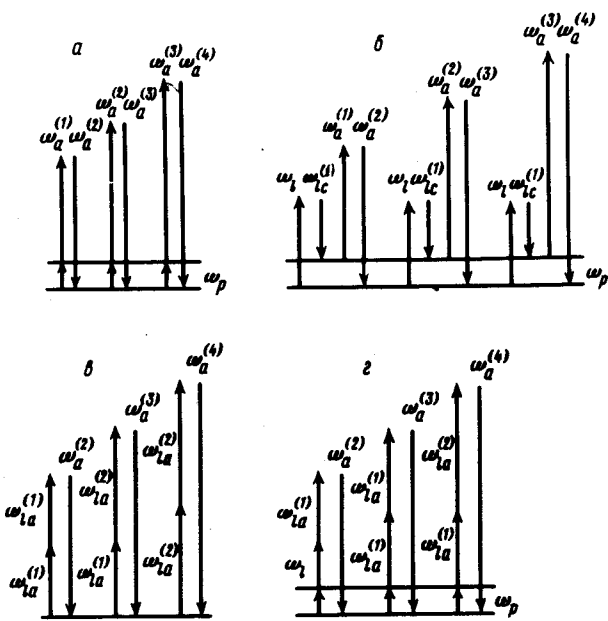
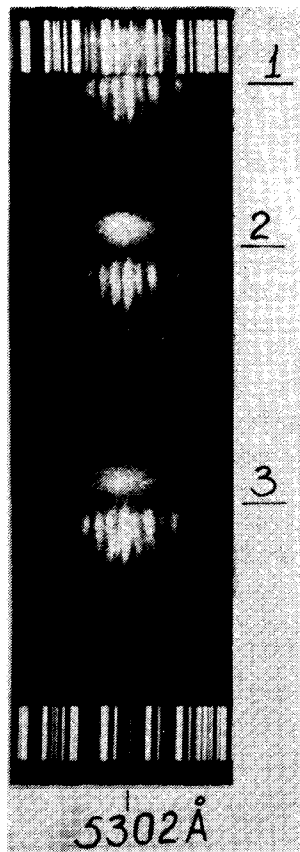


Рис.3. Схемы переходов для процессов, приводящих к генерации высших порядков антистоксового рассеяния: а – комбинационное рассеяние на поляритонах, б – прямые четырехфотонные процессы, в – генерация второй гармоники, г – гиперкомбинационное рассеяние.  $\omega_p = 60 \text{ см}^{-1}$

В заключение отметим, что гиперкомбинационное рассеяние не дает значительного вклада в излучение на удвоенной лазерной частоте, так как в CdS, ориентированным таким образом, чтобы генерация второй гармоники была невозможна (возбуждающее излучение распространяется вдоль оптической оси кристалла), описанное рассеяние не наблюдалось.

Авторы благодарны В.Л.Стрижевскому за обсуждение результатов.

#### Литература

1. Ахманов С.А., Коротеев Н.И. Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света. М.: Наука, 1981.
2. Панарин А.М., Стрижевский В.Л. Квантовая электроника, 1978, 5, 1694.
3. Стрижевский В.Л., Яшкир Ю.Н. Квантовая электроника, 1975, 2, 995.

Институт физики  
Академии наук Белорусской ССР

Поступила в редакцию  
10 января 1983 г.