

ПАРАМЕТРИЧЕСКАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ СВЕТА В КРИСТАЛЛАХ

Н.И.Лихолит, В.Л.Стрижевский, Ю.Н.Яшкур

Предложена и реализована параметрическая спектроскопия КР света, в которой рассеянное излучение, повторно взаимодействуя с накачкой, вызвавшей рассеяние, подвергается параметрическому преобразованию с повышением частоты и лишь после этого детектируется и анализируется. Продемонстрирован ряд преимуществ такой методики: облегчение регистрации рассеяния вперед, наблюдение КР при возбуждении в ИК диапазоне в кристаллах, непрозрачных в видимой области, и др.

Нами экспериментально реализован новый вариант спектроскопии комбинационного рассеяния (КР) света — параметрическая спектроскопия КР (ПСКР). Суть ее заключается в том, что лазерная накачка ω_1 , возбуждающая в кристалле КР ($\omega_1 = \omega_s + \omega_p$), повторно используется в целях параметрического преобразования (ПП) с повышением частоты стоксова рассеянного излучения ω_s посредством генерации, суммарной частоты $\omega_a = \omega_1 + \omega_s$ в том же или другом последовательно расположенном кристалле. Если используется один кристалл, то последний должен быть нецентросимметричным, чтобы существовала (в дипольном приближении) квадратичная нелинейность поляризации, и, кроме того, достаточно прозрачным в области частот ω_a . В наших экспериментах использовались кристаллы LiJO_3 , LiNbO_3 , КДР и GaSe . При использовании для ПП отдельного кристалла методика ПСКР может быть применима, естественно, и для исследования КР в центросимметричных средах, поскольку при ПП с повышением частоты природа преобразованного сигнала не существенна [1,2].

Можно указать ряд важных преимуществ методики ПСКР, обеспечивающих, по-видимому, ее определенную практическую ценность. Одно из главных связано с регистрацией рассеяния, квазиколлинеарного с накачкой, т.е. КР в области предельно малых углов рассеяния $\theta \approx 0^\circ$. В малом диапазоне углов вблизи $\theta \approx 0^\circ$ часто содержится важная спектроскопическая информация. Так обстоит дело, например, при КР на поляритонах [3]. Исследование диапазона предельно малых θ сильно затруднено, однако, засветкой от накачки, поэтому в большинстве ранее выполненных экспериментальных работ этот диапазон фактически выпадал из регистрации. В методе же ПСКР в силу пространственной избирательности преобразования частот, обусловленной явлением фазового синхронизма, при той геометрии кристалла, которая обеспечивает синхронную генерацию суммарной частоты ω_a , аналогичное синхронное преобразование накачки (т.е. генерации гармоники $2\omega_1$) отсутствует. Поэтому после ПП регистрация рассеянного излучения в области предельно малых θ уже не представляет трудностей.

Другое преимущество связано со значительным облегчением регистрации КР при возбуждении в ИК диапазоне и, в частности, с появлением

возможности фотографической регистрации такого рассеяния. Наблюдение КР при возбуждении ИК волной ω_1 доставляет важную информацию о соответствующих нелинейных поляризуемостях в ИК диапазоне, сечениях КР и т.д. Наконец, КР, возбуждаемое в ИК диапазоне, обеспечивает возможность нахождения поляритонных ветвей в кристаллах, которые непрозрачны в видимом диапазоне и не допускают поэтому использования традиционно употребляемых для этой цели непрерывных газовых лазеров видимой области типа аргонового. Нами впервые зарегистрировано поляритонное и LO — фононное КР при возбуждении лазером ЛТИ-7 с $\lambda_1 = 1,064$ мкм.

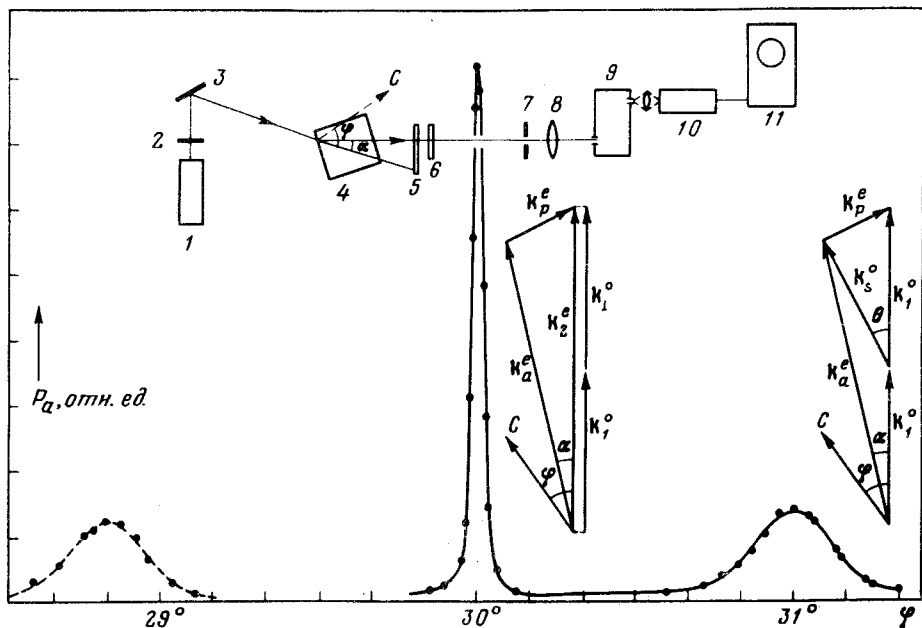


Рис. 1

На рис. 1 представлена схема нашей экспериментальной установки. Излучение лазера накачки 1 (частотный режим с $f = 12,5$ гц, пиковая мощность ~ 1 Мвт), проходя через фильтр 2 (ИКС-7) и отражаясь от поворотного зеркала 3, поступало в нелинейный кристалл 4 под углом ϕ к оптической оси 3. При данном ϕ излучение, рассеянное под определенным углом θ , синхронно смешивается с накачкой, в результате чего генерируется суммарная частота ω_a , которая попадала затем на входную щель монохроматора 9 и детектировалась фотоэлектронным умножителем 10 с выводом сигнала на осциллограф 11. Фильтры 5 и 6 отсекали излучение накачки и несинхронной второй гармоники; 7 — диафрагма, фиксирующая угол рассеяния; 8 — фокусирующая линза. Абсолютная пороговая чувствительность нашей установки составляет $\sim 3 \cdot 10^{-12}$ Вт.

В правой части рис. 1 показано взаимное расположение волновых векторов взаимодействующих волн; α — наблюдаемый угол рассеяния, т.е. угол между векторами k_1 и k_a . Углы ϕ и α можно было независимо изменять поворотом кристалла и зеркала 3, α и θ связаны друг с другом

однозначно. На рис. 1 показана также зависимость интенсивности выходного сигнала на частоте ω_a (в относительных единицах) от угла ϕ при фиксированном $\alpha = 2^\circ$ ($\theta \approx 4^\circ$) для поляритонного рассеяния в LiJO_3 (сплошная кривая). Максимум в центре при $\phi \approx 30^\circ$ отвечает положению кристалла, при котором синхронно генерируется вторая гармоника (тип взаимодействия $oo \rightarrow e$), испытывающая затем поляритонное КР ($2\omega_1 = \omega'_a + \omega'_p$, $\omega'_p = 780 \text{ см}^{-1}$, $\lambda_a = 0,5550 \text{ мкм}$). Его угловые размеры определяются угловой шириной синхронизма для процесса удвоения частоты, равной 5° . При 31° появляется новый максимум, отвечающий интересующему нас двухкаскадному процессу, на котором основана ПСКР: $\omega_1 = \omega_s + \omega_p$ ($0 \rightarrow o + e$) и затем $\omega_1 + \omega_s = \omega_a$ ($o + o \rightarrow e$); $\omega_p = 780 \text{ см}^{-1}$, $\lambda_a = 0,5550 \text{ мкм}$. Высота его меньше, так как сечение КР $\sigma(\omega_1) < \sigma(2\omega_1)$. Наблюдаемые положения обоих максимумов совпадают с расчетными.

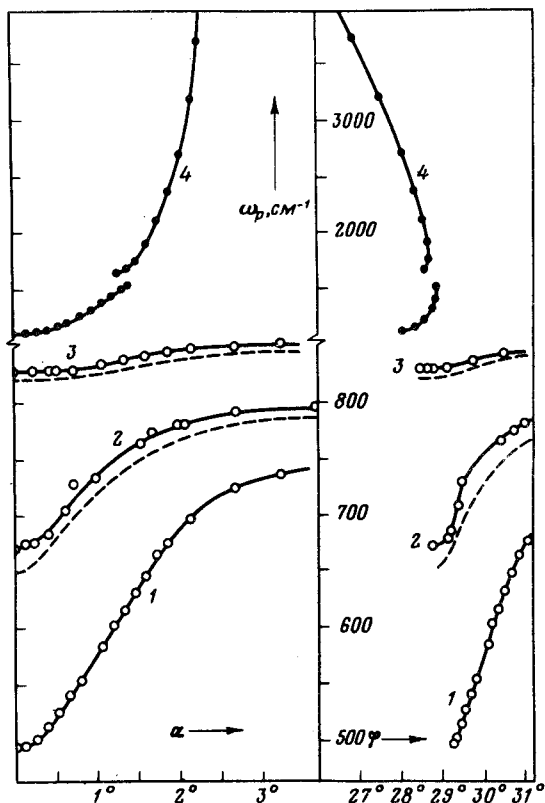


Рис. 2.

КР, возбуждаемое волной $2\omega_1$, вследствие засветки накачкой $2\omega_1$ удавалось наблюдать только в области $\alpha > 2^\circ$ ($\omega_p > 550 \text{ см}^{-1}$). В то же время сигнал ПСКР без труда наблюдается при любых α . На рис. 1 пунктиром показан сигнал ПСКР при $\alpha = 0$ ($\omega_p = 673 \text{ см}^{-1}$, $\lambda_a = 0,5515 \text{ мкм}$).

На рис. 2 в иллюстративных целях представлены найденные методом ПСКР дисперсионные кривые LiJO_3 в координатах α , ω_p (слева). Кривые 1, 4 отвечают процессам $e \rightarrow o + e$ (этап рассеяния) и $o + o \rightarrow e$ (этап параметрического преобразования), а 2, 3 — процессам $o \rightarrow o + e$ и $o + o \rightarrow e$. Кривые 1 и 2 отвечают анизотропным e -поляритонам в зонах полярных колебаний А-и Е-типов (795 и 769 см^{-1}); кривая 3 анизотропному про-

дольному фонону, который возникает при смешении продольных фононов типов A (817 см^{-1}) и E (848 см^{-1}); 4 – верхняя поляритонная ветвь. (виден разрыв, обусловленный зоной двухчастичных состояний). Пунктир (в случаях 2,3) – расчетные кривые. Полученные результаты хорошо согласуются с ранее известными [4], что можно рассматривать как апробацию методики ПСКР. В правой части рис. 2 приведены измеренные (сплошные линии) и рассчитанные нами (пунктир) кривые, определяющие зависимость угла синхронного сложения ϕ от ω_p . Аналогичные результаты получены для LiNbO_3 и KDP .

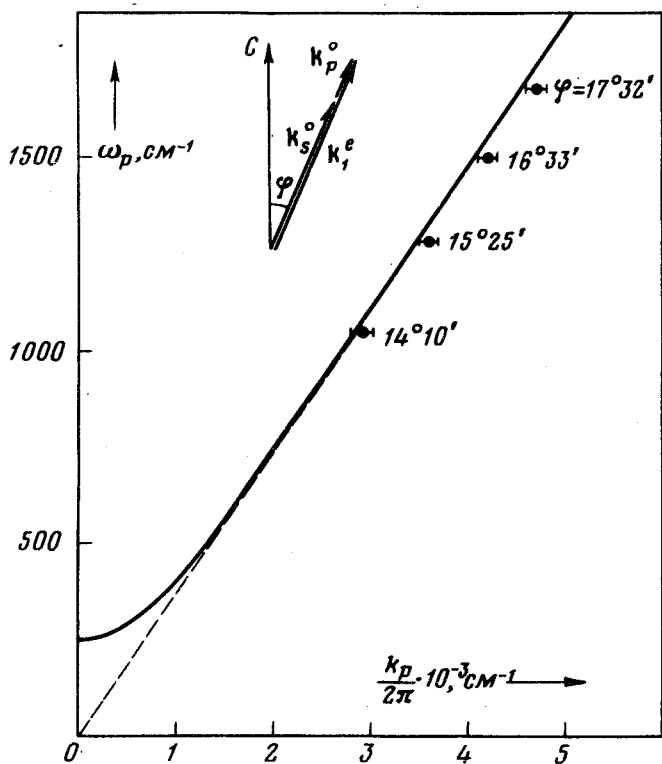


Рис. 3.

Сравнение сигналов КР при возбуждении волной $2\omega_1$ и ПСКР позволяет связать эффективные квадратичные нелинейные поляризуемости $\chi_s = \chi_s(\omega_s, \omega_p)$ и $\chi_\sigma = \chi_\sigma(\omega_a', \omega_p)$, ответственные за поляритонное КР волн ω_1 и $2\omega_1$. Отношение интенсивностей этих сигналов p , равное отношению максимумов на кривых, типа фигурирующих на рис. 1, вдали от механических фоновых резонансов, есть $p = (\omega_s \chi_s / \omega_1 \chi_\sigma)^2$ и измеряется без труда. Так, при $\omega_p = 780 \text{ см}^{-1}$ $p = 0,85$ (с точностью 30%) и $\chi_s / \chi_\sigma = 0,45 \pm 15\%$.

Наконец, на рис. 3 показан полученный по методу ПСКР участок верхней o -поляритонной ветви кристалла GaSe (сплошная кривая – расчет на основе данных [5, 6]). Последний непрозрачен в области $\lambda \leq 0,65 \text{ мкм}$, поэтому ПП излучения КР производилось в последовательно расположенном кристалле LiJO_3 . При этом было $\alpha = 0$, а перестройка КР осуществ-

влялась вращением кристалла согласно [7,8]. Поляритонное КР в кристалле, непрозрачном в видимой области спектра, получено нами впервые, и это стало возможным, благодаря методике ПСКР.

По мнению авторов предложенная методика расширяет возможности КР спектроскопии рассеивающих сред.

Киевский
государственный университет
им. Т.Г.Шевченко

Поступила в редакцию
10 октября 1978 г.

Литература

- [1] Э.С.Воронин, В.Л.Стрижевский. УФН, **127**, вып.1, 1979.
 - [2] А.В.Бобров, Д.Н.Никогосян. "Квант. электр", **1**, 1242, 1974.
 - [3] Ю.Н.Поливанов. УФН, **126**, вып.3, 1978.
 - [4] L.A.Kulevsky, Yu.N.Polivanov, S.N.Poluektov. J. Ram. Spectr., **5**, 269, 1976.
 - [5] Д.Н.Никогосян. "Квант. электр", **4**, 5, 1977.
 - [6] R.L.Youlles, N.Piccioli, M.Mejjatty, M.Balkanski. Nuovo Cim., **38B**, 159, 1977.
 - [7] В.С.Китаева, Л.А.Кулевский, Ю.Н.Поливанов, С.Н.Полуэктов. ДАН СССР, **207**, 1322, 1977.
 - [8] В.Л.Стрижевский, Ю.Н.Яшкир, Сб. "Лазеры с перестраиваемой частотой", АН УССР Киев, 1973, стр.332.
-