

ПАРАМЕТРИЧЕСКАЯ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ  
И РАССЕЯНИЕ СВЕТА НА ПОЛЯРИТОНАХ

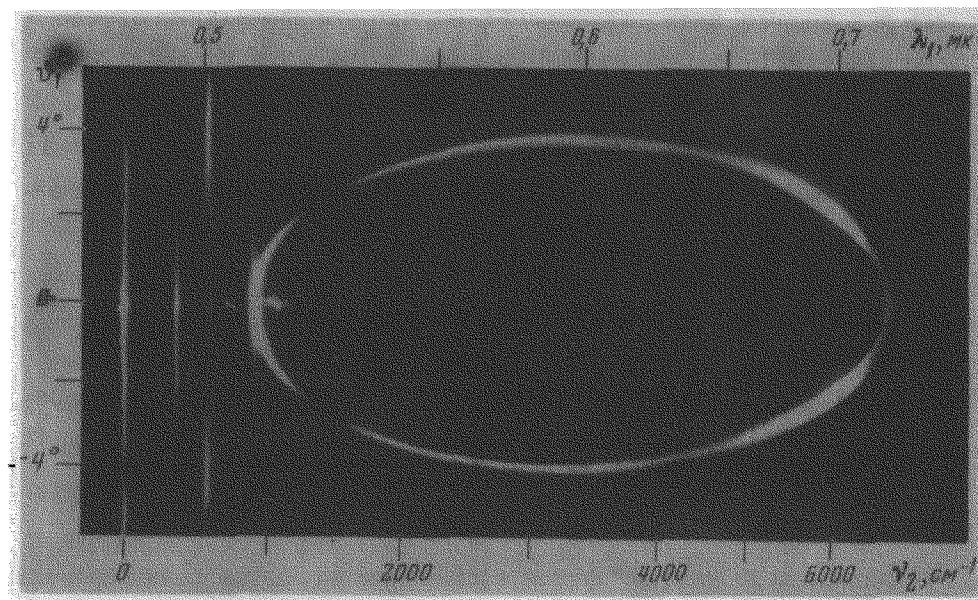
Д.Н.Клышко, А.Н.Пенин, Б.Ф.Полковников

До сих пор параметрическое и поляритонное рассеяние света и в теоретических и в экспериментальных работах (см., например, [1–6]) изучались независимо, хотя было ясно [2, 3], что это предельные случаи одного явления. Параметрическая люминесценция – это процесс рассеяния, при котором фотон падающего излучения распадается на пару фотонов ( $\omega_3 \rightarrow \omega_1 + \omega_2$ ) за счет взаимодействия с электронами вещества. Макроскопически это взаимодействие принято характеризовать нелинейной поляризуемостью  $\chi$ , которая отлична от нуля в пьезокристаллах. С другой стороны, комбинационное рассеяние в кристалле – это распад на фотон и фонон, причем эффективность процесса обычно характеризуется плачевковской поляризуемостью. В пьезокристаллах этот фонон может быть активным и в ИК-поглощении, т. е. может иметь смешанную механическую и электромагнитную природу и его следует тогда называть поляритоном. Очевидно, что по мере повышения частоты поляритона  $\omega_2$  и ее удаления от частоты механического резонанса решетки  $\omega_n$  он превращается в "чистый" фотон и рассеяние на поляритонах переходит в параметрическое рассеяние.

Настоящее сообщение посвящено первому наблюдению рассеяния в переходной области, где оно обусловлено как электронной, так и решеточной (плачевковской) нелинейностями. Эксперименты по наблюдению рассеяния в широком интервале частот позволяют измерить дисперсию нелинейной (а также линейной) поляризуемости вещества и представляют собой удобный метод нелинейной спектроскопии. В частности, нами обнаружен эффект взаимной компенсации электронной и решеточной нелинейностей в кристалле ниобата лития, который приводит к "провалу" в яркости рассеянного света на определенной частоте (длинноволновый склон этого провала наблюдался ранее [3, 5] и ошибочно, по нашему мнению, объяснялся в [5] влиянием поглощения).

Характерный признак когерентного неупругого рассеяния – зависимость частоты рассеянного света от направления наблюдения. На рисунке представлена спектрограмма, непосредственно иллюстрирующая эту зависимость: по вертикали отложен угол рассеяния, по горизонтали – разность между частотами падающего и наблюдаемого света, т. е. хо-

лостая частота  $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$ . Такой частотно-угловой спектр был получен при расположении щели спектрографа (параллельной оси кристалла) в фокусе линзы; возбуждающий луч аргонового лазера был перпендикулярен оси кристалла и имел необыкновенную поляризацию, а рассеянный свет и поляритоны – обыкновенную. В предыдущих работах по параметрической люминесценции [3–5] наблюдалась лишь правая часть "эллипса" (см. рисунок). Холостые частоты здесь много больше оптических



Частотно-угловой спектр света, рассеянного кристаллом ниобата при возбуждении аргоновым лазером ( $\lambda_3 = 4880 \text{ \AA}$ ). По горизонтали отложена длина волны рассеянного света  $\lambda_1$  и холостая частота  $\nu_2 \equiv \lambda_3^{-1} - \lambda_1^{-1}$  по вертикали – угол между лучом лазера и направлением наблюдения (пересчитанный внутрь кристалла). Линия с  $\lambda_1 = 4965 \text{ \AA}$  и точки с  $\theta \approx 0^\circ$  обусловлены паразитным излучением лазера

частот решетки  $\omega_n$  и рассеяние обусловлено электронной нелинейной восприимчивостью  $\chi_\infty$ . Левая часть эллипса соответствует промежуточному типу рассеяния, вызванного одновременно  $\chi_\infty$  и решеточной нелинейностью, пропорциональной деформационному потенциалу или плачевской поляризуемости. Вертикальные или слегка изогнутые линии левее эллипса являются результатом рассеяния на продольных колебаниях решетки и поляритонах за счет решеточной нелинейности. Например, линия  $880 \text{ см}^{-1}$ , примыкающая к эллипсу слева, наблюдалась рядом исследователей в 90-градусном спектре [7, 8].

Наиболее важной особенностью спектрограммы является "провал" в яркости рассеянного света при  $\omega_2 \sim 1500 \text{ см}^{-1}$ . Это явление обусловлено тем, что электронная и решеточная нелинейности на этой частоте компенсируют друг друга [3]. Частотная зависимость компонент тензора нелинейной восприимчивости в этой области частот имеет следующий вид [8-10]:

$$\chi(\omega_2) = \chi_\infty + \sum \frac{C_n}{1 - \omega_2^2 / \omega_n^2} \approx \chi_\infty \left( 1 - \frac{\omega_0^2}{\omega_2^2} \right), \quad (1)$$

где  $\omega_0^2 = \sum C_n \omega_n^2 / \chi_\infty$ . Оценка  $\omega_0$  по данным [8] с учетом вклада семи колебаний типа E при условии, что все  $C_n > 0$  (ср. [10]) дала значение  $1769 \text{ см}^{-1}$ . Джиалоренци и Танг [5] наблюдали лишь правый склон этого провала и объяснили его влиянием поглощения на холостой частоте. Однако из рисунка ясно, что при дальнейшем уменьшении  $\omega_2$  яркость рассеяния вновь возрастает <sup>1)</sup>, хотя коэффициент поглощения при этом почти монотонно растет [7] (достигая  $1000 \text{ см}^{-1}$  на левом краю эллипса).

Таким образом, наши эксперименты показали, что поглощение на холостой частоте не влияет непосредственно на силу рассеянного света  $dP/d\Omega$ . Это заключение подтверждает вывод феноменологического анализа [2], согласно которому поглощение (как и расходимость возбуждающего излучения – ср. [5]) влияет только на ширину линии  $\Delta\omega$  и спектральную силу света  $dP/d\Omega d\omega$  – на величины, которые наблюдаются лишь при достаточно высоком спектральном  $\Delta\omega_n$  и угловом разрешении индикатора. В наших экспериментах  $\Delta\omega_n \gg \Delta\omega$ , так что плотность спектрограммы пропорциональна  $dP/d\Omega$ , которая равна [1-3] <sup>2)</sup>

$$\frac{dP}{d\Omega} = \frac{2\pi\hbar\omega_1^4 n_1 \omega_2 P_3 \ell}{c^5 \alpha_1^2 \alpha_3^2 n_3 |1 - v_2 \cos \psi / v_1 \alpha_1|} \frac{v_2 \chi^2}{n_2 \alpha_2} \quad (2)$$

Здесь  $n$  – показатели преломления,  $\chi \equiv \chi_{ijk} e_{ij} e_{2j} e_{3k}$  ( $e$  – орты поляризации,  $P_3$  – мощность возбуждающего излучения,  $\ell$  – толщина

<sup>1)</sup> Это возрастание впервые было обнаружено Д.П.Криндачем (частное сообщение).

<sup>2)</sup> См. также недавно опубликованную работу [11], в которой приведено слегка отличное выражение.

кристалла,  $\alpha$  – косинусы углов между лучевыми и волновыми ( $k$ ) векторами,  $v$  – групповые скорости,  $\psi$  – угол между  $u_2$  и  $k_1$ . Подчеркнем, что дисперсию  $\omega_2(k)$  следует определять из диэлектрической проницаемости  $\epsilon$  без учета затухания [6, 9]

Частотная и угловая зависимость  $dP/d\Omega$  в поляритонной области <sup>1)</sup>, где ( $v_2 \ll v_1$ ) определяется в основном последним множителем в (2) (при совпадении  $\omega_2$  с частотами продольных колебаний этот множитель следует заменить на  $2c \chi^2(\omega_2) \partial \epsilon / \partial \omega$  <sup>-1</sup>). Вследствие характерной зависимости  $\chi$  от направления  $k_1$  эффект комбинационного рассеяния на малые углы позволяет легко определить тип поляризации продольный или поперечный колебаний решетки.

Авторы признательны С.А.Ахманову, Р.В.Хохлову и Д.П.Криндачу за плодотворные обсуждения.

Московский

государственный университет  
им. М.В.Ломоносова

Поступила в редакцию  
11 ноября 1969 г.

### Литература

- [1] D.A.Kleinman. Phys. Rev., 174, 1027, 1968.
- [2] Д.П.Клышко. ЖЭТФ, 55, 1006, 1968.
- [3] Д.Н.Клышко, Д.П.Криндач. ЖЭТФ, 54, 697, 1968; Оптика и спектроскопия, 26, 981, 1969.
- [4] J.P.Budin, B.Godard, J.Ducuing. Proc. IEEE, QE-4, 831, 1968.
- [5] T.G.Giallorenzi, C.L.Tang. Phys. Rev., 184, 353, 1969.
- [6] H.E.Puthoff, R.H.Pantell, B.C.Huth, M.A.Chacon. J.Appl. Phys., 39, 2144, 1968.
- [7] A.S.Barker, R.Loudon. Phys. Rev., 153, 433, 1967.
- [8] I.P.Kaminov, W.D.Johnston. Phys. Rev., 160, 519, 1967.
- [9] C.H.Henry, G.G.B. Garrett. Phys. Rev., 171, 1958, 1968.
- [10] W.L.Faust, C.H.Henry, R.H.Eick. Phys. Rev., 173, 781, 1968.
- [11] В.В.Обуховский, В.Л.Стрижевский. ЖЭТФ, 57, 520, 1969.

---

<sup>1)</sup> Эта зависимость подробно рассмотрена в [11].