

ЧЕТЫРЕХВОЛНОВОЕ ПОЛЯРИТОННОЕ РАССЕЙНИЕ СВЕТА В LiNbO_3 *Г. Х. Китаева, П. С. Лосевский, А. А. Михайловский, А. Н. Пенин**Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119899, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 21 октября 1996 г.

Проведено экспериментальное исследование k -спектров четырехволнового стока рассеяния света на поляритонах в кристаллах ниобата лития с примесью Mg. Механизмы прямого, каскадного, когерентного и некогерентного четырехволнового смещения света обсуждаются при интерпретации угловых зависимостей интенсивности рассеянного излучения. Показана возможность измерения дисперсии действительной части волнового вектора поляритона и показателя преломления кристаллов на поляритонных частотах с точностью, на порядок превышающей точность метода спонтанного трехволнового рассеяния света на поляритонах. Вместе с тем обнаружено существенное расхождение результатов определения коэффициента поглощения поляритона по угловым спектрам трехволнового рассеяния и четырехволнового рассеяния света в рамках принятой модели.

1. ВВЕДЕНИЕ

Спектроскопия рассеяния света на поляритонах является чрезвычайно чувствительным методом изучения относительно малых изменений свойств среды. С помощью этого метода могут исследоваться явления, не проявляющиеся в спектрах комбинационного рассеяния света на фонах. Это происходит в тех достаточно распространенных случаях, когда частоты фононов остаются практически неизменными, а меняются только силы осцилляторов или константы затухания фононов. При этом существенным образом изменяется и закон дисперсии поляритонных состояний. В спектрах рассеяния света на поляритонах проявляются такие эффекты, как слабые изменения концентрации примеси, пространственная неоднородность, фазовые переходы, появление низкоразмерных свойств и многие другие. Диэлектрические характеристики сред в области частот оптических фононов могут быть измерены также по спектрам ИК-отражения. Однако при использовании эффектов рассеяния измерения интенсивности сигнального излучения могут проводиться в видимом диапазоне, что, как правило, существенно проще. Кроме того, при использовании методов спектроскопии рассеяния света больше возможностей разделения объемных и поверхностных эффектов.

Явление трехволнового спонтанного параметрического рассеяния света на поляритонах успешно используется при исследовании свойств кристаллических нецентросимметричных структур [1]. Однако часто его применение ограничено ввиду малой интенсивности рассеянного излучения. Это особенно затрудняет исследование микроскопически малых объектов, ограничивает пространственное разрешение метода. Выходом может служить использование методов активной спектроскопии на базе эффектов четырехволнового рассеяния света.

Первые работы в данной области были начаты еще в конце 60-х годов [2] и ведутся различными исследовательскими группами по сей день. Проведено принципиальное

рассмотрение процессов четырехволнового смешения как в средах с центром симметрии [3], так и без него [2, 4–8]. Случай нецентросимметричной среды является наиболее общим при рассмотрении процессов активной спектроскопии. Здесь в интенсивность рассеянного излучения дают вклад прямые четырехфотонные процессы и каскадные трехфотонные процессы, связанные с нелинейными восприимчивостями $\chi^{(3)}$ и $\chi^{(2)}$ соответственно. Для обоих типов процессов существенно выполнение условий частотного и фазового синхронизмов. Для прямого четырехфотонного процесса они имеют вид

$$\omega_L - \omega_S - \omega_1 + \omega_2 = 0, \quad (1)$$

$$\Delta \mathbf{k} \equiv \mathbf{k}_S - \mathbf{k}_L + \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 = 0, \quad (2)$$

где ω — частоты, \mathbf{k} — волновые векторы взаимодействующих волн в среде, индексы 1, 2 и L относятся к падающим на среду волнам, индекс S — к сигнальной волне, регистрируемой на выходе среды. Здесь и далее рассматривается стоковая компонента рассеянного излучения. Каскадный процесс может быть представлен как последовательность процессов генерации разностных частот. В ходе первого процесса происходит генерация холостой волны (в нашем случае она связана с поляритонным состоянием среды) за счет параметрического вычитания частот двух возбуждающих накачек, а затем на холостой волне происходит рассеяние зондирующей волны накачки. Наибольшей эффективности каскадный процесс достигает тогда, когда вместе с условиями синхронизма (1), (2) выполняются дополнительные условия синхронизма:

$$\omega_1 - \omega_2 = \omega_p, \quad (3)$$

$$\tau \equiv \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_p = 0, \quad (4)$$

индексы 1 и 2 относятся к возбуждающему излучению, а индекс p обозначает поляритонную (холостую) волну.

В работах [4–6] проведено экспериментальное исследование взаимного влияния этих процессов в кристаллах GaAs, LiNbO₃ и LiIO₃, получены выражения для восприимчивости третьего порядка $\chi^{(3)}$ и измерена ее эффективная величина, описывающая как прямой, так и каскадный процессы. Интерференция процессов, идущих с участием различных нелинейных восприимчивостей, проявляется в асимметрии формы линии рассеяния и появлении у нее дополнительных максимумов в ω - и k -пространствах [7]. Экспериментально эти эффекты наблюдались при рассеянии света на возбуждениях, соответствующих верхней поляритонной ветви, в случае слабого поглощения на поляритонной частоте [6].

Цель данной работы — создание оптимальной схемы спектроскопической установки, оценка чувствительности и исследование особенностей когерентного стокова четырехволнового рассеяния на поляритонах в условиях сильного поглощения на частоте поляритонного состояния. Этот случай представляется наиболее характерным для поляритонной спектроскопии и вместе с тем мало изучен экспериментально. В качестве объектов исследования использовались кристаллы LiNbO₃ с различным содержанием примеси Mg.

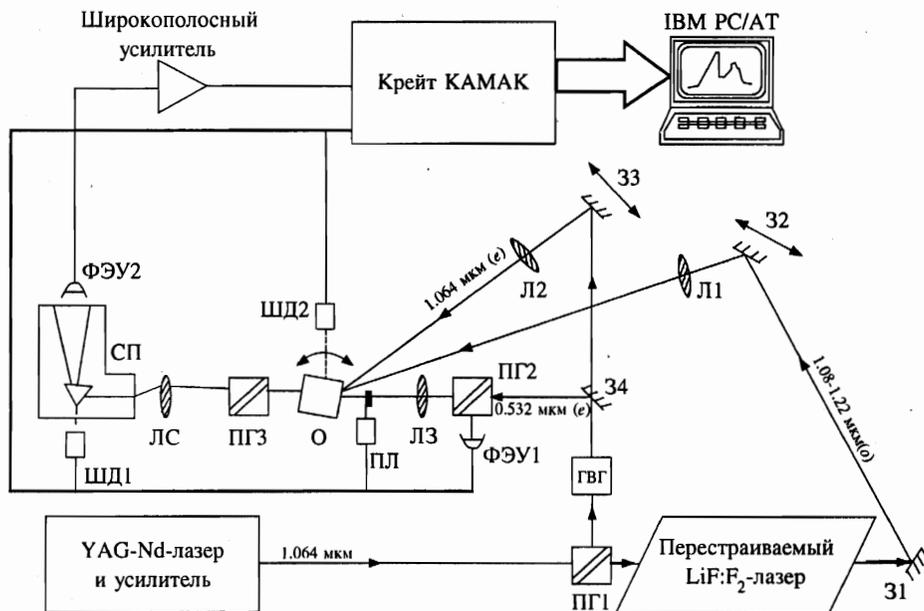


Рис. 1. Схема экспериментальной установки: ПГ1,2,3 — поляризационные призмы Глана-Томсона, 31,2,3 — зеркала, 34 — частотно-селективное зеркало, ГВГ — кристалл — генератор второй гармоники, Л1,2,3 — фокусирующие линзы, ПЛ — прерыватель луча, О — исследуемый образец, ЛС — трехлинзовая система, СП — спектрограф, ФЭУ1 — детектор канала измерения мощности накачки, ФЭУ2 — детектор канала измерения интенсивности рассеянного излучения, ШД1,2 — шаговые двигатели

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА И ОБРАЗЦЫ LiNbO_3

В большинстве выполненных ранее работ использовалась традиционная схема когерентной спектроскопии антистоксова рассеяния, в которой одна из накачек является дважды вырожденной с точки зрения процесса четырехволнового смешения и регистрация сигнала ведется на антистоксовой частоте. В нашем случае использовался наиболее общий вариант четырехволнового взаимодействия, в котором все волны имеют разные частоты и регистрируется стоксова компонента рассеянного излучения. Схема экспериментальной установки приведена на рис. 1. Источниками волн возбуждающего излучения с частотами ω_1 и ω_2 служат YAG:Nd³⁺-лазер и перестраиваемый лазер на кристалле LiF:F_2^- , имеющие длины волн генерации соответственно $\lambda_1 = 1.064$ мкм и λ_2 в интервале 1.08–1.22 мкм и работающие с частотой повторения 1–33 Гц. Накачкой для перестраиваемого лазера на кристалле с центрами окраски служит излучение основной гармоники YAG:Nd³⁺-лазера, прошедшее через YAG:Nd³⁺-усилитель и поляризационную призму Глана-Томсона ПГ1. В качестве зондирующей волны используется излучение второй гармоники YAG:Nd³⁺-лазера (длина волны $\lambda_L = 532$ нм), генерируемое удвоителем частоты ГВГ. Это излучение отделяется от излучения основной гармоники при помощи зеркала с селективным по частоте коэффициентом отражения. Благодаря использованию источников ближнего ИК-диапазона для возбуждения поляритонной волны паразитные засветки, вызванные люминесценцией исследуемой среды под действием возбуждающего излучения, попадают в ИК-диапазон, далекий от области регистрации сиг-

нала, лежащей в видимой части спектра. Необходимая поляризация лучей, падающих на кристалл, определяется поляризационными призмами Глана–Томсона ПГ1 и ПГ2. Углы падения лучей накачки на исследуемый кристалл задаются системой зеркал З2–З4. Кроме того, введение в лучи накачек дополнительных фокусирующих линз Л1–Л3 позволяет варьировать значение плотности мощности накачек в области их взаимодействия и их угловую расходимость. Рассеянное излучение собирается трехлинзовой системой ЛС в плоскости входной щели спектрографа СП, пройдя предварительно через поляризационную призму Глана–Томсона ПГ3, служащую анализатором рассеянного излучения и отсекающую прошедшее через образец О излучение пробной волны.

На выходе спектрографа формировалась двумерная частотно-угловая картина рассеяния. Отклонение луча по горизонтали соответствовало частоте рассеянной волны, по вертикали — углу рассеяния в плоскости волновых векторов накачек. Устройство кассетной части спектрографа позволяет проводить как фотографическую, так и электронную регистрацию сигнала. В последнем случае приемником сигнала служит ФЭУ2, работающий в аналоговом режиме. Его сигнал через широкополосный усилитель с регулируемым коэффициентом передачи поступает в быстродействующий стробируемый АЦП интегрирующего типа, входящий в состав крейта КАМАК и далее в управляющую ЭВМ типа IBM PC/AT. Управляющая ЭВМ посредством блоков, входящих в состав крейта КАМАК, осуществляет синхронизацию и управление работой отдельных узлов установки. В нашем варианте установки при фотоэлектронной регистрации спектра ФЭУ был неподвижен, и перед ним была помещена щель переменной ширины с микрометрическим винтом. Сканирование спектра по частоте осуществлялось путем поворота призмной части спектрографа шаговым двигателем ШД1. Другой двигатель ШД2 служит для поворота кристалла в плоскости, содержащей все лучи накачек, что дает возможность изменять расстройку фазового синхронизма в образце. Дополнительный фотоприемник ФЭУ1 служит для контроля мощности накачки. Использование прерывателя пробного луча ПЛ позволяет автоматически вычитать фон, связанный в основном с засветкой фотоприемника излучением суммарной частоты двух инфракрасных лазеров. Оптическая схема установки ориентирована на регистрацию стоксовой компоненты рассеянного излучения. В этом состоит основное отличие данной спектроскопической схемы от схемы когерентного антистоксова четырехволнового рассеяния света [4–6]. Схема антистоксова рассеяния получила наиболее широкое распространение в практике четырехволновой спектроскопии благодаря возможности использования вырожденной по частоте накачки (в этом случае $\omega_1 = \omega_L$, а частота регистрируемого сигнала равна $\omega_{as} = 2\omega_L - \omega_2$). Однако эта возможность может быть использована без каких-либо ограничений при исследовании центросимметричных сред, когда каскадный тип рассеяния отсутствует и обеспечить выполнение всех необходимых условий синхронизма относительно несложно. Напротив, при изучении поляритонов на основе каскадного четырехволнового рассеяния в нецентросимметричных кристаллах необходимо выполнение большего числа условий синхронизма. Для этого во многих случаях приходится отказаться от использования вырожденной накачки и рассматривать стоксову и антистоксову схемы регистрации с равноправных позиций. После этого становится существенным то преимущество стоксовой схемы, что она легко совместима со схемой регистрации трехволнового рассеяния света. Действительно, простым включением возбуждающих накачек можно легко переходить от наблюдения спонтанного трехфотонного рассеяния света на поляритонах к наблюдению рассеяния на когерентно возбужденных состояниях среды, поскольку в обоих случаях рассеянное излучение лежит

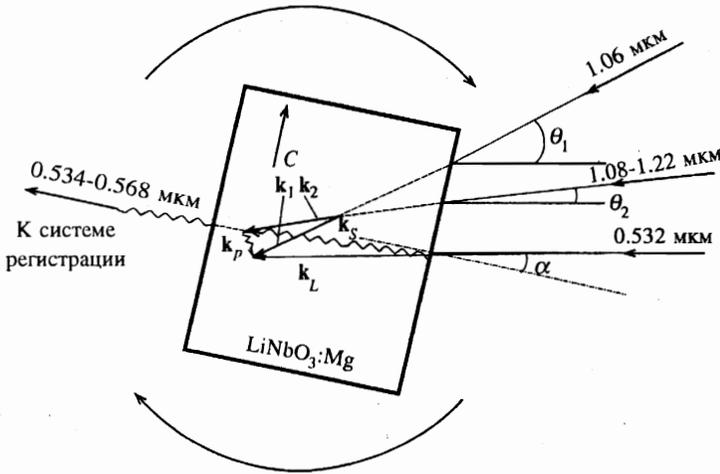


Рис. 2. Схематическое изображение хода лучей и взаимной ориентации волновых векторов

в одном частотно-угловом интервале.

В нашей работе использовались образцы LiNbO_3 с массовой долей примеси Mg 0.68% и 0.79%. Данные по показателям преломления в видимой и ближней ИК-области были взяты из работы [9] для кристалла с концентрацией легирующей примеси 0.79%, а данные для кристалла с концентрацией 0.68% были получены путем аппроксимации данных той же работы и результатов измерения показателя преломления конгруэнтного кристалла LiNbO_3 без примесей [10]. Кроме того, по спектрам спонтанного параметрического рассеяния света была определена дисперсия показателя преломления кристаллов для волн обыкновенной поляризации в области частот исследуемого поляритонного состояния.

Кристаллы LiNbO_3 принадлежат к тригональному классу и обладают точечной симметрией $3m$. В эксперименте использовались необыкновенно поляризованные накачки с длинами волн $\lambda_L = 0.532$ мкм и $\lambda_1 = 1.064$ мкм, излучение перестраиваемого LiF:F_2^- -лазера имело обыкновенную поляризацию. Это определило компоненты тензоров нелинейной восприимчивости, на которых происходит взаимодействие: χ_{xxx} и χ_{xxxy} для тензора квадратичной нелинейной восприимчивости $\chi^{(2)}$ и χ_{xxxx} для тензора кубической нелинейной восприимчивости $\chi^{(3)}$. Геометрия рассеяния показана на рис. 2.

3. НАСТРОЙКА ЧАСТОТНОГО И УГЛОВОГО СИНХРОНИЗМА

Для того чтобы измерить закон дисперсии поляритонных состояний $\omega_p(\mathbf{k}_p)$ по спектрам четырехволнового рассеяния, необходимо обеспечить точное выполнение частотных соотношений (1), (3) и выполнение соотношений для волновых векторов взаимодействующих волн в среде (2), (4) с достаточно малыми расстройками $\Delta\mathbf{k}$ и τ . На практике настройка частотного и пространственного (углового) синхронизма состоит из двух этапов.

На первом этапе для каждого выбранного значения частоты поляритона ω_p устана-

вливаются частота генерации перестраиваемого лазера ω_2 в соответствии с (3) и частота селекции сигнального излучения на выходе кристалла ω_S в соответствии с (1). Необходимо отметить, что двойная селекция частоты — на уровне селективного резонатора перестраиваемого лазера и на уровне спектрально-селектирующего прибора в приемном канале — не обязательна, а продиктована только необходимостью исключения шумовых засветок приемной аппаратуры. В нашем случае измерения проводились при различных фиксированных значениях разности частот $\omega_1 - \omega_2 = \omega_p$ в диапазоне 520–578 см^{-1} , как вблизи фононного резонанса среды *E*-типа с частотой $\omega_{TO} = 580 \text{ см}^{-1}$, так и на некотором удалении от него. Спектральные ширины линий накачек составляли приблизительно 1 см^{-1} для излучения основной и второй гармоник YAG:Nd³⁺-лазера и 6 см^{-1} для перестраиваемого лазера. Ширины линий рождавшегося сигнального излучения полностью соответствовали частотной структуре накачек.

На втором этапе производится настройка пространственного синхронизма. Этот процесс, по-видимому, является наиболее трудоемким этапом измерений. В случае рассеяния в главной плоскости одноосного кристалла имеются три настроечных параметра. Это — углы, определяющие взаимную ориентацию трех накачек и оптической оси кристалла. Причем окончательная точная настройка должна производиться по каким-либо двум из этих трех параметров. Для наблюдения прямого четырехфотонного рассеяния выполнение условия (4) не критично, и настройка пространственного синхронизма может производиться по одному параметру, что существенно облегчает наблюдение сигнала. Однако возможность измерения волнового вектора поляритона при этом теряется.

Нами были измерены формы линии четырехволнового рассеяния в *k*-пространстве. Последовательность действий при этом была следующей: устанавливалась постоянная разность частот $\omega_1 - \omega_2 = \omega_p$, лучи ИК-накачек направлялись на кристалл под фиксированными углами θ_1 и θ_2 к направлению распространения зондирующей накачки и измерялась зависимость интенсивности сигнала на частоте $\omega_S = \omega_L - \omega_1 + \omega_2$ от угла поворота кристалла α в плоскости волновых векторов накачек. Значения углов α , θ_1 и θ_2 варьировались около средних значений, которые были заранее определены путем решения уравнений (1)–(4) с учетом данных о дисперсии показателей преломления кристаллов. Для каждой фиксированной сигнальной (а значит, и поляритонной) частоты область решений условий точного синхронизма в пространстве углов α , θ_1 и θ_2 представляет собой участок кривой. Учет возможной расстройки синхронизма эквивалентен определенному «размытию» этой кривой. Для каждой разности частот $\omega_1 - \omega_2 = \omega_p$ была проведена серия измерений формы линии $I_S(\alpha)$, в которой взаимная ориентация зондирующей волны и одной из ИК-накачек оставалась постоянной на входе кристалла, а угол падения другой ИК-накачки менялся от одного измерения формы линии к другому. Величина интенсивности сигнала четырехфотонного рассеяния при точной настройке углового синхронизма существенно — почти на четыре порядка — превышала интенсивность спонтанного трехволнового рассеяния. При этом сигнал спонтанного рассеяния собирался со всей длины образца $\sim 1 \text{ см}$, а сигнал четырехфотонного рассеяния — лишь с области пересечения лучей накачек длиной $\sim 0.5\text{--}1 \text{ мм}$.

Типичный вид отдельной формы линии рассеяния приведен на рис. 3а. Линия рассеяния имеет один ярко выраженный максимум с угловой шириной порядка 1°. Вместе с тем при некоторых соотношениях между устанавливаемыми в эксперименте углами θ_1 и θ_2 наблюдаются дополнительные максимумы интенсивности рассеянного излучения примерно такой же ширины и сравнимой по порядку величины амплитуды (см.,

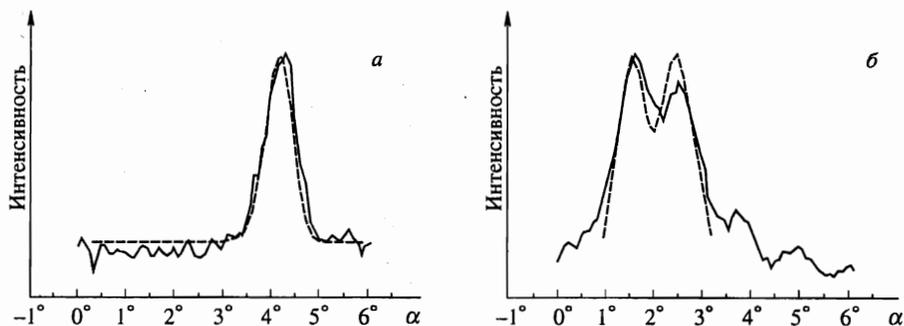


Рис. 3. Экспериментально измеренные зависимости (сплошные линии) интенсивности четырехволнового рассеяния от угла поворота кристалла; $\theta_2 = 19.2^\circ$, $\theta_1 = 44.0^\circ$ (а), $\theta_1 = 43.3^\circ$ (б). Штриховые линии — теоретический расчет для $\alpha_p = 23 \text{ см}^{-1}$, $d = 1.25 \text{ мм}$, $L = 1.0 \text{ мм}$ (а), $L = 0.8 \text{ мм}$ (б)

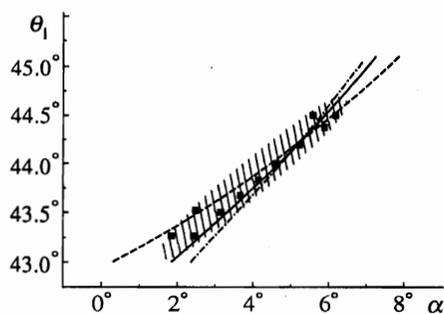


Рис. 4. Расчетные кривые нулевой расстройки пространственного синхронизма для кристалла LiNbO_3 с концентрацией $\text{Mg } 0.68\%$ ($\omega_p = 558.5 \text{ см}^{-1}$, $n_p = 6.27$, $\theta_2 = 19.2^\circ$). Сплошная линия — синхронизм прямого процесса $\Delta k = 0$. Штрихпунктирная линия — синхронизм первого этапа каскадного процесса $\tau = 0$. Штриховая линия — синхронизм второго этапа каскадного процесса $\sigma = 0$. Точки — положения экспериментально измеренных максимумов интенсивности рассеянного излучения. Заштрихована область, в которой наблюдается четырехволновое рассеяние

например, спектр на рис. 3б).

Анализ общего поведения углового распределения интенсивности сигнального излучения удобнее вести в рамках серии экспериментально измеренных кривых формы линии. Каждая серия подобных измерений формы линии $I_S(\alpha)$, снятая при фиксированном угле θ_1 (или θ_2) и переменном угле θ_2 (или, в свою очередь, θ_1), представляла собой распределение $I_S(\alpha, \theta_i)$. На рис. 4 на плоскости координат α, θ_1 , где α — угол поворота кристалла, θ_1 — угол падения ИК-волны, представлены результаты измерений одной из серий, в рамках которой сохранялись постоянными угол падения θ_2 и частота генерации ω_2 перестраиваемого ИК-лазера. Точками отмечены положения максимумов экспериментально наблюдавшихся «одногорбых» и «двугорбых» кривых $I_S(\alpha)$. На рисунке заштрихована область изменения углов α и θ_1 , в пределах которой мы наблюдали четырехволновое рассеяние света. При дальнейшей переориентации направлений падения ИК-волны за пределы указанного диапазона интенсивность сигнального излучения быстро убывала до уровня сигнала спонтанного трехволнового параметрического рассеяния зондирующего излучения накачки. Заштрихованная область является, по сути, срезом плоскостью $\theta_2 = \text{const}$ той области изменения трех параметров α, θ_1 и θ_2 , в пределах которой интенсивность I_S отлична от нуля.

Для решения вопроса о том, как по измеренным кривым определить действительную и мнимую части волнового вектора поляритона (а после этого и показатели преломления, поглощения, комплексную диэлектрическую проницаемость кристалла на частоте поляритона), обратимся к анализу теории рассеяния.

4. АНАЛИЗ УГЛОВЫХ ЗАВИСИМОСТЕЙ ИНТЕНСИВНОСТИ РАССЕЯНИЯ

В опубликованных исследованиях, посвященных особенностям четырехфотонного когерентного рассеяния в нецентросимметричных средах [4-8], форма линии рассеяния наиболее подробно анализируется в работе [7]. Условиям нашего эксперимента соответствует рассмотренный в [7] случай слабой накачки и сильного поглощения на поляритонной частоте. Частотно-угловая форма линии рассеяния должна описываться следующим выражением для интенсивности рассеянного излучения I_S [7]:

$$I_S \propto \text{Sinc}^2 \left(\frac{\Delta k L}{2} \right) \left[\beta^2 + \frac{4\tau\beta}{\alpha_p^2 + 4\tau^2} + \frac{1}{\alpha_p^2 + 4\tau^2} \right], \quad (5)$$

где τ — волновая расстройка первого этапа каскадного процесса — «разогрева» поляритонного состояния, Δk — волновая расстройка прямого процесса четырехфотонного взаимодействия, L — длина области пересечения лучей лазерных накачек в кристалле, α_p — поглощение на частоте поляритона ω_p , $\text{Sinc}(x) = \sin x/x$. Параметр β задается отношением вкладов прямого и каскадного процессов в интенсивность рассеянного излучения:

$$\beta = \frac{n_p c \cos \vartheta_p}{4\pi\omega_p} \frac{\chi^{(3)}}{\chi_1^{(2)} \chi_2^{(2)}}, \quad (6)$$

где ϑ_p — угол, определяющий ориентацию волнового вектора поляритона в кристалле, n_p — показатель преломления для поляритонной волны в кристалле, $\chi^{(3)}$ — действующее значение кубической восприимчивости кристалла, $\chi_1^{(2)}$, $\chi_2^{(2)}$ значения квадратичной восприимчивости, определяющие эффективности первого и второго этапов каскадного рассеяния.

Первое слагаемое в квадратных скобках в выражении (5) описывает прямое четырехфотонное рассеяние за счет $\chi^{(3)}$. Интенсивность прямого рассеяния должна быть максимальна везде, где выполняется равенство $\Delta k = 0$. На рис. 4 проведена сплошной линией кривая, соответствующая этому условию. На основании (5) можно нарисовать следующую общую картину изменения суммарной интенсивности рассеяния при перестройке вдоль перестроечной кривой синхронизма $\Delta k = 0$. Вдали от области малых расстроек каскадного процесса τ интенсивность постоянна, ее величина определяется кубической восприимчивостью кристалла на исследуемых частотах. По мере приближения к области, где $\tau \approx 0$, на фоне прямого процесса появляется вклад от каскадного.

Второй член в скобках (5) описывает интерференцию прямого и каскадного механизмов рассеяния. Даже при малой величине $\chi^{(3)}$, когда прямое четырехфотонное рассеяние не наблюдается, проявление взаимного влияния этих процессов может приводить к искажению формы линии рассеяния. Каскадный процесс сам по себе описывается третьим слагаемым в квадратных скобках (5). В чистом виде каскадный процесс при $\beta = 0$ имеет форму линии, описываемую произведением функции $\text{Sinc}^2(\Delta k L/2)$

и лоренцева множителя $1/(\alpha_p^2 + 4\tau^2)$. Область возможного наблюдения каскадного процесса на рис. 4 должна размещаться вблизи пересечения кривых, отвечающих условиям $\Delta k = 0$ (сплошная кривая) и $\tau = 0$ (штриховая кривая). Размеры области зависят от длины объема взаимодействия L (т. е. от ширины главного максимума функции $\text{Sinc}^2(\Delta k L/2)$), поглощения на поляритонной частоте (т. е. ширины лоренцева фактора $1/(\alpha_p^2 + 4\tau^2)$) и частотно-угловой структуры излучения накачек. В наблюдаемой картине рассеяния не обнаружены ни непосредственный вклад от прямого четырехфотонного рассеяния, ни интерференционная структура линий рассеяния, связанная со вторым членом в скобках выражения (5). Это свидетельствует об относительной малости действующих компонент кубичной восприимчивости. По нашим оценкам $\beta\alpha_p < 10^{-2}$, что соответствует соотношению $\chi^{(3)}\alpha_p/\chi_1^{(2)}\chi_2^{(2)} < 10^3 \text{ см}^{-1}$.

Отдельно следует упомянуть о некогерентном каскадном рассеянии света, по-видимому, также возможном в нашей схеме эксперимента. Этот процесс сводится к спонтанному рассеянию зондирующей волны накачки на поляритонах в условиях, когда в процессе параметрического смешения волн двух возбуждающих накачек меняется населенность поляритонного состояния. В этом случае форма линии рассеяния должна описываться произведением лоренцевых факторов одинаковой ширины, определяемой только значением поглощения α_p :

$$I_S \propto \frac{1}{\alpha_p^2 + 4\tau^2} \frac{1}{\alpha_p^2 + 4\sigma^2}, \quad (7)$$

где $\sigma = \mathbf{k}_S - \mathbf{k}_L + \mathbf{k}_p$ — расстройка пространственного синхронизма второго этапа каскадного взаимодействия. Кривая синхронизма $\sigma = 0$ проходит вблизи кривых $\Delta k = 0$ и $\tau = 0$ (на рис. 4 изображена штрихпунктиром). Принципиальное качественное различие форм линий когерентного и некогерентного каскадного рассеяния заключается в возможности наблюдения линии рассеяния $I_S(\alpha)$ с двумя максимумами. Зависимость типа (7) не должна приводить к появлению двойных максимумов на линии рассеяния. Наблюдение двойных максимумов в нашем эксперименте свидетельствует о когерентном характере каскадного рассеяния.

Сравнение экспериментальных результатов с теоретической картиной свидетельствует о чисто каскадном и когерентном характере наблюдаемого рассеяния. Вблизи пересечения кривой точного синхронизма для четырехволнового взаимодействия и кривой синхронизма для генерации поляритонной волны наблюдаются узкие интенсивные одиночные максимумы рассеяния. При удалении от точки пересечения ширины максимумов растут, интенсивность довольно быстро убывает. Интенсивность четырехволнового рассеяния существенно выше интенсивности спонтанного трехволнового рассеяния зондирующего излучения накачки лишь в пределах узкого (порядка нескольких градусов) углового диапазона изменения θ_1 . В предположении о чисто каскадном механизме рассеяния нами были рассчитаны параметры взаимодействия, при которых каждая из экспериментально измеренных форм линий рассеяния наилучшим образом описывается выражением (5) при $\beta = 0$. В качестве подгоночных параметров варьировались значения поляритонного поглощения α_p , длины области взаимодействия L и эффективный диаметр пучков накачки на фокусирующих линзах d , поскольку в соответствии с оптической схемой установки сечения несфокусированных пучков всех трех лучей лазерной накачки совпадали. При этом эффективный диаметр пучков накачек и значения фокусных расстояний линз определяли в конечном итоге расходимость падающего на кристалл излучения. Для каждого спектра, измеренного на сигнальной частоте,

соответствующей частоте поляритона 558.5 см^{-1} , были получены практически одни и те же значения оптимальных подгоночных параметров: $\alpha_p = 23 \pm 2 \text{ см}^{-1}$, $d = 1.25 \text{ мм}$, $L = 0.8\text{--}1.0 \text{ мм}$.

Полученные таким образом значения параметров лучей d и L находятся в соответствии с оптической схемой установки. Величина L могла меняться от спектра к спектру из-за неодинакового совмещения поперечных сечений накачек в кристалле. Факт довольно хорошего постоянства подгоночных параметров в пределах всей серии измерений свидетельствует о справедливости выбранной модели. Однако значения поляритонного поглощения никак не согласуются с данными других методов. Результаты трехфотонной спектроскопии отличаются от полученного значения $\alpha_p = 23 \text{ см}^{-1}$ более чем на порядок. Расчет поглощения на основании осцилляторной модели с использованием хорошо известных данных [11] о частотах и силах осцилляторов фононов в ниобате лития дают значения α_p порядка 10^3 в исследуемом диапазоне частот. Различия расчетных данных для чистого ниобата лития и результатов измерения α_p по трехволновой методике в примесном кристалле относительно невелики и могут быть объяснены наличием примеси Mg и различием стехиометрии кристаллов. Тем не менее все они значительно превышают значения, полученные нами описанным выше методом из четырехволновых k -спектров. Отметим, что до нас этот же метод оценки поглощения использовался в [12] при исследовании поверхностного поляритона в кристалле GaP [12]. Были измерены величины мнимой части волнового вектора поверхностного поляритона. Значения получились того же порядка величины, что и в нашем эксперименте. Однако они оказались в существенно лучшем соответствии со значениями, рассчитанными на основании осцилляторной модели, хотя в отличие от действительной части волнового вектора не совпали полностью с расчетными данными.

Выявленное несоответствие заставляет усомниться в правомерности используемой модели рассеяния, хотя все остальные особенности наблюдаемой картины модель описывает хорошо. Возможно, в нашем случае параметр α_p в (5) не определяется только мнимой частью линейной восприимчивости кристалла, а зависит через нелинейную восприимчивость от мощности падающего лазерного излучения накачек. Другой причиной наблюдаемого сужения поляритонной линии рассеяния может быть проявление слабых фоторефрактивных свойств кристалла Mg:LiNbO₃. Как бы то ни было, возможность измерения коэффициента поглощения свободной поляритонной волны по спектрам четырехволнового рассеяния остается пока под вопросом.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Итак, на примере кристаллов ниобата лития с заранее известными параметрами — показателями преломления в видимой, ближней ИК и поляритонной областях, коэффициентами затухания в поляритонной области, величинами квадратичной поляризуемости — были исследованы процессы, приводящие к четырехфотонному рассеянию света. С точки зрения дальнейшего использования этого типа рассеяния в спектроскопии существенны следующие выводы:

1. Показано значительное — примерно на пять порядков величины — усиление интенсивности сигнала по сравнению с сигналом спонтанного трехчастотного параметрического рассеяния света в элементах объема порядка 1 мм^3 . Это свидетельствует о возможности дальнейшего уменьшения исследуемых элементов среды, исследования

низкоразмерных сред и неоднородности распределения поляритонных параметров макрообъектов с высоким пространственным разрешением.

2. Выявлено существенное преобладание механизма каскадного рассеяния на поляритоне в области частот $520\text{--}580\text{ см}^{-1}$ в ниобате лития. Именно этот тип четырехволнового взаимодействия наиболее чувствителен к параметрам поляритонного состояния в веществе. Проведенные измерения свидетельствуют о высокой точности определения действительной части волнового вектора поляритона и показателя преломления кристалла на поляритонной частоте. При анализе экспериментальных результатов, представленных на рис. 4, использовалось значение обыкновенного показателя преломления $n_p = 6.270$, что уточняет данные, полученные из экспериментов по трехфотонному рассеянию. Изменение этого значения только на 0.005 единиц полностью рассогласовывает наблюдаемую и расчетную картины. Между тем точность метода спонтанного трехволнового рассеяния света на этом участке поляритонного спектра в несколько раз ниже.

3. Определение мнимой части волнового вектора поляритона на основании существующей теории [4, 5, 7, 8] по форме линии четырехволнового рассеяния приводит к результатам, не совпадающим с данными других методов для кристалла ниобата лития.

Основные пункты, по которым метод четырехволновой спектроскопии поляритонов уступает методу трехволнового спонтанного поляритонного рассеяния света:

а) необходимость выполнения большего числа условий синхронизма и, как следствие этого, более сложная настройка оптической схемы спектрометра для обнаружения сигнального излучения;

б) возможность проявления сразу нескольких процессов и их интерференции и в силу этого неоднозначность первичной интерпретации спектров;

в) относительная сложность экспериментальной установки, включающей два или три лазерных источника, в том числе источник с перестраиваемой частотой и т. д.;

г) остается под вопросом возможность измерения мнимых частей волнового вектора поляритона и диэлектрической проницаемости среды.

Так или иначе, но следует признать тот факт, что четырехволновая спектроскопия кристаллов на данный момент не получила такого широкого развития, как четырехволновая когерентная спектроскопия газов и конденсированных сред. Трехволновая спектроскопия спонтанного рамановского рассеяния по-прежнему остается практически единственным широко используемым методом изучения кристаллов, основанным на рассеянии света. Тем не менее важнейшее преимущество четырехволновой спектроскопии — существенно более высокая чувствительность. По-видимому, перспективы дальнейшего развития и использования этого метода для исследования поляритонных состояний в кристаллических объектах — только в сочетании с трехволновой методикой. Использование предварительных данных трехволновой спектроскопии о характере дисперсии поляритонов существенным образом упрощает процедуру настройки пространственного синхронизма для наблюдения сигнала четырехволнового взаимодействия. В этой связи особенно актуально использование стоковского варианта четырехволнового взаимодействия. Стоксова схема позволяет переходить от наблюдения четырехволнового рассеяния к режиму спонтанного трехволнового рассеяния наиболее простым способом, так как сигнальное излучение находится в одних и тех же спектральном и угловом диапазонах. Однако проведенные нами исследования показывают, что для полной реализации метода требуется дальнейшее развитие теории рассеяния с учетом поглощения на поляритонной частоте. По-прежнему актуальной остается задача дальнейшего поис-

ка новых спектроскопических схем, обеспечивающих выполнение условий пространственного синхронизма более простым способом.

Авторы выражают свою признательность С. П. Кулику и М. В. Чеховой за ценные замечания и помощь в подготовке рукописи. Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант №96-02-16336).

Литература

1. Д. Н. Клышко, *Фотоны и нелинейная оптика*, Наука, Москва (1980).
2. J. P. Coffinet and F. De Martini, *Phys. Rev. Lett.* **22**, 60 (1969).
3. M. D. Levenson and N. Bloembergen, *Phys. Rev. B* **10**, 4447 (1974).
4. E. Yablonovitch, C. Flytzanis, and N. Bloembergen, *Phys. Rev. Lett.* **29**, 865 (1972).
5. J. J. Wynne, *Phys. Rev. Lett.* **29**, 650 (1972).
6. Ю. Н. Поливанов, А. Т. Суходольский, Письма в ЖЭТФ **25**, 240 (1977).
7. В. Л. Стрижевский, Ю. Н. Яшкир, КЭ **2**, 995 (1975).
8. Д. Н. Клышко, КЭ **2**, 265 (1975).
9. А. Л. Александровский, Г. И. Ершова, Г. Х. Китаева и др., КЭ **18**, 254 (1991).
10. D. S. Smith, H. D. Riccius, and R. P. Edwin, *Opt. Commun.* **17**, 332 (1976).
11. A. S. Barker Jr. and R. Loudon, *Phys. Rev.* **158**, 433 (1967).
12. F. De Martini, G. Guiliani, P. Matalony et al., *Phys. Rev. Lett.* **37**, 440 (1976).