

НЕЛИНЕЙНАЯ ДИФРАКЦИЯ ПРИ СПОНТАННОМ ТРЕХВОЛНОВОМ И КОГЕРЕНТНОМ ЧЕТЫРЕХВОЛНОВОМ РАССЕЯНИИ СВЕТА НА ПОЛЯРИТОНАХ

Г. Х. Китаева, А. А. Михайловский, А. Н. Пенин

*Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119899, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 24 июня 1997 г.

Теоретически и экспериментально исследованы особенности спонтанного трехволнового и когерентного четырехволнового рассеяния света на поляритонах в кристаллических средах с периодическим пространственным распределением квадратичной нелинейной восприимчивости. Получены условия синхронизма и выражение для формы линии рассеяния при учете каскадных процессов нелинейной дифракции для когерентного стокового рассеяния света на поляритонах. Результаты экспериментального измерения распределения интенсивности трех- и четырехволнового рассеяния света в кристалле $\text{LiNbO}_3:\text{Nd}:\text{Mg}$ с периодической доменной структурой находятся в хорошем согласии с теоретическими выводами. Обсуждается возможность применения эффектов нелинейной дифракции для спектроскопических исследований сред с периодическим распределением нелинейно-оптических свойств: прецизионного измерения дисперсии показателя преломления в ИК-области частот, определения периода и профиля пространственного изменения квадратичной восприимчивости.

1. ВВЕДЕНИЕ

На протяжении ряда последних лет наблюдается устойчивый интерес к кристаллическим структурам с периодической модуляцией оптических свойств. Это связано с возможностью их применения в устройствах преобразования частоты электромагнитного излучения (ПГС, удвоители частоты и т. п.), основанных на квазисинхронных параметрических взаимодействиях. Для применения таких структур необходимо знать количественные характеристики их оптических свойств в достаточно широком спектральном диапазоне. К таким характеристикам относятся дисперсия показателя преломления в видимом и ИК-диапазонах, период и ориентация пространственной решетки, ее профиль. Для их измерения используются различные линейно- и нелинейно-оптические эффекты, однако лишь последние позволяют полностью получить необходимую информацию об исследуемом объекте.

Известным методом исследования дисперсии линейной и квадратичной восприимчивости кристаллов в ИК-области спектра является метод спектроскопии трехволнового спонтанного параметрического рассеяния света [1]. При спонтанном параметрическом рассеянии в средах с периодическим распределением квадратичной нелинейной восприимчивости наблюдается эффект нелинейной дифракции, приводящий к появлению дополнительных перестроечных кривых, связанных с квазисинхронным взаимодействием [2]. Изучение частотно-углового спектра спонтанного параметрического рассеяния в таких средах позволяет установить закон дисперсии в поляритонной области спектра, размер периода распределения квадратичной нелинейной восприимчивости и

профиль ее пространственного распределения. Однако существенными недостатками этой методики являются относительно низкая точность измерения показателя преломления (особенно в области низкочастотных поляритонных состояний), малая интенсивность сигнального излучения на высших гармониках пространственного распределения квадратичной восприимчивости и низкое пространственное разрешение при измерении вариации параметров нелинейной сверхрешетки в кристалле.

Процессы четырехволнового смещения в средах с периодическим распределением нелинейно-оптических свойств до сих пор достаточно слабо изучены, несмотря на то, что они могут оказаться определяющими в спектроскопических приложениях. Особый интерес в данном случае представляет явление нелинейной дифракции при когерентной спектроскопии рассеяния света на поляритонах. В практике когерентной спектроскопии широкое распространение получила техника когерентного антистоксова рассеяния света (КАРС) [3]. Однако практически отсутствуют работы по реализации измерений стоксовой компоненты рассеянного излучения. Вместе с тем для изучения свойств нецентросимметричных кристаллов в поляритонной области спектра предпочтительно применять эту модификацию когерентного четырехволнового смещения. Хотя число элементов экспериментальной установки в данном случае увеличивается, так как все взаимодействующие волны должны быть невырожденными по частоте, при этом проще всего осуществляется общая настройка оптической схемы через переход от наблюдения спектров спонтанного параметрического рассеяния к регистрации спектров когерентного рассеяния света. Использование явления когерентного стоксова рассеяния света (КСРС) дает возможность повысить точность измерения дисперсии поляритонного показателя преломления на один-два порядка и позволяет исследовать малые объемы вещества. Последнее, в свою очередь, позволяет измерять и непериодическое пространственное распределение оптических свойств. Очевидно, что явление нелинейной дифракции при КСРС должно обогащать частотно-угловой спектр рассеянного излучения, следует ожидать появления каскадных дифракционных процессов, при которых нелинейная дифракция имеет место как на этапе возбуждения поляритонного состояния, так и при рассеянии на нем пробной волны. При использовании методов активной спектроскопии становится возможной регистрация сигнала, связанного с относительно малыми по амплитуде пространственными гармониками нелинейной восприимчивости, практически не проявляющимися в спонтанном параметрическом рассеянии ввиду их малости. С учетом измеренной эффективности нелинейной дифракции в ее высоких порядках можно более точно восстанавливать профиль нелинейной пространственной решетки.

Целью данной работы было исследование особенностей процессов спонтанного параметрического рассеяния и когерентного стоксова рассеяния света в средах с периодическим распределением квадратичной нелинейной восприимчивости, в качестве которых были использованы полидоменные кристаллы $\text{LiNbO}_3:\text{Nd:Mg}$, и оценка возможностей использования исследуемых эффектов в спектроскопических приложениях.

2. ТЕОРИЯ

2.1. Трех- и четырехволновое рассеяние света в пространственно-однородной нецентросимметричной среде

При спонтанном параметрическом рассеянии происходит рассеяние волны накачки на шумовом поле вакуумных флуктуаций в нецентросимметричной среде [1]. Частоты трех волн связаны между собой точным условием временного синхронизма:

$$\omega_L - \omega_P = \omega_S, \quad (1)$$

а волновые векторы \mathbf{k}_i — условием пространственного синхронизма, которое в пространственно-однородной среде имеет вид:

$$\mathbf{k}_L - \mathbf{k}_P = \mathbf{k}_S, \quad (2)$$

где индексы L , P и S обозначают волну накачки, холостую и сигнальную волны соответственно. Условие (2) может выполняться с точностью до некоторой волновой расстройкой $\Delta k = |\mathbf{k}_L - \mathbf{k}_P - \mathbf{k}_S|$, определяемой поглощением и длиной рассеивающей среды.

Явление спонтанного параметрического рассеяния используется для измерения дисперсии действительной и мнимой частей волнового вектора поляритонных состояний среды. Для этого частоты накачки и сигнального излучения выбираются лежащими в области прозрачности исследуемого вещества, а частота ω_P принадлежит поляритонной области спектра. На выходе среды регистрируется частотно-угловое распределение интенсивности рассеянных сигнальных волн $I_S(\theta_S, \omega_S)$, где θ_S — угол рассеяния в плоскости волновых векторов. Максимальной интенсивности рассеянная сигнальная волна достигает при точном выполнении условия пространственного синхронизма (2). Закон дисперсии поляритонов определяется по ходу перестроечной кривой $\theta_{S0}(\omega_S)$, соединяющей точки максимальной интенсивности, в которых

$$\left. \frac{\partial I(\theta_S, \omega_S)}{\partial \theta_S} \right|_{\omega_S = \text{const}} = 0.$$

Величина линейного поглощения для поляритонных волн и мнимая часть их волнового вектора определяются через угловую ширину линии рассеянного излучения $I_S(\theta_S, \omega_S = \text{const})$.

Процессы, происходящие в нецентросимметричных средах при когерентном четырехволновом рассеянии света, можно разделить на два типа — прямой и каскадный [3]. Прямое рассеяние представляет собой процесс параметрического взаимодействия трех волн накачки, в результате которого образуется четвертая волна, частота и волновой вектор которой удовлетворяют условиям временного и пространственного синхронизма. В случае стоксова рассеяния условия синхронизма записываются следующим образом:

$$\omega_S = \omega_L - \omega_1 + \omega_2, \quad (3)$$

$$\Delta \mathbf{k} \equiv \mathbf{k}_S - \mathbf{k}_L + \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 = 0, \quad (4)$$

где ω_i — частоты четырех взаимодействующих волн и \mathbf{k}_i — их волновые векторы. В данном случае индексы 1, 2 и L относятся к падающим на среду волнам, а индекс

S обозначает родившуюся сигнальную волну. Эффективность процесса определяется величиной кубичной нелинейной восприимчивости вещества $\chi^{(3)}$.

Каскадное рассеяние обусловлено наличием у среды квадратичной нелинейной восприимчивости $\chi^{(2)}$, и его можно представить как два последовательных трехволновых процесса, аналогичных параметрическому рассеянию света. Однако в данном случае населенность всех взаимодействующих мод велика и определяется не нулевыми флуктуациями вакуума, а яркостью всех трех волн накачек. В ходе первого процесса за счет генерации разностной частоты $\omega_1 - \omega_2$ накачек с частотами ω_1 и ω_2 в среде рождается поляритонная волна с волновым вектором $\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$. При этом также происходит возбуждение быстро затухающей свободной поляритонной волны, частота ω_P и волновой вектор \mathbf{k}_P которой связаны через диэлектрическую проницаемость среды. Условия временного и пространственного синхронизма при возбуждении поляритонных волн имеют вид

$$\omega_P - \omega_1 + \omega_2 = 0, \quad (5)$$

$$\boldsymbol{\tau} \equiv \mathbf{k}_P - \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 = 0, \quad (6)$$

аналогичным условиям (1) и (2). Во время второго этапа каскадного процесса происходит рассеяние пробной волны накачки на когерентно возбужденных поляритонных волнах. Условия временного и фазового синхронизма для второго этапа аналогичны (5), (6). Как и в случае спонтанного параметрического рассеяния, условия фазового синхронизма (4), (6) могут выполняться с точностью до некоторой расстройки, определяемой значением поглощения и размерами рассеивающей среды. При наличии у среды как квадратичной, так и кубичной нелинейных восприимчивостей оба процесса могут идти одновременно и необходимым критерием наблюдения каскадного рассеяния света на когерентно возбужденных поляритонах является одновременное выполнение условий (3)–(6). Впервые явление каскадного когерентного рассеяния было исследовано в [4], в [5, 6] наиболее полно изложена его теория, в [7, 8] анализируется схема стокового варианта рассеяния.

2.2. Трех- и четырехволновое рассеяние света в средах с периодическим распределением квадратичной нелинейной восприимчивости

В случае среды с периодическим пространственным распределением квадратичной нелинейной восприимчивости $\chi^{(2)}$, можно использовать разложение в ряд Фурье

$$\chi^{(2)}(\mathbf{r}) = \sum_{-\infty}^{\infty} \chi_m^{(2)} \exp(i\mathbf{q}_m \mathbf{r}), \quad (7)$$

где амплитуды пространственных гармоник равны

$$\chi_m^{(2)} = \frac{1}{2\pi} \int_{-d/2}^{d/2} \chi^{(2)}(\mathbf{r}) \exp(-i\mathbf{q}_m \mathbf{r}) d\mathbf{r}, \quad (8)$$

$\mathbf{q}_m = \mathbf{q}m$, m — целое число, $\mathbf{q} \equiv (2\pi/d)\mathbf{n}$ — вектор обратной сверхрешетки, d — ее период, \mathbf{n} — единичный вектор нормали к слоям.

2.2.1. Трехволновое спонтанное параметрическое рассеяние света

Особенности спонтанного параметрического рассеяния света на поляритонах в таких средах были рассмотрены в [2]. В приближении плоских волн можно записать выражение для поляризации на частоте сигнального излучения:

$$P_S(\omega_S = \omega_L - \omega_P) \sim \sum_{m=-\infty}^{\infty} \chi_m^{(2)} E_L E_P^* \exp(i(\mathbf{k}_L - \mathbf{k}_P + \mathbf{q}_m)\mathbf{r}), \quad (9)$$

откуда следует условие фазового синхронизма для взаимодействующих волн (ср. с (2)):

$$\mathbf{k}_L - \mathbf{k}_P + \mathbf{q}_m = \mathbf{k}_S. \quad (10)$$

При этом в частотно-угловом спектре спонтанного параметрического рассеяния появляются дополнительные перестроечные кривые, число которых соответствует числу ненулевых пространственных гармоник $\chi_m^{(2)}$. Измеряя частотно-угловые координаты любой дополнительной перестроечной кривой с порядковым номером m на основании (10), можно с высокой точностью определить величину периода нелинейной сверхрешетки d и ориентацию вектора \mathbf{n} . В свою очередь интенсивность сигнального излучения в направлении каждой дополнительной перестроечной кривой с порядковым номером m пропорциональна $|\chi_m^{(2)}|^2$. Таким образом, измерив относительное распределение интенсивностей рассеяния в различные порядки нелинейной дифракции, можно восстановить профиль периодического пространственного распределения квадратичной восприимчивости кристалла.

2.2.2. Четырехволновое когерентное рассеяние света на поляритонах

В среде с периодической модуляцией квадратичной восприимчивости явление нелинейной дифракции должно проявляться на каждом из этапов каскадного процесса. В отличие от спонтанного параметрического рассеяния, теория четырехволнового рассеяния в таких средах до сих пор не рассматривалась. Проведем последовательный расчет зависимости интенсивности когерентного каскадного рассеяния от фазовых соотношений между волновыми векторами взаимодействующих волн в среде, квадратичная восприимчивость которой описывается выражением (7). Пусть на среду падают три волны накачки, поля которых могут быть представлены в виде

$$\mathbf{E}_i = \mathbf{E}_{i0} \exp(-i\omega_i t + i\mathbf{k}_i \mathbf{r}),$$

где индекс i принимает значения 1, 2 и L . На первом этапе в результате смешения полей \mathbf{E}_1 и \mathbf{E}_2 возникает поляризация

$$\mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{r}, \omega_P = \omega_1 - \omega_2) = \frac{1}{4\pi} \sum_n \chi_n^{(2)} \exp(in\mathbf{q}\mathbf{r}) \mathbf{E}_{10} \mathbf{E}_{20}^* \exp(-i(\omega_1 - \omega_2)t + i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2)\mathbf{r}). \quad (11)$$

Пространственные фурье-компоненты поляризации $\mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{r}, \omega_P)$ и поля $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega_P)$, создаваемого этой поляризацией — $\mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{k}, \omega_P)$ и $\mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega_P)$ — связаны через поляритонную функцию Грина $\mathbf{G}(\mathbf{k}, \omega_P)$ [1]:

$$\mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega_P) = \mathbf{G}(\mathbf{k}, \omega_P) \mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{k}, \omega_P). \quad (12)$$

В данном случае предполагается, что функция Грина остается такой же, как и в пространственно-однородной среде. Общий вид $\mathbf{G}(\mathbf{k}, \omega_P)$ получен в работе [5]. Для обыкновенных поляритонных волн функция Грина может быть записана в виде

$$G(\mathbf{k}, \omega_P) = \frac{\omega_P^2}{c^2} \frac{4\pi}{k^2 - K_P^2(\omega_P)}, \quad (13)$$

где $K_P(\omega_P) = k_P + i\alpha_P/2$ — комплексный волновой вектор поляритонного состояния на частоте ω_P , α_P — линейное поглощение среды на этой частоте. Отсюда получаем

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega_P) = \frac{1}{4\pi} \frac{\mathbf{E}_{10}\mathbf{E}_{20}^* \exp(-i\omega_P t)}{(2\pi)^3} \int d\mathbf{k} \mathbf{G}(\mathbf{k}, \omega_P) \exp(i\mathbf{k}\mathbf{r}) \sum_n \chi_n^{(2)} \int_{V'} d\mathbf{r}' \exp(i\Delta\mathbf{k}_n^{(1)}\mathbf{r}'), \quad (14)$$

где $\Delta\mathbf{k}_n^{(1)} = \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 - \mathbf{k} + \mathbf{q}n$. Здесь и далее мы используем приближение плоских волн накачек, поэтому значения амплитуд падающих полей \mathbf{E}_{i0} можно вынести из-под знаков интегрирования по пространственным координатам. Тем не менее интегрирование по координатам осуществляется в пределах ограниченного объема V' кристалла, облучаемого одновременно полями \mathbf{E}_1 и \mathbf{E}_2 . Область интегрирования по волновым векторам \mathbf{k} охватывает всевозможные значения ориентации и величины \mathbf{k} .

На втором этапе происходит смешение поля пробной волны и поля, задаваемого выражением (14). В результате выражение для поляризации, осциллирующей с частотой $\omega_S = \omega_L - \omega_P$, имеет вид

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{r}, \omega_S = \omega_L - \omega_P) &= \frac{1}{(4\pi)^2} \frac{\mathbf{E}_{L0}\mathbf{E}_{10}^*\mathbf{E}_{20} \exp(-i\omega_S t + i\mathbf{k}_S\mathbf{r})}{(2\pi)^3} \sum_{m,n} \chi_m^{(2)}\chi_n^{(2)*} \times \\ &\times \int d\mathbf{k} \exp(i\Delta\mathbf{k}_m^{(2)}\mathbf{r}) \mathbf{G}^*(\mathbf{k}, \omega_P) \int_{V''} d\mathbf{r}'' \exp(-i\Delta\mathbf{k}_n^{(1)}\mathbf{r}''), \end{aligned} \quad (15)$$

где $\Delta\mathbf{k}_m^{(2)} = \mathbf{k}_L - \mathbf{k}_S - \mathbf{k} + \mathbf{q}m$. Из (15) легко получить зависимость интенсивности рассеянного сигнального излучения от волновых расстройек (т.е. выражение для формы линии рассеяния):

$$I_S \propto \left| \sum_{m,n} \chi_m^{(2)}\chi_n^{(2)*} \int d\mathbf{k} \mathbf{G}^*(\mathbf{k}, \omega_P) f(\Delta\mathbf{k}_m^{(2)}) f^*(\Delta\mathbf{k}_n^{(1)}) \right|^2, \quad (16)$$

$$f(\xi) = \int_V d\mathbf{r} e^{i\xi\mathbf{r}}. \quad (17)$$

При этом мы для простоты полагаем, что область интегрирования с объемом V' , определенная для соотношения (14), и область взаимодействия V'' , определяемая как область нелинейного кристалла, которая облучается всеми тремя падающими на среду накачками одновременно, совпадают; их объемы обозначены через V . В случае неограниченно протяженной области взаимодействия V величины $f(\Delta\mathbf{k}_n^{(1)})$ и $f(\Delta\mathbf{k}_m^{(2)})$ отличны от нуля только при точном выполнении условий $\Delta\mathbf{k}_n^{(1)} = \Delta\mathbf{k}_m^{(2)} = 0$, которые, в свою очередь, диктуют выполнение условия фазового синхронизма для падающих на среду волн:

$$\Delta\mathbf{k}_{n-m} \equiv \mathbf{k}_S - \mathbf{k}_L + \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 + (n - m)\mathbf{q} = 0. \quad (18)$$

Для ограниченного объема взаимодействия условие (18) может выполняться с точностью до некоторой расстройки, величина которой зависит от характерных линейных размеров объема V . Согласно (15), зависимость интенсивности сигнального излучения от расстройки $I_S(\tau_1, \tau_2, \dots)$, измеренная вдоль кривой точного фазового синхронизма $\Delta \mathbf{k}_{n-m=k} = 0$ (здесь k — целое число), имеет вид

$$I_S(\tau_1, \tau_2, \dots) \propto \left| \sum_n \chi_n^{(2)} \chi_{n+k}^{(2)*} \frac{\omega_P^2}{|\mathbf{k}_P - \tau_n|^2 - (k_P + i\alpha_P/2)^2} \right|^2, \quad (19)$$

$$\tau \equiv \mathbf{k}_P - \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{q}n. \quad (20)$$

Форма линии (19) является результатом интерференции лоренцевых контуров с различными максимумами, определяющимися из условий

$$\tau_n = 0. \quad (21)$$

Это означает, что максимумы интенсивности рассеянного излучения должны наблюдаться при одновременном выполнении условий (18) и (21). Эти соотношения и являются условиями пространственного синхронизма для когерентного четырехволнового каскадного рассеяния в среде с периодическим пространственным распределением квадратичной нелинейной восприимчивости $\chi^{(2)}$.

Наличие кубической восприимчивости среды приводит к появлению дополнительного сигнала за счет прямого четырехволнового рассеяния. В полидоменных кристаллах рассматриваемого типа знак действующих компонент восприимчивостей нечетных порядков не меняется при переходе из домена в домен. Пространственная модуляция $\chi^{(3)}$, обусловленная периодическим изменением концентрации примесей, на несколько порядков величины меньше модуляции $\chi^{(2)}$ и в данном рассмотрении может не учитываться. Для кристаллов в виде слоя толщины L интенсивность суммарного сигнала рассеяния выражается через эффективную кубическую восприимчивость:

$$\chi_{eff}^{(3)} = \chi^{(3)} + \frac{\omega^2}{c^2} \sum_n \chi_{n+k}^{(2)} \chi_n^{(2)*} \frac{1}{|\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 - \mathbf{q}n|^2 - (k_P - i\alpha_P/2)^2}, \quad (22)$$

$$I_S \propto \left| \chi_{eff}^{(3)} \right|^2 \left[\frac{\sin(\Delta k L/2)}{\Delta k L/2} \right]^2. \quad (23)$$

3. ЭКСПЕРИМЕНТ

3.1. Исследованные образцы

Эксперименты проводились на двух образцах кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Nd}:\text{Mg}$, обладающих слоистой ростовой структурой. Первый образец представлял собой монодоменный кристалл, в котором наличие слоистой структуры проявлялось лишь в слабой периодической модуляции коэффициента преломления ($\Delta n \approx 10^{-4}$). Второй кристалл обладал 180° -ой доменной структурой типа «хвост к хвосту, голова к голове» [9], при этом домены были локализованы на искусственных слоях роста. Наличие у каждого домена ненулевой спонтанной поляризации и периодическая смена ее направления приводят к периодическому изменению знака действующего значения квадратичной нелинейной восприимчивости. В исследованных образцах угол между нормалью к поверхности доменов (и слоев роста) и кристаллографической осью c составлял 57° .

3.2. Трехволновое спонтанное параметрическое рассеяние

Для регистрации частотно-угловых спектров спонтанного параметрического рассеяния в кристаллах с периодическим распределением оптических свойств была использована экспериментальная установка, аналогичная описанной в [10], с фотографической регистрацией спектра. Геометрия рассеяния приведена на рис. 1. На рис. 2а, б приведены частотно-угловые спектры спонтанного параметрического рассеяния в моно- и полидоменном образцах соответственно. Из сравнения спектров видно, что на частотно-угловом спектре в полидоменном кристалле появляются дополнительные перестроечные кривые, особенно хорошо заметные в области рассеяния на верхней поляритонной ветви ($\omega_P \geq 900 \text{ см}^{-1}$). По ходу частотно-угловых перестроечных кривых, соответствующих нулевому порядку дифракции, были определены кривые дисперсии обыкновенного показателя преломления в области верхней поляритонной ветви в моно- и полидоменном образцах, которые приведены на рис. 3. На основании экспериментальных данных и уравнений (1), (3) была вычислена величина периода доменной структуры: $d = 5.6 \pm 0.2 \text{ мкм}$. При этом было установлено, что дополнительная перестроечная кривая на спектре спонтанного параметрического рассеяния полидоменного образца в области верхней поляритонной ветви соответствует пространственной гармонике $\chi_m^{(2)}$ с $m = -1$.

Однако при анализе участка спектра спонтанного параметрического рассеяния полидоменного образца, соответствующего рассеянию на нижней поляритонной ветви в окрестности фундаментального колебания E -типа с частотой $\omega_{TO} = 580 \text{ см}^{-1}$, возникли определенные трудности. Как показали численные расчеты, ярко выраженная перестроечная кривая соответствует двум слившимся кривым, связанным с пространственными гармониками $\chi_m^{(2)}$ с $m = \pm 1$. Слабовыраженные участки перестроечной кривой, соответствующей $m = 0$, наблюдаются лишь в области больших углов рассеяния вблизи фоновонного колебания. Это говорит об относительной малости амплитуды нулевой пространственной гармоники квадратичной нелинейной восприимчивости по сравнению с амплитудами гармоник с $m = \pm 1$. Похожие соотношения эффективностей различных порядков нелинейной дифракции приведены в [11] для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Y}:\text{Mg}$ с аналогичной доменной структурой. Дальнейшие попытки наблюдения более высоких порядков нелинейной дифракции в спектрах спонтанного параметрического рассеяния ни к чему не привели: при малых мощностях накачки ($P_L \leq 300 \text{ мВт}$) дополнительные перестроечные кривые не наблюдались, по-видимому, из-за малости амплитуд соответствующих пространственных гармоник $\chi_m^{(2)}$, а при больших мощностях накачки

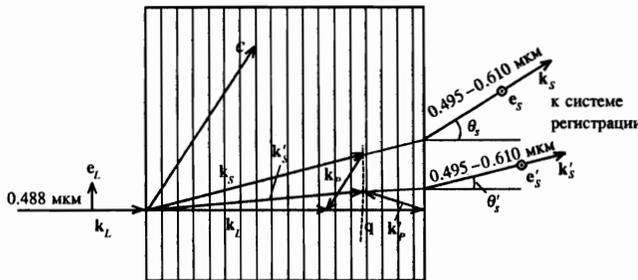


Рис. 1. Геометрия спонтанного параметрического рассеяния и нелинейной дифракции

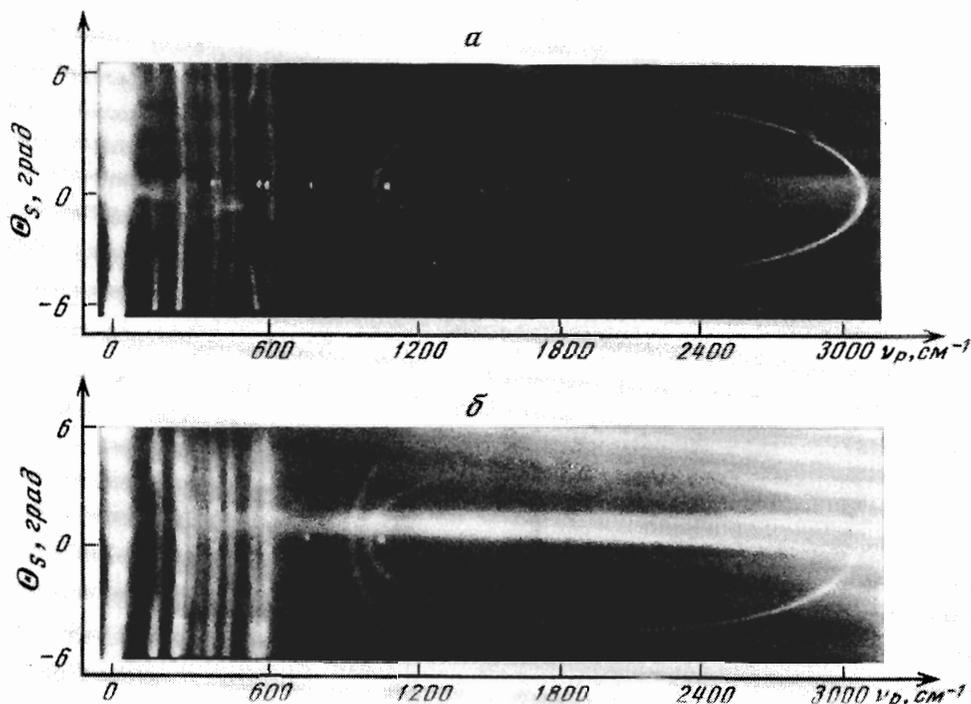


Рис. 2. Частотно-угловые спектры спонтанного параметрического рассеяния в монокристалле (а) и полидоменном (б) кристаллах $\text{LiNbO}_3:\text{Nd:Mg}$

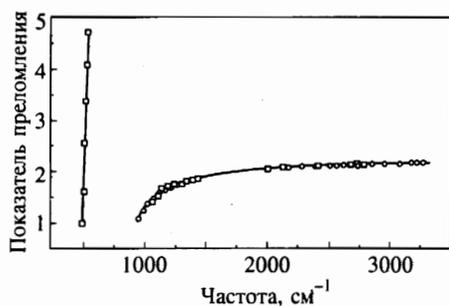


Рис. 3. Дисперсия обыкновенного показателя преломления в поляритонной области спектра, измеренная по спектрам спонтанного параметрического рассеяния: \square — монокристалл, \circ — полидоменный кристалл

($P_L \geq 1$ Вт) их наблюдение было невозможно из-за появления ярко выраженного эффекта фотоиндуцированного рассеяния света.

3.3. Четырехволновое когерентное стоксово рассеяние света на поляритонах

Для регистрации спектров нами использовалась экспериментальная установка, описанная ранее в [8]. Взаимная ориентация кристалла и лучей накачек приведена на рис. 4.

Измерения осуществлялись следующим образом. Вначале устанавливалась заданная разность частот $\omega_1 - \omega_2 = \omega_p$ накачек, возбуждающих поляритонное состояние

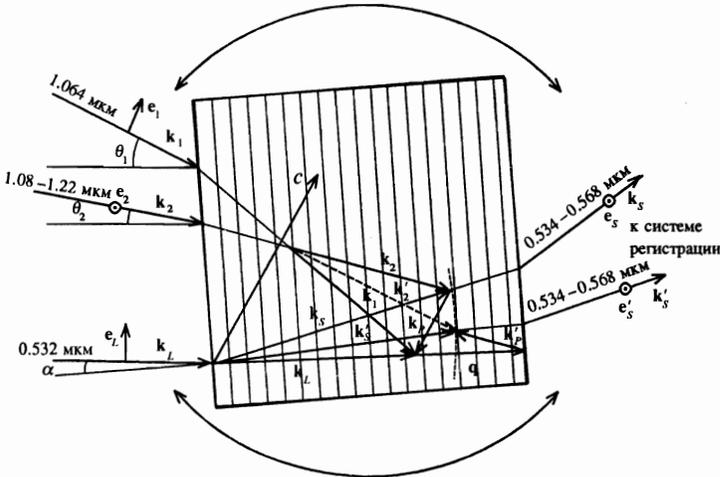


Рис. 4. Геометрия когерентного стоксова рассеяния света на поляритонах и нелинейной дифракции

(длина волны первого источника была постоянна и равна 1.064 мкм, а у второго могла варьироваться в пределах 1.08–1.22 мкм). Затем из уравнений (18) и (21) вычислялись примерные значения углов взаимной ориентации лучей накачек и кристалла, при которых должен наблюдаться сигнал КСРС, при этом использовались достаточно точные ($\Delta n_{o,e} \approx 0.0002$) данные о дисперсии показателя преломления кристалла в видимом диапазоне и существенно менее точные данные о дисперсии обыкновенного показателя преломления в поляритонной области спектра, полученные с помощью спонтанного параметрического рассеяния, а также результаты измерения периода доменной сверхрешетки по спектрам спонтанного параметрического рассеяния. Ориентация задавалась через углы θ_1 и θ_2 между соответствующими накачками возбуждающего ИК-излучения и пробной накачкой на длине волны $\lambda_L = 532$ нм, а также угол поворота кристалла α в плоскости волновых векторов накачек (см. рис. 4). Волновые векторы всех взаимодействующих волн лежали в одной плоскости, содержащей ось c кристалла. Далее, при фиксированном угле θ_2 регистрировалась серия зависимостей интенсивности сигнального излучения от угла поворота кристалла $I_S(\alpha, \theta_1 = \text{const})$, причем каждая зависимость серии измерялась при различных значениях угла θ_1 . В результате определялась двумерная зависимость $I_S(\alpha, \theta_1)$ для фиксированных значений частоты ω_P и угла θ_2 . Очевидно, что максимумы зависимостей $I_S(\alpha, \theta_1 = \text{const})$ должны лежать на кривых $\alpha = \alpha_{n-m}(\theta_1)$, соответствующих условию $\Delta k_{n-m} = 0$, вблизи их пересечения с кривыми, вдоль которых $\tau_n = 0$.

На рис. 5 приведены численно рассчитанные кривые $\alpha = \alpha_0(\theta_1)$, вдоль которых выполняется условие $\Delta k_{n-m} = 0$ для обоих исследованных образцов, и нанесены экспериментально измеренные положения максимумов одномерных зависимостей интенсивности рассеянного излучения $I_S(\alpha, \theta_1 = \text{const})$ для частоты $\omega_P = 560$ см⁻¹. Следует отметить, что в масштабе рисунка кривые $\alpha = \alpha_0(\theta_1)$ для обоих кристаллов совпадают, поскольку различие показателей преломления в видимой и ближней ИК-области спектра для моно- и полидоменного образцов составляет малую величину порядка 10⁻⁴. Кривые $\alpha = \alpha_{n-m}(\theta_1)$, соответствующие случаю $n - m \neq 0$, нами не рассматриваются, так как численные расчеты показали, что в данной области частот условие $\Delta k_{n-m} \neq 0$

не выполняется ни для каких наборов углов θ_1 , θ_2 и α . Как видно из рис. 5, расчетные и экспериментально измеренные значения $\alpha = \alpha_0(\theta_1)$ находятся в хорошем соответствии друг с другом. Это свидетельствует о высокой точности использованных при расчете данных о дисперсии показателя преломления кристаллов в области прозрачности, с одной стороны, и о соответствии истинной картины рассеяния модели когерентного четырехволнового взаимодействия, с другой стороны. Угловые ширины максимумов зависимостей $I_S(\alpha, \theta_1 = \text{const})$ были порядка $\Delta\alpha \approx 1-4^\circ$ и, в соответствии с (23), определялись линейными размерами области взаимодействия в кристалле $L \leq 1$ мм.

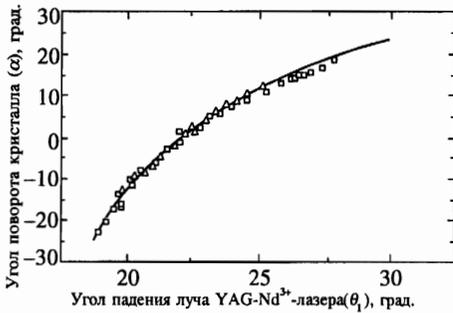


Рис. 5

Рис. 5. Кривые $\alpha = \alpha_0(\theta_1)$ для частоты $\omega_P = 560 \text{ см}^{-1}$ ($\theta_2 = 0^\circ$) и положения максимумов одномерных зависимостей интенсивности рассеянного излучения $I_S(\alpha, \theta_1 = \text{const})$ для монокристалла (Δ) и поликристалла (\square)

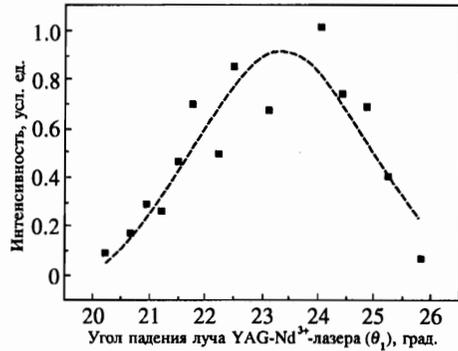


Рис. 6

Рис. 6. Зависимость $I_{max}(\theta_1)$ для монокристалла на частоте $\omega_P = 560 \text{ см}^{-1}$ при $\theta_2 = 0^\circ$ (\blacksquare — эксперимент, штриховая линия — расчет)

Согласно (22), (23), вклад от прямого четырехволнового рассеяния, обусловленного кубичной восприимчивостью $\chi^{(3)}$, должен наблюдаться всюду вдоль кривой $\alpha = \alpha_{n-m \neq 0}(\theta_1)$. Тем не менее в проделанных экспериментах сигнал наблюдался лишь в ограниченных областях кривой $\alpha = \alpha_{n-m \neq 0}(\theta_1)$ — там, где выполняются дополнительные условия пространственного синхронизма для каскадного рассеяния. Это свидетельствует о малости фонового вклада от прямого рассеяния и, соответственно, об относительной малости $\chi^{(3)}$.

Основную информацию о дисперсии поляритонного состояния и пространственном распределении $\chi^{(2)}$ в кристалле можно получить из анализа зависимости $I_{max}(\theta_1) \equiv I(\alpha_0(\theta_1), \theta_1)$, описывающей изменение I_S на поверхности, определяемой условием $\Delta \mathbf{k} = 0$. Экспериментально эта кривая строится по результатам измерения интенсивности I_S в максимуме каждой одномерной зависимости $I_S(\alpha, \theta_1 = \text{const})$ для различных θ_1 . Из нее могут быть определены такие параметры исследуемой среды как показатель преломления и эффективное поглощение на частоте поляритонного состояния, период сверхрешетки и соотношение эффективностей нелинейной дифракции для ее различных порядков. На рис. 6 и рис. 7а приведены зависимости $I_{max}(\theta_1)$, зарегистрированные при одной частоте и одинаковом угле $\theta_2 = 0$ для обоих исследованных образцов.

Очевидно, что максимумы этих кривых соответствуют точному выполнению условий синхронизма $\tau_n = 0$ на частоте ω_P . Это позволяет, зная частоту поляритонного состояния и разность волновых векторов $k_1 - k_2 - qn = k_P$, определить показатель преломления на поляритонной частоте. При этом точность определения поляритонного показателя преломления может составлять $\sim 1\%$, что на порядок превышает точность метода спонтанного параметрического рассеяния в данном диапазоне частот. Для исследованных образцов нами был измерен показатель преломления в поляритонной области спектра для двух значений частоты. Для частоты $\omega_P = 533 \text{ см}^{-1}$ его значение составило $n_P = 3.75 \pm 0.05$ (ср. со значением, полученным из спектров спонтанного параметрического рассеяния: $n_P = 4.3 \pm 0.6$), а для частоты $\omega_P = 560 \text{ см}^{-1}$ была получена величина $n_P = 7.04 \pm 0.08$, причем в последнем случае поляритонный показатель преломления не мог быть получен из трехволновой методики, поскольку в данной частотной области спектральная линия спонтанного параметрического рассеяния практически сливается с линией комбинационного рассеяния ($\omega_{TO} = 580 \text{ см}^{-1}$, $\Delta\omega \approx 20 \text{ см}^{-1}$).

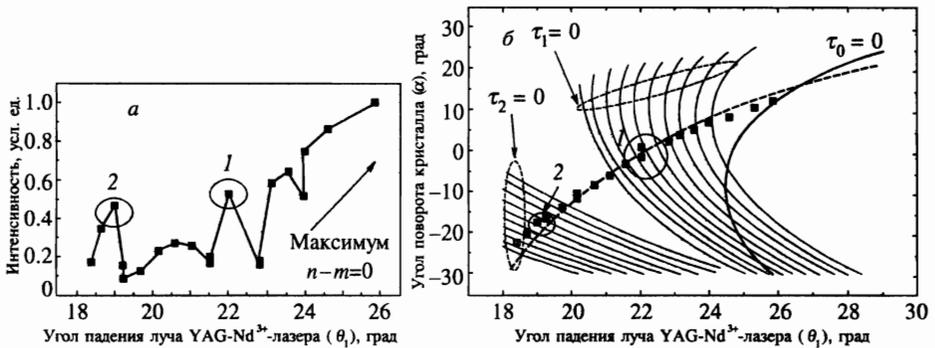


Рис. 7. Угловые характеристики когерентного стоксова рассеяния света в полидоменном кристалле на частоте $\omega_P = 560 \text{ см}^{-1}$ при $\theta_2 = 0^\circ$. *a* — Зависимость $I_{max}(\theta_1)$, измеренная экспериментально. Обведены максимумы, обусловленные квазисинхронным взаимодействием: 1 — $n - m = 0$, $n = 1$; 2 — $n - m = 0$, $n = 2$. *б* — Экспериментально измеренные положения максимумов одномерных зависимостей интенсивности рассеянного излучения $I_S(\alpha, \theta_1 = \text{const})$ (■) и результаты расчета кривой $\alpha = \alpha_0(\theta_1)$ (штриховая линия) и перестроечных кривых для первого этапа каскадного процесса, соответствующих условиям $\tau_n = 0$ (при $n = 0, 1, 2$). Кривые $\tau_n = 0$ для $n = 1, 2$ рассчитаны для ряда частот поляритонного состояния, которые могут возбуждаться одновременно вследствие конечной ширины спектральных линий накачки. Цифры 1 и 2 обозначают положение максимумов экспериментально измеренной кривой $I_{max}(\theta_1)$ (см. рис. 7*a*)

В случае пространственно-однородной среды зависимость $I_{max}(\theta_1)$ имеет единственный максимум, а в случае образца с периодическим распределением квадратичной нелинейной восприимчивости на ней могут наблюдаться дополнительные максимумы, связанные с нелинейной дифракцией. В принципе возможно проявление нелинейной дифракции и на зависимостях $I_S(\alpha, \theta_1 = \text{const})$. Для этого необходимо выполнение условия (17) для различных значений $m - n$ при одинаковых значениях θ_1 и θ_2 , что в нашем случае никогда не выполнялось. В случае зависимости $I_{max}(\theta_1)$, изображенной на рис. 7*a*, нелинейная дифракция проявляется в виде дополнительных максимумов (обведены линией). Максимум, помеченный цифрой 2, соответствует значениям $n - m = 0$ и $n = 2$, а помеченный цифрой 1 — $n - m = 0$ и $n = 1$. На ри-

сунке приведено лишь одно крыло максимума интенсивности сигнального излучения, соответствующего рассеянию без нелинейной дифракции, поскольку при дальнейшем увеличении угла θ_1 регистрируемые значения интенсивности сильно искажались из-за виньетирования элементами приемной системы. По этой же причине для этого значения частоты не удалось получить адекватную интерполяцию экспериментальной зависимости $I_{max}(\theta_1)$ зависимостью вида (19). По положению дополнительных максимумов интенсивности рассеянного излучения был определен период доменной сверхрешетки, его значение составило $d = 5.3 \pm 0.1$ мкм. На основании этой величины и уточненного значения поляритонного показателя преломления нами были построены кривые $\tau_n = 0$ и $\alpha = \alpha_0(\theta_1)$, эти зависимости приведены на рис. 7б. Кривые $\tau_n = 0$ для $n = 0, 1, 2$ имеют вид широких полос, ширины которых определяются спектром поляритонных состояний, возбуждаемых одновременно из-за конечных спектральных ширин линий накачки.

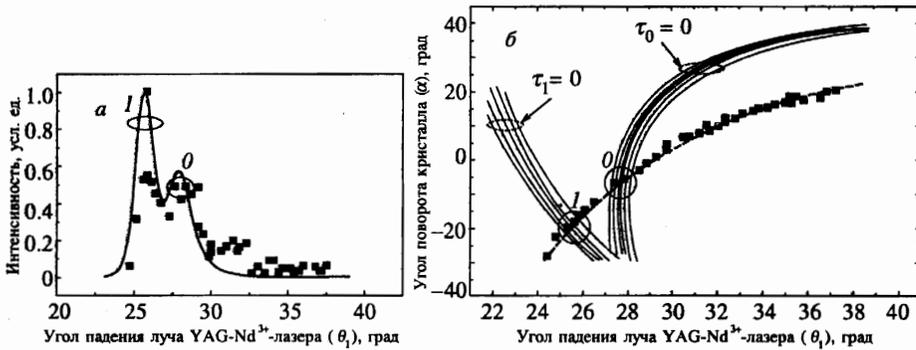


Рис. 8. Угловые характеристики когерентного стоксова рассеяния света в полидоменном кристалле на частоте $\omega_P = 533 \text{ см}^{-1}$ при $\theta_2 = 16^\circ$. *a* — Зависимость $I_{max}(\theta_1)$, ■ — эксперимент, сплошная линия — расчет на основании (22) с учетом угловой и частотной структур накачек и линейного поглощения на поляритонной частоте $\alpha_P = 500 \text{ см}^{-1}$. Обведены максимумы, обусловленные квазисинхронным взаимодействием: θ — $n - m = 0$, $n = 0$; I — $n - m = 0$, $n = 1$. *б* — Экспериментально измеренные положения максимумов одномерных зависимостей интенсивности рассеянного излучения $I_S(\alpha, \theta_1 = \text{const})$ (■) и результаты расчета кривой $\alpha = \alpha_0(\theta_1)$ (штриховая линия) и перестроечных кривых для первого этапа каскадного процесса, соответствующих условиям $\tau_n = 0$ (при $n = 0, 1$). Кривые $\tau_n = 0$ для $n = 0, 1$ рассчитаны для ряда частот поляритонного состояния, которые могут возбуждаться одновременно вследствие конечной ширины спектральных линий накачки. Цифры θ и I обозначают положения максимумов кривой $I_{max}(\theta_1)$ (см. рис. 8а)

Аналогичные измерения были проделаны для другого значения частоты $\omega_P = 533 \text{ см}^{-1}$. Результаты эксперимента и численного расчета кривых синхронизма представлены на рис. 8а, б. В данном случае на кривой $I_{max}(\theta_1)$ можно выделить два максимума КСРС в условиях нелинейной дифракции, для которых $n = 0$ (обозначен θ) и $n = 1$ (обозначен I). Из рис. 8а видно, что максимум I во много раз больше максимума θ , это находится в качественном соответствии с соотношением между соответствующими компонентами фурье-разложения квадратичной восприимчивости полидоменных кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Y:Mg}$ приведенными в [11]. Значение периода доменной сверхрешетки составило $d = 5.34 \pm 0.05$ мкм, что хорошо совпадает с величиной, полученной из исследования угловых зависимостей на частоте $\omega_P = 560 \text{ см}^{-1}$. При расчете формы линии с

помощью выражения (22) были учтены угловые расходимости падающих на кристалл лучей накачки и их конечная спектральная ширина. Следует заметить, что удовлетворительная аппроксимация экспериментально полученной зависимости $I_{max}(\theta_1)$ выражением (22) получается лишь при заниженном значении линейного поглощения на частоте поляритонного состояния по сравнению с данными спектроскопии спонтанного параметрического рассеяния [12] и расчета на основе осцилляторной модели [13]. Это расхождение отмечалось и ранее (см. [7, 8]) при исследовании пространственно-однородных кристаллов, однако его причина до сих пор не установлена. Небольшое различие в полученных методом спонтанного параметрического рассеяния и КСРС величинах периода доменной сверхрешетки может быть объяснено неравномерным распределением этого параметра по объему кристалла.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В ходе выполнения настоящей работы впервые было исследовано явление нелинейной дифракции при когерентном четырехволновом рассеянии света на поляритонах в среде с периодическим распределением квадратичной нелинейной восприимчивости. Получены условия синхронизма для такого процесса и найдено выражение для формы линии рассеяния. Предсказанный эффект был зарегистрирован экспериментально, и результаты измерений находятся в удовлетворительном согласии как с предложенной теорией, так и с экспериментами по трехволновому спонтанному параметрическому рассеянию в исследованных кристаллах. Проведено сравнение возможностей спектроскопического применения метода КСРС со спектроскопией спонтанного параметрического рассеяния. На основании проделанного анализа можно сделать следующие заключения.

1. При когерентном четырехволновом рассеянии света на поляритонах в нецентросимметричных средах с периодическим пространственным распределением квадратичной нелинейной восприимчивости возможны каскадные дифракционные процессы.

2. Метод КСРС позволяет наблюдать рассеяние в более высоких порядках нелинейной дифракции, чем методика спонтанного параметрического рассеяния, что, в принципе, должно позволить более точно восстанавливать профиль нелинейной дифракционной решетки.

3. Активная спектроскопия позволяет с гораздо более высокой точностью измерять период доменной сверхрешетки и показатель преломления на поляритонной частоте, нежели трехволновая спектроскопия спонтанного параметрического рассеяния. Однако измерение линейного поглощения в поляритонной области частот по спектрам КСРС дает результаты, существенно отличающиеся от данных других методик, причем природа этого расхождения пока не установлена.

4. Уровни сигналов КСРС, регистрируемых от относительно малых областей кристалла, значительно выше, чем при спонтанном параметрическом рассеянии. В силу этого четырехволновое поляритонное рассеяние может быть использовано для исследования пространственного распределения параметров доменной системы.

Из изложенного выше видно, что нелинейная дифракция при когерентном четырехволновом рассеянии света на поляритонах позволяет с более высокой точностью извлекать информацию о среде, однако платой за такое улучшение является значительное усложнение экспериментальной установки и математической обработки результатов эксперимента.

Авторы считают своим приятным долгом выразить благодарность С. П. Кулику, М. В. Чеховой и А. В. Бурлакову за плодотворные дискуссии и информацию об образцах, а также И. И. Наумовой, любезно предоставившей кристаллы $\text{LiNbO}_3:\text{Nd:Mg}$. Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 96-02-16336а).

Литература

1. Д. Н. Клышко, *Фотон и нелинейная оптика*, Наука, Москва (1980).
2. А. Л. Александровский, Г. Х. Китаева, С. П. Кулик, А. Н. Пенин, *ЖЭТФ* **90**, 1051 (1986).
3. С. А. Ахманов, Н. Н. Коротеев, *Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света*, Наука, Москва (1981).
4. J. P. Coffinet and F. DeMartini, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 22 (1969)
5. Д. Н. Клышко, *Квантовая электроника* **2**, 265 (1975).
6. В. Л. Стрижевский, Ю. Н. Яшкир, *Квантовая электроника* **2**, 995 (1975).
7. G. Kh. Kitaeva, P. S. Losevsky, A. A. Mikhailovsky, and A. N. Penin, *Opt. Comm.* **138**, 242 (1997).
8. Г. Х. Китаева, П. С. Лосевский, А. А. Михайловский, А. Н. Пенин, *ЖЭТФ* **112**, 441 (1997).
9. I. I. Naumova, N. F. Evlanova, O. A. Gliko, and S. V. Lavrishev, *Ferroelectrics* **190**, 107 (1997).
10. M. V. Chekhova, S. P. Kulik, and A. N. Penin, *Opt. Comm.* **114**, 301 (1995).
11. А. Л. Александровский, О. А. Глико, И. И. Наумова, В. И. Прялкин, *Квантовая электроника* **23**, 657 (1996).
12. A. V. Burlakov, M. V. Chekhova, S. P. Kulik, and A. N. Penin, *Proc. Int. Conf. CLEO/Pacific Rim'97, Japan* (1997) (to appear).
13. A. S. Barker and R. Loudon, *Phys. Rev.* **158**, 433 (1967).