

ПЕРЕСТРАИВАЕМЫЙ ЛАЗЕР НА ВЫНУЖДЕННОМ КОМБИНАЦИОННОМ РАССЕЯНИИ НА ПОЛЯРИТОНАХ

В ионных кристаллах поперечные оптические фононы и фотоны с приблизительно одинаковыми и теми же волновыми векторами и энергиями сильно взаимодействуют между собой, в результате чего в кристалле возникает распространяющееся возбужденное состояние, которое не может быть описано ни как фонон, ни как фотон, а является их смесью. Такое состояние получило название поляритона¹. Теория поляритона была разработана рядом авторов²⁻⁴.

Как известно, колебания, возбуждаемые в кристалле, образуют оптическую и акустическую ветви. Длинноволновые оптические колебания проявляются главным образом в ионных кристаллах, благодаря большим электрическим моментам, связанным с движением ионов. Эти колебания, так же как акустические колебания, могут быть рассмотрены на основе макроскопической теории, которая особенно проста для двухатомных кристаллов, обладающих изотропией, таких, как NaCl , ZnS , GaP и т. п.

В работах ²⁻³ развита теория длинноволновых оптических колебаний, в предположении, что в кристалле существует одна оптическая мода и отсутствуют потери. В работе ⁴ дана общая теория для многих мод с учетом потерь.

Если W_j — колебательная амплитуда j -й оптической моды, то уравнения, описывающие состояния среды, имеют вид

$$\left. \begin{array}{l} \ddot{W}_1 + \omega_1^2 W_1 + \gamma_1 \dot{W}_1 = Z_1 E, \\ \ddot{W}_2 + \omega_2^2 W_2 + \gamma_2 \dot{W}_2 = Z_2 E, \\ \vdots \\ \ddot{W}_n + \omega_n^2 W_n + \gamma_n \dot{W}_n = Z_n E, \\ P = \alpha_1 W_1 + \alpha_2 W_2 + \alpha_3 W_3 + \dots + \alpha_n W_n + \alpha_\infty E; \end{array} \right\} \quad (1)$$

здесь ω_j^2 , γ_j и Z_j — возвращающая сила, коэффициент затухания и эффективный заряд, соответствующие j -й моде, E — макроскопическое электрическое поле в кристалле, P — поляризуемость кристалла, α_j — эффективный заряд, приходящийся на единицу объема, α_∞ — высокочастотная поляризуемость кристалла, зависящая только от электронных состояний. Решение уравнений (1) ищется в виде плоских волн

$$P, E, W_1, \dots, W_n \sim e^{i(\omega t + kx)}.$$

Тогда легко получить, что

$$P = \left[\frac{\alpha_j Z_j}{\omega_j^2 - \omega^2 + i\gamma_j \omega} + \alpha_\infty \right] E, \quad (2)$$

а диэлектрическая постоянная определяется обычным классическим дисперсионным соотношением

$$\varepsilon = 1 + 4\pi P/E = \varepsilon_\infty + \sum_i \frac{S_j \omega_j^2}{\omega_j^2 - \omega^2 + i\gamma_j \omega}; \quad (3)$$

здесь $\varepsilon_\infty = 1 + 4\alpha_\infty$ описывает высокочастотную диэлектрическую постоянную, $S_j = 4\pi\alpha_j Z_j/\omega_j^2$ — безразмерная интенсивность j -й моды. В единицах безразмерной интенсивности низкочастотная диэлектрическая постоянная равна

$$\epsilon(0) = \epsilon_\infty + \sum_i S_{j*} \quad (4)$$

К уравнениям (1), описывающим состояние среды, следует добавить уравнения, описывающие электромагнитные поля:

$$\left. \begin{aligned} \operatorname{div} \mathbf{D} &= \operatorname{div} \mathbf{H} = 0, \\ \operatorname{rot} \mathbf{E} &= -\frac{1}{c} \dot{\mathbf{H}}, \\ \operatorname{rot} \mathbf{H} &= \frac{1}{c} \dot{\mathbf{D}}, \\ \mathbf{D} &= \mathbf{E} + 4\pi \mathbf{P}. \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

Необходимо найти совместное решение системы уравнений (1) и (5). Уравнение $\operatorname{div} \mathbf{D} = \varepsilon \operatorname{div} \mathbf{E} = 0$ имеет два корня. Если $\varepsilon = 0$, то $\operatorname{div} \mathbf{E} \neq 0$ и вектор \mathbf{k} параллелен вектору \mathbf{E} (продольные моды); если $\varepsilon \neq 0$, $\operatorname{div} \mathbf{E} = 0$, то вектор \mathbf{k} перпендикулярен к вектору \mathbf{E} (поперечные моды). Рассмотрим оба случая более подробно.

a) $\varepsilon = 0$, $\operatorname{div} \mathbf{E} \neq 0$, $\mathbf{k} \parallel \mathbf{E}$, $\mathbf{H} = 0$. Уравнение (3) можно записать также в виде

$$\begin{aligned} \varepsilon \prod_{j=1}^n (\omega_j^2 - \omega^2 + i\omega\gamma_j) &= \omega_1^2 \omega_2^2 \dots \omega_n^2 (S_1 + S_2 + \dots + S_n + \varepsilon_\infty) + \\ &+ i\omega (\dots) - \omega^2 (\dots) - i\omega^3 (\dots) + \omega^4 (\dots) + \dots + (-1)^n \omega^{2n} (\varepsilon_\infty). \end{aligned} \quad (6)$$

Члены в скобках представляют собой различные комбинации S_j , ω_j , γ_j и ε_∞ . Правая часть уравнения (6) есть полином степени $2n$. Следовательно, имеется $2n$ решений уравнения $\varepsilon = 0$, т. е. имеется $2n$ продольных колебаний с частотами ω_{l_1} , ω_{l_2} , \dots , $\omega_{l_{2n}}$. Из вида полинома следует также, что если ω_l есть корень полинома, то существует и его комплексно-сопряженное значение $-\omega_l^*$. Можно полином (6) записать и в другом виде:

$$\begin{aligned} \varepsilon \prod_j (\omega_j^2 - \omega^2 + i\omega\gamma_j) &= (-1)^n \varepsilon_\infty (\omega - \omega_{l_1}) (\omega - \omega_{l_2}) \dots (\omega - \omega_{l_{2n}}) = \\ &= (-1)^n [\omega^2 - |\omega_{l_1}|^2 - 2i\omega \operatorname{Im}(\omega_{l_1})] \dots [\omega^2 - |\omega_{l_n}|^2 - 2i\omega \operatorname{Im}(\omega_{l_n})], \end{aligned} \quad (7)$$

где $|\omega_l| = \omega_l \omega_l^*$.

Сопоставляя соответствующие члены уравнений (6) и (7), можно записать $2n - 1$ правил сумм, которым должны удовлетворять ω_l , γ_j , ω_j , S_j . Наиболее важными из них являются: правило сумм Лиддана — Сакса — Теллера

$$\frac{|\omega_{l_1}|^2 |\omega_{l_2}|^2 |\omega_{l_3}|^2 \dots |\omega_{l_n}|^2}{\omega_1^2 \omega_2^2 \omega_3^2 \dots \omega_n^2} = \frac{\varepsilon(0)}{\varepsilon_\infty}, \quad (8)$$

правило сумм для коэффициентов затухания

$$\gamma_1 + \gamma_2 + \gamma_3 + \dots + \gamma_n = 2[\operatorname{Im}(\omega_{l_1}) + \operatorname{Im}(\omega_{l_2}) + \dots + \operatorname{Im}(\omega_{l_n})] \quad (9)$$

и правило сумм для произведений $\omega_j^2 S_j$

$$\sum_j \omega_j^2 S_j = \sum_j (|\omega_{l_j}|^2 - \omega_j^2). \quad (10)$$

В случае одной моды из (8), (9) следует

$$\begin{aligned} \gamma_1 &= 2 \operatorname{Im}(\omega_{l_1}), \\ \frac{|\omega_{l_1}|^2}{\omega_1^2} &= \frac{S_1 + \varepsilon_\infty}{\varepsilon_\infty} = \frac{\varepsilon(0)}{\varepsilon_\infty}, \end{aligned}$$

откуда частота продольной моды равна

$$\omega_{l_1} = \pm \left[\omega_1^2 \left(\frac{S_1 + \varepsilon_\infty}{\varepsilon_\infty} \right) - \frac{\gamma_1^2}{4} \right]^{1/2} + \frac{i\gamma_1}{2} \quad (11)$$

и не зависит от волнового вектора.

б) $\varepsilon \neq 0$, $\operatorname{div} \mathbf{E} = 0$, $\mathbf{k} \perp \mathbf{E}$, $\mathbf{H} = 0$. Совместное решение уравнений (1), (5) показывает, что в кристалле возникает распространяющееся возбуждение, частота которого зависит от волнового вектора:

$$\frac{k^2 c^2}{\omega^2} = \varepsilon_\infty + \sum_j \frac{S_j \omega_j^2}{\omega_j^2 - \omega^2 + i\omega\gamma_j}. \quad (12)$$

Это возбужденное состояние и называется поляритоном. Частоту поперечного фонона ω_{l_j} легко получить, устремляя $k \rightarrow \infty$:

$$\omega_{l_j} = \pm [\omega_j^2 - \gamma_j^2/4]^{1/2} + \frac{i\gamma_j}{4}. \quad (13)$$

На рис. 1 сплошными линиями представлены решения, определяемые (11), (12) для случая одной оптической моды в отсутствие потерь. Штриховыми линиями изображены соответствующие кривые, когда взаимодействие между фотоном и фононом отсутствует.

Впервые комбинационное рассеяние на поляритонах в GaP наблюдали Генри и Хоффильд⁶. При комбинационном рассеянии света должны соблюдаться законы сохранения энергии и импульса:

$$\hbar\omega_{\text{л}} = \hbar\omega_{\text{ст}} + \hbar\omega_{\text{п}}, \quad (14)$$

$$\mathbf{k}_{\text{л}} = \mathbf{k}_{\text{ст}} + \mathbf{k}_{\text{п}}, \quad (15)$$

здесь $\omega_{\text{л}}$, $\omega_{\text{ст}}$, $\omega_{\text{п}}$ — соответственно частоты возбуждающего света (лазера), стоксовой компоненты рассеянного света и поляритона; $\mathbf{k}_{\text{л}}$, $\mathbf{k}_{\text{ст}}$, $\mathbf{k}_{\text{п}}$ — соответствующие волновые векторы. Из (15) легко получить

$$k_{\text{п}}^2 = k_{\text{л}}^2 + k_{\text{ст}}^2 - 2k_{\text{л}}k_{\text{ст}} \cos \vartheta; \quad (16)$$

здесь ϑ — угол внутри кристалла между направлением распространения возбуждающего излучения и направлением распространения рассеянного излучения. Из (16)

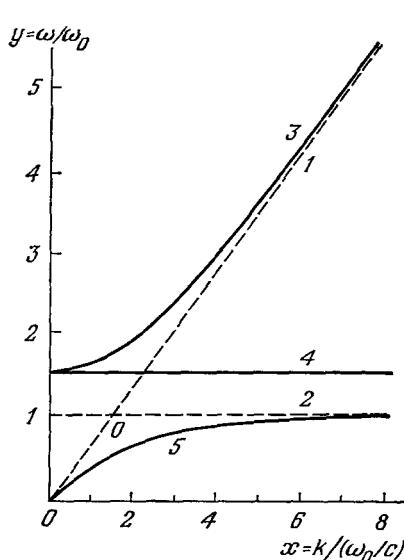


Рис. 1. Оптические и механические волны в кристалле.

1 — оптические волны без учета дисперсии; 2 — механические колебания без учета взаимодействия с электрическим полем; 3 — оптические волны с учетом дисперсии; 4 — продольные колебания решетки; 5 — поперечные колебания решетки.

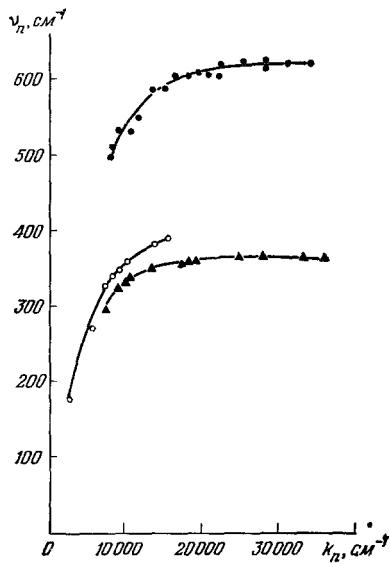


Рис. 2. Дисперсионные кривые и экспериментально наблюдаемые значения частоты поляритона $v_{\text{п}}$.

— никобат лития (LiNbO_3); ○ — окись цинка (ZnO); ▲ — фосфат галия (GaP).

и (12) видно, что при изменении угла ϑ меняется $k_{\text{п}}$ и, следовательно, $\omega_{\text{п}}$ и $\omega_{\text{ст}}$. Экспериментально исследовалась зависимость $\omega_{\text{ст}}$ (ϑ), далее из (14), (15) определялась $\omega_{\text{п}}$ и полученные значения $\omega_{\text{п}}$ сравнивались с теоретической дисперсионной кривой (12), построенной для случая одной моды и в отсутствие потерь. В качестве источника возбуждающего света авторы использовали неон-гелиевый лазер ($\lambda = 6328 \text{ \AA}$). Угловая апертура возбуждающего света была $\sim 0,6^\circ$ внутри кристалла. Стоксова компонента рассеянного света регистрировалась фотографически с помощью двухметрового спектрографа с решеткой. Время экспозиции менялось от 30 мин до 7 час. Для того чтобы наблюдать рассеяние при малых углах ϑ , включая $\vartheta = 0^\circ$, был использован специальный поляризационный фильтр. На рис. 2 приведены экспериментальные значения частоты поляритона $v_{\text{п}}$ и теоретически рассчитанная дисперсионная кривая (сплошная линия). Там же показаны данные, полученные в работе⁶ для рассеяния на поляритонах в неаксиальном положительном кристалле ZnO, в работе⁷ — в кристалле LiNbO_3 . Видно, что имеет место хорошее согласие между экспериментальными данными и теоретической дисперсионной кривой.

Идея использования явления комбинационного рассеяния света на поляритонах для создания перестраиваемых лазеров впервые была высказана в работе⁸. В работе⁹

эта идея была осуществлена на практике. На рис. 3 приведена принципиальная схема установки. Источником возбуждения служил рубиновый лазер, работавший в режиме модулированной добротности. Лазер обеспечивал 20 нсек-импульсы с пиковой мощностью $\sim 2 \text{ Мвт}$. Для селекции поперечных мод высокого порядка внутри резонатора была установлена диафрагма диаметром $\sim 2 \text{ мм}$. Резонатор, внутри которого помещали кристалл ниобата лития, был образован двумя зеркалами на расстоянии 80 мм. Одно из зеркал (Z_2) было плоское, другое (Z_1) — с радиусом кривизны 1300 мм. Каждое зеркало имело коэффициент отражения для длины волны стоксовой компоненты $\sim 99,5\%$.

Зеркало Z_2 было снабжено пьезоэлектрическим держателем, который обеспечивал сканирование зеркала. Временные характеристики стоксова излучения регистрировались с помощью ФЭУ, расположенного за выходной щелью призменного спектроографа, спектральные характеристики измерялись с помощью 2-метрового спектрографа с решеткой фотографическим методом. Линза L_1 , с фокусным расстоянием $f = 600 \text{ мм}$ фокусировала излучение лазера в пятно диаметром $\sim 1,2 \text{ мм}$ в кристалле. Луч лазера проходил через кристалл только один раз.

Авторы использовали кристалл ниобата лития длиною 15 мм с плоско-параллельными, просветленными торцами. Кристалл был ориентирован в резонаторе так, что луч лазера распространялся в плоскости, перпендикулярной к оси c . Излучение лазера было поляризовано под углом 30° к оси c . Авторы наблюдали изменение частоты стоксовой компоненты $v_{ct} = 248 \text{ см}^{-1}$ в зависимости от угла ϑ . Для $\vartheta = 3,5^\circ$ частота стоксовой компоненты была $v_{ct} = 214 \text{ см}^{-1}$, для $\vartheta = 5^\circ$ $v_{ct} = 235 \text{ см}^{-1}$, для $\vartheta = 180^\circ$ $v_{ct} = 248 \text{ см}^{-1}$. Таким образом, при изменении угла ϑ от $3,5$ до 180° наблюдалось смещение $\Delta v_{ct} = 34 \text{ см}^{-1}$ ($\sim 14\%$). На расстоянии 2 м от резонатора стоксово излучение создавало пятно диаметром $\sim 3 \text{ мм}$ (диаметр пятна возбуждающего излучения $\sim 1,2 \text{ мм}$). Незначительная расстройка резонатора приводила к исчезновению стоксова излучения. Основываясь на этих фактах, авторы пришли к выводу, что они наблюдали вынужденное комбинационное рассеяние.

Для кристалла длиною 32 мм, помещенного внутри резонатора, для угла $\vartheta = 5^\circ$ авторы наблюдали стоксову компоненту с частотой $v_{ct} = 152 \text{ см}^{-1}$ и не наблюдали линию $\vartheta_{ct} = 248 \text{ см}^{-1}$. С изменением угла ϑ частота стоксовой компоненты $v_{ct} = 152 \text{ см}^{-1}$ также изменялась. Хотя наблюдалось изменение частоты стоксовой компоненты $v_{ct} = 248 \text{ см}^{-1}$ на 36 см^{-1} , авторы считают, что при использовании двух компонент $v_{ct} = 628 \text{ см}^{-1}$, $v_{ct} = 248 \text{ см}^{-1}$ можно будет наблюдать смещение стоксова излучения более чем на 350 см^{-1} : частота $v_{ct} = 628 \text{ см}^{-1}$ будет обеспечивать смещение стоксова излучения от 491 см^{-1} до 628 см^{-1} , а $\vartheta_{ct} = 248 \text{ см}^{-1}$ — от 0 до 248 см^{-1} .

В работе ¹⁰ наблюдался эффект перестройки частоты стоксовой компоненты $v_{ct} = 248 \text{ см}^{-1}$ в ниобате лития, находящемся вне резонатора. Установка, использованная в экспериментах, была аналогична установке на рис. 3, за исключением того, что зеркала Z_1 , Z_2 отсутствовали. Авторы наблюдали максимальный сдвиг частоты $\Delta v_{ct} = 200 \text{ см}^{-1}$, от 242 см^{-1} до 42 см^{-1} . При энергиях накачки, незначительно превышающих порог, ширина линии стоксовой компоненты была $\sim 15 \text{ см}^{-1}$; при увеличении энергии накачки ширина линии возрастала до 100 см^{-1} ; при энергиях ниже порога ширина линии $< 1 \text{ см}^{-1}$. Авторы наблюдали также инфракрасное излучение, длина которого изменилась от 50 мк до 238 мк . Последние эксперименты показывают перспективность дальнейших исследований по созданию перестраиваемого лазера на эффекте рассеяния на поляризонах не только для области видимого спектра, но также для далекой инфракрасной области спектра.

Г. В. Перегудов

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. J. J. Hopfield, Phys. Rev. **112**, 1555 (1958).
2. K. Hwang, Proc. Roy. Soc. (Lnd) **A208**, 358 (1951).
3. М. Бори, Х. Кунь, Динамическая теория кристаллических решеток, М., ИЛ, 1958.
4. A. S. Barker, Phys. Rev. **136**, A1290 (1964).
5. C. H. Henry, J. J. Hopfield, Phys. Rev. Lett. **15**, 964 (1965).
6. S. P. S. Porto, B. Tell, T. C. Damen, Phys. Rev. Lett. **16**, 450 (1966).
7. H. E. Puthoff, R. H. Pantell, B. C. Huth, M. A. Chacon, J. Appl. Phys. **39**, 2144 (1968).
8. R. Loudon, Proc. Phys. Soc., **82**, 393 (1963).

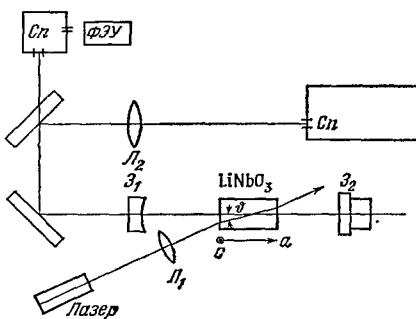


Рис. 3. Принципиальная схема установки.

9. J. Gelbwachs, R. H. Pantell, H. E. Puthoff, J. M. Yarbrough, Appl. Phys. Lett. **14**, 258 (1969).
10. J. M. Yarbrough, S. S. Sussman, H. E. Puthoff, R. H. Pantell, B. C. Johnson, Appl. Phys. Lett. **15**, 102 (1969).