

О НОВОМ МЕТОДЕ НЕЛИНЕЙНОЙ СПЕКТРОСКОПИЧЕСКОЙ ЭЛЛИПСОМЕТРИИ ИЗОТРОПНЫХ СРЕД

И.И. Г а н ч е р е н о к, В.А. Г а й с е н о к

В работах [1, 2] нами предложен новый способ нелинейной спектроскопической эллипсометрии изотропных сред (НСЭ). Сущность данного метода состоит в исследовании изменения состояния поляризации пробного квазимонохроматического пучка света с частотой ω_2 и волновым вектором \vec{k}_2 при прохождении через среду со светоиндуцированной анизотропией, вызванной волной накачки (ω_1, \vec{k}_1) . В настоящем сообщении мы представляем новый вариант НСЭ, в котором спектроскопическая информация может быть получена на основе эллипсометрических исследований когерентного излучения с параметрами $\omega_3 = 2\omega_1 - \omega_2$ и $\vec{k}_3 = 2\vec{k}_1 - \vec{k}_2$ (рис. 1).

В рамках формализма тензора резонансной кубической восприимчивости нелинейная поляризованность изначально изотропной среды на комбинационной частоте ω_3 может быть представлена в следующем виде [3]:

$$\vec{P}^{(3)}(\omega_3) = a [(\vec{E}_1 \vec{E}_1) \vec{E}_2^* + b (\vec{E}_1 \vec{E}_2^*) \vec{E}_1], \quad (1)$$

где $a = 3\chi_{1221}$, $b = 2\chi_{1122}/\chi_{1221}$, \vec{E}_i — векторные амплитуды волн. Обозначение $(\vec{c}\vec{d})$ будет здесь и в дальнейшем использоваться для скалярного произведения векторов \vec{c} и \vec{d} .

Вводя единичные векторы поляризации взаимодействующих волн $\vec{e}_i = \vec{E}_i/E_i$, выражение (1) может быть переписано в форме

$$\vec{P}^{(3)}(\omega_3) = a E_1^2 E_2^* (\hat{I}(\vec{e}_1, \vec{e}_1) + b \vec{e}_1 \cdot \vec{e}_1) \vec{e}_2^* = a E_1^2 E_2^* \hat{\beta} \vec{e}_2^*. \quad (2)$$

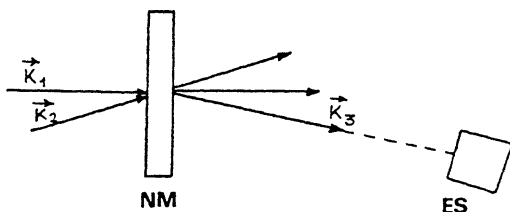


Рис. 1. Схематическое представление метода НСЭ: *NM* – нелинейная среда; *ES* – эллипсометрическая установка.

Здесь $\hat{\beta}$ – тензор параметрической связи, \hat{I} – единичный тензор, точка означает диадное произведение.

Эволюцию волны на частоте ω_3 (комбинационная волна) можно определить, решая с учетом (2) соответствующую систему укороченных уравнений Максвелла [4]. Далее, используя приближение достаточно слабого возбуждения, в квазиколлинеарной геометрии взаимодействующих волн состояние поляризации комбинационной волны может быть описано следующим уравнением (скалярный множитель опущен как несущественный при изучении поляризационных свойств излучения):

$$\vec{e}_3 \alpha \hat{\beta} \vec{e}_{20}^*, \quad (3)$$

где \vec{e}_{20} – вектор поляризации пробной волны на входе в среду.

Уравнение (3) имеет вид линейного тензорного преобразования вектора \vec{e}_{20} и формально совпадает с законом взаимодействия падающей волны с оптической системой в классической эллипсометрии (КЭ) [5]. Более того, так как собственные векторы тензора $\hat{\beta}$ определяются только поляризацией волны накачки и, следовательно, известны априори, то методы КЭ позволяют провести эллипсометрическое измерение отношения собственных значений $\hat{\beta}$. Как мы покажем ниже, данное отношение зависит от ряда спектроскопических параметров нелинейной среды, которые могут быть определены с характерной для КЭ высокой точностью. Чтобы найти собственные векторы и собственные значения тензора параметрической связи, примем во внимание, что $\hat{\beta}$ – симметричный тензор и, следовательно, может быть диагонализирован преобразованием поворота на комплексный угол [6]. Тогда для собственных векторов \vec{e}_+ и \vec{e}_- имеем

$$\vec{e}_+ \vec{e}_- = -1, \quad (4)$$

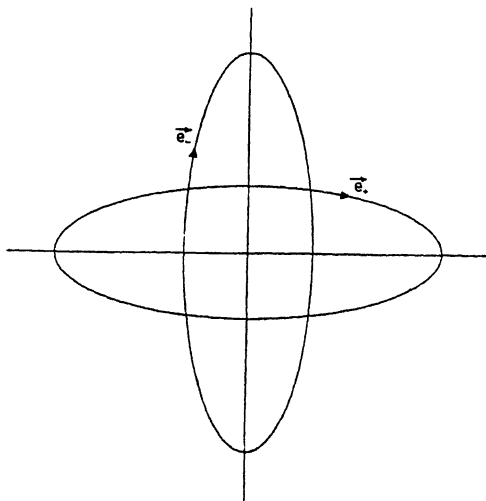


Рис. 2. Характер поляризации собственных векторов тензора параметрической связи для случая эллиптически поляризованной волны накачки.

где α_{\pm} — отношения их фазорных компонент. Используя метод комплексного угла для описания поляризации света [7] и уравнение (4), легко показать, что в общем случае эллиптически поляризованной волны накачки: $\vec{e}_+ = \vec{e}_-$ и $(\vec{e}_+ \vec{e}_-) = 0$ (рис. 2), соответствующие собственные значения и их отношение определяются следующим образом:

$$\lambda_+ = (\vec{e}_+ \vec{e}_+) (1+b), \quad \lambda_- = (\vec{e}_- \vec{e}_-), \quad r = \lambda_+ / \lambda_- = 1+b.$$

В качестве примеров, иллюстрирующих информативность величины r , рассмотрим три случая: (1) активной спектроскопии комбинационного рассеяния (КР) с вырожденными частотами [3], (2) генерации комбинационной волны в маловязких растворах сложных молекул в условиях одноквантового электронного резонанса [3] и (3) четырехфотонной спектроскопии внутри линии поглощения, когда помимо четырехфотонного процесса на резонансной электронной нелинейности необходимо дополнительно учитывать процесс когерентного рассеяния рэлеевского (или мандельштам-бриллюэновского) типа на стоячей (или бегущей) дифракционной решетке показателя преломления, наведенной в среде биением облучающих среду волн [9].

1. В этом случае для величины r имеем

$$r = (g_0^2 + 4/45 g_a^2) / \left(\frac{1}{15} g_a^2 - \frac{1}{6} g_{as}^2 \right), \quad (5)$$

где g_0, g_a и g_{as} — инварианты молекулярного тензора КР, характеризующие его изотропную, анизотропную и антисимметричную составляющие.

Таким образом, в данном случае при известных двух инвариантах тензора КР на основе измеренного значения r может быть определен третий инвариант.

2. В приближении изотропной вращательной диффузии имеем

$$r = 4/3 \left[\frac{1/3 \tilde{r} + (A + 1/3)/5(\tilde{r} + r')}{[(A-1)/3(\tilde{r} + r'/3) + (A+1/3)/5(\tilde{r} + r')]}, \right.$$

$$\tilde{r} = r_1 + i(\omega_2 - \omega_1).$$

Здесь r_1 и r' — скорости пролонгной и вращательной релаксации соответственно, параметр A ($0 \leq A \leq 1$) характеризует анизотропию дипольного момента резонансного перехода: $A = 0$ — круговой диполь, $A = 1$ — линейный диполь. Величина r' полагалась одинаковой в основном и в возбужденном состоянии. Заметим, что в случае совпадения или достаточно близких частот взаимодействующих волн ($|\Delta\omega| \ll r_1, r'$) для большинства растворов сложных молекул ($A \approx 1$) эллипсометрически измеренное значение r позволяет определить отношение r'/r_1 . Укажем также и на потенциальную возможность оценки параметра A и, следовательно, анизотропии дипольного момента резонансного перехода при известных релаксационных параметрах молекул в растворе и частотной расстройке волн накачки и опроса.

3. При данных условиях эллипсометрическое измерение $r = 3 + 2\chi_R/\chi_E$ позволяет определить отношение когерентного ралеевского (χ_R) и электронного (χ_E) вкладов в кубическую восприимчивость.

В заключение отметим, что параметр r не зависит от интенсивности накачки, что сразу избавляет данный вариант НСЭ от источника сильных флуктуаций, что особенно ценно при использовании импульсных лазеров [3]. Наконец, интересным представляется факт, что в рамках модели когерентного фотогальванического эффекта зависимость от поля, возникающего в изотропной среде тока также может быть описана на основе уравнения типа (3) [10, 11].

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] G a n c h e r y o n o k I. L. // Rev. Laser Eng. (Japan). 1992. V. 20. N 7. P. 502-513.
- [2] G a n c h e r y o n o k I. L., S a i k a n S. // Abstracts of the 1st Int. Conf. on Spectroscopic Ellipsometry. Paris, France, 1993. Me P22.
- [3] А х м а н о в С. А., К о р о т е е в Н. И. Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света. М.: Наука, 1981. 544 с.

- [4] Б у р о в Л.И., Г а н ч е р е н о к И.И. // ЖСП. 1986. Т. 44. В. 2. С. 328-330.
- [5] А з з а м Р., Б а ш а р а Н. Эллипсометрия и поляризованный свет. М.: Мир, 1981. 583 с.
- [6] Т е р е х и н А.В. // Оптика и спектроскопия. 1987. Т. 62. В. 1. С. 166-169.
- [7] Ф е д о р о в Ф.И. Оптика анизотропных сред. Минск: Изд. АН БССР, 1958. 380 с.
- [8] Г а н ч е р е н о к И.И. Автореф. канд. дис. физ.-мат. наук. Минск, 1987. 140 с.
- [9] К о р о т е е в Н.И., Т е р н о в с к а я М.Ф. // Квантовая электроника. 1982. Т. 9. В. 10. С. 1967-1976.
- [10] Э н т и н М.В. // ФТП. 1989. Т. 23. В. 6. С. 1066-1069.
- [11] Б о л ш т я н с к и й М.А., З е л ь д о в и ч Б.Я., К а п и ц к и й Ю.Э. // Квантовая электроника. 1992. Т. 19. В. 11. С. 1136-1138.

Белорусский государственный
университет, Минск

Поступило в Редакцию
26 февраля 1993 г.