

УДК 548.0 : 537

© 1992

ПАРАМЕТРИЧЕСКОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА В ПРОСТРАНСТВЕННО НЕОДНОРОДНЫХ СРЕДАХ

Г. Х. Кутаева, С. П. Кулик, А. Н. Пенин

Исследуется процесс трехволнового спонтанного параметрического рассеяния света в слоистых средах, характеризующихся регулярным или квазирегулярным изменением оптических свойств вдоль одного направления. На примере полидоменных кристаллов ниобата лития и ниобата бария-натрия с ростовыми неоднородностями анализируется проявление нелинейной дифракции света, проявление отдельно линейной дифракции — на примере монодоменного кристалла ниобата лития при возбуждении стоячей ультразвуковой волны. Показано, что все эффекты дифракции рассеянных волн и излучения накачки, а также «сворачивание» зоны Бриллюэна на частотах поляритонных волн приводят к одному и тому же изменению условия пространственного синхронизма для трехволнового параметрического процесса. На основе сделанных выводов проводится интерпретация спектров параметрического рассеяния в кристалле KDP в сегнетоэлектрической фазе с нерегулярным распределением толщин плоских доменов.

Наличие объемных неоднородностей линейных и нелинейных оптических свойств монокристаллов оказывает существенное воздействие на процессы распространения, рассеяния света и на спектр собственных состояний кристаллической решетки. Если хаотическое распределение неоднородностей по объему образца делает его «мутным», то наличие регулярности, дальнего порядка в распределении неоднородностей может привести к принципиальным изменениям вида матриц рассеяния [1], описывающих пространственно-частотное распределение интенсивности прошедшего через образец излучения. Особенно заметное воздействие регулярные неоднородности оказывают на нелинейные и линейные оптические процессы, требующие выполнения определенных фазовых соотношений — синхронные процессы типа дифракции, нелинейно-оптические параметрические эффекты преобразования частоты света (генерация оптических гармоник, параметрическое и гиперпараметрическое рассеяние света и т. д.).

Ниже рассматривается влияние неоднородности плоскостойкого типа с регулярным или квазирегулярным распределением в пространстве на процесс трехволнового спонтанного параметрического рассеяния света (СПР) [2]. Спонтанное параметрическое рассеяние света — процесс неупругого взаимодействия излучения со средой без центра симметрии. В результате элементарного акта рассеяния фотона первичного монохроматического излучения (с частотой ω_L , волновым вектором k_L) рождается пара частиц с частотами ω_s , ω_p и волновыми векторами k_s , k_p (одна частица — сигнальный фотон, вторая — фотон или колебательный поляритон). Принято считать, что частоты сигнальных волн лежат в пределах $\omega_L/2 < \omega_s < \omega_L$, а частоты «поляритонных» — в пределах $0 < \omega_p < \omega_L/2$. В точке $\omega_s = \omega_p = \omega_L/2$ волны становятся неразличимыми. Если частота ω_p , как и ω_s , находится в области прозрачности кристалла, процесс СПР обусловлен действием нулевых флуктуаций электромагнитного вакуума. В случае, когда ω_p попадает в полосу поглощения кристаллической решетки, СПР называют рассеянием света на поляритонах. При этом в интенсивность рассеяния кроме нулевых флуктуаций

вакуума вносит существенный вклад тепловые флуктуации связанного со средой поля инфракрасного диапазона.

В пространственно однородной среде процесс СПР идет с необходимым выполнением условий частотного и пространственного (фазового, волнового) синхронизма:

$$\omega_s + \omega_p = \omega_L, \quad (1)$$

$$k_s + k_p = k_L. \quad (2)$$

Условие (2) написано для случая точного выполнения синхронизма, без учета волновой расстройки. Наличие регулярной неоднородности приводит к изменению условия пространственного синхронизма, которое приобретает вид:

$$k_s + k_p + q_m = k_L. \quad (3)$$

Здесь $q_m = \frac{2\pi}{d} m n$ — собственный вектор «пространственной решетки», связанный с регулярной частью объемных неоднородностей; m — целое положительное число; d — характерный размер регулярно повторяющейся неоднородности; n — единичный вектор, определяющий направление регулярного изменения параметров среды.

Условие (3) может быть реализовано в результате различных оптических процессов, отличающихся тем, какой из волновых векторов k_s , k_p или k_L — смещается на вектор обратной сверхрешетки q_m . Представляется несомненным, что оптимальные условия, определяющие максимальную интенсивность рассеяния, совпадают с условиями дифракции Брэгга для одной из волн. В случае нелинейных оптических процессов существенна не только сверхрешетка, образующаяся в результате пространственной модуляции диэлектрической проницаемости (линейной части восприимчивости), но и сверхрешетка, наведенная за счет модуляции нелинейной восприимчивости. В этом случае условие синхронизма (3) будет выполняться и в отсутствие линейной дифракции какой-либо из отдельно взятых волн, участвующих в процессе СПР.

Известно, что эффективность объемной решетки связана с глубиной модуляции. Для линейной части восприимчивости пространственная модуляция может быть реализована рядом методов, однако, как правило, глубина модуляции мала. Так, в кристаллах с периодической ростовой структурой [3], в кристаллах с полидоменной структурой или при наличии блоков максимальной пространственной вариация показателя преломления обычно $\delta n \sim 10^{-4} - 10^{-5}$. Такого же порядка величина δn может быть получена путем внешнего воздействия, например ультразвуковой волной. Композиционные гетероструктуры могут обеспечить $\delta n \sim 10^{-1}$. При этом относительная глубина модуляции квадратичной восприимчивости может быть существенно большей и достигать 100%. Сказанное относится к нерезонансной области спектра. Если же поляритонная волна попадает в область собственных решеточных колебаний, то ситуация может измениться. Благодаря анизотропии колебаний решетки и для линейной восприимчивости может быть осуществлена модуляция с большой относительной глубиной — вплоть до 100%.

Параметрическое рассеяние света занимает широкий и практически непрерывный спектр в пределах от частоты излучения накачки до сотен микрон, включая и область собственных колебаний решетки. Являясь параметрическим процессом, СПР оказывается чувствительным инструментом для исследования влияния пространственных неоднородностей (как регулярных, так и фрактально-регулярных) на оптические свойства кристаллов и на спектр собственных состояний кристаллической решетки.

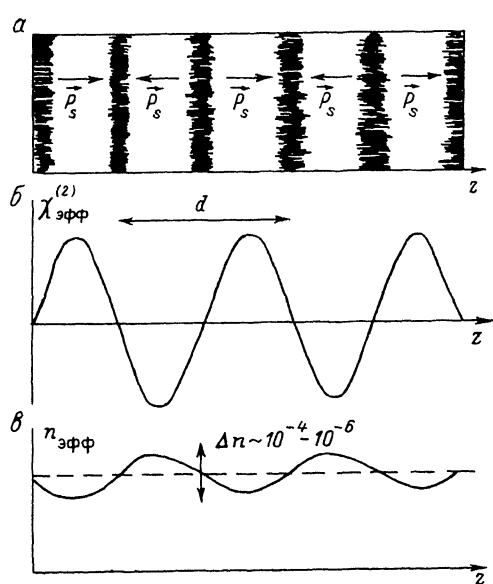


Рис. 1. Структура ростовых неоднородностей (а) и пространственная зависимость эффективных величин $\chi^{(2)}$ и n (б) в кристаллах $Ba_2NaNb_5O_{15}$ и $LiNbO_3 \cdot Y$.

Рассмотрим спектры СПР кристаллов с различными типами пространственных сверхрешеток, отличающихся видами модуляционных функций, а также соотношением между относительной глубиной модуляции линейной и нелинейной восприимчивости. Вначале обратимся к случаю эффективной модуляции нелинейной восприимчивости, определяющей интенсивность параметрического рассеяния света, может достигать 100%. В связи с этим именно модуляция квадратичной восприимчивости оказывает в ряде случаев определяющее воздействие на спектры СПР в неоднородной среде [4]. Интенсивность сигнальной волны — пропорциональная свертке тензора квадратичной восприимчивости χ ($\omega_s = \omega_L - \omega_p$) по векторам действующих полей:

$$\chi_{\text{эфф}} = \hat{\chi}(\omega_s = \omega_L - \omega_p) : e_L e_s e_p. \quad (4)$$

Именно этот факт и позволяет достичь относительной модуляции в 100% в специально сконструированных структурах. Примером могут служить образцы кристаллов ниобата лития и ниобата бария-натрия с созданными в них ростовыми неоднородностями в виде слоев с различной геометрией. Плоскость слоев перпендикулярна оптической оси кристаллов. При комнатной температуре на этих слоях роста локализуются объемные домены [3]. При переходе из домена в домен по направлению оптической оси вектор спонтанной поляризации меняет направление на противоположное. В этих кристаллах симметрия тензора $\hat{\chi}$ такова, что подобная доменизация приводит к изменению знака эффективной величины нелинейности (4) от слоя к слою (рис. 1). По существу имеет место 100%-ная относительная модуляция эффективной величины $\chi_{\text{эфф}}$. При этом глубина модуляции линейной восприимчивости невелика — показатель преломления меняется при переходе из домена в домен всего на $\delta n \sim 10^{-5}$. В зависимости от условий роста профиль модулирующей функции, определяющей число m отличных от нуля фурье-компонент разложения в ряд

$$\chi_{\text{эфф}}(z) = \sum_m \chi_m(\omega_s = \omega_L - \omega_p) \exp\left[-im \frac{2\pi}{d} z\right] \quad (5)$$

(z — координата, перпендикулярная слоям роста), может изменяться от практически синусоидального ($m = 1$) до меандра. При этом период пространственной модуляции $\chi_{\text{эфф}}(z)$ совпадает с периодом модуляции $\Delta n(z)$, разложение по пространственным гармоникам функции вариации показателя преломления $\Delta n(z) = n(z) - n_0$ (n_0 — средний показатель преломления по всему образцу) имеет такой же вид, как и $\chi_{\text{эфф}}(z)$.

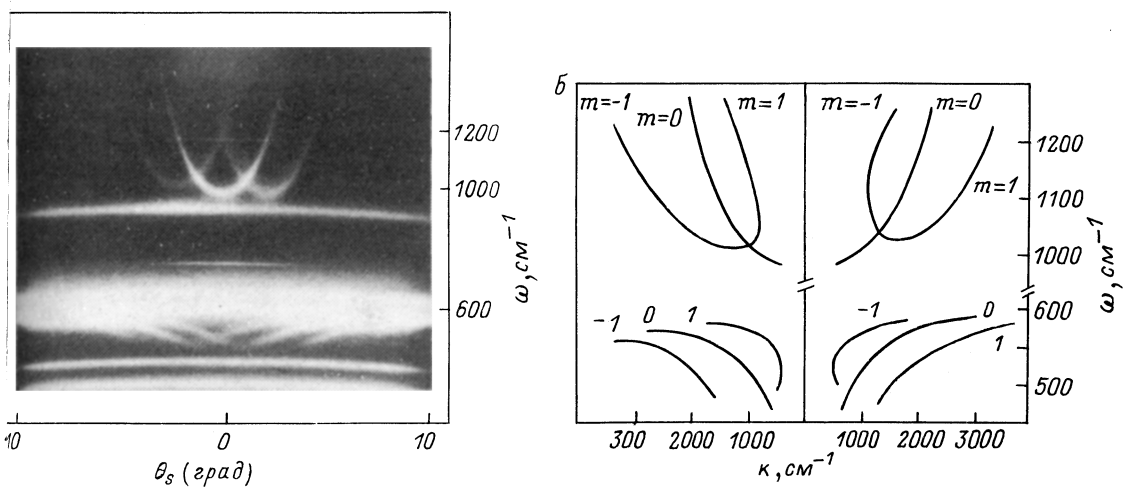


Рис. 2. Частотно-угловой спектр рассеяния на поляритонах (а) и фрагмент закона дисперсии обыкновенных волн (б) в периодически неоднородном кристалле $\text{LiNbO}_3 \cdot \text{Y}$. Период $\alpha = 8$ мкм.

Интенсивность рассеянного света в каждом из брэгговских максимумов определяется амплитудой Фурье-гармоники χ_m , что позволяет по числу максимумов и их величине определить вид $\chi_{\text{эф}}$. Совпадение гармонического состава функций $\chi(z)$ и Δn в исследованных образцах привело к наложению картин линейной и нелинейной дифракции, так что сильный эффект нелинейной дифракции подсвечивает слабый сигнал от линейной дифракции. На рис. 2, а приведен спектр СПР, наблюдающийся в кристалле $\text{LiNbO}_3 \cdot \text{Y}$ в условиях нелинейной дифракции на плоских слоях ростовых неоднородностей. Рассчитанные на основании спектров дисперсионные характеристики для волн обыкновенной поляризации в диапазоне $400\text{—}1200 \text{ см}^{-1}$ приведены на рис. 2, б. Период сверхрешетки, определенный из углового сдвига первого дифракционного максимума, оказался равным 8 мкм.

Для отдельного исследования влияния на СПР линейной дифракции необходимо создать периодическую структуру с малой величиной глубины модуляции квадратичной восприимчивости. С этой целью в однородном монокристаллическом образце кристалла $\text{LiNbO}_3 \cdot \text{MgO}$ возбуждалась стоячая ультразвуковая волна таким образом, чтобы волновой вектор образовавшейся сверхрешетки \mathbf{q}_m был направлен вдоль оптической оси кристалла. Геометрия рассеяния, как и в предыдущем случае, определялась формулой $X(ZY)XZ$ (плоскость треугольника волновых векторов совпадала с плоскостью $[XZ]$ кристалла; ось Z системы координат совпадала с оптической осью кристалла; волна накачки — необыкновенная, сигнальная и поляритонные волны — обыкновенные). Глубина модуляции показателя преломления достигала величины $\delta n/n_0 \sim 10^{-6}$. Глубина модуляции $\delta\chi/\chi$ имела такую же величину и не оказывала заметного влияния на процесс рассеяния. Монохроматичность ультразвуковой волны и, как следствие, синусоидальный характер сверхрешетки приводят к следующему виду условия пространственного синхронизма:

$$\mathbf{k}_L = \mathbf{k}_s + \mathbf{k}_p \pm \mathbf{q}.$$

Таким образом, реализуются условия сворачивания зоны Бриллюэна [5]. К сожалению, малая глубина модуляции позволяет наблюдать эффект только при определенных соотношениях между векторами \mathbf{k}_i и \mathbf{q} . Достаточная для регистрации интенсивность рассеянного света имеется только тогда, когда реализуются условия брэгговской дифракции для волн сигнала и накачки: $|\mathbf{k}_i \pm \mathbf{q}| = |\mathbf{k}_i|$, $i = s, L$.

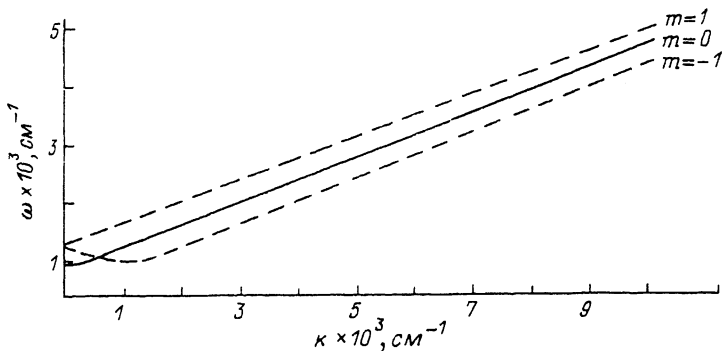


Рис. 3. Участок $\omega-k$ диаграммы кристалла $\text{LiNbO}_3 \cdot \text{MgO}$, со сверхрешеткой, наведенной ультразвуковой волной (вдоль оптической оси Z). Период $a = 18.3$ мкм.

Дифракция накачки реализуется в случае, когда $|k_L \pm q| = |k_L|$. Направление синхронизма смещается на угол $\theta_B^L = \arcsin[|q|/|k_L|]$ относительно направления в однородном образце. В результате в спектре образуются две перестроечные кривые, отвечающие нулевому и первому порядку дифракции накачки. Дифракция сигнала определяется условием $|k_s \pm q| = |k_s|$ и может реализоваться только для ограниченных спектральных участков. Вместе с тем угловые сдвиги направления точного синхронизма совпадают и со сдвигами, связанными с дифракцией поляритонной волны $|k_p \pm q| = |k_p|$. Кроме дифракции поляритонной волны имеют место эффекты сворачивания зоны Бриллюэна, приводящие к появлению состояний с волновыми векторами $|k_p \pm q| \neq |k_p|$. Эти состояния также должны привести к рассеянию в направлениях, удовлетворяющих соотношению (3). Поэтому по новым ветвям рассеяния, какие бы из вышеперечисленных эффектов ни приводили к их появлению, можно определить дисперсию среды со сверхрешеткой в диапазоне частот ω_p . На рис. 3 показан участок $\omega-k$ диаграммы кристалла со сверхрешеткой, имеющей характерный период $d = 18.3$ мкм. Энергетические щели и соответствующие поправки к частотам вблизи краев минизон Бриллюэна сверхрешетки, пропорциональные амплитудам возмущения, в данной реализации были малы ($\delta\omega \approx 10^{-2} - 10^{-3} \text{ см}^{-1}$) и при собственных спектральных ширинах поляритонов $\Delta\omega \approx 10 \text{ см}^{-1}$ не проявлялись.

Примером среды с элементами хаоса в распределении слоистых неоднородностей по объему является полидоменный образец кристалла дигидрофосфата калия в сегнетоэлектрической фазе ($T_c = 123 \text{ K}$). При переходе в сегнетоэлектрическую фазу кристалл понижает группу симметрии с $42m$ до $mm2$ и становится оптически двуосным. Возникает система доменов, вид которой существенно зависит от условий фазового перехода. При переводе через точку Кюри механически свободного и электрически незамкнутого образца возникает система доменов, представляющих собой тонкие плоские слои (разброс толщин в пределах от 1 до 20 мкм), стенки которых с равной вероятностью ориентированы либо в плоскости $[XZ]$ (домены «X»), либо в плоскости $[YZ]$ (домены «Y») кристаллофизической системы координат тетрагональной фазы. В объеме образца образуется набор блоков, каждый из которых состоит из доменов одного типа. Размер блоков и их расположение по образцу носят случайный характер. Ромбические оси X' и Y' развернуты относительно осей X и Y на угол 45° . Плоскости $X'Y'$ и $X'Y$ совпадают. Полярная ось Z' ромбической фазы совпадает по направлению с оптической осью Z тетрагональной фазы. Домены «X» и «Y» отличаются друг от друга направлением спонтанной поляризации, что определяет наличие оптической границы между

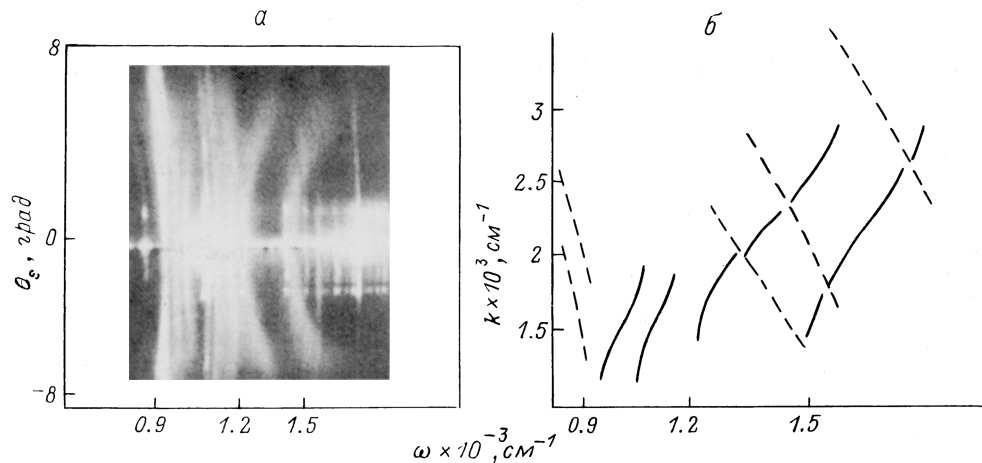


Рис. 4. Частотно-угловой спектр рассеяния на поляритонах в полидоменном кристалле K_2HPO_4 ($T = 100 \text{ K}$) (а) и рассчитанный закон дисперсии новых мод (пунктир) (б).

ними. Толщина доменных стенок по порядку величины достигает нескольких десятков ангстрем, так что функция, описывающая пространственное изменение оптических свойств, имеет вид меандра.

Свет, распространяющийся в образце по направлению оси X (либо оси Y), встречает на своем пути слои, плоскости которых либо перпендикулярны, либо параллельны направлению его распространения. Симметрия френелевского эллипсоида в дигидрофосфате калия такова, что для потока излучения, волновой вектор которого параллелен одной из тетрагональных осей, изменения оптических параметров при переходе из домена в домен нет. Однако уже небольшое отклонение от указанных направлений приводит к появлению скачка оптических характеристик на доменных границах. При этом сразу возникает достаточно непростая ситуация прохождения света через границу двух анизотропных сред с по-разному ориентированными главными осями френелевского эллипсоида. Наличие слоистой структуры, состоящей из последовательности таких границ, еще более усложняет задачу распространения света в среде и требует специальных исследований, выходящих за рамки данной работы.

В рассматриваемом случае внимание обращается только на тот факт, что наличие слоистой структуры с характерными размерами слоев, сравнимыми с размерами областей локализации элементарных возбуждений — поляритонов, приводит к возникновению новых (по отношению к объемно однородным образцам) собственных состояний в системе электромагнитное поле—вещество [6]. Кроме того, регулярная слоистость вносит дополнительную периодичность, что приводит к изменению строения зон Бриллюэна и, как следствие, к изменению колебательного спектра.

На рис. 4, а приведен участок спектра СПР полидоменного образца KDP, полученный в геометрии рассеяния $X(ZY)XZ$. Волновой вектор накачки направляется вдоль оси X (или Y), треугольник волновых векторов лежал в плоскости XZ (или YZ), накачка поляризована вдоль полярной оси Z , вектор поляризации сигнала лежал в плоскости XY . Сравнение приведенного спектра полидоменного образца со спектром монодоменного позволяет сделать следующие выводы. В спектре полидоменного образца появились новые моды, характеризующиеся аномальным ходом дисперсии. Частоты этих мод не совпадают с собственными частотами фундаментальных колебаний однородного образца. Частоты и интенсивность новых мод существенно зависят от конкретного вида доменной

структуры, что позволяет предполагать их непосредственную связь с доменной сверхрешеткой. Новые состояния могут быть интерференционного, волноводного типа или иметь характер поверхностных возбуждений, распространяющихся вдоль междоменных границ, волн Брюстера, локализованных на доменных стенках [7]. Однако дать точное определение типа наблюдаемых мод по имеющимся в настоящее время данным не представляется возможным. Тем не менее на основе синхронного характера рассеяния света на поляритонах с помощью описанной выше методики можно определить закон дисперсии новых мод. Результат приведен на рис. 4, б.

Отметим, что появление инвертированных по интенсивности линий (темные полосы на спектре) может быть связано с реализацией условий анизотропной дифракции обыкновенно поляризованного сигнального излучения. Возможность проявления анизотропной дифракции в полидоменном кристалле KDP рассматривалась в [8], где воздействие полидоменной структуры на проходящий свет сравнивалось с воздействием веерных фильтров Шольца.

Еще одним существенным отличием спектра полидоменного кристалла KDP от спектра монодоменного образца является значительно (во много раз) возросшая интенсивность рассеяния на колебании частоты 915 см^{-1} . В принципе в однородном кристалле имеется колебание A_1 типа с частотой 915 см^{-1} , однако в рассматриваемой геометрии рассеяния оно появляться не должно. Для объяснения подобного проявления колебания A_1 типа также можно привлечь эффект анизотропной дифракции. Однако существенное отличие частотно-углового хода линии рассеяния на этом колебании от частотно-углового хода, определяемого анизотропной дифракцией сигнальных волн на доменной структуре с характерными размерами доменов в пределах от 1 до 20 мкм, не позволяет интерпретировать спектр таким образом. Обратный ход частотно-угловой линии рассеяния, характерное «антипересечение» с линиями рассеяния на новых модах свидетельствуют о нарушении симметрии самого колебания A_1 (915 см^{-1}), вызванном полидоменной структурой.

Анализ различных эффектов, происходящих при СПР света в слоисто неоднородных регулярных и квазирегулярных кристаллах, позволяет сделать следующие выводы. Линейная и нелинейная дифракция волн, участвующих в параметрическом процессе рассеяния света, не маскируют картины рассеяния на новых колебательных состояниях неоднородной среды, связанных с появлением сверхрешетки. Наоборот, как правило, эти эффекты увеличивают интенсивность рассеяния на новых поляритонах, рождающихся в результате сворачивания зоны Бриллюэна. Наиболее эффективным методом выявления закона дисперсии новых мод является организация нелинейной дифракции за счет глубокой модуляции квадратичной восприимчивости с тем же периодом и гармоническим составом модулирующей функции, что и у пространственной модуляции линейной восприимчивости кристалла в ИК-диапазоне частот. Тогда даже в случае сложной пространственной картины распределения неоднородностей можно, не прибегая к анализу геометрии сверхрешетки, экспериментально определить дисперсию новых поляритонных мод объемного типа по частотно-угловому ходу смещенных перестроенных кривых.

Список литературы

- [1] Клышко Д. Н. Фотон и нелинейная оптика. М., 1980. 256 с.
- [2] Клышко Д. Н. // ЖЭТФ. 1968. Т. 55. № 3. С. 1006—1013.
- [3] Александровский А. Л., Маскаев Ю. А., Наумова И. И. // ФТТ. 1975. Т. 17. № 11. С. 3192—3201.
- [4] Александровский А. Л., Китаева Г. Х., Кулик С. П., Пенин А. Н. // ЖЭТФ. 1986. Т. 90. № 3. С. 1055—1061.
- [5] Tsu R., Sudhanshu S. Jha. // Appl. Phys. Lett. 1972. V. 20. N 1. P. 16—18.
- [6] Китаева Г. Х., Кулик С. П., Пенин А. Н. // ФТТ. 1987. Т. 29. № 2. С. 3489—3492.

- [7] Kliever K. L., Fuchs R. // Phys. Rev. 1966. V. 144. P. 495—503; Китаева Г. Х., Кулик С. П., Пенин А. Н. // ФТТ. 1989. Т. 31. № 11. С. 116—123; Агранович В. М., Гинзбург В. Л. Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теория экситонов. М.: Наука, 1965. 374 с.
- [8] Hill R. M., Hermann G. F., Ichiki S. K. // J. Appl. Phys. 1965. V. 36. N 11. P. 3672—3677.

Московский государственный университет
им. М. В. Ломоносова

Поступило в Редакцию
17 июня 1992 г.

