

МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ  
им. ЛОМОНОСОВА М.В.

---

ФИЗИЧЕСКИЙ ФАКУЛЬТЕТ  
КАФЕДРА КВАНТОВОЙ ЭЛЕКТРОНИКИ

МЕТОДИЧЕСКАЯ РАЗРАБОТКА  
по специальному физическому практикуму  
"Лазерная спектроскопия"  
к задаче  
**"Параметрическое рассеяние света"**

Составители: А.Н.Пенин, С.П.Кулик, К.А.Кузнецов

Москва, 2011 г.

# Часть 1. Параметрическое рассеяние света

## Теоретическое введение

### 1. Параметрическое рассеяние света

Параметрическое рассеяние света - процесс неупругого взаимодействия электромагнитного излучения с веществом, в результате которого происходит распад фотонов монохроматического излучения с частотой  $\omega_l$  и волновым вектором  $\vec{k}_l$  на пары фотонов с частотами  $\omega_s$  и  $\omega_p$  и волновыми векторами  $\vec{k}_s$  и  $\vec{k}_p$ . Излучение в моде  $(\omega_s, \vec{k}_s)$  принято называть сигнальным, а в моде  $(\omega_p, \vec{k}_p)$  - холостым или поляритонным [1].

Рассеянное (сигнальное и поляритонное) излучение возникает в результате одновременного воздействия на среду, восприимчивость которой имеет квадратичную по электрическому полю часть, интенсивного монохроматического излучения (накачки) с высокой спектральной плотностью энергетической яркости - лазерного излучения, а также квантовых и тепловых шумов (квантовых и тепловых флуктуаций электромагнитного поля).

В процессе рассеяния удовлетворяются законы сохранения энергии и импульса, приводящие к необходимому выполнению условий частотного и пространственного синхронизма:

$$\omega_s + \omega_p = \omega_l \quad (1.1)$$

$$\vec{k}_s + \vec{k}_p = \vec{k}_l \quad (1.2)$$

Необходимость выполнения условий (1.1) и (1.2) приводит к однозначной связи распределения интенсивности рассеянного излучения в пространстве и по частоте с дисперсионными характеристиками рассеивающей среды. Так как кроме условий синхронизма на частоты рассеянных волн никаких дополнительных требований не накладывается, спектр рассеянного излучения может занимать весь спектральный диапазон от частоты накачки  $\omega_l$  до, практически, нуля, если дисперсия рассеивающей среды обеспечивает выполнение условия (1.2).

Сложный вид дисперсионных характеристик среды, (т.е. зависимостей показателей преломления  $n(\omega)$  и поглощения  $\alpha(\omega)$ , квадратичной восприимчивости  $\chi$ , как от частот, так и от поляризаций накачки, сигнальной и холостой волн) ведет к образованию на выходе из рассеивающей среды пространственно-частотного спектра ПР.

Принято различать два крайних случая параметрического рассеяния света - спонтанное параметрическое рассеяние света (СПР) и рассеяние света на поляритонах (РСП).

Спонтанное параметрическое рассеяние света - это процесс рассеяния света на свете, процесс рассеяния на квантовых флуктуациях электромагнитного поля. При этом частоты всех трех волн, участвующих в процессе -  $\omega_l$ ,  $\omega_s$ ,  $\omega_p$  - попадают в полосу прозрачности среды. Роль среды состоит в перемешивании за счет нелинейной восприимчивости разночастотных мод электромагнитного поля.

Рассеяние света на поляритонах - это процесс рассеяния на собственных состояниях среды - квазичастицах, имеющих сложную электромеханическую природу.

В принципе, фотон, вошедший в среду, уже перестаёт быть истинно фотоном. Распространяясь в среде, он "тянет" за собой волну поляризации. В результате взаимодействия со средой скорость фотона уменьшается. Замедление это тем больше, чем сильнее фотон связан со средой, т.е. чем ближе частота света к частотам собственных колебаний вещества.

Величина связи фотона со средой в большой степени определяется соотношением между энергией фотона и соответствующих резонансных уровней среды (как электронных, так и колебательных состояний кристаллической решетки). Если частоты накачки, сигнальной и холостой волн попадают в полосу прозрачности, связь их со средой мала. Энергия возбуждений, распространяющихся в среде носит преимущественно электромагнитный характер и имеет место спонтанное параметрическое рассеяние света.

По мере уменьшения величины  $\omega_p$  (при этом, согласно (1), частота  $\omega_s$  приближается к  $\omega_l$  и остается в полосе прозрачности) и её приближения к частотам собственных колебаний кристаллической решётки - оптических фононов, связь фотона со средой растет. При этом вместо почти свободного фотона образуется новое элементарное возбуждение - поляритон, энергия которого носит уже смешанный электромеханический характер. Причем, чем ближе частота поляритона к частоте оптического фонона, тем большую часть его энергии составляет вклад механических колебаний и тем меньше становится скорость распространения (групповая скорость), уменьшающаяся до нуля при точном совпадении частоты поляритона с резонансной частотой оптического фонона.

Яркость шумового поля (или число фотонов приходящихся на одну моду поля) определяется равновесным планковским полем среды, квантовыми вакуумными флуктуациями электромагнитного поля, а также

излучением окружающих нагретых тел. Благодаря нелинейно-оптическим свойствам среды возникают биения флуктуационного поля с полем накачки, появляется поляризация среды на частоте биений, на этой частоте (частоте сигнального поля) среда переизлучает электромагнитное поле.

Теоретически СПР можно описывать, используя теорию возмущений. Поскольку СПР – трехфотонный процесс, то он должен описываться в третьем порядке теории возмущений. Пусть среда представляет собой кристалл, состоящий из регулярно расположенных невзаимодействующих молекул и применимо дипольное приближение. Пусть также начальное и конечное состояние всех молекул в результате переходов остается тем же самым -  $|a\rangle_j$  (такие процессы, при которых вещество возвращается в исходное состояние, а меняется лишь поле - называют *параметрическими*). Начальное состояние системы “кристалл + поле”:  $|i\rangle = |aN_s N_p N_l\rangle = |a\rangle|i'\rangle$ , молекулы находятся в исходном состоянии, а в поле имеется  $N_s$ ,  $N_p$  и  $N_l$  фотонов в модах  $s$ ,  $l$  и  $p$ . Конечное состояние запишем в виде:  $|f\rangle = |a, N_s + 1, N_p + 1, N_l - 1\rangle = |a\rangle|f'\rangle$ ; в модах  $s$  и  $p$  добавилось по одному фотону и на один фотон стало меньше в моде  $l$ . Воспользовавшись *золотым правилом Ферми*, в третьем порядке теории возмущений можно получить следующее выражение для скорости переходов в единицу времени (скорости рождения бифотонов):

$$W_{fi} = \frac{2\pi}{\hbar} \left| \sum_{v_1 v_2} \frac{\langle f|\hat{V}'|v_2\rangle \langle v_2|\hat{V}'|v_1\rangle \langle v_1|\hat{V}'|i\rangle}{(E_i - E_{v_2})(E_i - E_{v_1})} \right|^2 \delta(E_f - E_i) \quad (1.3)$$

Если ввести феноменологическую квадратичную восприимчивость и вместо возмущения  $\hat{V}' = -\hat{d} \cdot \hat{E}$  ( $\hat{d}$  – дипольный момент) использовать эффективную энергию вида  $V'' = -\beta : E^3$  ( $\beta$  – квадратичная поляризуемость), то СПР можно описать и в первом порядке теории возмущений. Следуя [1], феноменологический гамильтониан можно представить в виде:

$$\hat{H} = - \int_V d^3 r \chi_{eff}^{(2)} E_l^{(+)}(r,t) \hat{E}_s^{(-)}(r,t) \hat{E}_p^{(-)}(r,t) + \text{э.с.} \quad (1.4)$$

где  $E_l$  – классическое поле накачки,  $\hat{E}_s$  и  $\hat{E}_p$  - операторы полей сигнальной и холостой волн,  $\chi_{eff}^{(2)}$  - свертка тензора квадратичной восприимчивости с ортами поляризаций волн,  $V$  – объем взаимодействия. Индексами (+) и (-) обозначены, соответственно, положительно и отрицательно частотные части полей. Волновая функция сигнального поля в первом порядке теории возмущений выглядит следующим образом:

$$|\psi\rangle = |0\rangle - \left\{ \frac{i}{\hbar} \int_0^t dt' \hat{H}(t') \right\} |0\rangle \equiv |0\rangle + \sum_{\mathbf{k}_p, \mathbf{k}_s} F(\mathbf{k}_p, \mathbf{k}_s) |1\rangle_p |1\rangle_s \quad (1.5)$$

где  $|1\rangle_p |1\rangle_s$  - двухфотонное энергетическое состояние. Функцию  $F(\mathbf{k}_p, \mathbf{k}_s)$  часто называют *амплитудой бифотона*, этот термин широко используется в квантовой оптике. Число фотонов  $N$  в моде рассеянного поля с частотой  $\omega$  и волновым вектором  $\vec{k}_s$  может быть найдено усреднением оператора числа фотонов  $\hat{N}_s = a_s^+ a_s$ . Помимо квантовых флуктуаций следует также учесть и тепловые (планковские), а также фотоны от возможных внешних источников. Тогда на выходе из рассеивающей среды длиной  $L$  для числа фотонов в моде  $s$  можно получить следующее выражение:

$$N_s = G_s \left[ N_p^0 + N(\omega, T) \right] \quad (1.6)$$

В этом соотношении использованы следующие параметры:

1. Коэффициент параметрического преобразования

$$G_s = 4\pi^2 \omega_l \omega_s c^{-2} \left| \hat{\chi}^{(2)}(\omega_s = \omega_l - \omega_p) \right|^2 \left| \vec{E}_l \right|^2 L^2,$$

учитывающий :

нелинейно-оптические свойства среды, (через тензор квадратичной восприимчивости  $\hat{\chi}^{(2)}$ );

её размеры, ( $L$  - длина рассеивающей среды по направлению  $\vec{k}_l$ );

интенсивность накачки, ( $\vec{E}_l$  - поле накачки).

2.  $N_p^0 + N(\omega, T)$  - число фотонов в моде поля с частотой  $\omega_p$  и волновым вектором  $\vec{k}_p$ . Предполагается при этом, что фотонов в сигнальной моде поля  $(\omega_s, \vec{k}_s)$  на входе в среду нет.  $N_p^0$  - число фотонов излучения, попадающего на рассеивающую среду со стороны каких-либо внешних источников.

$$N(\omega, T) = \frac{1}{e^{\hbar\omega/kT} - 1} + 1 \quad (1.7)$$

- число флуктуационных (т.е. шумовых) фотонов, создаваемых в точке пространства, занимаемой рассеивающей средой внешними излучателями (рассматривается состояние равновесия рассеивающей среды с окружающим пространством) и самой средой.

Величина  $N_T(\omega, T) \equiv (e^{\hbar\omega/kT} - 1)^{-1}$  входит в формулу Планка, определяющую плотность электромагнитного излучения в выделенной точке пространства в частотном интервале  $d\omega$  на частоте  $\omega$ :

$$\rho(\omega)\delta\omega = \hbar\omega \frac{\omega^2}{\pi^2 c^3} \delta\omega N_T(\omega, T) \quad (1.8)$$

Согласно (1.6) и (1.7) электромагнитное излучение в рассматриваемой точке создается тепловыми и квантовыми флуктуациями поля. Тепловые флуктуации, величина которых определяется температурой окружающего пространства (стены, элементы установок и т.д.) и рассеивающей среды описываются в (1.7) слагаемым  $(e^{\hbar\omega/kT} - 1)^{-1}$ .

Квантовые флуктуации не зависят от температуры и частоты и их действие описывается вторым слагаемым в (1.7) - единицей - *величиной постоянной и абсолютной*.

Отметим, что яркость квантовых флуктуаций значительно превосходит яркость обычных тепловых источников излучения. Так, на частоте  $10000 \text{ см}^{-1}$  (длина волны  $1 \text{ мкм}$ ) тепловой источник - абсолютно черное тело - имеет яркость в 1 фотон на моду поля при температуре  $10000 \text{ К}$ , а на длине волны  $0.5 \text{ мкм}$  (середина видимого диапазона) для обеспечения такой яркости его температура должна быть  $40000 \text{ К}$ . Сравниваются яркости квантовых и тепловых флуктуаций при комнатной температуре только на длине волны  $70 \text{ мкм}$ , т.е. в далёкой инфракрасной области.

Таким образом, даже при отсутствии "затравочного" излучения от внешних источников на входе в рассеивающую среду ( $N_p^0 = 0$ ) на выходе появится рассеянное излучение на частоте  $\omega_s$  из-за наличия шумового поля, как тепловой, так и квантовой природы на частоте  $\omega_p$ .

При СПР, когда среда прозрачна на всех трех частотах ( $\omega_p$ ,  $\omega_s$  и  $\omega_l$ ), собственное шумовое излучение среды не оказывает влияния на интенсивность рассеянного излучения. Кроме того, можно пренебречь и влиянием тепловых флуктуаций окружающего пространства, так как частота  $\omega_p$  при СПР лежит обычно в диапазоне от  $\omega_l/2$  до  $2000 \text{ см}^{-1}$  (длина волны  $5 \text{ мкм}$ ). Тогда число фотонов  $N_s$  в моде сигнального поля на выходе из среды будет равно  $G_s$ .

## 2. Пространственно-частотный спектр ПР

В реальных экспериментах приходится иметь дело не с одной модой поля, а с набором мод с определенной спектральной и пространственной шириной. Переход от числа фотонов в моде к мощности рассеянного излучения на частоте  $\omega_s$  в единичный спектральный  $d\omega_s$  и угловой  $d\theta_s$  интервалы в направлении  $\vec{k}_s / |\vec{k}_s|$  приводит к выражению:

$$P_{\omega\Omega} = \frac{2\pi\hbar\omega_s^4\omega_p n_s |\chi_{eff}^{(2)}|^2 P_1 L}{c^5 n_p n_l |\cos\theta_p|} g(x) \quad (1.9)$$

$P_1$  – мощность накачки. Форм-фактор  $g(x)$  описывает пространственное распределение интенсивности сигнального излучения и характерен для параметрических процессов:

$$g(x) = \left( \frac{\sin(x/2)}{x/2} \right)^2 \quad (1.10)$$

где  $x \equiv \Delta k \cdot L$ ,  $\Delta k = |\mathbf{k}_p - \mathbf{k}_s| - k_l$  - расстройка волнового синхронизма.

В случае диссипации энергии средой на частоте холостой волны квантование полей значительно усложняется. Расчет формы линии в этом случае можно проводить с использованием флуктуационно-диссипационной теоремы (ФДТ). Вместо форм-фактора  $g(x)$  в выражении (1.9) будет фигурировать функция  $g(x,y)$ :

$$g(x,y) = \frac{2y}{x^2 + y^2} \quad (1.11)$$

где  $y \equiv \frac{\alpha(\omega_i) \cdot L}{2|\cos\theta_p|}$ ,  $\alpha(\omega_p) \approx \frac{\omega_i \cdot \varepsilon(\omega_p)''}{c\sqrt{\varepsilon(\omega_p)'}}$ ,  $\theta_p$  - угол между волновыми векторами

накачки и холостой волны,  $\varepsilon(\omega)$  - диэлектрическая проницаемость,  $\alpha(\omega)$  - коэффициент поглощения. Поглощение на холостой частоте приводит к лоренцевой форме линии в отличие от  $\text{sinc}^2$ .

Как следует из (1.9)-(1.11) частотно-пространственное распределение интенсивности рассеяния зависит от таких параметров рассеивающей среды, как показатели преломления ( $n$ ), поглощения ( $\alpha$ ), квадратичной восприимчивости ( $\chi_{eff}^{(2)}$ ). Следовательно, исследуя частотно-пространственный спектр ПР, можно определять все перечисленные параметры среды. Заметим, что при переходе от спонтанного параметрического рассеяния к рассеянию света на поляритонах на вид спектра ПР начинают оказывать влияние оптические фононы. Появляется

возможность определять такие важные их параметры как резонансные частоты, константы затухания, резонансный вклад колебаний в линейную (силу осциллятора и дипольный момент), квадратичную и кубичную (рамановскую) восприимчивости.

### **Показатель преломления.**

При изучении спектров ПР обычно реализуется ситуация, когда частоты  $\omega_l$  и  $\omega_s$  попадают в полосу прозрачности исследуемого кристалла в середине видимого диапазона. Поэтому величины  $n_l$  и  $n_s$  могут быть измерены с высокой точностью традиционными методами. Отсюда следует возможность определения по спектру ПР величины  $n_p$  на частоте поляритонной волны  $\omega_p$ , которая может попасть и в инфракрасную область спектра. В том числе и в частотную область, занимаемую оптическими фононами и характеризуемую большим поглощением, что затрудняет, а часто делает невозможными прямые измерения. Не говоря уже о том, что измерения в ИК диапазоне в пределах 10-200 мкм - крайне сложная процедура.

Измерение  $n_p$  по спектрам ПР основано на следующем их свойстве. Как следует из (1.9) и (1.10), максимум интенсивности рассеяния на частоте  $\omega_s$  ( $\omega_s$  - частота, параметрически связанная условием (1.1) с частотой  $\omega_p$ , на которой проводится измерение) имеет место при равенстве нулю волновой расстройки  $\Delta k$ . Отсюда, с учетом (1.1) и теоремы косинусов, следует:

$$n_p = \frac{\vec{k}_p}{\omega_p} = \frac{1}{\omega_p} \sqrt{(n_l \omega_l)^2 + (n_s \omega_s)^2 - 2n_s n_l \omega_s \omega_l \cos \theta_s} \quad (1.12)$$

( $\theta_s$  - угол между  $\vec{k}_s$  и  $\vec{k}_l$ , определяемый по спектру). Линия в спектре ПР в координатах  $\omega_p$ ,  $\theta_s$ , соединяющая точки максимумов интенсивности рассеяния на разных частотах  $\omega_p$ , определенных по (8), называется перестроечной кривой. Определив показатели преломления  $n_s(\omega_s)$  на всех частотах перестроечной кривой, можно определить и дисперсию  $n_p(\omega_p)$  и, кроме того, построить дисперсионную кривую кристалла - так называемую  $\omega - \vec{k}$  диаграмму [3,4]. Связь перестроечной кривой с дисперсионной кривой кристалла можно проиллюстрировать следующим образом. На рис. 1 приведена  $\omega - \vec{k}$  диаграмма кристалла с двумя оптическими фононами (резонансные частоты  $\omega_{oi}$ ) [3]. Кривая описывается выражением:

$$\omega_p(k) = k_p \varepsilon^{-1/2}(\omega)$$

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_0 + \sum \frac{S_i}{\omega_{oi}^2 - \omega^2} \quad (1.13)$$



На графике нанесены кривые  $\omega(\vec{k}_p)$ , полученные из условия пространственного синхронизма (1.1) и (1.13). В процессе рассеяния могут участвовать только те волны, частота и волновой вектор которых удовлетворяют одновременно дисперсионной характеристике среды и условию синхронизма (точки пересечения кривых). Параметром в семействе кривых пространственного синхронизма является угол рассеяния  $\theta_s$ . Тогда спектр возможных волн в координатах  $\omega_p - \theta_s$  - перестроечная кривая – будет иметь вид, представленный на Рис.1.1 слева. Таким образом перестроечная кривая спектра ПР представляет собой изображение дисперсионной кривой рассеивающей среды в координатах  $\omega_p - \theta_s$ .

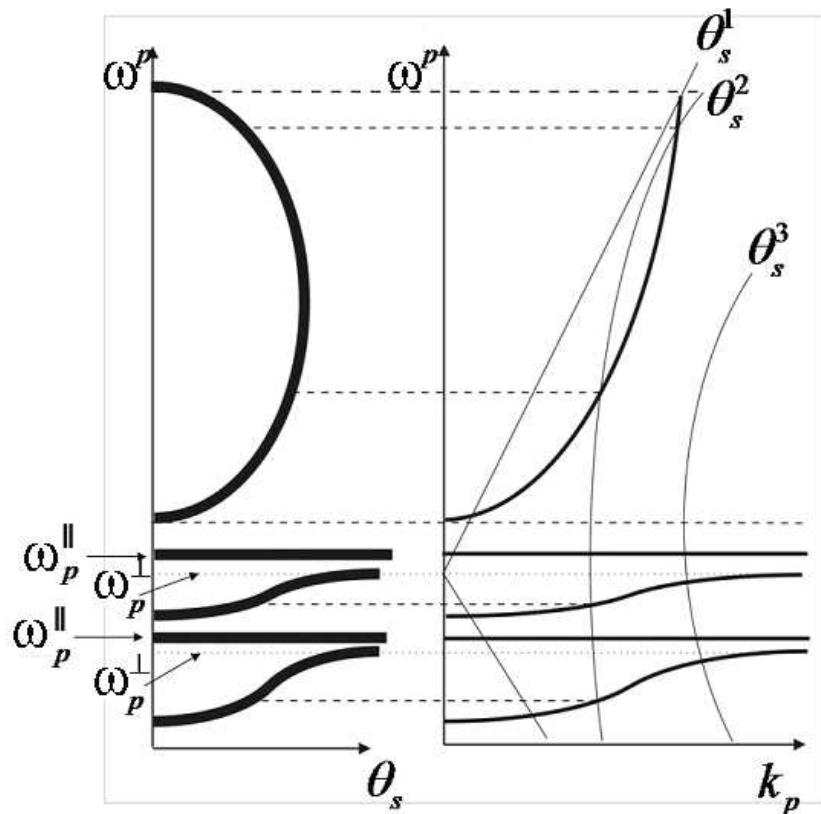


Рис. 1.1. Схема образования перестроечной кривой спектра параметрического рассеяния света при совместном решении уравнения дисперсии среды (1.13) и уравнения, описывающего пространственный синхронизм (1.2).

### Поглощение среды.

Как уже говорилось выше, при исследовании параметрического рассеяния частота накачки и сигнальной волны находятся в диапазоне прозрачности среды. Частота  $\omega_p$  может при этом быть как в полосе прозрачности, так и в области сильного решеточного поглощения.

Поглощение среды на частоте  $\omega_p$  следующим образом сказывается на спектрах ПР.

Коэффициент поглощения  $\alpha_p$  ( $\alpha_l = \alpha_s = 0$ ) входит в формфактор (2.4) через параметр  $y$ .

Если поглощение мало, так что  $y \approx 0$ , (спонтанное параметрическое рассеяние света), то формфактор описывается функцией  $\text{sinc}^2(x/2)$  (Рис.1.2). Расстояние между максимумами функции связано с толщиной кристалла-рассеивателя (см.(1.10)).

По мере увеличения поглощения и роста  $y$  ( $l$  - длина кристалла - остается неизменной) контраст функции падает и при  $y \gg 1$  форм-фактор приобретает вид лоренцевой кривой. Отсюда, измерение полуширины функции (1.11) позволяет определить величину  $\alpha_p$ :

$$\alpha_p = \Delta\theta_s k_l k_s \sqrt{\frac{4\theta_s^2 - (\Delta\theta_s)^2}{4k_p^2 - (\Delta\theta_s)k_l k_s}} \quad (1.14)$$

где  $\Delta\theta_s$  - угловая полуширина перестроечной кривой (угловая ширина функции (1.11)).

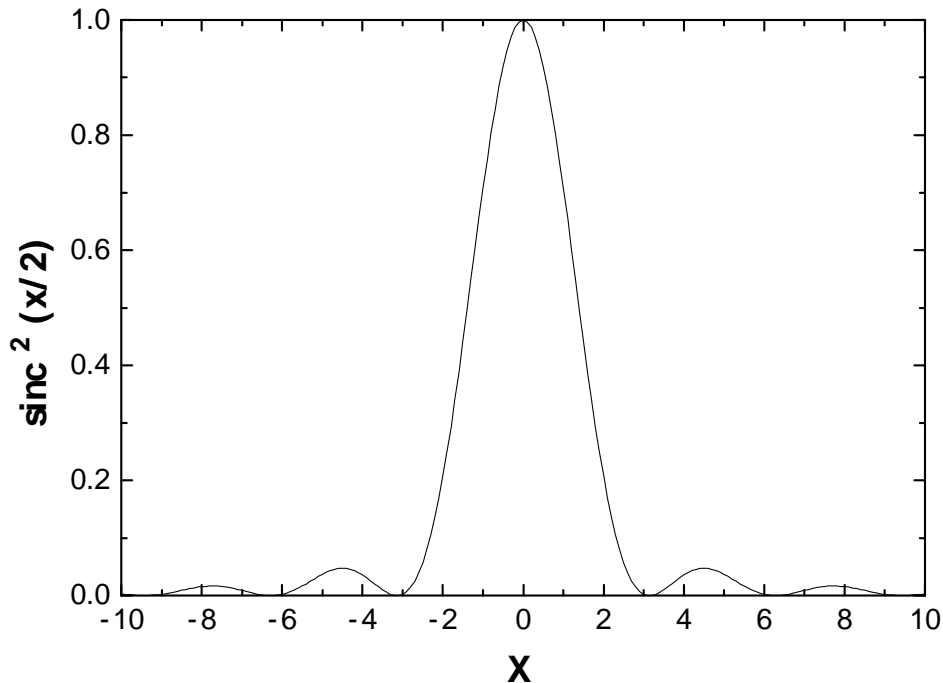


Рис.1.2. Вид функции  $\text{sinc}^2(x/2)$ .

## **Квадратичная восприимчивость**

Дифференциальная мощность сигнального излучения при ПР на выходе из среды описывается выражением (1.9). В это выражение входят линейные оптические параметры среды, частоты, интенсивность накачки и квадратичная восприимчивость среды. В зависимости от геометрии рассеяния интенсивность рассеяния (при прочих равных условиях) определяется ненулевыми компонентами тензора  $\hat{\chi}^{(2)}$  - тензора третьего ранга. Определить величину действующей компоненты  $\chi_{ijk}^{(2)}$  (или комбинации компонент) можно по измерению величины  $I_{\omega\theta}$  на перестроечной кривой. Проведение измерений на разных частотах позволяет определить дисперсию  $\chi_{ijk}^{(2)}$ . Определение абсолютной величины квадратичной восприимчивости требует предварительной калибровки установки.

## **Экспериментальная часть**

### **1. Спектрограф параметрического рассеяния света**

Как следует из материала предыдущей части, информация о рассеивающей среде содержится в характеристиках перестроечной кривой спектра - распределении интенсивности сигнального излучения в координатах  $\omega_p - \theta_s$ . Поэтому встает задача разработки экспериментального метода получения перестроечной кривой спектра ПР. Вследствие сложной картины распределения интенсивности рассеяния в пространстве решение задачи получения перестроечной кривой вызывает ряд серьезных трудностей.

Наиболее простой метод регистрации спектров ПР заключается в том, что в пространстве после кристалла размещается входное отверстие фотоприемника с малой апертурой. Для выделения необходимой частоты на входе приемника располагается, например, интерференционный светофильтр. Однако оказалось что при этом методе регистрации теряется большой объем информации, особенно в области рассеяния на поляритонах. Поэтому в настоящее время используется другой метод - метод скрещенной частотно-угловой дисперсии [5]. Осуществляется он следующим образом.

После рассеивающего кристалла располагается линза (Рис.1.3). Причем таким образом, что передний фокус линзы приблизительно находился внутри рассеивающего объема, а ее оптическая ось совпадала с направлением вектора  $\vec{k}_i$ . Тогда в правой фокальной плоскости линзы образуется набор цветных колец. Кольцо каждого цвета (длины волны) имеет определенный

диаметр. Вследствие непрерывного характера спектра ПР кольца переходят друг в друга по диаметру, сливаются и образуют сплошной фон со смешанным цветом. В фокальную плоскость линзы помещается входная щель спектрографа так, чтобы луч накачки проходил через ее центр; при этом щель определяет ориентацию плоскости треугольника волновых векторов.

Спектрограф строит изображение входной щели в фокальной плоскости камеры, где расположены либо фотопленка, либо фотоприемник. Пространственное положение изображения щели спектрографа (это направление перпендикулярно щели) определяется длиной волны регистрируемого излучения. Таким образом в выходной плоскости спектрографа формируется семейство точек, сливающихся в непрерывную кривую с координатами  $\omega_p - r_s$ , где  $r_s$  - отклонение точки кривой на частоте  $\omega_p$  от оси, задаваемой направлением вектора  $\vec{k}_l$ . Величина  $r_s$  однозначно связана с углом  $\theta_s$  через фокусное расстояние линзы  $r_s = f \times \text{tg} \theta_s$  ( $r_s = f \times \theta_s$  при малых  $\theta_s$ ). Спектр в координатах частота  $\omega_p$  - угол рассеяния  $\theta_s$  носит название перестроечной кривой ПР.

Для согласования углов рассеяния  $\theta_s$  с углами зрения спектрального прибора (спектрографа), как правило, бывает необходимо использовать не одну, а систему из трех линз, взаимное расположение которых приведено на рис 1.3(б).

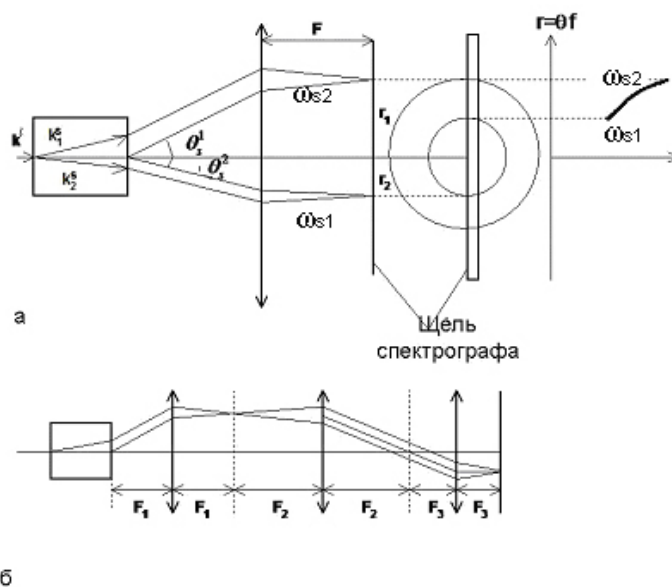


Рис 1.3. Схема построения перестроечной кривой спектра рассеяния со скрещенными дисперсиями: (а) однолинзовая схема; (б) трехлинзовая схема.

Блок-схема спектрографа ПР приведена на рис.1.4. Спектрограф ПР включает в себя источник излучения накачки /1/, элементы системы формирования излучения накачки /2-4,12/, элементы формирования сигнального излучения /6-10/, спектральный прибор и приемную систему /11/.

В качестве источника излучения накачки в задаче используются непрерывный аргоновый лазер (длина волны 488 нм, мощность генерации 900 мВт).

Система формирования излучения накачки включает в себя набор поворотных зеркал, диафрагму, длиннофокусную линзу, поляризатор. Основная задача системы - сформировать на исследуемом образце /5/ пучок поляризованного излучения накачки нужного диаметра, расходимости и отфильтрованного от излучений с другими частотами и направлениями.

Система формирования сигнального излучения имеет своей задачей фильтрацию слабого сигнального излучения от интенсивного рассеянного (упруго) излучения накачки и выделение сигнального излучения нужной поляризации.

В задаче реализован вариант трехлинзовой оптической системы. Конфокальное расположение первой и второй линз обеспечивает эквивалентность данной системы с однолинзовой (для параллельных пучков света).

Частотную селекцию рассеянного излучения обеспечивает спектральный прибор - спектрограф ИСП-51.

Приемная система необходима для регистрации спектров и выдачи информации в цифровой или аналоговой форме.

При исследовании формы перестроечной кривой наиболее информативной является широкополосная приемная система на основе высокочувствительной фотографической пленки. При измерении формы линии перестроечной кривой и интенсивности рассеяния более предпочтительной оказывается узкополосная фотоэлектрическая система приема. Фотоэлектрическая система, как правило, включает в себя световод и фотоэлектронный умножитель (ФЭУ), схему электрической обработки, системы сканирования полосы пропускания спектрографа ПР по углу и частоте и двухкоординатный регистрирующий прибор.

Наиболее оптимальной и современной является фотоэлектрическая схема с параллельным накоплением информации - так называемые многоканальные оптические анализаторы на базе фотодиодных линеек или матриц.

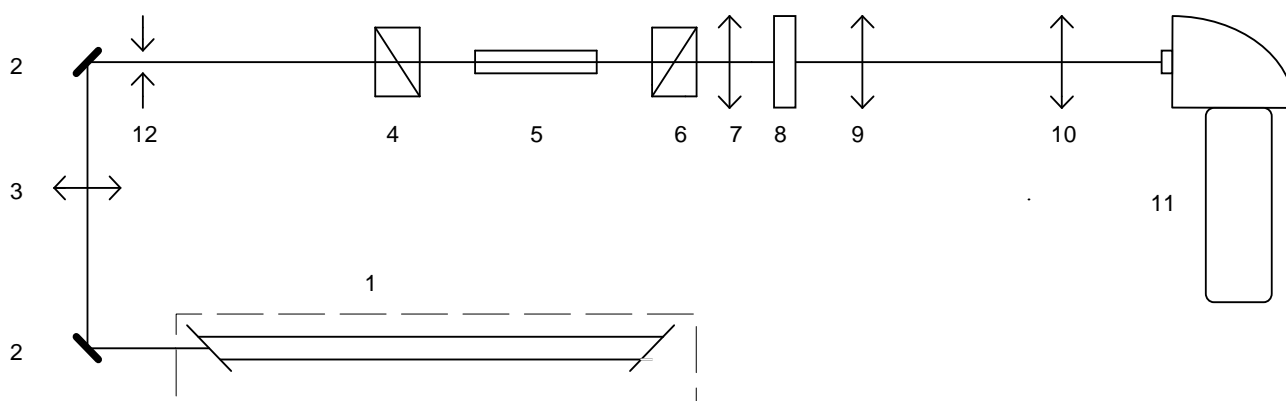


Рис. 1.4 Экспериментальная установка для наблюдения и регистрации спектров СПР.

1 - лазер, 2 - поворотные зеркала, 3 - длиннофокусная линза, 4 - поляризатор, 5 - исследуемый кристалл, 6 - анализатор, 7, 9, 10 - оптическая система линз, 8 - светофильтр, 11 - спектрограф ИСП-51, 12 - диафрагма.

### Исследуемый объект

Исследуемыми объектами - кристаллами, спектры СПР которых регистрируются и обрабатываются в задаче, служат одни из наиболее распространенных нелинейно-оптических кристаллов: йодат лития и ниобат лития. В качестве факультативного задания, могут быть выданы двуосные кристаллы формиата лития ( $\text{LiCOOH} \cdot \text{H}_2\text{O}$ ) и йодноватой кислоты ( $\alpha\text{-HIO}_3$ ).

а.) Ниобат лития. Химическая формула  $\text{LiNbO}_3$  - пьезоэлектрический кристалл тригональной системы, относящийся к классу симметрии  $3m$ . Основные элементы симметрии этой группы: ось вращения третьего порядка и три плоскости зеркальной симметрии, содержащие ось вращения и развернутые под углом  $120^\circ$  друг к другу [7]. Кристалл оптически одноосный со значительным двулучепреломлением [8]. Для предотвращения эффекта “оптического повреждения” используется образец с примесью  $\text{MgO}$ .

Нелинейные оптические свойства кристалла описываются тензором квадратичной восприимчивости  $\hat{\chi}^{(2)}$  имеющие вид [7]:

$$\hat{\chi}^{(2)} \equiv \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{xxz} & \chi_{xxy} \\ \chi_{yxx} & \chi_{yyy} & 0 & \chi_{yyz} & 0 & 0 \\ \chi_{zxx} & \chi_{zyy} & \chi_{zzz} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

Оси координат  $x$ ,  $y$ ,  $z$  образуют прямоугольную систему, связанную с элементами симметрии кристаллической решетки следующим образом [7]: ось  $z$  совпадает с осью третьего порядка и с оптической осью кристалла, ось  $x$  лежит в плоскости зеркальной симметрии, ось  $y$  перпендикулярна плоскости зеркальной симметрии.

Условие (1) и вид тензора  $\hat{\chi}^{(2)}$  определяют геометрию наблюдения рассеяния.

Условие пространственного синхронизма может быть выполнено или за счет анизотропии достаточной величины (вне резонансной области спектра собственных колебаний кристаллической решетки) или же за счет аномальной дисперсии в резонансной части спектра (при рассеянии на поляритонах).

В кристалле  $LiNbO_3$  при частоте излучения накачки  $20000 \text{ см}^{-1}$  (длина волны  $\lambda \approx 0.5 \text{ мкм}$ ) условие пространственного синхронизма может быть выполнено в широком диапазоне тогда, когда волна накачки является необыкновенной (вектор поляризации лежит в плоскости, содержащей ось  $z$ ), а сигнальная и поляритонная волны - обыкновенные (вектора поляризации  $\vec{e}_s$  и  $\vec{e}_p$  лежат в плоскости, перпендикулярной  $z$ ).

Таким образом, плоскость треугольника волновых векторов (или треугольник синхронизма) должна быть перпендикулярна плоскости  $[xOy]$  и содержать в себе ось  $z$  (плоскость треугольника синхронизма при наблюдении задается входной щелью спектрографа). При этом интенсивность рассеяния будет определяться компонентами  $\chi_{xxz}$  и  $\chi_{yyz}$  тензора  $\hat{\chi}^{(2)}$ . Ясно также, что хотя двулучепреломление кристалла позволяет выполнить условие синхронизма и для необыкновенной поляритонной волны, отсутствие неравных нулю компонент  $\chi_{zxy}$ ,  $\chi_{zyx}$  не позволяет наблюдать рассеяние в этой геометрии.

б.) Йодат лития. Химическая формула  $LiIO_3$  - пьезоэлектрический кристалл гексагональной системы, относящийся к классу симметрии 6. Нелинейно-оптические свойства кристалла описываются тензором квадратичной восприимчивости  $\hat{\chi}$  имеющие вид:

$$\hat{\chi} \equiv \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{xxz} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \chi_{yyz} & \chi_{yzx} & 0 \\ \chi_{zxx} & \chi_{zyy} & \chi_{zzz} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

Исследуемый в задаче образец, вырезан таким образом, что оптическая ось кристалла образует угол  $\gamma=52$  град. с нормалью к входной грани. Это должно быть учтено при расчете показателя преломления для необыкновенно поляризованной волны накачки по формуле (1.15) с использованием данных Приложения:

$$n_e(\nu_l) = \frac{n_e n_o}{\sqrt{(n_e \cos(\gamma))^2 + (n_o \sin(\gamma))^2}} \quad (1.15)$$

Как и в кристалле ниобата лития в  $\text{LiIO}_3$  реализуется взаимодействие *ооо*-типа.

### **ЗАДАЧА 1. Параметрическое рассеяние света**

#### **Цели задачи:**

Ознакомиться с одним из фундаментальных явлений нелинейной и квантовой оптики - параметрическим рассеянием света в средах без центра симметрии.

Получить навыки наблюдения параметрического рассеяния света. Ознакомиться с методами регистрации спектров параметрического рассеяния света (спектров ПР).

Получить представление о том, какая информация о рассеивающей среде содержится в спектрах ПР, как связаны характеристики спектров ПР с оптическими и динамическими параметрами рассеивающего объекта. Научиться извлекать необходимую информацию о параметрах рассеивающего объекта из спектров ПР.

#### **Упражнение 1. Визуальное наблюдение спектра ПР.**

##### **1. Включение установки.**

а) Согласно техническому описанию и Инструкции по технике безопасности включить источник накачки - лазер.

***ВНИМАНИЕ!** Лазерное излучение опасно для зрения. Поэтому необходимо строго соблюдать меры предосторожности при работе с лазером. Совершенно недопустимо попадание в глаза не только рассеянного излучения, но и всевозможных бликов от зеркальных и незачерненных поверхностей.*

Во избежание разъюстировки оптической схемы все последующие действия производятся **только в присутствии преподавателя!**



б) Проверить прохождение луча накачки по оптической оси системы. Для этого необходимо развернуть примерно на  $10^\circ$ - $20^\circ$  анализатор /6/ (см. рис.1.4) от положения точного скрещивания с поляризатором /4/ и убрать заграждающий фильтр /8/. При этом луч накачки должен проходить по центрам оптических элементов, попадать на середину щели спектрографа и выходить по середине его кассетной части.

в) Возвратить анализатор в исходное состояние, добившись минимальной интенсивности прошедшего через систему поляризатор-кристалл-анализатор света. Поставить заграждающий светофильтр /8/. Закрывать оптическую систему светозащитным кожухом.

## 2. Наблюдение спектра ПР.

Визуальное наблюдение спектра ПР проводится двумя методами.

Первый метод заключается в следующем. Необходимо расположиться напротив выхода камеры спектрографа примерно на расстоянии 40-60 см. Затем рассматривать выходную плоскость спектрографа, аккомодируя зрение на бесконечность. Основными реперами, по которым необходимо настраивать зрение, являются яркая вертикальная линия сине-зеленого цвета - линия излучения накачки и горизонтальная дорожка разноцветных точек, образованная линиями спонтанного свечения газового разряда. Спектр параметрического рассеяния располагается в области более длинных волн относительно накачки (в “красной области” диапазона пропускания спектрографа). “Эллипс” симметричен относительно горизонтальной дорожки.

Второй метод заключается в рассматривании выходной плоскости спектрографа с помощью линзы. Реперы в этом случае те же, что и в первом.

## 3. Спектрограмма.

Для получения спектрограмм - фотографического изображения спектра ПР на фотопленке - выполняются все операции, описанные в п.2. Затем на выходной кассетной части спектрографа устанавливается кассета со специальным адаптером для фотопленки. В работе используется фотопленка типа РФ-3 или А-29. Необходимо внимательно следить при зарядке пленки в кассету за тем, чтобы эмульсионный слой смотрел в сторону камеры спектрографа.

Используемый в задаче метод проявления специальным проявителем с серноокислым гидразином повышает реальную чувствительность фотопленки до величин порядка 2000-3000 ед. ГОСТ, что требует особой тщательности светоизоляции в процессе работы с пленкой.

Серноокислый гидразин, входящий в состав проявителя, ядовит, что требует повышенной аккуратности при работе и соблюдения всех правил техники безопасности.

#### 4. Обработка спектрограмм.

Обработка спектрограмм включает в себя следующие операции:

1) Определение частотной и угловой дисперсии спектрографа ПР;  
2) Перевод спектра ПР из координат  $\omega_p - r_s$  в прямоугольные координаты  $\omega_p - \theta_s$  - построение перестроечной кривой спектра ПР ( $r_s = \theta_s k$  - смещение точки с максимальной интенсивностью рассеяния на частоте  $\omega_p$  относительно пучка накачки в направлении, перпендикулярном направлению частотной дисперсии с учетом кривизны спектральной линии).

3) Расчет по полученной кривой величины волнового вектора  $\vec{k}_p$  и ее дисперсии во всем диапазоне существования рассеяния при реализованной геометрии эксперимента.

4) Вычисление функции  $\varepsilon'(\omega_p)$  (частотная зависимость действительной части диэлектрической проницаемости) и построение дисперсионной кривой кристалла  $\omega_p(k_p)$  - закона дисперсии.

5) Оценка ошибок измерения.

Рассмотрим порядок выполнения перечисленных выше пунктов задания:

1. Определение частотной и угловой дисперсии спектрографа ПР.

а.) Определение частотной дисперсии спектрографа.

На установке, в которой в качестве спектрального прибора используется спектрограф типа ИСП-51 длина волны сигнального излучения определяется по формуле

$$\lambda(x) = -4 \cdot 10^{-5} \cdot x^3 + 0.013 \cdot x^2 + 0.95 \cdot x + 488$$

где  $x$  - расстояние в миллиметрах по пленке, отсчитанное от линии накачки ( $\lambda_0 = 488$  нм).

Затем дисперсионная кривая переводится в перестроечную кривую согласно выражению

$$\omega_p(x) = \frac{1}{\lambda_L} - \frac{1}{\lambda_S(x)}$$

и все последующие измерения проводятся в единицах частоты - обратных сантиметрах. В качестве переменной величины используется частота поляритонной ветви  $\omega_p$ .

б.) Определение угловой дисперсии спектрографа ПР.

Определение угловой дисперсии спектрографа ПР можно провести путем простого расчета связи величины смещения  $r$  от оси, положение

которой задается лучом накачки  $\vec{k}_p$  с углом рассеяния  $\theta_p$  через известные параметры оптической системы спектрографа ПР (фокусные расстояния линз, коллиматора и камеры спектрографа).

Более точное определение можно провести экспериментально, используя тот факт, что излучение монохроматической волны (распространяющейся в широком пространственном угле), прошедшее через эталон Фабри-Перо, приобретает вид круговых конусов. Угол расхождения конусов определяется порядком интерференции и легко рассчитывается при известной базе эталона [8]:  $2hn \cos \theta_i = m_i \lambda$  ( $h$  - база эталона,  $m_i$  - порядок интерференции). Процедура определения заключается в следующем. Эталон Фабри-Перо с известной базой размещается на месте кристалла и освещается рассеянным излучением ртутной лампы. Входная щель спектрографа раскрывается до величины  $\sim 0.2-0.4$  мм. При этом на выходе спектрографа наблюдается широкое изображение спектральной линии, иссеченное горизонтальными дугами с центром на оси, определяемой  $\vec{k}_i$ . Разные дуги соответствуют разным порядкам интерференции. Измерение диаметра дуг одного порядка позволяет определить коэффициент увеличения системы

$$\theta_i = K r_i$$

Для большей точности  $K$  определяется по порядкам с большим номером (10-20).

Проведение калибровки в задачу не входит. При обработке результатов необходимо пользоваться следующим значением  $K$  для установки со спектрографом ИСП-51  $K = 0.022$  рад/мм.

Определенный по спектрограмме угол рассеяния необходимо пересчитать внутри кристалла, используя данные Приложения.

2. Перевод спектра ПР в координаты  $\omega_p - \theta_s$ .

Перевод спектра осуществляется сканированием фотопленки со спектром на сканере. По полученному изображению определяются координаты  $\omega_p - r_s$ , которые затем легко переводятся в координаты  $\omega_p - \theta_s$ .

При переводе необходимо учитывать кривизну спектральных линий.

3. Расчет волнового вектора  $\vec{k}_p$ .

Полученная в координатах  $\omega_p, \theta_s$  перестроенная кривая позволяет определить величину волнового вектора поляритонной волны по формуле

$$k_p = \sqrt{k_l^2 + k_s^2 - 2k_l k_s \cos \theta_s}$$

Необходимые для расчета значения векторов  $|\vec{k}_l|$  и  $|\vec{k}_s|$  определяются на основе известных дисперсионных характеристик кристаллов в видимом диапазоне (см. Приложение).

Затем определяется и действительная часть диэлектрической проницаемости

$$\varepsilon'(\omega_p) = \left( \frac{k(\omega_p)}{\omega_p} \right)^2$$

и строится дисперсионная кривая  $\omega_p(k_p)$ . Результаты проведенных измерений представляются в виде графиков

- 1)  $\varepsilon' = \varepsilon'(\omega_p)$
- 2)  $n_p = n(\omega_p)$
- 3)  $\omega_p = \omega_p(k_p)$
- 4)  $\theta = \theta_s(\omega_p)$

и таблицы:

$x$	$\lambda_s$	$\omega_s$	$\omega_p$	$r_s$	$\theta_s^{out}$	$\theta_s^{in}$	$k_p$	$\theta_p$	$n_p$
-----	-------------	------------	------------	-------	------------------	-----------------	-------	------------	-------

Размерность величин  $\omega_p$  и  $k_p$  [см<sup>-1</sup>].

В конце работы необходимо определить ошибку измерения.

### Литература

1. Д.Н.Клышко. Фотоны и нелинейная оптика. Москва, Наука, 1980, гл.1, §1.1, 1.2, гл.2, §6.1, 6.2, 6.3
2. Р.Лоудон. Квантовая теория света. М.:Мир, 1976
3. А.Пуле, Ж-П.Матье. Колебательные спектры и симметрия кристаллов, М.:Мир, 1973, перевод с французского, гл.6, §5-10
4. В.М.Агранович, В.Л.Гинзбург. Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теории экситонов. М., Наука, 1979; Введение, стр.13-31; Гл.1, с.56-87
5. Ю.Н.Поливанов, Комбинационное рассеяние света на поляритонах. - УФН, 1978, т.126, в.2, с.185-232 (первые 10 стр.).
6. В.В.Лебедева. Техника оптической спектроскопии. М., Изд. МГУ, 1977, гл.8.
7. Дж.Най. Физические свойства кристаллов. М.:Мир, 1967. Гл.7, §1,2,5, табл.20, 21.
8. Справочник по лазерам. т.2. М.:Советское радио, 1978, табл.41.2, 40.4.

**Приложение к задаче специального физического практикума кафедры квантовой электроники  
“Параметрическое рассеяние света”**

Дисперсионная формула (формула Селмейера):

$$n_{o,e}^2 = A - \frac{B}{C - \lambda^2} - D\lambda^2$$

**Дисперсия показателей преломления кристалла LiNbO<sub>3</sub>xMg (5%) \***

Длина волны (нм)	n <sub>o</sub>	n <sub>e</sub>
435.8	2.3863	2.2802
491.6	2.3403	2.2416
546.1	2.3114	2.2172
577.0	2.2988	2.2068
579.0	2.2980	2.2062
632.8	2.2816	2.1922
694.3	2.2678	2.1805
840.0	2.2460	2.1622

Поляризация	A	10 <sup>-4</sup> B	10 <sup>-4</sup> C	10 <sup>8</sup> D
o	4.9017	11.228	4.9656	3.9636
e	4.5583	9.1806	4.8086	3.2068

**Дисперсия показателей преломления кристалла LiIO<sub>3</sub> \*\***

Длина волны (нм)	n <sub>o</sub>	n <sub>e</sub>
400	1.948	1.780
436	1.931	1.766
500	1.908	1.754
530	1.901	1.750
578	1.888	1.742
690	1.875	1.731
800	1.868	1.724
1060	1.860	1.719

Поляризация	A	10 <sup>-4</sup> B	10 <sup>-4</sup> C	10 <sup>8</sup> D
o	3.4157	4.7031	3.531	0.88
e	2.9187	3.5114	2.822	0.36

\* А.Л.Александровский, Г.И.Ершова, Г.Х.Китаева, С.П.Кулик, И.И.Наумова, В.В.Тарасенко - Дисперсия показателей преломления кристаллов LiNbO<sub>3</sub> x Mg и LiNbO<sub>3</sub> x Y. Квантовая электроника, 18, N2, 1991, с.254-256

\*\* G.Nath, S.Haussuhl – Large nonlinear optical coefficient and phase matched second harmonic generation in LiIO<sub>3</sub>. Appl.Phys.Lett., 14, N5, 1969, с.154-156; K.Kato - High-power difference-frequency generation at 4.4-5.7 μm in LiIO<sub>3</sub>. IEEE J. QE, 21, N2, 1985, p.119