

# Влияние распространения поляритонов на спектры ВКР-усиления и КАРС на поляритонах

С.Н.Орлов, Ю.Н.Поливанов

*Теоретически проанализированы особенности  $k$ -спектров ВКР-усиления и КАРС на поляритонах, обусловленные «выбеганием» поляритонов из объема их взаимодействия с падающими на среду световыми пучками. Показано, что в общем случае форма и ширина рассматриваемых спектров зависят от соотношения между размером области перекрытия возбуждающих волн в кристалле вдоль направления распространения поляритонов и длиной свободного пробега поляритонов. Определены условия, при которых ширины спектров ВКР-усиления и КАРС дают информацию о затухании поляритонов.*

**Ключевые слова:** когерентное антистоксово рассеяние, усиление при вынужденном комбинационном рассеянии, поляритоны, нелинейно-оптическое смешение, форма и ширина спектров.

## 1. Введение

В настоящее время спектроскопия когерентного антистоксова рассеяния света (КАРС) и спектроскопия, основанная на регистрации спектров усиления стоксовой волны за счет ВКР света (ВКР-усиление), активно используются для решения широкого круга как научных, так и прикладных задач (см., напр., [1]). С помощью этих методик исследуются и фононные поляритоны, которые активны в спектрах КАРС и ВКР-усиления, в кристаллах без центра симметрии [1–12].

Спектры ВКР-усиления и КАРС на поляритонах обладают целым рядом особенностей по сравнению со спектрами рассеяния на неполярных возбуждениях среды. Некоторые из этих особенностей связаны со свойством поляритонов распространяться в среде на макроскопические расстояния, обычно составляющие от нескольких десятков до нескольких сотен микрометров, а в области верхней и нижней дисперсионных ветвей вдали от дипольно-активных фононных резонансов длина свободного пробега поляритонов может достигать нескольких сантиметров.

Свойство поляритонов распространяться на макроскопические расстояния было использовано, в частности, для реализации КАРС-спектроскопии в геометрии, при которой области бигармонического (в поле двух волн) возбуждения поляритонов и зондирования возбужденных когерентных поляритонов пробной волной в кристалле пространственно разнесены [13–18]. Эксперименты, проводимые в такой геометрии, открывают новые возможности КАРС-спектроскопии поляритонов и представляют интерес с точки зрения проблемы переноса возбуждений в кристаллах.

Настоящая работа направлена на рассмотрение вопроса о том, каким образом распространение полярито-

нов в среде на макроскопические расстояния может влиять на форму и ширину спектров ВКР-усиления и КАРС на поляритонах и при каких условиях информация о затухании поляритонов может быть получена из ширины этих спектров. Отметим, что уширение спектров, обусловленное «выбеганием» поляритонов из области взаимодействия, было обнаружено в недавних экспериментах как по ВКР-усилению [11], так и по КАРС [18] на поляритонах.

## 2. Зависимость спектров от соотношения между длиной исследуемого кристалла и длиной свободного пробега поляритонов (приближение плоских волн)

Предположим, что рассеивающая нецентросимметричная среда имеет форму слоя толщиной  $L$ , вдоль нормали к границам которого (ось  $z$ ) распространяются плоские волны с частотами  $\omega_L$  и  $\omega_s$  и волновыми векторами  $k_L$  и  $k_s$ . КАРС является нелинейно-оптическим смешением, при котором рождается волна на частоте  $\omega_a = 2\omega_L - \omega_s$ , а поляритоны в спектрах КАРС проявляются при условии

$$\omega_L - \omega_s \equiv \omega \approx \omega_p, \quad k_L - k_s = k \approx k_p, \quad (1)$$

где  $\omega_p$  и  $k_p$  – частота и волновой вектор поляритонов. При ВКР-усилении происходит усиление слабой стоксовой волны (с частотой  $\omega_s$ ) в поле интенсивной накачки с частотой  $\omega_L$  при выполнении условия (1). Будем считать, что среда является поглощающей для поляритонов и прозрачной для остальных волн.

В процессе КАРС происходит возбуждение когерентной поляритонной волны в поле двух волн (бигармонической накачки)  $E_L(\omega_L, k_L)$  и  $E_s(\omega_s, k_s)$  за счет квадратичной нелинейной восприимчивости среды  $\chi^{(2)}(\omega_p = \omega_L - \omega_s)$  с последующим рассеянием пробной волны  $E_L(\omega_L, k_L)$  на когерентно-возбужденных поляритонах. Поле возбужденной поляритонной волны, рассчитанное в приближении заданных амплитуд падающих волн, можно представить в виде суммы частного решения не-

Институт общей физики РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38; e-mail: polivano@kapella.gpi.ru, orlov@kapella.gpi.ru; web-site: http://www.gpi.ru

Поступила в редакцию 16 июля 2001 г.

однородного волнового уравнения (вынужденная волна с волновым вектором  $\mathbf{k} \equiv \mathbf{k}_L - \mathbf{k}_s$ ) и общего решения однородного уравнения (свободная волна с волновым вектором  $\mathbf{k}_p$ ) [19]:

$$\begin{aligned} \tilde{E}_p(\omega, k) &= E_p(\omega, k)e^{-i\omega t} = 4\pi \frac{\chi^{(2)}(\omega = \omega_L - \omega_s)}{k^2 c^2 / \omega^2 - \varepsilon(\omega)} \\ &\times E_L E_s^* [e^{i(k_L - k_s)z} - e^{ik_p z}] e^{-i\omega t} \\ &\approx \frac{2\pi\omega^2 \chi^{(2)}(\omega_p = \omega_L - \omega_s)}{c^2 k_p'} \frac{\Delta k_p - ik_p''}{\Delta k_p - ik_p''} \\ &\times E_L E_s^* [e^{i(k_L - k_s)z} - e^{ik_p' z - k_p'' z}] e^{-i\omega t}, \end{aligned} \quad (2)$$

где

$$k_p = k_p' + ik_p''; \quad \left(\frac{k_p c}{\omega}\right)^2 = \varepsilon(\omega);$$

$$\Delta k_p = k - k_p' \equiv k_L - k_s - k_p';$$

$\varepsilon(\omega)$  – комплексная диэлектрическая проницаемость кристалла. Приближенное равенство в (2) становится точным, если  $k_p' \gg k_p''$ ,  $\Delta k_p$ .

Используя далее стандартную методику укороченных уравнений [19] в приближении заданных амплитуд волн на частотах  $\omega_L$  и  $\omega_s$ , получаем следующее уравнение для амплитуды антистоксовой волны на частоте  $\omega_a$ :

$$\begin{aligned} \frac{\partial E_a}{\partial z} &= \frac{i2\pi\omega_a^2}{c^2 k_a} \left[ \chi^{(3)}(\omega_a = 2\omega_L - \omega_s) E_L^2 E_s^* e^{i\Delta k_a z} \right. \\ &\left. + \chi^{(2)}(\omega_a = \omega_L + \omega) E_L E_p(\omega, k) e^{i(k_L - k_a)z} \right], \end{aligned} \quad (3)$$

где  $\chi^{(3)}$  – кубическая нелинейная восприимчивость;  $\Delta k_a = 2k_L - k_s - k_a$ ;  $E_p(\omega, k)$  описывается выражением (2). В результате интегрирования получаем

$$\begin{aligned} \frac{|E_a|^2}{|E_L^2 E_s^*|^2} &= |A_a|^2 L^2 \left| \eta \frac{e^{i\Delta k_a L} - 1}{\Delta k_a L} + \frac{1}{(\Delta k_p - ik_p'')L} \right. \\ &\left. \times \left[ \frac{e^{i\Delta k_a L} - 1}{\Delta k_a} - \frac{e^{i(\Delta k_a - \Delta k_p)L - k_p'' L} - 1}{\Delta k_a - \Delta k_p + ik_p''} \right] \right|^2, \end{aligned} \quad (4)$$

где

$$\begin{aligned} A_a &= \frac{4\pi^2 \omega_a^2 \omega^2}{c^4 k_a k_p'} \chi^{(2)}(\omega_a = \omega_L + \omega) \chi^{(2)}(\omega = \omega_L - \omega_s); \\ \eta &= \frac{c^2 k_p'}{2\pi\omega^2 \chi^{(2)}(\omega_a = \omega_L + \omega) \chi^{(2)}(\omega = \omega_L - \omega_s)}. \end{aligned} \quad (5)$$

Параметр  $\eta$  определяет относительные вклады прямых четырехфотонных и каскадных трехфотонных процессов в результирующий сигнал КАРС.

Уравнение для амплитуды волны на частоте  $\omega_s$  в поле заданной более интенсивной волны накачки с частотой  $\omega_L$  можно представить в виде

$$\begin{aligned} \frac{\partial E_s}{\partial z} &= \frac{i2\pi\omega_s^2}{c^2 k_s} \left[ \chi^{(3)}(\omega_s = \omega_L - \omega_L + \omega_s) |E_L|^2 E_s \right. \\ &\left. + \chi^{(2)}(\omega_s = \omega_L - \omega_p) E_L E_p^*(\omega, k) e^{i(k_L - k_s)z} \right], \end{aligned} \quad (6)$$

где  $E_p(\omega, k)$  описывается выражением (2). Решение уравнения (6) имеет экспоненциальный вид:

$$|E_s|^2 = |E_{s0}|^2 \exp(g_s |E_L|^2 L) \approx |E_{s0}|^2 (1 + g_s |E_L|^2 L),$$

где

$$\begin{aligned} g_s &= -\frac{4\pi\omega_s^2}{c^2 k_s} \text{Im} \left\{ \chi^{(3)}(\omega_s = \omega_L - \omega_L + \omega_s) \right. \\ &\left. + \frac{2\pi\omega^2}{c^2 k_p} \chi^{(2)}(\omega_s = \omega_L - \omega_p) \chi^{(2)*}(\omega = \omega_L - \omega_s) \right. \\ &\left. \times \left[ \frac{1}{\Delta k_p + ik_p''} - \frac{e^{i\Delta k_p L - k_p'' L} - 1}{L(\Delta k_p + ik_p'')(i\Delta k_p - k_p'')} \right] \right\}. \end{aligned} \quad (7)$$

Далее мы будем проводить анализ  $k$ -спектров, т. е. зависимостей интересующих нас сигналов от фазовой расстройки  $\Delta k_p$  при заданной частоте  $\omega$ . Для простоты ограничимся рассмотрением такой спектральной области поляритонов, в которой можно пренебречь мнимыми частями нелинейных восприимчивостей. Это справедливо, когда частота поляритонов отстоит от частоты дипольно-активного фононного резонанса на расстояние в несколько ширин линий фононов. Допустим также, что  $\Delta k_a = 0$ , поскольку обычно спектры КАРС на поляритонах регистрируются в условиях фазового синхронизма для четырехфотонного процесса, отвечающего максимальной эффективности. В этом случае форма спектров КАРС и ВКР-усиления соответственно описывается, согласно (4) и (7), следующими выражениями:

$$S(\Delta k_p, k_p'' L) = \left| i\eta + \frac{1}{\Delta k_p - ik_p''} \left[ i + \frac{e^{-i\Delta k_p L - k_p'' L} - 1}{(\Delta k_p - ik_p'')L} \right] \right|^2, \quad (8)$$

$$\begin{aligned} G(\Delta k_p, k_p'' L) &= -\text{Im} \left[ \frac{1}{\Delta k_p + ik_p''} - \frac{e^{i\Delta k_p L - k_p'' L} - 1}{L(\Delta k_p + ik_p'')(i\Delta k_p - k_p'')} \right] \\ &= \frac{k_p''}{\Delta k_p^2 + k_p''^2} + \frac{\Delta k_p^2 - k_p''^2}{(\Delta k_p^2 + k_p''^2)^2 L} \\ &\quad - \frac{(\Delta k_p^2 - k_p''^2) \cos(\Delta k_p L) + 2k_p'' \Delta k_p \sin(\Delta k_p L)}{(\Delta k_p^2 + k_p''^2)^2 L} e^{-k_p'' L}. \end{aligned} \quad (9)$$

При анализе спектров КАРС на поляритонах вначале рассмотрим случай, когда вклад прямого четырехфотонного процесса пренебрежимо мал по сравнению со вкладом, обусловленным каскадными процессами, т. е. будем полагать  $\eta = 0$ . В этом случае выражение (8) имеет вид

$$S(\Delta k_p, k_p'' L, \eta = 0) = \left[ \frac{e^{-k_p'' L} \cos(\Delta k_p L) - 1 + k_p'' L}{(\Delta k_p^2 + k_p''^2) L} \right]^2 \quad (10)$$

$$+ \left[ \frac{e^{-k_p'' L} \sin(\Delta k_p L) - \Delta k_p L}{(\Delta k_p^2 + k_p''^2) L} \right]^2 = \frac{1}{\Delta k_p^2 + k_p''^2} + \frac{e^{-2k_p'' L} - 1 + 2(k_p'' L - 1) [e^{-k_p'' L} \cos(\Delta k_p L) - 1] - 2\Delta k_p L e^{-k_p'' L} \sin(\Delta k_p L)}{(\Delta k_p^2 + k_p''^2)^2 L^2}.$$

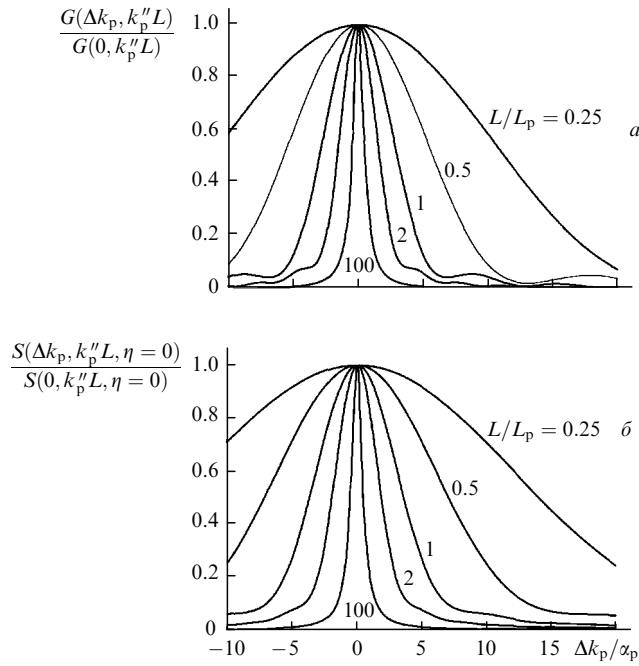


Рис.1.  $k$ -спектры ВКР-усиления (а) и КАРС (б) на поляритонах, рассчитанные при отношении длины кристалла к длине свободного пробега  $L/L_p = 100, 2, 1, 0.5$  и  $0.25$ .

Из (9) и (10) следует\*, что в пределе сильного поглощения поляритонов ( $k_p''L \gg 1$ ) форма спектров ВКР-усиления и КАРС (первые слагаемые в (9) и (10) соответственно) является лоренцевской с шириной на полувысоте, равной  $\alpha_p = 2k_p''$ , что позволяет определять поглощение (пространственное затухание) когерентных поляритонов  $\alpha_p$  непосредственно из регистрируемых спектров.

При очень слабом поглощении ( $k_p''L \ll 1$ ), т. е. когда длина свободного пробега когерентных поляритонов  $L_p = 1/\alpha_p$  много больше длины кристалла, контуры спектров КАРС и ВКР-усиления заметно изменяются и описываются соответственно функциями

$$S(\Delta k_p, k_p''L \ll 1, \eta = 0) = \frac{1 - 2\text{sinc}(\Delta k_p L) + \text{sinc}^2(\Delta k_p L/2)}{\Delta k_p^2}, \quad (11)$$

$$G(\Delta k_p, k_p''L \ll 1) = (L/2)\text{sinc}^2(\Delta k_p L/2) \quad (12)$$

с ширинами на полувысоте

$$\delta k_S(\alpha_p = 0) \approx 6.954/L, \quad (13)$$

$$\delta k_G(\alpha_p = 0) \approx 2\pi \cdot 0.885/L \approx 5.56/L. \quad (14)$$

Видно, что ширины спектров в данном случае уже не содержат информации о затухании поляритонов.

В общем случае форма спектра является промежуточной между лоренцевской и описываемой функцией (11) или (12), а ширина спектра зависит от  $k_p''L$ , т. е. от отношения длины кристалла к длине свободного пробега поляритона  $L/L_p$ . Характер изменения спектров в зави-

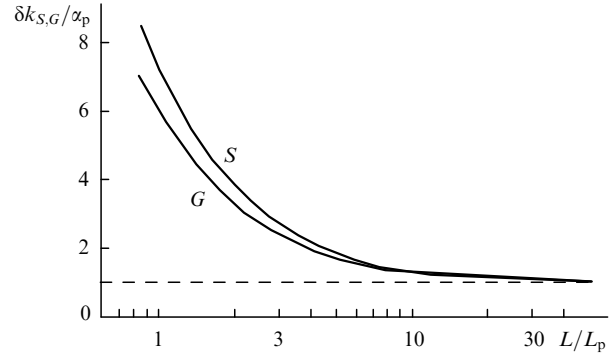


Рис.2. Отношение ширин спектров КАРС (S) и ВКР-усиления (G) на поляритонах  $\delta k_{S,G}$  к затуханию поляритонов  $\alpha_p$  как функция отношения длины кристалла  $L$  к длине свободного пробега поляритонов  $L_p$ .

симости от  $L/L_p$  иллюстрируется рис.1, на котором представлены нормированные на максимум поляритонные  $k$ -спектры, рассчитанные по формулам (9) и (10) при разных  $L/L_p$ . Из приведенных спектров следует, что при изменении  $L/L_p$  происходит изменение как формы, так и ширины спектра.

На рис.2 приведены зависимости нормированных на поглощение поляритонов ширин спектров  $\delta k_{S,G}/\alpha_p$  от  $L/L_p$ . Видно, что спектры КАРС и ВКР-усиления уширяются по мере уменьшения  $L/L_p$ . В частности, при длине кристалла, равной длине свободного пробега когерентных поляритонов ( $L/L_p = 1$ ), ширина спектра ВКР-усиления становится примерно в 6 раз, а КАРС – в 7.3 раза больше ширины спектра, определяемой затуханием поляритонов. В этой ситуации определить затухание поляритонов из спектров КАРС и ВКР-усиления практически невозможно. Из расчетов, результаты которых приведены на рис.2, следует, что уширение спектров КАРС и ВКР-усиления, обусловленное распространением поляритонов, не превышает 10 %, если  $L > 22L_p$ , и составляет не более 2 %, если  $L > 100L_p$ .

При проведении эксперимента затухание поляритонов, т. е.  $L/L_p$ , заранее неизвестно, и поэтому возникает вопрос, насколько измеренные ширины спектров определяют затухание поляритонов. В связи с этим весьма полезными с практической точки зрения могут оказаться зависимости отношения наблюдаемых ширин спектра к затуханию поляритонов  $\delta k_{S,G}/\alpha_p$  от отношения наблюдаемых ширин спектра к ширинам спектра при нулевом затухании поляритонов  $\delta k_{S,G}/\delta k_{S,G}(\alpha_p = 0)$ . Такие зависимости, рассчитанные для спектров КАРС и ВКР-усиления на основании формул (9), (10) и (13), (14), приведены на рис.3. На практике вначале следует сравнить ширины  $\delta k_{S,G}(\alpha_p = 0)$ , рассчитанные согласно (13), (14), с наблюдаемыми ширинами  $\delta k_{S,G}$  соответствующих спектров и далее, пользуясь кривыми, представленными на рис.3, определить отношение  $\delta k_{S,G}/\alpha_p$  и, следовательно, искомое затухание поляритонов  $\alpha_p$ .

Наличие вклада, обусловленного четырехфотонными процессами ( $\eta \neq 0$ ), приводит к интерференции прямых и каскадных процессов и, как следствие, к искажению результирующего спектра [4, 7], который приобретает вид «дисперсионного». На рис.4 в качестве примера приведены нормированные на максимум спектры КАРС, рассчитанные по формуле (8) при учете прямых четырехфотонных процессов с относительным вкладом  $\eta = 1$ . Рис.4 иллюстрирует, по существу, насколько значительно трансформируются спектры КАРС при изменении толь-

\*Выражение, аналогичное (9), было получено в работе [20] при рассмотрении спектров спонтанного комбинационного рассеяния на поляритонах.

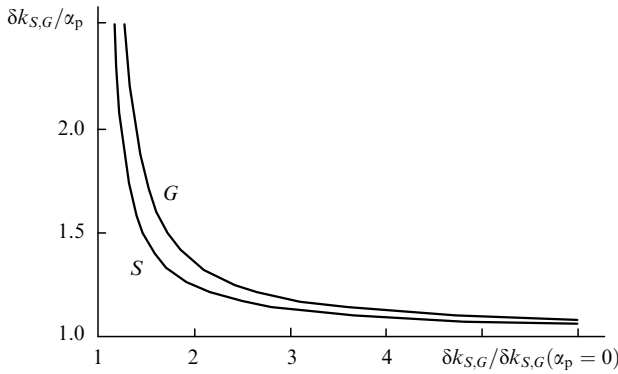


Рис.3. Отношение ширин спектров КАРС (S) и ВКР-усиления (G) на поляритонах к затуханию поляритонов  $\delta k_{S,G}/\alpha_p$  в зависимости от отношения ширин этих спектров к ожидаемым ширинам при нулевом затухании  $\delta k_{S,G}/\delta k_{S,G}(\alpha_p = 0)$ .

ко длины исследуемого кристалла. Заметим, что в ситуации сильного затухания поляритонов ( $k_p''L \gg 1$ ), которой соответствует кривая с  $L/L_p = 100$  на рис.4, выражение (8) принимает следующий простой вид (см. также [4]):

$$S(\Delta k_p, k_p''L \gg 1) = \eta^2 + 2\eta \frac{\Delta k_p}{\Delta k_p^2 + k_p''^2} + \frac{1}{\Delta k_p^2 + k_p''^2}. \quad (15)$$

В этом предельном случае спектр КАРС уже не зависит от длины кристалла.

Для экспериментального наблюдения уширения спектров КАРС и ВКР-усиления, обусловленного распространением поляритонов, в условиях применимости принятой модели можно воспользоваться, например, коллинеарной схемой возбуждения поляритонов, которая реализуется в анизотропных кристаллах при взаимно ортогональных поляризациях возбуждающих волн [6]. Исследования, проведенные на образцах разной толщины, позволяют выявить обсуждаемые нами особенности поляритонных спектров.

### 3. Влияние «выбегания» поляритонов из области возбуждения (ограниченные пучки)

В реальных экспериментах поперечный размер взаимодействующих волн всегда ограничен, а возбуждение поляритонов осуществляется, как правило, при неколлинеарном расположении волновых векторов  $k_L$  и  $k_s$ . В этой ситуации значительную роль в уширении исследуемых спектров могут играть апертурные эффекты, т. е. «выбегание» поляритонов из области возбуждения и зондирования. Действительно, условие синхронизма  $\Delta k_p = 0$  для возбуждения поляритонов выполняется, как известно [21], при малых углах  $\varphi$  между  $k_L$  и  $k_s$ , изменяющихся от нуля до нескольких градусов, но поскольку  $k_L, k_s \gg k_p'$ , то угол  $\theta_p$  между  $k_L$  и  $k_p$  значительно превышает  $\varphi$  (при  $\varphi \neq 0$ ).

Таким образом, даже при малых  $\varphi$  угол  $\theta_p$  будет составлять несколько десятков градусов, т. е. возбуждаемые поляритоны будут распространяться под достаточно большим углом к направлению распространения возбуждающих пучков. По этой причине поляритоны могут «выбегать» из области перекрытия поперечно-ограниченных возбуждающих пучков\* на расстоянии от входной грани кристалла  $L_a$ , меньшем длины кристалла  $L$ . В результате при  $L_a < L$  уширение спектров должно зависеть не от отношения  $L/L_p$  (как это было в случае плоских волн), а от отношения  $L_\theta/L_p$ , где  $L_\theta$  – размер области возбуждения вдоль направления распространения поляритонов. (При  $L_a > L$ , полученные выше формулы остаются справедливыми, если в них  $\alpha_p$  заменить на  $\alpha_p/\cos\theta_p$ .)

При описании спектров ВКР-усиления и КАРС на поляритонах с учетом апертурных эффектов предположим, что падающие волны с гауссовым поперечным распределением распространяются в плоскости  $xz$  под малыми углами к оси  $z$ , направленной по нормали к входной грани кристалла. Укороченное уравнение для амплитуды поля возбуждаемых поляритонов в приближении заданных падающих полей, мягкой фокусировки ( $L \ll b$ ) и без учета дифракционных эффектов можно записать в виде

$$\begin{aligned} \frac{\partial E_p(x, y, z)}{\partial z} + \rho \frac{\partial E_p(x, y, z)}{\partial x} + \frac{\alpha}{2} E_p(x, y, z) \\ = i \frac{2\pi\omega^2}{c^2 k_p' \cos\theta_p} \chi^{(2)} E_L(x, y) E_s^*(x, y) e^{i\Delta k_{pz}z}, \end{aligned} \quad (16)$$

где  $\rho = \tan\theta_p$ ;  $\alpha = 2k_p''/\cos\theta_p = \alpha_p/\cos\theta_p$ ;  $\Delta k_{pz}$  – проекция  $k_p = k_L - k_s - k_p'$  на ось  $z$ .

Решение этого уравнения при граничных условиях

$$E_p(x, y, 0) = 0, \quad E_{L,s}(x, y, 0) = E_{L0,s0} e^{-(x^2+y^2)/w^2} \quad (17)$$

имеет следующий вид:

$$\begin{aligned} E_p(x, y, z) = i E_{L0} E_{s0} \frac{2\pi\omega^2}{c^2 k_p' \cos\theta_p} \chi^{(2)} \exp\left(-\frac{y^2}{w^2}\right) \\ \times \int_0^z \exp\left[-\frac{\alpha}{2}(z-z') + i\Delta k_{pz}'z'\right] \\ \times \exp\left\{-2\frac{[x-\rho(z-z')]^2}{w^2}\right\} dz'. \end{aligned}$$

Подставляя далее (16) в (3) и (6), получаем искомые

\*В экспериментах обычно используется режим «мягкой фокусировки», т. е.  $L \ll b$  ( $b$  – конфокальный параметр фокусирующей оптики) для исключения влияния расходимости на уширение поляритонных спектров и диаметр возбуждающих пучков обычно составляет от нескольких сотен микрометров до примерно миллиметра.

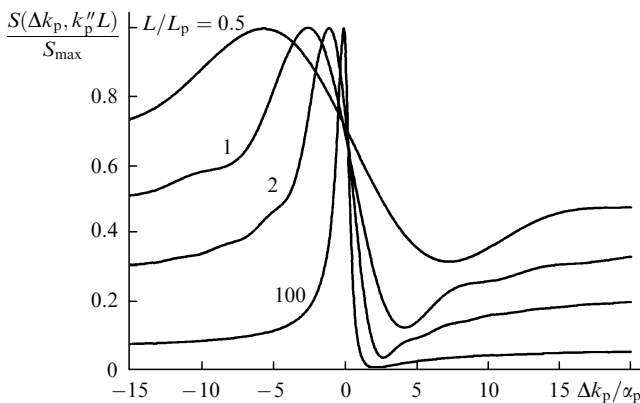


Рис.4. Спектры КАРС на поляритонах, рассчитанные с учетом вклада прямых четырехфотонных процессов ( $\eta = 1$ ) при  $L/L_p = 100, 2, 1$  и  $0.5$ .

выражения, описывающие спектры ВКР-усиления и КАРС на поляритонах:

$$G = -\text{Im} \left[ \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \exp \left( -3 \frac{y^2}{w^2} - \frac{x^2}{w^2} \right) dx dy \right. \\ \left. \times \int_0^L \int_0^z \exp \left[ \left( i \Delta k_{pz} - \frac{\alpha}{2} \right) (z - z') \right] \right. \\ \left. \times \exp \left\{ -2 \frac{[x - \rho(z - z')]^2}{w^2} \right\} dz dz' \right], \quad (18)$$

$$S = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} dx dy \left| i L \eta \exp \left( -3 \frac{x^2 + y^2}{w^2} \right) \right. \\ \left. - \exp \left( -3 \frac{y^2}{w^2} - \frac{x^2}{w^2} \right) \right. \\ \left. \times \int_0^L dz \int_0^z \exp \left[ - \left( i \Delta k_{pz} + \frac{\alpha}{2} \right) (z - z') \right] \right. \\ \left. \times \exp \left\{ -2 \frac{[x - \rho(z - z')]^2}{w^2} \right\} dz' \right|^2. \quad (19)$$

Результаты численных расчетов зависимости отношения  $\delta k_{S,G}/\alpha_p$  ширин спектров  $\delta k_{S,G}$  к затуханию поляритонов  $\alpha_p$  от отношения  $L_\theta/L_p$  размера области возбуждения вдоль направления поляритонов  $L_\theta$  к длине свободного пробега поляритонов  $L_p$ , проведенных на основании (18), (19), представлены на рис.5. Расчеты выполнены в предположении, что вклад прямых четырехфотонных процессов пренебрежимо мал по сравнению со вкладом каскадных процессов, т. е.  $\eta = 0$ . Полагалось также, что  $L \gg L_a$ , а размер области возбуждения  $L_\theta$  определяется через радиус  $w$  (17) взаимодействующих пучков соотношением  $L_\theta = w/\sin \theta_p$ .

Из проведенных расчетов (рис.5), в частности, следует, что уширение спектров КАРС и ВКР-усиления, обусловленное «выбеганием» поляритонов из области взаимодействия с падающими пучками, не будет превышать 10 % только в том случае, если  $L_\theta > 14L_p$ . Например, для  $w = 0.5$  мм и  $\theta_p = 45^\circ$  это условие выполняется при  $L_p < 50$  мкм или при  $\alpha_p > 200$  см<sup>-1</sup>.

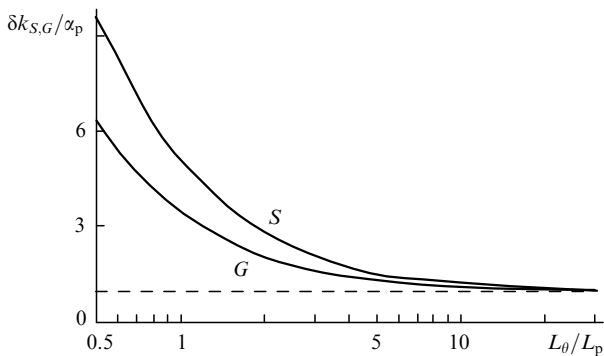


Рис.5. Отношение ширин спектров КАРС ( $S$ ) и ВКР-усиления ( $G$ ) на поляритонах  $\delta k_{S,G}$  к затуханию поляритонов  $\alpha_p$  как функция отношения размера области перекрытия возбуждающих пучков вдоль распространения поляритонов  $L_\theta = w/\sin \theta_p$  к длине свободного пробега когерентных поляритонов  $L_p$ .

Заметим также, что результаты расчетов, представленные на рис.5, хорошо согласуются с экспериментально наблюдаемым в работе [18] уширением  $\omega$ -спектров КАРС на поляритонах в кристалле ВеО. Действительно, ширина наблюдаемого  $\omega$ -спектра КАРС  $\Delta v_{\text{obs}}$  на частоте  $\nu_p = 372$  см<sup>-1</sup> составляет  $\sim 11.5$  см<sup>-1</sup>. Однако согласно прямому измерению длина свободного пробега когерентных поляритонов  $L_p = 0.3$  мм [18], что должно соответствовать ширине спектра КАРС без учета «выбегания» поляритонов

$$\Delta v \approx \frac{1}{2\pi c L_p |V_p^{-1} - V_s^{-1} \cos \theta|} \approx 1.7 \text{ см}^{-1},$$

где  $V_p$  и  $V_s$  – групповые скорости поляритонов и рассеянной волны соответственно. Таким образом, уширение  $\Delta v_{\text{obs}}/\Delta v \approx 6.8$ . В условиях описанного эксперимента  $L_\theta/L_p \approx 0.65$  и «выбегание» поляритонов должно приводить, согласно кривой  $S$  на рис.5, к семикратному уширению спектра КАРС, что находится в соответствии с наблюдаемым уширением, равным 6.8.

#### 4. Заключение

Проведенный анализ показал, что распространение поляритонов в общем случае влияет как на форму, так и на ширину спектров ВКР-усиления и КАРС на поляритонах. Форма и ширина спектров зависят от отношения  $L_\theta/L_p$  размера  $L_\theta$  области перекрытия падающих световых волн в кристалле вдоль направления распространения поляритонов к длине свободного пробега когерентных поляритонов  $L_p$ . (В случае неограниченных в поперечном направлении пучков или при  $L_a > L$  их размер  $L_\theta$  определяется длиной кристалла.) При сильном поглощении поляритонов ( $L_p \ll L_\theta$ ) их «выбегания» из области взаимодействия не происходит и спектр является лоренцевским с шириной, определяемой затуханием поляритонов. В случае слабого поглощения ( $L_p \gg L_\theta$ ) поляритоны «выбегают» из области взаимодействия и ширины спектров становятся много больше пространственного затухания поляритонов и, следовательно, практически не содержат информации о затухании.

Расчеты для гауссовых падающих пучков показывают, в частности, что уширение спектров, обусловленное «выбеганием» поляритонов, не будет превышать 10 % только в том случае, если размер области возбуждения вдоль распространения поляритонов будет, по крайней мере, в 14 раз больше длины свободного пробега когерентных поляритонов ( $L_\theta > 14L_p$ ). Это довольно жесткое требование, и его следует учитывать в реальных экспериментах при измерении затухания по ширинам спектров ВКР-усиления и КАРС в процессе исследования не только поляритонов нижних и верхних дисперсионных ветвей, для которых длина свободного пробега может превышать несколько миллиметров, но и поляритонов, относящихся к промежуточным дисперсионным ветвям. Действительно, при  $w = 0.5$  мм и  $\theta_p = 45^\circ$ , что примерно соответствует типичным условиям эксперимента, уширение спектров из-за «выбегания» поляритонов не будет превышать 10 % только в том случае, если длина свободного пробега поляритонов будет меньше 50 мкм или затухание  $\alpha_p > 200$  см<sup>-1</sup>.

Наблюдавшееся в [18] уширение спектров КАРС находится в хорошем количественном соответствии с результатами приведенных в данной статье расчетов.

Работа выполнена при частичной поддержке РФФИ (проект № 00-02-17069) и Министерства промышленности, науки и технологий РФ (госконтракт № 108-2(00)-П(252)).

1. Ахманов С.А., Коротеев Н.И. *Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света* (М., Наука, 1981).
2. Coffinet J.P., De Martini F. *Phys.Rev.Letts*, **22**, 60 (1969).
3. Wynne J.J. *Phys.Rev.Letts*, **29**, 650 (1972); *Comments Sol.State Phys.*, **7**, 7 (1975).
4. Стрижевский В.Л., Яшкир Ю.Н. *Квантовая электроника*, **2**, 995 (1975).
5. Flytzanis C., Bloembergen N. *Prog.Quant.Electr.*, **4**, 271 (1976).
6. Поливанов Ю.Н., Саяхов Р.Ш., Суходольский А.Т. *Кр.сооб.физ. ФИАН*, **12**, 16 (1976).
7. Поливанов Ю.Н., Суходольский А.Т. *Письма в ЖЭТФ*, **25**, 240 (1977); *Квантовая электроника*, **5**, 1689 (1978).
8. Китаева Г.Х., Лосевский П.С., Михайловский А.А., Пеннин А.Н. *ЖЭТФ*, **112**, 441 (1997).
9. Biraud-Laval S., Reinisch R., Paraire N., Laval S. *Phys.Rev.B*, **13**, 1797 (1976).
10. Reinisch R., Biraud-Laval S., Paraire N. *J.Phys.*, **37**, 227 (1976).
11. Schwarz U.T., Maier M. *Phys.Rev.B*, **53**, 5074 (1996); **58**, 766 (1998).
12. Поливанов Ю.Н. *Труды ИОФАН*, **43**, 3 (1993).
13. Gale G.M., Vallee F., Flytzanis C. *Phys.Rev.Letts*, **57**, 1867 (1986).
14. Vallee F., Gale G.M., Flytzanis C. *Phys.Rev.Letts*, **61**, 2102 (1988).
15. Vallee F., Flytzanis C. *Phys.Rev.B*, **46**, 13799 (1992); *Phys.Rev.Letts*, **74**, 3281 (1995).
16. Qiu T., Maier M. *Phys.Rev.B*, **56**, 5717 (1997).
17. Орлов С.Н., Поливанов Ю.Н. *Квантовая электроника*, **25**, 175 (1998).
18. Орлов С.Н., Поливанов Ю.Н. *Квантовая электроника*, **25**, 899 (1998).
19. Шен И.Р. *Принципы нелинейной оптики* (М., Наука, 1980).
20. Клышко Д.Н. *Фотоны и нелинейная оптика* (М., Наука, 1980).
21. Поливанов Ю.Н. *УФН*, **126**, 185 (1978).