Вестник
МОСКОВСКОГО УНИВЕРСИТЕТА
№ 2 — 1973

УДК 621.375.82

В. А. БУШУЕВ

НЕЛИНЕЙНОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА В КРИСТАЛЛАХ

Рассматривается спонтанное параметрическое рассеяние света, обусловленное квадратичным и кубичным слагаемыми в разложении поляризации среды по степеням электрического поля. Учтены резонансные вклады решеточных колебаний в поляризуемости. Рассчитываются основные характеристики излучения (спектральная сила, интегральная мощность, форма линии) при условии, что одна из частот находится в области ИК-поглощения. Проведено сравнение эффективностей различных процессов.

Введение

Работа посвящена рассмотрению спонтанного нелинейного рассеяния (НР) света в кристаллах. Под нелинейным рассеянием везде понимается спонтанное параметрическое рассеяние, при котором интенсивность рассеянного света квадратичным образом зависит от интенсивности падающего излучения накачки. В простейшем случае (в центросимметричной среде) квадратичное НР называется четырехфотонным рассеянием (ЧР) или рассеянием света на свете (РСС). С квантовой точки зрения ЧР является результатом спонтанного распада пары фотонов возбуждающего излучения на пару других — стоксов и антистоксов фотоны; при этом должен выполняться закон сохранения энергии $(\omega_p + \omega_p' = \omega_s + \omega_a)$, и наиболее эффективное рассеяние света (РС) происходит в направлениях, определяемых условием пространственного синхронизма $\vec{K}_p + \vec{K}_p' = \vec{K}_s + \vec{K}_a$, которое может выполняться как в анизотропных, так и в изотропных средах.

Феноменологически явление ЧР можно объяснить, предположив, что оптически нелинейная среда обладает кубичной поляризуемостью $\hat{\vartheta}$. Тогда тепловые и квантовые флуктуации поля с частотой ω_s при наличии накачки приведут к поляризации среды $\hat{\vartheta}\vec{E}_p\vec{E}_p'\vec{E}_s^*$ и, следовательно, к излучению с частотой ω_a. Нелинейное РС рассмотрено, например, в теоретических [1—7] и экспериментальных [8—11] работах.

Термин «рассеяние света на свете» более подходит к двулучевым экспериментам по РС, когда $\vec{K}_p\vec{K}_p' \neq 0$ [9]. В дальнейшем для краткости будем рассматривать лишь вырожденный случай $\omega_p' = \omega_p$, $\vec{K}_p' = \vec{K}_p$, который наиболее просто осуществляется экспериментально.

В нецентросимметричных кристаллах, в которых квадратичная поляризуемость $\hat{\chi}$ отлична от нуля, — пьезокристаллах, имеется еще один механизм НР [2], причем вклад квадратичной поляризуемости в эффективность рассеяния является в некоторых случаях основным по сравнению с вкладом $\hat{\vartheta}$ [5]. Этот механизм можно представить как результат двух последовательных трехфотонных процессов. Существуют два типа рассеяния такого рода: а) промежуточной волной служит «холостая» волна с частотой $\omega_i \equiv \omega_p - \omega_s$, которая образуется в результате спонтанного распада фотонов накачки ($\omega_p \to \omega_s + \omega_i$), затем происходит сложение частот ($\omega_i + \omega_p \to \omega_a$, $\omega_s + \omega_p \to \omega_s'$) [12]; б) промежуточной волной служит вторая гармоника падающего излучения $\omega_2 \equiv 2\omega_p (\omega_p + \omega_p \to \to \omega_2 \to \omega_s + \omega_a)$.

Большинство теоретических работ по параметрическому РС посвящены рассмотрению процессов рассеяния в прозрачных средах. Учет поглощательных свойств вещества при рассеянии проводился лишь в работах [4, 6, 7] для случая линейного рассеяния — так называемой параметрической люминесценции (ПЛ) — и в статье [6], где дана феноменологическая теория ЧР в поглощающей центросимметричной среде. В этих работах показано, что поглощение на «холостой» частоте непосредственно не изменяет интегральных мощностей P_Ω и P_ω, рассеиваемых соответственно в единичные телесный и спектральный интервалы, а влияет только на форму линии. В связи с этим представляет интерес описание процессов НР в пьезокристаллах в общем виде, не предполагая заранее отсутствие поглощения на одной из частот. Такое рассмотрение особенно интересно в случае, когда частота ω_i лежит в инфракрасном (ИК) диапазоне, так как оно дает возможность выяснить роль и характер динамического поведения кристаллической решетки.

В данной работе развита полуфеноменологическая теория спонтанного параметрического квадратичного рассеяния в поглощающих пьезокристаллах. С учетом поглощения и резонансных вкладов решеточных колебаний в линейные и нелинейные поляризуемости, найдены основные характеристики рассеянного излучения, проведены их оценки и сравнение эффективностей различных процессов НР; показано, например, что в некоторых случаях учет поглощения приводит не только к изменению формы линии, но и к зависимости силы света P_Ω от коэффициента поглощения для «холостой» частоты. Поскольку РС в областях прозрачности рассмотрено достаточно полно, ограничимся в дальнейшем изучением НР в ближней ($\omega_a \approx \omega_p + \omega_n$) и дальней ($\omega_{s'} \approx \approx 2\omega_p - \omega_n$) антистоксовых областях, где ω_n — резонансные частоты решеточных колебаний.

В § 1 получены общие уравнения для связанных амплитуд поля, описывающие процессы НР с учетом всех трех механизмов (за счет $\hat{\vartheta}$ и через промежуточные волны ω_i и ω_2). В § 2 рассмотрено рассеяние в кубичной среде при достаточно широких пределах изменения отстройки ($\omega_n - \omega_i$). В § 3, опираясь во многом на результаты предыдущего раздела, анализируются свойства рассеянного света в ближней и дальней антистоксовых областях.

§ 1. Основные соотношения

Рассмотрим рассеяние плоской монохроматической волны накачки $\vec{E}_p \exp i(\vec{K}_p\vec{r} - \omega_p t)$ + к. с. в неком выделенном объеме V бесконечной кристаллической среды с отличными от нуля квадратичной и кубичной поляризуемостями. Наибольший интерес представляет случай, когда среда может обладать поглощением на частоте $\omega_i < \omega_s$ и прозрачна на всех остальных частотах. Будем основываться на простейшей модели кристалла [13], позволяющей тем не менее выявить основные особенности рассматриваемых эффектов.

Согласно флуктуационно-диссипационной теореме поглощающая среда является и «шумящей» [14], так что при сильном поглощении ($\alpha l \gg 1$, где α — коэффициент поглощения и l — длина выделенного объема кристалла) необходим учет распределенных по объему кристалла квантовых и тепловых шумов. Учесть эти распределенные шумовые источники удобно введением случайной ланжевеновой силы, которую классически можно интерпретировать как вынуждающую силу, действующую на решеточные осцилляторы и в отсутствии внешних электромагнитных полей и обеспечивающую правильное значение тепловой колебательной энергии. В промежуточном случае ($\alpha l \sim 1$) необходим учет как «входных», так и распределенных флуктуаций [4].

Предположим, следуя [13], что линейные и нелинейные свойства кристалла описываются следующей потенциальной функцией:

$$
\begin{aligned}
-U = {} & \hat{\chi}_\infty [\vec{E}_p^*(\vec{E}_i \vec{E}_s + \vec{E}_i^* \vec{E}_a + \vec{E}_s^* \vec{E}_{s'}) + \vec{E}_2^* (\vec{E}_p^2 + \vec{E}_i \vec{E}_{s'} + \vec{E}_s \vec{E}_a)] + \\
& + N \sum_n [e_n \vec{E}_i + \hat{d}_n^{(2)} (\vec{E}_p \vec{E}_s^* + \vec{E}_p^* \vec{E}_a + \vec{E}_2 \vec{E}_{s'}^*) + \hat{d}_n^{(3)} \vec{E}_p^2 \vec{E}_{s'}^*] \vec{Q}_{in}^* + \\
& + \frac{1}{2} \hat{\vartheta}_\infty |\vec{E}_p|^2 (\vec{E}_i \vec{E}_i^* + \vec{E}_s \vec{E}_s^* + \vec{E}_a \vec{E}_a^* + \vec{E}_{s'} \vec{E}_{s'}^*) + \\
& + \hat{\vartheta}_\infty \vec{E}_p^{*2} (\vec{E}_i \vec{E}_{s'} + \vec{E}_s \vec{E}_a) + \text{к. с.}
\end{aligned}
\qquad (1)
$$

Здесь $\hat{\chi}_\infty$ и $\hat{\vartheta}_\infty$ — электронные части квадратичной и кубичной поляризуемостей, $\hat{d}_n^{(2)}$ и $\hat{d}_n^{(3)}$ — параметры, характеризующие нелинейности n-го нормального колебания элементарной ячейки кристалла, e_n — эффективный заряд; N — число элементарных ячеек в единице объема. Характеристики кристалла $\hat{\chi}_\infty$, $\hat{\vartheta}_\infty$, $\hat{d}_n^{(2)}$ и $\hat{d}_n^{(3)}$ в области длин волн видимого света можно считать действительными и постоянными [15]. Амплитуда колебаний n-ой моды решетки $\vec{Q}_{in}$ на частоте ω_i определяется из соотношения

$$
m_n \omega_n^2 D_{ni} \vec{Q}_{in} = \vec{F}_{in} + e_n \vec{f}_{in}, \qquad (2)
$$

где $D_{ni} = 1 - \omega_i^2/\omega_n^2 - i\omega_i \Gamma_n/\omega_n^2$, $(D_{no} = 1)$, Γ_n — обратное время жизни фонона, m_n — эффективная масса, $e_n f_{in}$ — ланжевенова сила, такая, что

$$
\langle f_{in}(\vec{r}) f_{i'n'}^*(\vec{r}') \rangle = \frac{\Gamma_n m_n}{\pi e_n^2 N} RT \delta_{nn'} \delta(\omega_i - \omega_i') \delta(\vec{r} - \vec{r}'), \qquad (3)
$$

где k — постоянная Больцмана, T — абсолютная температура в градусах Кельвина и угловые скобки означают усреднение по ансамблю шумовых источников. Поляризации и сила F_{in} находятся с использованием (1) обычным образом:

$$
\vec{P}_j = -\partial U/\partial \vec{E}_j^* (j = i,\ s,\ a,\ s',\ 2); \quad N\vec{F}_{in} = -\partial U/\partial \vec{Q}_{in}^*, \qquad (4)
$$

$$
\operatorname{rot} \operatorname{rot} \vec{E}_j + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} (\varepsilon_\infty \vec{E}_j) = -\frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}_j. \qquad (5)
$$

Соотношения (1) и (4) совместно с уравнением движения (2) и системой уравнений Максвелла (5) являются полной системой, позволяющей рассмотреть перечисленные выше механизмы НР. Здесь ε_∞ —

диэлектрическая проницаемость на частотах, значительно больших инфракрасных, но меньших частот электронного поглощения.

Формулы (1), (2) и (4) определяют поляризацию среды:

$$\vec{P}_s = \hat{\varkappa}_s\vec{E}_s + \hat{\chi}^*\vec{E}_p\vec{E}_i^* + \chi_\infty\vec{E}_p^*\vec{E}_{s'} + (\vartheta_\sigma^*\vec{E}_p^2 + \hat{\chi}_\infty\vec{E}_2)\vec{E}_a^* + \vec{P}_s^{(1)},$$

$$\vec{P}_i = \hat{\varkappa}_i\vec{E}_i + \hat{\chi}(\vec{E}_p\vec{E}_s^* + \vec{E}_p^*\vec{E}_a) + (\hat{\vartheta}_\tau\vec{E}_p^2 + \hat{\chi}\ \vec{E}_2)\vec{E}_{s'}^* + \vec{P}_i^{(0)},$$

$$\vec{P}_a = \hat{\varkappa}_a\vec{E}_a + \hat{\chi}\vec{E}_p\vec{E}_i + (\hat{\vartheta}_\sigma\vec{E}_p^2 + \hat{\chi}_\infty\vec{E}_2)\vec{E}_s^* + \vec{P}_a^{(1)},$$

$$\vec{P}_{s'} = \hat{\varkappa}_{s'}\vec{E}_{s'} + \hat{\chi}_\infty\vec{E}_p\vec{E}_s + (\hat{\vartheta}_\tau^*\vec{E}_p^2 + \hat{\chi}^*\vec{E}_2)\vec{E}_i^* + \vec{P}_{s'}^{(2)},$$

$$\vec{P}_2 = \hat{\chi}_\infty\vec{E}_p^2. \tag{6}$$

где

$$\hat{\varkappa}_i = \hat{\varkappa}_{s'} + \sum_n \varepsilon_{ni}, \quad \varepsilon_{ni} = Ne_n^2/m_n\omega_n^2 D_{ni},$$

$$\hat{\chi} = \chi_\infty + \sum_n \hat{d}_{ni}, \quad \hat{\vartheta}_\tau = \hat{\vartheta}_\infty + \sum_n \hat{\tau}_{ni}, \quad \hat{\vartheta}_\sigma = \hat{\vartheta}_\infty + \sum_n \hat{\sigma}_{ni},$$

$$\hat{d}_{ni} = e_n^{-1}\varepsilon_{ni}\hat{d}_n^{(2)}, \quad \hat{\tau}_{ni} = e_n^{-1}\varepsilon_{ni}\hat{d}_n^{(3)}, \quad \hat{\sigma}_{ni} = \hat{d}_{ni}^2\varepsilon_{ni}^{-1},$$

$$\hat{\varkappa}_{s'} = \hat{\vartheta}_\infty|E_p|^2, \quad \hat{\varkappa}_s = \hat{\varkappa}_a^* = \hat{\vartheta}_\sigma^*|\vec{E}_p|^2, \tag{7}$$

$$\vec{P}_s^{(1)} = \sum_n (\hat{d}_{ni}\vec{f}_{in})^*\vec{E}_p, \qquad \vec{P}_i^{(0)} = \sum_n \varepsilon_{ni}\vec{f}_{in},$$

$$\vec{P}_a^{(1)} = \sum_n \hat{d}_{ni}\vec{f}_{in}\vec{E}_p, \qquad \vec{P}_{s'}^{(2)} = \sum_n (\hat{\tau}_{ni}\vec{f}_{in})^*\vec{E}_p^2.$$

Введенные в (7) параметры имеют простой физический смысл: $4\pi\varepsilon_{n0}$ — вклад n-го решеточного колебания в статическую линейную диэлектрическую проницаемость, d_{n0} и τ_{n0}, σ_{n0} — вклады в статическую квадратичную и кубичную поляризуемости соответственно. Для ниобата лития ($LiNbO_3$) параметры ω_n, Γ_n, ε_{n0} и d_{n0} измерены экспериментально [16].

В системе (6) коэффициенты $\hat{\varkappa}_j$ представляют собой добавки к линейной электронной поляризуемости за счет решеточных колебаний и нелинейности среды. Действительная часть $\varkappa_j$ является вкладом в показатель преломления n_j (можно даже говорить о фокусировке в «чужом» поле и наведенной анизотропии), а мнимая — в коэффициент поглощения.

В качестве простейшего следствия из нашей модели следуют комплексное соотношение симметрии, приведенное, например, Н. Бломбергеном [17] на стр. 85, и вывод об отрицательности мнимой части «стоксовой» восприимчивости $\hat{\vartheta}_\sigma^*$.

§ 2. Четырехфотонное рассеяние в кубичной среде

Пусть среда с отличной от нуля кубичной поляризуемостью прозрачна на частотах ω_p и $\omega_{s'}$, но может обладать поглощением на частоте ω_i. Вначале рассмотрим случай сильного ($\alpha l \gg 1$) поглощения. Поле, созданное нелинейной поляризацией $\vec{P}_{s'}$, в дальней зоне от рассеивающего объема $V = Al$, где A — сечение луча накачки, равно

$$E_{s'} = \frac{\omega_{s'}^2}{c^2 R_0} e^{ik_{s'}R_0} \int_V d\vec{r}\, \vec{e}_{s'} \vec{P}_{s'}\, e^{-i\vec{K}_{s'}\vec{r}} \tag{8}$$

где R_0 — расстояние от какой-нибудь точки объема V до точки наблюдения, $e_{s'}$ — единичный вектор поляризации волны.

Спектральная сила света, т. е. мощность, рассеиваемая в единичные спектральный и угловой интервалы, с использованием (7) и (8) равна

$$P_{\omega\Omega}^{(1)}(s') = \frac{cn'_{s'}}{2\pi} R_0^2 \langle \vec{E}_{s'}^*, \vec{E}_{s'} \rangle = \frac{2\hbar\omega_{s'}^4 n_{s'} S_p^2 V}{c^5 n_p'^2} G(a_i, \varepsilon_i''),$$

$$G(a_i, \varepsilon_i'') = 4\pi \frac{\varepsilon_i''(\vartheta_\tau'^2 - \vartheta_\tau''^2) + 2a_i \vartheta_\tau' \vartheta_\tau''}{a_i^2 + \varepsilon_i''^2} + \eta'', \tag{9}$$

где $S_p = cn'_p |\vec{E}_p|^2/2\pi$ — интенсивность накачки: ϑ_τ' и ϑ_τ'' — действительная и мнимая части кубичной поляризуемости ϑ_τ, являющейся сверткой $\hat{\vartheta}_\tau$ с соответствующими единичными векторами поляризации; η'' — мнимая часть свертки $\sum_n \varepsilon_{ni}^{-1} \hat{\tau}_{ni}^2$; $a_i \equiv n_i^2 - \varepsilon_i'$ — расстройка, вообще говоря отличная от нуля; ε_i' и ε_i'' — действительная и мнимая части диэлектрической проницаемости на «холостой» частоте; $n_j' = n_j \cos\varphi_j \cos\theta_j$, φ_j — угол между лучевым и волновым векторами; θ_j — угол между лучевым вектором и осью Z, за направление которой принято направление вектора $\vec{K}_p$. Функция $G(a_i, \varepsilon_i'')$ определяет форму линии в зависимости от расстройки и величины поглощения, а ее максимум определяет перестроечную характеристику $\omega(\theta_{s'})$.

Анализируя поведение функции $G(a_i, \varepsilon_i'')$, нетрудно получить, что, во-первых, при $\omega_i \approx \omega_n$ эффективнее всего идет процесс рассеяния, при котором волны удовлетворяют закону дисперсии, определяемому из диэлектрической проницаемости без учета затухания

$$n_i^2 = \varepsilon_\infty + 4\pi\varepsilon_{no}(1 - \omega_i^2/\omega_n^2)^{-1}; \tag{10}$$

и, во-вторых, возможное наблюдение рассеянного под малыми углами излучения на частоте $2\omega_p - \omega_n$ при $\omega_n \gg \Gamma_n$, по-видимому, следует объяснять 180-градусным рассеянием и отражением в кристалле, так как при $\omega_i = \omega_n$ $G(a_i, \varepsilon_i'') = 0$. В случае линейного РС (комбинационного 90-градусного и рассеяния света на поляритонах) эти эффекты наблюдались и трактовались аналогичным образом [18, 19].

Так же как и в случае ПЛ [19], существует возможность эффекта компенсации электронной и решеточной частей поляризуемости ϑ_τ:

$$\vartheta_\tau(\omega_i) = \vartheta_\infty (1 - \omega_{oi}^2/\omega_i^2), \tag{11}$$

где $\omega_{oi}^2 = \sum_n \tau_{no} \omega_n^2/\vartheta_\infty$. Таким образом, при подходящем соотношении знаков τ_{no} и ϑ_∞ вблизи частоты $2\omega_p - \omega_{oi}$ должен наблюдаться «провал» в яркости рассеянного излучения.

§ 3. Квадратичное рассеяние в нецентросимметричной среде

В предыдущем параграфе мы рассмотрели РС в кубичной среде, не налагая ограничений снизу на величину отстройки ω_i от ω_n. В среде с

$\widehat{\chi}\neq 0$ и $\widehat{\vartheta}\neq 0$ рассмотрение совершенно аналогично вышеприведенному, но для краткости остановимся лишь на случае, когда «холостая» частота находится не слишком близко к области резонанса ($|\omega_i-\omega_n|\leqslant 3\Gamma_n$), но $\alpha l\gg 1$. Тогда все выражения, приведенные ниже, сильно упрощаются и принимают довольно наглядный вид.

В связи с наличием трех различных механизмов квадратичного рассеяния и различных поляризаций взаимодействующих волн возможна многозначная частотно-угловая зависимость, т. е. существование излучения мощности $P_\Omega^{(l)}(\omega)$, рассеянного с частотой ω под различными углами[1]. Вопрос, связанный с поляризацией волн, требует более конкретного рассмотрения, в данном случае не принципиален и без нарушения общности может быть опущен.

Обозначим через $P_{\omega\Omega}(a)$ и $P_{\omega\Omega}(s')$ совокупность $P_{\omega\Omega}^{(l)}(a,\ s')$, рассеянных на частотах ω_a и $\omega_{s'}$ соответственно, где индекс $l=0$ относится к линейному тепловому РС, происходящему по прямой схеме $\omega_p+\omega_i\to\omega_a$ за счет тепловых шумов на частоте ω_i, $l=1$ — НР за счет кубичной поляризуемости, $l=2$ и 3 — НР в квадратичной среде с участием промежуточных волн ω_i и ω_2 соответственно. Тогда согласно (8) и (9)

$$P_{\omega\Omega}(a)=\Big[C_0N_Tg(x_a,\ y)+C_1(a)\,g_0\Big(\frac{x}{2}\Big)+C_2(a)\,|F(x,\ z)|^2+$$

$$+C_3(a)\,\Delta_2^{-2}g_0\Big(\frac{x'}{2}\Big)\Big]\,l, \tag{12}$$

$$P_{\omega\Omega}(s')=[C_1(s')\,g(x_i,\ y)+C_2(s')\,\Delta_s^{-2}g(x_{s'},\ y)+C_3(s')\,\Delta_2^{-2}g(x_i',\ y)]\,l,$$

где

$$x_j=\Delta_jl,\quad y=\alpha l,\quad \alpha=\omega_i\varepsilon_i''/2cn_i',\quad N_T=[\exp(\hbar\omega_i/kT)-1]^{-1},$$

$$\Delta_s=K_p-K_{iz}-K_{sz},\qquad \Delta_2=2K_p-K_{2z},$$

$$\Delta_a=K_p+K_{iz}-K_{az},\qquad \Delta_{s'}=K_p+K_{sz}-K_{s'z},$$

$$\Delta=2K_p-K_{sz}-K_{az},\qquad \Delta_i=2K_p-K_{s'z}-K_{iz},$$

$$\Delta'=K_{2z}-K_{sz}-K_{az},\qquad \Delta_i'=K_{2z}-K_{iz}-K_{s'z}.$$

Функции $g_0(\xi)=\sin^2\xi/2\pi\xi^2$ и $g(\xi,\ y)=y/\pi(\xi^2+y^2)$ определяют нормированные формы линий. Взаимное расположение волновых векторов легко построить с учетом соответствующего рисунка работы [5]. Коэффициенты $C_l(a)$ равны:

$$C_0=(2\pi\hbar\omega_a^4\,\omega_in_a\chi^2/c^5n_p'n_i'\cos^2\varphi_a)\,S_pV,\qquad C_1(a)=B\vartheta_\sigma^2, \tag{13}$$

$$C_2(a)=4\pi^2B\omega_i^2\chi^4/c^2n_i'^2,\qquad C_3(a)=4\pi^2B\omega_2^2\chi_\infty^4/c^2n_2'^2,$$

где

$$B=(4\pi^2\hbar\omega_a^4\,\omega_sn_a/c^6n_p'^2n_s'\cos^2\varphi_a)\,S_p^2V.$$

Чтобы получить соответствующие значения для $C_l(s')$, необходимо произвести следующие преобразования индексов: $a\to s'$, $s\rightleftarrows i$, $\sigma\to\tau$, $\chi^2\to\chi\chi_\infty$ при $l=2$ и $\chi_\infty^2\to\chi\chi_\infty$ при $l=3$. Резонансная функция $F(x,\ z)$, где $z=x_a+iy$, имеет вид (ср. с [8] при $\alpha\to 0$):

[1] Под частотой ω понимается набор частот вокруг некой центральной частоты в пределах спектральной ширины линии. Индекс l указывает на различие механизмов рассеяния, поляризаций взаимодействующих волн и (или) углов рассеяния.

$$F(x,\ z)=\frac{il}{z-x}\left[\sqrt{g_0\left(\frac{x}{2}\right)\exp ix}-\sqrt{g_0\left(\frac{z}{2}\right)\exp iz}\right]. \tag{14}$$

Сила света определяется обычным образом:

$$P_{\Omega}=\int\limits_{-\infty}^{\infty}P_{\omega\Omega}\,d\omega=P_{\omega_0\Omega}\,\Delta\omega_{\text{эфф}}. \tag{15}$$

($P_{\omega_0\Omega}$ — «резонансная» мощность при $\Delta_j=0$). Используя соотношение $\int g(\xi,\ y)\,d\xi=1$, получим, например, для излучения на частоте $\omega_{s'}$ при $l=1$ из (12), что

$$P_{\Omega}^{(1)}(s')=C_1(s')\,u_{s'i},\quad \Delta\omega_{\text{эфф}}=\pi\alpha u_{s'i}, \tag{16}$$

где

$u_{\alpha\beta}=|v_\alpha v_{\beta z}/s_\alpha(\vec{v}_\alpha-\vec{v}_\beta)|$, $\vec{s}_j=\vec{k}_j/k_j$, групповая скорость $\vec{v}_j=\partial\omega/\partial\vec{k}_j$ и $v_j=\vec{v}_j\vec{s}_j$ ($j=\alpha,\ \beta;\ \alpha,\ \beta=i,\ s,\ a,\ s'$).

Таким образом, интегральная мощность рассеянного света не зависит непосредственно от поглощения (ср. [4]), а линия имеет лоренцеву форму с эффективной шириной, пропорциональной коэффициенту поглощения. Как правило, в интересующей нас спектральной области $u_{s'i}\approx v_i$ и легко показать, что вблизи изолированного резонанса $\Delta\omega_{\text{эфф}}$ порядка ширины ИК-резонанса или рамановской линии ($\Delta\omega_{\text{эфф}}=\pi\Gamma_n/2$).

Эти же выводы справедливы при рассеянии в дальней антистоксовой области и при $l=2$, 3. Более подробные исследования при $\omega_i\approx\omega_n$ также приводят к оптимальному закону дисперсии (10). Аналогично (11) возможно наблюдение «провала» в яркости излучения частоты из-за компенсации электронной и решеточной частей квадратичной поляризуемости. В промежуточном случае, когда $y\sim1$, форма линии трансформируется с изменением y аналогично форме линии ПЛ [4].

При рассеянии в ближней антистоксовой области с участием «холостой» волны ω_i форма линии определяется функцией $F(x,\ z)$. В случае произвольных аргументов выражение (14) слишком громоздко и лишено наглядности, поэтому рассмотрим подробнее лишь некоторые предельные случаи. Из (14) следует, что при произвольном поглощении существует резонанс $x=0$, $x_s\gg x$ и

$$|F(x,\ y)|^2=(\alpha^2+\Delta_s^2)^{-1}\,g_0(x/2).$$

1. Пусть $\Delta_{so}\gg u_{as}(u_{si}l)^{-1}$, где $\Delta_{so}=\Delta_s(\omega_{ao})$ и частота ω_{ao} определяется из соотношения $\Delta(\omega_{ao})=0$. В этом случае

$$P_{\omega\Omega}^{(2)}(a)=C_2(a)\,l\,(\Delta_{so}^2+\alpha^2)^{-1}\,g_0(x/2). \tag{17,1}$$

Таким образом, при произвольном поглощении на «холостой» частоте форма линии такая же, как и в случае прозрачной среды, эффективная ширина линии $\Delta\omega_{\text{эфф}}=2\pi u_{as}l^{-1}$ и интегральная мощность непосредственно зависит от поглощения, что является существенным отличием от случаев ПЛ и Мандельштам—Бриллюэновского рассеяния.

2. При $\Delta_{so}\sim\alpha\ll u_{as}(u_{si}l)^{-1}$ форма линии лоренцова:

$$P_{\omega\Omega}^{(2)}=0{,}5\,C_2(a)\,l^2\alpha^{-1}\,g\,(xu_{as}u_{si}^{-1},\ y),\quad \Delta\omega_{\text{эфф}}=\pi\alpha u_{si} \tag{17,2}$$

3. Рассмотрим процесс РС, при котором первоначальный распад фотона накачки происходит с большой волновой расстройкой (т. е. $\Delta_s l\gg1$), а сложение с $\Delta_a\approx0$. Тогда при $|x_s|\gg|x_a|\approx0$ и $|x_s|\gg y\gg1$

$$P^{(2)}_{\omega\Omega}(a) = 0{,}5\,C_2(a)\,l\,(y\Delta_s^2)^{-1}\,g\,(x_a, y). \qquad (17{,}3)$$

Именно этот случай РС при $y \ll 1$ был рассмотрен Тангом [12]. Интересно отметить, что его интегральная интенсивность при $y \gg 1$ не зависит от длины кристалла.

Сравним эффективности различных процессов НР и роль вкладов $\widehat{\chi}$ и $\widehat{\vartheta}$. Оценки проведем для кристалла ниобата лития ($\chi_\infty = 4\cdot 10^{-8}$ $(см^3/эрг)^{1/2}$ [20], $\vartheta_\infty \approx 10^{-14}$ $см^3/эрг$) при накачке от неодимового лазера ($\lambda_p = 1{,}06$ *мк*) и частоте ω_i, лежащей вблизи изолированного резонанса $\omega_n = 322$ $см^{-1}$ ($\omega_n - \omega_i \approx 4\Gamma_n$); согласно (16), для этого колебания $\Gamma_n = 6$ $см^{-1}$, $4\pi\varepsilon_{n0} = 2{,}2$, $d_{n0}/\chi_\infty = 4{,}8$.

Если принять $P^{(1)}_\Omega(s')$ за некую условную единицу, то, используя соотношения (7), (12), (15) и (17,1), получим абсолютные в этих единицах значения для интегральных мощностей рассеиваемого света:

$$P^{(1)}_\Omega(a) \approx 10^4, \quad P^{(2)}_\Omega(s') \approx P^{(3)}_\Omega(a) \approx 10^5,$$

$$P^{(3)}_\Omega(s') \approx 4\cdot 10^5, \quad P^{(2)}_\Omega(a) \approx 2\cdot 10^6, \quad P^{(0)}_\Omega(a) \approx 10^9 A P_p^{-1}.$$

Последнее значение экспоненциально падает с ростом ω_i. Как и в случае прозрачной среды [5], вклад в эффективность РС двух трехфонных последовательных процессов при $\vec{K}_p \| \vec{K}'_p$ больше, чем одного четырехфотонного. Согласно (16), 1 усл. ед. $= 2\cdot 10^{-11}$ $P_p^2 l/A$ *вт/стер*, где мощность накачки P_p выражена в единицах *Мвт*, l в *см*, A в $см^2$.

В силу значительных трудностей, связанных с регистрацией рассеянной радиации, экспериментальных результатов явно недостаточно для сравнения теории и эксперимента. Эффективность рассеяния, однако, можно поднять на несколько порядков, подбирая частоты накачек и кристаллы с такими дисперсионными свойствами, при которых возможен двойной резонанс, например $\Delta_s = \Delta_{s'} = 0$, $\Delta_2 = \Delta_i' = 0$. О подобных экспериментах сообщалось недавно Тангом с сотрудниками [21].

Нетрудно заметить, что в рамках изложенной выше теории легко провести обобщение на случай произвольного числа ($n > 2$) фотонов возбуждающей накачки. Пути такого обобщения нетрудно проследить на основе сравнения линейного и квадратичного РС.

В заключение автор выражает благодарность Д. Н. Клышко за полезные обсуждения работы.

ЛИТЕРАТУРА

1. Гринберг А. А., Крамер Н. И. «Физика твердого тела», 8, 1555, 1966; **10**, 2002, 1963.
2. Robl H. R. Quantum Electronics. N. Y., 1964, p. 1535.
3. Kroll N. В сб.: «Квантовая оптика и квантовая радиофизика». М., «Мир», 1966.
4. Клышко Д. Н. ЖЭТФ, **55**, 1006, 1968.
5. Клышко Д. Н., Назарова Н. И. ЖЭТФ, **58**, 878, 1970.
6. Зельдович Б. Я. ЖЭТФ, **58**, 1348, 1970.
7. Стрижевский В. Л., Обуховский В. В. ЖЭТФ, **58**, 929, 1970.
8. Terhune R., Maker P. D., Savage C. M. «Phys. Rev. Lett.», **14**, 681, 1965.
9. Гринберг А. А., Рывкин С. М., Фишман И. М., Ярошецкий И. Д. Письма в ЖЭТФ, **7**, 324, 1968.
10. Weinberg D. L. «Appl. Phys. Lett.», **14**, 32, 1969.
11. Meadors J. G., Kavage W. T., Damon E. K. «Appl. Phys. Lett.», **14**, 360, 1969.
12. Tang C. L. «Phys. Rev.», **182**, 367, 1969.
13. Henry C. H., B. Garrett C. G. «Phys. Rev.», **171**, 1958, 1968.
14. Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. Электродинамика сплошных сред. М., Физматгиз, 1957.

15. B. Garrett C. G. IEEE J. Quantum Electron., QE-4, 70, 1968.
16. Barker A. S., London R. «Phys. Rev.», **158**, 433, 1967; Kamihov I. P., Iohnston W. D. «Phys. Rev.», **160**, 519, 1967.
17. Бломберген Н. Нелинейная оптика. М., «Мир», 1966.
18. Puthoff H. E., Pantell P. H., Huth B. G., Chacon M. A. «J. Appl. Phys.», **39**, 2144, 1968.
19. Клышко Д. Н., Пенин А. Н., Полковников Б. Ф. Письма в ЖЭТФ, **11**, 11, 1970.
20. Клышко Д. Н., Криндач Д. П. ЖЭТФ, **54**, 697, 1968.
21. Andrews R. A., Rabin H., Tang C. L. «Phys. Rev. Lett.», **29**, 605, 1970.

Поступила в редакцию
7.9 1971 г.

Кафедра
физики твердого тела