

УДК 535.5

ИНТЕРФЕРЕНЦИЯ ПРОЦЕССОВ ГЕНЕРАЦИИ ТРЕТЬЕЙ ОПТИЧЕСКОЙ ГАРМОНИКИ И СУММАРНОЙ ЧАСТОТЫ ПРИ ОТРАЖЕНИИ ОТ ПОВЕРХНОСТИ Si: СВЯЗЬ С СИММЕТРИЕЙ КРИСТАЛЛИЧЕСКОЙ СТРУКТУРЫ

С. В. Говорков, Н. И. Коротеев, И. Л. Шумай

(кафедра общей физики и волновых процессов)

1. Целью настоящей работы является изложение экспериментов по наблюдению интерференции нелинейных оптических процессов различных порядков при отражении от поверхности кристаллического кремния: генерации третьей гармоники (ГТГ), идущей на кубической дипольной $\chi^{(3)D}$, и генерации суммарной частоты (ГСЧ), идущей на квадратичной квадрупольной $\chi^{(2)Q}$ нелинейностях. Эффект может быть использован для определения кристаллической симметрии поверхности отражения и измерения относительных величин компонент тензоров $\chi^{(2)Q}_{ijkl}$ и $\chi^{(3)D}_{ijkl}$. Установлено, что параметр анизотропии тензора $\chi^{(3)D}_{ijkl}(\omega; \omega, \omega, \omega)$ кремния (ω соответствует частоте излучения с $\lambda=1,06$ мкм) аномально мал по сравнению с аналогичным параметром тензора $\chi^{(2)Q}_{ijkl}(\omega; \omega, 2\omega)$.

2. В последнее время для регистрации структурных изменений в приповерхностных слоях кристаллических арсенида галлия и кремния была применена генерация второй (оптической) гармоники (ГВГ) в геометрии «на отражение» [1—5]. Аналогичную структурную информацию, дополняющую данные ГВГ, может дать в принципе и процесс ГТГ [6]. При этом в centrosимметричных кристаллах, каковым является исследованный нами кремний, ГТГ и ГВГ порождаются механизмами различной природы (нелинейной дипольной и в основном квадрупольной объемными поляризациями соответственно), имеющими к тому же различный порядок по степени оптического поля (3-й и 2-й соответственно). Ясно, что данные этих двух методов исследования приповерхностных слоев кристаллов отнюдь не сводятся друг к другу; представляет интерес одновременное измерение нелинейностей обоих типов.

В эксперименте мы одновременно наблюдали ГТГ и родственный ГВГ процесс генерации суммарной частоты (ГСЧ) по схеме $3\omega = \omega + 2\omega$ при отражении от поверхности (111) кристаллического кремния. Оказалось, что эффективности этих процессов в Si близки, так что легко удается наблюдать их интерференцию и затем использовать это явление для взаимной калибровки компонент

$$\chi^{(3)D}_{ijkl}(\omega; \omega, \omega, \omega) \text{ и } \chi^{(2)Q}_{ijkl}(\omega; \omega, 2\omega).$$

3. Схема экспериментов представлена на рис. 1. Источником излучения с частотой ω служил лазер на АИГ: Nd^{3+} (1), работающий в квазинепрерывном режиме с акустооптической синхронизацией мод и модуляцией добротности. При регистрации ГСЧ примерно 20% энергии основного излучения предварительно преобразовывалось в излучение с $\lambda=0,53$ мкм (частота 2ω) в кристалле $LiIO_3$ (2); поляризация излучения 2ω была линейной и перпендикулярной к плоскости падения на кристалл Si (s-поляризация). Излучение ω было поляризовано в плоскости падения (p-поляризация). Угол падения на образец (3) составлял $\theta \approx 45^\circ$. Кристалл Si вращался вокруг нормали к поверхности при помощи шагового двигателя (4). Плотность потока энергии зондирующих излучений на поверхности кристалла (< 20 Дж/см²) была достаточно мала, чтобы не вызвать повреждение или отжиг поверхности.

4. Ожидаемые зависимости интенсивности третьей гармоники (ТГ) $I_{ТГ}$ от угла поворота кристалла вокруг оси [111] (отсчитывается от проекции оси [100] на плоскость: (111)) имеют в соответствии с [6] следующий вид при регистрации p-компоненты ТГ:

$$I_{ТГ}^{p-p}(\psi) \sim |\xi_D^- \cos 3\psi + a(\chi_{111}^{(3)D} - \xi_D^-)|^2;$$

при регистрации s-компоненты:

$$I_{ТГ}^{p-s}(\psi) \sim |\xi_D^- \sin 3\psi|^2. \tag{1}$$

Здесь $\xi_D^- = \chi_{111}^{(3)D} - (\chi_{122}^{(3)D} + \chi_{1212}^{(3)D} + \chi_{1221}^{(3)D})$ — параметр анизотропии дипольной нелинейности, a — коэффициент порядка 1, зависящий от θ .

На рис. 2, б представлена полученная экспериментально зависимость $I_{\Gamma\Gamma}^{p \rightarrow p}(\psi)$. Отсутствие заметной модуляции постоянного уровня говорит о том, что величина изотропного вклада $\chi_{1111}^{(3D)}$ намного превышает ζ_D . Этот результат подтверждается тем, что при регистрации s -компоненты сигнала ТГ не наблюдается (в согласии с (1)). Поскольку p -компонента сигнала ТГ характеризуется отношением сигнала к шуму ~ 100 , можно дать следующую оценку:

$$|\zeta_D| \cdot |\chi_{1111}^{(3D)}|^{-1} < 0,3.$$

5. Когда в падающем на кристалл излучении наряду с ω присутствует и 2ω , вместе с ГТГ идет процесс ГСЧ.

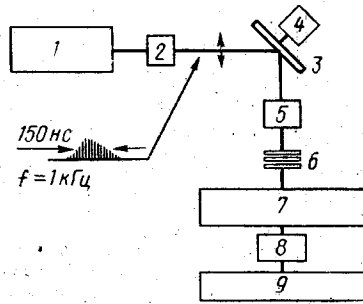


Рис. 1. Схема установки для наблюдения ГТГ и ГСЧ на поверхности Si: 1 — лазер на АИГ: Nd^{3+} , 2 — кристалл LiIO_3 , 3 — образец Si, 4 — шаговый двигатель, 5 — анализатор, 6 — набор фильтров, 7 — монохроматор, 8 — ФЭУ, 9 — система регистрации

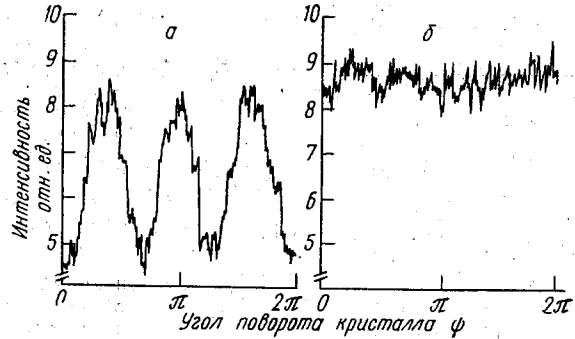


Рис. 2. Зависимость интенсивности p -компоненты ТГ, поляризованной в плоскости падения (б) и интенсивности p -компоненты интерферирующих сигналов ТГ и СЧ (а) от угла поворота кристалла ψ

Для p -поляризованного сигнала на длине волны ТГ и СЧ $\lambda = 0,35$ мкм следует ожидать [6]:

$$I_{\text{СЧ+ТГ}}^{p \rightarrow p} \sim |\zeta^Q \sin 3\psi + A|^2, \quad (2)$$

где $\zeta^Q = \chi_{1111}^{(2)Q} - (\chi_{1122}^{(2)Q} + \chi_{1212}^{(2)Q} + \chi_{1221}^{(2)Q})$ — параметр анизотропии квадрупольной нелинейности, константа A включает в себя изотропную часть сигнала СЧ, а также изотропный сигнал ТГ.

На рис. 2, а представлена полученная экспериментально зависимость $I_{\text{СЧ+ТГ}}^{p \rightarrow p}(\psi)$. Наблюдается интерференция анизотропного и изотропного вкладов в соответствии с формулой (2). Величина анизотропного вклада может быть легко измерена. Теперь, чтобы оценить отношение $|\zeta_Q|/|\chi_{1111}^{(3D)}|$, воспользуемся соотношением, получаемым прямым расчетом:

$$\frac{I_{\text{ТГ+СЧ}}^{\text{анизотр}}}{I_{\text{ТГ}}} \approx \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \frac{I_2}{I_1^2} \frac{c}{4\pi} \frac{|\zeta^Q|^2}{|\chi_{1111}^{(3D)}|^2},$$

где I_1 и I_2 — соответственно интенсивности излучений с $\lambda = 1,06$ и $0,53$ мкм, ω — частота излучения с $\lambda = 1,06$ мкм. Оценивая интенсивность $I_1 \approx 2 \cdot 10^{15}$ эрг/с·см²,

$$I_{\text{ТГ+СЧ}}^{\text{анизотр}}/I_{\text{ТГ}} \approx 0,02, \text{ получаем } |\zeta_Q| \cdot |\chi_{1111}^{(3D)}|^{-1} \approx 10^{-3} \text{ ед. СГСЭ.}$$

Поскольку величина $|\chi_{1111}^{(3D)}|$, согласно измерениям [7], составляет $|\chi_{1111}^{(3D)}| = 1,8 \cdot 10^{-10}$, то $|\zeta_Q| \approx 10^{-13}$ ед. СГСЭ.

6. Таким образом, в наших экспериментах впервые зарегистрирована интерференция нелинейных оптических процессов различного порядка и различной физической природы — ГТГ и ГСЧ — при отражении от поверхности Si (111). Измерены параметры анизотропии ζ_D и относительные величины $\chi_{111}^{(3)D}$ и ζ_Q .

Авторы признательны С. А. Ахманову за поддержку работы и обсуждения результатов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] Ахманов С. А. и др. Квант. электроника, 1983, 10, с. 1077; Opt. Comm., 1983, 47, p. 202; Письма в ЖТФ, 1984, 10, с. 1118. [2] Driscoll T. A., Guidotti D., Gerritsen H. J. Solid State Comm., 1983, 46, p. 337. [3] Sharf C. V., Yen R., Hirlimann C. Phys. Rev. Lett., 1983, 51, p. 900. [4] Tom H. W. K., Heinz T. F., Shen Y. R. Phys. Rev. Lett., 1983, 51, p. 1983. [5] Litwin J., Moss D. J., Sipe J. E., van Driel H. M. In: IQEC-84, Postdeadline papers, W1129. [6] Ахманов С. А., Емельянов В. И., Коротеев Н. И., Семиногов В. Н. УФН, 1985, 145, с. 966. [7] Burns W. K., Bloembergen N. Phys. Rev., 1971, B4, p. 3437.

Поступила в редакцию
01.07.85

ВЕСТН. МОСК. УН-ТА. СЕР. 3. ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ, 1986, Т. 27, № 3

УДК 621.373.826

О РАСПРЕДЕЛЕНИИ УСИЛЕНИЯ ПО ВРАЩАТЕЛЬНЫМ ЛИНИЯМ В СО₂-ЛАЗЕРЕ НЕПРЕРЫВНОГО ДЕЙСТВИЯ

А. Б. Васильев, В. А. Спажакин

(кафедра оптики и спектроскопии)

В настоящей работе проведено экспериментальное изучение распределения коэффициента поглощения (КП) или усиления (КУ) по колебательно-вращательным переходам молекул СО₂ при наличии стационарного насыщающего поля, резонансного одному из них. Целью работы являлось получение количественной информации о величине искажений «равновесного» распределения КУ в СО₂-лазере под действием генерации. Экспериментальные данные такого рода в литературе отсутствуют, а результаты теоретических расчетов, полученные в рамках различных подходов [1—4], не сопоставлены между собой. (В частности, из результатов [4] следует возможность 5%-ного отличия заселенностей вращательных уровней СО₂ от бoльцмановских значений при плотностях поля $\sim 10^2$ Вт/см².) Вместе с тем такие сведения важны для выяснения границ применимости модели бoльцмановского распределения населенностей по вращательным уровням, широко используемой для расчетов энергетических характеристик молекулярных лазеров непрерывного действия.

Теоретические оценки проводились как путем решения балансных уравнений для плотностей заселенностей вращательных уровней с привлечением модели сильных столкновений, так и на основе диффузионной модели вращательной релаксации, предполагающей механизм вращательного обмена, близкий к «пошаговому». В первом случае считалось [2], что вероятность обмена энергией между двумя вращательными уровнями зависит от квантового числа одного из них $\Gamma_{ij'j} = \Gamma_i F(j)$, где Γ_i — величина, характеризующая скорость вращательной релаксации i -го колебательного уровня, а функция $F(j)$ представляет собой нормированное бoльцмановское распределение. Во втором случае использовалось решение стохастических диффузионных уравнений для распределений плотностей населенностей по континууму вращательных уровней [1, 5]. При этом коэффициент диффузии выражался соотношением $D_i = \kappa_i x$, где κ_i — вероятность вращательного обмена, $x = j(j+1)\Theta_R/T$ — непрерывная энергетическая координата (Θ_R и T — характеристическая и вращательная температуры).

Основные результаты выполненных расчетов свидетельствуют о том, что для типичных параметров активной среды газоразрядного СО₂-лазера заметные отклонения распределения КУ от «равновесного» (более 1%) можно ожидать лишь при значительных степенях насыщения усиления $X \geq 10$ ($X = a_j^0/a_j$; a_j^0 и a_j — ненасыщенный и насыщенный КУ). При использовании характерных для СО₂ значений $\kappa_i/\Gamma_i \sim 10^{-2}$ [5] оба подхода дают близкие количественные оценки, хотя приводят к существенно различным распределениям насыщенного КУ.