

УДК 535.375.5

РАССЕЯНИЕ СВЕТА НА ПОЛЯРИТОНАХ В ДВУХОСНОМ КРИСТАЛЛЕ ВБЛИЗИ БИНОРМАЛИ

Т. В. Лаптинская, А. Н. Пенин, М. В. Чехова

(кафедра квантовой радиофизики)

Трехфотонное параметрическое рассеяние света на поляритонах (РП) [1] дает уникальную по информативности возможность исследования анизотропии линейных и нелинейных оптических свойств и анизотропии динамических характеристик кристаллических решеток в широком частотном диапазоне от единиц до сотен обратных сантиметров. Однозначная связь спектра сигнального излучения со спектром флуктуаций поля и тем самым со спектром собственных состояний кристалла определяется выполнением в любом параметрическом процессе условий пространственного и временного синхронизма:

$$\omega_S = \omega_L - \omega_P, \quad k_S = k_L - k_P. \quad (1)$$

Здесь k_L , k_S , k_P — волновые векторы накачки, сигнала и поляритона соответственно.

В работе исследуется связанная с анизотропией особенность спектра РП, возникающая при распространении поляритонной волны вдоль или вблизи оптической оси двухосного кристалла (бинормали).

В качестве модели анизотропной среды выбран кристалл иодноватой кислоты α -НЮ₃. Анизотропия фононов этого кристалла хорошо изучена с помощью комбинационного рассеяния света [2, 3]. Оптические характеристики кристалла в видимом диапазоне спектра измерены с высокой точностью. Это дало возможность во многих случаях проводить количественные оценки. А характер анизотропии оптических и нелинейных оптических свойств и значительная величина квадратичной восприимчивости [4] позволяли достаточно легко получать спектры РП при различных ориентациях треугольника волнового синхронизма Δ , определяемого векторами $k_L = k_S + k_P$, относительно элементов симметрии кристалла.

В видимой области спектра бинормали расположены в плоскости ХZ кристалла. Дисперсия направления бинормалей в полосе прозрачности незначительна. Однако по мере приближения к полосе поглощения, определяемой кристаллической решеткой, все большее влияние начинает оказывать анизотропия решеточных колебаний, и дисперсия направления бинормалей увеличивается. Для определения направления бинормалей и их дисперсии в окрестности наиболее высокочастотных колебаний по спектрам РП измерялись главные значения диэлектрической проницаемости в диапазоне 1000—5000 см⁻¹. Соответствующие дисперсионные кривые приведены на рис. 1. Главные значения сил осцилляторов S_i трех наиболее высокочастотных колебаний: деформационного колебания $\delta(\text{OH})$ с частотой $\omega = 1165$ см⁻¹, бифона деформа-

ционного колебания $\delta(\text{OH})$ с частотой $\omega = 2250 \text{ см}^{-1}$ и валентного колебания $\nu(\text{OH})$ с частотой $\omega = 2950 \text{ см}^{-1}$ — даны в таблице.

	1165 см^{-1}	2250 см^{-1}	2950 см^{-1}
S_x	0,015	0,004	0,010
S_y	0,037	0,004	0,035
S_z	0,006	0,021	0,170

Зная дисперсию главных значений показателя преломления, можно определить направление и дисперсию бинормалей. На частотах, больших 5000 см^{-1} , бинормали располагаются в плоскости XU . При уменьшении частоты угол между бинормалью и осью X уменьшается, и на частоте 4800 см^{-1} кристалл становится одноосным. При дальнейшем уменьшении частоты бинормали переходят в плоскость XU и постепенно их направление смещается от оси X к оси Y . Соответствующая дисперсионная кри-

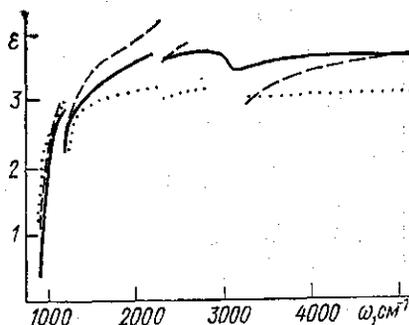


Рис. 1. Дисперсия главных значений диэлектрической проницаемости кристалла иодноватой кислоты: ϵ_x (точечная линия), ϵ_y (сплошная), ϵ_z (штриховая)

вая приведена на рис. 2. На частоте 3200 см^{-1} кристалл снова становится одноосным, направление бинормалей совпадает с направлением оси Y . Далее бинормали переходят в плоскость YZ . На рис. 2 приведена также дисперсионная кривая направления волнового вектора поляритонной волны k_p при следующей геометрии рассеяния: $\Delta \in XU$; угол между k_L и Y $\varphi = 54^\circ$; векторы поляризации поляритона и накачки e_p ,

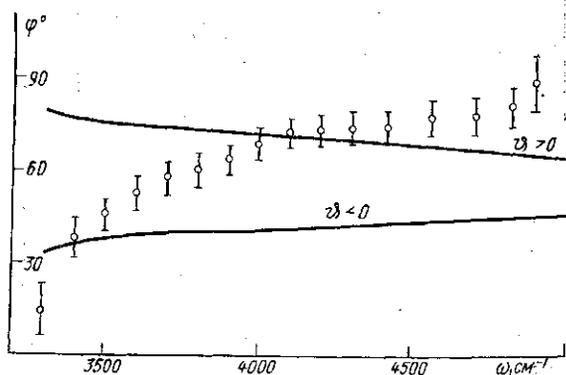


Рис. 2. Дисперсия угла между бинормалью и осью Y (кружки) и угла φ между волновым вектором поляритона k_p и осью Y (сплошные линии соответствуют углам рассеяния $\vartheta > 0$ — верхняя и $\vartheta < 0$ — нижняя)

$e_L \in XU$; вектор поляризации сигнала $e_S \parallel Z$. Соответствующий указанной геометрии рассеяния спектр приведен на рис. 3. Из хода дисперсионных кривых направления бинормалей и волнового вектора поляритона (см. рис. 2) видно, что на частотах 3400 и 4000 см^{-1} поляритоны распространяются вдоль оптических осей кристалла. Ниже будем рассматривать только область пересечения дисперсионных кривых направления в окрестности частоты 4000 см^{-1} , так как второе пересечение находится в непосредственной близости от валентного колебания, и его анализ существенно сложнее.

На рис. 3, б и в приведены спектры РП, полученные при геометрии рассеяния, несколько отличной от случая рис. 3, а: плоскость треугольника волновых векторов Δ выводилась из кристаллофизической плоскости XU на небольшой угол, равный 8° (б) и 22° (в). При этом волновой вектор накачки оставался в плоскости XU . Основным отличием спектров (б) и (в) от (а) является возникновение в области, близкой к пересечению с бинормалью, разрыва в перестроечной кривой спектра. Перестроечная кривая представляет собой линию максимумов интенсивности рассеяния, определяемых при фиксированных значениях поляриционной частоты из условия

$$\partial P(\vartheta, \omega) / \partial \vartheta |_{\omega=\omega_0} = 0,$$

где $P(\vartheta, \omega)$ — интенсивность рассеяния на частоте ω_0 в единичном спектральном и угловом интервале; ϑ — угол между k_L и k_S . Перестроечная кривая соответствует геометрическому месту точек точного выполнения условий синхронизма (1). Появление на одной частоте двух перестроечных кривых свидетельствует о возможности одновременного выполнения двух условий синхронизма на одной поляриционной частоте.

Оптические свойства анизотропного кристалла характеризуются поверхностью волновых нормалей Френеля, которая в случае двухосного кристалла представляет собой две вложенные друг в друга по-

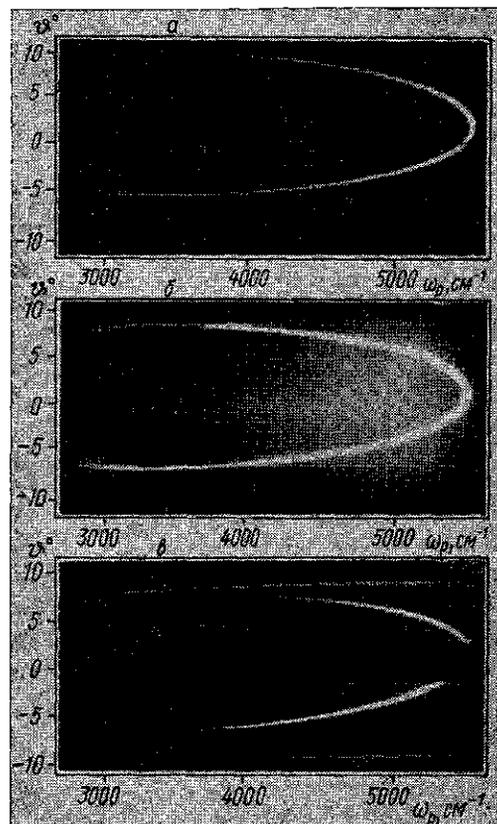


Рис. 3. Спектры рассеяния света на поляритонах: а — Δ , $e_L, e_P \in XU$, $e_S \parallel Z$; б — угол ψ между Δ и плоскостью XU равен 8° ; в — $\psi = 22^\circ$

верхности, имеющие четыре общие точки. Эти точки определяют направления бинормалей. Обозначим волновые векторы и показатели преломления, относящиеся к внутренней и внешней поверхностям волновых нормалей, индексами «а» и «б» соответственно. Тогда в условиях нормальной дисперсии для выбранного направления выполняются соотношения $n_L^{a,b} > n_S^{a,b} > n_P^{a,b}$ и $n_i^b > n_i^a$, так как имеет место соотношение $\omega_L > \omega_S > \omega_P$. Условие синхронизма (1) выполняется, если $k_L \equiv k_L^a$, $k_S \equiv k_S^b$ и $k_P \equiv k_P^a$ либо $k_P \equiv k_P^b$. В этом случае возможно одновременное существование двух направлений, для которых выполняется условие (1). Кроме того, возможно и появление третьего направления при условиях $k_S \equiv k_S^a$; $k_L \equiv k_L^a$ и $n_P^b - n_S^a \geq (\omega_L / \omega_P) (n_L^a - n_S^a)$. Таким образом, при произвольной геометрии рассеяния и произвольной ориентации треугольника волновых векторов относительно кристаллографических

осей в оптиически двухосном кристалле возможно одновременное существование не более трех перестроечных кривых. Если ни один волновой вектор не принадлежит главным кристаллографическим плоскостям, то вид тензора квадратичной восприимчивости не накладывает дополнительных ограничений на число наблюдаемых кривых.

В рассматриваемом случае одновременное существование двух перестроечных кривых в диапазоне $3100-5000 \text{ см}^{-1}$ определяется возможностью «замыкания» волнового вектора поляритона как на внутреннюю, так и на внешнюю поверхности. Как следует из природы френе-

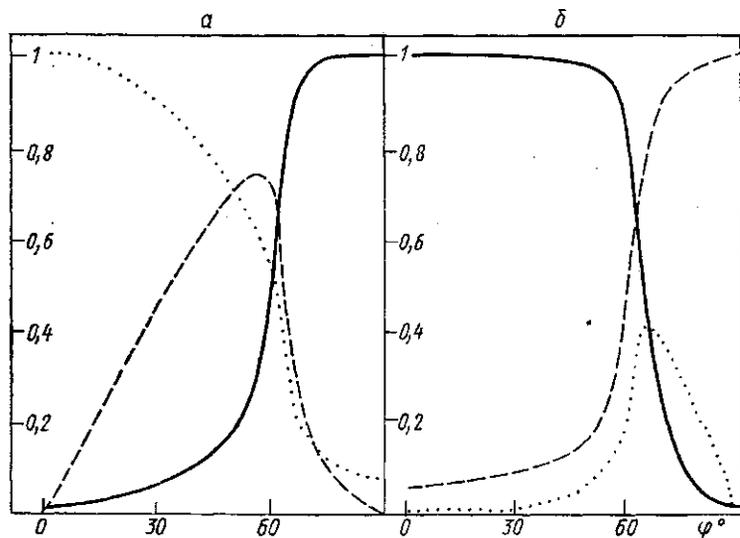


Рис. 4. Зависимость проекций ортов поляризации поляритона на кристаллографические оси от угла φ между волновым вектором поляритона k_P и осью Y при $\psi=4^\circ$: e_x (точечная линия), e_y (штриховая), e_z (сплошная), k_P принадлежит внутренней (а) и внешней (б) поверхностям Френеля

левых поверхностей, две перестроечные кривые могут соприкоснуться (слиться в одну) только тогда, когда треугольник волнового синхронизма лежит точно в плоскости XU , содержащей бинормали. Малейший выход Δ из плоскости XU с необходимостью приводит к появлению зазора, к возникновению двух перестроечных кривых. Происходит перераспределение интенсивности рассеяния вдоль перестроечных кривых, соответствующих условию принадлежности поляритона к внутренней или внешней волновой поверхности. Наблюдаемое перераспределение интенсивности связано с видом тензора квадратичной восприимчивости и характерным изменением направления поляризации поляритонной волны в окрестности бинормали.

Интенсивность рассеяния определяется сверткой тензора квадратичной восприимчивости с ортами взаимодействующих волн. В $\alpha\text{-HfO}_3$, имеющем симметрию 222, тензор квадратичной восприимчивости $\hat{\chi}(\omega_S = \omega_L - \omega_P)$ имеет три отличные от нуля компоненты $\chi_{ijk}(\omega_S = \omega_L - \omega_P)$ при $i \neq j \neq k$. Кроме того, необходимо учитывать зависимость величины компонент от перестановки частот вследствие нарушения условий Клейнмана из-за наличия поглощения. В этом случае компоненты

поляризации сигнального поля, появившейся в процессе РП, будут иметь вид

$$\begin{aligned} P_{SX} &= \chi_{XYZ} e_Y^L e_Z^P + \chi_{XZY} e_Z^L e_Y^P, \\ P_{SY} &= \chi_{YXZ} e_X^L e_Z^P + \chi_{YZX} e_Z^L e_X^P, \\ P_{SZ} &= \chi_{ZXY} e_X^L e_Y^P + \chi_{ZYX} e_Y^L e_X^P. \end{aligned} \quad (2)$$

Если $\Delta \in XY$ и $e_s \parallel Z$ (см. рис. 3, а), то интенсивность рассеяния на тех участках перестроечной кривой, которые обуславливаются дисперсией $n_z(\omega)$, равна нулю, хотя условия синхронизма и выполнены. Отлична от нуля интенсивность рассеяния на участках, где имеются не равные нулю e_x и e_y компоненты вектора поляризации поляритона, волновой вектор которого принадлежит поверхности, связанной с n_x и n_y .

На рис. 4 приведены зависимости компонент орта поляризации поляритона от направления k_p на сечениях, образованных плоскостью треугольника волнового синхронизма Δ и поверхностями волновых нормалей при выводе Δ из плоскости XY на 4° . Резкое изменение компонент орта поляризации поляритона вблизи направления бинормали и определяет смену интенсивностей рассеяния вдоль перестроечных кривых, соответствующих поляритонам с волновым вектором k_p^a (перестроечная кривая с меньшими углами рассеяния) и k_p^b при изменении частоты. Зависимость величин векторов поляризации поляритона от направления k_p тем резче вблизи бинормалей, чем меньше угол вывода Δ из плоскости XY .

Отметим одну особенность, проявляющуюся при малых углах вывода плоскости Δ из плоскости XY . Как следует из предыдущего рассмотрения, зависимость интенсивности рассеяния от θ на фиксированной частоте должна иметь вид кривой с двумя максимумами. Однако при углах вывода Δ из плоскости XY порядка $3-6^\circ$ наблюдается появление дополнительной ветви рассеяния между ветвями, связанными с внешней и внутренней поверхностями Френеля. Соответствующая этому случаю форма линии приведена на рис. 5. Видно, что наличие трех максимумов выражено наиболее явно тогда, когда частота измерения совпадает с частотой, соответствующей пересечению дисперсионных кривых направления бинормали и волнового вектора поляритона (см. рис. 2).

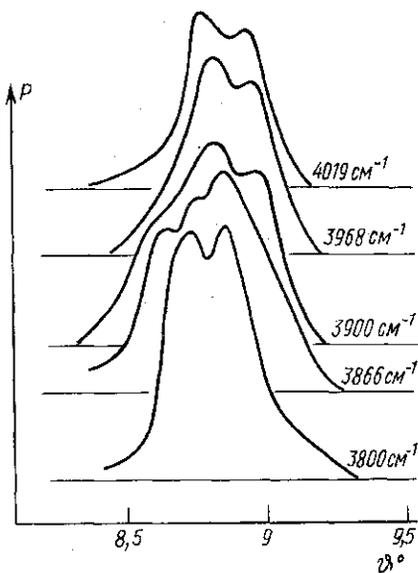


Рис. 5. Зависимость интенсивности рассеяния P от угла θ при $\psi = 3^\circ$

Причина появления дополнительного состояния и его природа, вопрос о том, связано ли оно с особенностями линейного распространения света вблизи бинормали или с особенностью протекания нелинейнооптического процесса рассеяния на поляритонах, — все это в настоящее время остается невыясненным.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] Клышко Д. Н. Фотоны и нелинейная оптика. М., 1980. [2] Krauzman M., Postollec M., Mathieu I. P. // Phys. Stat. Sol(b). 1973. 60. P. 761—770. [3] Поливанов Ю. Н. // ФТТ. 1979. 21. С. 1884—1886. [4] Kurtz S. K., Bergman J. G., Petty T. T. // Appl. Phys. Lett. 1968. 12. P. 186—188.

Поступила в редакцию
19.03.86

ВЕСТН. МОСК. УН-ТА. СЕР. 3, ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ. 1987. Т. 28, № 3

УДК 577.337:621.039.51

ПРИМЕНЕНИЕ МЕТОДА МОНТЕ-КАРЛО ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ МИГРАЦИИ ЭНЕРГИИ В СЛОЖНЫХ ОРГАНИЧЕСКИХ КОМПЛЕКСАХ

А. А. Демидов

(кафедра квантовой радиофизики)

Известно, что в сложных органических комплексах (СОК) типа светособирающей антенны фотосинтезирующих организмов идет эффективный перенос энергии между молекулами пигментов. Такие комплексы характеризуются неоднородным уширением спектров поглощения и флуоресценции, связанным с наличием различных спектральных форм пигментов, из которых состоят эти комплексы. Процесс переноса энергии между пигментами существенно зависит как от спектральных характеристик пигментов, так и от архитектуры СОК.

Существующая в настоящее время экспериментальная техника [1, 2] позволяет регистрировать оптические сигналы из таких систем со спектрально-временным разрешением, достаточным для феноменологического анализа процесса переноса энергии на основе уравнений балансного типа. В результате можно оценивать скорости переноса энергии. Строгие же теоретические расчеты для таких гетерогенных систем либо отсутствуют, либо базируются на упрощенных, поддающихся аналитическому расчету моделях, отличающихся по своей архитектуре от реальных объектов. В результате возникает вопрос об адекватности таких упрощенных моделей.

В настоящей работе было решено использовать принцип прямого численного моделирования процессов поглощения света, миграции экситонов и флуоресценции — метод Монте-Карло. Этот метод максимально приближен к реальной физической ситуации. Достоинство его заключается в том, что он позволяет без каких-либо априорных ограничений провести анализ процессов миграции энергии, основываясь только на «спектроскопических портретах» пигментов и любой заданной архитектуре СОК.

Программа. Для решения поставленной задачи была разработана программа на языке «Фортран», счет проводился на ЭВМ БЭСМ-6. В случае приведенного ниже примера расчета миграции энергии в СОК типа «фикобилизомы» (ФБС) программа занимала около 25 Кслов оперативной памяти ЭВМ. Программа обладает гибкой структурой, позволяющей легко менять условия «эксперимента» и параметры ФБС (спектроскопические характеристики, архитектуру и т. п.). Помимо головной программы она содержит 16 подпрограмм, из которых 5 сервисные (служат для вывода информации).

Работа программы начинается с задания общего числа экситонов N , которые будут разыграны методом Монте-Карло (рис. 1, блок 1). Далее в блоке 2 осуществляется задание архитектуры СОК — прост-