

强激光照射下, α -LiIO₃ 晶体中晶格振动的 多模激发和模之间的相互作用

徐丽雯 雷子明 赵汝文 余永柏

(中国科学院物理研究所)

1980年4月18日收到

提 要

本文叙述了用调Q倍频 YAG 脉冲激光照射 α -LiIO₃ 晶体,在不同的散射配置下,获得了各种散射谱图。实验表明,当用 σ 光入射时,可以比用 π 光入射激发起更多不同模的晶格振动;获得了 E_2 模的很强的一阶、二阶斯托克斯散射线和反斯托克斯散射线, E_1 模 Polariton 的一阶、二阶、三阶斯托克斯线和反斯托克斯线,还获得了反斯托克斯频率区一条频移为 469cm^{-1} 的新线,认为是不同模的 Polariton 之间的相互作用引起的。

最后,提到实验中初步观察到的晶体拉曼活性的“疲劳现象”。

在强激光作用下, LiIO₃ 晶体中同时具有拉曼活性和红外活性的那些振动模,可以与强激光相互作用,产生一种电磁振动与晶格振动的耦合态,即 Polariton。利用近正向拉曼散射,可以观察到声子和 Polariton 的散射谱线,这些谱线提供了关于强激光和晶格振动相互作用的重要信息;也有希望通过近正向受激拉曼散射,探索晶格振动不同模之间的相互作用和强激光下晶格变化以至损坏的机理。

Polariton 具有色散性,即满足一般的理论给出的频率和波矢关系:

$$k^2 = \frac{1}{c^2} [n_i^2 \omega_i^2 + n_s^2 (\omega_i - \omega)^2 - 2n_i n_s \omega_i (\omega_i - \omega) \cos \phi] \quad (1)$$

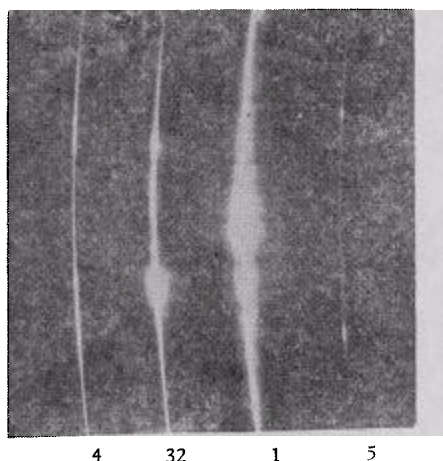
式中 k , n , ω 分别代表波矢、折射率和频率;脚标 i , s 表示入射光和散射光的参数; ϕ 是散射角。

α -LiIO₃ 晶体的受激拉曼散射实验已有一些介绍^[1,2]。由于受激散射谱线强度大,利用 Polariton 实现可调谐激光源,尤其是红外激光源的可能性仍在继续努力证实之中。

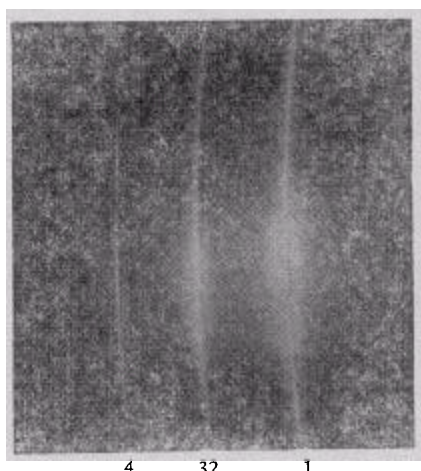
我们用倍频的 YAG 激光作激发源,在各种不同的散射配置下观察了 α -LiIO₃ 晶体的近正向受激拉曼散射。5320 埃激光的脉冲宽度为 10 毫微秒;通过焦距为 40 厘米的透镜聚集在样品体内,焦斑面积约为 $7 \times 10^{-3} (\text{厘米})^2$ 。作为样品的碘酸锂晶体通光的两端面垂直于 a 轴,平行度接近几分, a 轴长度为 5 厘米。入射激光与 a 轴成小角度。散射光用透镜聚集在光谱仪的入射狭缝上,用照相机记录。

在不同散射配置下获得的散射线谱列于图 1 至图 6。

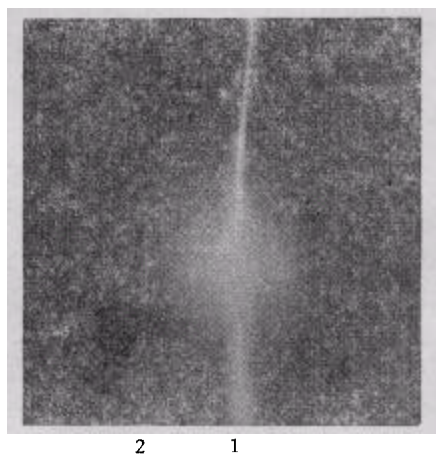
从图 1 和图 2 看出,当以 σ 光入射时频移为 765厘米^{-1} 的 E_2 模具有很强的一阶、二阶斯托克斯散射线和反斯托克斯散射线。 A 模的散射线比较弱。

图1 散射配置 $X(YZ + Y)X, \phi = 0^\circ$

- 谱线1 5320 埃激发线;
谱线2 频移为 765 厘米^{-1} 的 E_2 模的斯托克斯散射线;
谱线3 频移为 795 厘米^{-1} 的 A 模的斯托克斯散射线;
谱线4 E_2 模的二阶斯托克斯散射线, 频移为 1527 厘米^{-1} ;
谱线5 E_2 模的反斯托克斯散射线, 频移 759 厘米^{-1}

图2 散射配置 $X(YY)X, \phi = 0^\circ$

- 谱线1 5320 埃激发线;
谱线2 频移为 765 厘米^{-1} 的 E_2 模的斯托克斯散射线;
谱线3 频移为 789 厘米^{-1} 的 A 模斯托克斯散射线;
谱线4 E_2 模的二阶斯托克斯散射线, 频移为 1530 厘米^{-1}

图3 散射配置 $X(YZ)X$

- 谱线1 5320 埃激发线;
谱线2 频移为 792 厘米^{-1} A 模的斯托克斯散射线

当激发光以 e 光入射到晶体中时, 散射现象比较有趣。当激发光在焦斑上的功率密度大约为 $98 \text{ 兆瓦/[厘米}^2\text{]}$ 时, 模之间的竞争十分显著, 不同模的受激拉曼散射线可以分别单独出现, 如谱图 4 所示。

若增大 $5320 \text{ \AA}$ 的功率, 则许多模可以同时激发起来, 如图 5 所示。

在这样的激光功率下, 我们每隔数分钟观察一次散射谱 (晶体保持不动), 发现散射光的强度随着入射激光辐照次数的增加而逐渐变弱, 谱线阶数逐渐减少, 谱线数目也逐渐

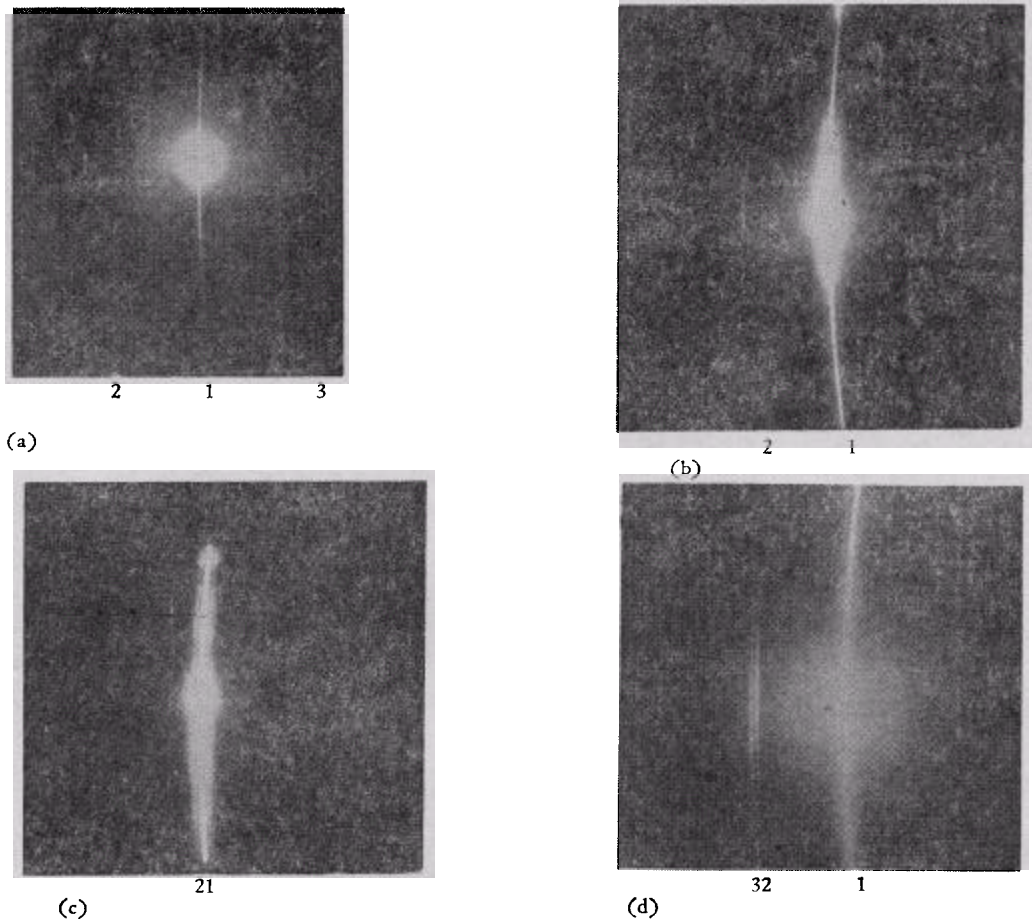


图4 散射配置 $X(ZY + Z)X$, 焦斑上功率密度大约为 98 兆瓦/厘米^2 时 LiIO_3 晶体的受激拉曼散射谱 标号为1的是 5320 埃 入射激光谱线;

图(a)中谱线2的频移为 1000 厘米^{-1} ; 谱线3的频移为 991 厘米^{-1} , 它们是上支 E_g 模的 Polariton 的受激斯托克斯线和受激反斯托克斯线;

图(b)中谱线2的频移为 740 厘米^{-1} , 相应 E_g 模 769 厘米^{-1} 支的 Polariton 的受激斯托克斯线;

图(c)中谱线2的频移为 282 厘米^{-1} , 相应 A_g 模 358 厘米^{-1} 支的 Polariton 的受激斯托克斯线;

图(d)中谱线2的频移为 728 厘米^{-1} , 谱线3的频移为 791 厘米^{-1} , 分别对应 E_g 模 769 厘米^{-1} 支和 A_g 模 795 厘米^{-1} 支 Polariton 的受激斯托克斯线

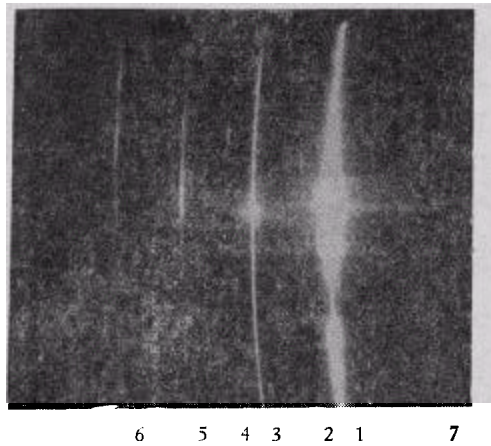
减少,最后得不到散射谱线.保持晶体不动,静置若干小时后,又可以重复获得图5的谱图.仔细观察晶体,在这样的激光功率密度下,没有损坏的迹象.晶体的这种“活性疲劳”现象,有待进一步研究.

进一步增加激光功率,获得了图6的谱图.

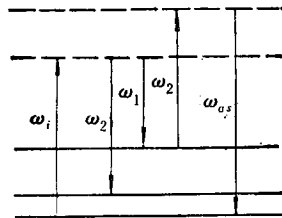
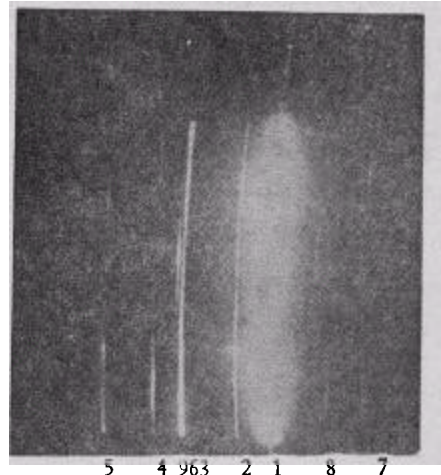
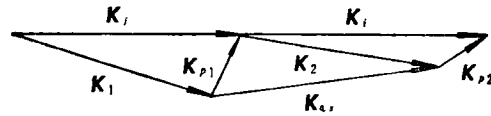
谱线6的频移是 765 厘米^{-1} , 谱线9的频移是 791 厘米^{-1} , 反斯托克斯频率区谱线8的频移是 469 厘米^{-1} .

关于 469 厘米^{-1} 这条反斯托克斯线的产生,可以用相干反斯托克斯散射过程来描述,如图7所示.

在这里频率为 ω_i 的激发光与晶体相互作用,激发起多支不同频率的 Polariton. 其中

图5 散射配置 $X(ZY + Z)X$

谱线1 5320 埃激发线;

谱线2 频移 279 厘米⁻¹;谱线3,5,6 频移分别为 741 厘米⁻¹, 1483 厘米⁻¹, 2226 厘米⁻¹是 E_1 模 769 厘米⁻¹ 支的一阶,二阶,三阶斯托克斯线;谱线4 频移 1002 厘米⁻¹;谱线7 频移 744 厘米⁻¹是 E_1 模 769 厘米⁻¹ 支的反斯托克斯线图7 相干反斯托克斯散射过程的能级示意图 脚标 $i, 1, 2, as$ 分别代表入射光子, 769 厘米⁻¹ 支 E_1 模 Polariton 产生的散射光子, 358 厘米⁻¹ 支 A 模 Polariton 产生的散射光子和相干反斯托克斯散射光子图6 散射配置 $X(ZY + Z)X$, 激光在焦斑上的功率密度大约为 163 兆瓦/[厘米²].谱线1,2,3,4,5,7 可以和图5中的谱线一一对应起来,仅仅频移略有变化,分别为 2——278 厘米⁻¹; 3——744 厘米⁻¹; 4——1005 厘米⁻¹; 5——1483 厘米⁻¹; 7——741 厘米⁻¹图8 相干反斯托克斯散射过程的波矢关系图 脚标 $i, 1, 2, as$ 与图7 相同. k_{p1} 是 E_1 模 769 厘米⁻¹ 支 Polariton 的波矢, k_{p2} 是 A 模 358 厘米⁻¹ 支 Polariton 的波矢

769 厘米⁻¹ E_1 支和 358 厘米⁻¹ 支被激发得较强. 处于强激发态的 E_1 模 Polariton 又与 A 模 Polariton 产生的散射光进一步相互作用, 获得相干的反斯托克斯散射光 ω_{as} .

根据能量守恒定律,

$$\omega_{as} = \omega_2 + \omega_0 - \omega_1. \quad (2)$$

由实验测得

$$\omega_1 = 18053 \text{ 厘米}^{-1},$$

$$\omega_2 = 18519 \text{ 厘米}^{-1}.$$

又知 5320 埃激发光的频率为 $\omega_0 = 18797 \text{ 厘米}^{-1}$, 代入(2)式, 则得 $\omega_{as} = 19263 \text{ 厘米}^{-1}$, 与激发光的相对频移为 467 厘米⁻¹, 与实验获得的频移为 469 厘米⁻¹ 的那条反斯托克斯散射线相符.

图 8 是波矢关系图。

经过这样高功率密度的激光照射后,晶体出现破坏斑点。再照射,散射谱完全消失。

总之,实验表明,在 a 轴长度较大的 α -LiIO₃ 晶体中出现受激拉曼散射的激发激光功率密度阈值低于晶体的光损伤阈值; o 光入射与 e 光入射产生的受激拉曼散射谱有很大的不同;晶体的受激拉曼散射光很强,可以和入射激光相比拟。可以通过改变散射配置、改变激发激光的功率密度,观察受激拉曼散射谱的变化,从而探索激光与晶格振动、晶格振动不同模之间包括不同 Polariton 之间的非线性相互作用以及强激光下晶格结构的变化。

感谢李家明同志对此工作的关心和指导以及陈韵芳同志制作了倍频晶体。

参 考 文 献

- [1] E. Amzallag *et al.*, *J. A. P.*, **42**(1971), 3251.
- [2] H. W. Schrotter, *Z. Naturforschung*, **26a**(1971), 165.
- [3] К. В. Карменян, Ю. С. Читгарян, *Письма В ЖЭТФ*, **17** (1973), 106.

EXCITATION AND INTERACTION OF MULTI-MODE LATTICE VIBRATIONS IN α -LiIO₃ CRYSTAL UNDER IRRADIATION OF AN INTENSE LASER

XU LI-WEN LEI ZI-MING ZHAO RU-WEN SHE YONG-BO

(Institute of Physics, Academia Sinica)

ABSTRACT

We have observed various spectra of stimulated Raman scattering (STRS) in α -LiIO₃ crystal in different scattering geometries under irradiation of an electro-optically Q-switched second harmonic YAG laser. It is shown experimentally that more multi-mode lattice vibrations can be excited by extra-ordinary incident photons than by ordinary ones. We have also observed the first and second order Stokes and anti-Stokes scattering lines of E₁ mode, which are strong in intensity. The first, second and third order polariton Stokes and anti-Stokes lines are observed, as well as a new spectral line with a frequency shift of 496 cm⁻¹ in anti-Stokes frequency region, which may be attributed to interactions among polaritons with various modes.

Fatigue phenomena of Raman activation for the crystal have also been indicated experimentally.