

01; 07; 12

© 1993

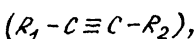
ДИНАМИЧЕСКАЯ РЕШЕТКА КВАДРАТИЧНОЙ  
ПОЛЯРИЗУЕМОСТИ В ЛЕНГМЮР-БЛОДЖЕТТ  
ПЛЕНКЕ ПОЛИДИАЦЕТИЛЕНАБ.Я. З е л ь д о в и ч, А.М. Б а р а б а ш,  
А.А. П о с т н и к о в, С.М. Р е п и н с к и й,  
А.А. С в е ш н и к о в а, А.Н. Ч у д и н о в

При одновременном освещении кварцевого волокна излучением лазера частотой  $\omega$ ,  $E_\omega$  и его второй гармоники  $E_{2\omega}$  через определенное время в материале волокна запишется решетка квадратичной поляризуемости вида

$$\delta\chi^{(2)} = \beta(E_\omega^*)^2 E_{2\omega} + \beta^* E_\omega^2 E_{2\omega}^*,$$

где  $\beta$  – комплексная величина [1–3]. Решетка  $\delta\chi^{(2)}$  в центросимметричных средах связана с кубической нелинейностью вида  $\chi^{(3)}_{\chi}(0, \omega, \omega, -2\omega)$  [4]. Наведенное статическое электрическое поле, например, за счет пространственного разделения заряда [5], приводит к локальному нарушению инверсии и возникновению тензора  $\chi^{(2)}(r)$ . Величина тензора будет зависеть от разности фаз  $\Delta\varphi = \varphi_{2\omega} - 2\varphi_\omega$ , которая за счет дисперсии показателя преломления на частоте лазера  $n_\omega$  и его второй гармоники  $n_{2\omega}$  периодически изменяется, что и создает соответствующую решетку квадратичной поляризуемости  $\delta\chi^{(2)}$ . Таким образом, сила решетки зависит от величины  $\chi^{(3)}(0, \omega, \omega, -2\omega)$ . Поэтому для наблюдения динамических решеток выбирались среды с большой величиной нерезонансной кубической нелинейности [6, 7].

В настоящей работе в качестве такой среды мы выбрали Ленгмюр–Блоджетт пленку полидиациетилена (ПДА). Полидиациетилены представляют собой полностью полимеризованную цепочку вида



где  $R_1, R_2$  – соответствующие радикалы. За счет полностью сопряженных  $\pi$ -связей в полидиациетиленах наблюдают довольно высокие порядки величины нерезонансной  $\chi^{(3)}$  (например, в кристалле *PTS* измеренная на частоте неодимового лазера величина  $\chi^{(3)}$  была  $6 \cdot 10^{-10}$  CGSE-ед. [8]) с малым временем отклика  $< 1$  пс [9]. Так как это искусственная среда, то соответствующим выбором радикала  $R$  можно менять величину  $\chi^{(3)}$ .

Ленгмюр–Блоджетт пленка представляет собой организованную структуру, в которой нити полимеризации полидиациетилена ориенти-

рованы перпендикулярно кварцевой стеклянной подложке. Для построения такой структуры молекула должна быть амфифильной, т.е. иметь как гидрофобную, так и гидрофильную части [10]. В нашем случае такой молекулой является мономер - карбоновая кислота 11/8. Радикалами являются:



Полидиацетиленовая структура пленки содержала 30 слоев, ориентированных перпендикулярно подложке. ПДА имеют максимальный нелинейный кубический коэффициент вдоль нитей полимеризации, поэтому схема эксперимента была следующей (рис. 1). Аналогичный эксперимент для кристалла *PTS* был выполнен в работе [6]. В связи с тем, что коэффициент поглощения кристалла *PTS* на длине волны второй гармоники неодимового лазера составляет  $5 \times 10^5 \text{ см}^{-1}$  [11], авторы работы [6] не смогли наблюдать "рассеяние" волны частоты  $2\omega$  на динамической решетке квадратичной поляризуемости  $\delta\chi^{(2)}(r)$ . Им пришлось судить о появлении решетки по рассеянию разностной частоты  $E_{\omega}^* E_{2\omega}$  в соответствующих углах.

Использование ЛБ-пленки полидиацетилена позволяет наблюдать рассеяние с пространственным преобразованием частоты  $(\omega + \omega = 2\omega)$  на динамической решетке  $\delta\chi^{(2)}(r)$ , как показано в данной работе.

В эксперименте использовался  $YAG: Nd^{+3}$  лазер с пассивной синхронизацией мод. Длительность отдельного пучка в цуге импульсов была около 100 пс. Излучение лазера на частоте  $\omega$  в нелинейно оптическом кристалле КТР (1) частично преобразовывалось во вторую гармонику  $2\omega$  (см. рис. 1). После прохождения призмы Глана (2) излучение на частоте  $\omega$  и  $2\omega$  было линейно поляризовано (вертикальная поляризация). Спектрорделитель (3) пропускал излучение на частоте  $\omega$  и под углом  $90^\circ$  отражал пучок на частоте  $2\omega$ , который после отражения от зеркала (4) направлялся параллельно пучку на частоте  $\omega$  на линзу (5), причем излучение  $E_{\omega}$  проходило линзу (5) по центру. Для одновременного прихода лучей  $E_{\omega}$  и  $E_{2\omega}$  на образец применялась оптическая задержка (4). В обоих каналах использовались соответствующие фильтры Ф, которые позволяли полностью предотвратить смешение частот в каждом из каналов, а также менять соотношение энергий между пучками. Угол схождения пучков  $E_{\omega}$  и  $E_{2\omega}$  на образец был  $\theta_0 = 2 \cdot 10^{-2}$  рад.

Регистрация энергий пучков производилась фотоумножителями ФЭУ-127. На приемнике рассеянного сигнала ФЭУ-2 использовалась шелевая диафрагма с вертикальным расположением щели. Толщина щели диафрагмы Д была 100 мкм. Фотоприемник ФЭУ-2 располагался в дальней зоне на расстоянии от образца больше фокусного расстояния линзы (5). Фокусное расстояние линзы (5) было 120 см. Вместе с диафрагмой Д он мог перемещаться в горизонтальной плоскости с помощью микрометрического винта.

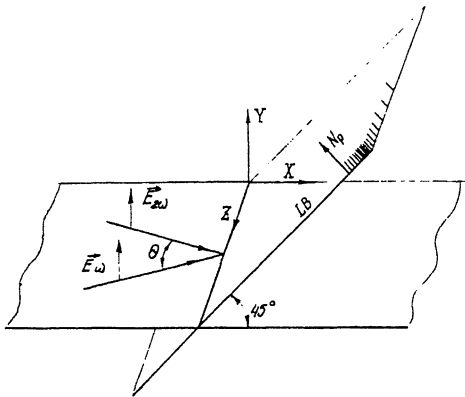
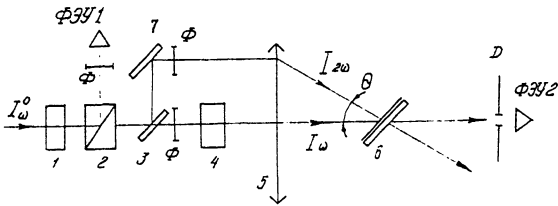


Рис. 1. Схема эксперимента (верхний рисунок): 1 - кристалл КТР; 2 - призма Гланна; 3, 7 - соответствующие спектрорделители; 4 - оптическая задержка; 5 - линза, 6 - образец. Геометрия эксперимента (нижний рисунок). Плоскость  $XZ$  - плоскость схождения лучей,  $LB$  - Ленгмюр-Блоджетт пленка на стеклянной подложке.  $N_p$  - направление полимеризации полидиацетилена.

На рис. 2 представлена угловая зависимость энергии рассеянного излучения на частоте  $2\omega$ . Энергия дана в условных единицах. Ноль на оси ординат соответствует направлению распространения прошедшего пучка на частоте  $2\omega$ . В условных единицах энергия прошедшего пучка соответствовала величине больше ста. На графике мы постарались выделить главное. Имеется пик рассеянного света под углом  $2\theta$  и небольшой, но также четко различимый пик под углом  $4\theta$ .

Следуя работе [6], рассмотрим следующую модель образования такого углового распределения.

Одновременное освещение ЛБ пленки полидиацетилена когерентными волнами с частотами  $\omega, E_\omega$  и  $2\omega, E_{2\omega}$  приводит к появлению в ней решетки квадратичной поляризуемости вида

$$\delta\chi^{(2)}(r) = \beta(E_\omega^*(r))^2 E_{2\omega}(r) + \beta^* E_\omega^2(r) E_{2\omega}^*(r). \quad (3)$$

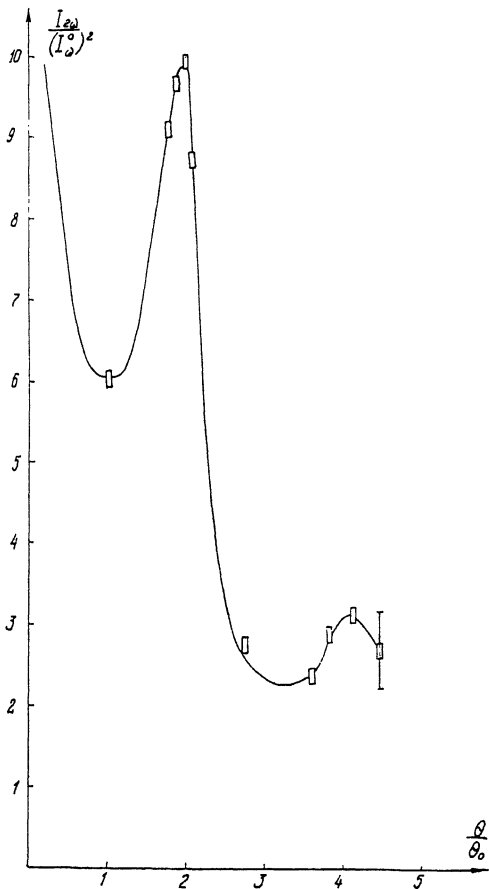


Рис. 2. Угловое распределение энергии „рассеянной” волны на частоте  $2\omega$  в дальней зоне. Энергия дана в условных единицах.

Из (3) видно, что полученная волна  $E_{2\omega}$  имеет волновой вектор

$$k_{2\omega}^p = -2k_\omega + k_{2\omega} + 2k_\omega = k_{2\omega}, \quad (4)$$

$$k_{2\omega}^p = 2k_\omega - k_{2\omega} + 2k_\omega = 4k_\omega - k_{2\omega}.$$

Первое уравнение (4) указывает на то, что вновь родившаяся волна распространяется в том же направлении, что и прошедшая волна на частоте  $2\omega$ ; второе уравнение описывает направление рассеянной волны на угол  $+4\theta$ . Как указывалось в работе [6], при

выбранной геометрии эксперимента, ввиду того что для данной длины волны лазера в полидиацетиленах  $n_{\omega} > n_{2\omega}$ , рассеяние на решетке  $\delta x^{(2)}(r)$  в положительные углы дифракции менее вероятно, чем в отрицательные. Поэтому в дальнейшем мы будем рассматривать это направление рассеяния, тем более что с экспериментальной точностью нам не удалось идентифицировать какое-либо рассеяние в положительные углы.

Рассмотрим теперь рассеяние волны  $\omega$  на решетке  $\delta x^{(2)}(r)$  удвоенного пространственного периода. Получаем, что первый дифракционный максимум должен наблюдаться под углом  $-2\theta$  относительно направления распространения прошедшего луча частоты  $2\omega$ . Второй максимум по этой модели должен наблюдаться под углом  $-4\theta$  относительно этого направления, что мы и наблюдали в эксперименте (см. рис. 2).

Существует другой вероятный механизм образования рассеянной волны на частоте  $2\omega$ . Допустим, что падающая волна на частоте  $\omega$  за счет квадрупольного механизма в ЛБ пленке генерирует волну на частоте  $2\omega$  в том же самом направлении,  $E_{2\omega}^r$ .

Волна  $E_{2\omega}^r$ , будучи когерентна падающей волне  $E_{2\omega}$ , будет с ней интерферировать. Интерференция двух волн на частоте  $2\omega$  может приводить к появлению решетки диэлектрической проницаемости

$\delta \epsilon \propto E_{2\omega} E_{2\omega}^{*r}$ . Падающая волна  $E_{2\omega}$  на этой решетке может рассеиваться, причем углы рассеяния, как видно из соотношения для  $\delta \epsilon$ , будут совпадать с углами рассеяния волны  $E_{\omega}$  на решетке  $\delta x^{(2)}(r)$  (см. рис. 2).

Отличить предложенные два механизма можно по зависимости интенсивности  $I_{2\omega}^{-1}$  от  $I_{2\omega}$ . Действительно, если появление волны  $I_{2\omega}^{-1}$  обусловлено решеткой  $\delta x^{(2)}(r)$ , то зависимость эта будет линейной, в противном случае зависимость становится квадратичной. В эксперименте проверялась зависимость  $I_{2\omega}^{-1}$  от  $I_{2\omega}$ . В тех пределах энергий, которые позволили нам не разрушить пленку, изменение  $I_{2\omega}$  падающей интенсивности влекло за собой линейное изменение сигнала  $I_{2\omega}^{-1}$ .

Суммируя сказанное, можно заключить, что в данной работе экспериментально получена пространственная решетка квадратичной поляризуемости  $\delta x^{(2)}$  в ЛБ пленке полидиацетилена. На этой решетке происходит рассеяние падающей волны на частоте  $\omega$  с преобразованием ее в волну на частоте  $2\omega$ , причем решетка  $\delta x^{(2)}(r)$  динамическая. Хотя, как показали наши эксперименты, если существенно повысить энергию падающей волны  $I_{2\omega}$  (примерно в 10 раз по сравнению с используемой в эксперименте), то в ЛБ-пленке полидиацетилена происходят необратимые изменения. После закрытия одного из пучков ( $I_{2\omega}$  или  $I_{\omega}$ ) наблюдалось в данном случае слабое рассеяние на соответствующей частоте.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] O s t e r b e r g U., M a r g u l i s M. // Opt. Lett. 1986. V. 11. P. 516.
- [2] A n o i k i n E.V., D i a n o v E.M., K a z a n - s k y P.G., S t e p a n o v D.Ya. // Opt. Lett. 1990. V. 15. P. 834.
- [3] З е л ь д о в и ч Б.Я., К а п и ц к и й Ю.Е. // Квантовая электроника. 1990. Т. 17. С. 947-948.
- [4] S t o l e n R.H., T o m H.W.K. // Opt. Lett. 1987. V. 12. P. 585-587.
- [5] Д и а н о в Е.М., К а з а н с к и й П.Г., С т е п а - н о в Д.Ю. // Квантовая электроника. 1989. Т. 16. С. 887-888.
- [6] В и н о г р а д о в Г.А., З е л ь д о в и ч Б.Я., К о т е - г о в А.М., Ч у д и н о в А.Н. // Письма в ЖЭТФ. 1992. Т. 56. В. 7. С. 352-354.
- [7] Ç h a r r a F., N u n z J.M. // J. Opt. Soc. Am. B. 1991. V. 8. N 3. P. 570-577.
- [8] В и н о г р а д о в Г.А., З е л ь д о в и ч Б.Я., К о т е - г о в А.М., Ч у д и н о в А.Н. // Письма в ЖТФ. 1992.
- [9] Нелинейные оптические свойства органических молекул и кристаллов. Пер. с англ. / Под ред. Д. Жеммы, Ж. Зисса. Т. 1. М.: Мир, 1989.
- [10] Нелинейные оптические свойства органических молекул и кристаллов / Под ред. Д. Жеммы и Ж. Зисса. Т. 1. М.: Мир, 1989. С. 528.
- [11] T h a k u r M., F r y e R.C., G r e e n e B.L. // Appl. Phys. Lett. 1990. V. 56. N 12. P. 1187-1188.

Поступило в Редакцию  
15 марта 1993 г.