

LiTaO₃ 晶体分子振动光谱的实验研究

刘成有

(日本理化学研究所, 仙台)

摘要 利用飞秒脉冲激光与晶体的相互作用研究了铁电体LiTaO₃的分子振动情况, 且给出了几种不同条件下的实验结果。

关键词: 极化声子; 简并四波混频(DFWM)

1 引言

超短脉冲激光与晶体的相互作用能够引起晶体中晶格或分子的振动, 从而得到频率为THz范围的极化声子辐射。对该辐射的研究可以给出光与物质相互作用以及物质本身的一些重要信息。例如: 物质的响应, 色散等。

低频极化声子的激发可以通过多种途径实现, 诸如脉冲受激喇曼散射(ISRS)^[1-2], 差频效应^[3], 相干反斯托克斯喇曼散射(CARS)^[4]等, 具体依赖哪种方法, 需根据实验条件, 晶体对称性等因素加以考虑。

本文报道了利用钛宝石飞秒激光与LiTaO₃晶体相互作用来研究极化声子特性的实验。

2 实验装置与原理

由于LiTaO₃晶体的二阶非线性光学系数较大, 所以光与物质相互作用时, 极化声子的激发主要由光学差频效应决定。原理如图1所示。

时间, 空间相互重合的两泵浦光, 经透镜L聚焦后, 以夹角 θ 作用于LiTaO₃晶体, 由于光与物质的非线性作用, 泵浦光在晶体中相干地激发起波矢为K的极化声子。设K₁、K₂分别为两泵浦光矢。则由动量守恒可得到:

$$K_p = (K_1 - K_2) \quad (1)$$

若两泵浦光中心波长相等, 则

$$K_P = \frac{4\pi\sin(\theta/2)}{\lambda_{\text{aser}}} \quad (2)$$

其中: θ 为两泵浦光夹角, λ 为泵浦光波长。

作为探测脉冲的另一束弱激光与泵浦光作用于晶体的同一区域, 两束泵浦光与晶体相互作用所形成的折射率光栅相干地衍射该探测脉冲, 从而在满足布喇格匹配角的方向上, 给出受极化声子电场调制的探测信号。该信号反映了极化声子的振荡, 衰减, 色散等信息。

实际探测信号一部分来自于晶体后表面后向散射光与探测信号的干涉, 此时信号强度为:

$$I_P(t, k) = |E_P(k, t)|^2 + |E_b(k)|^2 + E_P^*(k, t)E_b(k) + E_P(k, t)E_b^*(k) \quad (3)$$

其中: E_P 为探测脉冲的衍射信号, E_b 为探测脉冲由晶体后表面产生的后向散射光。

由(3)式可知, $I_P(k, t)$ 将以极化声子的频率振荡。另一干涉效应来自于相向传播的两个极化声子的干涉, 由此得到的实际探测脉冲^[51]为:

$$I_P(k, t) \exp[-U_{\text{sp}}^2 t^2 / \Delta Z_{\text{pu}}^2 - (k - k_P)^2 \Delta Z_{\text{pu}}^2 / 4 - 2t / T_{2P}] * (1/2 + 1/2 \cos\{2(\omega_p + 1/2U_{\text{sp}}(k - k_P))t\}) \quad (4)$$

其中: U_{sp} 为极化声子波包的群速度, T_{2P} 为衰减时间。

由此我们看到 $I_P(k, t)$ 的变化频率是极化声子频率的两倍。

实验装置如图 2 所示。来自 Ti:Sapphire 的飞秒激光, 中心波长 820 nm, 脉冲宽度 200 fs, 重复频率 1 kHz, 能量 0.5 mJ, 该激光束经分束镜后, 分成强度相等的两强泵浦脉冲及一束弱探测脉冲, 三束光均由同一透镜($f = 40$ cm)聚焦于 LiTaO₃ 晶体。探测脉冲相对于泵浦脉冲的时间延迟由微机控制下步进电机完成。信号由探测器, 锁相放大器, 记录仪完成。实验所用样品为 LiTaO₃ 晶体, 厚度 2 mm, 光轴与表面平行。

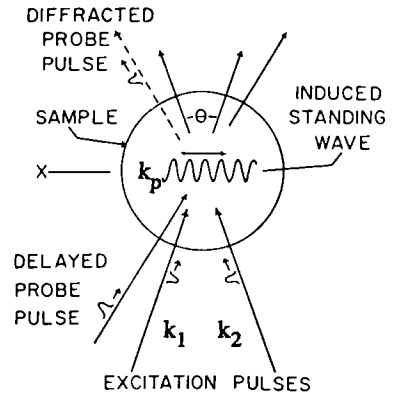


Fig 1 Schematic illustration of the impulsive stimulated scattering experiment

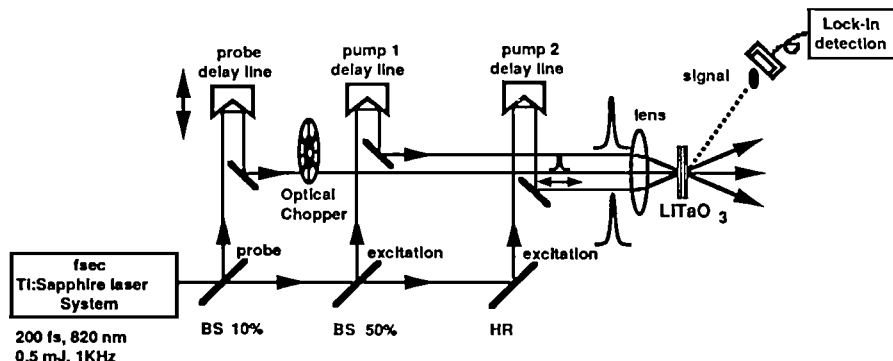


Fig 2 Optical setup

3 结果与讨论

通过改变两泵浦光在透镜上的位置, 我们完成了几种不同极化声子波矢的测量。结果如图 3 所示。

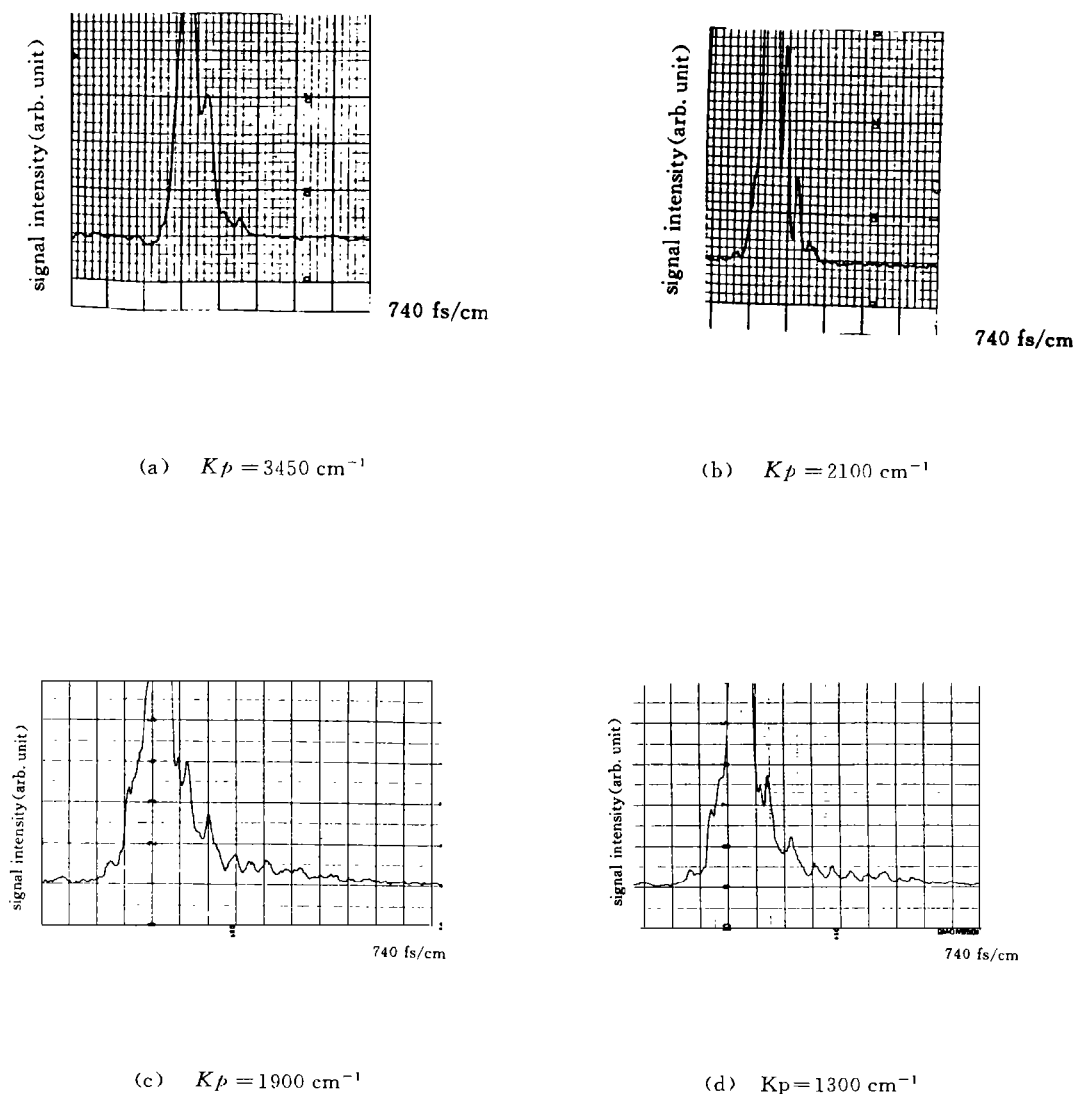


Fig 3 Time-resolved measurement of phonon polaritons^[1] with four different wavevectors Between 1300 cm^{-1} and 3500 cm^{-1}

图 4a 是当 $K_p = 5100 \text{ cm}^{-1}$ 时的测量结果, 傅立叶变换频谱如图 4b 所示。

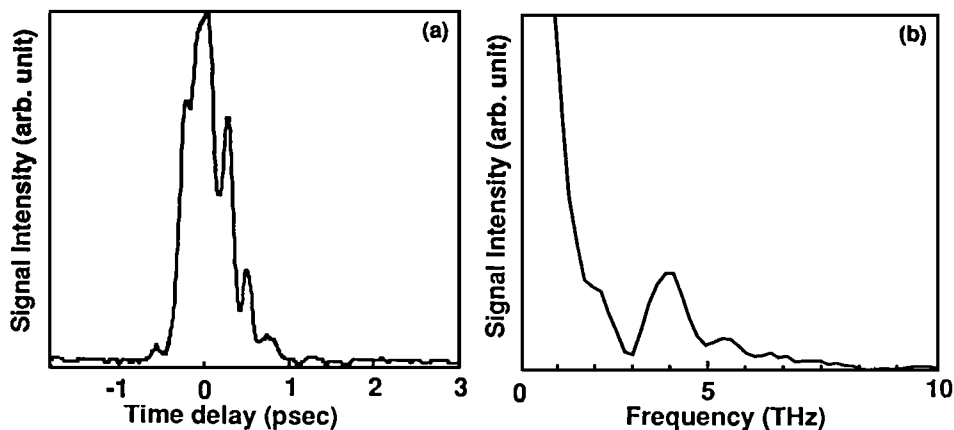


Fig 4 DFWM signal intensity for the different probe delay, Fourier-transformed spectrum for the DFWM signal

由以上的结果我们可以看到晶体的低频极化声子振荡特性, 衰减特性等。若假设仅有两个极化声子模被激发, 则信号大小可按式模拟。

$$I_P(k, t) = [K e^{-\gamma t} \sin(\omega t + \varphi) + L e^{-\lambda t}]^2 \quad (5)$$

由测量信号的计算机模拟可以给出极化声子的波矢与频率关系, 从而得到色散曲线。结合固体物理知识便可对晶体的动力学特征, 电学参量等进行分析与测量。

参 考 文 献

- [1] Lisa Dhar, John A Rogers, Keith A Nelson. Chem. Rev. , 1994, **94**: 157
- [2] Nelson K A. Ferroelectrics 1991, (120): 79
- [3] Wiederrecht G P et al Phys Rev. , 1995, **B**: 51916
- [4] V allee F, Flytzanis C. Phys Rev. , 1992, **B46**: 13799
- [5] Bakker H J et al Phys Rev Lett , 1992, (69): 2823

Molecular Vibrational Spectroscopy in the LiTaO_3

Liu Chengyou

(Photodynamics Research Center, The Institute of Physical and Chemical Research,
19- 1399 Koegi, N egam achi, A oba, S endai 980, J apan)

Abstract

We report the experiment of the molecular vibrational spectroscopy of ferroelectric LiTaO_3 using femtosecond laser. The results are discussed under several conditions.

Key words: Polariton, Degenerate four wave mixing (DFWM)

刘成有 男, 1959年3月生, 1989年7月长春光学精密机械研究所硕士研究生毕业, 现日本理化学研究所从事光物性、光化学研究工作。