

ДИСТАНЦИОННАЯ ПОЛЯРИЗАЦИОННАЯ НЕЛИНЕЙНАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ СВЕТА

А. Ф. Бункин, А. С. Галумян, Д. В. Мальцев

Экспериментально реализован новый метод дистанционной спектроскопии комбинационного рассеяния (КР), в котором уровень сигнала более чем в 10^6 раз превосходит уровень сигнала спонтанного КР, расходимость регистрируемого излучения $2 \cdot 10^{-4}$. Метод позволяет с больших расстояний изучать колебательные спектры прозрачных сред.

1. В данной работе сообщается об экспериментальной реализации нового вида нелинейной спектроскопии КР света-дистанционной спектроскопии эффекта Керра, индуцированного резонансом КР (ДККР), в которой спектроскопическая информация об исследуемой среде содержится в изменениях интенсивности мощной монохроматической когерентной волны, распространяющейся точно в направлении, обратном падающим в среду волнам накачки. При этом, как и в обычной спектроскопии оптического эффекта Керра, наведенного комбинационным резонансом (ОККР) ^{1,2}, в наших экспериментах регистрировалось изменение поляризации пробной волны частоты ω_1 , при сканировании разности $\omega_1 - \omega_2$ частот волн накачки вблизи Ω_R — частоты изучаемого резонанса КР.

Отличие от ^{1,2} заключается в том, что пробная волна возникает в исследуемой среде за счет процесса вынужденного рассеяния Мандельштама — Бриллюэна (ВРМБ) одной из падающих волн (в наших экспериментах это волна $E_1(\omega_1)$), что обеспечивает дистанционность измерений. Однако, в отличие от дистанционного варианта когерентного антистоксова рассеяния света (КАРС) предложенного и реализованного в ^{3,4}, где геометрия взаимодействия всех волн жестко фиксирована, а углы между векторами составляют десятки градусов, в данном случае волны накачки с волновыми векторами K_1, K_2 могут пересекаться в исследуемой среде под любым углом (в том числе равным нулю), а регистрируемый сигнал K_1 ДККР распространяется в направлении, образующем с K_1 угол 180° . Это позволяет проводить данным методом дистанционные измерения с достаточно больших расстояний, ограничиваемых только необходимостью превышения порога ВРМБ одной из волн накачки в исследуемой среде.

2. Описываемый в данной работе метод ДККР теоретически предложен в нашей работе ⁵.

Эксперименты проводились на установке, изображенной на рис. 1. Волны накачки обеспечивались второй гармоникой одночастотного лазера (1) и лазера на красителе (ЛК) родамин 6G (5) ($\lambda_1 = 532$ нм, 550 нм $\leq \lambda_2 \leq 585$ нм, мощности $P_1 \cong P_2 \cong 1$ МВт, $\tau_{\text{имп}} = 20$ нс, ширина спектра ЛК $\Delta\nu_2 \cong 1$ см⁻¹). Они фокусировались сферическим зеркалом под углом $\cong 1^\circ$ друг к другу в исследуемую жидкость, наливаемую в открытую кювету (9). Линейная поляризация волны E_1 обострялась кальцитовым клином (6), волна E_2 была линейно поляризованной (угол $\varphi = 60^\circ$ между осями поляризации волн E_1, E_2), либо циркулярно. Фотоумножитель (11) регистрировал интенсивность деполаризованной части волны $E_{1\text{вр}}$, которая отклонялась кальцитовым клином (6) и выделялась от некогерентных засветок системой диафрагм и зеркал. Одновременно в каждом лазерном импульсе фотоумножителями (12) из-

мерялись интенсивности волн $E_{1ВР}$, E_2 . Все сигналы обрабатывались в ЭВМ (17), которая также управляла сканированием частоты ЛК и выводила кривые на графический дисплей (15) и самописец (16).

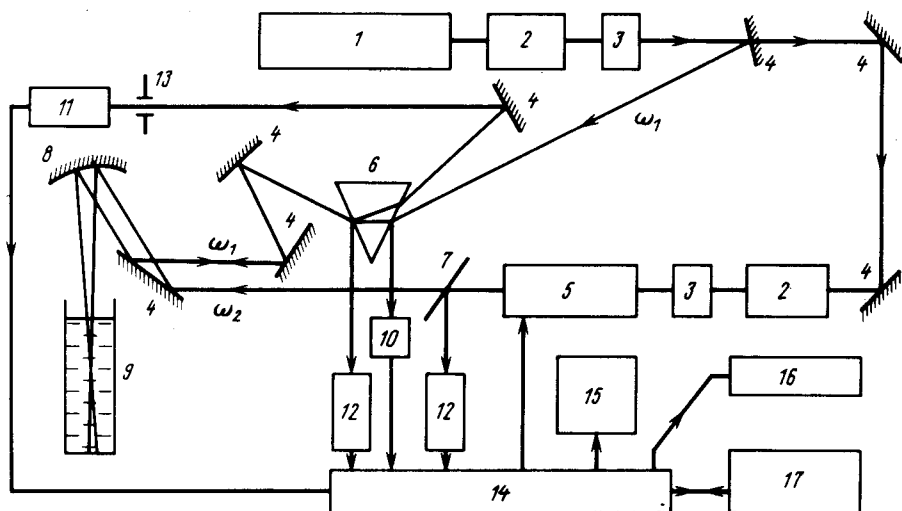


Рис. 1. Схема экспериментальной установки: одночастотный лазер 1 с усилителями 2 на $YAG : Nd^{3+}$ (частота повторения импульсов $f = 10$ Гц), 3 – генераторы второй гармоники на кристалле ДСДА, 5 – лазер на красителе, 6 – кальцитовый клин, 9 – кювета, 11, 12 – ФЭУ-79, 4 – поворотные зеркала, 7 – стеклянная пластинка, 10 – фотодиод (для запуска схемы регистрации), 14 – магистраль КАМАК, 15 – графический дисплей, 16 – самописец, 17 – микро ЭВМ ДВК-2

Измерения проводились в этаноле, ацетоне, дистиллированной и морской водах. Волны E_1 , E_2 фокусировались внутрь исследуемых жидкостей сквозь открытую поверхность. Волна $E_{1ВР}$, распространяющаяся навстречу E_1 , в присутствии E_2 становилась эллиптически поляризованной, причем параметры ее эллиптической поляризации, как и в обычном ОККР ^{1,2}, зависят от точности настройки $(\omega_1 - \omega_2)/2\pi c$ на Ω_R – частоты КР – активных молекулярных резонансов среды. Кальцитовый клин отклонял деполаризованную часть волны $E_{1ВР}$. Во всех случаях фотоумножителем регистрировался интенсивный сигнал частоты ω_1 , который во избежание повреждений ФЭУ предварительно ослаблялся более чем в 10^6 раз. Регистрируемый сигнал полностью исчезал при блокировании волны E_2 , т.е. он возникал в результате четырехфотонного процесса $\omega_1 = \omega_2 - (\omega_2 - \omega_1)$. Сигнал ДККР можно было легко наблюдать на листе бумаги, помещенном перед диафрагмой (13), в виде яркого зеленого пятна диаметром $\cong 4$ мм. При выполнении условия $(\omega_1 - \omega_2)/2\pi c \cong \Omega_R$ яркость сигнала ДККР, наблюдаемого на бумаге, резко увеличивалась.

3. В случае линейной поляризации волн накачки для интенсивности волн $E_{1ДККР}(\omega_1)$ при условии лоренцевой формы линии КР, можно получить ^{1,2}:

$$I_{1ДККР} \sim \left| \frac{2}{3} + \frac{(1-\rho) \bar{\chi}_{1111}^{(3)R} / \chi_{1111}^{(3)NR}}{-i-\Delta} \right|^2 I_2^2 I_{1ВР}, \quad (1)$$

где ρ – степень деполаризации линии КР, $\bar{\chi}_{1111}^{(3)R}$ – пиковое значение резонансного вклада в кубическую восприимчивость среды $\chi_{1111}^{(3)}$, $\chi_{1111}^{(3)NR}$ – нерезонансная часть восприимчивости, $\Delta = (\omega_1 - \omega_2 - \Omega_R)/\Gamma$, Γ – полуширина резонанса КР, $I_{1ВР}$, I_2 – интенсивности волн $E_{1ВР}$, E_2 . В случае циркулярной поляризации волн E_2 имеем ^{1,2}:

$$I_{1ДККР} \sim \left| \frac{(1-3\rho) \bar{\chi}_{1111}^{(3)R} / \chi_{1111}^{(3)NR}}{-i-\Delta} \right|^2 I_2^2 I_1 \quad (2)$$

т.е. происходит подавление нерезонансного пьедестала, связанного с $\chi_{1111}^{(3)NR}$. На рис. 2 представлены спектры ДККР линии КР этанола с частотой $\Omega_R/2\pi c = 920 \text{ см}^{-1}$ в случаях линейной поляризации волн накачки (а), и циркулярной поляризации волны E_2 (б). Видно, что в дистанционной геометрии спектр оптического эффекта Керра, индуцированного КР четко регистрируется, относительная ошибка измерений не превышает 20% (в каждой спектральной точке проводилось накопление сигнала по 50 импульсам), в случае (б) происходит существенное подавление $\chi_{1111}^{(3)NR}$. Моделируя кривые рис. 2 на ЭВМ, можно оценить спектроскопические параметры линии КР 920 см^{-1} этанола (при этом нужно учитывать, что $\chi_{1111}^{(3)NR}$ для ДККР не совпадает с $\chi_{1111}^{(3)NR}$ в спектроскопии КАРС из-за вклада в кубическую восприимчивость среды $\chi_{1111}^{(3)NR}$ медленных ориентационных движений молекул²⁾: $\bar{\chi}_{1111}^{(3)R}/\chi_{1111}^{(3)NR} = 0,75 \pm 0,1$; $\Gamma = 7 \pm 1 \text{ см}^{-1}$.

На рис. 3 приведен пример панорамного спектра ДККР этанола в диапазоне $870 \div 1200 \text{ см}^{-1}$, стрелками отмечены линии с частотами $\Omega_R/2\pi c = 920 \text{ см}^{-1}$, $\Omega_R/2\pi c = 1095 \text{ см}^{-1}$, $\Omega_R/2\pi c = 1147 \text{ см}^{-1}$.

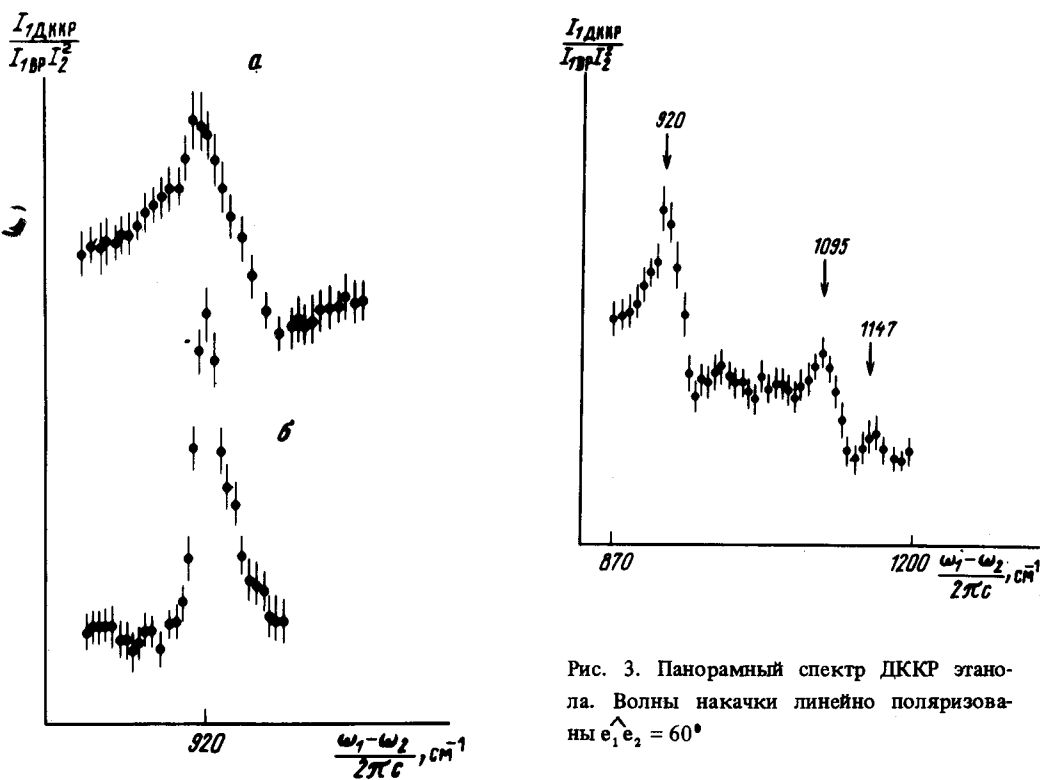


Рис. 3. Панорамный спектр ДККР этанола. Волны накачки линейно поляризованы $\hat{e}_1, \hat{e}_2 = 60^\circ$

Рис. 2. Спектры ДККР этанола (линия $\Omega_R/2\pi c = 920 \text{ см}^{-1}$): а — обе волны накачки линейно поляризованы $\hat{e}_1, \hat{e}_2 = 60^\circ$, б — волна E_2 (ω_2) циркулярно поляризована

Таким образом, экспериментально продемонстрирована возможность осуществления дистанционных измерений методами нелинейной поляризационной спектроскопии КР в коллинеарной геометрии взаимодействующих волн. В этом случае на дистанционные измерения переносятся все хорошо известные преимущества КАРС и других методов четырехфотонной спектроскопии КР: высокий уровень сигнала, высокое спектральное разрешение, отсутствие влияния флуоресценции изучаемой среды (что особенно важно при зондировании природных вод), возможность интерференционного разрешения структуры полос, образованных наложением многих линий КР. Все это открывает широкие перспективы приложений предложенного метода.

Литература

1. *Heiman D, Hellwarth R. W., Levenson M. D., Martin G.* Phys. Rev. Lett., 1976, 36, 189.
2. *Ахманов С.А., Коротеев Н.И.* Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света. М.: Наука, 1981, с. 544.
3. *Бункин А.Ф., Власов Д.В., Гараев Р.А.* Квантовая электроника, 1983, 10, 669.
4. *Бункин А.Ф., Власов Д.В., Гараев Р.А.* Квантовая электроника, 1983, 10, 1902.
5. *Бункин А.Ф., Власов Д.В., Галумян А.С.* Квантовая электроника, 1985, 12, 619.

Институт общей физики
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
10 ноября 1985 г.
