

АКТИВНАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ СВЕТА В НЕПРЕРЫВНОМ РЕЖИМЕ; ВОЗМОЖНОСТЬ СПЕКТРОСКОПИИ СВЕРХВЫСОКОГО РАЗРЕШЕНИЯ КОМБИНАЦИОННЫХ ПЕРЕХОДОВ

*С.А.Ахманов, Н.И.Коротеев, Р.Ю.Орлов,
И.Л.Шумай*

Методом активной спектроскопии получен спектр комбинационного рассеяния сжиженного N_2 в окрестности линии 2326 см^{-1} . Измерены величина и знак относительных вкладов ядерной и электронной подсистем в нелинейную поляризуемость: $\chi^R / \chi^{NR} = + 200 \pm 40$.

1. Предметом настоящей статьи является изложение результатов эксперимента, в котором впервые получен спектр комбинационного рассеяния молекул жидкости (сжиженный N_2) по методу активной спектроскопии (АСКР) с помощью лазеров непрерывного действия.

Полученные результаты позволили определить абсолютную величину и знак отношения вкладов ядерной и электронной подсистем в оптическую кубическую восприимчивость $\chi^{(3)}$. Специально отмечается, что активная спектроскопия с использованием узкополосных перестраиваемых непрерывных лазеров может стать уникальным методом сверхвысокого разрешения комбинационных переходов. При этом сигнал антистоксова рассеяния, получаемый при помощи АСКР, может превысить сигнал спонтанного рассеяния того же луча в стоксову область уже при умеренных мощностях лучей накачки, что позволит проводить измерение спектров КР люминесцирующих и окрашенных сред в прак-

тически свободном от фоновых засветок спектральном диапазоне при уровнях регистрируемого сигнала не ниже такового в стандартной схеме стокова спонтанного КР.

2. Метод АСКР с использованием перестраиваемых лазеров в последнее время широко применяется для измерения комбинационных переходов в молекулах газов, жидкостей и твердых тел, а также для аналитических целей [1 - 5]. Однако практически все эксперименты здесь выполнены с использованием мощных импульсных перестраиваемых лазеров. Активная спектроскопия КР в поле лазеров непрерывного действия является по существу новым направлением. Нам известна только одна недавняя работа [6], в которой был зарегистрирован сигнал АСКР в непрерывном режиме в газообразном CH_4 , кювета с которым помещалась внутри резонатора перестраиваемого лазера, однако, из-за слабости сигнала параметры линии КР не были измерены.

Нами для измерения дисперсии нелинейности $\chi^{(3)}$ вблизи колебательного перехода $\Omega_R/2\pi c = 2326 \text{ см}^{-1}$ жидкого азота регистрировалась антистоксова компонента (частота ω_a) рассеяния излучения аргонного лазера (ω_1) на когерентных молекулярных колебаниях молекул N_2 , сфазированных биением волн накачки: $\omega_a = \omega_1 + (\omega_1 - \omega_2) = 2\omega_1 - \omega_2$ при перестройке ω_2 , причем $\omega_1 - \omega_2 \approx \Omega_R$. Такой четырехфотонный процесс описывается восприимчивостью

$$\chi^{(3)} = 3\chi^{NR} + \chi^R;$$

$$\chi^R = \bar{\chi}^R / (i - \Delta); \quad \Delta = [(\omega_1 - \omega_2) - \Omega_R] / \Gamma_R \quad (1)$$

— частотная отстройка от центра линии, Γ_R — полуширина линии КР, $\bar{\chi}^R \approx (2c^4 N / \omega_2^4 \hbar \Gamma_R) (d\sigma/d\Omega)$, $d\sigma/d\Omega$ — сечение спонтанного стокова КР, N — плотность числа молекул. Измерение мощности сигнала P_a на частоте $\omega_a = 2\omega_1 - \omega_2$ при резонансе: $\Delta = 0$ и вдали от него: $\Delta \gg 1$ позволяет определить величину отношения

$$\left| \frac{\bar{\chi}^R}{3\chi^{NR}} \right| = \left[\frac{P_a(\Delta = 0)}{P_a(\Delta \neq 0)} \right]^{1/2} \quad (2)$$

а измерение положения точки взаимной компенсации электронного и ионного вкладов в $\chi^{(3)}$ позволяет определить знак этого отношения:

$$\text{sign } \bar{\chi}^R / 3\chi^{NR} = \text{sign}(\nu_{max} - \nu_{min}), \quad (3)$$

где ν_{max}, ν_{min} — положение максимума и минимума $|\chi^{(3)}|^2$ соответственно. Кроме того [2, 7]:

$$|\nu_{max} - \nu_{min}| = \Gamma_R \left| \frac{\bar{\chi}^R}{3\chi^{NR}} \right|^2 \quad (4)$$

4. Схема экспериментальной установки представлена на рис. 1. Задающий лазер на ионизированном аргоне (1) обеспечивал мощность $P_1 = 2 \text{ вт}$ в линии $\lambda_1 = 5145 \text{ \AA}$. Мощность перестраиваемой линии лазера (2) на растворе родамина-6G в этаноле — $P_2 \approx 150 \text{ мвт}$, ширина линии

$\Delta\nu_2 \approx 0,6 \text{ см}^{-1}$. Ахроматический объектив L_2 фокусировал пучки накачки внутрь кюветы с жидким N_2 (3); длина перетяжки пучков в фокусе $b \approx 300 \text{ мкм}$ была меньше длины когерентного взаимодействия $l_{\text{ког}} = \pi / \Delta k$, $\Delta k = k_a - (2k_1 - k_2)$ – волновая расстройка ($l_{\text{ког}} \approx 500 \text{ мкм}$).

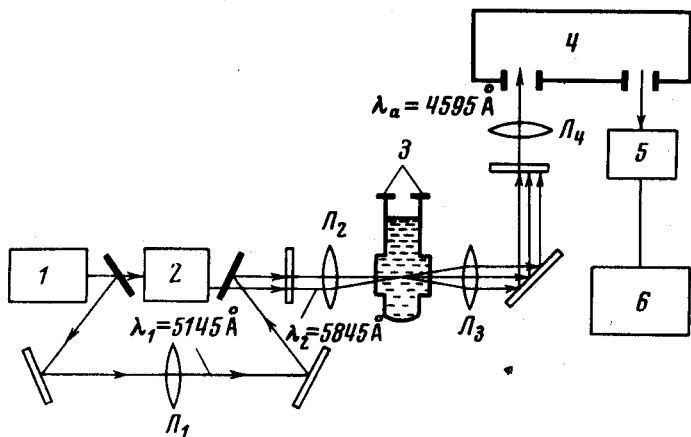


Рис. 1. Схема экспериментальной установки по АСКР в непрерывном режиме

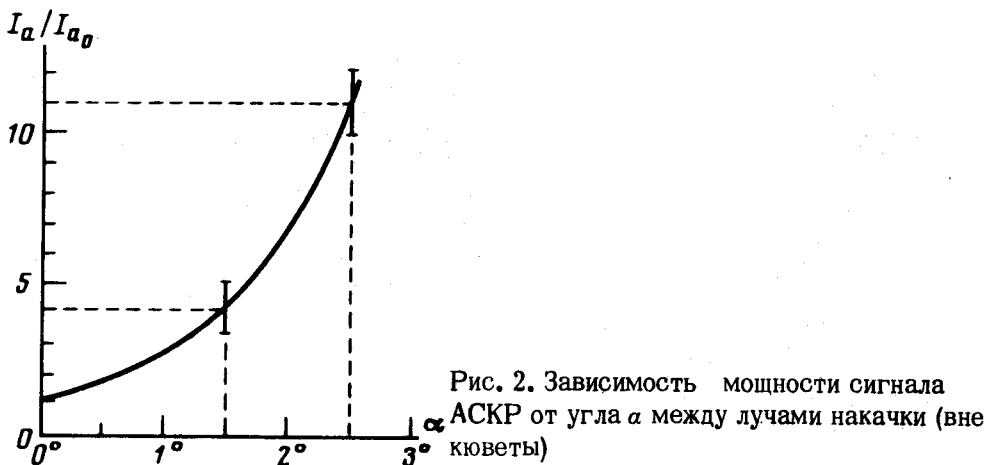


Рис. 2. Зависимость мощности сигнала АСКР от угла α между лучами накачки (вне кюветы)

В этих условиях мощность сигнала P_a не зависит от степени фокусирования пучков

$$P_a = \frac{\lambda_1^4 N^2}{\pi^2 c^2 \hbar^2 (\Gamma_R)^2} P_1^2 P_2 \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right) \quad (5)$$

Наибольший сигнал на частоте ω_a был получен при выставлении угла $\alpha = 2^\circ 30'$ между лучами накачки (вне кюветы), (см. рис. 2). Мощность антистоксова сигнала АСКР P_a была в 1,5 раза больше мощности спонтанного стоксова КР того же луча, собираемого линзой L_3 из телесного угла $0,2 \text{ стерад}$ (вне кюветы). Расчет этой величины по формуле (5) дает: $P(\text{АСКР})/P(\text{спонт})_{\text{стокс}} = 2$ при $P_1 = 400 \text{ мвт}$, $P_2 = 70 \text{ мвт}$. Однако, и при коллинеарном рас-

пространении пучков накачки ($\alpha = 0$) мощность сигнала P_a была всего на порядок меньше, чем в направлении точного синхронизма. Антистоксово излучение в этом случае образовывало конус с углом при вершине около 3° . Таким образом, при использовании жестко сфокусированных пучков можно не заботиться о предварительном выставлении углов между лучами накачки, а применять коллинеарную схему. Проигрыш в величине сигнала при этом оказывается не очень существенным.

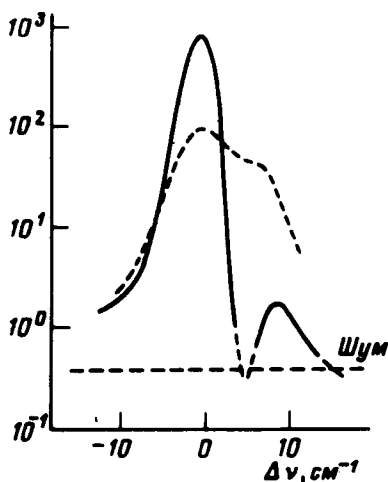


Рис. 3. Спектр сигнала АСКР (сплошная линия) на колебании $\Omega_R/2\pi c = 2326 \text{ см}^{-1}$ сжиженного N_2 , полученный при сканировании монохроматора. Пунктиром показан спектр перестраиваемой компоненты накачки; $\Delta\nu = (\omega_1 - \omega_2) / 2\pi c$. Уровень шума обусловлен темновым током ФЭУ

5. На рис. 3 представлен спектр сигнала АСКР (сплошная линия), полученный при сканировании монохроматора (см. (4) на рис. 1) с помощью фотоумножителя (5) и самописца (6). Здесь же пунктирной линией показан спектр перестраиваемого лазера, участвующий в возбуждении "активного" спектра. Спектральная ширина щели монохроматора 2 см^{-1} . Обработка "активного" спектра по методу АСКР с широкополосным возбуждением [7] и с учетом ширины линии СКР $2\Gamma_R/2\pi c = 0,067 \text{ см}^{-1}$ позволяет сделать оценку:

$$\bar{\chi}^R / 3 \chi_{1111}^{NR} = + 190 \pm 40. \quad (6)$$

Оценка по формуле (2) дает

$$| \bar{\chi}^R / 3 \chi_{1111}^{NR} | = 200 \pm 40. \quad (7)$$

6. Таким образом экспериментально показано, что даже с использованием относительно широкополосного перестраиваемого лазера непрерывного действия удастся произвести измерение параметров комбинационного перехода молекул жидкости по методу АСКР. Использование здесь одночастотных непрерывных лазеров наряду с существенным улучшением спектрального разрешения, определяемого шириной линии лазера, еще больше увеличит уровень резонансного сигнала: расчет показывает, что в этом случае уже при мощностях линий накачки $P_1 = 45 \text{ мвт}$ и $P_2 = 7,5 \text{ мвт}$ антистоксов сигнал АСКР превысит уровень спонтанного стоксова КР. Это обстоятельство может оказаться чрез-

вычайно ценным при измерении по методу АСКР линий КР сильно люминесцирующих и окрашенных сред, дающих в стоксовой области сильные засветки.

Авторы благодарны Ф.Гаджиеву за помощь в проведении эксперимента.

Московский
государственный университет
им. М.В.Ломоносова

Поступила в редакцию
30 января 1976 г.

Литература

- [1] С.А.Ахманов, Н.И.Коротеев. Доклад на I Советско-американском симпозиуме по рассеянию света, Москва, 1975; Материалы Международной летней школы по физике им. Э.Ферми, Варенна, Италия, 1975.
 - [2] M.D.Levenson, N.Bloembergen. Phys., Rev., B10, 4447, 1974.
 - [3] R.L.Byer, A.B.Harvey, R.L.Hudson, R.F.Begley. J.Chem. Phys., 61, 2466, 1974.
 - [4] F.Moya, S.A.J.Druet, J.P.E.Taran. Opt. Commun., 13, 169, 1975.
 - [5] I.Itzkan, D.A.Leonard. Appl. Phys. Lett., 26, 106, 1975.
 - [6] J.J.Barrett., R.F.Begley. Appl. Phys. Lett., 27, 129, 1975.
 - [7] С.А.Ахманов, Н.И.Коротеев. ЖЭТФ, 67, 1306, 1974.
-