

## АКТИВНАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ СВЕТА С ПОМОЩЬЮ КВАЗИНЕПРЕРЫВНОГО ПЕРЕСТРАИВАЕМОГО ПАРАМЕТРИЧЕСКОГО ГЕНЕРАТОРА

С. А. Ахманов, В. Г. Дмитриев, А. И. Ковригин,  
Н. И. Коротеев, В. Г. Тункин, А. И. Холодных

1. Предметом настоящей статьи является изложение принципов и некоторых результатов экспериментальной реализации метода активной спектроскопии комбинационного рассеяния (КР) с помощью квазинепрерывного перестраиваемого параметрического генератора света (ПГС).

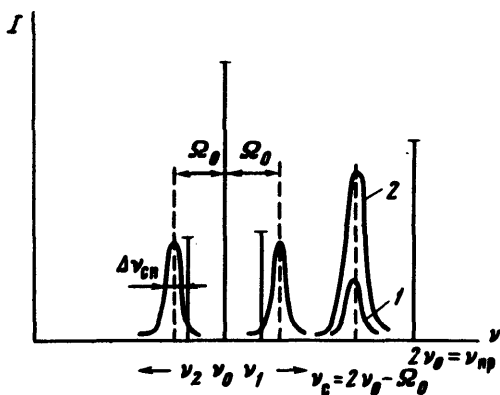


Рис. 1. Диаграмма, поясняющая принцип активной спектроскопии рассеяния света с помощью параметрического генератора. Здесь  $\nu_0$ ,  $2\nu_0 = \nu_{пр}$  – частоты лазера, и его второй гармоники;  $\nu_1$  и  $\nu_2$  ( $\nu_1 + \nu_2 = 2\nu_0$ ) – плавно перестраиваемые частоты ПГС;  $\Omega_0$  – рамановский сдвиг. Кривая 1 – стоксов сигнал пробного рассеяния при  $|\nu_0 - \nu_{1,2}| \neq \Omega_0$ ; кривая 2 – сигнал при  $|\nu_0 - \nu_{1,2}| \cong \Omega_0$ .

Использование пары интенсивных колебаний с перестраиваемыми частотами ( $\nu_0$  и  $\nu_{1,2}$  – см. рис. 1) позволяет возбудить избранный колебательный переход (оптическую моду) частоты  $\Omega_0$ . Наблюдая рассеяние на ней пробного светового луча (частота  $\nu_{пр}$  – см. рис. 1) можно существенно улучшить отношение сигнал/шум на выходе спектрометра КР и с точностью, превышающей точность, достигаемую при исследовании спонтанного комбинационного рассеяния (СКР), – измерить форму линии рассеяния (особенно при изучении широких линий) и сечение рассеяния. Сильное возбуждение мод открывает новые возможности при исследовании ангармонических эффектов (комбинационные моды и т. п.). С помощью квазинепрерывного ПГС удобно вести и измерения по схеме обращенного рассеяния – перспективной схеме, не нашедшей пока распространения только из-за отсутствия подходящих перестраиваемых источников излучения [10].

2. Спектроскопическая информация, получаемая при вынужденном КР невелика. Главные причины этого – сильная конкуренция линий, уширения спектра, обусловленные нелинейными механизмами и т. п. Поэтому представляют интерес поиски метода, сочетающего широкие спектроскопические возможности СКР и такие достоинства метода

ВКР, как получение больших интенсивностей рассеянного света, когерентное возбуждение оптических фононов в значительном объеме и т. д.

Эта проблема обсуждалась в ряде работ (см., например, [1 - 6]). В [1, 7, 8] (см. также [9]) была предложена и реализована методика рассеяния пробного луча на когерентных оптических фононах, возбуждаемых в процессе ВКР.

Более широкие спектроскопические возможности открываются в том случае, если возбуждать фононы бигармоническим световым сигналом, ниже порога ВКР. Ранее для этого использовались специально подобранные дублеты линий - [2, 3, 5, 6]. Идеальным, разумеется, был бы плавно перестраиваемый многочастотный генератор непрерывного или квазинепрерывного действия.

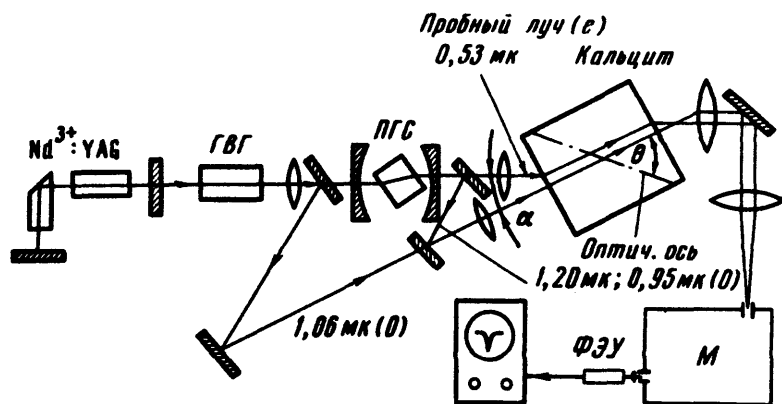


Рис. 2. Блок-схема экспериментальной установки. Многочастотным генератором для схемы активной спектроскопии служит квазинепрерывный лазер на алюмо-иттриевом гранате, его вторая гармоника и возбуждаемый последней параметрический генератор света на кристалле ниобата лития. М - тройной монохроматор; ГВГ - генератор второй гармоники

3. Именно такими свойствами обладает использованный нами многочастотный источник излучения, состоящий из квазинепрерывного лазера на YAG с  $Nd^{3+}$  ( $\lambda_0 = 1064 \text{ мкм}$ , мощность в импульсе  $P_0 \approx 1 \text{ Мвт}$ , частота до  $100 \text{ кГц}$ ), генератора второй гармоники (ГВГ) на кристалле  $LiNbO_3$  ( $P \approx 100 \text{ кВт}$ ) и возбуждаемого последним двухрезонаторного ПГС на кристалле  $LiNbO_3$  ( $P_{1,2} \approx 2 \text{ кВт}$ ); область перестройки  $0,9 - 1,25 \text{ мкм}$ . Вторая гармоника лазера используется и в качестве пробного сигнала.

Когда, например, расстройка  $\nu_1 - \nu_0$  ( $\nu_0 - \nu_2$ ) близка к  $\Omega_0$ , происходит возбуждение выбранной моды; если при этом выполняется и закон сохранения импульса

$$\Delta k_{1,2} = (k_0 - k_{1,2}) - (k_{пр} - k_{с,пр}) = 0 \quad (1)$$

интенсивность рассеяния пробного луча резко возрастает (см. [1]). Если ширины линий, раскачивающих колебания, меньше ширины линии

СКР, можно прямо измерить форму спонтанной линии. При этом в схеме, в которой используются частоты  $\nu_1$  и  $\nu_0$ , при  $I_0 \gg I_1$ , раскачка молекулярных колебаний сопровождается резонансным уменьшением интенсивности волны  $\nu_1$  — появляется возможность одновременно измерять параметры линии КР и по схеме обращенного рассеяния.

4. На рис. 2 изображена схема эксперимента. Измерения проводились на линии  $\Omega_0 = 1086 \text{ см}^{-1}$  типа  $A_{1g}$  в кальците. Пробное излучение и излучение накачки вводились в кристалл под углом, соответствующим выполнению условия (1). (Пробная волна в кальците — необыкновенная, волны накачки — обыкновенные;  $\alpha = 8^\circ 10'$ ,  $\theta = 29^\circ$ ).

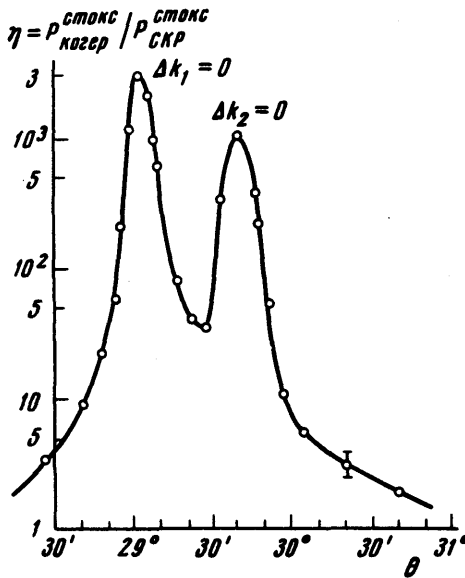


Рис. 3. Экспериментальный график зависимости нормированной интенсивности стоковского рассеяния пробного луча на моде  $A_{1g}$  ( $\Omega_0 = 1086 \text{ см}^{-1}$ ) в кристалле кальцита при  $T = 300^\circ \text{K}$  от угла  $\theta$  между оптической осью кристалла и лучами накачки

На рис. 3 приведена экспериментальная зависимость мощности рассеяния нормированной на мощность СКР  $\eta = P_{\text{когер}} / P_{\text{спонт}}$  от угла  $\theta$  между оптической осью кристалла и лучом накачки; эта зависимость сопоставлялась с расчетной:

$$\eta_{\text{теор}} = \frac{9\pi^3}{4} (\sigma N z) \frac{c^4}{\omega_c^6} I_0 / n_c^2 n_o^2 (\hbar \Delta\omega_{\text{СП}})^2 \left[ I_1 \left( \frac{\Delta\omega_{\text{СП}}}{\Delta\omega_1} \right) \frac{\sin^2 \frac{\Delta k_1(\theta)z}{2}}{(\Delta k_1(\theta)z/2)^2} + I_2 \left( \frac{\Delta\omega_{\text{СП}}}{\Delta\omega_2} \right) \frac{\sin^2(\Delta k_2(\theta)z/2)}{(\Delta k_2(\theta)z/2)^2} \right] \frac{4\pi}{\delta\Omega / n_c^2} \frac{S_0}{S_{\text{пр}}} ; \quad (2)$$

Здесь  $\sigma$  — сечение рассеяния,  $N$  — плотность числа молекул,  $z$  — эффективная длина взаимодействия,  $I_0, I_{1,2}$  — интенсивности волн;  $\Delta\omega_{1,2}$  — ширина линий ПГС,  $\Delta\omega_{\text{СП}}$  — ширина линии СКР,  $\delta\Omega$  — телесный угол, в пределах которого регистрируется СКР,  $S_0, S_{\text{пр}}$  — площади пучков.

При  $I_0 = 5,4 \cdot 10^8 \text{ вт/см}^2$ ,  $I_1 = 0,8 \cdot 10^5 \text{ вт/см}^2$ ,  $\Delta k_1 = 0$ ,  $(\Delta\omega_{\text{СП}} / \Delta\omega_1) = 0,1$ ,  $S_0 / S_{\text{пр}} = 0,25$ ,  $\delta\Omega = 0,20 \text{ стерад}$  и  $z = 1,4 \text{ см}$

| Вещество,<br>линия КР ( $\Omega_0$ )                        | Излучение накачки   |                     | Пробное и рассеянное излучение |  | Когерентная длина<br>$L_{\text{ког}} = (\Delta k)^{-1}$ см |
|---|---------------------|---------------------|--------------------------------|--|--|
|   | $\lambda_{H1}$ , нм | $\lambda_{H2}$ , нм | $\lambda_{\text{пр}}$ , нм     | $\lambda_{\text{с}}, \lambda_{\text{а-ст}}$ , нм |  |
| Кальцит<br>$284 \text{ см}^{-1}$                            | 1048 обык           | 1080,3 обык         | 1064,0 обык                    | 1097 обык  | 0,23   |
|   | 1064,0 обык         | 1097 обык           | 532,0 обык.                    | 540,2 обык.                                      | 0,083  |
| Кварц,<br>$466 \text{ см}^{-1}$                             | 1034,4 обык         | 1086,8 обык.        | 1064,0 обык.                   | 1115,2 обык.                                     | 0,84   |
|   | 1034,4 необык.      | 1086,8 необык.      | 1064,0 необык.                 | 1115,2 необык.                                   | 0,52   |
| Бензол,<br>$992 \text{ см}^{-1}$                            | 962,4               | 1064                | 532,0                          | 561,6  | 0,0025   |
|   | 1010,6              | 1123,3              | 1064,0                         | 962,4  | 0,064  |
| Сероуглерод,<br>$656 \text{ см}^{-1}$                       | 994,6               | 1064,0              | 532,0                          | 551,2  | 0,002  |
|   | 1028                | 1102,5              | 1064                           | 994,6  | 0,081  |
| Водород,<br>$4155 \text{ см}^{-1}$ $\rho = 100 \text{ атм}$ | 868,0               | 1360,4              | 1064,0                         | 736,3  | $\geq 10$  |
|   | 1064,0              | 736,3               | 532,0                          | 682,9  | 3  |
| Метан, $2915 \text{ см}^{-1}$<br>$\rho = 30 \text{ атм}$    | 921,2               | 1260,6              | 1064,0                         | 812,2  | $\geq 10$  |
|   | 812,2               | 1064,0              | 532,0                          | 631,8  | 5,6  |

формула (2) дает значение  $\eta_{\text{теор}} = 2,7 \cdot 10^3$  (величины  $\sigma$  и  $N$  взяты из [11]); экспериментальное значение  $\eta_{\text{эксп}} = 3 \cdot 10^3$ . Специально проверялась нелинейность зависимости интенсивности пробного рассеяния от интенсивности каждой из трех взаимодействующих волн.

В наших экспериментальных условиях имеется возможность наблюдать когерентное рассеяние на линиях, для которых величина  $\sigma/\Delta\omega_{\text{сп}}$  на два – три порядка меньше, нежели у исследованной линии кальцита. Дальнейшее повышение чувствительности возможно за счет сужения линии и увеличения мощности ПГС; при этом возрастет также и разрешающая сила.

5. Максимальный эффект достигается вдоль направления синхронизма ( $\Delta k = 0$ ). Однако требования к точности выставления пучков во многих случаях оказываются не слишком жесткими. В таблице приведены значения длины когерентного взаимодействия  $L_{\text{ког}} = (\Delta k)^{-1}$  вдали от точного синхронизма для различных сред и различных частот накачки и пробного сигнала. Видно, что в газах  $L_{\text{ког}} \geq 10$  см и вообще нет проблем, связанных с точным синхронизмом. В сильно диспергирующих средах  $L_{\text{ког}} \sim 1$  см достигается при выборе близко расположенных частот накачки и пробного сигнала. Разумеется, во всех случаях остается возможность использования точного синхронизма.

Выбор в качестве пробного луча зеленого света с длиной волны  $\lambda_{\text{пр}} = 532$  нм удобен тем, что позволяет использовать регистрирующую аппаратуру серийного раман-спектрографа с аргоновым лазером, служащим для возбуждения спектров КР.

Московский  
государственный университет  
им. М.В.Ломоносова

Поступила в редакцию  
13 апреля 1972 г.

### Литература

- [1] J.A.Giordmaine, W.Kaiser. Phys. Rev., 144, 676, 1966.
- [2] F.de Martini, J.Ducuing. Phys. Rev. Lett., 17, 117, 1966.
- [3] J.P.Coffinet, F.De Martini. Phys. Rev. Lett., 22, 60, 1969.
- [4] M.Papoular. Solid State Commun., 4, 129, 1966.
- [5] S.Biraud-Laval, G.Chartier. Opto-Electronics, 1, 172, 1969.
- [6] P.Maker, R.Terhune. Phys. Rev., 137, A801, 1965.
- [7] D.von der Linde, A.Lauberau, W.Kaiser. Phys. Rev. Lett., 26, 954, 1971.
- [8] R.R.Alfano, S.L.Shapiro. Phys. Rev. Lett., 26, 1247, 1971.
- [9] Н.И.Коротеев. УФН, 106, №4, 1972.
- [10] W.J.Jones, B.P.Stoicheff. Phys. Rev. Lett., 13, 657, 1964.
- [11] В.С.Горелик, М.М.Сушинский. ФТТ, 12, 1475, 1970.