

ВЫНУЖДЕННОЕ ДВУХ- И ТРЕХФОТОННОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕРХКОРОТКИХ ИМПУЛЬСОВ СВЕТА В ВОДЕ

В. С. ДНЕПРОВСКИЙ, К. В. КАРМЕНИАН, И. И. НУРМИНСКИЙ

Исследовалось ВКР в воде при возбуждении излучением неодимового лазера с синхронизацией мод, а также при возбуждении его второй гармоникой. При возбуждении излучением основной частоты удалось возбудить вынужденное трехфотонное комбинационное рассеяние, т. е. такое ВКР, в котором одновременно взаимодействуют два фотона возбуждающего излучения и фотон рассеянного. Рассмотрена конкуренция между ВКР и трехфотонным ВКР при возбуждении основным излучением лазера ($\lambda = 1,06 \mu$). Проведено сравнение с результатами по спонтанному рассеянию.

Целью настоящей работы является исследование процессов, протекающих при больших уровнях мощности возбуждающего излучения. Поэтому в качестве исследуемой среды была взята вода, которая имеет очень маленький коэффициент усиления $g_0 \approx 10^{-5} \frac{\text{см}}{\text{Мвт}}$ и для

возбуждения ВКР требует мощности, недостижимой при наносекундном режиме генерации. Кроме того, локальная нестационарность не оказывает решающего влияния на развитие ВКР в воде, так как для нее времена релаксации молекулярных колебаний, оцененные по ширине линий спонтанного КР, порядка 10^{-13} сек, что позволяет при интерпретации полученных результатов учитывать лишь волновые нестационарности, связанные с дисперсией показателя преломления.

В настоящей работе под двухфотонным рассеянием подразумевается обычное комбинационное рассеяние, в котором участвуют один фотон возбуждающего излучения и один фотон рассеянного с рождением (или уничтожением) оптического фонона. Под трехфотонным подразумевается комбинационное рассеяние, в котором участвуют два фотона основного и один фотон рассеянного излучения.

Для исследования ВКР в воде использовался лазер на стекле с неодимом, работающий в режиме синхронизации мод, а также его вторая гармоника. Схема экспериментальной установки представлена на рис. 1. Энергия генератора измерялась с помощью термодинамического калориметра, отградуированного по калориметру ИМО—1. Количество импульсов генерации N регистрировалось коаксиальным фотоэлементом ФЭК—15, согласованным с осциллографом И 2—7. В наших экспериментах $N = 23 \div 27$. Измерение длительности импульса генерации τ_n осуществлялось по методу „столкновения“ световых импульсов в среде, люминесцирующей при двухфотонном поглощении [1, 2]. В качестве такой среды в наших экспериментах служил раствор ро-

дамина 6G в этиловом спирте. Вычисленная по измерению длины светящейся области длительность импульса была $\tau_u = \frac{\Delta l n}{c} \simeq 3 \cdot 10^{-12}$ сек.

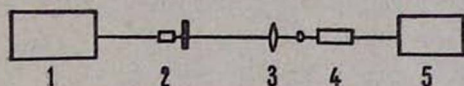


Рис. 1. Схема экспериментальной установки. 1. Генератор с синхронизацией мод на стекле с неодимом. 2. Удвоитель частоты на кристалле КДР с фильтром, обрезающим основное излучение (в экспериментах по трехфотонному ВКР удвоитель отсутствовал). 3. Фокусирующая линза или телескоп. 4. Кювета с водой. 5. Спектрограф.

Регистрация спектров рассеянного излучения, распространяющегося как вдоль луча накачки, так и в противоположном направлении, производилась с помощью спектрографа ИСП—51. Полученные спектры обрабатывались на микрофотометре МФ—4 по стандартной методике с учетом спектральной чувствительности пленок и спектральных характеристик применяемых светофильтров. Регистрация спектров ВКР производилась с помощью спектрографа ИСП—51 с камерой УФ—89. Коэффициент преобразования излучения накачки в стоксову полосу был порядка одного процента.

На рис. 2 представлена спектрограмма ВКР, расшифрованная на микрофотометре МФ—4. Отчетливо наблюдаются максимумы на частотах 3240 и 3440 см^{-1} , которые соответствуют симметричным коле-

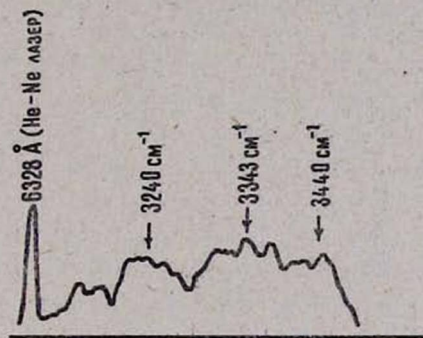


Рис. 2. Спектрограмма ВКР в воде от второй гармоники неодима.

баниям молекул воды с „нормальными“ и „дефектными“ водородными связями [3]. Кроме того наблюдается ряд максимумов в области 3350 см^{-1} , которые, по-видимому, связаны с антисимметричными колебаниями молекул с „нормальными“ связями.

Как указано в работе [4], можно предполагать, что правила отбора, запрещающие появление этих колебаний в спектре КР паров воды, в жидкости действуют менее строго, особенно когда молекулы

жидкости находятся в узлах квазикристаллической решетки и подвергаются сильному воздействию со стороны соседних молекул.

Мы не наблюдали максимума в области 3620 см^{-1} , видимо, потому, что свободных молекул воды в жидкости гораздо меньше, чем связанных, и имеющейся накачки не хватает для возбуждения ВКР на этой частоте. Оценку абсолютных значений интенсивности ВКР в воде можно проводить с помощью квазистатической теории с учетом групповых запаздываний, так как время релаксации молекулярных колебаний для воды $\tau_p \approx 10^{-13} \text{ сек} \ll \tau_u$. Таким образом, наиболее важным свойством пикосекундных импульсов при возбуждении ВКР в воде является их большая пиковая интенсивность.

В статическом приближении для коэффициента преобразования стоксовой компоненты имеем

$$\frac{W_c}{W_n} = \frac{W_{cn} \exp(g_0 S_n l_+)}{W_n},$$

где W_c — энергия излучения в стоксовой компоненте ВКР, W_n — энергия излучения накачки, W_{cn} — энергия излучения при спонтанном КР, S_n — плотность мощности излучения накачки, g_0 — статический коэффициент усиления.

Если согласно работе [5] брать для ширины спонтанной линии КР в воде величину 200 см^{-1} , то даже при максимальных оценках пиковых мощностей излучения накачки усиление ВКР будет не больше e^5 (при оценке брались значения $g_0 \sim 10^{-5} \frac{\text{см}}{\text{Мвт}}$, $S_n \approx 10^5 \frac{\text{Мвт}}{\text{см}^2}$, $l_+ \sim 5 \text{ см}$), что противоречит полученному коэффициенту преобразования ($\eta = \frac{W_c}{W_n} \approx 1\%$). Таким образом, по-видимому, полоса комбинационного рассеяния воды состоит из ряда достаточно узких ($\sim 30 \text{ см}^{-1}$) линий, которые возбуждаются независимо.

Следует отметить, что даже при такой ширине линий время релаксации молекулярных колебаний есть $\tau_p \sim 10^{-12} \text{ сек} < \tau_u$, что, по-видимому, позволяет пользоваться при оценках квазистатическим приближением.

При исследовании вынужденного трехфотонного рассеяния в качестве источника возбуждения использовалось основное излучение ($\lambda = 1,06 \text{ м}$) неодимового лазера, работающего в режиме синхронизации мод. Пиковая мощность импульсов излучения составляла $\approx 40 \text{ Гвт}$. Луч лазера фокусировался внутрь десятисантиметровой кюветы с водой при помощи линзы с фокусным расстоянием, $F = 60 \text{ см}$. Рассеянное излучение собиралось конденсором на щель спектрографа ИСП-51 (с камерой $F = 270 \text{ мм}$). Регистрация спектров в области $5000 \div 7000 \text{ Å}$ производилась на фотопленках „изопанхром“ и „тип“—15, а в области $7000 \div 10700 \text{ Å}$ — на фотопленке „И-1070“.

На рис. 3 представлен характерный спектр рассеянного излучения.

Он состоит из комбинационной антистоксовой полосы 1700 см^{-1} , провала на месте антистоксовой полосы 3440 см^{-1} и двух максимумов в области $5300\div 6500\text{ Å}$, положение которых соответствует стоксовым линиям 650 см^{-1} и 3440 см^{-1} трехфотонного рассеяния. Форма линии возбуждающего излучения при этом оставалась неизменной.

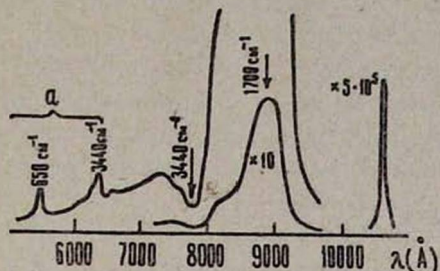


Рис. 3. Спектрограмма вынужденного трехфотонного комбинационного рассеяния (область а) и антистоксовой области ВКР в воде.

Антистоксова полоса 1700 см^{-1} имеет вынужденный характер: ее интенсивность составляет $10^{-1} + 10^{-2}\%$ интенсивности возбуждающего излучения, а индикатриса рассеяния резко асимметрична в направлении распространения основного излучения (асимметрия вперед-назад $> 10^3$). Такая асимметрия рассеяния обычно имеет место при ВКР в поле пикосекундных импульсов света из-за волновой нестационарности [6]. Провал в области частот антистоксовой полосы 3440 см^{-1} , по-видимому, аналогичен поглощению на антистоксовых частотах комбинационного рассеяния, наблюдаемому Джонсом и Стойчевым [7] в ряде жидкостей, когда одновременно с мощной волной накачки в среду попадает достаточно интенсивное излучение со сплошным спектром.

В данном случае роль излучения с непрерывным спектром играет антистоксово крыло полосы 1700 см^{-1} . Особенностью ВКР в воде при накачке неодимовым лазером является то, что не излучается частота 3440 см^{-1} , которая наиболее интенсивна в ВКР при возбуждении второй гармоникой ($\lambda = 5300\text{ Å}$), а также в спонтанном комбинационном рассеянии [5]. Это, по-видимому, объясняется тем, что поглощение воды в области стоксовых частот полосы 3440 см^{-1} примерно в 6 раз больше, чем в области стоксовых частот полосы 1700 см^{-1} .

Для проверки этого предположения был проведен эксперимент с водой, в которой был растворен дигидрофосфат калия (КДР) для создания поглощения на стоксовой частоте 3440 см^{-1} . Раствор был прозрачен на стоксовой частоте 1700 см^{-1} ($\lambda = 1,29\text{ м}$) и совершенно непрозрачен на стоксовой частоте 3440 см^{-1} ($\lambda = 1,54\text{ м}$). Спектр антистоксовой области рассеяния при этом не изменился. Это указывает на то, что стоксова линия 3440 см^{-1} не излучается [9].

На частоте межмолекулярных колебаний ($\nu = 650 \text{ см}^{-1}$) ВКР не наблюдалось, что может быть связано с меньшим коэффициентом усиления ВКР на этой частоте ($g \sim \frac{1}{\Delta\nu}$, а линия 650 см^{-1} примерно в 5 раз шире, чем линия 1700 см^{-1} [5]).

Остается неясным происхождение антистоксова крыла полосы 1700 см^{-1} . Интенсивность излучения крыла вперед более чем на два порядка превышает интенсивность излучения назад; такая асимметрия индикатрисы рассеяния свойственна вынужденным процессам. В то же время не было обнаружено стоксова крыла линии 1700 см^{-1} , которое характерно для различных механизмов неоднородного уширения линий ВКР.

В области $5300 \div 6500 \text{ Å}$ наблюдаются максимумы, положение которых совпадает с положением стоксовых полос 650 см^{-1} и 3440 см^{-1} трехфотонного комбинационного рассеяния. Так как положение этих максимумов не совпадает ни с одной из антистоксовых полос и их гармоник обычного ВКР в воде, то, по-видимому, имеет место трехфотонное комбинационное рассеяние. Результаты работы Терхьюна и сотрудников [10], пересчитанные на основании работ [11, 12], дают ожидаемый коэффициент преобразования в стоксову полосу спонтанного трехфотонного КР

$$\eta = \eta_T \frac{P_n}{P_{\text{нт}}} \frac{\omega^4}{\omega_T^4} \frac{\Delta\Omega}{\Delta\Omega_T},$$

где P_n — мощность излучения накачки, ω — частота линии трехфотонного КР, $\Delta\Omega$ — угловые размеры рассеивающей среды.

Индексом „Т“ обозначены данные, представляемые на основании работы [10]. Пересчет к условиям настоящего эксперимента дает $\eta \sim 2,5 \cdot 10^{-14}$; коэффициент преобразования наблюдаемых линий достигает до $10^{-7} \div 10^{-6}$ интенсивности накачки, что на 8 порядков выше расчетной величины для спонтанного КР. Это обстоятельство и ярко выраженный порог возбуждения полос позволяют сделать вывод о том, что наблюдалось вынужденное комбинационное рассеяние света в воде. Тот факт, что полосы 650 см^{-1} и 3440 см^{-1} не появлялись одновременно, но имели примерно одинаковую среднюю амплитуду, дает основание считать, что эти полосы конкурируют между собой и обладают примерно одинаковым коэффициентом усиления. В противном случае всегда появлялась бы только одна из этих полос, что имеет место при возбуждении ВКР в воде от второй гармоники.

Полоса 1700 см^{-1} при трехфотонном комбинационном рассеянии не возбуждается. По-видимому, это связано с тем, что сечение рассеяния на этой частоте мало [11]. Кроме того, должна происходить конкуренция с обычным ВКР, имеющим значительно большее сечение процесса и препятствующим развитию вынужденного трехфотонного рассеяния.

Авторы выражают глубокую признательность С. А. Ахманову, Д. Н. Клышко и Р. В. Хохлову за ценные замечания и постоянный интерес к работе.

Московский государственный университет
им. М. Ломоносова
Институт физических исследований
АН АрмССР

Поступила 25.III.1972

Л И Т Е Р А Т У Р А

1. J. A. Giordmaine, P. M. Rentzepis, S. L. Shapiro, K. W. Wecht, Appl. Phys. Letters, 11, 218 (1967).
2. P. M. Rentzepis, M. A. Duguay, Appl. Phys. Letters, 11, 216 (1967).
3. Э. А. Габричидзе, Оптика и спектроскопия, 19, 576 (1965).
4. В. И. Вальков, Г. А. Масленкова, Оптика и спектроскопия, 1, 881 (1956); Вестник АГУ, сер. физ. и хим., 22, 8 (1957).
5. C. F. Walrafen, J. Chem. Phys., 36, 1035 (1962).
6. В. С. Днепровский, Ю. Д. Голяев, И. И. Нурминский, Тезисы IV Всесоюзного симпозиума по нелинейной оптике, Киев, 1968.
7. W. I. Jones, C. P. Stoicheff, Phys. Rev. Letters, 13, 657 (1964).
8. М. Болюсов, Ю. Д. Голяев, В. С. Днепровский, И. И. Нурминский, ЖЭТФ, 57, 346 (1969).
9. Н. Бломберген, Нелинейная оптика, Изд. Мир, М., 1966; В. А. Зубов, М. М. Сушинский, И. И. Шувалов, УФН, 89, 49 (1966).
10. R. W. Terhune, P. D. Maker, C. M. Savage, Phys. Rev. Letters, 14, 681 (1965).
11. С. А. Ахманов, Д. Н. Клышко, Письма ЖЭТФ, 2, 171 (1965).
12. В. А. Стрижевский, В. М. Клименко, ЖЭТФ, 53, 245 (1967).

ԼՈՒՅՍԻ ԳԵՐԿԱՐՃ ԻՍՊՈՒԼՍՆԵՐԻ ՍՏԻՊՈՂԱԿԱՆ ԵՐԿՈՒ ԵՎ ԵՐԵՔ ՖՈՏՈՆԱՅԻՆ ԿՈՄԲԻՆԱՅԻՈՆ ՑՐՈՒՄԸ ԶՐԻ ՄԵՃ

Վ. Ս. ԴՆԵՊՐՈՎՍԿԻ, Կ. Վ. ԿԱՐՄԵՆՅԱՆ Ի. Ի. ՆՈՐՄԻՆՍԿԻ

Հետազոտվել է ստիպողական կոմբինացիոն ցրումը ջրում մեծ հզորության դեպքում մոդա-ների սինխրոնիզացիայով նեոդիմային լազերի երկրորդ հարմոնիկի ճառագայթումով գրգռելիս: Հիմնական ճառագայթումով գրգռելիս հաջողվել է գրգռել ստիպողական հոաֆոտոնային կոմբինացիոն ցրում, այսինքն այնպիսի ստիպողական կոմբինացիոն ցրում, որում միա-թամանակ փոխազդում են գրգռող ճառագայթման երկու ֆոտոն և ցրվող մեկ ֆոտոն:

Լազերի հիմնական ճառագայթումով գրգռելու դեպքում ($\lambda = 1,06 \mu$) տեղի է ունենում կոնկուրենցիա կոմբինացիոն ցրման և հոաֆոտոնային կոմբինացիոն ցրման միջև:

Կատարված է համեմատություն սպոնտան կոմբինացիոն ցրման արդյունքների հետ:

STIMULATED TWO AND THREE PHOTON RAMAN SCATTERING IN WATER

W. S. DNEPROWSKY, K. W. KARMENIAN, I. I. NURMINSKY

Stimulated Raman scattering in water is considered at an incidence of high power fundamental frequency of Neodimium glass laser with mode synchronisation and at an incidence of its second harmonic. For fundamental frequency incidence ($\lambda = 1,06 \mu$) a stimulated three photon Raman scattering was obtained, i. e. such SRS, in which two photons of incident radiation and one photon of scattered radiation interact. The competition between two photon SRS and three photon SRS at the irradiation of water by laser fundamental frequency is considered. The data are compared with those for spontaneous Raman scattering.