

ВЛИЯНИЕ ПАРАМЕТРОВ ЛИНИЙ СКР НА СПЕКТРАЛЬНЫЙ СОСТАВ ВКР

И. И. Кондиленко, П. А. Коротков, В. И. Малый и Н. Г. Голубева

Проведены экспериментальные исследования с целью изучения связи между параметрами линий СКР и спектральным составом ВКР. Концентрации бинарных смесей подбирались так, чтобы в генерацию выходило не менее, чем два колебания. Полученные результаты свидетельствуют о том, что, как правило, пороги одновременно генерируемых линий ВКР обратно пропорциональны удельным интенсивностям (отношению интегральной интенсивности к полуширине) соответствующих линий в СКР. Однако эта зависимость имеет такой простой вид лишь для линий СКР, у которых полуширины линий различаются не более, чем на 15%. В противном случае указанная связь значительно усложняется. Найдены численные критерии получения многочастотной генерации по параметрам линий СКР.

Полная вероятность комбинационного рассеяния света, соглас но [1, 2], имеет вид

$$W_{kn} = \rho(\nu) \alpha_{kn} \left[1 + \frac{c^3 \rho(\nu - \nu_{kn})}{8\pi h (\nu - \nu_{kn})^3} \right] \Delta\nu;$$

обозначения общепринятые (см. [1]).

Первое слагаемое этого выражения ответственно за возникновение СКР, а второе — ВКР. Следовательно, вынужденное комбинационное рассеяние становится существенным только при достаточно больших интенсивностях возбуждающего излучения. Более того, как следует из выражения, для развития процесса ВКР в среде, кроме фотонов возбуждающего излучения, необходимо наличие некоторого числа фотонов на частоте рассеяния. Поэтому процесс ВКР и его параметры, по-видимому, в значительной мере определяются характеристиками СКР соответствующего колебания. Однако несмотря на имеющиеся весьма обширные фактические сведения по спектрам ВКР, а тем более СКР, однозначной связи между параметрами этих двух процессов еще не установлено.

Имеется ряд работ [3-5], в которых обнаружено существенное различие между вычисленными и экспериментально измеренными параметрами ВКР. В [5] утверждается, что порог линий ВКР определяется в первую очередь самофокусировкой среды, а не параметрами СКР соответствующих колебаний.

Наряду с этим имеются работы [6-9], в которых наблюдалось удовлетворительное согласие измеренных значений порогов ВКР и рассчитанных на основе параметров СКР.

Вместе с тем, несмотря на общий положительный результат, полученный в работах [6-9], наблюдаются и существенные разногласия между экспериментом и теорией, например, для сероуглерода (см. таблицу в [6]), что, по-видимому, закономерно. Одной из возможных причин аномалий, которые наблюдаются при излучении ВКР, является тот факт, что процесс вынужденного комбинационного рассеяния сопровождается рядом нелинейных эффектов (самофокусировка, вынужденное рассеяние Мандельштама—Бриллюэна), интенсивность которых определяется пара-

метрами среды и мощностью возбуждающего излучения. Наличие этих нелинейных процессов существенно прикрывает роль спонтанного сигнала КР.

Для того чтобы свести до минимума влияние самофокусировки и ВРМБ на параметры сопоставляемых линий ВКР, необходимо не только применение соответствующих мер при возбуждении ВКР, но и создание условий, обеспечивающих одинаковое влияние среды на процесс вынужденного комбинационного рассеяния.

Поэтому мы проводили исследование в указанном аспекте на бинарных смесях. Это позволило получать одновременную генерацию на двух и более линиях ВКР при однородном влиянии среды (самофокусировка и ВРМБ). На них при соответствующем подборе концентрации компонент смеси можно получить в генерации такие линии СКР, которые в чистых объектах не наблюдаются.

Типичная концентрационная зависимость порога генерации ВКР приведена на рисунке, где характерная точка C_2 соответствует концентрации компонент раствора, при которой пороги генерации исследуемых линий равны. По-видимому, именно при таких концентрациях наиболее благоприятно проводить сопоставление порогов генерации линий, и излучение связи параметров СКР с порогом ВКР. Тем более, что при варьировании за счет межмолекулярного взаимодействия можно плавно изменять параметры СКР и исследовать влияние их изменения на спектры ВКР.

Измерение параметров СКР проводилось на приборе ДФС-12А согласно общепринятой методике. В качестве источника возбуждения использовалась ртутная лампа ДРС-600, приемником служил фотоумножитель типа ЕМ1-6558В. Спектральная ширина щели 0.8 см^{-1} . Спектры ВКР возбуждались рубиновым лазером с модулированной добротностью. Подробное описание схемы экспериментальной установки дано в [10].

Полученные экспериментальные данные сведены в таблицу. Концентрации приведены в объемных процентах, из параметров СКР приводятся интегральные интенсивности (I_∞) и полуширины (δ) соответствующих колебаний, для этих же колебаний в таблице приведены отношения порогов экспериментально определенных и вычисленных. Расчет относительных порогов линий ВКР (последняя колонка в таблице) осуществляется согласно соотношению, полученному в [7], в соответствии с условиями нашего эксперимента

$$\frac{P'}{P''} = \frac{i''}{i'} \frac{\nu'^3}{\nu''^3},$$

где $i = I_\infty / \delta$ — удельная интенсивность линий СКР.

Как хорошо видно из таблицы, в тех случаях, когда сравниваемые линии имеют равные пороги (на рисунке соответствуют концентрации C_2) и параметры СКР отличаются мало, то расчет соответствует эксперименту, например, 1б, 2б, 3б, 5б, 6б, 7б. Несколько хуже дело обстоит в случае, если параметры СКР сравниваемых линий заметно отличаются (4б, 8б, 9б, 10г, 11б, в).

Кроме концентраций, при которых пороги равны, мы изучали граничные концентрации (см. рисунок C_1 и C_3), при которых еще наблюдается двухчастотная генерация. Экспериментальные данные для всех случаев существенно (в 3–10 раз) отличаются от расчета.

№ п. п.	Смеси	$\Delta\nu$, в см^{-1}	Концентрация, об. %	Параметры СКР						Отношение порогов ВКР	
				I'_{∞}	δ'	I''_{∞}	δ''	I'''_{∞}	δ'''	эксперимент	расчет
1	а Бензол	$\Delta\nu' = 992$	21	290	1.4	410	1.4	—	—	8	1.4
	б —	—	27	354	1.4	380	1.4	—	—	1	1
	в Толуол	$\Delta\nu'' = 1004$	36	447	1.4	370	1.4	—	—	0.13	0.8
2	а Бензол	$\Delta\nu' = 992$	17	185	1.4	402	1.6	—	—	9	1.45
	б —	—	21	237	1.4	236	1.6	—	—	1	1.05
	в Этилбензол	$\Delta\nu'' = 1002$	26	300	1.4	230	1.6	—	—	0.13	0.74
3	а Бензол	$\Delta\nu' = 992$	24	322	1.6	452	2.0	—	—	10	1.25
	б —	—	29	376	1.8	440	2.0	—	—	1	1.07
	в Бенз. спирт	$\Delta\nu'' = 1004$	35	452	1.8	408	2.0	—	—	0.09	0.8
4	а Бензол	$\Delta\nu' = 992$	25	340	1.5	452	1.1	—	—	10	1.8
	б —	—	38	475	1.5	420	1.1	—	—	1	1.2
	в Хлорбензол	$\Delta\nu'' = 1002$	50	645	1.6	378	1.1	—	—	0.08	0.85
5	а Толуол	$\Delta\nu' = 1004$	35	135	1.4	178	1.5	—	—	3.6	1.25
	б —	—	40	150	1.5	148	1.5	—	—	1	1
	в Нитрометан	$\Delta\nu'' = 915$	44	175	1.5	140	1.4	—	—	0.24	0.8
6	а Бензол	$\Delta\nu' = 992$	14	188	1.4	402	2.2	—	—	6	1.15
	б —	—	19	273	1.4	363	2.2	—	—	1	0.91
	в о-Ксилол	$\Delta\nu'' = 735$	26	357	1.4	336	2.1	—	—	0.14	0.67
7	а Толуол	$\Delta\nu' = 1004$	30	126	1.2	240	2.2	—	—	5	1.03
	б о-Ксилол	$\Delta\nu'' = 735$	42	168	1.2	172	2.1	—	—	0.16	0.55
8	а Бенз. спирт	$\Delta\nu' = 1004$	35	200	1.6	270	2.3	—	—	5	1
	б —	—	40	235	1.8	250	2.3	—	—	1	0.8
	в о-Ксилол	$\Delta\nu'' = 735$	44	253	1.8	239	2.3	—	—	0.14	0.7
9	а Хлорбензол	$\Delta\nu' = 1002$	26	175	0.9	338	2.2	—	—	7	0.76
	б —	—	30	194	0.9	320	2.2	—	—	1	0.62
	в о-Ксилол	$\Delta\nu'' = 735$	33	212	0.9	309	2.2	—	—	0.1	0.56
10	а —	$\Delta\nu' = 992$	96	396	1.6	—	—	415	2.3	0.12	0.73
	б Пиридин	—	90	198	1.7	296	4.4	—	—	0.25	0.54
	в —	$\Delta\nu'' = 997$	86	155	1.7	358	4.4	—	—	3	0.9
	г Вода	—	86	—	—	358	4.4	298	2.8	1	0.35
д —	$\Delta\nu''' = 1030$	69	—	—	390	4.4	227	2.7	0.33	0.92	
11	а —	$\Delta\nu' = 826$	9	295	4.3	95	1.0	—	—	10	0.7
	б Бензол	—	12	—	—	111	1.1	190	3.3	1	0.54
	в —	$\Delta\nu'' = 992$	14	240	4.2	123	1.1	—	—	1	2
	г п-Ксилол	—	19	—	—	156	1.1	164	3.2	7	2.8
д —	$\Delta\nu''' = 1205$	23	216	4.1	189	1.2	—	—	0.07	0.36	
12	а Бензол	$\Delta\nu' = 1000$	13	235	2.2	128	1.1	—	—	16	0.98
	б —	$\Delta\nu'' = 992$	15	—	—	145	1.2	172	1.4	1	0.94
	в м-Ксилол	$\Delta\nu''' = 726$	18	217	2.2	165	1.2	—	—	1	0.72
г —	—	27	201	2.2	243	1.3	—	—	0.09	0.47	

Одной из возможных причин столь сильных аномалий может быть тот факт, что в расчете мы не учли конкуренцию различных колебаний, что особенно сильно сказывается в случае существенного различия порогов наблюдаемых линий.

Действительно, лишь в тех случаях, когда пороги равны, т. е. эффект конкуренции сведен к минимуму, расчет удовлетворительно соответствует эксперименту. В случае, если параметры СКР сравниваемых линий заметно отличаются, по-видимому, необходимо учитывать зависимость коэффициента усиления в пределах ширины линии рассеяния.

Следует отметить, что двухчастотная генерация в спектре ВКР реализуется лишь тогда, когда пороги этих линий отличаются не более чем в 10–15 раз, что соответствует различию удельных интенсивностей сравниваемых линий не более чем в 1.5 раза.

Таким образом, при одновременной генерации нескольких линий спектр вынужденного комбинационного рассеяния существенно зависит от параметров СКР и конкуренции колебаний.

Литература

- [1] Г. Плачек. Рэлеевское рассеяние и Раман-эффект. ОНТИ, 1935.
- [2] В. Н. Луговой. Введение в теорию вынужденного комбинационного рассеяния. Изд. «Наука», М., 1968.
- [3] Y. R. Shen, Y. I. Shahan. Phys. Rev. Lett., 15, 1008, 1965.
- [4] C. Wang. J. Appl. Phys., 37, 1943, 1966.
- [5] M. Maier, W. Kaiser. Phys. Letters, 21, 529, 1966.
- [6] В. А. Еськин, М. Л. Кац, Н. К. Сидоров, Ю. П. Турбин. Опт. и спектр., 26, 1230, 1969.
- [7] В. И. Березин, В. А. Зубов, М. Л. Кац, М. А. Ковнер, Н. К. Сидоров, Л. С. Стальмахова, М. М. Сущинский, Ю. П. Турбин, И. К. Шувалов. Ж. прикл. спектр., 4, 354, 1966.
- [8] И. Д. Шведова, А. П. Герасин, В. В. Сиволобов, Л. М. Свердлов. Ж. прикл. спектр., 11, 1022, 1969.
- [9] В. А. Зубов, М. М. Сущинский, И. К. Шувалов. Радиотехн. и электр., 10, 680, 1965.
- [10] И. И. Кондиленко, П. А. Коротков, В. И. Малый. Опт. и спектр., 34, 1973.

Поступило в Редакцию 22 сентября 1971 г.