

СПЕКТРАЛЬНАЯ ШИРИНА И СТРУКТУРА ЛИНИЙ ВКР В МЕТАНЕ И АЗОТЕ ПРИ ВОЗБУЖДЕНИИ В РЕЗОНАТОРЕ

Ф. А. Королев, В. И. Одинцов и Е. Ю. Соколова

Исследованы спектральные характеристики излучения 1-й стоксовой и 1-й и 2-й антистоксовых компонент в CH_4 и 1-й стоксовой компоненты в N_2 при возбуждении ВКР в резонаторе с продольной накачкой. Возбуждение ВКР осуществлялось импульсом рубинового лазера с модулированной добротностью. Получены оценки ширины линий ВКР и проведено их сопоставление с теорией. Обнаружено наличие структуры стоксовых и антистоксовых компонент.

Спектральные свойства излучения вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) представляют значительный интерес для практического использования этого явления. Кроме того, как показывают, в частности, результаты настоящей работы, они могут дать ценные сведения о контуре линии спонтанного комбинационного рассеяния (СКР), а также о ряде физических факторов, играющих роль при возбуждении ВКР. Несмотря на это, исследованию спектральных характеристик ВКР до настоящего времени не уделялось должного внимания. Что касается спектральных свойств ВКР в резонаторе, то имеющиеся здесь экспериментальные данные крайне ограничены. Следует отметить, что в [1] было получено уменьшение ширины линии ВКР при возбуждении в резонаторе.

Прежде чем переходить к описанию эксперимента, проведем теоретическое рассмотрение спектрального распределения излучения 1-й стоксовой компоненты при возбуждении в резонаторе, результаты которого будут использованы в дальнейшем при обсуждении экспериментальных данных.

1. Расчет спектрального распределения излучения 1-й стоксовой компоненты.

Будем исходить из формулы для спектральной плотности мощности 1-й стоксовой компоненты при возбуждении в резонаторе с продольной накачкой, приведенной в [2]. Она была получена для случая слабого рассеяния в предположении, что потерями мощности 1-й стоксовой компоненты, связанными с возбуждением высших стоксовых и антистоксовых компонент, можно пренебречь. На основании этой формулы спектральная плотность мощности 1-й стоксовой компоненты, усредненная по спектральному интервалу между соседними аксиальными модами резонатора, может быть представлена в виде

$$P_\nu(t) = C e^{G_\nu(t)}, \quad (1)$$

где

$$G_\nu(t) = \int_{t_1}^t \frac{1}{\tau_1} [G_{1\nu}(t') - \gamma] dt'. \quad (2)$$

Здесь C определяется параметрами резонатора и формой возбуждающего импульса в окрестности пороговой точки t_1 , в которой усиление в резонаторе достигает уровня потерь [2], τ_1 — время пролета излучения по резонатору, $G_{1\nu}(t)$ — коэффициент усиления на один проход, который может быть выражен через интенсивность возбуждающего излучения [2], $\gamma = \ln \frac{1}{\sqrt{R_1 R_2}}$ — коэффициент потерь на один проход, R_1 и R_2 — коэффициенты отражения зеркал резонатора ВКР.

Запись мощности стока излучения в виде (1), (2) можно формально сохранить и в случае сильного рассеяния. При этом для $G_{1\nu}(t)$ также может быть получено выражение через интенсивность возбуждающего излучения. Последняя, однако, при сильном рассеянии сама зависит от мощности излучения ВКР в резонаторе. Обобщение формулы для $P_\nu(t)$ на случай сильного рассеяния может все же оказаться полезным, если некоторые характеристики рассеянного или возбуждающего излучения в резонаторе известны из эксперимента. Имея это в виду, не будем ограничивать наше рассмотрение случаем слабого рассеяния.

Если ширина спектрального распределения $P_\nu(t)$ превышает расстояние между соседними аксиальными модами, то в резонаторе будет возбуждаться несколько аксиальных мод ВКР. Ширина отдельной моды здесь не рассматривается; при отсутствии побочных явлений она, по-видимому, определяется в основном длительностью импульса ВКР. Приводимое ниже рассмотрение касается частотного распределения «усредненной» спектральной плотности мощности $P_\nu(t)$ и энергии $E_\nu = \int P_\nu(t) dt$.

Величина $G_{1\nu}(t)$ в (2) пропорциональна коэффициенту усиления b_ν , рассчитанному на единичную интенсивность возбуждающего излучения. Зависимость b_ν от ν определяется формой линии СКР.

Положим

$$b_\nu = b_{\nu_0} (1 - \eta_\nu), \quad (3)$$

где b_{ν_0} — максимальное значение b_ν , достигаемое при $\nu = \nu_0$. Вследствие резкой зависимости P_ν от G_ν и, следовательно от b_ν (см. ниже), P_ν становится много меньше P_{ν_0} уже при небольшом уменьшении b_ν по сравнению с b_{ν_0} . Поэтому можно ограничиться рассмотрением только небольшого интервала частот вблизи ν_0 , в котором $\eta_\nu \ll 1$.

На основании (3) можно записать

$$G_{1\nu}(t) = (1 - \eta_\nu) G_{1\nu_0}(t). \quad (4)$$

Обозначив $\tilde{\gamma}_\nu = \gamma (1 - \eta_\nu)$, введем величину

$$\tilde{G}_\nu(t) = \int_{t_1}^t \frac{1}{\tau_1} [G_{1\nu}(t') - \tilde{\gamma}_\nu] dt' = (1 - \eta_\nu) G_{\nu_0}(t). \quad (5)$$

Здесь и в дальнейшем будем считать, что t_1 определяется для частоты ν_0 . Вследствие малости η_ν с высокой точностью имеем (рис. 1)

$$G_\nu(t) = \tilde{G}_\nu(t) - \frac{1}{\tau_1} (\gamma - \tilde{\gamma}_\nu) (t - t_1) = \tilde{G}_\nu(t) - \frac{1}{\tau_1} \gamma \eta_\nu (t - t_1). \quad (6)$$

На основании (1), (6), (5) получаем

$$P_\nu(t) = P_{\nu_0}(t) e^{-\eta_\nu \left[G_{\nu_0}(t) + \frac{\gamma}{\tau_1} (t - t_1) \right]}. \quad (7)$$

Если b_ν достаточно гладкая функция в интересующем нас частотном интервале вблизи ν_0 , то

$$\eta_\nu \approx -\frac{1}{2} \left(\frac{d^2 b_\nu}{d\nu^2} \right)_{\nu_0} \frac{(\nu - \nu_0)^2}{b_{\nu_0}} \approx \frac{(\nu - \nu_0)^2}{\left(\frac{\Delta \nu}{2} \right)^2}, \quad (8)$$

где $\Delta\nu$ — ширина дисперсионной кривой, аппроксимирующей функцию b_ν вблизи ее максимума.

Из (7), (8) следует, что спектральное распределение $P_\nu(t)$ имеет вид гауссовской функции с шириной

$$\delta\nu(t) = \Delta\nu \sqrt{\frac{\ln 2}{G_{\nu_0}(t) + \frac{\gamma}{\tau_1}(t - t_1)}}. \quad (9)$$

Наличие второго члена в знаменателе (9) обуславливает уменьшение ширины линии ВКР при возбуждении в резонаторе. В частном случае, когда форма лазерного импульса близка к треугольной, из (9) следует формула, приведенная в [2].

С учетом гауссовской формы частотной зависимости $P_\nu(t)$ интегральная мощность стока излучения может быть записана в виде

$$P(t) = \int P_\nu(t) d\nu \simeq 1.06 P_{\nu_0}(t) \delta\nu(t). \quad (10)$$

На основании (1), (10), (9), используя выражение для C из [2], можно показать, что даже при относительно низкой мощности ВКР $P(t) \sim \text{квт } G_{\nu_0}(t) \sim 30$. При таких значениях $G_{\nu_0}(t)$ мощность ВКР очень быстро изменяется даже при небольшом относительном изменении $G_{\nu_0}(t)$. Отсюда следует, что $G_{\nu_0}(t)$ мало изменяется в течение регистрируемого импульса ВКР. Поэтому при не слишком малом γ/τ_1 изменение $\delta\nu(t)$ обусловлено в основном изменением $t - t_1$.

При переходе к стационарной генерации, когда $t - t_1 \rightarrow \infty$, (9) дает $\delta\nu(t) \rightarrow 0$, что соответствует генерации на одной аксиальной моде резонатора [3]. Отметим, что $G_{\nu_0}(t)$ можно определить, если известна мощность ВКР. Этим можно воспользоваться при расчете $\delta\nu$, например, в области сильного рассеяния, когда определение $G_{\nu_0}(t)$ по интенсивности возбуждающего излучения затруднительно.

Для ширины спектрального распределения энергии 1-й стоковой компоненты нетрудно получить

$$\delta\nu_E = \delta\nu(t^*), \quad (11)$$

где

$$t^* = \frac{\int t P_{\nu_0}(t) dt}{\int P_{\nu_0}(t) dt}.$$

Не приводя соответствующего выражения, укажем, что момент времени t^* можно определить также и по функции $P(t)$.

При слабом рассеянии длительность импульса ВКР значительно меньше, чем длительность возбуждающего импульса [2]. Поэтому изменение $\delta\nu(t)$ в течение импульса ВКР невелико. При этом импульс ВКР имеет обычно симметричный или близкий к симметричному вид, достигая максимума в момент времени t_2 , когда усиление в резонаторе падает до уровня потерь. Отсюда следует, что в случае слабого рассеяния $t^* \approx t_2$.

2. Экспериментальная часть

Экспериментальная установка была аналогична использовавшейся в [2] и поэтому ниже описывается кратко. Возбуждение ВКР производилось в резонаторе со сферическими зеркалами длиной 33 см, внутрь которого помещалась кювета с газом. Расстояние между центрами кризисных зеркал составляло 2—3 мм. Использовался как высокодобротный резонатор, когда оба зеркала имели высокий коэффициент отражения на длинах волн первых стоковых компонент, так и низкодобротный,

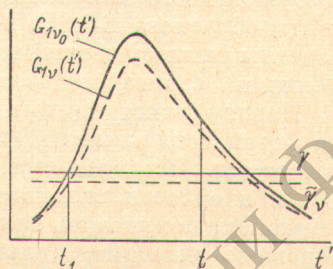


Рис. 1. К расчету спектрального распределения ВКР.

когда одно из зеркал использовалось без отражающего покрытия и имело коэффициент отражения 4%. Излучение рубинового лазера, работавшего в режиме многих поперечных мод, фокусировалось в центр резонатора ВКР. Исследование спектральных характеристик производилось с помощью эталона Фабри—Перо с толщинами 2 и 3 см, который устанавливался перед спектрографом.

Исследования в CH_4 проводились при давлении 15 атм. с использованием как высокодобротного, так и низкодобротного резонаторов. Компоненты ВКР соответствовали полносимметричному молекулярному колебанию 2916 см^{-1} . Возбуждения обратного вынужденного рассеяния Мандельштама—Бриллюэна (ВРМБ) не происходило.

Работа с N_2 проводилась при давлении 100 атм. с применением только высокодобротного резонатора. Наблюдавшиеся компоненты ВКР относились к молекулярному колебанию 2330 см^{-1} . В отличие от CH_4 , в спектре возбуждающего излучения обычно присутствовали три стоксовы компоненты обратного ВРМБ. Мощность наиболее сильной 1-й стоксовой компоненты была существенно меньше, чем мощность лазерной компоненты. Величина сдвига составляла $0.037 \pm 0.002 \text{ см}^{-1}$.

Порог регистрации интерферограмм первых стоксовых компонент на фотопластинках «Инфра-840» был близок к началу области сильного рассеяния. Исследования проводились как вблизи порога регистрации, так и в области сильного рассеяния. Интерферограммы антистоксовых компонент получались при сильном рассеянии. Ниже кратко излагаются основные экспериментальные результаты.

В линиях первых стоксовых компонент хорошо разрешались отдельные аксиальные моды резонатора ВКР, отстоящие друг от друга на $\sim 0.013 \text{ см}^{-1}$. Как показывает теоретическое рассмотрение, «оглабающая» аксиальных мод должна иметь вид гауссовской кривой с шириной, даваемой (9), (11). В действительности, относительная интенсивность мод в большинстве случаев обнаруживала значительные аномалии. Часто наблюдалось чередование большой и малой интенсивности через одномодовый интервал. Иногда слабые моды не были видны, так что соседние компоненты линии располагались на двухмодовых интервалах. В других случаях расстояние между сильными компонентами составляло трехмодовый интервал и более. На некоторых интерферограммах наблюдалась асимметрия общего контура линии с выделением группы интенсивных компонент со стороны больших или меньших частот. Иногда возникала интенсивная компонента с большим (до $\sim 0.1 \text{ см}^{-1}$) сдвигом от центральной части линии. Указанные явления могут рассматриваться как наличие структуры линий ВКР. Хотя в характере структуры проявлялись определенные закономерности, она не воспроизводилась от снимка к снимку.

В области сильного рассеяния линии ВКР обычно были шире, чем при пороге регистрации. Это можно объяснить, по-видимому, как уменьшением при сильном рассеянии промежутка времени $t^* - t_1$ [см. (11), (9)], так и увеличением влияния структуры.

На рис. 2 приведены характерные интерферограммы, а на рис. 3 даны примеры структуры линий. На этом рисунке минимальное расстояние между компонентами соответствует одномодовому интервалу, а высота линий указывает относительную интенсивность компонент.

Наиболее узкой была линия 1-й стоксовой компоненты в CH_4 при возбуждении в резонаторе малой добротности. При слабом рассеянии она состояла из 2—4 соседних мод резонатора. В высокодобротном резонаторе линия 1-й стоксовой компоненты была заметно шире. Хотя в условиях проявления структуры точная оценка ширины линии ВКР затруднительна, все же, используя интерферограммы, относящиеся к слабому рассеянию и обладающие менее выраженной структурой, можно приближенно оценить ширину 1-й стоксовой компоненты в CH_4 в резонаторах низкой и высокой добротности соответственно в $3 \cdot 10^{-2}$ и $5 \cdot 10^{-2} \text{ см}^{-1}$.

Структура антистоксовых компонент, исследованная в CH_4 как в высокодобротном, так и в низкодобротном резонаторах, характеризовалась

в целом более широким расположением линий, чем у первых стоксовых компонент.

В N_2 ширина 1-й стоксовой компоненты была значительно больше, чем в CH_4 , что соответствует большей ширине линии СКР. При слабом

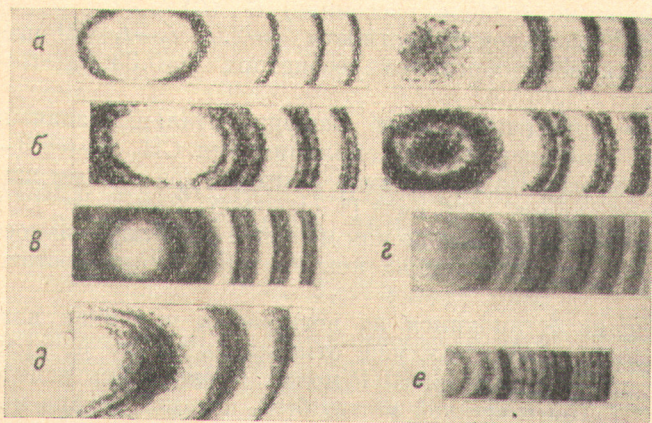


Рис. 2. Интерферограммы компонент ВКР.

a — CH_4 , 1s, н. р.; *б* — CH_4 , 1s, в. р.; *в* — CH_4 , 1as, в. р.; *г* — CH_4 , 2as, н. р.; *д* — и *е* — N_2 , 1s, в. р. Толщина эталона Фабри-Перо для интерферограмма *a-г* и *е* — 3 см, для *д* — 2 см. 1s, 1as, 2as — соответственно 1-я стоксова, 1-я и 2-я антистоксовы компоненты; н. р. — низкодобротный резонатор, в. р. — высокодобротный резонатор.

рассеянии она может быть приблизительно оценена в $0.08-0.1 \text{ см}^{-1}$.

Значительный интерес представляет структура, полученная в N_2 при максимальной использовавшейся накачке (рис. 2, *e*). Она характеризуется периодическим усилением интенсивности компонент через интервал $0.032 \pm 0.002 \text{ см}^{-1}$. Эта величина в пределах ошибок измерений совпадает с величиной сдвига при обратном ВРМБ в N_2 для длины волны 1-й стоксовой компоненты, который равняется 0.031 см^{-1} [4, 5]. Это дает основание считать, что в данном случае структура линии ВКР обусловлена усилением отдельных компонент за счет процесса ВРМБ. Поскольку на интерферограмме наиболее сильная компонента соответствует наибольшей частоте, то можно предположить, что при ВРМБ энергия этой компоненты последовательно передается другим компонентам, смещенным в стоксову область и отстоящим друг от друга на величину, близкую к сдвигу обратного ВРМБ. Ввиду того что в данном случае речь идет не о возбуждении новых компонент ВРМБ, а лишь о некотором перераспределении интенсивности среди уже имеющихся модовых компонент линии ВКР, то для протекания такого процесса достаточно очень низкое усиление на стоксовой частоте ВРМБ. К тому же надо принять во внимание, что процесс ВРМБ протекает в резонаторе, что существенно снижает требуемую величину усиления на 1 проход.

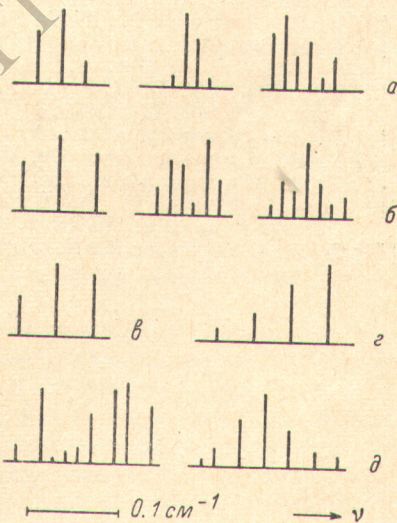


Рис. 3. Примеры структуры компонент ВКР.

a — CH_4 , 1s, н. р.; *б* — CH_4 , 1s, в. р.; *в* — CH_4 , 1as, в. р.; *г* — CH_4 , 2as, н. р.; *д* — N_2 , 1s, в. р.

Обозначения те же, что и на рис. 2.

Полученные данные о спектральной ширине линий первых стоксовых компонент могут быть использованы для оценки $\Delta\nu$ — ширины дисперсионной кривой, аппроксимирующей вершину линии СКР.

Учет экспериментальных условий, при которых были получены интерферограммы первых стоксовых компонент, показывает, что вблизи порога регистрации (слабое рассеяние) $G_0(t_2) \approx 29$.

Для резонатора малой добротности $\gamma=2.0$, $t_2-t_1=29$ нсек. и $\delta\nu_E = 0.1\Delta\nu$. Для высокодобротного резонатора $\gamma=0.33$, $t_2-t_1=42$ нсек. и $\delta\nu_E=0.13\Delta\nu$.

Используя приведенные выше экспериментальные значения ширины 1-й стоксовой компоненты ВКР, получим для CH_4 $\Delta\nu=0.3-0.4$ см⁻¹ и для N_2 $\Delta\nu=0.8$ см⁻¹. По имеющимся в литературе данным ширина линии СКР в CH_4 составляет ~ 0.6 см⁻¹ [6, 7], а в N_2 2 см⁻¹ [6-8].¹ Полученное различие может быть объяснено как меньшей в действительности шириной линии СКР, так и наличием на контуре этой линии достаточно острой вершины.

В заключение остановимся на возможных причинах возникновения структуры линий ВКР. Как уже отмечалось выше, перераспределение интенсивности между модами ВКР может происходить вследствие явления ВРМБ. Другой причиной может быть взаимодействие мод ВКР при сильном рассеянии, вызываемое истощением лазерной мощности. Как показывают количественные оценки, такое взаимодействие может приводить к существенному искажению модовой структуры линии. Наряду с этим не исключено влияние изменения нелинейного показателя преломления среды в поле лазерного излучения [10].

Литература

- [1] P. V. Avizonis, A. H. Guenther, T. A. Wiggins, R. V. Wick, D. H. Rank. *Appl. Phys. Lett.*, 9, 309, 1966.
- [2] Ф. А. Королев, В. И. Одинцов, В. Н. Роговой, Е. Ю. Соколова. *Опт. и спектр.*, 30, 776, 1971.
- [3] В. Н. Луговой. *ЖЭТФ*, 56, 683, 1969.
- [4] D. H. Rank, T. A. Wiggins, R. V. Wick, D. P. Eastman, A. H. Guenther. *J. Opt. Soc. Am.*, 36, 174, 1966.
- [5] T. T. Saito, L. M. Peterson, D. H. Rank, T. A. Wiggins. *J. Opt. Soc. Am.*, 60, 749, 1970.
- [6] П. А. Бажулин, Ю. А. Лазарев. *Опт. и спектр.*, 8, 200, 1960.
- [7] Г. В. Михайлов. *Тр. ФИАН*, 27, 150, 1964.
- [8] Г. В. Михайлов. *ЖЭТФ*, 36, 1918, 1959.
- [9] V. Alekseyev, A. Grasiuk, V. Ragulsky, I. Sobelman, F. Faizulov. *IEEE J. Quant. Electr.*, QE-4, 654, 1968.
- [10] Л. А. Островский. *Письма в ЖЭТФ*, 6, 807, 1967.

Поступило в Редакцию 4 августа 1971 г.