

УДК 621.375.82

ФИЗИКА

И. И. КОНДИЛЕНКО, П. А. КОРОТКОВ, В. И. МАЛЫЙ

ОСОБЕННОСТИ СПЕКТРОВ ВЫНУЖДЕННОГО
КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ (В.К.Р.) ВЫСОКИХ
ПОРЯДКОВ СПЕКТРАЛЬНО-НЕОДНОРОДНЫХ СРЕД

(Представлено академиком И. В. Обреимовым 28 VI 1973)

Подавляющее большинство лазерно-активных сред являются спектрально- и пространственно-неоднородными. Для эффективного использования таких систем необходимо знание их свойств и особенностей. Простейшей спектрально-неоднородной системой является составной рубиновый ОКГ, ранее нами детально исследованный ⁽¹⁾. Более сложными, но с многообразными проявлениями нелинейных эффектов как низких, так и высоких порядков со сравнительно невысокими порогами генерации, являются в.к.р. активные среды ^(2, 3). В спектре в.к.р., как правило, в генерацию выходит одно полносимметричное колебание; это позволило нам смоделировать ряд достаточно простых спектрально-неоднородных систем и на их основе провести исследования особенностей нелинейных эффектов в спектре в.к.р. высоких порядков. Спектрально-неоднородная система создавалась на базе различных бинарных растворов, составляющие компоненты которых обладают в.к.р. активными колебаниями. Закономерности нелинейных эффектов высоких порядков, проявляющихся в спектрах в.к.р., изучались в зависимости от величины расстройки, концентрации и межмолекулярного взаимодействия.

Экспериментальные исследования проводились на установке, описанной в ⁽³⁾. Типичные спектрограммы в.к.р. в смесях приведены на рис. 1. Концентрации компонент бинарных растворов подобраны так, чтобы пороги генерации основных колебаний (W_v^n) были одинаковы. Так, в случае бензол — хлорбензол W_{992}^n (C_6H_6) = W_{1001}^n (C_6H_5Cl) при 37% содержании бензола в смеси. В этом случае при расстройке $\Omega = |\omega_{f_1} - \omega_{f_2}| \approx 10 \text{ см}^{-1}$ ($\omega_{f_1, 2}$ — собственные частоты в.к.р. активных молекулярных колебаний) и превышении порогов в 5—7 раз легко наблюдаются в стоксовой области порядка 3—5 составных компонент ($n_1\omega_{s1} - n_2\omega_{s2}$, где ω_{s1} и ω_{s2} — наблюдаемые стоксовые частоты, $\omega_{s1} = \omega_L - \omega_{f_1}$, $\omega_{s2} = \omega_L - \omega_{f_2}$, ω_L — лазерная частота накачки, $n_1 \neq n_2$ пробегают значения 1, 2, 3...), а в антистоксовой 1—3, причем полуширины стоксовых и антистоксовых составных компонент отличаются незначительно. Вместе с тем, по мере роста номера составной компоненты увеличивается и ее полуширина, т. е. $\delta_{3\omega_{s1}-2\omega_{s2}} > \delta_{2\omega_{s1}-\omega_{s2}}$ и $\delta_{3\omega_{s1}-2\omega_{s1}} > \delta_{\omega_{s1}-\omega_{s2}}$, а интенсивность довольно резко падает. Особо следует подчеркнуть, что на составных компонентах отчетливо просматривается тонкая структура, свидетельствующая о спектральной неоднородности линии в.к.р. высокого порядка.

В случае водных растворов пиридина, согласно ⁽³⁾, $W_{997}^n = W_{1030}^n$ при 85% пиридина. Эта бинарная смесь интересна тем, что обе линии, выходящие в генерацию, принадлежат пиридину. Поэтому несмотря на то, что расстройка в 3 раза больше ($\Omega \approx 35 \text{ см}^{-1}$), чем в случае бензол — хлорбензол, число составных компонент в этих смесях — при равных превышениях накачки над порогом — приблизительно одинаково. Кроме того, по-видимому, из-за сильного взаимодействия между молекулярными колебаниями,

наблюдаются более широкие значения δ составных компонент. В остальном общие закономерности те же.

Бинарный раствор пиридин — толуол ($\sim 40\%$) примечателен тем, что в спектре в.к.р. наблюдаются частоты, принадлежащие не только толуолу 1004 см^{-1} и пиридину 992 см^{-1} в отдельности, но и частота, присущая им обоим, — 1030 см^{-1} ($\Omega = 0$). Благодаря точному резонансу компонент смеси на частоте 1030 см^{-1} улучшилась, несмотря на достаточно большую расстройку $\Omega \approx 38 \text{ см}^{-1}$, эффективность взаимодействия и на других колеба-

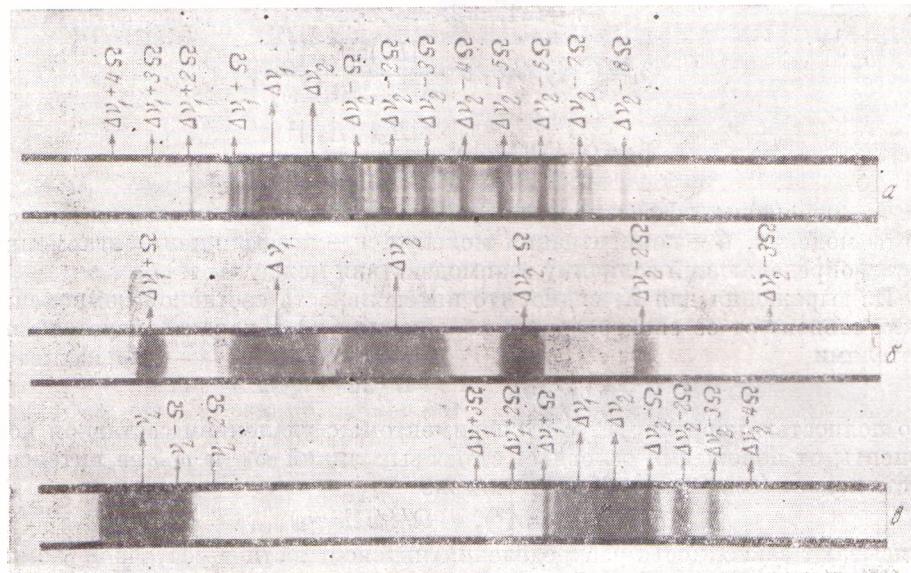


Рис. 1. Спектр в.к.р. высших порядков; *a* — бензол — хлорбензол, *б* — пиридин — вода, *в* — бензол — нитробензол

ниях, принадлежащих разным молекулам. Концентрация компонент подбиралась такая, что $W_{1004}^n \approx W_{992}^n \approx W_{1030}^n$. При этом наблюдаемая картина в спектре в.к.р. высоких порядков более сложная, чем в первых двух системах из-за взаимодействия четырех молекулярных колебаний. Отметим дополнительно только, что наиболее богатой спектральными линиями оказалась область от 990 до 1030 см^{-1} .

Аналогичная картина наблюдается и в спектрах в.к.р. бинарных смесей: бензол-*o*-ксилол ($\Delta\nu = 992 \text{ см}^{-1}$, $\Delta\nu = 735 \text{ см}^{-1}$), бензол — толуол ($\Delta\nu = 992 \text{ см}^{-1}$, $\Delta\nu = 1002 \text{ см}^{-1}$), бензол — бензиловый спирт ($\Delta\nu = 992 \text{ см}^{-1}$, $\Delta\nu = 1004 \text{ см}^{-1}$) и в некоторых других. Интерпретация наблюдаемых результатов хорошо описывается с точки зрения модели двух связанных ангармонических осцилляторов с затуханием ⁽⁴⁾, на которой действует суммированная полей накачки (ω_L) и двух стоксовых полей (ω_{s1} , ω_{s2}). В приближении коллинеарности вектора поляризации среды \vec{E}_L , $\vec{E}_{\omega_{s1}}$ и $\vec{E}_{\omega_{s2}}$ при решении задачи связанных волн (среда изотропна) в спектре рассматриваемых осцилляторов в результате процессов типа $\omega = \omega_L - \omega_L + \omega_{s1} - \omega_{s2} + \omega$ ($i=1, 2$) появляются новые линии на частотах, соответствующих составным компонентам. В общем виде решение этой задачи выполнено в ⁽⁵⁾.

Выделяя в выражении для нелинейной поляризации на частоте ω только резонансные члены и полагая ω_L , ω_{s1} , $\omega_{s2} \gg \omega_{f1}$, $\omega_{f2} \gg \gamma_1$, γ_2 , где γ_i — полуширина линии с.к.р., получим:

$$P^{n\pi}(\omega) = P_1^{n\pi}(\omega = \omega_L - \omega_L + \omega_{s1} - \omega_{s2} + \omega) + P_2^{n\pi}(\omega) = \\ = (\omega_L - \omega_L + \omega_{s1} - \omega_{s2} + \omega) = (\beta_1 X_1 + \beta_2 X_2) E, \quad (5)$$

где

$$X_1 = \frac{\Omega}{\omega_{f_1}^3 \omega_{f_2} (2\omega_1 + i\gamma_1) (4\Omega^2 + \gamma_1^2)},$$

$$X_2 = \frac{\Omega}{\omega_{f_1} \omega_{f_2}^3 (2\omega_2 + i\gamma_2) (4\Omega^2 + \gamma_2^2)},$$

$$\Omega = \omega_{s_1} - \omega_{s_2} = \omega_{f_1} - \omega_{f_2} > \gamma_1/2, \quad \gamma_2/2;$$

$$\omega_1 = \omega_L - \omega_{s_1} = \eta \Omega, \quad \omega_2 = \omega_1 + \Omega = (\eta + 1) \Omega,$$

$$\eta = \pm 1, \pm 2, \pm 3 \dots;$$

$$\beta_1 = (-1)^4 C_1 b_1^4 v^4 \frac{|E_L|^2 |E_{s_2}|^2}{\omega_L^4 \omega_{s_2}^2 D_1^2(\omega)},$$

$$\beta_2 = (-1)^4 C_2 b_2^4 v^4 \frac{|E_L|^2 |E_{s_1}|^2}{\omega_L^4 \omega_{s_1}^2 D_2^2(\omega)},$$

где l_i — отношение эффективного заряда к приведенной массе для данного сорта молекул, C — концентрации молекул, v — коэффициент ангармоничности, определяющий величину взаимодействия между ω_{f_1} и ω_{f_2} .

Из выражения для X_i видно, что интенсивность составной компоненты в.к.р. зависит от ее спектрального положения (ω) и характеризуется множителями

$$1/(2\omega_1 + i\gamma_1) \quad \text{и} \quad 1/(2\omega_2 + i\gamma_2),$$

что полностью коррелирует с экспериментом: с удалением составной компоненты от положения основных стоксовых линий ω_{s_1} и ω_{s_2} ее интенсивность падает (см. рис. 1). Множители же

$$\Omega/(4\Omega^2 + \gamma_1^2), \quad \Omega/(4\Omega^2 + \gamma_2^2)$$

описывают зависимость распределения интенсивности в составной компоненте от величины расстройки Ω . Это должно проявляться в различном оттенении составных компонент, расположенных справа и слева от ω_{s_1} и ω_{s_2} , причем с увеличением расстройки будет расти хвост оттенения, а следовательно, и ширина линии (см. рис. 1).

Поскольку как первый, так и второй множители в X_1 , X_2 и β_1 , β_2 зависят от ω , то они дают неравноценные вклады в интенсивности составных компонент, расположенных в коротковолновой и длинноволновой спектральных областях относительно основных компонент (ω_{s_1} , ω_{s_2}). Это отчетливо проявляется в наблюдаемой симметрии огибающей составных компонент. Действительно, с коротковолновой стороны значения частот (ω) более высокие, чем с длинноволновой и, следовательно, падение интенсивности с ростом номера составной компоненты должно происходить более резко, что, в частности, хорошо видно на примере первых составных компонент ($J^a \sim 1/\omega_a^5$, а $J^s \sim 1/\omega_s^5$, и так как $\omega_s < \omega_a$, то $J^a < J^s$). Следует также отметить, что достаточно высокие интенсивности взаимодействующих волн, допускающие их многократное смешивание, могут дополнительно усложнить структуру линий составных компонент.

Таким образом, полученный экспериментальный материал в деталях, хотя и качественно описывается в рамках теории связанных волн.

Киевский государственный университет
им. Т. Г. Шевченко

Поступило
22 VI 1973

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

¹ I. I. Kondilenko, P. A. Korotkov, O. N. Koshel, Phys. Stat. Sol., Ser. A, v. 4, 43; v. 7, 365; v. 8, 47 (1971). ² Я. С. Бобович, А. В. Борткевич, Журн. прикл. спектроскопии, т. 11, 662 (1969); P. A. Королев, В. И. Одинцов, П. А. Танделов, Оптика и спектроскопия, т. 24, 292 (1968); E. R. Lippincott, C. E. Myers, Spectrochim. acta, v. 22, 1493 (1966). ³ И. И. Кондиленко, П. А. Коротков, В. И. Малый, Оптика и спектроскопия, т. 31, 909 (1971). ⁴ Н. Бломберген, Нелинейная оптика, М., 1966. ⁵ И. И. Кондиленко, П. А. Коротков, В. И. Малый, Доклады на Всесоюзном симпозиуме: Физические основы управления частотой вынужденного излучения, Киев, 1972.