

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. Обрешиновым 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 <sup>(1)</sup>. 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 <sup>(2, 3)</sup>. 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 <sup>(3)</sup>. Типичные спектрограммы в.к.р. в смесях приведены на рис. 1. Концентрации компонент бинарных растворов подобраны так, чтобы пороги генерации основных колебаний ( $W_{992}^{\pi}$ ) были одинаковы. Так, в случае бензол — хлорбензол  $W_{992}^{\pi}(\text{C}_6\text{H}_6) = W_{1001}^{\pi}(\text{C}_6\text{H}_5\text{Cl})$  при 37% содержании бензола в смеси. В этом случае при расстройке  $\Omega = |\omega_{f_1} - \omega_{f_2}| \approx 10 \text{ см}^{-1}$  ( $\omega_{f_1}, \omega_{f_2}$  — 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  $\omega_{S1}$  и  $\omega_{S2}$  — наблюдаемые стоксовые частоты,  $\omega_{S1} = \omega_L - \omega_{f_1}$ ,  $\omega_{S2} = \omega_L - \omega_{f_2}$ ,  $\omega_L$  — лазерная частота накачки,  $n_1 \neq n_2$  пробегает 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  $\delta_{3\omega_{S2} - 2\omega_{S1}} > \delta_{\omega_{S2} - \omega_{S1}}$ , 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 <sup>(3)</sup>,  $W_{997}^{\pi} = W_{1030}^{\pi}$  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  $\delta$  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  $1004\text{ см}^{-1}$  и пиридину  $992\text{ см}^{-1}$  в отдельности, но и частота, присущая им обоим, —  $1030\text{ см}^{-1}$  ( $\Omega = 0$ ). Благодаря точному резонансу компонент смеси на частоте  $1030\text{ см}^{-1}$  улучшилась, несмотря на достаточно большую расстройку  $\Omega \approx 38\text{ см}^{-1}$ , эффективность взаимодействия и на других колеба-

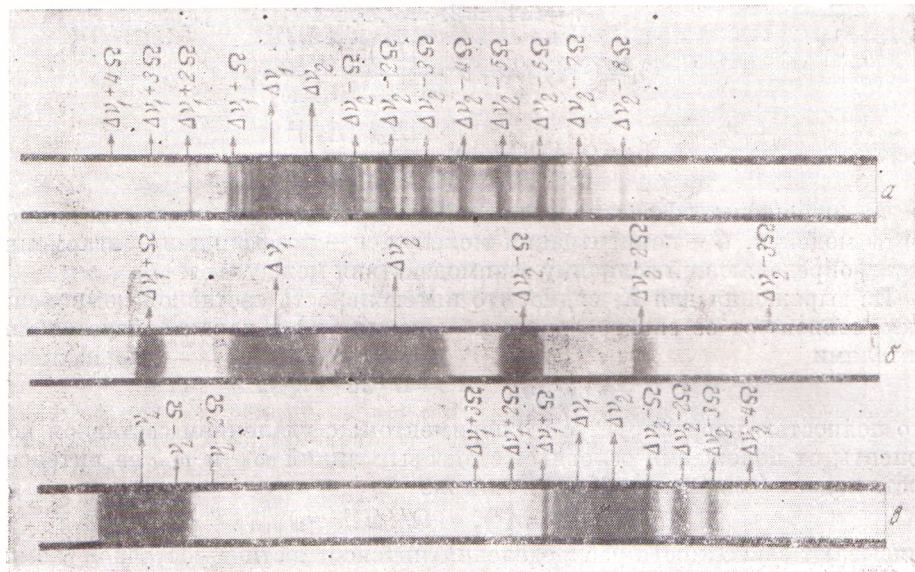


Рис. 1. Спектр в.к.р. высших порядков; а — бензол — хлорбензол, б — пиридин — вода, в — бензол — нитробензол

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  $1030\text{ см}^{-1}$ .

Аналогичная картина наблюдается и в спектрах в.к.р. бинарных смесей: бензол-*о*-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<sup>(4)</sup>, на которой действует суперпозиция полей накачки ( $\omega_L$ ) и двух стоксовых полей ( $\omega_{s1}$ ,  $\omega_{s2}$ ). В приближении коллинеарности вектора поляризации среды  $E_L$ ,  $E_{s1}$  и  $E_{s2}$  при решении задачи связанных волн (среда изотропна) в спектре рассматриваемых осцилляторов в результате процессов типа  $\omega = \omega_L - \omega_L + \omega_{s1} - \omega_{s1} + \omega$  ( $i=1, 2$ ) появятся новые линии на частотах, соответствующих составным компонентам. В общем виде решение этой задачи выполнено в<sup>(5)</sup>.

Выделяя в выражении для нелинейной поляризации на частоте  $\omega$  только резонансные члены и полагая  $\omega_L$ ,  $\omega_{s1}$ ,  $\omega_{s2} \gg \omega_{f1}$ ,  $\omega_{f2} \gg \gamma_1$ ,  $\gamma_2$ , где  $\gamma_i$  — полуширина линии с.к.р., получим:

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

где

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

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

$$\Omega = \omega_{S1} - \omega_{S2} = \omega_{f_1} - \omega_{f_2} > \gamma_1/2, \quad \gamma_2/2;$$

$$\omega_1 = \omega_L - \omega_{S1} = \eta\Omega, \quad \omega_2 = \omega_1 + \Omega = (\eta + 1)\Omega,$$

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

$$\beta_1 = (-1)^4 C_1 b_1^4 v^4 \frac{|E_L|^2 |E_{S2}|^2}{\omega_L^4 \omega_{S2}^4 D_1^2(\omega)},$$

$$\beta_2 = (-1)^4 C_2 b_2^4 v^4 \frac{|E_L|^2 |E_{S1}|^2}{\omega_L^4 \omega_{S1}^4 D_2^2(\omega)},$$

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

Из выражения для  $X_i$  видно, что интенсивность составной компоненты в.к.р. зависит от ее спектрального положения ( $\omega$ ) 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  $\omega_{S1}$  и  $\omega_{S2}$  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  $\Omega$ . Это должно проявляться в различном оттенении составных компонент, расположенных справа и слева от  $\omega_{S1}$  и  $\omega_{S2}$ , 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  $\beta_1$ ,  $\beta_2$  зависят от  $\omega$ , то они дают неравноценные вклады в интенсивности составных компонент, расположенных в коротковолновой и длинноволновой спектральных областях относительно основных компонент ( $\omega_{S1}$ ,  $\omega_{S2}$ ). Это отчетливо проявляется в наблюдаемой симметрии огибающей составных компонент. Действительно, с коротковолновой стороны значения частот ( $\omega$ ) 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 усложнять 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

- <sup>1</sup> I. I. Kondilenko, P. A. Korotkov, O. N. Koshel, Phys. Stat. Sol., Ser. A, v. 4, 43; v. 7, 365; v. 8, 47 (1971).
- <sup>2</sup> Я. С. Бобович, А. В. Боршкевич, Журн. прикл. спектроскоп., т. 11, 662 (1969); Р. А. 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).
- <sup>3</sup> И. И. Кондilenko, П. А. Коротков, В. И. Малый, Оптика и спектроскопия, т. 31, 909 (1971).
- <sup>4</sup> Н. Бломберген, Нелинейная оптика, М., 1966.
- <sup>5</sup> И. И. Кондilenko, П. А. Коротков, В. И. Малый, Доклады на Всесоюз. симпозиуме: Физические основы управления частотой вынужденного излучения, Киев, 1972.