

03;07

Влияние мощности лазерной накачки на сигнал ВКР–КАРС в сжатом водороде

© Г.М. Михеев, А.Ю. Попов, Т.Н. Могилева

Институт прикладной механики УрО РАН, Ижевск
E-mail: gmmikhееv@udmnet.ru

Поступило в Редакцию 8 сентября 2006 г.

Для диагностики водорода в газовых смесях методом когерентного анти-стоксова рассеяния света (КАРС) с применением бигармонической накачки на основе вынужденного комбинационного рассеяния света (ВКР) исследовано влияние мощности лазерной накачки на сигнал ВКР–КАРС в сжатом водороде. Обнаружен сдвиг максимума сигнала рассеяния как функции давления газа в КАРС-кювете при увеличении лазерной мощности на входе ВКР-генератора. Полученный результат может объясняться изменением положения энергетических уровней, возникающим за счет существенного движения населенностей в процессе ВКР при больших мощностях лазерной накачки.

PACS: 42.65.Dr

Известно, что ВКР на колебательном переходе $Q_{01}(1)$ в сжатом водороде сопровождается существенным перераспределением населенностей по колебательным состояниям [1]. При фокусировке излучения накачки ω_p в кювету со сжатым водородом (ВКР-кювету) возникает генерация стоксовой компоненты рассеяния на частоте ω_s , удовлетворяющей условию резонанса:

$$\omega_p - \omega_s = \Omega_{\rho 0}, \quad (1)$$

где $\Omega_{\rho 0}$ — частота колебательного перехода $Q_{01}(1)$ при безразмерной плотности газа $\rho = \rho_0$, выражаемой в Amagat [2]. В результате происходит эффективное заселение верхнего колебательного уровня ($V = 1$), незаселенного первоначально. При достаточно мощной лазерной накачке возбуждается ВКР на переходе $Q_{12}(1)$, что приводит к неравновесному заселению следующего более высокого уровня $V = 2$ [3,4]. Изменение равновесного распределения населенностей, возникающее при ВКР, и большее значение поляризуемости молекул,

находящихся на более высоких колебательных уровнях [5], приводит к увеличению показателя преломления той области среды, через которую проходит пучок лазера. В результате может возбуждаться волноводное ВКР, которое в экспериментах проявляется в виде яркого конусного излучения на частоте ω_s первой стоксовой компоненты рассеяния [6,7].

Другим более тонким эффектом, обусловленным перераспределением населенностей при ВКР, может явиться изменение положения энергетических уровней. В этом случае происходит смещение частоты $\Omega_{\rho 0}$ молекулярных колебаний, что, в свою очередь, приводит к изменению разности $\omega_p - \omega_s = \Omega_{ps}$ частотных компонент ω_p и ω_s . Лазерный пучок, содержащий эти компоненты рассеяния, может применяться в качестве бигармонической накачки при диагностике водорода в газовых смесях методом КАРС [8–12]. Очевидно, что возможные флуктуации частоты Ω_{ps} при изменении мощности лазерной накачки на входе ВКР-кюветы будут отрицательно влиять на результаты, получаемые при ВКР–КАРС диагностике водорода. Поэтому актуально обнаружение и исследование этого эффекта, что является целью данной работы.

Пусть бигармоническая накачка на частотах ω_p и ω_s , удовлетворяющая условию (1) и возникающая в ВКР-кювете при фиксированной плотности водорода $\rho = \rho_0$, фокусируется в другую кювету (КАРС-кювету) со сжатым водородом при плотности ρ . При этом под действием бигармонической накачки в КАРС-кювете возникает антистоксова компонента рассеяния на частоте $\omega_a = 2\omega_p - \omega_s$, интенсивность которой I_a , в пренебрежении нерезонансным вкладом, будет определяться следующим выражением [13,14]:

$$I_a = \left| \frac{1}{3} \cdot \Delta_k^n \cdot \frac{2\pi n_{H_2} c^4}{h\omega_s^4} \cdot \frac{d\sigma}{do} \cdot \frac{1}{\Omega_\rho - (\omega_p - \omega_s) - i\Gamma_\rho} \right|^2 \cdot l^2 \cdot \frac{\sin^2\left(\frac{\Delta k l}{2}\right)}{\left(\frac{\Delta k l}{2}\right)^2} I_p^2 I_s, \quad (2)$$

где I_p, I_s — интенсивности излучения на частотах ω_p и ω_s соответственно; Ω_ρ, Γ_ρ — частота колебательного перехода $Q_{01}(1)$ и полуширина линии комбинационно-активного перехода, определяемая на половинном уровне, при плотности газа ρ соответственно; n_{H_2} — концентрация молекул; Δ_k^n — разность населенностей уровней; $d\sigma/do$ — молекулярное сечение спонтанного комбинационного рассеяния света на указанном переходе; Δk — волновая расстройка, $\Delta k = k_a + k_s - 2k_p$, k_a, k_s, k_p — волновые вектора частотных компонент $\omega_a, \omega_s, \omega_p$ соответственно; l — длина взаимодействия. Волновая расстройка может быть рассчитана из

известной зависимости показателя преломления водорода от длины волны и определяется следующим образом: $\Delta k = 0.168\rho/l_0$, где $l_0 = 1$ см. Заметим, что $I_a = \varepsilon_a/\tau_a$, где ε_a и τ_a — энергия и длительность импульса излучения на антистоксовой частоте ω_a соответственно. Известно, что величины Γ_ρ и Ω_ρ для газообразного водорода зависят от его плотности ρ следующим образом [2]:

$$\frac{2\Gamma_\rho}{2\pi} = \frac{a}{\rho} + b\rho, \quad (3)$$

$$\frac{\Omega_\rho}{2\pi} = \frac{\Omega_0}{2\pi} - c\rho, \quad (4)$$

где $a = 309 \text{ MHz} \cdot \text{Amagat}$, $b = 52.2 \text{ MHz/Amagat}$, $c = 96 \text{ MHz/Amagat}$ при температуре 298 K , Ω_0 — частота перехода $Q_{01}(1)$ при нулевой плотности газа. При заданных интенсивностях I_p и I_s выражение (2) с учетом (1), (3) и (4) можно привести к следующему виду:

$$\varepsilon_a = \frac{D \sin^2(d\rho)}{\left[\frac{a}{2\rho} + \frac{b\rho}{2}\right]^2 + c^2(\rho_0 - \rho)^2}, \quad (5)$$

где $d = 0.084l/l_0$, D — коэффициент, имеющий размерность.

В экспериментах излучение одномодового одночастотного YAG:Nd³⁺-лазера с пассивной модуляцией добротности [15] после преобразования во вторую гармонику (при радиусе пучка w около 1 mm) фокусировалось в ВКР-кювету ($L_1 = 0.86 \text{ m}$) с газообразным водородом при плотности $\rho_0 = 7.9 \text{ Amagat}$ с помощью линзы ($F_1 = 0.66 \text{ m}$). Энергия ε_p лазерных импульсов ($\tau_p = 16 \text{ ns}$) на входе ВКР-кюветы менялась с помощью нейтральных фильтров. Бигармоническая лазерная накачка ($\lambda_p = 532 \text{ nm}$, $\lambda_s = 683 \text{ nm}$), возникающая в ВКР-кювете (после коллимирования, а также ослабления более чем в 10 раз и частотной селекции от антистоксовых и высших стоксовых компонент рассеяния), с помощью другой линзы ($F_2 = 0.18 \text{ m}$) фокусировалась в центр КАРС-кюветы ($L_2 = 0.2 \text{ m}$) со сжатым водородом. Энергия импульса ε_a антистоксовой компоненты рассеяния (длина волны $\lambda_a = 435.7 \text{ nm}$), возникающая в КАРС-кювете, после коллимирования и выделения с помощью диспергирующей призмы регистрировалась с помощью фотодиода и многоканальной системы регистрации лазерных импульсов [11].

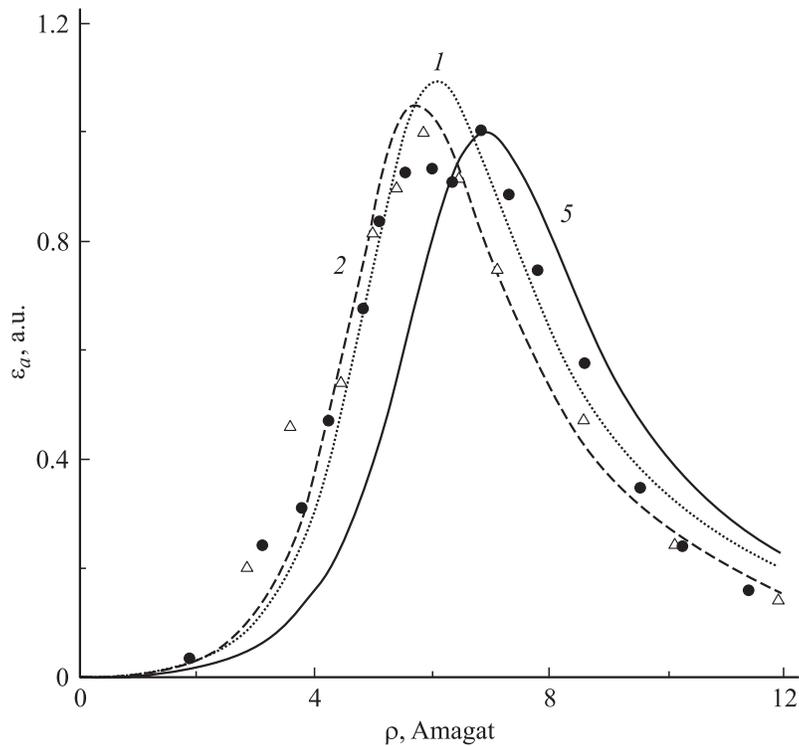


Рис. 1. Экспериментальные зависимости энергии импульса ε_a излучения антистоксовой компоненты рассеяния на выходе КАРС-кюветы от плотности газа ρ при плотности водорода в ВКР-кювете $\rho_0 = 7.9$ Amagat и аппроксимирующие их кривые по формуле (5) для импульсной энергии излучения накачки на входе ВКР-кюветы $\varepsilon_{p1} = 4.3$ мДж (●, кривая 1), $\varepsilon_{p2} = 7.4$ мДж (Δ, кривая 2), $\varepsilon_{p3} = 11.4$ мДж (■, кривые 3, 4) (кривая 4 получена в результате аппроксимации с помощью четырех подгоночных параметров с учетом уширения частотного спектра бигармонической накачки), а также рассчитанная теоретическая зависимость ε_a от ρ (кривая 5) при $\rho_0 = 7.9$ Amagat и длине взаимодействия $l = l_{eff} = 1.7$ см.

В экспериментах для заданной плотности водорода в ВКР-кювете ρ_0 при различных фиксированных значениях ε_p исследовались зависимости ε_a от плотности газа ρ в КАРС-кювете. На рис. 1 показаны экспериментальные зависимости $\varepsilon_a(\rho)$ ($\rho_0 = 7.9$ Amagat), полученные

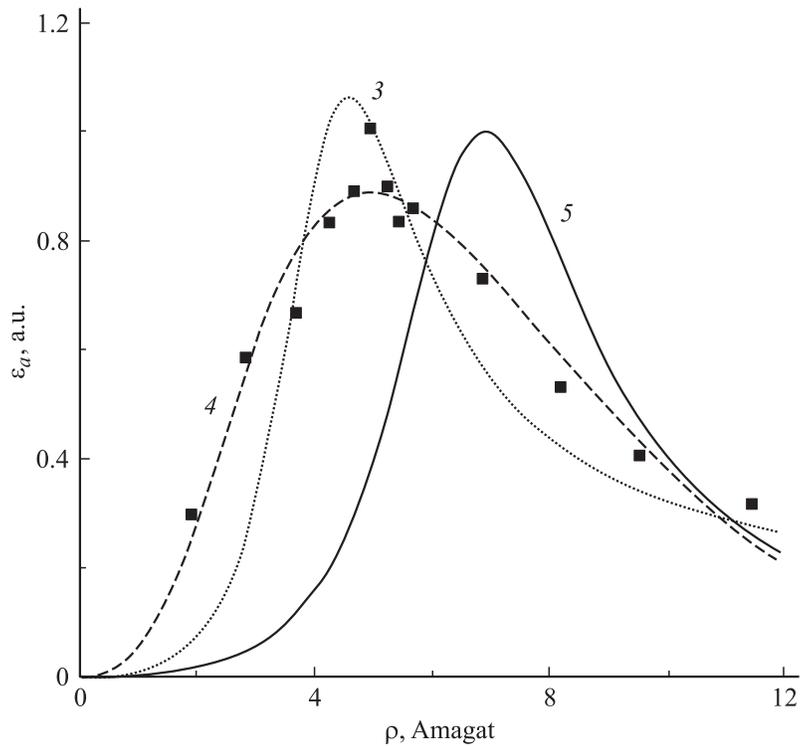


Рис. 1 (продолжение).

при ε_{pi} (где $i = 1, 2, 3$) после соответствующего нормирования на максимальные значения. Необходимо отметить, что для данной геометрии эксперимента и плотности водорода в ВКР-кювете импульсная энергия $\varepsilon_{p1} = 4.3$ мДж превосходит порог возбуждения вынужденного рассеяния не более чем на десять процентов. Видно, что максимумы представленных зависимостей смещены относительно друг друга по оси ρ , причем чем больше энергия импульса лазерной накачки ε_{pi} , тем сильнее выражено смещение максимума соответствующей зависимости $\varepsilon_a(\rho)$ влево. Такая закономерность справедлива и для экспериментальных зависимостей, полученных при других значениях ρ_0 . Необходимо

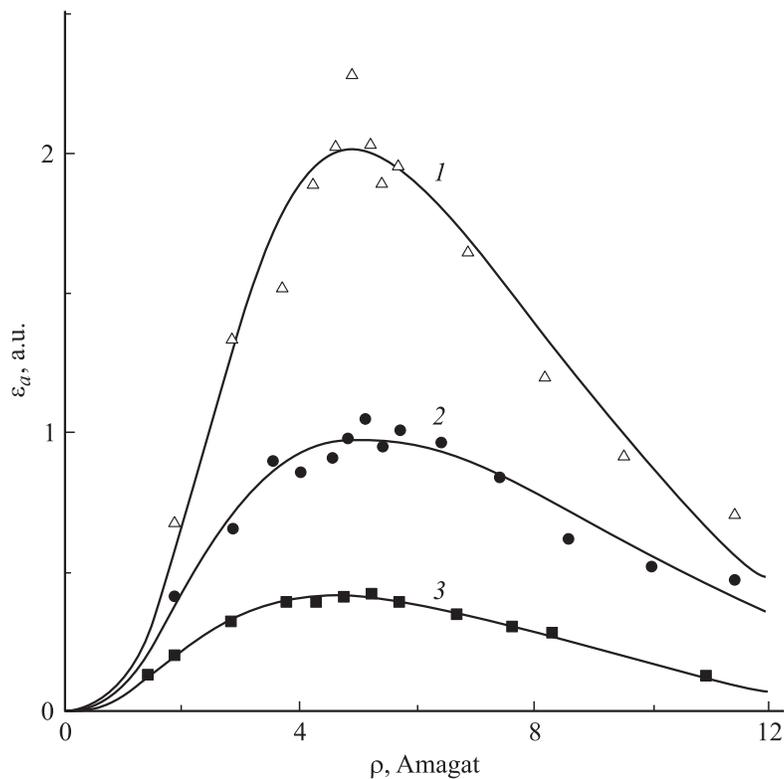


Рис. 2. Экспериментальные зависимости энергии импульса ϵ_a излучения антистоксовой компоненты рассеяния на выходе КАРС-кюветы от плотности газа ρ в ней при $\rho_0 = 7.9$ Amagat, $\epsilon_{p3} = 11.4$ мДж без дополнительного ослабления компонент бигармонической лазерной накачки на входе КАРС-кюветы (кривая 1) и с дополнительным ослаблением их в 1.3 раза (кривая 2), 1.7 раза (кривая 3).

отметить, что при тех же условиях эксперимента дополнительное ослабление мощности бигармонической лазерной накачки на входе КАРС-кюветы не приводит к сдвигу положения максимумов в зависимостях $\epsilon_a(\rho)$ (рис. 2). Все это указывает на то, что частоты компонент бигармонической лазерной накачки ω_p и ω_s , возникающей в ВКР-кювете, могут не удовлетворять условию (1).

Можно показать, что в ВКР-кювете генерация бигармонической накачки происходит с частотой Ω_{ps} , большей чем $\Omega_{\rho 0}$. Для этого проведем аппроксимацию каждой экспериментальной зависимости, представленной на рис. 1, целевой функцией (5) для поиска трех неизвестных параметров D , ρ_0 , l . В результате можно получить следующие значения: $\rho_{01} = 6.0 \text{ Amagat}$, $\rho_{02} = 5.7 \text{ Amagat}$, $\rho_{03} = 4.3 \text{ Amagat}$ и $l_1 = 1.5 \text{ cm}$, $l_2 = 1.7 \text{ cm}$, $l_3 = 0.06 \text{ cm}$ для экспериментальных зависимостей $\varepsilon_a(\rho)$ при $\varepsilon_{p1} = 4.3 \text{ mJ}$, $\varepsilon_{p2} = 7.4 \text{ mJ}$, $\varepsilon_{p3} = 11.4 \text{ mJ}$ соответственно. Примечательно, что найденные значения параметра длины взаимодействия l_1 и l_2 для первых двух зависимостей близки друг другу и совпадают с рассчитанным значением длины перетяжки $l_{eff} = 1.7 \text{ cm}$ ($l_{eff} = 2 \times \Delta z$, где $\Delta z = F_2^2 \lambda_p / 2w^2$) сфокусированного излучения в КАРС-кювету. На рис. 2 представлены кривые аппроксимирующих функций. Из них видно, что экспериментальная зависимость $\varepsilon_a(\rho)$ ($\varepsilon_{p3} = 11.4 \text{ mJ}$) неудовлетворительно описывается целевой функцией (5) (кривая 3, рис. 1) при параметрах $\rho_{03} = 4.3 \text{ Amagat}$, $l_3 = 0.06 \text{ cm}$. Это можно объяснить некоторым увеличением ширины линии стоксовой компоненты рассеяния при больших мощностях лазерной накачки. Введение четвертого подгоночного параметра $\Delta\omega_{ps}^2$, учитывающего это уширение в виде дополнительного слагаемого в знаменатель выражения (5), позволяет найти другую аппроксимирующую функцию (кривая 4, рис. 1) с новыми параметрами $\rho_{03}^* = 2.5 \text{ Amagat}$, $l_3^* = 2.2 \text{ cm}$, $\Delta\omega_{ps} = 293 \text{ MHz}$, которая удовлетворительно описывает экспериментальную зависимость, полученную при $\varepsilon_{p3} = 11.4 \text{ mJ}$. Знание параметра l_{eff} позволяет построить график теоретической зависимости $\varepsilon_a(\rho)$ по формуле (5) для $\rho_0 = 7.9 \text{ Amagat}$ (рис. 1, кривая 5). Видно, что этот график теоретической зависимости находится правее (по оси ρ) от всех экспериментально полученных зависимостей. Кроме того, найденные при аппроксимации значения параметров ρ_{0i} подчиняются следующей закономерности: $\rho_{03}^* < \rho_{02} < \rho_{01} < \rho_0$. Это означает, что увеличение ε_p как бы сопровождается некоторым уменьшением плотности газа. В соответствии с (4) меньшей плотности газа соответствует бóльшая частота колебательного перехода. Поэтому, поскольку в наших экспериментах плотность газа ρ_0 в ВКР-кювете фиксирована, то из вышесказанного можно сделать вывод о том, что при увеличении ε_p происходит некоторое возрастание энергии колебательного перехода, смещение которой при $\varepsilon_{p3} = 11.4 \text{ mJ}$ составляет около $1.7 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$. Все это находится в качественном

согласии с результатами работы [16] по исследованию динамики спектра обратного ВКР.

Смещение частоты колебательного перехода вверх не может быть связано с оптическим эффектом Штарка [17], который приводит не к увеличению, а к уменьшению частоты перехода при достаточно больших мощностях лазерного излучения. Одним из возможных объяснений смещения частоты колебательного перехода вверх является появление значительного количества колебательно-возбужденных молекул (инородных частиц), приводящих к изменению характера столкновений между молекулами, следовательно, и к смещению положения энергетических уровней. Теоретический расчет смещения, обусловленного указанным механизмом, является предметом отдельной работы.

Таким образом, в данной работе экспериментально показано, что при ВКР–КАРС диагностике водорода в газовых смесях изменение мощности лазерной накачки на входе ВКР-генератора может заметно влиять на уровень измеряемого сигнала, что накладывает определенные требования на стабильность лазерной накачки по мощности. Полученные результаты могут быть объяснены смещением частоты ВКР-бигармонической накачки, возникающим при больших мощностях лазерной накачки на входе ВКР-генератора.

Авторы весьма признательны Д.Г. Калюжному за помощь при проведении экспериментов.

Работа выполнена при финансовой помощи РФФИ (проект № 04-02-96011).

Список литературы

- [1] *DeMartini F., Ducuing J.* // Phys. Rev. Lett. 1966. V. 17. N 3. P. 117–119.
- [2] *Bischel W.K., Dyer M.J.* // Phys. Rev. A. 1986. V. 33. P. 3113–3123.
- [3] *Венкин Г.В., Михеев Г.М.* // Квантовая электроника. 1985. Т. 12. № 2. С. 394–397.
- [4] *Михеев Г.М.* // Квантовая электроника. 1999. Т. 27. № 1. С. 59–64.
- [5] *Дерюгин А.А., Кочетов И.В., Малинкевич Ю.Л., Напартович А.П.* // Журнал прикладной спектроскопии. 1990. Т. 53. № 5. С. 793–800.
- [6] *Ильинский Ю.А., Михеев Г.М.* // Письма в ЖЭТФ. 1991. Т. 53. В. 8. С. 397–399.
- [7] *Ильинский Ю.А., Михеев Г.М.* // ЖЭТФ. 1992. Т. 101. В. 5. С. 1445–1454.

- [8] *Regnier P.R., Taran J.P.E.* // Appl. Phys. Lett. 1973. V. 23. N 5. P. 240–242.
- [9] *Михеев Г.М., Могилева Т.Н.* // Квантовая электроника. 1996. Т. 23. № 10. С. 943–946.
- [10] *Oki Yuji, Kawada Noriyuki, Abe Yoshiteru, Maeda Mitsuo* // Opt. Commun. 1999. V. 161. P. 57–62.
- [11] *Михеев Г.М., Могилева Т.Н., Попов А.Ю., Калюжный Д.Г.* // ПТЭ. 2003. № 2. С. 101–107.
- [12] *Михеев Г.М., Калюжный Д.Г., Попов А.Ю.* // Письма в ЖТФ. 2003. Т. 29. В. 24. С. 61–68.
- [13] *Бункин А.Ф., Коротеев Н.И.* // УФН. 1981. Т. 134. В. 1. С. 93–123.
- [14] *Hall R.J., Eckbreth A.C.* // Laser applications. 1984. V. 5. P. 213–309.
- [15] *Михеев Г.М., Малеев Д.И., Могилева Т.Н.* // Квантовая электроника. 1992. Т. 19. № 1. С. 45–47.
- [16] *Беспалов В.Г., Ефимов Ю.Н., Стаселько Д.И.* // Оптика и спектроскопия. 1997. Т. 82. № 5. С. 734–738.
- [17] *Rahn L.A., Farrow R.L., Koszykowski, Mattern P.L.* // Phys. Rev. Lett. 1980. V. 45. P. 620–623.