

# 凝聚态物质中的光声喇曼效应理论\*

唐志列\*\*

林理忠

(华南师范大学物理系, 广州 510631) (云南大学物理系, 昆明 650031)

司徒达 梁瑞生

夏英齐

(华南师范大学物理系, 广州 510631) (云南教育学院科研处, 昆明 650031)

## 提 要

用热弹性理论系统地分析了凝聚态物质的光声喇曼效应, 分别导出了连续和脉冲激光泵浦下的光声喇曼信号表达式, 并做了数值估算.

关键词 光声光谱, 光声喇曼光谱.

## 1 引 言

光声喇曼光谱是近年发展起来的一种新的、具有广泛应用前景的非线性光谱技术, 它具有高灵敏度(能探测到  $10^{-5} \text{ cm}^{-1}$  的喇曼增益系数)<sup>[1]</sup>、高分辨率和基本上没有光学背景等优点, 同时, 它能探测到混合物质中浓度很低的物质成份的非线性喇曼光谱<sup>[2,3]</sup>, 特别是, 它很适合于研究光与凝聚态物质的非线性相互作用过程, 将成为这个研究领域的一种重要的光谱手段. 在实验上作者用光声喇曼光谱方法探测到了各种液体和固体的非线性喇曼光谱<sup>[3]</sup>, 在理论上阐明和完整地描述光声喇曼光谱过程是很有必要也是非常有意义的. 文献[1]对气体样品的光声喇曼光谱过程作了理论分析, 但这种理论不能描述凝聚态物质中的光声喇曼效应. 本文用热弹性理论系统地分析了凝聚态物质的光声喇曼光谱过程, 导出了连续和脉冲激光泵浦下光声喇曼光谱信号表达式, 并证明这个结果与用波动方程导出的结果完全一致.

## 2 光声喇曼效应理论

### 2.1 光声喇曼效应的简单描述

在如图 1 所示的二能级系统中, 泵浦光  $I_p(\omega_p)$  和斯托克斯(Stokes)光  $I_s(\omega_s)$  与分子的三阶非线性极化率  $\chi^{(3)}(\omega_s)$  发生相互作用, 当  $(\omega_p - \omega_s) = \omega_r$  ( $\omega_r$  为喇曼频率) 时, 会发生如下两个过程: 1) 一个泵浦光子  $\omega_p$  被吸收, 同时产生一个斯托克斯光子  $\omega_s$  并激发一个高能态  $|1\rangle$  上的分子(正过程); 2) 一个斯托克斯光子被吸收, 同时产生一个泵浦光子  $\omega_p$  并伴随着一个激发态  $|1\rangle$  的分子回到基态  $|0\rangle$  上(逆过程). 正过程与  $|0\rangle$  能态的粒子数  $N_0$  成正比, 逆过程与  $|1\rangle$  能态的粒子数  $N_1$  成正比, 因为  $N_0 \gg N_1$ , 所以正过程远大于逆过程, 这种过程将导致斯托克斯光

收稿日期: 1991 年 11 月 18 日; 收到修改稿日期: 1992 年 5 月 13 日

\* 国家自然科学基金资助项目.

\*\* 现通讯地址: 云南教育学院物理系, 昆明 650031.

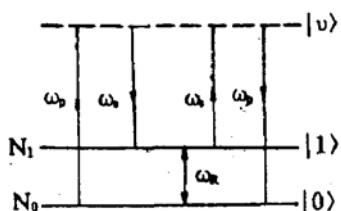


Fig. 1 An energy-level diagram for a two-level molecular system depicting the stimulated Raman scattering process

束的放大和泵浦光束的衰减(即受激喇曼增益)同时伴随着产生|1>能态上的粒子数布居过剩,这些过剩的粒子数通过碰撞去激励回到基态,并放出 $\hbar(\omega_p - \omega_s)$ 的热量,这些热量使介质的温度升高,产生热振动,用光声方法就可以探测到这种热振动.

在受激喇曼增益过程中,斯托克斯光的增量为:

$$\Delta I_s = I_s(l) - I_s(0) = I_s(0)[\exp(g_s l) - 1] \approx I_s(0)g_s l. \quad (1)$$

式中 $I_s(0)$ 、 $I_s(l)$ 分别是斯托克斯光在介质入射端( $l=0$ )和在 $l$ 处的光强, $g_s$ 为喇曼增益系数, $l$ 为相互作用长度.对一个二能级系统,每增加一个斯托克斯光子,就激发一个|1>能态的粒子,则|1>能态的粒子数增量为:

$$\Delta N_1 = \frac{\Delta I_s A_s T}{\hbar \omega_s} = \frac{I_s(0) g_s l A_s T}{\hbar \omega_s} \quad (2)$$

式中 $A_s$ 是斯托克斯光束的截面积, $T$ 为相互作用时间,那么介质中内能的增量为

$$\Delta U = \Delta N_1 \hbar (\omega_p - \omega_s) \quad (3)$$

假设这部分能量全部转换成热量,则介质中源体积(即产生非线性喇曼相互作用的体积,也就是产生声波的源)的温度变化为:

$$\Delta T = \frac{\Delta U}{m C_p}. \quad (4)$$

式中 $m$ 为源体积的质量, $C_p$ 为定压比热,由温度变化引起的源体积变化为:

$$l\pi[R + \Delta R(t)]^2 - l\pi R^2 = \beta V \Delta T. \quad (5)$$

式中 $R$ 为未受温度扰动时源体积的半径, $\Delta R(t)$ 为 $t$ 时刻源体积半径的变化, $\beta$ 是热膨胀系数, $V = l\pi R^2$ 为源体积.因为 $\Delta R(t) \ll R$ ,忽略其平方项,则有:

$$\Delta R(t) = \frac{\beta V \Delta T}{2\pi l R} = \frac{\beta \Delta U}{2\pi l R \rho C_p}. \quad (6)$$

式中 $\rho$ 为介质的密度.因为声压的变化 $\Delta P$ 与振动的位移 $\Delta x$ 成正比,即 $\Delta P = \omega_a c_1 \rho \Delta x$ , $\omega_a$ 为声波的角频率, $c_1$ 为声速, $\Delta x$ 为观察点的振动位移,它与 $\Delta R(t)$ 成正比,即 $\Delta x = K \Delta R(t)$ , $K$ 为常数,则有:

$$\Delta P = K \frac{R \omega_a c_1 \beta}{2 C_p} \frac{\Delta U}{V}. \quad (7)$$

因为单位体积内能的增量 $\Delta U/V$ 正比于喇曼跃迁几率,所以通过测量声压的变化可以测量非线性喇曼光谱.

## 2.2 光声喇曼效应理论的精确描述

在介质内部,因为光速远大于声速,完全可以忽略介质内部各点受光照作用的时间先后差别,因此,由激光束产生的声波可处理为一无限长圆柱形声源所产生的声波,声源绕 $z$ 轴旋转对称,且与 $z$ 轴各点无关,只需考虑沿径向的变化.同时,由受激喇曼散射过程而引起的声振动属于小振幅声波,可用一个势函数 $\varphi(r, t)$ 来描述,声速和声压 $P$ 可由势函数 $\varphi(r, t)$ 导出:

$$P(r, t) = -\rho \frac{\partial \varphi(r, t)}{\partial t} \quad (8)$$

式中  $\rho$  为介质的密度. 对于圆柱形声源, 声波场的势函数为<sup>[4]</sup>:

$$\varphi(r, t) = -\frac{c_1}{2\pi} \int_{-\infty}^{t-\frac{r}{c_1}} \frac{\dot{S}(t') dt'}{[c_1^2(t-t')^2 - r^2]^{1/2}}. \quad (9)$$

式中  $c_1$  为声速,  $r$  为观察点到声源的距离,  $\dot{S}(t')$  为声源的截面积对时间的导数. 因为声源的截面积  $S(t)$  的变化是由受激喇曼增益过程所产生的热量而引起的, 因此, 必须导出热量与声源截面积的变化量之间的关系.

由受激喇曼散射过程, 可以求出喇曼三阶极化率  $\chi_R^{(3)}(\omega_s)$ 、喇曼增益系数  $g_s$  和喇曼跃迁几率  $K_r$ , 分别为:

$$\chi_R^{(3)}(\omega_s) = \chi_{NR} + \frac{N\Delta c^4}{2\hbar\omega_s^4\varepsilon_0} \left[ \frac{1}{(\omega_R - \omega_p + \omega_s) + i\Gamma/2} \right] \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right) \quad (10)$$

式中  $\chi_{NR}$  为非共振喇曼极化率, 一般为实数,  $N$  为总分子数密度,  $\Delta = \frac{N_0 - N_1}{N}$  是下、上能级粒子数之差与总分子数  $N$  的比率,  $c$  是光速,  $\omega_p$ 、 $\omega_s$  和  $\omega_R$  分别为泵浦光、斯托克斯光和喇曼频率,  $\Gamma$  为分子的振动线宽,  $(d\sigma/d\Omega)$  喇曼微分散射截面.

$$K_r = \frac{c^2}{2\hbar^2 n_p n_s \omega_s^4 \varepsilon_0^2} \left[ \frac{\Gamma}{(\omega_R - \omega_p + \omega_s)^2 + \Gamma^2/4} \right] \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right) I_p I_s \quad (11)$$

在共振条件下:  $(\omega_p - \omega_s) = \omega_R$ , 有:

$$(K_r)_{\text{peak}} = \frac{A}{\hbar\omega_s} I_p I_s \quad (12)$$

$$A_0 = \frac{2c^2}{\hbar n_p n_s \omega_s^3 \varepsilon_0^2 \Gamma} \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right), \quad (13)$$

$I_p = n_p \varepsilon_0 c |\tilde{E}_p|^2 / 2$  为泵浦光光强,  $I_s = n_s \varepsilon_0 c |\tilde{E}_s|^2 / 2$  为斯托克斯光光强.

$$g_s = \frac{N\Delta c^2}{2\hbar\varepsilon_0^2 n_p n_s \omega_s^3} \left[ \frac{\Gamma}{(\omega_R - \omega_p + \omega_s)^2 + \Gamma^2/4} \right] \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right) I_p \quad (14)$$

由(10)、(11)和(14)式可见, 喇曼跃迁几率  $K_r$  和喇曼增益系数  $g_s$  与三阶喇曼极化率  $\chi_R^{(3)}(\omega_s)$  的虚部成正比, 与实部和非共振喇曼极化率  $\chi_{NR}$  无关. 由  $K_r$  和  $g_s$  可以求出激发到上激发态  $|1\rangle$  的粒子数. 根据一个二能级系统的受激喇曼散射过程可以算出偏离热平衡状态下的上激发态  $|1\rangle$  的粒子数为<sup>[1]</sup>:

$$N_t^{\text{ee}}(t) = \frac{K_r N}{2K_r + K_c} \{1 - \exp[-(2K_r + K_c)t]\} \quad (15)$$

式中  $K_c$  为碰撞跃迁几率. 因为  $(2K_r + K_c)t \gg 1$ , 所以(15)式可以进一步简化为:

$$N_t^{\text{ee}}(t) = \frac{K_r N}{2K_r + K_c}. \quad (16)$$

因此, 由受激喇曼增益过程所产生的热量为:

$$H(t) = K_c N_t^{\text{ee}}(t) \hbar \omega_R = \hbar \omega_R K_c \frac{K_r N}{2K_r + K_c}. \quad (17)$$

下面讨论两种极限情况:

1) 当  $K_r \ll K_c$  时(连续激光泵浦时常是这种情况),

$$H(t) = K_r N \hbar \omega_R \quad (18)$$

这时, 所产生的热量  $H(t)$  正比于喇曼跃迁几率, 而光声信号是正比于热量  $H(t)$  的, 所以光声喇曼信号是正比于喇曼跃迁几率  $K_r$  的, 而且光声喇曼光谱的线型是与喇曼谱的线型(即 Lorentz 线型)是完全一样的.

2) 当  $K_r \gg K_c$  时(脉冲激光的峰值功率超过 10 MW 以上时就会出现这种情况),

$$H(t) = 1/2K_c N \hbar \omega_R,$$

这时,热量  $H(t)$  与喇曼跃迁几率  $K_r$  无关,而正比于碰撞跃迁几率  $K_c$ ,即出现了所谓的饱和现象,在这种情况下,用光声方法来探测非线性喇曼光谱已不灵敏.

由受激喇曼增益过程所产生的热量服从热扩散方程:

$$\frac{\partial T}{\partial t} - \kappa \nabla^2 T = \frac{H(t)}{\rho C}, \quad (19)$$

因为由扩散过程所引起的量  $\kappa \nabla^2 T$  很小( $\kappa$  为热扩散系数,一般在  $10^{-3} \sim 1 \text{ cm/sec}$ ),可以忽略不计,(即做绝热近似),因此,(19)式变为:

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{H(t)}{\rho C}, \quad (20)$$

根据(5)式,由温度变化引起的声源截面积的变化为:

$$\Delta S(t) = \pi [R + \Delta R(t)]^2 - \pi R^2 = \beta \pi R^2 \Delta T \quad (21)$$

所以,声源的截面积的时间变化率为:

$$\Delta \dot{S}(t) = \pi R^2 \beta \frac{\partial T}{\partial t} = \pi R^2 \beta \frac{H(t)}{\rho C} = \pi R^2 \beta \frac{K_r N \hbar \omega_R}{\rho C}, \quad (22)$$

把(22)式代入(9)式得:

$$\varphi(r, t) = - \frac{R^2 c_1 \beta \hbar \omega_R N}{2 \rho C} \int_{-\infty}^{t - \frac{r}{c_1}} \frac{K_r dt'}{[c_1^2 (t - t')^2 - r^2]^{\frac{1}{2}}} \quad (23)$$

所以,声压为:

$$P(r, t) = - \rho \frac{\partial \varphi(r, t)}{\partial t} = \frac{R^2 c_1 \beta \hbar \omega_R N}{2 C} \int_{-\infty}^{t - \frac{r}{c_1}} \frac{K_r dt'}{[c_1^2 (t - t')^2 - r^2]^{\frac{1}{2}}} \quad (24)$$

式中  $K_r$  为喇曼跃迁几率的时间导数.(24)式就是凝聚态物质中的光声喇曼信号表达式.

#### 连续激光的光声喇曼信号表达式

在连续激光的光声喇曼光谱光谱实验中,通常是对泵浦  $I_p(\omega_p)$  进行周期性调制<sup>[7]</sup>,设调制频率为  $\omega$ ,则被调制以后的泵浦光为:

$$I_p = I_p(1 + \sin \omega t) \quad (25)$$

把(25)、(12)式代入(24)式得:

$$P(r, t) = \frac{R^2 \omega c_1 \beta \hbar \omega_R K_r N}{2 C} \int_{-\infty}^{t - \frac{r}{c_1}} \frac{\cos(\omega t') dt'}{[c_1^2 (t - t')^2 - r^2]^{\frac{1}{2}}} \quad (26)$$

(26)式就是连续激光(被周期性调制以后)泵浦下的光声喇曼信号表达式,与(7)式比较,除描述光声信号传播过程的因子(即积分号里面的因子)不同外,光声喇曼信号的振幅是基本相同的.

#### 脉冲激光泵浦下的光声喇曼信号表达式

假设脉冲激光中泵浦光和斯托克斯光分别为:

$$I_p = \frac{E_p}{\pi^{\frac{3}{2}} r_0^2 \tau} \exp(-\frac{t^2}{\tau^2}), \quad I_s = \frac{E_s}{\pi^{\frac{3}{2}} r_0^2 \tau} \exp(-\frac{t^2}{\tau^2}) \quad (27)$$

式中  $E_p, E_s$  为一个激光脉冲的总能量,  $\tau$  为激光的脉宽,  $r_0$  为激光束的半径. 把(27)、(12)式代入(24)式得:

$$P(r,t) = \frac{\omega_R}{\omega_s} \frac{R^2}{r_0^4} \frac{2c_1\beta N A_0 E_p E_s}{\pi^3 r_0^2 \tau^4 C} \int_{-\infty}^{t-\frac{r}{c_1}} \frac{t' \exp\left(-\frac{2t'^2}{\tau^2}\right) dt'}{[c_1^2(t-t')^2 - r^2]^{\frac{1}{2}}} \quad (28)$$

如果近似地认为声源的半径 R 就是激光束的半径  $r_0$ , 即  $R = r_0$ , 则:

$$P(r,t) = \frac{\omega_R}{\omega_s} \frac{2c_1\beta N A_0 E_p E_s}{\pi^3 r_0^2 \tau^4 C} \int_{-\infty}^{t-\frac{r}{c_1}} \frac{t' \exp\left(-\frac{2t'^2}{\tau^2}\right) dt'}{[c_1^2(t-t')^2 - r^2]^{\frac{1}{2}}} \quad (29)$$

(29)式就是脉冲激光泵浦下的光声喇曼信号表达式.

为了说明(29)式有正确性, 下面从更一般的方法——声波波动方程出发, 导出光声喇曼信号的表达式, 这两种方法导出的结果是完全一致的.

对于固体样品, 声波的波动方程为<sup>[5]</sup>:

$$\nabla^2 \psi(r,t) - \frac{1}{c_1^2} \frac{\partial^2 \psi(r,t)}{\partial t^2} = \frac{3K\beta}{3K + 4\mu} \frac{\partial T}{\partial x} \quad (30)$$

式中  $\psi(r,t)$  为声波场中的势函数,  $K$  为体积弹性模量,  $\mu$  为切变弹性模量,  $\beta$  为热膨胀系数,  $c_1$  为声速. 声压  $P$  可以势函数  $\psi(r,t)$  导出:

$$P(r,t) = -\rho \frac{\partial \psi(r,t)}{\partial t} \quad (31)$$

把(20)式代入(30)式得:

$$\nabla^2 \psi - \frac{1}{c_1^2} \frac{\partial^2 \psi}{\partial t^2} = \frac{3K\beta}{3K + 4\mu} \frac{H(t)}{\rho C}, \quad (32)$$

为了得到更普通的解, 考虑了脉冲激光在空间和时间上的高斯分布, 即:

$$I_p = \frac{2E_p}{\pi^{\frac{3}{2}} r_0^2 \tau} \exp\left(-\frac{t^2}{\tau^2}\right) \exp\left(-\frac{2r^2}{r_0^2}\right) \quad (33)$$

$$I_s = \frac{2E_s}{\pi^{\frac{3}{2}} r_0^2 \tau} \exp\left(-\frac{t^2}{\tau^2}\right) \exp\left(-\frac{2r^2}{r_0^2}\right) \quad (34)$$

把(33)、(34)和(12)式代入(32)式得:

$$\nabla^2 \psi - \frac{1}{c_1^2} \frac{\partial^2 \psi}{\partial t^2} = \frac{12K\beta}{(3K + 4\mu)} \frac{\omega_R}{\omega_s} \frac{N A_0 E_p E_s c_1}{\pi^3 r_0^4 \tau^2 \rho C} \exp\left(-\frac{2t^2}{\tau^2}\right) \exp\left(-\frac{4r^2}{r_0^2}\right) \quad (35)$$

用傅里叶变换方法可以求得(35)式的解为:

$$\begin{aligned} \psi(r,t) = & -\frac{3K\beta}{2(3K + 4\mu)} \frac{\omega_R}{\omega_s} \frac{N A_0 E_p E_s c_1}{\pi^3 r_0^2 \tau^2 \rho C} \int_0^t \exp\left(-\frac{2t'^2}{\tau^2}\right) dt' \\ & \times \int_0^\infty [J_0(kr) \sin k c_1 (t-t') \exp\left(-\frac{k^2 r_0^2}{16}\right)] dk \end{aligned} \quad (36)$$

式中  $J_0(kr)$  是零阶贝塞尔函数, 如果入射光束被聚焦,  $r_0$  很小可以认为  $r_0 = 0$ , 同时考虑到:

$$\int_0^\infty J_0(\alpha \chi) \sin(\beta \chi) d\chi = \begin{cases} 0, & \text{当 } \beta < \alpha \text{ 时,} \\ \frac{1}{\sqrt{\beta^2 - \alpha^2}}, & \text{当 } \beta > \alpha \text{ 时,} \end{cases}$$

则(36)式变为:

$$\psi(r,t) = -\frac{3K\beta}{2(3K + 4\mu)} \frac{\omega_R}{\omega_s} \frac{N A_0 E_p E_s c_1}{\pi^3 r_0^2 \tau^2 \rho C} \int_0^t \frac{\exp\left(-\frac{2t'^2}{\tau^2}\right) dt'}{[c_1^2(t-t')^2 - r^2]^{\frac{1}{2}}} \quad (37)$$

把(37)式代入(31)式得:

$$P(r, t) = \frac{6K\beta}{(3K + 4\mu)} \frac{\omega_R}{\omega_S} \frac{NA_0 E_p E_s c_1}{\pi^3 r_0^2 \tau^4 C} \int_0^{\frac{r}{c_1}} \frac{t' \exp\left(-\frac{2t'^2}{\tau^2}\right) dt'}{[c_1^2(t - t')^2 - r^2]^{\frac{1}{2}}} \quad (38)$$

(38)式就是固体样品的脉冲光声喇曼信号表达式,对于液体样品,因为液体内的切变弹性模量  $\mu = 0$ ,所以液体中脉冲光声喇曼信号表达式为:

$$P(r, t) = \frac{\omega_R}{\omega_S} \frac{2\beta NA_0 E_p E_s c_1}{\pi^3 r_0^2 \tau^4 C} \int_0^{\frac{r}{c_1}} \frac{t' \exp\left(-\frac{2t'^2}{\tau^2}\right) dt'}{[c_1^2(t - t')^2 - r^2]^{\frac{1}{2}}} \quad (39)$$

比较一下(29)式和(38)、(39)式可见,用热膨胀(热弹性)方法导出的结果(29)式和用波动方程导出的结果(39)式和(38)式是完全一致的。下面讨论(39)式:当  $t - t' \approx r/c_1$  时,有:  $c_1^2(t - t')^2 - r^2 \approx 2r[c_1(t - t') - r]$ , 则(39)式变成:

$$P(r, t) = \frac{\omega_R}{\omega_S} \frac{2\beta NA_0 E_p E_s c_1}{\pi^3 r_0^2 \tau^4 C} \int_0^{\frac{r}{c_1}} \frac{t' \exp\left(-\frac{2t'^2}{\tau^2}\right) dt'}{[c_1(t - t') - r]^{\frac{1}{2}}} \quad (40)$$

用近似方法可以求得,当:  $t_{\pm} \approx (r/c_1) \pm (\tau/2)$  时,  $P(r, t)$  存在两个极值:

$$P(r, t_{\pm}) \approx \frac{\omega_R}{\omega_S} \frac{\sqrt{2}}{\pi^3 r_0^2 \tau^3 C} \left(\frac{c_1 \tau}{r}\right)^{\frac{1}{2}} \quad (41)$$

由(41)式可见,压缩波  $P_-$  与膨胀波  $P_+$  之间的时间间隔为:  $\Delta t = [(r/c_1) + (\tau/2)] - [(r/c_1) - (\tau/2)] = \tau$ , 那么两个膨胀(或压缩)液之间的间隔为  $2\tau$ , 如果激光的脉冲宽度为  $1 \mu s$ , 那么两个正(或负)的脉冲光声信号之间的间隔为  $2 \mu$ , 与文献[6] 和我们的实验结果<sup>[3]</sup>是基本一致的。将一些典型值代到(41)式,取:

$$\begin{aligned} \beta &\sim 10^{-4} \text{ K}^{-1}; & E_p &\sim 2 \times 10^{-3} \text{ J}; & E_s &\sim 1 \times 10^{-3} \text{ J} \\ r &\sim 1 \text{ cm}; & r_0 &\sim 10^{-3} \text{ cm}; & \Gamma &\sim 1 \text{ cm}^{-1}, \\ \tau &\sim 10^{-6} \text{ sec}; & n_p = n_s &\sim 1.5; & C &\sim 1 \cdot J \cdot \text{gm}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}, \\ \omega_R/2\pi c &\sim 1000 \text{ cm}^{-1}; & \omega_s/2\pi c &\sim 18000 \text{ cm}^{-1}; & c_1 &\sim 10^5 \text{ cm sec}^{-1}, \\ N &\sim 10^{22} \text{ molecules cm}^{-3}; & \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{分子}} &\sim 6.8 \times 10^{-30} \text{ cm}^2 \text{ molecules}^{-1}, \end{aligned}$$

则有:  $P_0 \sim 50 \text{ dyn cm}^{-2}$ .

### 3 结 论

1) 光声喇曼光谱是一种基本上没有光学背景的非线性光谱技术,它完全避免了瑞利散射、布里渊散射和非共振喇曼散射的影响。同时,这种光谱技术的信号正比于泵浦光和探测光的能量,因而提高泵浦光和探测光的能量可以直接提高光声喇曼光谱的探测灵敏度。克服了相干反斯托克斯光谱、RIKES 等光谱技术中因提高泵浦光的能量而背景光也同时增大因而限制了其探测灵敏度的缺点。

2) 光声喇曼光谱信号正比于分子数密度  $N$ , 它能探测到浓度很低的物质的非线性喇曼光谱<sup>[2,3]</sup>, 在痕量物质分析和污染物质的检测等方面有广泛的应用前景。

3) 光声喇曼光谱光谱的实验装置比较简单,因为在光声喇曼光谱过程中,泵浦光和斯托克斯光自动满足相位匹配,克服了相干反斯托克斯光谱实验中泵浦光和斯托克斯光要满足比较严格的相位匹配关系的缺点。

## 参 考 文 献

- [1] J. J. Barrett, D. R. Heller, Theoretical analysis of photoacoustic Raman spectroscopy. *J. O. S. A.*, 1981, **71**(11):1299~1307
- [2] D. R. Siebert, G. A. West, J. J. Barrett, Gaseous trace analysis using pulsed photoacoustic Raman spectroscopy, *Appl. Opt.*, 1982, **21**(5):955~960
- [3] 唐志列, 司徒达, 梁瑞生, 液体的脉冲差分光声喇曼光谱. 光学学报, 1993, **13**(4):379~382
- [4] C. K. N. Patel, A. C. Tam, Pulsed optoacoustic spectroscopy of condensed matter. *Rev. Mon. Phys.*, 1981, **53**(3):520
- [5] Gu Liu, Theory of the photoacoustic effect in condensed matter. *Appl. Opt.*, 1982, **21**(5):955~960
- [6] C. K. N. Patel, A. C. Tam, Optoacoustic spectroscopy of liquids. *Appl. Phys. Lett.*, 1979, **34**(7):468
- [7] J. J. Barrett, M. J. Berry, Photoacoustic Raman spectroscopy (PARS) using cw laser sources. *Appl. Phys. Lett.*, 1979, **34**(2):144

## Theoretical analysis of photoacoustic Raman spectroscopy in condensed matter

TANG Zhelie

*(Department of Physics, South China Normal University, Guangzhou, 510631)*

LIN L zhong

*(Department of Physics, Yunan University, Kunming, 650031)*

SITU Da LIANG Ruisheng

*(Department of Physics, South China Normal University, Guangzhou, 510631)*

XIA Yingqi

*(Institute of Yunan Education, Kunming 650031)*

(Received 18 November 1991; revised 13 May 1992)

### Abstract

The theoretical analysis of photoacoustic Raman spectroscopy (PARS) in condensed matter is presented. The general expressions of PARS signal are derived for the cases when two modulated continuous laser beams or two pulsed laser beams are used as the activation source. The theoretical value is estimated.

**Key Words** photoacoustic spectroscopy, photoacoustic Raman spectroscopy (PARS).