

用时间延迟方法压低喇曼增强非简并四波混频谱的热背底*

米 辛 俞祖和 姜 谦 傅盘铭

(中国科学院物理研究所, 北京 100080)

摘 要 证明了使用时延方法可再现淹没在热背底中的喇曼信号, 并且喇曼增强非简并四波混频光谱恢复为通常的带有源于分子取向栅非共振背底的非对称线型. 实验结果与理论预示一致.

关键词 时间延迟, 热背底.

相干喇曼光谱对于研究分子振动和转动模是很有用的方法^[1,2]. 最近作者对喇曼增强非简并四波混频 (RENFWM-Raman-enhanced nondegenerate four-wave mixing) 进行了详细的研究^[3~5]. 这种方法具有压低非共振背底, 信号分辨率高, 可自由选择相互作用区以及光路调整方便等特点. 作者进一步提出, 对于有光吸收的样品, 可以用时间延迟方法消除喇曼增强非简并四波混频谱中的非共振背底. 然而在染料-苯溶液中进行的初步实验表明^[6]在喇曼增强非简并四波混频谱中存在畸变, 特别是非共振背底与喇曼项之间的干涉几乎完全消失. 本文报道新实验结果表明用时延方法, 淹没在热背底中的喇曼共振可以再现, 同时喇曼增强非简并四波混频谱恢复为通常的、带有源于分子取向栅的非共振背底的非对称线型. 该实验结果与理论符合得很好.

有关实验装置与以前的实验相类似. 实验样品为有机染料噻嗪与苯的溶液, 浓度为 4×10^{-5} . 用 Quanta-Ray YAG 激光的二次谐波泵浦染料激光器, 其输出的能量为 400 μJ , 脉宽为 7 ns 的激光经分束片分为 1 和 2 两束光作为泵浦光, 以 1.5° 夹角在样品中相交. 由于泵浦光频率在染料样品的吸收带内, 光束 1 和 2 在样品中将感生分子取向栅和热栅. 探测光光束 3 引自 YAG 激光的二次谐波, 其能量约为 300 μJ , 它沿着光束 1 相反的方向传播. 泵浦光的波长约为 561.6 nm, 线宽约为 0.01 nm. 实验中波长由计算机控制的步进电机扫描. 所有的输入光束均为同一方向偏振的线偏振光, 四波混频信号与输入光偏振方向相同, 并且沿着光束 2 相反的方向传播. 当泵浦光与探测光之间的频差等于 992 cm^{-1} 时, 由于苯的喇曼模被光束 2、3 激活, 四波混频信号被加强. 喇曼增强非简并四波混频信号经标定的滤光片后用光电二极管接收, 然后溃送到 EG & G 4203 型信号平均器和计算机中处理.

* 本课题由国家自然科学基金会和中国科学院资助.

收稿日期: 1993年9月28日

人们感兴趣的问题是喇曼增强非简并四波混频谱中非共振的热背底随着光束 1 与 2 之间相对延时 τ 的增加而压低. 其基本原理如下: $\tau \gg \tau_c > \tau_M$ 的情况, 其中 τ_c 为激光的相干时间, τ_T , τ_M 分别为热栅和分子取向栅的弛豫时间. 当 $\tau \gg \tau_c$ 时, 泵光束的干涉条纹是以激光相干时间为特征时间随机飘移, 由于 $\tau_T \gg \tau_c$, 累积效应将热栅抹掉; 另一方面, 分子取向栅具有较短的弛豫时间, 它将跟着随机运动场的干涉条纹运动而仍然存在. 应该注意到, 如果泵浦光束是来自脉冲激光, 并且 $\tau_c \ll \tau_T$, 压低热栅的条件应改为 $\tau_c \gg \tau_c$.

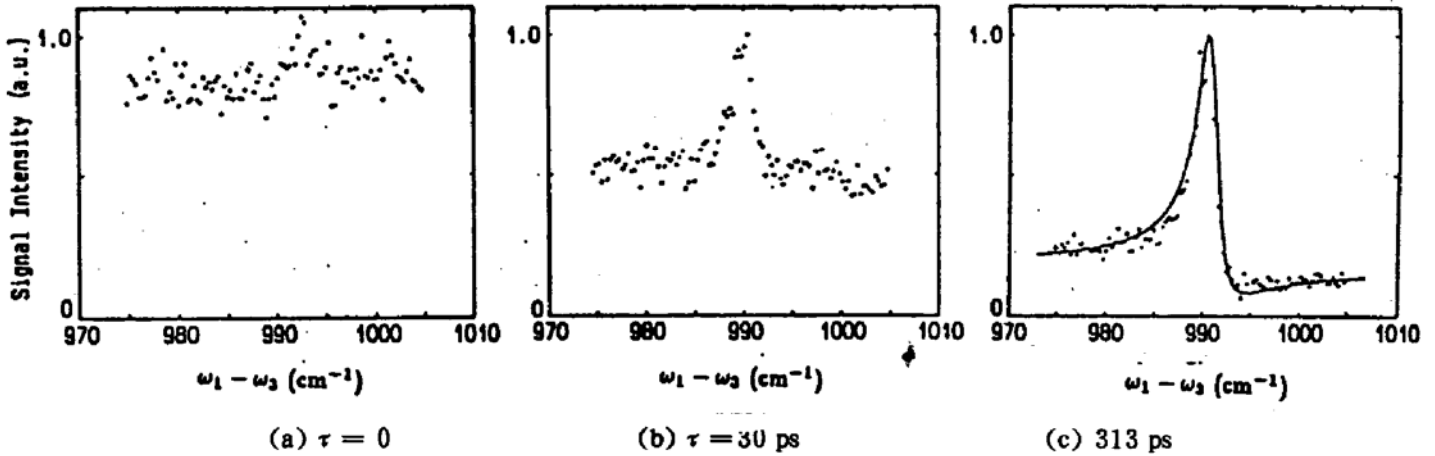


Fig. 1 The RENFWM spectrum of dye-dissolving benzene at (Solid curve; theoretical curve)

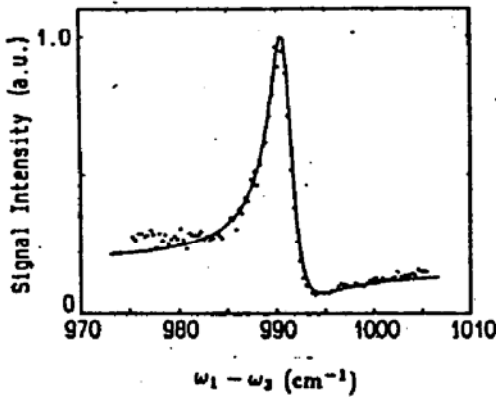


Fig. 2 The RENFWM spectrum of pure benzene at $\tau = 313$ ps. Solid curve; theoretical curve

在本文的实验中 $\tau_M \approx 2.5$ ps, $\tau_T \approx 7$ ns, $\tau_c \approx 13$ ps, 因此满足 $\tau_c \gg \tau_c > \tau_M$ 条件. 图 1(a) 给出 $\tau = 0$ 时喇曼增强非简并四波混频信号的谱, 由于热栅对四波混频信号有显著的贡献, 喇曼增强非简并四波混频谱显示了大的非共振背底, 它几乎完全淹没了喇曼共振信号. 如果增大光束 1、2 之间的相对延时, 淹没在热底中的喇曼信号可以再现, 图 1(b) 为延时 $\tau = 30$ ps 时的喇曼增强非简并四波混频谱, 从图 1(b) 可见热背底被压低, 喇曼共振信号从热背底中显现出来. 继续增加延时, 当 $\tau = 313$ ps 时, 喇曼增强非简并四波混频谱恢复为通常的, 仅带有很小非共振背底的非对称线型见图 1(c). 为了比较作者还测试了 $\tau = 313$ ps 时纯苯的喇曼增强非简

并四波混频信号谱(见图 2). 比较图 1(c) 及图 2, 说明只要相对延时足够大, 有吸收的样品四波混频信号的热背底几乎可全部清除, 余下的非共振背底主要来源于分子取向栅.

用参考文献[4]中的理论分析本文的实验结果. 据文献[4]中方程(7)和(8), 对于 $|\tau| \gg \tau_c$ 的情形, 可以得到下式:

$$\begin{aligned}
 I(\Delta) \propto & \chi_M^2 \left(\frac{\gamma_M}{\gamma_M + 2\alpha} \right) + \chi_T^2 \left(\frac{\gamma_T}{\gamma_T + 2\alpha} \right) + \chi_R^2 \left[\frac{\gamma_R(\gamma_R + \alpha + \alpha_3)}{(\gamma_R + \alpha + \alpha_3)^2 + \Delta^2} \right] \\
 & + 2\chi_M\chi_T \left[\frac{\gamma_M\gamma_T(\gamma_M + \gamma_T + 4\alpha)}{(\gamma_M + \gamma_T)(\gamma_M + 2\alpha)(\gamma_T + 2\alpha)} \right] \\
 & - 2\chi_M\chi_R \left[\frac{\gamma_M\gamma_R\Delta}{(\gamma_M + \gamma_R + \alpha + \alpha_3)^2 + \Delta^2} \right] \left[\frac{\gamma_M + 2(\gamma_R + \alpha + \alpha_3)}{(\gamma_R + \alpha + \alpha_3)^2 + \Delta^2} + \frac{1}{\gamma_M + 2\alpha} \right]
 \end{aligned}$$

$$- 2\chi_T\chi_R \left[\frac{\gamma_T\gamma_R\Delta}{(\gamma_T + \gamma_R + \alpha + \alpha_3)^2 + \Delta^2} \right] \left[\frac{\gamma_T + 2(\gamma_R + \alpha + \alpha_3)}{(\gamma_R + \alpha + \alpha_3)^2 + \Delta^2} + \frac{1}{\gamma_T + 2\alpha} \right] \quad (1)$$

式中 $\Delta = (\omega_1 - \omega_2) - \omega_R$; $\alpha = \delta\omega_1/2$; $\alpha_3 = \delta\omega_3/2$; ω_1 和 ω_3 ($\delta\omega_1$ 和 $\delta\omega_3$) 分别为光束 1 和 3 的频率(线宽); ω_R 为喇曼共振频率; χ_M 、 χ_T 和 χ_R (γ_M 、 γ_T 和 γ_R) 分别为分子取向栅、热栅和喇曼模的非线性极化率(弛豫速率). 图 1(c) 中的实线为理论曲线, 计算取值如下: $\alpha = 4 \times 10^{10} \text{ sec}^{-1}$; $\alpha_3 = 2 \times 10^{10} \text{ sec}^{-1}$; $\chi_M/\chi_R = 0.5$; $\gamma_R = \gamma_M = 2 \times 10^{11} \text{ sec}^{-1}$; 对应于 7 ns 脉冲宽度 $\gamma_T = 1.4 \times 10^8 \text{ sec}^{-1}$. 确定 χ_T/χ_R 是比较复杂的, 若 $\chi_T \gg \chi_M$, 那么在 $\Delta = 0$ 条件下 $\tau = 0$ 与 $\tau = \infty$ 时喇曼增强非简并四波混频的信号强度之比为 $I(\tau = 0)/I(\tau = \infty) \simeq (\chi_T/\chi_R)^2$. 在本文实验中 $\tau = 0$ 时的信号强度为 $\tau \simeq \infty$ 时的 10 倍, 因此在计算中可以设定 $\chi_T/\chi_R = 3$, 理论曲线与实验符合得很好. 作者还计算了纯苯的喇曼增强非简并四波混频谱. 此时 $\chi_T/\chi_R = 0$. 图 4 中的实线为理论曲线. 注意到对于该实验的染料样品 $(\chi_T/\chi_M)^2 (\gamma_T/2\alpha) \simeq 0.04$, 当光束 1 和 2 之间的相对延时远大于激光相干时间时, 可以完全地消除非共振的热背底^[4]. 另外, 作者认为在过去的实验中^[6]喇曼增强非简并四波混频谱出现畸变的可能原因是染料-苯溶液在激光辐射照下变为不稳定的样品, 经过约 1 小时后变质, 导致喇曼增强非简并四波混频谱畸变.

参 考 文 献

- [1] G. L. Easley, *Coherent Spectroscopy*, Pergamon, New York, 1981
- [2] M. D. Levenson, *Introduction to Nonlinear Laser Spectroscopy*, Academic, New York, 1982
- [3] Z. Yu, H. Lu, P. Ye *et al.*, Study of Raman enhanced nondegenerate four-wave mixing. *Opt. Commun.*, 1987, 61(4): 287~290
- [4] P. Fu, Z. Yu, X. Mi *et al.*, Theoretical study of the suppression of thermal background in Raman-enhanced nondegenerate four-wave-mixing spectrum by a time-delayed method. *Phys. Rev. (A)*, 1992, A46(3): 1530~1539
- [5] X. Mi, Z. Yu, Q. Jiang *et al.*, Time-delayed Raman-enhanced nondegenerate four-wave mixing with broadband laser source. *Phys. Rev. (A)*, 1993, A48(4): 3203~3208
- [6] Z. Yu, X. Mi, Q. Jiang *et al.*, Distinguishing molecular reorientation grating from thermal grating by time-delayed method. *Opt. Lett.*, 1988, 13(2): 117~119

Reduction of Thermal Background of RENFWM Spectrum by Time-Delayed Method

Mi Xin Yu Zuhe Jiang Qian Fu Panming
(*Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080*)

(Received 28 September 1993)

Abstract We demonstrate that with the time-delayed method the Raman-resonance hidden in the thermal background can be revealed and the Raman-enhanced nondegenerate four-wave mixing spectrum converts to a normal asymmetric lineshape with the nonresonant background originating from the molecular-reorientational grating. The experimental results are in good agreement with the theoretical predictions.

Key words time-delayed, thermal background.