Вестник
МОСКОВСКОГО УНИВЕРСИТЕТА
№ 5 — 1976

УДК 535.14 : 621.378

В. Ф. КОРОЛЕВ

ИНДУЦИРОВАННОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ АНГАРМОНИЧЕСКОГО ОСЦИЛЛЯТОРА

Проведен расчет мощности индуцированного электромагнитного излучения ангармонического осциллятора. Показано, что индуцированное излучение превышает поглощение, если стимулирующее излучение имеет частоту, превышающую резонансную частоту квантового перехода.

Индуцированные радиационные процессы в современной физике занимают одно из ведущих мест. Они находят все большее применение на практике, в частности в молекулярных лазерах, с которыми получены наивысшие мощности и наибольший к. п. д. В молекулярных лазерах в ряде случаев используются газы, состоящие из двухатомных молекул, которые совершают ангармонические колебания. В работе [1] проведен детальный анализ индуцированных радиационных процессов и показана принципиальная возможность индуцированного излучения как классическими, так и квантовыми системами при наличии ангармоничности. Большое число работ посвящено вопросам колебательной релаксации в системе ангармонических осцилляторов [2, 3]. В предлагаемой нами работе дается вывод расчетной формулы для мощности излучения ангармонического осциллятора в предположении, что он является слабо ангармоничным. Расчет проведен на основе квазиклассических представлений, с использованием принципа соответствия между квантовой и классической теорией излучения. Согласно современной формулировке этого принципа [4] квантовая система поглощает совокупность классических гармонических осцилляторов, собственные частоты которых образуют матрицу частот спонтанных переходов

$$\omega = \begin{vmatrix} 0 & \omega_{12} & \dots & \omega_{1m} & \dots \\ \omega_{21} & 0 & \dots & \omega_{2m} & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ \omega_{n1} & \omega_{n2} & \dots & \omega_{nm} & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \end{vmatrix}, \tag{1}$$

члены кото ой оп еделяются по п авил частот Бо а

$$\omega_{nm} = \frac{W_n - W_m}{\hbar}, \tag{2}$$

где W_n и W_m — значения энергий начального и конечного состояний квантовой системы. Ангармонический осциллятор представляет собой также квантовую систему, излучение которой может быть описано на основе изложенного выше принципа соответствия. Следовательно, и в случае ангармонического осциллятора каждому квантовому переходу между уровнями $W_n \rightleftarrows W_m$ соответствует гармонический осциллятор с собственной частотой, определяемой формулой (2). Амплитуду вынужденных колебаний такого осциллятора будем искать квазиклассическим методом. Если такой осциллятор совершает вынужденные колебания вдоль оси x под действием поля E внешнего излучения

$$E = E_0 \cos \omega t, \tag{3}$$

где E_0 — амплитуда, ω — циклическая частота колебаний внешнего поля, то уравнение движения может быть записано в виде

$$M\ddot{x} + M\gamma^*\dot{x} + M\omega_{nm}^2 x = e^* E_0 \cos \omega t. \tag{4}$$

В уравнении (4) M — масса частицы, совершающей колебания, γ^* — коэффициент затухания колебаний, ω_{nm} — собственная частота колебаний осциллятора для перехода $W_n \rightleftarrows W_m$, e^* — эффективный заряд колеблющейся частицы. Если осциллятор представляет собой двухатомную молекулу, состоящую из атомов с массами M_1 и M_2, то для M служит формула

$$M = \frac{M_1 M_2}{M_1 + M_2}. \tag{5}$$

Решение уравнения (4) дается формулой

$$x = \frac{e^* E_0 \cos(\omega t - \varphi)}{MZ}, \tag{6}$$

где

$$Z = \sqrt{(\omega_{nm}^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \gamma^{*2}}, \tag{7}$$

$$\operatorname{tg} \varphi = \frac{\omega \gamma^*}{\omega_{nm}^2 - \omega^2}. \tag{8}$$

Для перехода от классического выражения (6) к квантовомеханическому величину x необходимо умножить на силу осциллятора f, которая соответствует квантовому переходу $W_n \rightleftarrows W_m$, сопоставляемому колебательному процессу (6). Тогда для величины квантовой координаты $x_{кв}$ будем иметь

$$x_{кв} = xf = \frac{e^* E_0 f \cos(\omega t - \varphi)}{MZ}. \tag{9}$$

Для коэффициента затухания γ^* служит выражение

$$\gamma^* = \gamma + \gamma', \tag{10}$$

где γ — коэффициент радиационного затухания, а γ' — коэффициент ударного затухания. Мощность, которой обмениваются внешнее поле с осциллятором, дается формулой

$$P_{кв} = F \cdot \dot{x}_{кв}, \tag{11}$$

где $F=e^*E$ — внешняя сила, действующая на осциллятор. Подставляя в (11) величины F и $x_{кв}$, для мощности $P_{кв}$ будем иметь

$$P_{кв} = \frac{fe^{*2}E_0^2\omega^2\gamma^*}{2MZ^2} - \frac{fe^{*2}\omega E_0^2 \sin(2\omega t - \varphi)}{2MZ}. \tag{12}$$

Второй член в (12) при усреднении по времени дает нуль. Поэтому в дальнейшем мы будем учитывать только первое слагаемое. Если квантовые переходы совершаются с уровня, определяемого колебательным квантовым числом v, на уровень с колебательным квантовым числом $v+1$, то имеет место поглощение излучения, мощность которого определится выражением

$$P_{v,v+1} = \frac{f_{v,v+1} e^{*2} E_0^2 \omega^2\gamma^*}{2MZ_{v,v+1}^2}. \tag{13}$$

При переходе с уровня с квантовым числом v на уровень $v-1$ будет происходить индуцированное излучение, мощность которого

$$P_{v,v-1} = \frac{f_{v,v-1} e^{*2} E_0^2 \omega^2\gamma^*}{2MZ_{v,v-1}^2}. \tag{14}$$

В формулах (13) и (14) $f_{v,v+1}$ и $f_{v,v-1}$ — силы осцилляторов для соответствующих переходов величины $Z_{v,v+1}$ и $Z_{v,v-1}$ определяются выражениями:

$$Z_{v,v\pm 1} = \sqrt{(\omega_{v,v\pm 1}^2 - \omega^2)^2 + \omega^2\gamma^{*2}}. \tag{15}$$

Собственные частоты $\omega_{v,v+1}$ и $\omega_{v,v-1}$ могут быть получены из выражений для энергии уровней ангармонического осциллятора W_v, W_{v-1}, W_{v+1}:

$$\begin{aligned} W_v &= \hbar\omega_0\left(v+\frac{1}{2}\right) - \hbar\omega_0 x_e\left(v+\frac{1}{2}\right)^2, \\ W_{v-1} &= \hbar\omega_0\left(v-\frac{1}{2}\right) - \hbar\omega_0 x_e\left(v-\frac{1}{2}\right)^2, \\ W_{v+1} &= \hbar\omega_0\left(v+\frac{3}{2}\right) - \hbar\omega_0 x_e\left(v+\frac{3}{2}\right)^2, \end{aligned} \tag{16}$$

где

$$x_e = \frac{\hbar\omega_0}{4D}, \tag{17}$$

D — энергия диссоциации.

Частоты $\omega_{v,v+1}$ и $\omega_{v,v-1}$ по абсолютной величине определяются формулами

$$\omega_{v,v+1} = \frac{W_{v+1} - W_v}{\hbar} = \omega_0\{1 - 2x_e(v+1)\}, \tag{18}$$

$$\omega_{v,v-1} = \frac{W_v - W_{v-1}}{\hbar} = \omega_0\{1 - 2x_e v\}. \tag{19}$$

Результирующая мощность, которой обменивается волна с осциллятором, определится суммой $P_{v,v+1}$ и $P_{v,v-1}$:

$$P_{\substack{v,v-1\\v,v+1}} = \frac{\omega^2\gamma^* e^{*2} E_0^2}{2M}\left\{\frac{f_{v,v+1}}{Z_{v,v+1}^2} + \frac{f_{v,v-1}}{Z_{v,v-1}^2}\right\}. \tag{20}$$

Для слабоангармонического осциллятора с достаточным приближением можно взять значения сил осцилляторов гармонического осциллятора, т. е.

$$f_{v,v+1} = v + 1, \quad f_{v,v-1} = -v. \tag{21}$$

Тогда для мощности излучения (поглощения) будем иметь

$$P_{\substack{v,v-1\\v,v+1}} = \frac{\omega^2\gamma^* e^{*^2} E_0^2}{2M}\left\{\frac{v+1}{Z^2_{v,v+1}} - \frac{v}{Z^2_{v,v-1}}\right\}. \tag{22}$$

Из формулы (22) прямо следует, что в случае, если квантовая система представляет собой гармонический осциллятор, частоты $\omega_{v,v-1} = \omega_{v,v+1}$. Тогда $Z_{v,v-1} = Z_{v,v+1}$ и, следовательно $P_{\substack{v,v-1\\v,v+1}}$ всегда положительно, т. е. гармонический осциллятор может только поглощать энергию, но не может дать индуцированного излучения.

Вычислим выражение, входящее в фигурные скобки формулы (22). Его можно представить в следующем виде:

$$\frac{v+1}{Z^2_{v,v+1}} - \frac{v}{Z^2_{v,v-1}} = \frac{1}{Z^2_{v,v+1}}\left\{1 + v\,\frac{(Z^2_{v,v-1} - Z^2_{v,v+1})}{Z^2_{v,v-1}}\right\}. \tag{23}$$

Для $Z^2_{v,v\pm1}$ можем написать

$$Z^2_{v,v\pm1} = (\omega^2_{v,v\pm1} - \omega^2)^2 + \omega^2\gamma^{*^2} = \omega^4_{v,v\pm1} - 2\omega^2_{v,v\pm1}\,\omega^2 + \omega^4 + \omega^2\gamma^{*^2}.$$

Отсюда имеем

$$Z^2_{v,v-1} - Z^2_{v,v+1} = (\omega^2_{v,v-1} - \omega^2_{v,v+1})(\omega^2_{v,v-1} + \omega^2_{v,v+1} - 2\omega^2).$$

Для квадратов $\omega_{v,v-1}$ и $\omega_{v,v+1}$ из (18) и (19) получится

$$\omega^2_{v,v-1} = \omega_0^2\{1 - 4x_e v + 4x_e^2 v^2\},$$

$$\omega^2_{v,v+1} = \omega_0^2\{1 - 4x_e(v+1) + 4x_e^2(v+1)^2\}.$$

Откуда следует

$$\omega^2_{v,v-1} + \omega^2_{v,v+1} = 2\omega_0^2\{1 - 2x_e(1 - x_e)(2v+1) + 4x_e^2 v^2\}, \tag{24}$$

$$\omega^2_{v,v-1} - \omega^2_{v,v+1} = 4\omega_0^2 x_e\{1 - x_e(2v+1)\}. \tag{25}$$

Подставляя полученные выражения в (23), будем иметь

$$\frac{v+1}{Z^2_{v,v+1}} - \frac{v}{Z^2_{v,v-1}} = \frac{1}{Z^2_{v,v+1}}\left\{1 + \frac{8\omega_0^2 x_e v\,[1 - x_e(2v+1)]}{Z^2_{v,v-1}} \times \right.$$
$$\left. \times\,[\omega_0^2\{1 - 2x_e(1 - x_e)(2v+1) + 4x_e^2v^2\} - \omega^2]\right\}. \tag{26}$$

Подставляя (26) в (22), получим

$$P_{\substack{v,v-1\\v,v+1}} = \frac{\omega^2\gamma^* e^{*^2} E_0^2}{2MZ^2_{v,v+1}}\left\{1 + \frac{8\omega_0^2 x_e v\,[1 - x_e(2v+1)]}{Z^2_{v,v-1}} \times \right.$$
$$\left. \times\,[\omega_0^2\{1 - 2x_e(1 - x_e)(2v+1) + 4x_e^2v^2\} - \omega^2]\right\}. \tag{27}$$

Величина γ^* может быть записана согласно (10) через обратные значения τ и τ':

$$\gamma^* = \frac{1}{\tau^*} = \frac{1}{\tau} + \frac{1}{\tau'}, \tag{28}$$

где τ — среднее время возбужденного состояния осциллятора, не испытывающего соударений, τ' — среднее время между двумя столкновениями молекул. Следовательно, для τ^* имеем

$$\tau^* = \frac{\tau\tau'}{\tau + \tau'}. \tag{29}$$

Для радиационного времени жизни τ можно написать [5]

$$\tau = \frac{1}{\gamma} = \frac{1}{v\,\gamma_0}, \tag{30}$$

где

$$\gamma_0 = \frac{2e^{*2}\,\omega_{10}^2}{3Mc^3}. \tag{31}$$

Если речь идет о колебаниях двухатомной молекулы, у которой $e^* = e$, то для длин волн $\lambda \approx 5$ мкм, $M = 10\,M_0$, где M_0 — масса атома водорода, $\gamma_0 \approx 49$ и $\dfrac{1}{\gamma_0} \approx 2\cdot 10^{-2}$ с. Тогда для значений $v = 20$, $\tau \approx 10^{-3}$ с.

Величина τ' для давлений, имеющих значение для лазерных систем ~ 10 мм рт. ст., на много порядков меньше. Так, для молекул N_2 при температурах $T = 300$ К, $\tau' = 1{,}5\cdot 10^{-8}$ с. Следовательно, для τ^* можно без существенной погрешности брать величину τ'.

Величины $Z^2_{v,v\pm 1}$ можно преобразовать следующим образом:

$$Z^2_{v,v\pm 1} = (\omega_{v,v\pm 1} + \omega)^2\,(\omega_{v,v\pm 1} - \omega)^2 + \omega^2\gamma'^2. \tag{32}$$

Ввиду того что $\omega_{v,v+1}$, $\omega_{v,v-1}$ и ω — очень большие величины и мало разнятся между собой, то $(\omega_{v,v+1} + \omega)^2$ и $(\omega_{v,v-1} + \omega)^2$ можно заменить на $4\omega^2$. Тогда для $Z^2_{v,v\pm 1}$ можно написать

$$Z^2_{v,v\pm 1} = \frac{\omega^2}{\tau'^2}\,\{[2\tau'\,(\omega_{v,v\pm 1} - \omega)]^2 + 1\}. \tag{33}$$

Подставляя эти выражения в (27), для мощности, которой обменивается волна с осциллятором, можем написать

$$P_{\substack{v,v-1\\ v,v+1}} = \frac{\tau'\,e^{*2}\,E_0^2}{2M\,\{[2\tau'\,(\omega_{v,v+1} - \omega)]^2 + 1\}} \times$$
$$\times \left\{1 + \frac{8\omega_0^2\,\tau'^2\,x_e v}{\omega^2\,\{[2\tau'\,(\omega_{v,v-1} - \omega)]^2 + 1\}}\,[1 - x_e(2v+1)]\,[\omega_0^2\{1 - 2x_e\,(1 - x_e)\,\times\right.$$
$$\left.\times\,(2v+1) + 4x_e^2\,v^2\} - \omega^2]\right\}. \tag{34}$$

Обсудим сначала формулу (34) для случая, когда $v = 10$—20. Тогда в (34) частоты $\omega_{v,v+1}$ и $\omega_{v,v-1}$ можно положить равными:

$$\omega_v = \omega_0\,\{1 - 2x_e v\}. \tag{35}$$

Учитывая также, что отношение $\frac{\omega_0^2}{\omega^2} \approx 1$, формулу (34) можем переписать в виде

$$P_{\substack{v,v-1\\v,v+1}} = \frac{\tau' e^{*2} E_0^2}{2M\{[2\tau'(\omega_v - \omega)]^2 + 1\}} \left\{1 + \frac{8\tau'^2 x_e v (1 - 2x_e v)}{2[\tau'(\omega_v - \omega)]^2 + 1} \times (\omega_v^2 - \omega^2)\right\}. \quad (36)$$

В свою очередь,

$$\omega_v^2 - \omega^2 = (\omega_v + \omega)(\omega_v - \omega) \approx 2\omega(\omega_v - \omega). \quad (37)$$

Так как ω мало отличается от ω_v, то произведение $\omega \cdot (1 - 2x_e v)$ можно также заменить:

$$\omega_v (1 - 2x_e v) = \omega_0 (1 - 2x_e v)^2 \approx \omega_0 (1 - 4x_e v).$$

Если обозначить

$$\alpha = 2\tau'(\omega_v - \omega), \quad (38)$$

то выражение для мощности $P_{\substack{v,v-1\\v,v+1}}$ может быть записано в виде

$$P_{\substack{v,v-1\\v,v+1}} = \frac{\tau' e^{*2} E_0^2}{2M(1 + \alpha^2)} \left\{1 + \frac{8\tau' x_e v \omega_0 (1 - 4x_e v)\alpha}{1 + \alpha^2}\right\}. \quad (39)$$

Заменяя x_e его выражением $x_e = \frac{\hbar\omega_0}{4D}$, получим

$$P_{\substack{v,v-1\\v,v+1}} = \frac{\tau' e^{*2} E_0^2}{2M(1 + \alpha^2)} \left\{1 + \frac{2\tau' \hbar v \omega_0^2 \left[1 - \frac{\hbar\omega_0 v}{D}\right]}{D} \cdot \frac{\alpha}{1 + \alpha^2}\right\}. \quad (40)$$

Из полученных формул (27) и (40) следует, что если второй член выражения в фигурной скобке отрицателен и по абсолютной величине больше единицы, то $P_{\substack{v,v-1\\v,v+1}}$ будет представлять собой мощность, не поглощаемую веществом, а отдаваемую веществом волне (отрицательное поглощение). Иными словами, в этом случае индуцированное излучение превышает поглощение и в целом ангармонический осциллятор испускает индуцированное электромагнитное излучение.

Произведем оценку величины $P_{\substack{v,v-1\\v,v+1}}$ для случая двухатомной молекулы на уровне $v = 10$. Наиболее благоприятный случай будет тогда, когда множитель $\frac{\alpha}{1 + \alpha^2}$ имеет максимальное отрицательное значение. Это будет при

$$\alpha = -1, \text{ тогда } \frac{\alpha}{1 + \alpha^2} = -\frac{1}{2}, \ 1 + \alpha^2 = 2.$$

Для величины τ' возьмем значение $\tau' = 10^{-8}$ с. Величина амплитуды электрического поля волны E_0 зависит от мощности лазерной системы и добротности резонатора. Можно положить для примера $E_0 = 30$ в/см $= \frac{1}{10}$ СГСЭ.

Для величин D, ω_0 и M возьмем значения, которые соответствуют молекуле CO: $M=1{,}15\cdot10^{-23}$ г, $D=1{,}765\cdot10^{-11}$ эрг, $\omega_0=4{,}05\cdot10^{14}$ рад/с. Тогда для величины второго члена в скобках формулы (40) получим

$$\frac{2\tau'\hbar v\omega_0^2\left[1-\frac{\hbar\omega_0 v}{D}\right]}{D}\cdot\frac{\alpha}{1+\alpha^2}=-7{,}2\cdot10^5.$$

Следовательно, в данном случае единицей в скобках можно пренебречь. Мощность $P_{\substack{v,v-1\\v,v+1}}$ представляет в этом случае отрицательную величину, т. е. является мощностью индуцированного излучения. Реальная величина γ_0 для CO [5, 6] имеет значения 25—30, а это означает, что $e^{*2}\approx\frac{1}{2}e^2$. Тогда, подставляя найденные значения в (40) с учетом принятого значения $E_{0\kappa}$ будем иметь

$$P_{\substack{v,v-1\\v,v+1}}=-2{,}06\cdot10^{-1}\ \text{эрг/с}\cdot\text{мол.}$$

Если на уровне $v=10$ имеется 10^8 мол/см^3, то мощность излучения единицы объема составит (записываем ее без знака минус)

$$P_v=2{,}06\ \text{вт/см}^3.$$

Приведенные расчеты указывают на высокую эффективность ангармонического осциллятора как излучателя когерентного электромагнитного излучения. Разумеется, при расчете суммарного эффекта излучения необходимо учитывать эффективное расселение нижележащих уровней за счет аналогичного радиационного процесса или при помощи других физических процессов. Обеспечение этих условий представляет собой самостоятельную задачу, в которой основное значение имеют релаксационные процессы обмена энергией между различными степенями свободы как излучающих молекул, так и молекул примесей.

В заключение приношу глубокую благодарность д-ру физ.-мат. наук А. И. Осипову и доц. Ф. В. Шугаеву за обсуждение данной работы и ценные советы.

ЛИТЕРАТУРА

1. Собельман И. И., Тютин И. В. «Успехи физических наук», 1963, 79, 595.
2. Гордиец Б. Ф., Осипов А. И., Шелепин П. А. ЖЭТФ, 1970, **59**, 616; 1971, **60**, 103.
3. Гордиец Б. Ф., Осипов А. И., Ступоченко Е. В., Шелепин П. А. «Успехи физических наук», 1972, **108**, 655.
4. Блохинцев Д. И. Основы квантовой механики. М., 1968.
5. Bell K. L. «J. Phys.», 1970, **B 3**, 1426; Cashion J. K. «J. Mol. Spectr.», 1963, **10**, 182.
6. Penner S. S., Weber D. «J. chem. Phys.», 1966, **44**, 4195.

Поступила в редакцию
17.6 1974 г.

Кафедра
молекулярной физики