ВЕСТН. МОСК. УН-ТА. СЕР. 3. ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ, 1980, Т. 21, № 2

УДК 535.375.5

В. И. ЕМЕЛЬЯНОВ, В. Н. СЕМИНОГОВ

ТЕОРИЯ СВЕРХИЗЛУЧЕНИЯ ПРИ КОМБИНАЦИОННОМ РАССЕЯНИИ СВЕТА

1. В настоящем сообщении излагаются результаты развитой нами многомодовой теории сверхизлучения при комбинационном рассеянии (СИКР) света в молекулярных и атомных системах. Рассмотренный здесь эффект СИКР является аналогом резонансного сверхизлучения [1—6]. Расеиваемая при СИКР мощность пропорциональна квадрату числа рассеивающих частиц. В одномодовом приближении процесс СИКР рассмотрен в [7].

В настоящей работе исследована временная эволюция населенностей атомной системы, рассчитана форма импульса СИКР, получены выражения для длительности испульса τ_p и времени задержки импульса t_m. Определена угловая зависимость мощности СИКР. В явном виде рассмотрен процесс формирования сверхизлучательного состояния из первоначально некогерентного состояния за счет обмена спонтанно излученными стоксовыми фотонами. Этот процесс определяет время t_m. Показано, что t_m существенно зависит от геометрии среды. Полученные результаты применимы также к случаю резонансного сверхизлучения.

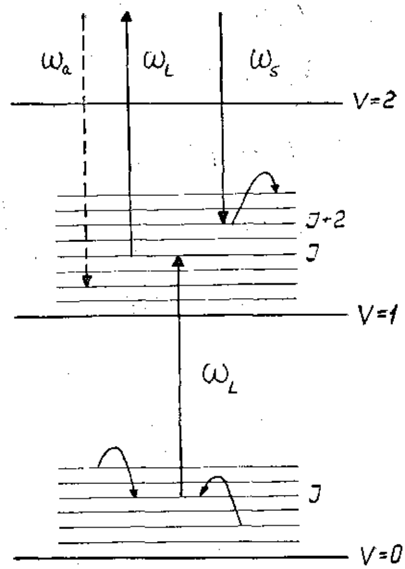

Схема каскада колебательно-вращательных переходов при СИКР. Переход V=0, J→V=1, J происходит при резонансном поглощении кванта накачки. Затем, за счет стоксова (ω_s) и антистоксова (ω_a) СИКР происходит переход на уровни соответственно V=1, J+2 и V=1, J—2 и т. д. Стрелками внизу показано подполнение уровня V=0, J за счет процессов СИКР

Условием формирования импульса СИКР является неравенство $t_m < T_{min}$, где T_{min} — наименьшее из времен молекулярной релаксации. После излучения импульса система молекул, первоначально находившаяся в основном состоянии, оказывается в инвертированном состоянии. В многоуровневой системе (например, для молекулы с колебательно-вращательным спектром) такой процесс инверсии пар уровней может происходить поэтапно, приводя к возбуждению все более высоких уровней (см. рисунок). СИКР, таким образом, может определять один из возможных механизмов бесстолкновительного возбуждения (стоксово СИКР) и релаксации (антистоксово СИКР) молекул по колебательно-вращательным уровням.

2. Рассмотрим систему N многоуровневых атомов (молекул), заключенных в объем V произвольной геометрической формы. На систему действует электромагнитное поле накачки

$$\mathbf{E}_L(\mathbf{R}_j, t) = \mathbf{e}_L (E_L e^{-i(\omega_L t - \mathbf{k}_L \mathbf{R}_j)} + \text{к. с.}); \quad E_L = \begin{cases} 0, & t < 0, \\ \text{const}, & t > 0, \end{cases} \tag{1}$$

где $\mathbf{R}_j$ — радиус-вектор j-го атома.

В начальный момент $t=0$ все атомы находятся в основном состоянии, а средняя поляризация равна нулю. В результате действия поля в среде возникает нелинейная поляризация $\mathbf{P}_s(\mathbf{R}, t)$ на частоте $\omega_s = \omega_L - \omega_{ab}$, где $\omega_{ab} > 0$ — частота перехода выделенной пары уровней, и соответствующее стоксово поле

$$\mathbf{E}_s(\mathbf{R}_j, t) = \mathbf{E}_s^-(\mathbf{R}_j, t) + \mathbf{E}_s^+(\mathbf{R}_j, t) = \mathbf{E}_{sj}^- e^{-i\omega_s t} + \mathbf{E}_{sj}^+ e^{i\omega_s t}. \tag{2}$$

Решение уравнения Максвелла для $\mathbf{E}_s$ имеет вид:

$$\mathbf{E}_s(\mathbf{R}_j, t) = \frac{1}{c^2} \sum_i \frac{1}{R_{ij}} \left[\left[\frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}_s(\mathbf{R}_i, t') \mathbf{n}_{ij} \right] \mathbf{n}_{ij} \right] + \mathbf{E}_{s0}(\mathbf{R}_j, t), \tag{3}$$

где $t' = t - R_{ij}/c$, $\mathbf{n}_{ij} = \mathbf{R}_{ij}/|\mathbf{R}_{ij}|$, $\mathbf{R}_{ij} = \mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j$, а $\mathbf{E}_{s0}$ — вакуумное поле:

$$\mathbf{E}_{s0}(\mathbf{R}_j, t) = i \sum_{\mathbf{k}} \sqrt{\frac{2\pi \hbar kc}{V}} \, \mathbf{e}_k (a_k e^{-i(kct - \mathbf{kR}_j)} - a_{\mathbf{k}}^+ e^{i(kct - \mathbf{kR}_j)}), \tag{4}$$

где $a_{\mathbf{k}}^+$, $a_{\mathbf{k}}$ — операторы порождения и уничтожения квантов поля, причем

$$\overline{a_{\mathbf{k}} a_{\mathbf{k}'}^+} = \delta_{\mathbf{kk}'}, \quad \overline{a_{\mathbf{k}}^+ a_{\mathbf{k}'}} = 0,$$

черта означает усреднение по вакуумному состоянию поля.

Запишем уравнения для операторов разности населенностей уровней j-го атома $D_j = \rho_{aaj} - \rho_{bbj}$ и недиагонального элемента матрицы плотности σ_{abj}:

$$\frac{\partial D_j}{\partial t} = -\frac{i r_{ab}}{\hbar} \{ E_L^-(\mathbf{R}_j, t) \mathbf{E}_s^+(\mathbf{R}_j, t) \sigma_{ba}(t) + \sigma_{ba}(t) E_L^-(\mathbf{R}_j, t) \mathbf{E}_s^+(\mathbf{R}_j, t) \} + \text{э.с},$$

$$\frac{\partial \sigma_{abj}}{\partial t} + i\omega_{ab} \sigma_{abj} =$$

$$= \frac{i r_{ab}}{2\hbar} \{ E_L^-(\mathbf{R}_j, t) \mathbf{E}_s^+(\mathbf{R}_j, t) D_j(t) + D_j(t) E_L^-(\mathbf{R}_j, t) \mathbf{E}_s^+(\mathbf{R}_j, t) \},$$

где

$$\mathbf{r}_{ab} = \frac{1}{\hbar} \sum_p \left\{ \frac{(\mathbf{d}_{bp} \mathbf{e}_L) \mathbf{d}_{pa}}{\omega_{bp} + \omega_L} + \frac{\mathbf{d}_{bp} (\mathbf{d}_{pa} \mathbf{e}_L)}{\omega_{bp} - \omega_s} \right\}$$

и $\mathbf{d}_{bp}$ — матричный элемент дипольного момента. Введем далее медленно меняющийся оператор $\rho_{abj} = \sigma_{abj} e^{-i\omega_{ab} t + i\mathbf{k}_L \mathbf{R}_j}$ и исключим из этих уравнений $\mathbf{E}_s(\mathbf{R}_j, t)$ с помощью (3). Тогда после усреднения по вакуумному состоянию, по ансамблю и по ориентациям дипольного момента получим следующую систему уравнений:

$$\frac{\partial D}{\partial t} = \Gamma \sum_{i \neq j} \sum C_{ij} P_{ij} + \Gamma (N - D); \quad D(0) = -N; \tag{5}$$

$$\frac{\partial P_{ij}}{\partial t} = -\Gamma C_{ij}(\rho_{bbj}D_i + \rho_{bbi}D_j) -$$

$$-\frac{\Gamma}{2}\sum_{k\neq i,j} C_{ki}P_{kj}D_i - \frac{\Gamma}{2}\sum_{k\neq i,j} C_{kj}P_{ik}D_j;\; P_{ij}(0) = 0. \qquad (6)$$

Здесь $D = \Sigma\langle\overline{D_i(t)}\rangle$,

$$P_{ij} = \langle\overline{\rho_{abi}(t)\rho_{baj}}(t) + \overline{\rho_{baj}(t)\rho_{abi}}(t)\rangle,$$

где $\langle\ \rangle$ обозначает операцию усреднения;

$$\Gamma = \frac{2\omega_s^3|r|^2|E_L|^2}{5\hbar c^3},\quad |r| = \frac{1}{\hbar}\left|\sum_p\left(\frac{d_{bp}d_{pa}}{\omega_{bp}+\omega_L} + \frac{d_{bp}d_{pa}}{\omega_{bp}-\omega_s}\right)\right|,$$

$C_{ij} = \sin\left(\frac{\omega_s}{c}R_{ij}\right)\Big/\left(\frac{\omega_s}{c}R_{ij}\right)$ — матрица эффективного межатомного взаимодействия.

При выводе (5) и (6) мы пренебрегли временным запаздыванием в медленно меняющихся операторах, положив $\rho_{abj}(t-R_{ij}/c)\approx\approx\rho_{abj}(t)$. Это справедливо при условии $t_m<L/c$, где L — характерный линейный размер системы.

Последний член в (5) учитывает влияние спонтанного КР на динамику населенностей. Первый член в правой части (6) описывает процесс наведения межатомных корреляций за счет спонтанного излучения стоксова фотона одним атомом и поглощения его другим. Если бы этого члена не было, то при заданных начальных условиях во все моменты времени $P_{ij}(t)=0$ и сверхизлучение отсутствовало бы.

Для решения уравнений (5), (6) используем полный, ортонормированный набор собственных функций $\psi_\lambda(\mathbf{R}_j)$ и собственных значений λ матрицы C_{ij} [6]:

$$\sum_{j=1}^{N} C_{pj}\,\psi_\lambda(\mathbf{R}_j) = \lambda\psi_\lambda(\mathbf{R}_p). \qquad (7)$$

Для объема цилиндрической формы (L — длина, R, S — радиус и площадь поперечного сечения) наибольшие собственные значения λ_0 и соответствующие $\psi_{\lambda_0}(\mathbf{R}_j)$ определены явно в пределе больших и малых чисел Френеля ($F=S/\lambda_sL$, λ_s — длина волны стоксова излучения. Для $F\ll 1$ и $F\gg 1$ все наибольшие собственные значения вырождены с кратностью g_0 и равны [6]:

$$\lambda = \lambda_0 = N\pi/H \gg 1;\; g_0 = 1/F;\; (F\ll 1); \qquad (8)$$

$$\lambda = \lambda_0 = N/h^2 \gg 1;\; g_0 = 2F;\; (F\gg 1), \qquad (9)$$

где $H=(\omega_s/c)L$, $h=(\omega_s/c)R$, $H\gg h\gg 1$. Остальные $\lambda\ll\lambda_0$, и ими можно пренебречь. Собственные функции

$$\psi_{\lambda_0}(R_j) = \frac{1}{\sqrt{N}}(\cos\mathbf{k}_0\mathbf{R}_j + \sin\mathbf{k}_0\mathbf{R}_j) \qquad (10)$$

$\mathbf{k}_0 = (\omega_s/c)\widehat{\mathbf{k}_0}$, где $\widehat{\mathbf{k}_0}$ — единичный вектор, направленный вдоль оси цилиндра.

Введем коллективную переменную $P(\lambda, t) = \sum\sum_{i\neq j} P_{ij}\,\psi_\lambda(\mathbf{R}_i)\,\psi_\lambda(\mathbf{R}_j)$.

Из (5), (6) получим уравнения для D и $P(\lambda_0, t)$:

$$\frac{\partial D}{\partial t} = \Gamma\lambda_0 g_0 P(\lambda_0, t) + \Gamma(N-D);\ D(0) = -N; \tag{11}$$

$$\frac{\partial P(\lambda_0, t)}{\partial t} = -\frac{\Gamma(N-D)}{N^2}\lambda_0 - \frac{\Gamma D}{N}\lambda_0 P(\lambda_0, t);\ P(\lambda_0, 0) = 0. \tag{12}$$

Отметим, что при замене $D \longrightarrow -D$, $\Gamma \to \gamma \equiv 4\,\omega_{ab}^3\,|\mathbf{d}_{ab}|^2/3\hbar c^3$ уравнения (11), (12) описывают процесс сверхизлучательного высвечивания первоначально инвертированной системы двухуровневых атомов с частотой перехода ω_{ab}.

Решение (11), (12) приближенно с точностью до членов порядка $1/\lambda_0$ можно записать в виде:

$$D(t) = -D(0)\,\mathrm{th}\,[(t-t_m)/\tau_p]; \tag{13}$$

$$P(\lambda_0, t) = (N/2g_0)\,\mathrm{ch}^{-2}\,[(t-t_m)/\tau_p]; \tag{14}$$

$$\tau_p = 2/\Gamma\lambda_0;\ t_m = (1/2)\,\tau_p \ln(N/g_0). \tag{15}$$

Численное решение (11, 12) подтверждает правильность аналитических выражений (13—15).

Отметим, что при увеличении спонтанного члена в правой части (12) в $N/\lambda_0 g_0$ раз система (11, 12) допускает точное решение в виде (13, 14), но с заменой там

$$t_m \to t_m^*(1/2)\,\tau_p \ln\lambda_0 < t_m. \tag{16}$$

Формулы (13), (16) при $F \gg 1$ соответствуют результату одномодовой теории [7] с учетом сделанной в [7] поправки на многомодовость процесса СИКР. Аналогичный результат получается также в теории резонансного сверхизлучения [2]. Большее, по сравнению с t_m^*, значение времени задержки t_m, полученное в настоящей работе, объясняется следующим. В [2, 7] для нахождения $D(t)$ на всех этапах временной эволюции, начиная с $t=0$, используется закон сохранения длины блоховского вектора. Для многомодового случая, в наших обозначениях, этот закон имеет вид:

$$D^2 + 2Ng_0 P(\lambda_0, t) = N^2. \tag{17}$$

Формула (17) следует из (11), (12) в пренебрежении там спонтанными членами, и поэтому она не справедлива на малых временах. Легко видеть, что в момент $t=0$ (17) дает начальную скорость нарастания коррелятора коллективной поляризации $\left(\frac{\partial P(\lambda_0, t)}{\partial t}\right)$ в $N/\lambda_0 g_0$ раз большую, чем это следует из уравнения (12).

Перейдем теперь к рассмотрению формы импульса СИКР и угловой направленности излучения. Используя для $\mathbf{E}_s$ формулу (3), найдем выражение для $I_{s,\mathbf{k}}$ — мощности, рассеиваемой на частоте ω_s в единичный телесный угол в направлении вектора $\mathbf{k} = \frac{\mathbf{R}}{|\mathbf{R}|}\frac{\omega_s}{c}$, где $\mathbf{R}$ — точка наблюдения в дальней зоне:

$$I_{s,\mathbf{k}}(t) = (\hbar\,\omega_s\,\Gamma/4\pi)\Big\{(N-D)/2 + (1/2)\sum_{\lambda} P(\lambda, t) \sum\sum_{i \neq j} \psi_\lambda(\mathbf{R}_i)\,\psi_\lambda(\mathbf{R}_j)\,e^{i\mathbf{k}(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j)}\Big\}. \tag{18}$$

В предельных случаях $F \gg 1$ и $F \ll 1$ с использованием (10), находим $I_{s,\mathbf{k}}$ в явном виде:

$$I_{s,\mathbf{k}}(t) = (\hbar\omega_s \Gamma/4\pi)\{(N - D(t))/2 + (N/2) g_0 P(\lambda_0, t)\,\theta(\mathbf{k})\}, \tag{19}$$

где $D(t)$, $P(\lambda_0, t)$ задаются формулами (13)—(15), а фактор угловой направленности СИКР равен:

$$\theta(\mathbf{k}) = (1/2N^2) \sum\sum_{i \neq j} (e^{i(\mathbf{k}_0+\mathbf{k})(\mathbf{R}_i-\mathbf{R}_j)} + e^{i(\mathbf{k}_0-\mathbf{k})(\mathbf{R}_i-\mathbf{R}_j)}) =$$

$$= 2\sum_{(\pm)} \left[\frac{\sin \frac{1}{2} H(1 \mp \cos\varphi)}{\frac{1}{2} H(1 \mp \cos\varphi)} \right]^2 \left(\frac{J_1(h \sin\varphi)}{h \sin\varphi} \right)^2. \tag{20}$$

Здесь $\cos\varphi = \mathbf{k}\cdot\mathbf{k}_0/|\mathbf{k}|^2$ (напомним, что $\mathbf{k}_0$ направлен вдоль оси цилиндра и $|\mathbf{k}| = |\mathbf{k}_0|$); $J_1(x)$ — функция Бесселя первого рода.

Первый член в (19) описывает изотропное спонтанное КР, возникающее с момента $t=0$, второй член описывает коллективное излучение, формирующееся в виде импульса, максимум которого достигается в момент t_m. Как следует из (19), (20), излучение при СИКР происходит в малые телесные углы в противоположных направлениях вдоль оси цилиндра. Из (19) и (14), (15) видно, что в момент t_m мощность рассеяния $I_{s,\mathbf{k}}(t_m) \sim N^2$.

Отметим, что при замене $D \to -D$, $\omega_s \to \omega_{ab}$, $\Gamma \to \gamma$, формулы (18—20) описывают форму импульса и угловую направленность резонансного сверхизлучения в двухуровневых системах.

3. Используя полученные выше результаты, рассмотрим механизм возбуждения молекул, в котором участвует большое число вращательных уровней. Пусть ω_L резонансна переходу $v=0$, $J \to v=1$, J, где v, J — колебательное и вращательное квантовые числа. Под действием этого поля молекулы с уровня $v=0$, J переходят на уровень с $v=1$, J, а затем на уровни $v=1$, $J+2$, $J+4$,.. за счет процесса СИКР. Уровень $v=0$, J будет постоянно заполняться благодаря переходам с других вращательных подуровней, которые происходят при стоксовом и антистоксовом СИКР. Оценим интенсивность накачки, необходимую для перевода молекул с $v=1$, J на уровень $v=1$, $J+\Delta J$ за время длительности импульса $\tau_{имп}$. Необходимым условием этого является выполнение неравенства

$$\sum_{k=1}^{\Delta J/2} t_m(J_k) < \tau_{имп}, \tag{21}$$

где $t(J_k)$ — время задержки на переходе $v=1$, J_k, $v=1$, J_k+2.

Для численной оценки возьмем те значения параметров, которые соответствуют молекуле SF_6. Положим $\tau_{имп} \simeq 150$ нс, $\Delta J=20$. При давлении $p=0{,}03$ Тор, $n(J \approx 63) \approx 10^{13}$ см$^{-3}$. Расстройка $(\omega_{pb}-\omega_L)$ в выражении для $|r|$ при переходе с уровня $(J+\delta J)$ будет порядка $2B\delta J$, где $B \simeq 0{,}027$ см$^{-1}$, $d_{bp} \approx 0{,}3D$ [8]. Используя (15), (21), получим выражение для интенсивности накачки, требуемой для осуществления каскада переходов $v=1$, $J \to v=1$, $J=20$:

$$|E_L|^2 = \frac{5\hbar c \ln(N/g_0)}{2\pi\omega_s nL(d_{bp} d_{pa}/4B\hbar)^2} \sum_{\delta J=1}^{10} (\delta J)^2 \frac{1}{\tau_{имп}}.$$

Для $L=10$ см, $S=1$ см^2, $\omega_s \simeq 2\cdot10^{14}$ с$^{-1}$, имеем $I_L \simeq 10^{11}$ Вт/м^2. Отметим, что при более высоких уровнях возбуждения молекул, где плотность уровней сильно возрастает, переходы, обусловленные СИКР, будут происходить и при более низких интенсивностях.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Dicke R. H. Coherence in spontaneous radiation process.— Phys. Rev., 1954, **93**, N 1, 99.
2. Rehler N. E., Eberly J. H. Superradiance.— Phys. Rev., 1971, **A3**, 1735—1751.
3. Bonifacio R., Lugiato L. A. Cooperative radiation processes two-lewel systems: Super-fluorescence.— Phys. Rev., 1975, **A11**, 1507—1521.
4. Емельянов В. И., Климонтович Ю. Л. Временная эволюция и тонкая структура сверхизлучения Дикке и сверхсветимости в системе двухуровневых атомов.— Опт. и спектр., 1976, **11**, 913—919.
5. Андреев А. В., Ильинский Ю. А., Хохлов Р. В. О роли коллективных и индуцированных процессов при генерации мессбауэровского γ-излучения.— ЖЭТФ, 1977, **73**, 1296—1300.
6. Ressayre E., Tallet A. Quantum theory for supperradiance.— Phys. Rev., 1977 **A15**, 2410—2423.
7. Раутиан С. Г., Черноброд Б. М. Кооперативный эффект в комбинационном рассеянии света.— ЖЭТФ, 1977, **72**, 1342—1348.
8. Blombergen N. B., Canterell C. D., Larsen D. M. Proceeding of the Loen conference, Norway, June 6—11, 1976.

Поступила в редакцию
30.05.78

ВЕСТН. МОСК. УН-ТА. СЕР. 3. ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ, 1980, Т. 21, № 2

УДК 535.5

В. Б. ВОЛОШИНОВ, И. В. НИКОЛАЕВ, В. Н. ПАРЫГИН

КОЛЛИНЕАРНАЯ АКУСТООПТИЧЕСКАЯ ФИЛЬТРАЦИЯ В КВАРЦЕ

Известно, что коллинеарное акустооптическое взаимодействие в оптически анизотропной среде может быть использовано для фильтрации света [1]. Коллинеарное взаимодействие в анизотропной среде является частным случаем анизотропного брэгговского рассеяния света на ультразвуке, при котором световой и акустический пучки распространяются либо в одном направлении, либо навстречу друг другу. Если на акустооптическую ячейку падает линейно поляризованный световой пучок со сплошным спектром, то за счет селективности брэгговского рассеяния с ультразвуком взаимодействует лишь свет, заключенный в узком спектральном интервале. При этом рождаются световые волны с поляризацией, ортогональной по отношению к исходной волне. Центральная длина волны λ_0 диапазона пропускания $\Delta\lambda$ определяется частотой f, скоростью ультразвука V, а также разностью показателей преломления материала $\Delta n = n_1 - n_2$:

$$\lambda_0 = \Delta nV/f. \tag{1}$$

Очевидно, что при изменении частоты ультразвука происходит перестройка фильтра по оптическим частотам. Это непосредственно следует из выражения (1).