

УДК 535.338.3

СПЕКТР СИГНАЛА АСКР ПРИ НАСЫЩЕНИИ КОЛЕБАТЕЛЬНОГО ПЕРЕХОДА

Ю. Е. Дьяков, С. Ю. Никитин

(кафедра общей физики и волновых процессов)

Введение. В работе [1] рассчитан спектр сигнала стационарной активной спектроскопии комбинационного рассеяния (АСКР) с учетом насыщения колебательного перехода в предельном случае сильно разреженного газа, когда основным механизмом уширения спектральной линии является эффект Доплера. В настоящей работе эффект насыщения рассматривается в противоположном предельном случае плотного газа, когда линия комбинационно-активного перехода однородно уширена (область давлений порядка атмосферного и выше). В этом приближении получены выражения для формы и ширины спектральной линии, проанализирован вклад доплеровского и столкновительного механизмов в уширении линии, а также исследованы особенности эффекта столкновительного сужения.

В последние годы был выполнен ряд работ, в которых экспериментально наблюдался эффект насыщения комбинационно-активных переходов в молекулярных газах [2—5]. Эксперименты, выполненные с разреженными газами (давление несколько Тор и ниже), показали, что насыщение перехода приводит к уширению и деформации наблюдаемого спектра [3], а в центре линии возникает характерный провал [2]. Отметим, что появление такого провала было впервые предсказано в работе [1], где предлагалось использовать это явление для измерения однородной ширины линии, скрытой внутри доплеровского контура. В плотном газе (водород, переход $S_0(1)$, давление 0,4 атм) зарегистрировано значительное (на порядок) уменьшение сигнала АСКР, вызванное насыщением перехода [5].

Появились также теоретические работы, посвященные исследованию эффекта насыщения в АСКР. Так, в работе [6] исследованы особенности явления, связанные с возбуждением перехода независимым бигармоническим полем и последующим зондированием методом АСКР. Показано, что в этом случае разность населенностей есть осциллирующая функция времени. В работе [7] получено общее выражение для поляризации двухуровневой и трехуровневой сред с учетом насыщения как колебательного, так и электронного переходов молекул. Наконец, работа [8] посвящена исследованию совместного влияния эффекта насыщения и флуктуаций накачки на сигнал АСКР.

Исходные уравнения. Уравнения, описывающие АСКР в газах с учетом насыщения комбинационно-активного перехода, имеют вид [9, 10]

$$\left\{ \begin{aligned} \frac{\partial Q_j}{\partial \theta} + [1/T_c + i \Delta \omega - ik_0 v_j(\theta)] Q_j &= \gamma_q A n_j, \\ \frac{\partial n_j}{\partial \theta} + \frac{n_j - 1}{T_1} &= \gamma_n (A Q_j^* - A^* Q_j), \quad A = A_1 A_2^*, \\ Q &= \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N Q_j, \quad n = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N n_j, \quad \frac{\partial A_a}{\partial z} = \gamma_a A_n Q e^{i \Delta z}. \end{aligned} \right. \quad (1)$$

Здесь A_1 , A_2 , A_n и A_a — амплитуды компонент бигармонической накачки, пробной световой волны и антистоксовой компоненты рассеяния, частоты которых связаны соотношением $\omega_1 - \omega_2 = \omega_a - \omega_n$,

$$\gamma_a = \alpha' / (4iM\omega_0), \quad \gamma_n = i\alpha' / (4\hbar), \quad \gamma_a = \pi N \alpha' \omega_a / (in_a c) \quad (2)$$

— коэффициенты нелинейной связи, α' — производная электронной поляризуемости молекулы по ядерной координате, M — приведенная масса осциллятора, ω_0 — частота перехода, индекс j нумерует молекулы, N — число частиц в единице объема, T_c — время столкновительной дефазировки, T_1 — время релаксации населенностей, $\Delta\omega = \omega_1 - \omega_2 - \omega_0$ — частотная отстройка от комбинационного резонанса, $\Delta = (k_a - k_n) - (k_1 - k_2)$ — волновая расстройка, $k_0 = k_1 - k_2$ — волновое число молекулярных колебаний, v_j — скорость молекулы в направлении распространения световых волн z , $0 = t - z/u$, t — время, u — групповая скорость. В дальнейшем все световые волны считаются монохроматическими. Мы предполагаем также, что изменением амплитуд A_1 , A_2 и A_n в процессе взаимодействия можно пренебречь. В этих условиях A_1 , A_2 , $A_n = \text{const}$,

$$A_a = \gamma_a A_n Q z \exp(i\Delta z/2) \text{sinc}(\Delta z/2). \quad (3)$$

Таким образом, для расчета антистоксова сигнала необходимо вычислить когерентную амплитуду Q , определяемую уравнениями (1).

Влияние доплеровской дефазировки. Обычно уравнения (1) рассматриваются при $v_j = \text{const}$, что соответствует отсутствию соударений между молекулами (предел низких давлений). Мы будем считать, что при наличии столкновений скорость молекулы $v_j(\theta)$ представляет собой стационарный случайный процесс. При этом уравнения (1) становятся стохастическими, и для их анализа необходимо использовать теорию случайных процессов.

В отсутствие движения населенностей ($n_j = 1$) амплитуду нелинейной поляризации Q можно вычислить путем усреднения точного решения уравнения для поляризации отдельной молекулы Q_j [10—12]. Учитывая движение населенностей, нельзя поступить аналогичным образом, так как при произвольной функции $v_j(\theta)$ точное решение уравнений (1) неизвестно. Тем не менее средние значения Q и n можно рассчитать, если сделать предположение о δ -корреляции тепловых скоростей молекул:

$$B(\tau) = \langle v(t) v(t + \tau) \rangle = 2D\delta(\tau), \quad D = \int_0^\infty B(\tau) d\tau = \sigma_v^2 \tau_v, \quad (4)$$

где σ_v^2 — дисперсия, τ_v — время корреляции скоростей. В этом случае удастся записать уравнения непосредственно для средних Q и n , и необходимость решения исходной системы (1) отпадает*. Усредняя уравнения (1), получим

$$\begin{cases} \frac{\partial Q}{\partial \theta} + (1/T_c + i\Delta\omega)Q - ik_0 \langle v_j Q_j \rangle = \gamma_a A_n, \\ \frac{\partial n}{\partial \theta} + \frac{n-1}{T_1} = \gamma_n (AQ^* - A^*Q). \end{cases} \quad (5)$$

Условие (4) позволяет выразить $\langle v_j Q_j \rangle$ через Q (см. [14, с. 80]):

$$\langle v_j Q_j \rangle = ik_0 D Q \quad (6)$$

* Подобным же методом можно включить в рассмотрение и вращательную дефазировку [13].

и переписать (5) в следующем виде:

$$\frac{\partial Q}{\partial \theta} + \left(\frac{1}{T_2} + i\Delta\omega \right) Q = \gamma_q A n, \quad \frac{\partial n}{\partial \theta} + \frac{n-1}{T_1} = \gamma_n (AQ^* - A^*Q), \quad (7)$$

где

$$T_2 = (T_c^{-1} + k_0^2 \sigma_v^2 \tau_v)^{-1}. \quad (8)$$

Полученные уравнения (7) описывают, как известно, однородно уширенный переход [9]. Таким образом, в пределе быстрых флуктуаций скоростей (4) влияние доплеровской дефазировки сводится к уменьшению времени релаксации T_2 или к дополнительному однородному уширению спектральной линии. Предположение (4) о δ -корреляции скоростей справедливо, если

$$(k_0 \sigma_v \tau_v)^2 \ll 1 \quad (9)$$

(см. [14, с. 167]), т. е. если средняя длина свободного пробега молекул газа много меньше k_0^{-1} — величины порядка длины световой волны. Например, для водорода при комнатной температуре это условие выполняется в области давлений выше 1 атм.

Стационарный режим. Исследуем спектр сигнала АСКР в стационарных условиях, когда

$$\partial Q / \partial \theta = 0, \quad \partial n / \partial \theta = 0. \quad (10)$$

Время установления такого режима (см. [9, с. 233]).

$$t_{\text{уст}} = \begin{cases} \theta_1 / (1 - \theta_1 \sqrt{1/\theta_2^2 - G/(T_1 T_2)}), & \text{если } G \leq T_1 T_2 / \theta_2^2, \\ \theta_1, & \text{если } G \geq T_1 T_2 / \theta_2^2, \end{cases}$$

где

$$\frac{1}{\theta_1} = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2} \right), \quad \frac{1}{\theta_2} = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{T_2} - \frac{1}{T_1} \right), \quad G = 2\gamma_q \gamma_n T_1 T_2 |A|^2.$$

Как видно из этих формул, время установления зависит от интенсивности бигармонической накачки: оно уменьшается от T_1 до $2T_2$ при увеличении G от нуля до значения $T_1/(4T_2)$ (предполагается, что $T_1 \gg T_2$).

Подставляя (10) в (7), находим

$$Q = \gamma_q T_2 A n / (1 + i\delta), \quad n = [1 + G/(1 + \delta^2)]^{-1}, \quad (11)$$

где $\delta = \Delta\omega T_2$, $G = I_1 I_2 / I_0^2$ — параметр насыщения, выраженный через интенсивности возбуждающих световых волн $I_s = c n_s |A_s|^2 / (8\pi)$ ($s = 1, 2$) и стационарную интенсивность насыщения I_0 (см. [9, с. 226] и (2)):

$$I_0^2 = \hbar c^2 M \omega_0 n_1 n_2 [8\pi^2 (\alpha')^2 T_1 T_2]^{-1}. \quad (12)$$

Отметим, что выражение для Q , аналогичное (11), было получено ранее (см. формулу (3.2) в [7]).

Предельная интенсивность сигнала АСКР. Форма спектра при насыщении. После подстановки (11) в (3) для спектра сигнала АСКР получается следующее выражение:

$$I_a(\delta) / I_a^{\max} \equiv F(\delta) = 4G n^2 / (1 + \delta^2), \quad (13)$$

где нормировочная интенсивность

$$I_a^{\max} = [(4\pi)^2 n_a / (c^2 n_1 n_2 n_n)] \gamma_a \gamma_q T_2 I_0^2 I_n z^2 \text{sinc}^2(\Delta z/2)$$

не зависит от интенсивностей возбуждающих световых волн и является параметром образца. Формулы (11) и (13) удобно переписать так:

$$n = (1+y)^{-1}, \quad F(\delta) = 4y/(1+y)^2, \quad y = G/(1+\delta^2). \quad (14)$$

Зависимость I_a от интенсивностей возбуждающих волн при фиксированных отстройках δ представлена на рис. 1. Видно, что интенсивность $I_a^{\max}$ имеет смысл предельной интенсивности сигнала АСКР. Ограничение I_a на уровне $I_a^{\max}$ обусловлено насыщением перехода. Выражая α' через сечение спонтанного КР $d\sigma/d\omega$:

$$(\alpha')^2 = (2M\omega_0 c^4 / (\hbar \omega_2^4)) (d\sigma/d\omega)$$

(см. [9, с. 41]), можно представить $I_a^{\max}$ в виде

$$I_a^{\max} = \left(\frac{\pi c N \omega_a}{2\omega_2^2} \right)^2 \frac{T_2}{T_1} \left(\frac{d\sigma}{d\omega} \right) \frac{I_n z^2}{n n_{ia}} \sin^2 (\Delta z/2). \quad (15)$$

На рис. 2 показана форма активного спектра при различных значениях G . Видно, что насыщение приводит к появлению характерного «провала» в центре линии, глубина и ширина которого возрастают с увеличением G . Исходя из (14), нетрудно показать, что полная ширина АСКР-спектра (по полувысоте) определяется формулами

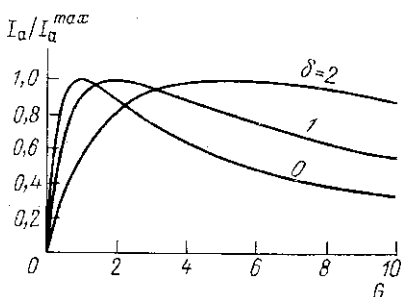


Рис. 1. Интенсивность сигнала АСКР в зависимости от интенсивностей возбуждающих световых волн при различных отстройках от резонанса

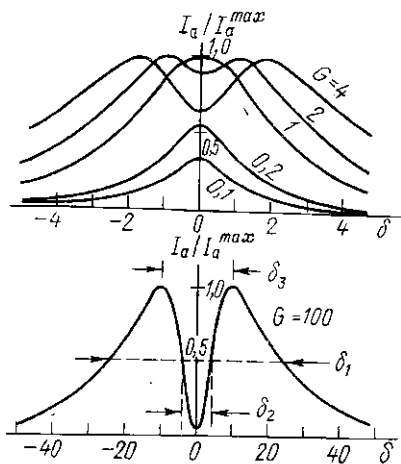


Рис. 2. Спектр сигнала АСКР в условиях насыщения комбинационно-активного перехода. Характерные «размеры» спектра: $\delta_1 = 2\sqrt{G/y_1 - 1}$, $\delta_2 = 2\sqrt{G/y_2 - 1}$, $\delta_3 = 2\sqrt{G - 1}$, $y_1 = 3 - \sqrt{8}$, $y_2 = 3 + \sqrt{8}$

$$\Delta\omega = \begin{cases} 2\sqrt{G/y_0 - 1}/T_2, & y_0 = \kappa - \sqrt{\kappa^2 - 1} \\ \kappa = G + 1 + G^{-1}, & G = 2\gamma_q\gamma_n T_1 T_2 |A|^2 \end{cases} \quad G \leq 1 \quad (16)$$

$$2\sqrt{G/y_1 - 1}/T_2, \quad y_1 = 3 - \sqrt{8} \quad G \geq 1.$$

Данное выражение справедливо для уединенной однородно уширенной линии, причем механизм уширения может быть любым.

Эффект столкновительного сужения спектральной линии в условиях насыщения. Исследуем зависимость $\Delta\omega$ от плотности газа. Для этого необходимо раскрыть зависимость от давления времен T_1 и T_2 , т. е. ввести в рассмотрение конкретные механизмы процессов релаксации. Предположим, что однородное уширение линии обусловлено столкновительным

тельным и доплеровским механизмами, а релаксация населенностей вызвана столкновениями. Такая ситуация имеет место, в частности, для колебания $Q_{01}(1)$ молекулярного водорода при $p \geq 1$ атм. Тогда для T_2 справедлива формула (8), а времена T_c , τ_v и T_1 пропорциональны среднему времени свободного пробега молекул, т. е.

$$T_c = a\rho^{-1}, \tau_v = b\rho^{-1}, T_1 = c\rho^{-1}, \quad (17)$$

где a , b , c не зависят от давления и являются параметрами вещества, $\rho = N/N_0$ — плотность газа в амага, $N_0 = 2,7 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ — число Лошмидта. Согласно (16), (8) и (17), в отсутствие насыщения ($G \ll 1$)

$$\Delta\omega = 2/T_2 = 2(\rho^2 + \rho_0^2)/(a\rho), \quad \rho_0 = k_0\sigma_v \sqrt{ab}, \quad (18)$$

где ρ_0 — плотность, при которой достигается минимум ширины линии («сужение» Дикке — см. кривую $G_0=0$ на рис. 3).

Введем нормированную плотность газа $u = \rho/\rho_0$. Тогда

$$T_1 = c/(u\rho_0), \quad T_2 = au[(1+u^2)\rho_0]^{-1}. \quad (19)$$

Стационарную интенсивность насыщения (12) можно теперь записать в следующем виде, явно выделив зависимость от давления газа:

$$I_0^2 = (1+u^2)I^2, \quad I^2 = \hbar c^2 M \omega_0 n_1 n_2 \rho_0^2 / (8\pi^2 (u')^2 a c). \quad (20)$$

Интенсивность I не зависит от давления и совпадает с I_0 при $u^2 \ll 1$. Параметр насыщения зависит от давления следующим образом:

$$G = G_0/(1+u^2), \quad G_0 = I_1 I_2 / I^2. \quad (21)$$

Подставляя выражение (19) для T_2 в (16), получим

$$\frac{\Delta\omega}{2k_0\sigma_v \sqrt{a}} = (u + u^{-1}) \begin{cases} \sqrt{G/y_0 - 1} & \text{при } G \leq 1, \\ \sqrt{G/y_1 - 1} & \text{при } G \geq 1, \end{cases} \quad (22)$$

где $\alpha = \tau_v/T_c = b/a$ — параметр исследуемых молекул,

$$y_0 = \kappa - \sqrt{\kappa^2 - 1}, \quad \kappa = G + 1 + G^{-1}, \quad y_1 = 3 - \sqrt{8}. \quad (23)$$

Заметим, что полученные формулы справедливы при условии (9), которое приводит к следующему ограничению на плотность газа: $u^2 \gg \alpha$. Например, в случае водорода ($\alpha = 0,02$) получаем отсюда $u \geq 0,3$.

Зависимость ширины линии от давления газа, построенная по формулам (21) — (23), показана на рис. 3. При $G_0 = 0$, когда насыщение отсутствует, зависимость $\Delta\omega(u)$ имеет хорошо известный вид (18): линия сужается в области давлений $u < 1$ и расширяется при $u > 1$. Сужение обусловлено подавлением доплеровской дефазировки в результате локализации молекул в области пространства, малой по сравнению с длиной световой волны (эффект Дикке); последующий рост $\Delta\omega$ обусловлен столкновительным механизмом. Как видно из рис. 2, 3, насыщение перехода приводит к дополнительному уширению спектральной линии. Это уширение наиболее существенно при небольших плотностях ($u < 1$), когда интенсивность насыщения I_0 минимальна. При высоких давлениях ($u \gg 1$), напротив, дополнительное уширение незначительно, что связано с возрастанием I_0 и уменьшением параметра насыщения G (см. формулы (20), (21)). В целом можно констатировать, что насыщение перехода подчеркивает эффект столкновительного сужения: диапазон давлений, в котором имеет место сужение, увеличивается, а относительная величина сужения возрастает. Минимум ширины линии смещается в область высоких давлений газа.

Численные оценки. Выразим интенсивность насыщения через постоянную усиления ВКР g . В пределе однородного уширения [10]

$$g = 4\pi^2 N (\alpha')^2 T_2 \omega_c / (M \omega_0 c^2 n_1 n_2) = (T_2 / T_c) g_\infty.$$

Отсюда

$$I_0 = \sqrt{\hbar N_0 \rho \omega_c / (2 T_1 g)}, \quad I = \rho_0 \sqrt{\hbar N_0 \omega_c / (2 g_\infty c)},$$

где $\rho = (p/p_0)$ (T_0/T) — плотность газа в амаге, p — давление, $p_0 = 1$ атм, $T_0 = 273$ К. Для перехода $Q_{01}(1)$ молекулярного водорода при

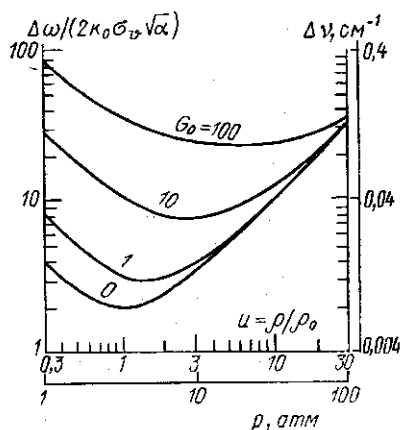


Рис. 3. Ширина спектра АСКР в зависимости от плотности газа в условиях насыщения. Численные значения для перехода $Q_{01}(1)$ водорода показаны на дополнительных осях

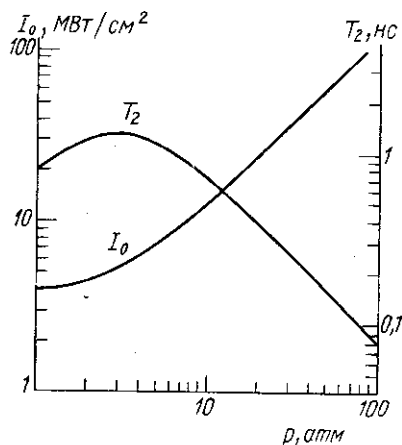


Рис. 4. Интенсивность насыщения и время дефазировки в зависимости от давления для перехода $Q_{01}(1)$ молекулярного водорода, $T = 300$ К

$T = 300$ К значения параметров таковы [10]: $k_0 = 2\pi\nu_0 = 2,61 \cdot 10^4$ см $^{-1}$; $\sigma_v = 1,1 \cdot 10^5$ см/с; $a = 7,1$ нс; $b = 0,13$ нс; $c = 0,96$ мс; $\rho_0 = 2,65$ амага, $g_\infty = 1,5$ см/ГВт при $\lambda_n = 0,69$ мкм ($\omega_c = 1,93 \cdot 10^{15}$ с $^{-1}$), $I = 3,65$ МВт/см 2 . На рис. 3 и 4 показаны ширина линии $Q_{01}(1)$, интенсивность насыщения и время дефазировки в зависимости от давления водорода. Видно, что в области давлений до 100 атм стационарная интенсивность насыщения не превышает 10^8 Вт/см 2 . Такие интенсивности вполне доступны в современных лазерных экспериментах. Следует отметить, однако, что достижение стационарного режима затруднительно, поскольку время T_1 (10^{-5} с при $p = 100$ атм) значительно превышает длительность лазерного импульса (10^{-8} с). Более доступно стационарное насыщение вращательного перехода $S_0(1)$ в H_2 ($T_1 = 10^{-7}$ с при $p = 0,4$ атм [5]), однако и в этом случае переходные процессы могут играть заметную роль. Отметим в этой связи работы [3] и [15], в которых выполнены расчеты нестационарного сигнала АСКР в условиях насыщения.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] Козлов Д. Н., Смирнов В. В., Фабелинский В. И. ДАН СССР, 1979, 246, с. 304. [2] Ouyang A., Eshrick P. Opt. Lett., 1980, 5, p. 421.
- [3] Duncan M. D. et al. Chem. Phys. Lett., 1981, 80, p. 253. [4] Бродниковский А. М., Гладков С. М., Коротеев Н. И. Препринт № 16/1981 физ. фак. МГУ. М., 1981. [5] Бродниковский А. М. и др. Опт. и спектр., 1983, 54, с. 385.
- [6] Задков В. Н. и др. В кн.: Совещание по спектроскопии КР (тезисы докладов). Красноярск, 1983, с. 50. [7] Wilson-Gordon A. D., Klimovsky-Barid R., Friedman H. Phys. Rev. A, 1982, 25, p. 1580. [8] Agarwal G. S., Singh S.

Phys. Rev. A, 1982, 25, p. 3195. [9] Ахманов С. А., Коротеев Н. И. Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света. М.: Наука, 1981. [10] Никитин С. Ю. Канд. дис. Физ. фак. МГУ, 1983. [11] Дьяков Ю. Е. Письма в ЖЭТФ, 1983, 37, с. 14. [12] Дьяков Ю. Е. и др. ЖЭТФ, 1983, 84, с. 2013. [13] Roy R. et al. Chem. Phys. Lett., 1982, 93, p. 603. [14] Ахманов С. А., Дьяков Ю. Е., Чиркин А. С. Введение в статистическую радиофизику и оптику. М.: Наука, 1981. [15] Wilson-Gordon A. D., Friedman H. Chem. Phys. Lett., 1982, 89, p. 273.

Поступила в редакцию
09.11.83

ВЕСТН. МОСК. УН-ТА. СЕР. 3. ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ, 1984, т. 25, № 5

УДК 530.12:531.51

УРАВНЕНИЕ ДИРАКА В 5- И 6-МЕРНЫХ ИСКРИВЛЕННЫХ ПРОСТРАНСТВЕННО-ВРЕМЕННЫХ МНОГООБРАЗИЯХ

Ю. С. Владимиров, А. Д. Попов

(кафедра теоретической физики)

В развиваемой нами программе построения единой многомерной теории гравитации, электромагнетизма и электрически заряженной материи [1, 2] существенным оказался переход от 5-мерных вариантов к 6-мерной теории, обладающей сигнатурой $(+ - - - - +)$. Ранее нами уже отмечался ряд факторов, диктующих этот переход [1, 3]. В частности, ими являются: необходимость перенормировки масс, устранение фундаментального скалярного поля из уравнений движения, соображения 6-оптики, рассмотрение 15-параметрической группы конформных преобразований и др. В своих предыдущих работах мы ограничивались рассмотрением скалярной заряженной материи, что можно понимать как предварительное, грубое описание реальности. Следующим необходимым этапом является изучение уравнений спинорных частиц в многомерном ($n > 4$) искривленном пространственно-временном многообразии. В данной работе показано, что анализ многомерных уравнений Дирака, во-первых, усиливает старые доводы в пользу перехода к 6-мерному многообразию с указанной сигнатурой и, во-вторых, выявляет ряд новых факторов.

1. Прежде всего напомним характерные черты теории фермионов в 4-мерном искривленном пространстве-времени. Уравнения Дирака в пространстве-времени общей теории относительности можно записать по меньшей мере с помощью двух методов.

В первом методе используется *тетрадный формализм*, когда рассматриваются волновые функции ψ как компоненты биспинора в касательном (локальном) пространстве-времени Минковского. В этом случае уравнения Дирака имеют вид [4]

$$\left(-i\gamma^\mu \frac{\partial}{\partial x^\mu} + \frac{e}{\hbar c} A_\mu \gamma^\mu + \frac{i}{4} \Delta_{\mu\nu\sigma} \gamma^\mu \gamma^\nu \gamma^\sigma + \frac{mc}{\hbar} \right) \psi = 0, \quad (1)$$

где $\gamma^\mu = g^\mu(\alpha) \gamma(\alpha)$, $g^\mu(\alpha)$ — компоненты тетрады, $\Delta_{\mu\nu\sigma}$ — коэффициенты вращения Риччи, m — наблюдаемая масса покоя частиц; греческие индексы принимают значения: 0, 1, 2, 3. Здесь $\gamma(\alpha)$ — известные постоянные матрицы Дирака, удовлетворяющие соотношению $\gamma(\alpha)\gamma(\beta) + \gamma(\beta)\gamma(\alpha) = 2g(\alpha\beta)I_4$, $g(\alpha\beta)$ — метрический тензор пространства-времени Минковского, I_4 — единичная 4-рядная матрица.

Другой метод состоит в использовании *γ -матричной формулировки* общей теории относительности [5]. Это означает, что в качестве пере-