

зация, соответствующая переходу всей энергии взаимодействия электронного потока с СВЧ полем в нагрев электронов. Заметим, что указанные условия справедливы лишь в случае малых возмущений, когда изменения энергии электронов порядка и меньше их средней тепловой энергии. Наши эксперименты соответствовали этому ограничению.

На диаграмму рис. 3, б нанесены точки, отражающие установленные экспериментально условия начала термализации на частотах 0,6 ГГц (A_2) и 1 ГГц (A_1) (см. рис. 3, а), а также условия полной термализации, полученные для частоты 1 ГГц (точка В). Некоторое отклонение экспериментальных данных от теоретических оценок объясняется тем, что в расчетах фигурировала плазменная частота неограниченной среды, тогда как в реальных условиях плазменная частота оказывается редуцированной. В целом же эксперимент демонстрирует соответствие условиям, определенным теоретически, и приведенные здесь данные можно считать первым прямым экспериментальным подтверждением представлений о преобразовании СВЧ возмущений электронного потока в его нагрев.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] Девятков М. Н. Радиотехн. и электроника, 1984, 29, № 3, с. 543. [2] Пирогов Ю. А. Вестн. Моск. ун-та. Физ. Астрон., 1980, 21, № 5, с. 86. [3] Девятков М. Н., Овчинникова Г. И. Радиотехн. и электроника, 1977, 22, № 6, с. 1239. [4] Иви Г. Проблемы современной физики, 1956, № 6, с. 5. [5] Левин Б. Р. Теория случайных процессов и ее применение в радиотехнике. М.: Сов. радио, 1957. [6] Царев Б. М. Контактная разность потенциалов и ее влияние на работу электровакуумных приборов. М.: ГИТТЛ, 1955.

Поступила в редакцию
13.12.83

ВЕСТН. МОСК. УН-ТА. СЕР. 3. ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ, 1984, т. 25, № 6

УДК 535.621.375

РОЛЬ РАЗЛИЧНЫХ МЕХАНИЗМОВ РЕЛАКСАЦИИ В НЕЛИНЕЙНОЙ СПЕКТРОСКОПИИ КОНДЕНСИРОВАННЫХ СРЕД

В. М. Петникова, С. А. Плешанов, В. В. Шувалов

(кафедра общей физики и волновых процессов)

1. Развитие нелинейной спектроскопии конденсированных сред привело к появлению целого ряда новых экспериментальных методов [1—4]. В основу каждого из них положена некоторая модель нелинейной восприимчивости, базирующаяся на упрощенной системе материальных уравнений. Полученные в ходе эксперимента данные сравниваются с исходной моделью, и, таким образом, проводится идентификация различных механизмов релаксации.

Объективная трудность подобных исследований состоит в том, что в каждом конкретном эксперименте выделение одного из многих механизмов релаксации разной природы, как правило, невозможно. Следствием этого является некоторый разрыв между теорией и экспериментом. В теоретических исследованиях обычно разрабатываются самые общие модели [5], которые малоприменимы в конкретных экспериментальных ситуациях. Экспериментальные же данные часто без должных оснований сопоставляются с простейшими моделями того или иного выделенного процесса.

Целью настоящей работы являлось построение более полной модели нелинейной восприимчивости, учитывающей сразу несколько ти-

пов релаксационных процессов. Такая модель может позволить выявить сравнительную роль каждого механизма в конкретном эксперименте и разработать серию исследований по их идентификации.

2. В работе дается анализ методов нелинейной спектроскопии, использующих резонансные параметрические взаимодействия на однофотонных электронных переходах. При воздействии на вещество трех полей с частотами $\omega_{1,2,3}$, близкими к резонансной частоте перехода ω_0 , генерируется четвертая волна частоты $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3$. Исследование зависимости эффективности этого процесса от различных параметров позволяет судить о механизмах релаксаций в среде [1—4].

Нелинейный отклик среды определяется различными типами неоднородностей и присущими им механизмами релаксации. Это в первую очередь спектральное неоднородное уширение электронного перехода, которое можно описать моделью двухуровневых подсистем. Предполагается, что связь этих подсистем осуществляется в процессе кросс-релаксации, не изменяющем электронного состояния [2]. Таким образом, у вещества предполагается наличие зонной структуры. Процесс энергетической релаксации по зоне описывается интегралом столкновений.

Взаимодействие поля с веществом обладает и поляризационной неоднородностью, обусловленной анизотропией квантовых переходов и векторным характером излучения. Для его описания необходимо учитывать отклонения в распределении ориентации наведенных дипольных моментов от равновесного равномерного распределения [3].

Имеется также механизм, нарушающий равновесное равномерное распределение возбужденных частиц по пространству — пространственная неоднородность. Он обусловлен интерференцией взаимодействующих полей [1, 6].

Далее процессы релаксации предполагаются марковскими, а отклонения от состояния равновесия малыми [5]. Такое предположение может быть оправданно в случае достаточно длинных световых импульсов, высокой равновесной населенности верхнего уровня, слабого возбуждения. Отклонение релаксационных процессов от марковских существенно изменяет характер нелинейного отклика среды [7, 8].

Феноменологический учет перечисленных процессов релаксации приводит к следующим кинетическим уравнениям для матрицы плотности:

$$\begin{aligned} \dot{n} = & -\frac{2i}{\hbar} (\rho V^* - V \rho^*) - \gamma_1 (n - n_0) - \gamma_3 n + g(\omega_0) \gamma_3 \int_0^\infty n(\omega'_0) d\omega'_0 + \\ & + D \nabla_r^2 n + \frac{1}{6} \gamma_4 \nabla_\theta^2 n, \end{aligned} \quad (1)$$

$$\dot{\rho} = -\frac{i}{\hbar} V n - \rho (\gamma_2 + i\omega_0), \quad (2)$$

$$V = -\frac{1}{2} \mu \Sigma (E_i e^{-i\omega_i t + i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}} + \text{к. с.}), \quad n_0 = \frac{1}{4\pi} N(\omega_0).$$

$$\nabla_r^2 = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2}, \quad \nabla_\theta^2 = \frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial}{\partial \theta} \right) + \frac{1}{\sin^2 \theta} \frac{\partial^2}{\partial \varphi^2}.$$

Здесь $n(t, \omega_0, \mathbf{r}, \theta)$ — разность населенностей двухуровневой подсистемы с частотой перехода ω_0 ; \mathbf{r} — радиус-вектор; $\theta = \theta(\theta, \varphi)$, где θ — по-

лярный, а φ — азимутальный угол дипольного момента μ ; $N_0(\omega_0)$ — равновесная разность населенностей в отсутствие поля; E_i и k_i — амплитуда и волновой вектор поля на частоте ω_i ; $g(\omega_0)$ — равновесное распределение двухуровневых подсистем по зоне.

При выводе кинетических уравнений (1) — (2) предположено, что все процессы релаксации независимы. Распад ориентационного и пространственного распределений описывается членами диффузионного типа [3, 6].

В материальные уравнения входят 6 характерных времен. γ_1^{-1} и γ_2^{-1} — времена продольной и поперечной релаксации. Скорость внутрizonного энергообмена определяется временем кросс-релаксации γ_3^{-1} . Распад ориентационного и пространственного распределений характеризуется величиной γ_4^{-1} и коэффициентом пространственной диффузии D . Полуширина функции $g(\omega_0)$ определяет эффективную спектральную ширину зоны $\Delta\omega_0$. Мы будем полагать, что она очень велика:

$$\Delta\omega_0 \gg \gamma_{1-4}, \quad |\omega_i - \omega_j|; \quad i, j = 1, 2, 3.$$

3. Решение системы материальных уравнений (1) — (2) относительно фурье-компонент n и ρ проводилось в приближении вращающейся волны.

Искомая составляющая нелинейной поляризации

$$P_3(\omega_4, k_4) = \int_0^\infty d\omega_0 \int d\theta \mu \rho_3(\omega_4, k_4) \quad (3)$$

определяется усредненным по θ и проинтегрированным по ширине зоны решением (2) в третьем приближении теории возмущений. В свою очередь, $\rho_3(\omega_4, k_4)$ выражается через соответствующие фурье-компоненты разности населенностей во втором приближении:

$$\rho_3(\omega_4, k_4) = \frac{i}{2\hbar} \sum_{i \neq j=1,2} \frac{\mu E_i n_2(\omega_j - \omega_3, k_j - k_3)}{\gamma_2 + i(\omega_0 - \omega_1 - \omega_2 + \omega_3)}$$

Таким образом, для расчета амплитуды волны нелинейной поляризации (4) достаточно найти величину

$$M = \int \mu_\alpha \mu_\beta n_2(\omega_j - \omega_3, k_j - k_3) d\theta; \quad \alpha, \beta = x, y, z; \quad j = 1, 2.$$

Уравнение для M может быть получено усреднением по θ решения уравнения (1) во втором приближении. Аналогичная процедура проводится при вычислении $\int n_2(\omega_j - \omega_3, k_j - k_3) d\theta$. Как и в [2], вторым этапом расчета является почленное интегрирование уравнений по ширине зоны.

Искомая стационарная поляризация (3) определяется следующим выражением:

$$P_{3\alpha}(\omega_4, k_4) = -i \frac{\mu^4 N}{2\hbar^2 \gamma_2^*} \sum_{\substack{i \neq j=1,2 \\ \beta, \xi, \eta = x, y, z}} \frac{E_{i\beta} E_{j\xi} E_{3\eta}^*}{\gamma_1 + \gamma_3 + \gamma_4 + \gamma_{5j} - i\Delta\omega_j} \times \\ \times \left\{ \frac{1}{2\gamma_2 - i(\omega_1 + \omega_2 - 2\omega_3)} \left(Y_{\alpha\beta\xi\eta} + \frac{\gamma_4}{\gamma_1 + \gamma_3 + \gamma_{5j} - i\Delta\omega_j} Y_{\alpha\beta} Y_{\xi\eta} \right) + \right. \\ \left. + \frac{\gamma_3}{\gamma_2^*} \left[\frac{1}{\gamma_1 + \gamma_4 + \gamma_{5j} - i\Delta\omega_j} \left(Y_{\alpha\beta\xi\eta} + \frac{\gamma_4}{\gamma_1 + \gamma_{5j} - i\Delta\omega_j} Y_{\alpha\beta} Y_{\xi\eta} \right) + \right. \right.$$

$$\left. + \frac{\gamma_4}{(\gamma_1 + \gamma_{5j} - i\Delta\omega_j)(\gamma_1 + \gamma_3 + \gamma_{5j} - i\Delta\omega_j)} Y_{\alpha\beta} Y_{\xi\eta} \right\}; \quad (4)$$

$$Y_{\alpha\beta} = \frac{1}{4\pi\mu^2} \int \mu_{\alpha}\mu_{\beta} d\theta; \quad Y_{\alpha\beta\xi\eta} = \frac{1}{4\pi\mu^4} \int \mu_{\alpha}\mu_{\beta}\mu_{\xi}\mu_{\eta} d\theta; \quad \Delta\omega_j = \omega_j - \omega_3.$$

Здесь $\gamma_2^* \sim \Delta\omega_0$ — неоднородная ширина зоны; $\gamma_{5j} = D|k_j - k_3|^2$ — обратное время пространственной диффузии; индексы $\alpha, \beta, \xi, \eta = x, y, z$ обозначают проекции на оси координат; N — число частиц. При выводе (4) взаимодействующие волны считались плоскими и заданными.

Зависимость нелинейной поляризации и отклика среды от времени, необходимая в нестационарных задачах, определяется преобразованием Фурье от выражения (4):

$$P_{3\alpha}(t) = \sum_{\substack{i \neq j=1,2 \\ \beta, \xi, \eta = x, y, z}} \int_0^{\infty} d\tau_j \int_0^{\tau_j} d\tau_i \chi_{\alpha\beta\xi\eta}^{(3)}(\tau_i, \tau_j) E_{i\beta}(t - \tau_i) E_{j\xi}(t - \tau_j) E_{3\eta}^*(t - \tau_i - \tau_j), \quad (5)$$

$$\chi_{\alpha\beta\xi\eta}^{(3)}(\tau_i, \tau_j) = -\frac{i\mu^4 N}{2\hbar^3 \gamma_2^*} e^{-(\tau_j - \tau_i)(\gamma_1 + \gamma_3 + \gamma_{5j}) - 2\tau_i \gamma_2} \times \\ \times \Psi_{\alpha\beta\xi\eta}(\tau_j - \tau_i) \left[1 + \frac{\delta(\tau_i)}{\gamma_2^*} (e^{\tau_i \gamma_2} - 1) \right], \quad (6)$$

$$\Psi_{\alpha\beta\xi\eta}(\tau) = Y_{\alpha\beta\xi\eta} e^{-\tau \gamma_2} + Y_{\alpha\beta} Y_{\xi\eta} (1 - e^{-\tau \gamma_2}). \quad (7)$$

В дальнейшем эффективность параметрического процесса, проходящего в тонком слое вещества, считается малой, а амплитуда генерируемого поля — пропорциональной амплитуде волны нелинейной поляризации (4), (5).

4. Анализ полученных результатов подтверждает существование трудностей в идентификации времен релаксации. Тем не менее оказывается возможным построение единого, универсального измерительно-то комплекса, обеспечивающего решение поставленной задачи.

В последние годы наибольший интерес вызывает исследование процессов релаксации в полупроводниках и растворах органических красителей. Для этих материалов типично наличие двух существенно различных групп быстрых и медленных механизмов релаксации:

$$\gamma_2, \gamma_3, \gamma_4 \gg \gamma_1, \gamma_{5j} \quad (8)$$

(полупроводники),

$$\gamma_2, \gamma_3 \gg \gamma_1, \gamma_4, \gamma_{5j} \quad (9)$$

(красители).

Причем для быстрых процессов характерны времена порядка 0,1—1 пс [1, 2], а для медленных — 0,1—1 нс [3, 6].

Можно считать, что в настоящее время существуют два основных метода определения времен релаксации. Для измерения медленных времен традиционно применяется метод пробного пучка [1, 3, 6]. Этот метод предполагает использование более коротких, чем времена релаксации, импульсов света. Поэтому для исследования быстро протекающих процессов более перспективным оказывается квазистационарное относительно коротких времен параметрическое взаимодействие полей с разными частотами (бигармоническая накачка) [2]. Однако и в этом случае для устранения тепловых эффектов необходимы достаточно короткие импульсы света длительностью $\tau_{\text{имп}} \sim 10$ пс.

Таким образом, в экспериментальном комплексе для измерения и быстрых, и медленных времен релаксации оптимальным является использование двух перестраиваемых по частоте импульсных источников излучения с промежуточной длительностью $\tau_{\text{имп}} \sim 10$ пс. Один из них обеспечивает работу комплекса в нужном спектральном диапазоне, при перестройке второго производится измерение коротких времен. Методика их измерения практически полностью аналогична описанной в [2]. Однако в этой работе была использована упрощенная модель среды, не учитывающая ориентационной и пространственной неоднородностей.

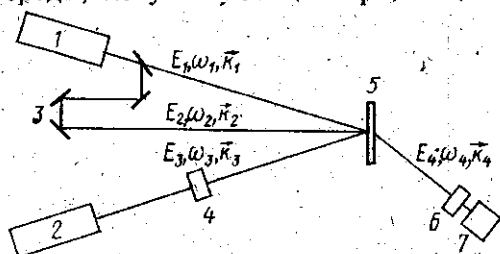


Схема измерительного комплекса: 1, 2 — источники излучения; 3 — линия задержки; 4 — вращатель поляризации; 5 — исследуемый объект; 6 — система пространственной поляризационной и спектральной фильтрации; 7 — фотоприемник

родностей. Это не позволило авторам объяснить зависимость полученных результатов от поляризаций взаимодействующих волн. Хотя именно эта зависимость и дает возможность измерить время ориентационной релаксации.

5. Схема измерительного комплекса представлена на рисунке. Дальнейшее изложение проводится применительно к растворам органических красителей. Отличия в методике идентификации процессов релаксации в полупроводниках не носят принципиального характера.

Измерения группы медленных времен ($\gamma_{1,4,5}^{-1}$) основаны на модифицированной технике пробного импульса. Совмещенные во времени поля $E_{1,3}$ формируют в исследуемой среде дифракционную решетку, которая зондируется пробным полем E_2 , задержанным на время $\tau \sim \gamma_{\text{медл}}^{-1} \gg \tau_{\text{имп}}$ относительно полей $E_{1,3}$. Выражение для величины нелинейного параметрического отклика при этом существенно упрощается. Исключено формирование дифракционной решетки непересекающимися во времени полями $E_{2,3}$ (члены с $i=1, j=2$ в выражении (6)). Зануляются составляющие с быстрым экспоненциальным распадом. Таким образом,

$$\chi_{\alpha\beta\xi\eta}^{(3)} = \frac{i\mu^4 N}{2\hbar^3 (\gamma_2^*)^2} e^{-\tau(\gamma_1 + \gamma_5)} \Psi_{\alpha\beta\xi\eta}(\tau).$$

В изотропной среде в случае, когда вектор поляризации E_3 повернут на угол $\varphi_0 = \arctg \sqrt{2}$ по отношению к полям $E_{1,2}$, время ориентационной релаксации не сказывается на величине нелинейного отклика

$$P_3(\varphi_0, \tau) \sim e^{-\tau(\gamma_1 + \gamma_5)}.$$

В растворах органических красителей $\gamma_5 \ll \gamma_1$ и γ_5 можно пренебречь [9]. В полупроводниках разделение процессов продольной релаксации и пространственной диффузии проводится за счет изменения периода пространственной решетки Λ [1]:

$$\gamma_5 \sim \Lambda^2.$$

При скрещенных векторах поляризации E_3 и $E_{1,2}$

$$P_3\left(\frac{\pi}{2}, \tau\right) \sim e^{-\tau(\gamma_1 + \gamma_5 + \gamma_5)}.$$

Измерения группы быстрых времен ($\gamma_{2,3}^{-1}$) проводятся при $\tau=0$. Вектор поляризации поля по-прежнему повернут на угол φ_0 по отношению к $E_{1,2}$. Перестройка частоты ω_3 относительно $\omega_{1,2}$ приводит к спаду нелинейного отклика:

$$P_s(\varphi_0, \Delta\omega) \sim (\gamma_1 + \gamma_3 + \gamma_5 - i\Delta\omega)^{-1} \left[(\gamma_2 - i\Delta\omega)^{-1} + \frac{2\gamma_3}{\gamma_2} (\gamma_1 + \gamma_5 - i\Delta\omega)^{-1} \right].$$

Численное определение оставшихся неизвестными времен релаксации $\gamma_{2,3}^{-1}$ проводится аналогично методике работы [2].

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] Smirl A. L. Dynamics of high-density transient electron-hole plasmas in germanium. Preprint. Academic Press, N. Y., 1983. Boggess T. F., Smirl A. L., Wherrett B. S. Opt. Comm., 1982, 43, p. 128. Linde J. R., Moss S. C., Smirl A. L. Phys. Rev., 1979, B20, p. 2401. [2] Yajima T., Souma H. Phys. Rev., 1978, A17, p. 309. Yajima T., Taira Y. J. Phys. Soc. Japan, 1979, 47, p. 1620. [3] Lessing H. E., Von Jena A. Chem. Phys. Lett., 1976, 42, p. 213. [4] Васильева М. А., Малышев В. И., Масалов А. В. Кр. сообщ. по физике ФИАН СССР, 1980, № 1, с. 35. [5] Апанасевич П. А. Основы теории взаимодействия света с веществом. Минск, 1977. [6] Винецкий В. Л., Кухтарев Н. В., Соскин М. С. Квант. электроника, 1977, 4, с. 420. [7] Файнберг Б. Д. Опт. и спектр., 1983, 55, с. 1098. [8] Aihara M. Phys. Rev., 1982, B25, p. 53. [9] Ермолаев В. Л. и др. Безызлучательный перенос энергии электронного возбуждения. Л., 1977.

Поступила в редакцию
15.12.83

ВЕСТН. МОСК. УН-ТА. СЕР. 3. ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ, 1984, т. 25, № 6

УДК 534.222.2

ЧАСТОТНО-ИЗБИРАТЕЛЬНОЕ ВОЗДЕЙСТВИЕ НА НЕЛИНЕЙНЫЕ ВОЛНЫ В АКУСТИЧЕСКОМ РЕЗОНАТОРЕ

В. Э. Гусев

(кафедра общей физики и волновых процессов)

В последние годы появилось новое направление в исследованиях возможностей подавить каскадные процессы перекачки энергии вверх по спектру, которые приводят к эффективному поглощению интенсивных волн в нелинейных средах без дисперсии. В первую очередь речь идет об изучении эволюции нелинейного звука в среде с резонансным поглотителем [1—3]. Установлено, что в простейшем случае дополнительное поглощение второй гармоники приводит к увеличению длины образования разрыва в акустической волне [3]. В более общем случае путем селективного поглощения ряда комбинационных частот можно повысить эффективность избранного параметрического процесса. В работе [3] развит математический аппарат для расчета волновых взаимодействий в средах при наличии распределенного поглотителя. Однако получить точное аналитическое описание эволюции волны в свободном полупространстве не удается. Кроме этого, остается открытой проблема практического создания нелинейных сред с заданными диссипативно-дисперсионными свойствами.

В настоящей работе изучаются возможности управления процессом растекания энергии по спектру при установлении нелинейных колебаний акустического резонатора. Показано, что при определенных условиях любое пространственно-локализованное воздействие на спектр акустической волны, осуществляемое в резонаторе, играет та-