ОПТИКА И СПЕКТРОСКОПИЯ

УДК 621.373.826

КООПЕРАТИВНОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА

А. А. Бартеньев, Ю. А. Ильинский, А. С. Мкоян

(кафедра квантовой радиофизики)

В рамках квантового подхода получена система уравнений, описывающая динамику кооперативного комбинационного рассеяния света; численными методами исследовано влияние на этот эффект релаксации дипольного момента и истощения накачки.

1. **Введение.** Процесс кооперативного комбинационного рассеяния (ККР) света во многом похож на сверхизлучение Дикке [1]. В системе первоначально нескоррелированных атомов, благодаря самонаведению межатомных корреляций в процессе рассеяния, происходит комбинационное рассеяние на частотах стоксовой (в дальнейшем — символ «s») и антистоксовой (символ «a») компонент. Для этого эффекта характерны задержка импульсов рассеянных полей относительно фронта импульса накачки и осцилляция интенсивностей стоксова и антистоксова полей.

В работе [2] на основе полуклассического подхода проводилось исследование влияния на ККР наведения межатомных корреляций. В резонансном случае было получено выражение для интенсивности стоксова импульса и показано, что это решение аналогично соответствующему решению для сверхизлучения Дикке. Для нерезонансного случая показано, что разность населенностей является периодической функцией и импульсы стоксова и антистоксова полей излучаются на различных полупериодах ее изменения. В работе [3] на полуклассической основе обсуждался вопрос о влиянии истощения накачки на процесс ККР без учета антистоксовой компоненты. Эксперименты по наблюдению ККР описаны в работах [4, 5].

В данной работе получена система квантовых уравнений, описывающих динамику ККР с учетом релаксационных и индуцированных процессов. Исследовано влияние релаксации дипольного момента и истощения накачки на процесс ККР. Найдено условие, при котором истощение накачки становится существенным.

2. **Вывод квантовых уравнений.** Будем рассматривать комбинационное рассеяние в системе N двухуровневых атомов (с частотой перехода ω_0) при возбуждающем поле накачки с частотой $\omega_н$ и волновым вектором $\mathbf{k}_н$. Пусть система атомов занимает цилиндрический объем v с длиной L и радиусом поперечного сечения $R(L \gg R)$. Начальное состояние системы некогерентное и невозбужденное. Гамильтониан такой системы имеет вид

$$H = H_a + H_f + H_{int} = \sum_{j=1}^{N} \hbar\omega_0 R_{3j} + \sum_{\mathbf{k}} \hbar\omega_{\mathbf{k}} a_{\mathbf{k}}^{+} a_{\mathbf{k}} + \hbar\omega_н b^{+} b +$$

$$+ \left(\alpha_s, \sum_{j=1}^{N} \sum_{\mathbf{k}_s} g_{\mathbf{k}}\right) [a_{\mathbf{k}_s}^{+} b R_j^{+} \exp\{i(\mathbf{k}_н - \mathbf{k}_s)\mathbf{r}_j\} + \text{э. с.}] +$$

$$+ \left(\alpha_a, \sum_{j=1}^{N} \sum_{\mathbf{k}_a} g_{\mathbf{k}}\right) [a_{\mathbf{k}_a} b^{+} R_j^{+} \exp\{-i(\mathbf{k}_н - \mathbf{k}_a)\mathbf{r}_j\} + \text{э. с.}],$$

где

$$\alpha_{s,a}=\mathbf{r}_{ab}^{s,a}\mathscr{E}_{\text{н}};\quad \mathbf{g}_{\mathbf{k}}=(2\pi\hbar ck/v)^{1/2}\mathbf{e}_{\mathbf{k}};\quad \mathscr{E}_{\text{н}}=(2\pi\hbar\omega_{\text{н}}/v)^{1/2},$$

$$\mathbf{r}_{ab}^{s,a}=\frac{1}{\hbar}\sum_{p}\left[\frac{(\mathbf{d}_{bp},\ \mathbf{e}_{s,a})\,\mathbf{d}_{pa}}{\omega_{bp}+\omega_{\text{н}}}+\frac{(\mathbf{d}_{bp},\ \mathbf{e}_{\text{н}})\,\mathbf{d}_{pa}}{\omega_{bp}-\omega_{s,a}}\right],$$

$a_s(a_s^+)$, $a_a(a_a^+)$, $b(b^+)$ — операторы уничтожения (рождения) стоксовых, антистоксовых фотонов и фотонов накачки, $R_j^+(R_j^-)$ — оператор рождения (уничтожения) возбужденного состояния j-го атома, $\mathbf{e}_s$ (аналогично $\mathbf{e}_a$) — единичные векторы поляризации излучения. Атомные операторы R_j^+, R_j^- удовлетворяют следующим коммутационным соотношениям:

$$[R_j^+,\ R_m^-]=2\delta_{jm}R_{3j};\quad [R_{3m},\ R_j^\pm]=\pm\,\delta_{jm}R_j^\pm,$$

где R_{3j} — оператор полуразности населенностей рабочих уровней j-го атома.

Уравнение движения для матрицы плотности в представлении взаимодействия имеет вид

$$i\hbar\partial\tilde{\rho}/\partial t=[\tilde{H}_{\text{int}},\ \tilde{\rho}]+i\hbar\tilde{\gamma}\tilde{\rho},\tag{1}$$

где

$$\tilde{\rho}=\hat{U}^{-1}\rho\hat{U};\quad \tilde{H}_{\text{int}}=\hat{U}^{-1}H_{\text{int}}\hat{U};\quad \hat{U}=\exp\left[-\frac{i}{\hbar}(H_a+H_f)t\right].$$

Последнее слагаемое в (1) учитывает взаимодействие системы с термостатом. Гамильтониан взаимодействия $\tilde{H}_{\text{int}}$ выражается через не зависящие от времени шрёдингеровские операторы следующим образом:

$$\tilde{H}_{\text{int}}=\left(\alpha_s,\ \sum_{j=1}^{N}\sum_{\mathbf{k}_s}\mathbf{g}_{\mathbf{k}}(t)\right)[a_{\mathbf{k}_s}^+bR_j^+\exp\{i(\mathbf{k}_{\text{н}}-\mathbf{k}_s)\mathbf{r}_j\}+\text{э. с.}]+$$

$$+\left(\alpha_a,\ \sum_{j=1}^{N}\sum_{\mathbf{k}_a}\mathbf{g}_{\mathbf{k}}(t)\right)[a_{k_a}b^+R_j^+\exp\{-i(\mathbf{k}_{\text{н}}-\mathbf{k}_a)\mathbf{r}_j\}+\text{э. с.}],\tag{2}$$

где $\mathbf{g}_{\mathbf{k}}(t)=\mathbf{g}_{\mathbf{k}}\exp[i(\omega_{\mathbf{k}}-\omega_0)t]$.

Используя уравнение движения для матрицы плотности (1) с гамильтонианом взаимодействия (2), можно получить систему уравнений для определения числа фотонов в любой моде рассеянных полей и поля накачки. В данной работе мы не будем рассматривать модовую структуру рассеяния, считая задачу одномодовой, т. е. когда число Френеля $F=\pi R^2/(\lambda L)\sim 1$. Мы также не будем учитывать процессы параметрического взаимодействия рассеянных полей. В этих приближениях система уравнений для определения среднего числа фотонов стоксова — $n_s=\langle a_s^+a_s\rangle$, антистоксова — $n_a=\langle a_a^+a_a\rangle$ полей и поля накачки — $n_{\text{н}}=\langle b^+b\rangle$ имеет вид

$$\frac{dn_s}{dt}+\frac{n_s}{\tau}=F,$$

$$\frac{dn_a}{dt}+\frac{n_a}{\tau}=E,$$

$$\frac{dn_н}{dt}+\frac{n_н}{\tau}=-F-E+P(t),$$

$$\frac{dF}{dt}+\frac{1}{2}\left(\frac{1}{\tau}+\frac{1}{T_2}\right)F=\frac{2n_н}{T_0^2}\left[-2n_sR_3+S+S_0-\frac{n_s}{n_н}(S+S_0)\right], \quad (3)$$

$$\frac{dE}{dt}+\frac{1}{2}\left(\frac{1}{\tau}+\frac{1}{T_2}\right)E=\frac{2n_н}{T_0^2}\left[2n_aR_3+A+A_0-\frac{n_a}{n_н}(A+A_0)\right],$$

$$\frac{dS}{dt}+\frac{1}{T_2}S=-2R_3F,$$

$$\frac{dA}{dt}+\frac{1}{T_2}A=2R_3E,$$

$$\frac{dR_3}{dt}+\frac{N+R_3}{T_1}=F-E,$$

где

$$F=\frac{i(\alpha_s,\ \mathbf{g}_\mathbf{k}(t))}{\hbar}\sum_{j=1}^{N}\langle a_sb^+R_j^-\rangle\exp\{-i(\mathbf{k}_н-\mathbf{k}_s)\mathbf{r}_j\}+\text{э. с.},$$

$$E=\frac{i(\alpha_a,\ \mathbf{g}_\mathbf{k}(t))}{\hbar}\sum_{j=1}^{N}\langle a_ab^+R_j^+\rangle\exp\{-i(\mathbf{k}_н-\mathbf{k}_a)\mathbf{r}_j\}+\text{э. с.},$$

$$S=\sum_{j=1}^{N}\sum_{m\neq j}\langle R_j^-R_m^+\rangle\exp\{i(\mathbf{k}_н-\mathbf{k}_s)(\mathbf{r}_m-\mathbf{r}_j)\},$$

$$A=\sum_{j=1}^{N}\sum_{m\neq j}\langle R_j^+R_m^-\rangle\exp\{i(\mathbf{k}_н-\mathbf{k}_a)(\mathbf{r}_m-\mathbf{r}_j)\},\quad \frac{1}{T_0^2}=\left|\frac{\alpha_{s(a)},\ \mathbf{g}_\mathbf{k}}{\hbar}\right|^2,$$

$\tau=(c/L+c/L_0)^{-1}$ — время жизни фотона в активной области (L_0 — длина поглощения), T_1 и T_2 — времена продольной и поперечной релаксации, $R_3=\sum_{j=1}^{N}\langle R_{3j}\rangle$ — полуразность населенностей рабочих уровней, $P(t)$ — число фотонов накачки, падающих на систему атомов за единицу времени, $S_0=N/2-R_3$ и $A_0=N/2+R_3$ — населенности нижнего и верхнего уровней, определяющие интенсивность спонтанного рассеяния.

В этих уравнениях члены n_sR_3 и n_aR_3 соответствуют индуцированным процессам, а члены S и A — кооперативным. Повторяя те же рассуждения, что и в [1], можно показать, что в случае $\tau\ll T_2$ основной вклад в интенсивность рассеяния дают кооперативные процессы, а в случае $\tau\gg T_2$ — индуцированные.

3. **Решение системы уравнений и обсуждение.** В отличие от системы уравнений, полученной в работе [2] в полуклассическом приближении, система уравнений (3) позволяет учесть влияние релаксационных процессов и истощения накачки на процесс ККР. Оценим, при каких значениях P_0 становится существенным истощение накачки. Пусть падающая на образец накачка имеет форму ступеньки:

$$P(t)=\begin{cases}0; & t<0,\\ P_0; & t\geqslant 0.\end{cases} \quad (4)$$

Учитывая, что импульсы стоксова и антистоксова полей излучаются в разные моменты времени (излучаются в противофазе [2]), можно считать, что во время излучения стоксова поля $n_a=0$ и наоборот. В этом случае, как известно [1], может скоррелироваться эффективное число атомов $N(1-\tau_c/T_2)$, где τ_c — характерное время коллективных процессов (время излучения моноимпульса стоксова или антистоксова поля). Для того чтобы не учитывать истощение накачки, нужно, чтобы число фотонов накачки, падающих на образец за время излучения моноимпульса τ_c, было больше, чем число стоксовых или антистоксовых фотонов, излучающихся за это время:

$$n_н \approx \tau_c P_0 \gg n_s \approx N(1-\tau_c/T_2).$$

Отсюда получаем, что истощением можно пренебречь, когда

$$P_0 \gg \frac{N}{\tau_c}\left(1-\frac{\tau_c}{T_2}\right). \qquad (5)$$

Пусть выполняется условие (5) и импульс накачки имеет форму (4). При $\tau \ll \tau_c \ll T_2$ система уравнений (3) имеет интеграл, аналогичный интегралу Блоха в сверхизлучении Дикке [1], и ее решение совпадает с полученным в работе [2] периодическим решением. Рассмотрим влияние T_2 на процесс ККР света. Исследование было проведено численно

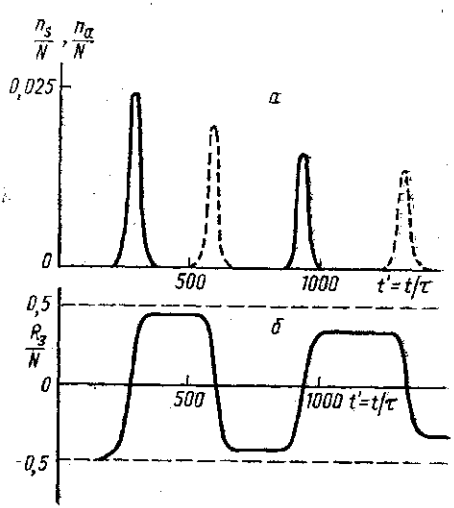

Рис. 1. Влияние релаксационных процессов на эффект ККР ($\tau=3\cdot10^{-11}$ с; $\tau_c=5\cdot10^{-9}$ с; $T_2=10^{-8}$ с; $T_1=5\cdot10^{-5}$ с; $N=10^{12}$): *а* — импульсы стоксова (сплошная линия) и антистоксова (пунктир) полей; *б* — полуразность населенностей уровней

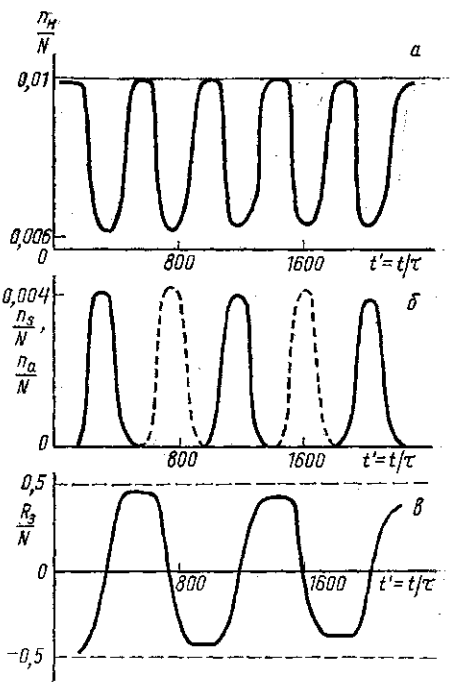

Рис. 2. Влияние истощения накачки на эффект ККР ($\tau=3\cdot10^{-11}$ с; $\tau_c=5\cdot10^{-9}$ с; $T_2=5\cdot10^{-7}$ с; $P_0=0{,}01\ N/\tau$): *а* — зависимость числа фотонов накачки в образце от времени; *б* — импульсы стоксова (сплошная линия) и антистоксова (пунктир) полей; *в* — полуразность населенностей уровней

при следующих значениях параметров: $\tau=3\cdot10^{-11}$ с, $\tau_c=5\cdot10^{-10}$ с, $N=10^{12}$, $T_1=5\cdot10^{-5}$ с (выбранные значения параметров близки к экспериментальным значениям для ККР на водороде). На рис. 1 приведены результаты численного решения системы уравнений (3) при $T_2=10^{-8}$ с. Расчет показал, что при уменьшении времени релаксации T_2 амплитуды стоксовых и антистоксовых импульсов уменьшаются со временем, увеличивается время задержки между импульсами. Разность населенностей уровней испытывает затухающие осцилляции с увеличивающимся периодом. Фактически при уменьшении времени релаксации дипольного момента в процессе ККР эффективно участвует все меньшее число атомов, что приводит к уменьшению амплитуды колебаний разностей населенностей уровней, а это в свою очередь приводит к увеличению периода осцилляций. При дальнейшем уменьшении T_2 затухание увеличивается, и при $T_2=0{,}5\tau_c$ импульсы ККР не образуются, разность населенностей атомов экспоненциально стремится к нулю.

Пусть теперь $T_2=5\cdot10^{-7}$ с и влияние релаксации можно не учитывать. Рассмотрим влияние процесса истощения накачки на эффект ККР. На рис. 2 приведены результаты численного решения системы уравнений (3) для $\tau=5\cdot10^{-11}$ с, $N=10^{12}$, $T_1=5\cdot10^{-5}$ с, $\tau_c=5\cdot10^{-9}$ с, $P_0=0{,}01\ N/\tau_c$.

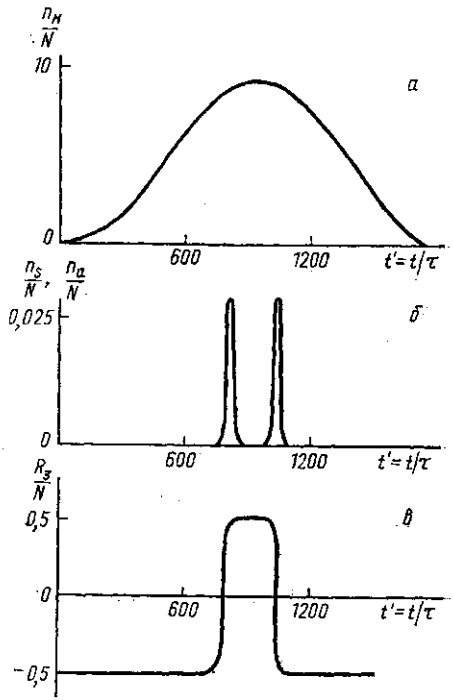

Рис. 3. Влияние формы импульса накачки на эффект ККР ($\tau=3\cdot10^{-11}$ с; $\tau_c=5\cdot10^{-9}$ с; $T_2=5\cdot10^{-7}$ с; $T_1=5\cdot10^{-5}$ с; $P_0=10\ N/\tau$): *а* — зависимость числа фотонов накачки в образце от времени; *б* — стоксов (первый) и антистоксов (второй) импульсы; *в* — полуразность населенностей уровней

С уменьшением P_0 длительности импульсов стоксова и антистоксова полей увеличиваются, амплитуды уменьшаются. В импульсе накачки появляются провалы. Это объясняется тем, что величина $\tau_c=(2n_нN\tau/T_0^2)^{-1}$, входящая в качестве коэффициента в правые части уравнений для F и E и характеризующая скорость кооперативного процесса, уменьшается в результате истощения накачки. Кроме того, при $n_{s(a)}/n_н\sim1$ начинают играть роль члены $(n_s/n_н)(S+S_0)$, $(n_a/n_н)(A+A_0)$, которые еще больше увеличивают длительность импульсов рассеянных полей и уменьшают их амплитуды.

Система уравнений (3) позволяет исследовать ККР света для импульса накачки произвольной формы. На рис. 3 приведены результаты численного решения для импульса

$$P(t)=\begin{cases}0; & t<0,\\ \dfrac{P_0}{2}\left[\cos\left(\dfrac{t-\pi\tau_0}{\tau_0}\right)+1\right]; & 0\leqslant t\leqslant 2\pi\tau_0,\\ 0; & t>2\pi\tau_0,\end{cases}$$

где $P_0=10N/\tau$, $\tau_0=1800\tau$, а значения остальных параметров совпадают со значениями для предыдущего случая. В результате изменения τ_c за счет временной зависимости импульса накачки значительно увеличивается время задержки t_0 появления первого стоксова импульса.

В заключение надо отметить, что в предлагаемой теории не учитывались параметрические процессы, которые играют немаловажную роль в формировании антистоксова излучения, особенно в случае $\tau_c \gtrsim \tau$, когда нельзя пренебрегать индуцированными процессами.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

[1] Андреев А. В., Емельянов В. И., Ильинский Ю. А.//УФН. 1980. 131. С. 653. [2] Раутиан С. Г., Черноброд Б. М.//ЖЭТФ. 1977. 72. С. 1342. [3] Емельянов В. И., Семиногов В. Н.//ЖЭТФ. 1979. 76. С. 34. [4] Пивцов В. С. и др.//ЖЭТФ. 1981. 81. С. 468. [5] Заболотский А. А., Раутиан С. Г., Сафонов В. П., Черноброд Б. М.//ЖЭТФ. 1984. 86. С. 1193.

Поступила в редакцию
25.02.87

ВЕСТН. МОСК. УН-ТА. СЕР. 3, ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ. 1988. Т. 29, № 4

УДК 539.194

ДИНАМИЧЕСКИЙ РАСЧЕТ ЛИНЕЙНОГО И НЕЛИНЕЙНОГО ОТКЛИКОВ РАСТВОРОВ ОРГАНИЧЕСКИХ КРАСИТЕЛЕЙ В АДИАБАТИЧЕСКОМ ПРИБЛИЖЕНИИ

Б. А. Гришанин, В. М. Петникова, В. В. Шувалов

(кафедра общей физики и волновых процессов)

Проведен квантовый расчет линейного и нелинейного откликов электронно-колебательного перехода сложной молекулы. Сравнение с экспериментальными данными показывает, что метод расчета имеет наглядную физическую интерпретацию.

1. **Введение.** Современная лазерная спектроскопия позволяет регистрировать релаксационные процессы субпикосекундной длительности [1—3]. В сложных органических молекулах столь быстрые процессы обусловлены тем, что отклик на поле формируется всей молекулой — существенна связь колебательной и электронной подсистем. Расчет отклика может быть проведен в рамках адиабатического приближения [4—9]. Гамильтониан электрон-колебательного взаимодействия представляется в виде степенного ряда по оператору рождения колебательного «фонона», его члены описывают сдвиг потенциальных ям в верхнем и нижнем электронных состояниях, частотный эффект и ангармонизм [6]. Именно эти факторы определяют отклик сложной молекулы. Основной сложностью расчета является разработка моделей колебательной подсистемы. Подробно изучены простейшие модели с одной нормальной модой или с вырожденными частотами [6]. Для сложных молекул используются стохастические методы [5, 10]. Их «слабым местом» оказывается возможный разрыв между стохастическими и внутримолекулярными параметрами.

Целью работы являлся непосредственный динамический расчет линейной и кубической поляризаций растворов органических красителей для однофотонных электронных переходов S_0—S_1, сравнение с экспериментальными результатами [1] и установление соответствия между внутримолекулярными и стохастическими параметрами.