# УСПЕХИ ФИЗИЧЕСКИХ НАУК

535 36

# вынужденное рассеяние света, обусловленное поглощением

### Б. Я. Зельдович, И. И. Собельман

#### 1. ВВЕДЕНИЕ

В 1967 г. Герман и Грей <sup>1</sup> рассмотрели новый тип вынужденного рассеяния света (ВР), качественно отличающийся от известных ранее. Механизм этого ВР специфичен для поглощающих сред и целиком обусловлен наличием поглощения.

Возникновение дополнительного BP в поглощающих средах (в дальнейшем мы будем пользоваться сокращенным обозначением BPП) проще всего пояснить следующим образом. Пусть в изотропной среде распространяются две волны: мощная волна лазера  $\mathbf{E}_L(\mathbf{r})$  ехр  $(-i\omega_L t)$  и волна «сигнала»  $\mathbf{E}_S(\mathbf{r})$  ехр  $(-i\omega_S t)$ . Если спектр поглощения достаточно широк и коэффициент поглощения  $\beta$  постоянен во всем интересующем нас интервале частот, то выделяемая в единице объема мощность  $Q(\mathbf{r}, t)$  пропорциональна мгновенному значению квадрата модуля суммарного поля  $\{E(\mathbf{r}, t)\}^2$ . Поэтому в выражении для  $Q(\mathbf{r}, t)$  содержится интерференционный член

$$Q'(\mathbf{r}, t) = (cn\beta/8\pi) \mathbf{E}_{S}(r) \mathbf{E}_{L}^{*}(\mathbf{r}) \exp(i\Omega t), \tag{1}$$

где n — показатель преломления,  $\Omega = \omega_L - \omega_S$ . С этим членом, очевидно, связано периодическое (с частотой  $\Omega$ ) изменение свойств среды, в том числе изменение диэлектрической проницаемости  $\varepsilon$ .

Не конкретизируя реальных процессов, ответственных за изменение  $\epsilon$  (ими могут быть тепловое расширение вещества, изменение заселенностей молекулярных уровней и т. п.— см. гл.  $\Pi$ ) и полагая для простоты, что поля  $\mathbf{E}_L$  (r),  $\mathbf{E}_S$  (r) — линейно поляризованные плоские волны:

$$\mathbf{E}_{\mathrm{L}}(\mathbf{r}) \propto \exp\left(i\mathbf{k}_{\mathrm{L}}\mathbf{r}\right), \quad \mathbf{E}_{\mathrm{S}}(\mathbf{r}) \propto \exp\left(i\mathbf{k}_{\mathrm{S}}\mathbf{r}\right),$$

занишем связь между  $\delta \epsilon$  и Q' в общем виде

$$\delta \varepsilon (\mathbf{r}, t) = \hat{L} \left( \frac{\partial}{\partial t}, \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \right) Q' (\mathbf{r}, t) =$$

$$= (cn\beta/8\pi) \exp (i\Omega t) \mathbf{E}_{S} (\mathbf{r}) \mathbf{E}_{L}^{*} (\mathbf{r}) L (i\Omega, i\mathbf{q}), \qquad (2)$$

где L — линейный оператор, определяемый свойствами вещества,  ${f q}={f k}_S-{f k}_L.$ 

В результате рассеяния лазерной волны на приращении от в векторе электрической индукции появляется дополнительное слагаемое

$$D' = \delta \epsilon \mathbf{E}_{T_i}(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_T t) =$$

$$= (cn\beta_{\ell}8\pi) (\mathbf{e}_{\mathbf{S}}\mathbf{e}_{\mathbf{L}}) \mathbf{e}_{\mathbf{L}} | \mathbf{E}_{\mathbf{L}}(\mathbf{r})|^{2} L(i\Omega, i\mathbf{q}) \mathbf{E}_{\mathbf{S}}(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_{\mathbf{L}}t + i\Omega t), \quad (3)$$

где  $e_L$ ,  $e_S$  — единичные векторы поляризации. Поскольку  $\omega_L$  —  $\Omega=\omega_S$ , правая часть (3) пропорциональна полю сигнала  $E_S$  (r) exp ( $-i\omega_S t$ ). Поэтому для компонент вектора полной индукции на частоте  $\omega_S$  имеем

$$(\mathbf{D}_S)_i = \sum_k \varepsilon_{ik}^{a\phi\phi} (\mathbf{E}_S)_k,$$
 (4)

где

$$\varepsilon_{ih}^{a\phi\phi} = \varepsilon_0 \delta_{ih} + (cn\beta/8\pi) |\mathbf{E}_L|^2 (\mathbf{e}_L \mathbf{e}_S) (\mathbf{e}_L)_i (\mathbf{e}_S)_h L (i\Omega, i\mathbf{q})$$
 (5)

и  $\varepsilon_0$  — диэлектрическая проницаемость среды без поля. Таким образом, распространение волны «сигнала» в присутствии лазерного поля может быть описано эффективной диэлектрической проницаемостью  $\varepsilon_{ik}^{9\Phi}$  из (5). Добавка к  $\varepsilon_0$  пропорциональна  $\beta | \mathbf{E}_L|^2$ , т. е. существенно связана с наличием поглощения и линейно возрастает с увеличением мощности лазерного поля. Дальше для простоты мы примем, что  $\mathbf{e}_L || \mathbf{e}_S$  и

$$\varepsilon^{3\phi\phi} = \varepsilon_0 + (cn\beta/8\pi) |\mathbf{E}_L|^2 L(i\Omega, i\mathbf{q}). \tag{6}$$

Как известно, мнимая часть диэлектрической проницаемости определяет диссипацию электромагнитной энергии в среде. Поскольку Im  $\varepsilon_0 = cn\beta/\omega$ , из (6) следует

$$\operatorname{Im} \varepsilon^{\circ \phi \phi} = (cn\beta/\omega) \left\{ 1 + (\omega/8\pi) \right\} \left[ \mathbf{E}_L \right]^2 \operatorname{Im} L \right\}. \tag{7}$$

Величина Im L может быть как положительной, так и отрицательной. В последнем случае второй член в (7) при малых интенсивностях  $|\mathbf{E}_L|^2$  приводит к частичной компенсации поглощения, а при возрастании  $|\mathbf{E}_L|^2$  может стать больше первого. При этом поглощение должно смениться усилением.

Для соответствующей пороговой интенсивности лазерного поля  $I_L^{\rm nop}=(cn/8\pi\hbar\omega)|\mathbf{E}_L|^2$  (квантов/см² сек) и коэффициента усиления  $g\sim {
m Im}~\epsilon^{\rm app}$  получим из (7)

$$I_L^{\text{nop}} = (cn/\hbar\omega) (-\omega \text{ Im } L)^{-1}, \tag{8}$$

$$g = \beta \{ (I_L/I_L^{\text{nop}}) - 1 \}.$$
 (9)

Из (8) и (9) следует ряд замечательных свойств рассматриваемого механизма ВР, резко отличающих его от других (обычных) типов ВР. Прежде

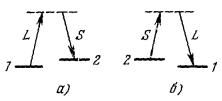


Рис. 1. Элементарные квантовые процессы, описывающие спонтанное и вынужденное рассеяния «обычных» типов. В процессе а) поглощается квант лазера и рождается квант сигнала, а избыток энергии передается веществу; в процессе 5) наоборот.

чем перейти к обсуждению особенностей ВРП, полезно напомнить ряд основных свойств обычных видов ВР. (Для удобства в приложении 1 дается вывод соответствующих формул.)

«Обычные» типы спонтанных и отвечающих им вынужденных рассеяний в квантовой механике описываются переходом  $n_L$ ,  $n_S \to n_L - 1$ ,  $n_S + 1$ , где  $n_L$ ,  $n_S \to$  числа квантов полей лазера и сигнала. Соответствующая вероятность дается квадратом модуля амплитуды перехода  $M \sim n_L^{1/2} \ (n_S + 1)^{1/2}$  (рис. 1, a). При этом вещество перегода.

ходит в состояние с энергией  $E_2 = E_1 + \hbar (\omega_L - \omega_S) = E_1 + \hbar \Omega$ . Вероятность такого перехода имеет вид  $w = AI_L (n_S + 1)$ , т. е. содержит две части: спонтанную  $AI_L$  и вынужденную  $AI_L n_S$ . Благодаря этому между спектральной интенсивностью спонтанного рассеяния и коэффи-

циентом усиления до для ВР имеет место универсальная связь

$$g_0 = [(2\pi)^3/k^2] I_L (dR/do d\omega) [1 - \exp(-\hbar\Omega/kT)];$$
 (10)

здесь  $dR/do\ d\omega$  — дифференциальное эффективное сечение рассеяния света единицей объема (dR имеет размерность  $cm^{-1}$ ),  $\Omega=\omega_L-\omega_S$  — разность частот падающего и рассеянного фотонов. Последний множитель в (10) появляется в результате баланса прямых (рис. 1, а) и обратных (рис. 1, б) процессов ( $\omega_L \to \omega_S$ ,  $\omega_S \to \omega_L$ ). Благодаря этому множителю усиление возможно лишь в стоксовой области  $\Omega > 0$ .

Роль поглощения в случае обычных видов ВР сводится просто к уменьшению эффекта усиления, так что истинный коэффициент усиления равен  $g = g_0 - \beta$ . Поэтому, например, в абсолютно прозрачной среде ( $\beta=0$ ) усиление стоксовой компоненты рассеяния имеет место для сколь угодно малых значений  $I_L$  (т. е.  $I_L^{\rm nop}=0$ ). При  $\beta\neq 0$  величина  $I_L^{\rm nop}\sim \beta$ . Поэтому, хотя зависимость  $g(I_L)$  описывается формулой (9) и для обычных видов BP, при  $I_L\gg I_L^{\rm nop}$  величина g не зависит от  $\beta$ . Рассмотренный же выше процесс BPП подобными свойствами не

обладает.

Во-первых, согласно (8) пороговая интенсивность эффекта ВРП  $I_L^{\mathbf{nop}}$ не зависит от в, а сам эффект усиления сигнальной волны носит принципиально пороговый характер. Величина же коэффициента усиления g для ВРП при  $I_L > I_L^{\text{nop}}$  пропорциональна  $\beta$ . Во-вторых, в зависимости от вида функции L ( $i\Omega$ ,  $i\mathbf{q}$ ) усиление, свя-

занное с ВРП, может иметь место как в стоксовой, так и в антистоксовой области. Как показывается в гл. II, в ряде конкретных случаев усиление реализуется в антистоксовой области.

В-третьих, явлению ВРП не соответствует какой-либо процесс спонтанного рассеяния, связанный с ним соотношением (10).

Соотношение (10) выводится (см. приложение 1) из наиболее фундаментальных принципов квантовой механики. В этой связи весьма остро встает вопрос о самой природе эффекта ВРП в рамках квантовомеханического описания и о том, не противоречит ли приведенное выше классическое рассмотрение квантовой механике. Настоящая статья посвящена обсуждению всего этого круга вопросов, связанных со спецификой явления ВРП.

Прежде всего в гл. П в рамках классической схемы, изложенной выше, рассматриваются различные конкретные механизмы ВРП, связанные с теплопроводностью, гиперзвуком и возбуждением отдельных молекул. В гл. III дается квантовомеханическое описание явления. Здесь показывается, что это явление может быть описано как результат своеобразной интерференции между матричными элементами первого и третьего порядков теории возмущений. Из-за этого собственно и возникают все отличия от обычных типов рассеяния. Гл. IV работы посвящена выяснению роли поглощения в процессах спонтанного рассеяния. Показывается, что явлению ВРП отвечает определенное шумовое рассеяние, не обращающееся в нуль при  $I_S = 0$ , которое поэтому играет роль спонтанного процесса. Это рассеяние, однако, оказывается пропорциональным  $I_L^2$  и связано, по существу, с дробовым шумом процесса поглощения квантов.

Всюду в настоящей статье поле дазера предполагается монохроматическим. Обобщение на случай немонохроматического поля лазера можно найти в работах 1, 2. Результативно это обобщение сводится к свертке коэффициента усиления (а также и выф из (6)) со спектром лазера. Следует отметить, что подобный рецепт учета спектра лазера в случае большого усиления (exp  $(gl)\gg 1$ ), вообще говоря, недостаточно обоснован. Мы не

будем касаться этой проблемы, тем более, что она не является специфичной для эффекта ВРП, а возникает практически во всех задачах о вынужденном рассеянии.

Кроме этого, мы совершенно не касаемся задач распространения и генерации поля «сигнала» в пространстве и во времени. Состояние этого вопроса подробно обсуждается в недавно опубликованном обзоре Старунова и Фабелинского <sup>2</sup>, посвященном детальному рассмотрению различных аспектов вынужденного рассеяния.

#### п. конкретные виды врп

В этой главе мы коротко обсудим три конкретных механизма вынужденного рассеяния, обусловленного поглощением: температурное (энтропийное) рассеяние, рассеяние в области дублета Манделыптама — Бриллюэна и рассеяние, связанное с изменением поляризуемости отдельных молекул при их возбуждении.

## 1. Вынужденное температурное рассеяние, связанное с поглощением (BTP-II)

Простейший вид ВРП связан с изменением диэлектрической проницаемости вещества при нагреве. Мы будем рассматривать нагрев вещества только за счет поглощения света. Соответствующий механизм рассеяния в обзоре <sup>2</sup> обозначается как ВТР-II, в отличие от рассеяния при нагреве вещества за счет электрокалорического эффекта (ВТР-I). Явление ВТР-I относится к «обычному» типу вынужденных рассеяний; генетически оно связано соотношением (10) с несмещенной (энтропийной) компонентой спонтанного рассеяния. Поэтому мы не будем его рассматривать.

О вынужденном температурном (энтропийном) рассеянии света обычно говорят в том случае, когда изменения температуры происходят при постоянном давлении. Для того чтобы давление успевало выравняться, нужно, чтобы выполнялось соотношение  $\tau \gg l/v_{\rm 3B}$ , где  $v_{\rm 3B}$ — скорость звука в среде,  $\tau = |\Omega|^{-1}$  и  $l = |\mathbf{q}|^{-1} \equiv |k_S - k_L|^{-1}$ — характерные временные и пространственные масштабы изменения температуры. Итак, предположим, что

$$\{\Omega\} \ll \Omega_{\mathrm{MB}},$$
 (11)

где  $\Omega_{\rm ME} = |{\bf q}| v_{\rm 3B} - {\rm cдвиr}$  частоты при рассеянии Мандельштама — Бриллюэна. При выполнении (11) изменение  $\epsilon$  дается соотношением

$$\delta \varepsilon = \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial T}\right)_p \delta T,\tag{12}$$

а изменение температуры подчиняется уравнению теплопроводности

$$\frac{\partial T}{\partial t} - \varkappa \nabla^2 T = \frac{1}{\rho_0 c_p} Q(\mathbf{r}, t); \tag{13}$$

здесь  $\varkappa$  — коэффициент температуропроводности,  $\rho_0$  и  $c_p$  — плотность и теплоемкость среды.

Из (12) и (13) следует, что оператор  $\hat{L}$ , связывающий  $\delta \varepsilon$  и Q (см. формулу (2) введения (гл. I)), равен

$$L = \frac{1}{\rho_0 c_p} \left( \frac{\partial \varepsilon}{\partial T} \right)_p \frac{1}{i\Omega + \Gamma} = \frac{1}{\rho_0 c_p} \left( \frac{\partial \varepsilon}{\partial T} \right)_p \frac{-i\Omega + \Gamma}{\Omega^2 + \Gamma^2}, \tag{14}$$

где  $\Gamma = \Gamma(\mathbf{q}) = \varkappa \mathbf{q}^2$  — константа затухания тепловой волны с волновым вектором  $\mathbf{q} = \mathbf{k}_S - \mathbf{k}_L$ .

В большинстве случаев  $\left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial T}\right)_p < 0$ , что отвечает тепловому расширению вещества; при этом усиление (Im L < 0) реализуется в антистоксовой области ( $\Omega < 0$ ). Для пороговой интенсивности получим из (8) и (14)

$$I_L^{\text{nop}} = \frac{en}{\hbar\omega} \frac{\rho_0 e_p}{\left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial T}\right)_p} \frac{\Gamma^2 + \Omega^2}{\omega\Omega}, \tag{15}$$

а коэффициент усиления дается общей формулой (9). Минимальное значение  $I_L^{\rm nop}$  (или, что эквивалентно, максимальное усиление) достигается при  $\mid \Omega \mid = \Gamma$ , а знак  $\Omega$ , при котором возникает усиление, совпадает со знаком  $\left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial T}\right)_p$ . Схематический вид зависимости коэффициента усиления от частоты при  $I_L \gg I_L^{\rm nop}$  приведен на рис. 2, a, где явлению BTP-II отвечает центральная часть графика. Для сравнения на рис. 2,  $\delta$  приведен

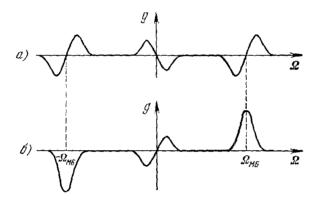


Рис. 2. Схематический вид зависимости коэффициента усиления сигнала g от сдвига частоты  $\Omega=\omega_L-\omega_S$  при  $I_L\gg I_L^{\rm nop};~a)$  для вРИ,  $\sigma$ ) для «обычных» видов вынужденного рассеяния. Центральные компоненты отвечают вынужденным температурным рассеяниям, а боковые — дублету Мандельштама-Бриллюэна.

вид коэффициента усиления, отвечающего «обычным» типам ВР; центральная часть графика описывает ВТР-1. Отметим совпадение функционального вида  $g\left(\Omega\right)$  для ВТР-1 и ВТР-11; для рассеяния в области дублета Манделынтама — Бриллюэна, как будет видно из следующего раздела, ситуация иная.

Отметим, что при поглощении света молекулами может оказаться, что заметная часть поглощаемой энергии идет на химические превращения, а сразу в тепло переходит лишь доля  $\mu < 1$ . В этом случае в уравнение (13) (а также и в (20); см. ниже) следует подставить  $\mu Q$  вместо Q, и в результате пороговая интенсивность возрастет в  $\mu^{-1}$  раз.

Рассмотрим теперь BPI1, связанное с возбуждением звуковых воли за счет теплового расширения вещества при неоднородном ( $\sim$ exp ( $i\Omega t+$ +iqr)) прогреве. Аналогично тому, как это было в рассмотренном выше случае тепловых воли, возбуждение звуковых воли может быть связано с двумя механизмами: с тепловым расширением вещества при поглощении света и с эффектом электрострикции; последнему отвечает «обычное»

вынужденное рассеяние Мандельштама — Бриллюэна, которое мы не будем рассматривать.

Изменение є в звуковой волне можно представить в виде

$$\delta \varepsilon = \left(\frac{\partial e}{\partial \rho}\right)_s \delta \rho \left(\mathbf{r}, t\right). \tag{16}$$

Линеаризованное уравнение гидродинамики имеет вид

$$\frac{\partial^2 \mathbf{p}}{\partial t_2} = \mathbf{\nabla}^2 \mathbf{p},\tag{17}$$

где *p* — давление. Пренебрегая вначале затуханием (мы введем его позже), запишем

$$\delta \mathbf{p} = \left(\frac{\partial p}{\partial \rho}\right)_s \delta \rho + \left(\frac{\partial p}{\partial s}\right)_{\rho} \delta s; \tag{18}$$

здесь  $\left(\frac{\partial p}{\partial \rho}\right)_s = v_{3B}^2$ , а изменение энтропии  $\delta s$  связано с поглощаемой мощностью соотношением

$$\delta s = T^{-1} \int dt Q(\mathbf{r}, t), \tag{19}$$

где T — абсолютная температура. Уравнение для  $\delta \rho$  (r, t) получается при подстановке (18) и (19) в (17):

$$\frac{\partial^{2} \rho}{\partial t^{2}} - v_{aB}^{2} \nabla^{2} \rho - R \frac{\partial}{\partial t} \nabla^{2} \rho = \frac{1}{T} \left( \frac{\partial p}{\partial s} \right)_{0} \nabla^{2} \int dt Q(\mathbf{r}, t); \tag{20}$$

эдесь мы добавили член  $\infty R$ , описывающий поглощение эвука (см., например,  $^3$ ,  $\S$  5). Из (20) следует, что оператор L в данном случае имеет вид

$$L = A\Omega_{\rm ME}/[i\Omega \left(\Omega^2 - \Omega_{\rm ME}^2 - iR\Omega \mathbf{q}^2\right)], \tag{21}$$

где

$$A = \frac{1}{Tv_{\rm B3}^2} \left(\frac{\partial p}{\partial s}\right)_{\rho} \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial \rho}\right)_{s},\tag{22}$$

$$\Omega_{\rm MB} = v_{\rm 3B} \{ \mathbf{q} \}. \tag{23}$$

Эффективное возбуждение звука происходит при  $|\Omega| \approx \Omega_{\rm MB}$ . Полагая  $\Omega=\pm\Omega_{\rm MB}+\Delta$ , получим из (21)

$$L \approx (A/2) (i\Delta + \Gamma)^{-1}; \tag{21a}$$

при этом пороговая мощность равна

$$I_L^{\text{nop}} = (2cn/\hbar\omega A)\frac{(\Delta^2 + \Gamma^2)}{\omega \Delta}$$
 (24)

Постоянную A можно преобразовать к более удобным переменным, пользуясь термодинамическими тождествами. Прежде всего

$$\frac{1}{v_{B3}^2 T} \left( \frac{\partial p}{\partial s} \right)_{\rho} = -\frac{1}{\rho_0 c_p} \left( \frac{\partial \rho}{\partial T} \right)_{p}. \tag{25}$$

Далее,

$$\left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial \rho}\right)_{s} = \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial \rho}\right)_{T} + \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial T}\right)_{\rho} \left(\frac{\partial T}{\partial \rho}\right)_{s} - \tag{26a}$$

$$= \left(\frac{\partial \rho}{\partial T}\right)_{p}^{-1} \left[ \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial T}\right)_{p} - \frac{c_{p}}{c_{v}} \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial T}\right)_{\rho} \right]. \tag{266}$$

При этом два члена в (26a) описывают изменение диэлектрической проницаемости є, связанное соответственно с колебаниями плотности и температуры в звуковой волне. С учетом (25), (26) получаем

$$A = -\frac{1}{\rho_0 c_p} \left[ \left( \frac{\partial \varepsilon}{\partial T} \right)_p - \frac{c_p}{c_p} \left( \frac{\partial \varepsilon}{\partial T} \right)_0 \right]. \tag{27}$$

Приблизительный вид зависимости коэффициента усиления g от сдвига частоты  $\Omega=\omega_L-\omega_S$  приведен на рис. 2,a. Следует отметить, что, в отличие от «обычного» BPMБ (см. рис. 2,6), для BPП-МБ усиление имеется и в стоксовой ( $\Omega=+\Omega_{\rm MB}+A$ ), и в антистоксовой ( $\Omega=-\Omega_{\rm ME}+A$ ) областях. Другое отличие BPП-МБ от «обычного» BPMБ состоит в том, что для BPП-МБ максимум усиления приходится не на центр линии ( $\Delta=0$ ), а на точку  $|\Delta|=\Gamma_{\rm MB}$ . Наглядное объяснение этого обстоятельства состоит в том, что эффект теплового расширения при прогреве и эффект электрострикции раскачивают звуковые волны с относительным сдвигом фаз  $\pi/2$ . Поэтому различаются фазы поправок к диэлектрической проницаемости, обусловленных этими двумя эффектами (для «обычного» ВРМБ величина  $\delta \varepsilon$  пропорциональна  $i\Omega/(i\Delta+\Gamma)$  вместо  $1/(i\Delta-\Gamma)$  для  $BP\Pi$ -МБ).

Для большей наглядности мы отдельно рассматривали вынужденное рассеяние на изобарических изменениях  $\varepsilon$ , т. е. на волнах теплопроводности (см. раздел 1 гл. II), и отдельно — вынужденное рассеяние на адиабатических изменениях  $\varepsilon$ , т. е. на звуковых волнах. В более строгом подходе эти изменения следует учитывать одновременно (см. <sup>1, 2</sup>). Естественно, что при  $|\Omega| \ll \Omega_{\rm MB}$  и при  $|\Omega| \approx |\Omega_{\rm MB}|$  результаты строгого подхода совпадают с приведенными выше.

Отметим появившиеся недавно работы <sup>4</sup> и <sup>5</sup>, посвященные конкретным видам ВРП. Авторы <sup>4</sup> рассматривают возможность обнаружения ВРП на волнах второго звука. В работе <sup>5</sup> обсуждается влияние конечного времени термализации (превращения поглощенной энергии в тепло) на протекание процессов ВРП.

# 3. ВРП при возбуждении молекул

Рассмотрим теперь  $BP\Pi$ , связанное с различием поляризуемости отдельных молекул в основном состоянии (a) и возбужденном (b).

Этот пример представляет для нас интерес еще и по той причине, что ниже, в гл. III, посвященной квантовомеханическому описанию явления ВРП, будет использована аналогичная модель. Для числа  $n_b$  ( $cm^{-3}$ ) возбужденных молекул можно записать уравнение

$$\frac{\partial n_b}{\partial t} + \Gamma n_b = \mu Q (r, t) / \hbar \omega; \qquad (28)$$

здесь безразмерный параметр  $\mu \leqslant 1$  описывает эффективность возбуждения интересующего нас состояния (b) при поглощении кванта, а константа  $\Gamma$  описывает релаксацию заселенности с уровня (b) на уровень (a).

Из уравнения (28) получаем

$$L = \frac{\mu}{\hbar \omega} \frac{\partial \varepsilon}{\partial n_b} \frac{1}{i\Omega + \Gamma} \,, \tag{29}$$

$$I_L^{\text{nop}} = \frac{nc}{\mu} \left( \frac{\partial \varepsilon}{\partial n_b} \right)^{-1} \frac{\Gamma^2 + \Omega^2}{\omega \Omega} \,. \tag{30}$$

В качестве приближенной оценки для  $\frac{\partial \epsilon}{\partial n_b}$  можно взять выражение, следующее из формулы Лоренц — Лорентца:

$$\left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial n_b}\right) = 4\pi \left(\alpha_b - \alpha_a\right) \left(\frac{n^2 + 2}{3}\right)^2, \tag{31}$$

где  $\alpha_a$  и  $\alpha_b$  — поляризуемость молекулы в состояниях a и b соответственно,  $n=\epsilon^{1/2}$  — показатель преломления. Тогда (30) принимает вид

$$I_{L}^{\text{nop}} = \frac{n}{\mu \left[ (n^2 - 2)/3 \right]^2} \frac{c}{4\pi \left( \alpha_b - \alpha_a \right)} \frac{\Gamma^2 + \Omega^2}{\Omega \omega}.$$
 (30a)

Отметим, что в работе <sup>6</sup> наблюдалось связанное с поглощением вынужденное рассеяние при пикосекундной накачке. Интерпретация этого рассеяния, данная в <sup>6</sup>, близка к изложенной выше схеме ВРП на молекулах.

#### III. КВАНТОВАЯ МОДЕЛЬ ВРП

Как было отмечено во введении (гл. I) и проиллюстрировано рассмотрением конкретных примеров в гл. II, явление ВРП по своим свойствам резко отличается от «обычных» процессов вынужденного рассеяния. В особенности это относится к нарушению универсальной связи между коэффициентом усиления и сечением спонтанного рассеяния (формула (10)).

Это означает, что усиление сигнальной волны в явлении ВРП заведомо не может быть обусловлено простыми двухфотонными процессами рассеяния типа  $n_L$ ,  $n_S \rightarrow n_L - 1$ ,  $n_S + 1$  (см. рис. 1), так как в последнем случае соотношение (10) обязано выполняться (см. приложение 1).

С другой стороны, для любого процесса с участием более чем одного кванта  $\omega_L$  квадрат модуля матричного элемента пропорционален  $n_L^2 \sim I_L^2$ 

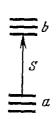


Рис. 3. Поглощение кванта сигнала в первом порядке теории возмущений.

Молекула переходит из состояния а в состояние b. и более высоким степеням  $I_{\rm L}$ , в противоположность линейной зависимости g ( $I_{\rm L}$ ) из (9). Тем не менее, как будет показано ниже, явление ВРП со всеми его характерными особенностями находит сравнительно простое объяснение в рамках квантовомеханического описания процессов поглощения и рождения фотонов.

В данной главе мы дадим квантовомеханическое рассмотрение рассеяния полей  $\omega_L$  и  $\omega_S$  на отдельном атоме (молекуле) и покажем, что в том случае, когда частоты  $\omega_L$ ,  $\omega_S$  попадают в линию поглощения  $a \to b$ , даже для такой простейшей системы возникает эффект ВРП.

Рассмотрим приращение энергии поля сигнала из-за взаимодействия с молекулой. Будем считать, что до включения взаимодействия молекула находится в основном состоянии a. В отсутствие поля  $\omega_L$  взаимо-

действие сводится к поглощению фотонов  $\omega_S$ , которое описывается матричным элементом  $M_{ab}^{(-)} = V_{ab}^{(1)} n_S^{1/2}$  (рис. 3). В присутствии сильного поля добавляется еще ряд процессов, в том числе:

- 1) рассеяние  $\omega_L \to \omega_S$  и  $\omega_S \to \omega_L$  на основном состоянии молекулы (см. рис. 1);
- 2) различные многофотонные процессы, сопровождаемые переходами молекулы  $a \to b$  (среди них имеются процессы, в которых фотоны  $\omega_S$  как поглощаются, так и рождаются).

Процессы 1) не будут рассматриваться ниже, поскольку они отвечают «обычным» типам рассенния и хорошо изучены; там, где это необходимо, мы будем привлекать известные из литературы результаты. Сосредоточим внимание на переходах молекулы  $a \to b$ , отвечающих линии поглощения, и выясним, к каким эффектам приводит наличие сильного поля  $\omega_L$ .

Процессы 2) меняют величину матричного элемента поглощения фотонов сигнала  $M_{ab}^{(-)}$ , так как теперь переход  $(a, n_S) \rightarrow (b, n_S - 1)$  может сопровождаться виртуальным исчезновением и рождением фотонов  $\omega_L$ . Поэтому для матричного элемента  $M_{ab}^{(-)}$  имеем

$$M_{ab}^{(-)} = V_{ab}^{(1)} n_S^{1/2} + V_{ab}^{(3)} n_L n_S^{1/2} + \dots,$$
 (32)

где  $V_{ab}^{(m)}$  — матричный элемент m-го порядка теории возмущений; величины  $n_L \pm 1$  заменены на  $n_L$ .

Кроме того, в сильном поле  $\omega_L$  молекулярному переходу  $a \to b$  может соответствовать не исчезновение, а рождение фотона  $\omega_{\bf g}$ . Например, в процессе третьего порядка a,  $n_S$ ,  $n_L \to b$ ,  $n_S - 1$ ,  $n_L = 2$  рождается фотон сигнала и поглощаются два фотона  $\omega_L$ .

Матричный элемент перехода  $a \rightarrow b$ , сопровождающегося рождением фотона  $\omega_S$ , имеет вид

$$M_{ab}^{(+)} = U_{ab}^{(3)} n_L (n_S + 1)^{1/2} + \dots$$
 (33)

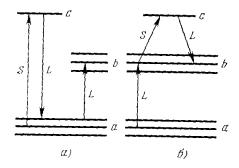
Примеры переходов, соответствующих  $V_{ab}^{(3)}$  и  $U_{ab}^{(3)}$ , показаны на рис. 4 и 5. Приращение энергии на частоте сигнального поля  $\omega_8$  есть

$$Q_{S} = \hbar\omega (w^{(+)} - w^{(-)}), \tag{34}$$

где  $w^{(\pm)} \sim |M_{ab}^{(\pm)}|^2$ . Используя (32), (33), получим с точностью до членов третьего порядка включительно

$$Q \sim -n_S \{ |V^{(1)}|^2 + 2n_L \operatorname{Re}(V^{(1)*}V^{(3)}) + + n_L^2 [|V^{(3)}|^2 - |U^{(3)}|^2] \} + n_L^2 |U^{(3)}|^2.$$
 (35)

Первая поправка на сильное поле  $\omega_L$  в (35), пропорциональная  $n_L n_S$ ,



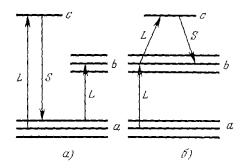


Рис. 4. Поглощение кванта сигнала в третьем порядке теории возмущений (при этом квант дазера виртуально поглощается и испускается).

Рис. 5. Испускание кванта сигналов в третьем порядке теории возмущений с поглощением двух квантов лазера.

дается интерференцией членов первого и третьего порядков. Поправочный член  $\infty n_L^2 n_S$  содержит разность  $\|V^{(3)}\|^2 - \|U^{(3)}\|^2$  и, как будет показано ниже, не играет существенной роли в рассматриваемой модели.

В зависимости от знака интерференционный член может приводить как к увеличению, так и к ослаблению поглощения. При достаточно больших  $n_L$  поглощение может смениться усилением, что и отвечает рассмотренному во введении (гл. I) явлению ВРП. Действительно, этому усилению, линейному по  $n_L$  и пропорциональному сечению обычного поглощения, не сопоставлено соответствующее спонтанное рассеяние; спонтанное рождение фотонов  $\omega_S$  (при  $n_S=0$ ) пропорционально здесь  $n_L^2$ .

Таким образом, процесс ВРП на языке испускания и поглощения фотонов может быть описан как изменение поглощения в результате интерференции членов 1-го и 3-го порядков теории возмущений (см. рис. 3 и 4). Напомним, что обычные типы ВР (и связанные с ними обычные типы спонтанного рассеяния) описываются квадратом члена 2-го порядка (см. рис. 1).

Прежде чем переходить к дальнейшим обсуждениям, получим конкретные формулы, описывающие рассматриваемые процессы. Пусть моле-

кула имеет две непрерывные группы уровней а и b с плотностью состояний

$$\frac{dN_a}{dE} = \frac{\Gamma_a}{\pi \hbar \{ [(E - E_a)^2/\hbar^2] + \Gamma_a^2 \}}, \quad \frac{dN_b}{dE} = \frac{\Gamma_b}{\pi \hbar \{ [(E - E_b)^2/\hbar^2] + \Gamma_b^2 \}}.$$
 (36)

Предположим, что поглощение при нереходе  $a \to b$  осуществляется за счет достаточно слабого запрещенного перехода, а поляризуемость молекулы в состояниях a и b определяется в основном уровнями c, дипольно связанными c уровнями a и b. В этих предположениях вклад перехода  $a \to b$  в поляризуемости  $\alpha_a$ ,  $\alpha_b$  мал:  $|\delta\alpha\ (a \leftrightarrow b)\ | \ll |\alpha_a\ |$ ,  $|\alpha_b\ |$ , и величины  $\alpha_a$ ,  $\alpha_b$  вещественны. В дальнейшем мы также примем, что средняя частота перехода  $a \to b$  совпадает c частотой лазерного поля:  $(E_b \to E_a)/\hbar = \omega_L$ .

 $(E_b - E_a)/\hbar = \omega_L$ . Пусть поле сигнала содержит  $n_S$  квантов, а поле лазера —  $n_L$  квантов,  $n_L \gg 1$ . Величину  $n_L$  в окончательных формулах удобно выразить через  $\mid E_L \mid^2$ .

При сделанных предположениях легко показать, что обсуждавшиеся выше матричные элементы поглощения и испускания, отвечающие переходам из начального состояния a с энергией  $E_1 = E_a + \hbar v$ , равны

$$M_{ab}^{(-)} = M_{ab}^{(-)(1)} + M_{ab}^{(-)(3)} = H(n_S)^{1/2} \left[ 1 - \frac{\alpha_a |E_L|^2}{4h(\nu - \Omega + i\Gamma_a)} - \frac{\alpha_b |E_L|^2}{4h(\nu + i\Gamma_b)} \right], \quad (37)$$

$$M_{ab}^{(+)} = M_{ab}^{(+)(3)} = H (n_S + 1)^{1/2} \left[ -\frac{\alpha_a \{ E_L \}^2}{4\hbar (\nu + \Omega + i\Gamma_a)} - \frac{\alpha_b \{ E_L \}^2}{4\hbar (\nu + i\Gamma_b)} \right], \tag{38}$$

где матричный элемент первого порядка H равен

$$H = m_{ab} (8\pi\hbar\omega/V)^{1/2}/2. \tag{39}$$

Вычисляя далее с помощью стандартных формул теории возмущений вероятности этих переходов и усредняя их по распределению (36) для начального состояния а, найдем

$$w^{(\pm)} = \int \frac{dN_a}{dE_1} dE_1 \frac{dN_b}{dE_2} dE_2 |M^{(\pm)}|^2 \frac{2\pi}{\hbar^2} \delta(v \mp \Omega - \mu), \tag{40}$$

где  $E_1 = E_a + \hbar v$ ,  $E_2 = E_b + \hbar \mu$ . Подставляя (37), (38) в (34), получим выражение для передачи энергии полю сигнала. Запишем его в виде, аналогичном формуле (35):

$$\begin{split} Q_{S} &= -\frac{2\pi\omega H^{2}}{\hbar} \frac{\Gamma}{\pi} \frac{1}{\Omega^{2} + \Gamma^{2}} n_{S} \left\{ 1 + \frac{|E_{L}|^{2}}{2\hbar} \left[ \frac{\alpha_{a}\Omega\Gamma_{b} \left(\Gamma_{b} + 3\Gamma_{a}\right)}{\left(\Omega^{2} + 4\Gamma_{a}^{2}\right)\Gamma^{2}} - \frac{\alpha_{b}\Omega\Gamma_{a} \left(\Gamma_{a} + 3\Gamma_{b}\right)}{\left(\Omega^{2} + 4\Gamma_{b}^{2}\right)\Gamma^{2}} \right] + \\ &+ \left| E_{L} \right|^{4} F\left(\Omega\right) - \left| E_{L} \right|^{4} F\left(\Omega\right) \right\} + \frac{2\pi\omega H^{2}}{\hbar} \frac{\Gamma}{\pi} \frac{1}{\Omega^{2} + \Gamma^{2}} \left| E_{L} \right|^{4} F\left(\Omega\right); \end{split} \tag{41}$$

здесь введена ширина линии поглощения на переходе  $a \to b$ , равная  $\Gamma = \Gamma_a + \Gamma_b$ , и  $F(\Omega)$  — функция частоты, явный вид которой нам в дальнейшем не понадобится.

Выражение (41) содержит две части: пропорциональную  $n_S$ , ответственную за вынужденные переходы, и не зависящую от  $n_S$  — спонтанный шум. Первый из членов, пропорциональных  $n_S$ , соответствует обычному поглощению (член  $|V^{(1)}|^2$  из (35)). Вторым членом определяется вклад интерференции матричных элементов первого и третьего порядков; в зависимости от величины входящих в него параметров этот член может оказаться как положительным, так и отрицательным. Член, пропорциональный  $n_S |E_L|^4$ , соответствующий разности  $|V^{(3)}|^2 - |U^{(3)}|^2$  из (35), обращается в нуль.

Такая точная компенсация в рассматриваемой модели связана с кон-

кретным выбором  $\hbar\omega_L=E_b-E_a$ . Как уже говорилось выше, связанное с ВРП усиление возникает тогда, когда интерференционный член в (41) становится больше первого члена. Одновременно член  $|M_3^{(-)}|^2$  также имеет порядок величины первых двух. Этот член, однако, в выражении (41) полностью компенсируется квадратом матричного элемента  $|M_3^{(+)}|^2$ , ответственного за процесс рожими дения фотонов.

Таким образом, знак и величина усиления определяются лишь соотношением первого и интерференционного членов в вероятности поглощения, пропорциональных  $n_S$ , а не  $n_S+1$ , как это было бы для вероятности рождения. Это и отвечает разрыву универсальной связи между спонтанным рассеянием (член «1» в  $(n_S+1)$ ) и коэффициентом усиления. От матричного элемента рождения фотона  $\omega_S$  в (41) остался лишь послед. ний «спонтанный» член, пропорциональный, к тому же,  $\mid E_L \mid^4 \sim I_L^2$ . Волее подробно спонтанный шум будет рассмотрен в следующей т чаве.

Определим пороговую интенсивность явления ВРП. Полагая для упрощения формул  $\Gamma_a = \Gamma_b$ , имеем из (41)

$$I_L^{\text{nop}} = \frac{c}{4\pi} \frac{\Omega^2 - \Gamma^2}{\omega \Omega} \frac{1}{\alpha_b - \alpha_a} . \tag{42}$$

Формула (42) совпадает с результатом (30а), полученным для ВРП на молекулах при полуклассическом рассмотрении, если под Г подразумевать константу релаксации \*).

В заключение этой главы обсудим, в каком соотношении находятся эффект ВРП и другие эффекты сильного поля, неоднократно обсуждавшиеся в литературе.

Хорошо известно, что в присутствии сильного поля  $\omega_L$ , резонансного по отпошению к одному из переходов молекулы, взаимодействие атома с другими (слабыми) полями меняется кардинальным образом: расщепляются спектральные линии, становится возможным усиление в тех областях, где первоначально было поглощение, и т. п. Все эти эффекты, однако, существенно связаны с насыщением резонансного перехода и проявляются при интенсивностях

$$I_L \geqslant I_{\text{ttac}} \sim \frac{1}{\sigma T_1} \sim \frac{c}{\alpha'' \omega T_1}$$
, (43)

і де  $\alpha''$  — мнимая часть поляризуемости на частоте  $\omega=\omega_{ab},\ \sigma\sim\alpha''\omega/c$  — сечение поглощения,  $T_1=\Gamma^{-1}$  — время продольной релаксации. Описание этих эффектов основано на решении задачи о перемешивании состояний двухуровневой системы в сильном поле.

В отличие от этого, для явления ВРП важно, что сильное поле примешивает к уровням a, b все другие уровни системы (уровни c на рис.  $\overline{4}$  и 5). По этой причине соответствующие ВРП характерные интенсивности определяются другими параметрами:

$$I_L > I_{\rm BPH}^{\rm nop} \sim \frac{c}{\omega T_1} \frac{1}{|\alpha_a - \alpha_b|}$$
 (44)

<sup>\*)</sup> В полуклассическом рассмотрении важна именно константа продольной релаксации, а ширина линии там предполагается очень больщой и никак не влияет на порог. Такое несоответствие результатов этой главы с полуклассической моделью связано с тем, что мы взяли переупрощенную квантовую модель. Для наших целей достаточно было показать существование эффекта ВРП.

Если переход  $a \to b$  достаточно слабый (т. е.  $\alpha_{ab}'' \ll |\alpha_a - \alpha_b|$ ), то порог ВРП может быть существенно меньше интенсивности насыщения (43).

Таким образом, физически совершенно оправдано выделение этого эффекта из всех остальных эффектов сильного поля. По этой причине

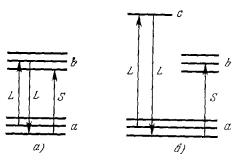


Рис. 6. Примеры переходов, вклады которых либо песущественны (a), либо не имеют отношения к явлению ВРП (b).

выше при выводе конкретных формул (37) и (38) мы не учитывали вклада целого ряда амплитуд переходов, не связанных специфически с эффектом ВРП, типа показанных на рис. 6.

По той же причине мы могли ограничиться в приведенном выше рассмотрении лишь членами до третьего порядка включительно. Если пренебречь спонтанным шумом и описывать поля  $E_S$  и  $E_L$  классически, то теория ВРП может быть развита в виде, аналогичном теории других эффектов сильного поля. Именно, для матрицы плотности молекулы доста-

точно записать стандартные уравнения двухуровневого приближения (ср. с уравнением (28) из гл. II). Для дипольного же момента вместо обычного выражения

$$\langle d \rangle = \operatorname{Sp} \left( \hat{d} \, \hat{\rho} \right) = d_{ab} \rho_{ba} + d_{ba} \rho_{ab} \tag{45}$$

надо принять

$$\langle d \rangle = \left[ \alpha_a \rho_{aa} \left( t \right) + \alpha_b \rho_{bb} \left( t \right) \right] E \left( t \right). \tag{46}$$

В то время как (45) описывает перемешивание состояний a и b, выражение (46), отвечающее ВРП, содержит поляризуемости состояний a, b, связанные с присутствием других уровней c.

#### IV. СПОНТАННЫЙ ПРОЦЕСС, ОТВЕЧАЮЩИЙ ВРП

Из квантовой модели ВРП (см. гл. III, формула (41)) следует, что величина  $Q_S$  не обращается в нуль при  $n_S=0$ . Таким образом, процессу ВРП можно поставить в соответствие некоторый процесс спонтанного рассеяния. Этот процесс существенно отличается от обычных типов спонтанного рассеяния, и прежде всего тем, что интенсивность рассеянного света пропорциональна не интенсивности накачки, а ее квадрату. Несмотря на это, мы будем пользоваться термином «спонтанное рассеяние». Как будет показано ниже, это рассеяние имеет простой физический смысл, не зависящий от конкретной модели гл. III.

В рамках полуклассического описания указанное спонтанное рассеяние должно быть связано с флуктуациями  $\delta \varepsilon$ , возникающими в отсутствие сигнальной волны. При наличии поглощения мощной лазерной волны всегда имеется по крайней мере один источник таких флуктуаций — аналог дробового шума, связанного с дискретным характером поглощения энергии из поля (энергия поглощается лишь порциями величиной  $\hbar \omega$ ). Такой шум можно учесть, если в правую часть уравнения (2) подставить  $Q(\mathbf{r}, t)$  в виде

$$Q(\mathbf{r}, t) \approx \langle Q(\mathbf{r}, t) \rangle + (\hbar \omega \langle Q(\mathbf{r}, t) \rangle)^{1/2} f(\mathbf{r}, t), \tag{47}$$

где случайная функция  $f(\mathbf{r},t)$  характеризуется свойствами \*)

$$\langle f(\mathbf{r}, t) \rangle = 0, \quad \langle f(\mathbf{r}', t') f(\mathbf{r}'', t'') \rangle = \delta^{(3)} (\mathbf{r}' - \mathbf{r}'') \delta(t' - t'').$$
 (48)

В силу уравнения (2) такое случайное энерговыделение приведет к флуктуациям бе с  $\langle \delta \varepsilon ({f r},\,t) \rangle = 0$  и

$$\langle \delta \varepsilon (\mathbf{r}', t') \delta \varepsilon (\mathbf{r}'', t'') \rangle =$$

$$= [\beta P_L \hbar \omega / (2\pi)^4] \int d^3\mathbf{q} \, d\Omega \exp\left(i\mathbf{q}\mathbf{r} + i\Omega t\right) |L\left(i\Omega, i\mathbf{q}\right)|^2, \tag{49}$$

где

$$\mathbf{r} = \mathbf{r}' - \mathbf{r}'', \quad t = t' = t'', \quad P_L = I_L \hbar \omega.$$

Рассеяние монохроматической дазерной волны на флуктуациях вида (49) описывается сечением рассеяния единицей объема

$$dR/do d\omega = (1/2^{5}\pi^{3}) (\omega/c)^{4} \left[ \mathbf{e}_{S} \mathbf{e}_{L}^{*} \right]^{2} \beta P_{L} \hbar \omega \left[ L (i\Omega, i\mathbf{q}) \right]^{2}. \tag{50}$$

Так как  $dR/do\ d\omega \sim P_L$ , мощность рассеянного света пропорциональна  $P_L^2$ , в соответствии со сказанным выше.

Представляет интерес величина спонтанного шума, выраженная в числе шумовых квантов  $\lambda$  на моду (см. приложения 1 и 2). Используя формулы (1,3), (6) и (42), нетрудно получить, что

$$\lambda = \frac{1}{4} \frac{x^2}{x - 1} \frac{|L|^2}{(\text{Im } L)^2} \frac{1}{|e_S e_L|^2}, \quad x = \frac{I_L}{I_L^{\text{nop}}}.$$
 (51)

Здесь мы взяли случай, когда, вообще говоря,  $|\mathbf{e}_S \mathbf{e}_L^*| = 1$ . Интересно отметить, что величина  $\lambda$  не зависит от температуры среды и определяется линь нараметрами x и  $|\{\operatorname{Im} L\}/L|\}$ .

Минимум величины  $\lambda$ , как функции мощности  $I_L$ , достигается при однократном превышении над порогом (x-2) и равен (при  $|\mathbf{e}_s\mathbf{e}_L|=1$ )

$$\lambda(x=2) = |L|^2/(\text{Im }L)^2.$$
 (52)

Во всех рассмотренных нами примерах (см. гл. II)

$$L \sim [\Gamma + i(\Omega - \Omega_1)]^{-1}$$
.

При этом максимальное усиление реализуется при  $|\Omega - \Omega_1| = \Gamma$ , чему соответствует  $\lambda = 2$ . При  $|\Omega - \Omega_1| \gg \Gamma$  усиление падает, а шумы стремятся к минимальному значению  $\lambda_{\min} = 1$ . Последнее обстоятельство дополнительно показывает, что использованный выше полуклассический подход, по-видимому, правильно отражает основные свойства явления. Во всяком случае он не приводит к противоречию с известным (см. приложение 2) квантовомеханическим минимумом шумов «1 фотон на моду».

В качестве иллюстрации общей формулы (50) рассмотрим конкретный случай ВРП на теплопроводности. Пользуясь формулами (14) и (15), получим

$$\frac{dR}{do \, d\omega} = \frac{\Gamma}{\pi} \frac{1}{\Omega^2 + \Gamma^2} \left[ \frac{1}{\rho_0 c_p} \left( \frac{\partial \varepsilon}{\partial T} \right)_p \right]^2 \frac{\hbar \omega \beta P_L}{2\Gamma (4\pi)^2} \left( \frac{\omega}{c} \right)^4 |\mathbf{e}_S \mathbf{e}_L^*|^2. \tag{53}$$

Как видно из (53),  $dR/do \equiv \int d\omega \cdot dR/do d\omega \sim \Gamma^{-1}$ , т. е. dR/do пропорционально характерному времени  $\tau_0 = \Gamma^{-1}$ .

<sup>\*)</sup> Конкретное значение коэффициента при f (r, t) можно получить, например, следующим образом. Число квантов, поглощенных в объеме V за время T, равно  $N=\int\int d^3{\bf r}\ dt\ Q\ ({\bf r},\ t)\ (\hbar\omega)^{-1}.$  Требуя выполнения закона Пуассона  $\langle N^2\rangle-\langle N\rangle^2=\langle N\rangle$ , получим выражение (47).

Спонтанный процесс, описываемый формулой (50), является, по существу, нелинейным инерционным рассеянием. Под инерционностью мы подразумеваем тот факт, что для падающего света с характерными времеподразумеваем тот факт, что для падающего света с характерными временами изменения интенсивности  $\tau \leqslant \Gamma^{-1}$  интенсивность рассеянного света  $I_{\rm p}(t)$  зависит от всего предыдущего поведения  $I_{\rm L}(t')$  при  $0 \leqslant t-t' \leqslant \leqslant \Gamma^{-1}$ . Иначе говоря, в рассеянии проявляются флуктуации числа поглощенных квантов, накопленные за время  $\sim \tau_0 = \Gamma^{-1}$ .

Если на тепловыделение идет лишь доля и от поглощаемой в каждом акте энергии, то величину сечения из (53) следует помножить на µ2.

В реальной ситуации спонтанное нелинейное рассеяние (53), как правило, мало по сравнению с линейным рассеянием на обычных тепловых флуктуациях величины є. Приведем для сравнения сечение линейного рассеяния в районе центральной компоненты линии Рэлея:

$$\frac{dR}{do \ d\omega} = \frac{\Gamma}{\pi} \frac{1}{\Omega^2 + \Gamma^2} \left(\frac{\partial e}{\partial T}\right)_p^2 \frac{T_0^2 k}{c_p \rho_0} \frac{1}{(4\pi)^2} \left(\frac{\omega}{c}\right)^4 |\mathbf{e_L e_S^*}|^2, \tag{54}$$

где  $T_0$  — абсолютная температура, k — постоянная Больцмана. Нетрудно видеть, что сечения (53) и (54) сравниваются при интенсивности накачки  $P_L$ , равной

$$P_L = 2\Gamma \rho_0 c_p T_0^2 k / \hbar \omega \beta \mu^2. \tag{55}$$

Эта интенсивность весьма велика, что затрудняет наблюдение нелинейного спонтанного рассеяния. В частности, как показывают элементарные оценки по формуле (55), при работе с такими интенсивностями неизбежны трудности с перегревом вещества.

В этой связи характерной представляется такая ситуация, при которой за шумы ответственно обычное спонтанное рассеяние (54) даже в тех случаях, когда в усилении определяющую роль играет процесс ВРП. При этом эффективный фактор  $\lambda_{\text{эфф}}$  больше, чем по (51), но меньше, чем  $\lambda$  (BP)  $=kT/\hbar\Omega$  (как это было бы для обычного BP при  $kT\gg\hbar\Omega$ ). Именно, из формулы (1,3) приложения 1 получаем

$$\lambda_{\text{app}} (\text{BPH}) \sim \lambda (\text{BP}) I_{\text{nop}} (\text{BPH}) / I_{\text{nop}} (\text{BP}) \ll \lambda (\text{BP}).$$
 (56)

Спонтанный процесс, отвечающий ВРП на звуковых волнах (см. раздел 2 гл. II), описывается совершенно аналогично рассмотренному выше спонтанному процессу, отвечающему ВРП на тепловых волнах; сюда же относится и замечание о роли обычного линейного рассеяния.

Рассмотренный выше источник шумов (см. формулу (47)) в общем случае отнюдь не является единственным. В различных конкретных ситуациях к нему могут добавляться источники других типов. Это видно, в частности, на примере ВРП на молекулах. Можно показать, что соответствующий спонтанный процесс аналогичен обычному рэлеевскому рассеянию на газе молекул с эффективной поляризуемостью  $\alpha_{9 \bar{\phi} \bar{\phi}} = \alpha_b$  — —  $lpha_a$  и плотностью  $\overline{n}_b = \mu eta I_L/\Gamma$ . Соответствующий коэффициент экстинк ции равен

 $dR/do d\omega = n_b d\sigma_{pan}/do d\omega =$ 

$$= \left(\frac{\Gamma}{\pi}\right) (\Omega^2 + \Gamma^2)^{-1} \beta I_L \mu \Gamma^{-1} (\alpha_b - \alpha_a)^2 \left(\frac{\omega}{c}\right)^4 |\mathbf{e}_s \mathbf{e}_L^*|^2 [(n^2 + 2)/3]^4.$$
 (57)

Последний множитель в (57) отвечает учету действующего поля по формуле Лоренц - Лорентца. Вычисление эквивалентных шумов для ВРП на молекулах по формуле (1,3) приложения 1 дает

$$\lambda = \frac{2}{\mu} \frac{1}{4} \frac{x^2}{x-1} \frac{\Omega^2 + \Gamma^2}{\Omega^2} \frac{1}{|\mathbf{e}_S \mathbf{e}_L^*|^2}, \tag{58}$$

что в  $2/\mu$  раз больше, чем мы имели из общей формулы (51). Отличие  $\mid \mathbf{e}_{\mathbf{s}}\mathbf{e}_{1}^{*}\mid \mathbf{n}$  и от единицы приводит к дополнительным флуктуациям, которые по аналогии с дробовыми шумами можно назвать шумами разделения (ср.  $^{7}$ ). Для оценки минимальных шумов положим  $\mu = 1$  и  $|e_{S}e_{L}| = 1$ . В этом случае физическая причина удвоения шумов в (58) по сравнению с общим выражением (51) состоит в следующем.

В случае ВРП на молекулах дискретен (и тем самым вносит флуктуации) не только процесс возбуждения молекул, но и процесс их девозбуждения. С формальной точки зрения это означает, что сам кинетический оператор L из (28) содержит дополнительную шумовую часть. Нетрудно видеть, что оба указанных источника флуктуаций дают одинаковые вклады в  $\langle \delta \varepsilon^2 \rangle$ , что и приводит к удвоению шумов. В случае же ВРП на тепловых и звуковых волнах рассасывание флуктуаций не сопровождается; дополнительными шумами.

#### приложения

#### 1. ШУМЫ УСИЛЕНИЯ И СВЯЗЬ СЕЧЕНИЯ СПОНТАННОГО РАССЕЯНИЯ С КОЭФФИЦИЕНТОМ УСИЛЕНИЯ НА ВР

Как известно, в отсутствие входного сигнала процесс вынужденного рассеяния можно рассматривать как результат усиления шумов усилителя. Эти шумы отвечают спонтанному расссянию падающей волны накачки. Соотношение между вынужденнои и спонтанной частями приращения энергии сигнала для обычных видов рассеяния можно получить из общих принципов. Благодаря этому для обычных видов ВР коэффициент усиления однозначно выражается через сечение спонтанного рассеяния и температуру среды. Приведем вывод соответствующих формун.

Пусть в направлении оси г распространяется волна «сигнала». Интенсивность сигнала можно характеризовать потоком квантов  $I_S$  (квантов/см $^2$ сек); введем также среднее число заполнения  $n_S$  квантовых состояний сигнального поля. При этом

$$I_S = n_S v_S \Delta N = n_S v_S k^2 \Delta k \Delta o / (2\pi)^3 = n_S \left[ k^2 / (2\pi)^3 \right] \Delta \omega \Delta o;$$
 (1.1)

здесь  $v_S=rac{\partial \omega_S}{\partial k}$  — групповая скорость волны сигнала,  $\Delta N=k^2\Delta k\Delta o/(2\pi)^3$  — число мод в единице объема, приходящихся на интересующий нас телесный угол  $\Delta$ о и интервал частот  $\Delta\omega=v_S\Delta k$ . В реальной ситуации величины  $\Delta$ о и  $\Delta\omega$  определяются обычно геометрией опыта и шириной полосы усилителя соответственно; в явном виде они нам не понадобятся. Более того, при рассмотрении когерентной волны сигнала (т. е.

в пренебрежении шумами) можно считать  $\Delta o \to 0$ ,  $\Delta \omega \to 0$ . Изменение потока  $I_S$  с координатой z связано с действием трех механизмов: 1) уменьшение за счет обычного линейного поглощения, 2) увеличение за счет спонтанного рассеяния и 3) усиление, связанное с ВР. В соответствии с этим можно записать

$$dI_S/dz = -\beta I_S + \Delta RI_L + g_0 I_S = g (I_S + g^{-1} \Delta RI_L). \tag{1.2}$$

Здесь мы ввели результирующий коэффициент усиления (с учетом потерь)  $g=g_0-\beta$ . Величина  $\Delta R=(dR/do\ d\omega)\ \Delta o\Delta \omega$  есть коэффициент экстинкции (т. е. сечение рассеяния единицей объема), отвечающий спонтанному рассеянию в телесный угол До в интервал частот  $\Delta \omega$  и в определенный тип поляризации (размерность  $\Delta R - c \omega^{-1}$ ). Выражение вида (1,2) справедливо для любых видов ВР; его удобно переписать через  $n_S$ :

$$dn_S/dz = g(n_S + \lambda), \quad \lambda = (I_L/g)(2\pi)^3 k^{-2} dR/do d\omega.$$
 (1.3)

При этом λ есть эквивалентное число шумовых квантов на моду; соответствующая спектральная плотность мощности шумов на моду с определенным поперечным индек-

спектральная поперечным индексом равна  $\hbar \omega \lambda$ , а минимальная величина  $\lambda$ , совместимая с принципами квантовой механики, равна  $\lambda_{\min}=1$  (см. приложение 2).

Рассмотрим обычные виды ВР, не связанные с поглощением, и пренебрежем сначала линейным поглощением. На явыке квантовой механики такие виды рассеяния описываются схемами вида рис. 1, a. Вероятность испускания кванта сигнала, отвечающая такой схеме, пропорциональна  $w^{(+)} \sim \rho_1 \, (n_S + 1) \, n_L$ , где  $\rho_1 -$  заселенность уровня 1 в равновесии. Вероятность поглощения кванта сигнала  $w^{(-)} \sim \rho_2 n_S \, (n_L + 1) \, (\text{см. рис. 1, 6})$ ; при  $n_L \gg 1$  можно приближенно считать  $n_L \approx n_L + 1 \sim I_L$ . В итоге передачи энергии волне сигнала оказывается пропорциональной

$$dn_S/dz \sim w^{(+)} - w^{(-)} \sim I_L [n_S + \rho_1 (\rho_1 - \rho_2)^{-1}].$$
 (1.4)

Но для равновесной среды  $\rho_1/(\rho_1-\rho_2)=v+1=[1-\exp{(-\hbar\Omega/kT)}]$ , где  $v=[\exp{(\hbar\Omega/kT)}-1]^{-1}$ — среднее число «квантов» частоты  $\Omega=\omega_L-\omega_S$  при температуре T. Сравнивая (1,4) с (1,3), получаем для  $g_0$ 

$$g_0 = I_L \frac{(2\pi)^3}{k^2} \frac{dR}{do \ d\omega} \left[ 1 - \exp\left(-\frac{\hbar\Omega}{kT}\right) \right]. \tag{1.5}$$

Учет линейного поглощения приводит к тому, что усиление возможно лишь при  $I_L>I_L^{\rm nop}$ , где пороговая мощность накачки определяется условием  $g_0\left(I_L^{\rm nop}\right)=\beta$ :

$$I_L^{\text{mop}} = [k^2/(2\pi)^3] \beta [1 - \exp(-\hbar\Omega/kT)]^{-1} (dR/do d\omega)^{-1}.$$
 (1,6)

При этом величина  $\lambda$  из (1,3) равна

$$\lambda = (\nu + 1) \frac{x}{x - 1} = \left[1 - \exp\left(-\frac{\hbar\Omega}{kT}\right)\right]^{-1} \frac{x}{x - 1}, \quad x = \frac{I_L}{I_I^{\text{nop}}}. \quad (1.7)$$

Из (1,5), (1,6) для обычных видов ВР вытекает ряд важных следствий. Прежде всего, так как v+1>0 лишь при  $\Omega>0$ , усиление ( $g_0>0$ ) возможно лишь в стоксовой области ( $\Omega>0$ ). Далее, при  $I_L\gg I_L^{\rm nop}$  шумы усиления определяются лишь температурой среды и при низкой температуре ( $kT\ll\hbar\Omega$ ) достигают квантового минимума  $\lambda=0$ = 1. Отметим, что при приближении к порогу само спонтанное рассеяние не испытывает никаких особенностей; к бесконечности стремится лишь λ, характеризующее свойства усилителя. Наконец, для обычных видов ВР величина д монотонно убывает по мере увеличения величины  $x=I_L/I_L^{\mathrm{nop}}$ .

#### 2. ОБ ОПИСАНИИ ШУМОВ В КВАНТОВОЙ МЕХАНИКЕ. КВАНТОВЫЙ минимум шумов усиления

Приведем для справок основные положения, относящиеся к описанию шумов в квантовой механике моды электромагнитного поля. Здесь возможны два подхода. Один из них отвечает шрёдингеровской картине квантовой механики и рассматривался в работах в. В настоящем приложении мы приведем описание гейзенберговской картины, следуя основополагающим работам Сеницкого <sup>9</sup> и книге Луиселла <sup>10</sup>. Эта картина удобна для сопоставления с классическими уравнениями Максвелла.

Уравнение для гейзенберговского оператора уничтожения â (t) при наличии линейного затухания имеет вид

$$(d\hat{a}(t)/dt) + (\gamma/2)\hat{a}(t) = \hat{f}(t).$$
 (2.1)

Здесь предполагается, что быстрая зависимость от времени ( $\sim$ exp ( $-i\omega_0 t$ )) уже выделена, а  $\gamma$  — константа затухания. Оператор  $\widetilde{f}(t)$  описывает случайную ланжевеновскую силу и отвечает совокупности квантовых и тепловых шумов, связанных с зату-

Покажем прежде всего, что пренебрежение шумами ведет к противоречию. В самом деле, если бы  $\hat{f}(t)\equiv 0$ , то  $\hat{a}(t)=\hat{a}(0)\exp\left(-\gamma t/2\right)$  и для коммутатора мы получили бы

$$[\hat{a}(t), \hat{a}^{+}(t)] \stackrel{?}{=} [\hat{a}(0), \hat{a}^{+}(0)] \exp(-\gamma t).$$
 (2,2)

Но в правильной теории коммутатор  $\hat{a}$  и  $\hat{a}^+$  должен равняться единице в любой момент времени t. Отсюда видно, что пренебрегать шумами нельзя даже при нулевой температуре диссипативной подсистемы (термостата). Из уравнения (2,1) следует, что

$$\hat{a}(t) = \hat{a}(0) \exp(-\gamma t/2) + \int_{0}^{t} dt' \hat{f}(t') \exp[-\gamma (t-t')/2].$$
 (2.3)

Если диссипативная подсистема обладает широким спектром, то  $\hat{f}\left(t
ight)$  можно считать б-коррелированным случайным операторным процессом. Это значит, что

$$\langle \hat{f}(t) \rangle = 0,$$

$$\langle \hat{f}(t_1) \hat{f}^+(t_2) \rangle = A\delta(t_1 - t_2), \quad \langle \hat{f}^+(t_2) \hat{f}(t_1) \rangle = B\delta(t_1 - t_2);$$
 (2,4)

при этом, как нетрудно видеть,  $A \gg 0$  и  $B \gg 0$ . Предположим, что коммутатор

 $\hat{f}$  и  $\hat{f}^+$  является с-числом (а не оператором), т. е. что

$$[\hat{f}(t_1), \hat{f}^+(t_2)] = C\delta(t_1 - t_2), \quad C = A - B.$$
 (2.5)

Если теперь потребовать, чтобы коммутатор  $[\hat{a}(t), \hat{a}^{\dagger}(t)]$  был равен единице при всех t, то из (2,3), (2,5) получим

$$[\hat{a}(t), \hat{a}^{+}(t)] = \exp(-\gamma t) + C\gamma^{-1}[1 - \exp(-\gamma t)] = 1,$$

откуда следует, что

$$C = \gamma. \tag{2.6}$$

Аналогичное соотношение можно получить, рассматривая среднее число квантов  $\langle \hat{n}(t) \rangle = \langle \hat{a}^{\dagger}(t) \hat{a}(t) \rangle$ :

$$\langle \hat{n}(t) \rangle = \langle \hat{n}(0) \rangle \exp(-\gamma t) + B\gamma^{-1} [1 - \exp(-\gamma t)]. \tag{2.7}$$

Если при t=0 мода находилась в равновесии с термостатом при температуре T, то  $\langle \hat{n}(0) \rangle = \mathbf{v} = [\exp(\hbar \omega_0/kT) - 1]^{-1}$  и равновесие должно сохраниться и при t > 0. Отсюца

$$B = \gamma v$$
  $A = B + C = \gamma (v + 1)$ . (2.8)

Равенства (2,4) — (2,6), (2,8) составляют простейшую формулировку флуктуационнодиссипационной теоремы в квантовом случае: коэффициенты интенсивности шума А, В и С пропорциональны константе затухания у.

Следует обратить внимание на характерные особенности, присущие квантовому описанию шумов:

1) Даже при нулевой температуре термостата ( $T=0,\, v=0$ ) имеется квантовый

шум:  $A = C = \gamma$ , B = 0.
2) Нужно тщательно следить за порядком операторов в выражениях типа (2,4) для средних от произведения случайных сил; именно, коэффициент В отвечает «нормально-упорядоченному» шуму, а коэффициент A — «антинормально-упорядоченному», п  $A \neq B$ .

Энергия поля (число квантов в моде) определяется нормально-упорядоченным выражением  $(\hat{n}) = (\hat{a} + \hat{a})$ . При нулевой температуре (v = 0) интенсивность B «нормально-упорядоченной», т. е. энергетической, части шума равна нулю:  $B = \gamma v = 0$ . Поэтому можно сказать, что при v=0 квантовый шум не возбуждает реальных колебаний моды, а идет лишь на поддержание постоянства коммутатора  $[a, a^+]$  (или,  $u_{ ext{TO}}$ примерно то же самое,— на поддержание вакуумных флуктуаций величин  $\hat{p}$  и  $\hat{x}$ )

Если диссинативная подсистема (термостат) находится в неравновесном состоянии, то в принципе возможно и усиление, т. е.  $\gamma < 0$ . Такая неравновесность может быть связана с инверсией заселенностей либо, в нашем случае, с распространением по среде мощного пучка накачки. Из сохранения коммутационных соотношений мы по-прежнему имеем  $C=\gamma$ , но теперь C<0. Так как B=A-C и  $A\geqslant 0$ , то отсюда сразу получаем минимальное значение величины энергетического, т. е. «пормальноупорядоченного» шума квантового усилителя:

$$B \geqslant |\gamma| \quad \text{npn} \quad \gamma < 0.$$
 (2.9)

Из формулы (2,7) получим, что при минимальном B

$$d\langle \hat{n}(t)\rangle/dt = +|\gamma|(\langle \hat{n}(t)\rangle + B|\gamma|) = |\gamma|(\langle \hat{n}\rangle + 1). \tag{2.40}$$

Это означает, что минимальные шумы квантового усплителя формально отвечают усплению шумовой энергии в 1 фотон на моду. Поток шумовой мощности, отвечающий этому фотону, равен

$$P_{\rm HI} = v_{\rm rp} (\hbar \omega / L) \Delta N = v_{\rm rp} (\hbar \omega / L) L \Delta k / 2\pi = \hbar \omega \Delta \omega / 2\pi = \hbar \omega \Delta f. \tag{2.11}$$

Здесь мы рассмотрели одномерное распространение с групповой скоростью  $v_{\rm rn}=$  $=rac{\partial \omega}{\partial k}$  для мод с определенным поперечным индексом;  $\Delta f$  — полоса частот. Отметим, что эта величина  $P_{
m m}$  вдвое больше, чем так пазываемая мощность вакуумных флуктуаций  $\hbar\omega\Delta f/2$ .

Более строгос обоснование этого вывода для произвольных квантовых усилителей дано в работе 11 (на основе метода гейзенберговских уравнений) и в работе 12 (на основе метода квантовых характеристических функций).

Физический институт им. П. Н. Лебедева AH CCCP

#### ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

- 1. R. M. Негмал, М. А. Gray, Phys. Rev. Lett. 19, 829 (1967).
  2. В. С. Старунов, И. Л. Фабелинский, УФН 98, 441 (1969).
  3. И. Л. Фабелинский, Молекулярное рассение света, М., «Наука», 1965.
  4. R. H. Enns, I. P. Barta, Phys. Rev. 180, 227 (1969).
  5. M. A. Gray, R. M. Herman, Phys. Rev. 181, 374 (1969).
  6. M. E. Mack, Phys. Rev. Lett. 22, 13 (1969).
  7. В. Е. Давенпорт, В. Л. Рут, Введение в теорию случайных процессов шумов, М., ИЛ, 1960.
  8. Б. Н. Зельдович А. М. Цереломов, В. С. Попов, ЖЭТФ 55, 589.

- и шумов, М., ИЛ, 1960.

  8. Б. Я. Зельдович, А. М. Переломов, В. С. Попов, ЖЭТФ 55, 589 (1968); 57, 196 (1969).

  9. І. R. Senitzky, Phys. Rev. 119, 670 (1960); 155, 1387 (1967).

  10. W. H. Louisell, Radiation and Noise in Quantum Electronics, McGraw-Hill, N. Y., 1965.

  11. Н. А. Наиз, Ј. А. Миllen, Phys. Rev. 128, 2407 (1962).

  12. Б. Я. Зельдович, А. М. Переломов, В. С. Попов, Препринты ИТЭФ № 612 и 618 (1968).