

# УСПЕХИ ФИЗИЧЕСКИХ НАУК

535.36

## СТИМУЛИРОВАННОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА

В. А. Зубов, М.-М. Суцинский, И. К. Шувалов

### 1. ВВЕДЕНИЕ

Развитие оптических квантовых генераторов (лазеров) привело к открытию нового явления — стимулированного, или вынужденного, комбинационного рассеяния света. В этом явлении своеобразно проявляются характерные черты обычного комбинационного рассеяния света и излучения квантовых генераторов.

Как известно, при комбинационном рассеянии света излучение частоты  $\nu$  преобразуется в излучение сложного спектрального состава, в котором наряду с частотой  $\nu$  присутствуют также частоты  $\nu \pm \nu_r$ . Здесь  $\nu_r$  — характерные для рассеивающего вещества частоты, обычно собственные колебательные или вращательные частоты молекул исследуемого вещества.

Явление комбинационного рассеяния света может быть хорошо понято на основе представления о модуляции падающей световой волны частоты  $\nu$  собственными частотами рассеивающего вещества  $\nu_r$ . Именно идея о модуляции привела Л. И. Мандельштама и Г. С. Ландсберга к открытию комбинационного рассеяния света<sup>1</sup>.

Явление модуляции лежит в основе и стимулированного комбинационного рассеяния, которое было обнаружено Вудбери и Нгом в 1962 г. при работе с импульсным излучением большой мощности, получаемым при помощи квантового генератора на рубине<sup>2</sup>. В их опытах для уменьшения времени высвечивания рубинового лазера в качестве оптического затвора применялась ячейка Керра на нитробензоле. При этом было обнаружено, что в излучении присутствуют побочные частоты, характерные для спектра комбинационного рассеяния нитробензола, но обладающие значительной интенсивностью.

Хотя в опытах Вудбери и Нга стимулированное комбинационное рассеяние было обнаружено случайно, необходимо заметить, что, по существу, оно было предсказано за несколько лет до этих опытов. Действительно, Джаван<sup>3</sup> еще в 1958 г. указал, что двухфотонные процессы можно использовать для усиления излучения без инверсной заселенности уровней.

После работы Вудбери и Нга появился ряд сообщений об исследовании вынужденного комбинационного рассеяния<sup>3-8</sup>, в которых были выяснены некоторые особенности этого явления. Выяснены также возможности его практических применений.

1 УФН, т. LXXXIII, вып. 2

## 2. ОСНОВНЫЕ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

## а) Установка с рассеивающим веществом в полости резонатора

Вудбери и Нг обнаружили вынужденное комбинационное рассеяние на нитробензоле. Позже и более подробно эти исследования были продолжены Экхардом и др. <sup>4</sup>. Эти авторы провели исследования с целым рядом веществ и показали, что полученное излучение со смещенной длиной волны представляет индуцированное комбинационное рассеяние света.

В работе <sup>4</sup> использовалась следующая установка (рис. 1). В качестве генератора был использован цилиндрический рубиновый стержень

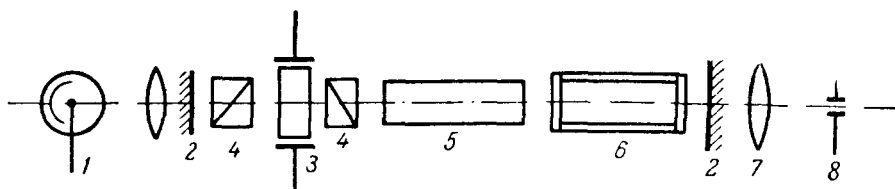


Рис. 1. Схема установки.

1 — Фотоумножитель; 2 — многослойные диэлектрические зеркала; 3 — ячейка Керра; 4 — поляризаторы; 5 — рубиновый стержень; 6 — кювета с исследуемой жидкостью; 7 — конденсорная линза; 8 — входная щель спектрального прибора.

размером  $76 \times 9,5 \text{ мм}^2$  с полированной поверхностью. Подкачка осуществлялась спиральной импульсной лампой. В резонаторе использовались зеркала с многослойными диэлектрическими покрытиями. Поляризатором служила кварцевая призма Волластона. Затвором служила ячейка Керра, в которой нитробензол был заменен кристаллом  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ , который, как оказалось, не дает своих линий. Кювета с исследуемым веществом длиной от 2,5 до 10 см помещалась внутрь резонатора рубинового генератора. Это связано, во-первых, с тем, что линия подкачки  $6943 \text{ \AA}$  особенно сильна именно в резонаторе и, во-вторых, один и тот же резонатор использовался и для рубина, и для индуцированного излучения жидкости. Выходящий свет собирался с обоих концов установки. На одном конце помещался фотоумножитель для регистрации излучения рубина на длине волны  $6943 \text{ \AA}$ . С другой стороны располагался спектральный прибор с регистрацией на фотопленку или на фотоумножитель, движущийся в фокальной плоскости прибора. Этот прибор использовался для регистрации излучения жидкости. Выходной импульс рубинового генератора имел мощность  $0,2\text{--}2 \text{ Мет}$  в пике при длительности  $20\text{--}70 \text{ наносек}$ , что соответствует энергии  $0,05\text{--}0,2 \text{ дж}$ .

Результаты, полученные авторами <sup>4</sup> для смещения частот излучения жидкости по отношению к частоте излучения рубинового генератора, приведены в табл. 1. В этой же таблице приведены частоты наиболее сильных линий комбинационного рассеяния света для этих веществ. Результаты, полученные в работе <sup>4</sup>, относятся только к веществам с кольцевой структурой с пятью или более группами СН или CD.

Авторы указывают три эффекта, которые свидетельствуют о том, что на смещенных частотах имеется генерация. Во-первых, это — высокая степень параллельности лучей выходящего пучка, совпадающая с таковой для рубинового генератора. Во-вторых, — сужение изучаемой линии, возрастающее по мере повышения энергии подкачки. Ширина линии доходила до  $0,6 \text{ см}^{-1}$  по сравнению с  $10 \text{ см}^{-1}$  в обычном комбинационном рассеянии света. В-третьих, — существование порога по энергии подкачки или, точ-

Таблица I

Вещество	Смещение частот излучения жидкости по отношению к излучению рубина, см <sup>-1</sup>	Частоты наиболее сильных линий комбинационного рассеяния света, см <sup>-1</sup>	Вещество	Смещение частот излучения жидкости по отношению к излучению рубина, см <sup>-1</sup>	Частоты наиболее сильных линий комбинационного рассеяния света, см <sup>-1</sup>
Бензол	990 $\pm$ 2 2 $\times$ (990 $\pm$ 2) 3064 $\pm$ 4	992  3064	Пиридин	992 $\pm$ 2 2 $\times$ (992 $\pm$ 5) —	991  3054
Нитробензол	— 1344 $\pm$ 2 2 $\times$ (1346 $\pm$ 2) 3 $\times$ (1340 $\pm$ 5)	1004 1345	Циклогексан	— 2852 $\pm$ 4	801 2853
Толуол	— 1004 $\pm$ 4	785 1002	Дейтеробензол	944 $\pm$ 1 2 $\times$ (944 $\pm$ 1) —	945  2292
1-Бромнафталин	1368 $\pm$ 4 —	1363 3060			

нее, по выходной мощности генератора на рубине и по длине кюветы с исследуемым веществом, т. е. по длине светового пути в активной среде.

Экхард и др. установили следующие закономерности наблюдаемого эффекта.

1. При превышении порога выходная мощность излучения быстро возрастала и достигала 0,01—0,1 мощности генератора подкачки, что составляет 10—100 *квт*.

2. Смещение частот излучения от частоты линии подкачки совпадало с колебательными частотами, наблюдаемыми в спектре комбинационного рассеяния данных веществ.

3. В излучении наблюдалась только одна смещенная линия и в некоторых случаях линии с частотами, кратными этой линии. Другими словами, если проявлялась линия, имеющая смещение по частоте  $\nu_r$ , то проявлялись в некоторых случаях (см. табл. I) линии, смещенные на частоты  $2\nu_r$ ,  $3\nu_r$ .

4. Излучение обнаруживалось только для линий, соответствующих сильнейшим линиям в спектре обычного комбинационного рассеяния.

5. Смещенное излучение наблюдалось только в стоксовой области.

Связать наблюдаемые процессы с поглощением энергии первичного излучения и последующим ее излучением, как с двумя независимыми процессами, не представляется возможным. Так, например, для бензола и дейтеробензола величины поглощения существенно различны (бензол—0,02 см<sup>-1</sup>, дейтеробензол—0,001 см<sup>-1</sup>) для длины волны 6943 Å, в то же время энергия излучения в обоих этих случаях почти одинакова. Наиболее вероятно поэтому приписать наблюдаемые эффекты индуцированному комбинационному рассеянию света.

Появление линий, соответствующих удвоенным и утроенным частотам смещения, авторы объясняют повторением процесса индуцированного комбинационного рассеяния при возбуждении уже полученными линиями, т. е. генерация на одной линии служит подкачкой для появления генерации на второй линии.

Позже результаты в области индуцированного комбинационного рассеяния были расширены Геллером и др.<sup>5</sup> Схема работы была аналогична схеме, применявшейся Экхардом и др. Результаты приведены в табл. II.

Таблица II

Вещество	Смещение частот излучения жидкости по отношению к излучению рубина, см <sup>-1</sup>	Частота линий комбинационного рассеяния света, см <sup>-1</sup>	Вещество	Смещение частот излучения жидкости по отношению к излучению рубина, см <sup>-1</sup>	Частота линий комбинационного рассеяния света, см <sup>-1</sup>
Этилбензол	1002±10	1000	Параксиллол	2998±14	3008
Ацетон	2921±7	2922	Метаксиллол	2933±10	2916
Циклогексанон	2863±7 2945±5	2949	Ортоксиллол *)	2913 2922 2933 730	2916  733
Пиперидин *)	2933 2936 2940 2943	2935			

\*) Образец излучает мультиплет.

В качестве критерия генерации эти авторы приняли, во-первых, высокую параллельность пучка и, во-вторых, наличие порога в зависимости от мощности рубинового генератора. В этой работе отмечены следующие характерные черты исследуемого излучения.

1. Имеет место сильный эффект подавления излучения, т. е. если имеются два или более веществ, активных в комбинационном рассеянии, то индуцированное комбинационное рассеяние более слабых линий запрещено излучением более сильных. Авторы связывают это с уменьшением мощности первичного излучения генератора за счет перехода энергии в комбинационное рассеяние.

2. Некоторые жидкости (в табл. II они отмечены звездочкой) обнаруживают излучение в виде узких, близко расположенных линий. Расстояния между этими линиями сравнимы с теми, которые обнаруживаются во вращательных спектрах.

Хотя получение спектров индуцированного комбинационного рассеяния связано с очень высоким порогом и поэтому наблюдалось лишь с помощью генераторов с импульсным включением добротности, удалось тем не менее в последнее время наблюдать этот эффект и с помощью обычного генератора на рубине<sup>6</sup>, хотя обычный генератор на рубине приблизительно на два порядка уступает генератору с импульсным включением добротности по мощности. Однако за счет более длительного действия излучения накачки возможно достигнуть порога генерации смещенного излучения. Схема установки в работе<sup>6</sup> была аналогична схеме, использованной в 2-5.

Использовался генератор на рубине с порогом генерации по энергии подкачки 270 дж. Порог генерации индуцированного комбинационного рассеяния по энергии подкачки рубинового генератора составил 360 дж. Длительность вспышки составляла около 500 мксек. В качестве критерия генерации на смещенной частоте принималось, как обычно: 1) сужение линии, наблюдаемой в условиях генерации индуцированного комбинационного рассеяния, по сравнению с линией, наблюдаемой в обычных спектрах комбинационного рассеяния, 2) высокая параллельность пучка, 3) наличие порога генерации. В указанных условиях была получена генерация на одной из сильнейших линий комбинационного рассеяния — линии бензола 992 см<sup>-1</sup>.

### б) Установка с рассеивающим веществом вне полости резонатора

Все рассмотренные выше работы касались наблюдения индуцированного комбинационного рассеяния в стоксовой области. Новые работы, выполненные Терхуном<sup>7</sup> и Стойчевым<sup>8</sup> как на органических жидкостях, так и на более сложных в экспериментальном отношении объектах (сжиженные газы, газы под давлением и т. п.), подтверждают полученные ранее результаты. Кроме того, в этих работах наблюдалось индуцированное излучение с длинами волн короче 6943 Å, т. е. в антистоксовой области.

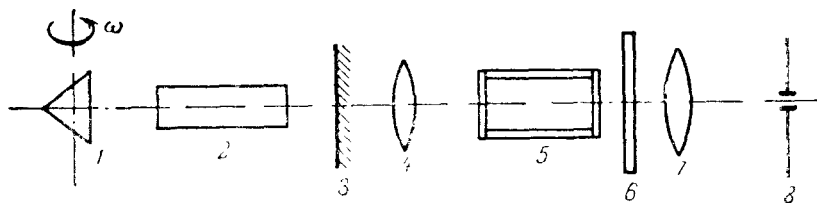


Рис. 2. Схема установки.

1 — Вращающаяся призма полного внутреннего отражения; 2 — рубиновый стержень; 3 — многослойное диэлектрическое зеркало; 4 — линза с фокусным расстоянием 25 см; 5 — кювета с исследуемой жидкостью; 6 — фильтр; 7 — конденсорная линза; 8 — входная щель спектрального прибора.

Стойчев<sup>8</sup> использовал установку, схема которой приведена на рис. 2. В качестве источника света использовался квантовый генератор на рубине. Импульсное включение добротности осуществлялось вращающейся призмой полного отражения. Скорость вращения составляла 400 об/сек. Вспышка лампы синхронизовалась с вращением призмы. В резонаторе использовалось многослойное диэлектрическое зеркало. Энергия излучения рубина в линии 6943 Å менялась от 0,1 до 0,8 дж. Длительность вспышки была около 20 наносек. В целях создания максимальной плотности мощности излучение генератора фокусировалось на кювету с исследуемой жидкостью линзой с фокусным расстоянием 25 см. Длина кюветы менялась в пределах от 2 до 70 мм. Поперечное сечение пучка генератора в кювете не превышало 0,1 см<sup>2</sup>. При этом плотность мощности по оценкам составляла около 100 Мвт/см<sup>2</sup> и более. Для удаления возбуждающего излучения после кюветы с жидкостью ставился светофильтр. В работе<sup>7</sup> для возбуждения стимулированного излучения использовалась аналогичная установка.

По сравнению с работами, рассмотренными в разделе а), следует подчеркнуть то отличие, что исследуемая жидкость находится вне полости резонатора квантового генератора на рубине. Это, с одной стороны, предъявляет повышенные требования к мощности импульса возбуждающего излучения, поскольку плотность энергии вне резонатора существенно меньше, чем в резонаторе. С другой стороны, такая схема расположения позволяет вести исследование излучения, выходящего из жидкости, в пределах широкого угла, что оказывается весьма существенным, как будет видно из дальнейшего.

При регистрации излучения, испускаемого жидкостью, на цветную обратимую пленку, расположенную на некотором удалении от кюветы с исследуемой жидкостью, наблюдается довольно неожиданная картина. На фотографии видны концентрические кольца соответственно красного, оранжевого, желтого и зеленого цвета. Следует иметь в виду, что инфракрасное излучение не действует на цветную фотопленку. Цветная репродукция наблюдаемой картины приведена в УФН, том 81, вып. 4, стр. 745

(1963). Более подробное исследование показывает, что эти кольца связаны с антистоксовыми компонентами обычного комбинационного рассеяния света.

Для изучения спектрального состава рассеянного излучения использовались спектральные приборы как с малой дисперсией — для получения общей картины спектра, — так и с большими дисперсией и разрешением — для более детального исследования линий.

Исследования спектрального состава испускаемого излучения целого ряда жидкостей позволяют установить следующее. Спектры чрезвычайно интенсивны: единичного импульса от генератора подкачки вполне достаточно для получения спектрограммы. Спектры содержат стоксовы и антистоксовы линии почти одинаковой интенсивности, причем каждый спектр содержит не только линию основной частоты, но и линии с частотами, в точности кратными этой основной частоте.

Более детальное исследование приводит к ряду интересных выводов.

1. Имеется порог появления смещенного излучения как по мощности пучка возбуждающего излучения, так и по длине светового пути в исследуемой жидкости. При этом уже при самом незначительном превышении порога появляется полный набор частот смещенного излучения, т. е. линии основной частоты и линии кратных частот как в стоксовой, так и в антистоксовой области. Иными словами, пороговое значение возбуждения смещенного излучения одинаково как для основной частоты, так и для гармоник, как для стоксовой, так и для антистоксовой области. Вблизи порога интенсивность типичных линий составляет несколько процентов от интенсивности возбуждающего излучения.

2. Величина порога связана с интенсивностью и шириной линии в обычном комбинационном рассеянии. В качестве примера можно сравнить обычные спектры комбинационного рассеяния сероуглерода, бензола и четыреххлористого углерода. Отношение интенсивностей наиболее сильных линий этих веществ составляет приблизительно  $5 : 4 : 1$ , а ширины тех же линий составляют  $1,0$ ;  $2,5$  и  $2 \text{ см}^{-1}$  соответственно. В соответствии с этим эксперимент указывает, что самый низкий порог для появления смещенного индуцированного излучения имеет сероуглерод, а самый высокий — четыреххлористый углерод.

3. Для каждой жидкости смещенное излучение содержит только одну или две линии и их гармоники, причем частоты этих линий совпадают с частотами колебательных линий обычного комбинационного рассеяния, соответствующих полносимметричным колебаниям. Этот результат можно понять, поскольку именно эти колебания дают наиболее интенсивные и наиболее узкие линии в спектрах комбинационного рассеяния и поэтому порог для них будет наиболее низким (см. выше). Совпадение частот, полученных в описываемых экспериментах, с частотами линий в спектрах обычного комбинационного рассеяния имеет место в пределах ошибок измерений, равных  $\sim 0,2 \text{ см}^{-1}$ . Стоксовы и антистоксовы частоты также совпадают в пределах ошибок измерений  $\sim 0,3 \text{ см}^{-1}$ . Частоты гармоник равны удвоенным, утроенным, учетверенным частотам основной линии с ошибкой  $\sim 0,3 \text{ см}^{-1}$ . Эти гармоники в смещенном излучении не имеют аналогов в обычном комбинационном рассеянии. Действительно, линии обертонов молекулярных колебаний имеют обычно интенсивность на два порядка ниже, чем линии основных колебаний. Далее, частоты этих линий не равны точно удвоенным, утроенным и т. д. частотам основных линий из-за ангармоничности колебаний. Эти гармоники, по всей видимости, не могут быть объяснены как повторный процесс, т. е. появление смещенного от возбуждающего излучения, каковым является в данном случае первичное смещен-

ное излучение. Это следует из экспериментов, когда в выходной пучок рубинового генератора ставились последовательно кюветы с двумя жидкостями (в частности, с сероуглеродом и бензолом), причем последовательность размещения жидкостей менялась. В этих экспериментах наблюдались линии гармоник каждой жидкости (следует, правда, указать, что спектр  $\text{CS}_2$  обычно преобладал), но совершенно отсутствовали линии, соответствующие сумме и разности частот линий комбинационного рассеяния в этих жидкостях, хотя подобные линии можно было ожидать на основании механизма повторного процесса. Об этом свидетельствует, кроме того, тот факт, что при незначительном превышении энергии подкачки над порогом одновременно с основной линией появляются и линии гармоник.

4. Исследование распределения интенсивности смещенного излучения по углам, выполненное до углов  $40^\circ$ , показало, что стоксово излучение наиболее интенсивно в переднем направлении в пределах угла  $4-5^\circ$ , а затем быстро спадает. Подобный максимум стоксова излучения наблюдается и в заднем направлении, но интенсивность его на порядок меньше. Иная картина имеет место для антистоксова излучения. Это излучение испускается только под вполне определенными углами к направлению распространения возбуждающего излучения. Угол, определяемый с точностью порядка  $10'$ , составляет несколько градусов с направлением распространения возбуждающего света в зависимости от образца и порядка гармоник (табл. III). Именно это обстоятельство обуславливает появление цветных колец при регистрации излучения жидкости на цветную фотопленку (к стоксову излучению пленка не чувствительна). Объяснение факта рассеяния под определенными углами авторы связывают с законом сохранения импульса при рассеянии света (см. гл. 3).

5. Исследование ширины стоксовых линий смещенного излучения для некоторых жидкостей показало, что они несколько меньше, чем ширины соответствующих линий в обычном комбинационном рассеянии света. Заметное сужение линий наблюдалось в антистоксовой области. Измерения ширины первой линии бензола, выполненные с интерферометром Фабри — Перо, дали величину около  $0,05 \text{ см}^{-1}$ , в то время как в обычном комбинационном рассеянии она составляет около  $2,5 \text{ см}^{-1}$ .

Все рассмотренные выше характеристики смещенного излучения позволяют считать его вынужденным комбинационным рассеянием света.

Тот факт, что излучение в антистоксовой области не наблюдалось в случае, когда рассеивающее вещество помещалось в полость резонатора, объясняется особенностями эксперимента. Антистоксовы компоненты не могли наблюдаться из-за наличия резонатора, настроенного на излучение вдоль оси резонатора, тогда как указанные компоненты излучаются под углом к оси.

Следует остановиться на некоторых других фактах, которые были экспериментально установлены в цитированных работах.

1) Когда в спектре индуцированного излучения присутствуют с заметной интенсивностью антистоксовы линии, соответствующие переходам с изменением колебательного квантового числа  $1 \rightarrow 0$ , совсем не наблюдаются стоксовы линии, соответствующие переходу с того же уровня, т. е.

Таблица III

Вещество	Углы, под которыми наблюдается антистоксово смещенное излучение
Бензол	$2^\circ 48'$ $4^\circ 30'$
Сероуглерод	$3^\circ 19'$ $4^\circ 54'$
Толуол	$2^\circ 54'$
Нитробензол	$3^\circ 30'$
Азот (жидкий)	$1^\circ 10'$

для колебательного перехода  $1 \rightarrow 2$ . Заметим, что согласно теории и наблюдениям для обычного комбинационного рассеяния такие линии имеют несколько большую интенсивность, чем антистоксовы, соответствующие колебательному переходу  $1 \rightarrow 0$ .

2) Обычно излучение квантового генератора на рубине содержит одну узкую линию, но иногда излучение содержит две линии, отстоящие на  $0,8 \text{ см}^{-1}$ . В этом случае линии вынужденного комбинационного рассеяния имеют своеобразную форму. В стоксовой области основная линия вынужденного комбинационного рассеяния оказывается несколько расширенной. Вторая и третья гармоники основной линии имеют ширину соответственно в два и три раза большую, причем форма линий несимметрична. Максимум смещен в сторону больших частот в абсолютной шкале, т. е. в сторону возбуждающей линии. В антистоксовой области основная линия и гармоники подобным же образом расширены и антисимметричны, а максимум также смещен в сторону больших частот в абсолютной шкале, т. е. в сторону от возбуждающей линии. Было установлено, что внутри расширенной антистоксовой основной линии имеется глубокий и узкий провал с шириной около  $0,2 \text{ см}^{-1}$ . Этот провал несколько смещен ( $\sim 0,2 \text{ см}^{-1}$ ) от положения максимума линии при наблюдении спектра с генератором, испускающим только одну линию. В некоторых случаях при аналогичных условиях возбуждения спектры индуцированного рассеяния содержали вместо линии целую серию максимумов. Расстояние между максимумами равнялось расстоянию между возбуждающими линиями. Общая ширина такой серии составляла несколько ангстрем.

Следует специально остановиться на получении и исследовании спектров вынужденного комбинационного рассеяния сжиженных газов. В работе<sup>8</sup> наблюдалось интенсивное антистоксово рассеяние жидкого водорода, кислорода и азота. Следует заметить, что в обычном комбинационном рассеянии антистоксово излучение ни в одном из этих случаев не было и наблюдать его вряд ли возможно из-за очень низких температур. Характер наблюдаемых спектров полностью совпадает с таковым для органических жидкостей.

Спектр жидкого водорода был специально исследован в надежде получить вынужденное комбинационное рассеяние, соответствующее вращению молекул, поскольку в обычном комбинационном рассеянии газообразного и жидкого водорода вращательные линии намного более интенсивны, чем колебательные линии. Ширины линий при этом почти одинаковы. Однако экспериментально удалось наблюдать только линию, соответствующую переходу  $v = 0 \rightarrow v = 1$  и  $I = 0 \rightarrow I = 0$ , где  $v$  и  $I$  — колебательное и вращательное квантовые числа. Авторы высказывают мысль, что в процесс индуцированного рассеяния включаются только переходы с  $\Delta I = 0$ , иными словами, в вынужденном комбинационном рассеянии преобладает изотропное, а не анизотропное рассеяние.

### 3. ТЕОРИЯ ВЫНУЖДЕННОГО КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ

#### а) Полуклассическая теория

Наиболее важные особенности явления вынужденного комбинационного рассеяния могут быть поняты уже на основе полуклассического рассмотрения. Общая схема такого рассмотрения была дана Таунсом<sup>9, 10</sup>.

Следуя цитируемым работам, рассмотрим молекулу с поляризуемостью  $\alpha$  в электрическом поле  $E$ . Под действием поля  $E$  молекула приобретает электрический момент  $\mu = \alpha E$  и потенциальную энергию  $U = -\alpha E^2/2$ .



Пусть  $x$  — колебательная координата, описывающая некоторый колебательный процесс в молекуле. Считая, что на молекулу действует вынуждающая сила

$$F = -\frac{dU}{dx} = \frac{1}{2} \frac{d\alpha}{dx} E^2, \quad (1)$$

мы получаем уравнение внутримолекулярных колебаний

$$m\ddot{x} + R_0\dot{x} + fx = F_0 \cos \omega t \quad (2)$$

(вынуждающая сила предполагается гармонической). Решение этого уравнения для частоты  $\omega$ , близкой к резонансной частоте  $\omega_r = \sqrt{f/m}$ , есть

$$x = \frac{F_0}{R_0\omega} \sin \omega t. \quad (3)$$

Здесь  $R_0$  — феноменологическая константа затухания,  $f$  — квазиупругая константа рассматриваемой молекулы, соответствующая нормальному колебанию с частотой  $\omega_r$ .

Предположим теперь, что электрическое поле  $E$  представляет собой совокупность некоторого числа плоских волн, отличающихся по частоте на величину  $\omega$  или (в более общем случае) на величину, кратную  $\omega$ . В простейшем случае двух таких волн

$$E = E_0 e^{i(\omega_0 t - k_0 r)} + E' e^{i(\omega' t - k' r + \varphi)}, \quad (4)$$

где  $\omega_0 - \omega' = \omega$ . При этом

$$E^2 = E_0^2 + E'^2 + 2E_0 E' \cos [(\omega_0 - \omega') t - (k_0 - k') r - \varphi']. \quad (5)$$

Постоянные члены здесь можно опустить, и мы получаем

$$F_0 = \frac{d\alpha}{dx} E_0 E'. \quad (6)$$

Соответственно,

$$x = \frac{E_0 E' \frac{d\alpha}{dx}}{R_0 (\omega_0 - \omega')} \sin [(\omega_0 - \omega') t - (k_0 - k') r - \varphi']. \quad (7)$$

Указанные выше молекулярные колебания создают осциллирующий дипольный момент

$$\mu = x \frac{d\alpha}{dx} E = \frac{E_0 E' \left( \frac{d\alpha}{dx} \right)^2}{R_0 (\omega_0 - \omega')} \{ \sin [(\omega_0 - \omega') t - (k_0 - k') r - \varphi'] \} E. \quad (8)$$

Скорость обмена энергией между дипольным моментом и компонентой поля с частотой  $\omega'$  дается формулой

$$P' = - \left\langle \frac{d\mu}{dt} E' \right\rangle, \quad (9)$$

где среднее берется по времени. Отсюда получаем мощность, которую передает компоненте  $E'$  исходный луч  $E_0$ :

$$P' = \frac{1}{2R_0} \left( \frac{d\alpha}{dx} \right)^2 \frac{\omega'}{\omega_0 - \omega'} (E_0 E')^2. \quad (10)$$

Для стоксова излучения  $\omega' = \omega_0 - \omega_r$ ,  $P' > 0$  и излучение, соответствующее компоненте  $E'$ , усиливается. Для антистоксова излучения  $\omega' = \omega_0 + \omega_r$  и указанное излучение теряет энергию.

Для того чтобы объяснить возможность генерации антистоксовых линий, рассмотрим случай, когда поле  $E$  имеет три компоненты с различными частотами:

$$E = E_0 e^{i(\omega_0 t - k_0 r)} + E_{-1} e^{i[(\omega_0 - \omega_r) t - k_{-1} r + \varphi_{-1}]} + E_{+1} e^{i[(\omega_0 + \omega_r) t - k_{+1} r + \varphi_{+1}]}. \quad (11)$$

Тем же методом, как и выше, могут быть подсчитаны колебания молекулы и ее осциллирующий дипольный момент. Отсюда получаем усиление мощности стоксова излучения

$$P_{-1} = \frac{1}{2R_0} \left( \frac{d\alpha}{dx} \right)^2 \frac{\omega_0 - \omega_r}{\omega_r} \{ (E_0 E_{-1})^2 + (E_0 E_1) (E_0 E_{-1}) \cos [(2k_0 - k_1 - k_{-1}) r + \varphi_1 + \varphi_{-1}] \}. \quad (12)$$

Усиление мощности антистоксовой волны будет

$$P_{+1} = \frac{1}{2R_0} \left( \frac{d\alpha}{dx} \right)^2 \frac{\omega_0 + \omega_r}{\omega_r} \{ -(E_0 E_1)^2 - (E_0 E_1) (E_0 E_{-1}) \cos [(2k_0 - k_1 - k_{-1}) r + \varphi_1 + \varphi_{-1}] \}. \quad (13)$$

Таким образом, если  $|E_{-1}| > |E_1|$ , компонента  $E_1$  может усиливаться при выполнении следующих условий:

$$2k_0 = k_1 + k_{-1} \quad \text{и} \quad \cos(\varphi_1 + \varphi_{-1}) < 0. \quad (14)$$

Здесь  $k_0$ ,  $k_{-1}$  и  $k_1$  — соответственно волновые векторы исходной, стоксовой и антистоксовой волн. Если  $\varphi_1 + \varphi_{-1} = \pi$ , то усиление антистоксовой линии будет наибольшим. При этом усиление стоксовой линии уменьшается для соответствующего направления из-за отрицательного знака косинуса.

Качественно генерацию стоксовой и антистоксовой линий комбинационного рассеяния можно понять, исходя из представления о модуляции падающей световой волны когерентными колебаниями молекул. Действительно, числовые оценки показывают, что под действием светового импульса рубина с мощностью порядка  $100 \text{ Мвт/см}^2$  могут происходить растяжения и сжатия длин связей молекул на величину порядка  $10^{-4}$  от равновесного значения. В результате в рассеивающем объеме возникают упругие волны с частотой, равной собственной частоте  $\omega_r$  колебаний молекул. В плоскости постоянной фазы такой волны все молекулы колеблются синхронно, с одинаковой фазой, что приводит к растяжениям и сжатиям вещества. При этом относительные изменения диэлектрической проницаемости составляют примерно  $10^{-4}$ . Эти пространственные изменения диэлектрической проницаемости действуют как фазовая решетка, которая рассеивает световые волны. Поскольку изменение диэлектрической проницаемости зависит от времени, здесь будет иметь место модуляция световой волны с образованием спутников с частотами  $\omega_0 \pm m\omega_r$ , где  $m = 1, 2, 3, \dots$  Легко видеть, что описанный механизм модуляции здесь тот же, в принципе, как и при рассеянии света на гиперзвуковых волнах, имеющих тепловое происхождение. Таким образом, мы возвращаемся к исходным идеям Л. И. Мандельштама, лежащим в основе комбинационного рассеяния света. Следует заметить, что описанные волны возникают не так быстро, как колебания самих молекул. Время установления упругих волн составляет примерно  $10^{-9} \text{ сек.}$

Для испускания стоксовых линий не требуется выполнения каких-либо дополнительных условий, связывающих волновые векторы, поэтому стоксово излучение может испускаться во всех направлениях. В противоположность этому, из уравнений (14) следует, что антистоксово излучение испускается лишь в направлении, образующем конус с углом  $\theta_1$  относительно начального направления луча. Для малых углов  $\theta_1$  непосредственные вычисления дают

$$\theta_1^2 \approx \frac{1}{n} \frac{\omega_0 - \omega_r}{\omega_0 - \omega_r} \left[ \Delta n_1 - \Delta n_{-1} + \frac{\omega_r}{\omega_0} (\Delta n_1 - \Delta n_{-1}) \right]. \quad (15)$$

Здесь  $n$  — показатель преломления среды для частоты  $\omega_0$ ,  $\Delta n_1$  и  $\Delta n_{-1}$  — разности показателей преломления для частот  $\omega_0 \pm \omega_r$  и  $\omega_0$  соответственно. Для нормальной дисперсии вещества все эти величины положительны. Поскольку  $\omega_r/\omega_0 \ll 1$ , получаем

$$\theta_1^2 \approx \frac{1}{n} \frac{\omega_0 - \omega_r}{\omega_0 + \omega_r} (\Delta n_1 - \Delta n_{-1}). \quad (16)$$

Таким образом, угол  $\theta_1$  определяется крутизной дисперсионной кривой вещества. Численные оценки показывают, что эти углы имеют величину порядка нескольких градусов.

Существенно, что для генерации антистоксова излучения не требуется достижения дополнительного порога после того, как в нужном направлении генерируется стоксово излучение. Далее, при наличии стоксова излучения частоты  $\omega_0 - \omega_r$  может возникнуть поле  $E_{-2}$  с частотой  $\omega_0 - 2\omega_r$ . Мощность излучения на этой частоте состоит из двух частей. Из них одна пропорциональна  $E_{-1}^2 E_{-2}^2$ , что можно получить при помощи расчетов, аналогичных приведенным выше. Кроме того, поле с этой частотой может создаваться при модуляции поля  $E_{-1}$  колебаниями диэлектрической проницаемости, которые возникают за счет  $E_0$  и  $E_{-1}$ . При этом генерируемая мощность пропорциональна  $E_0^2 |E_{-1}|^2 E_{-2}$ . Так как  $|E_{-2}| < |E_0|$ , эта часть излучения на частоте  $\omega_0 - 2\omega_r$  может иметь наибольшее значение, если только удовлетворяются дополнительные условия, связанные с направлениями волновых векторов (см. <sup>9,10</sup>). Аналогично получаются более высокие гармоники в стоксовой области с частотами  $\omega_0 - m\omega_r$ .

Следует заметить, что первый механизм появления частоты  $\omega_0 - 2\omega_r$  требует достижения определенного порога, тогда как второй не требует этого. В соответствии с этим первый механизм, по всей вероятности, имеет место при исследовании жидкости в резонаторе, поскольку условие для волновых векторов здесь не выполняется. Второй механизм может преобладать при исследовании жидкости вне резонатора, поскольку условие для волновых векторов выполняется и не требуется дополнительного достижения порога.

Гармоника в антистоксовой области с частотой  $\omega_0 + 2\omega_r$  создается без пороговых запретов при модуляции частоты  $\omega_0 + \omega_r$  колебаниями с частотой  $\omega_r$ . Излучение этой частоты испускается в направлении, определяемом равенством

$$\mathbf{k}_0 - \mathbf{k}_{-1} = \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1. \quad (17)$$

Угол между  $\mathbf{k}_0$  и  $\mathbf{k}_2$  составляет примерно  $2\theta_1$ . Другие антистоксовы гармоники с частотами  $\omega_0 - m\omega_r$  генерируются аналогичным образом в конусах с осью, совпадающей с первоначальным направлением луча.

Таким образом, полуклассическая теория комбинационного рассеяния света позволяет объяснить основные черты этого явления.

### б) К в а н т о в а я   т е о р и я   в ы н у ж д е н н о г о к о м б и н а ц и о н н о г о   р а с с е я н и я

Развитие квантовой теории вынужденного комбинационного рассеяния света происходит в нескольких направлениях. Ривуар и Дюпейре<sup>11</sup> указывают, что вынужденное комбинационное рассеяние следует уже из общей формулы Плачека<sup>12</sup>

$$W_{kn} = \frac{16\pi^4}{h^2} \sum_j \sum_{j'} \int \int \int q_j(v, O) \left\{ \frac{hv'}{c^3} + q_{j'}(v', O') \right\} |E_{kn}^{ak'n'}|^2 dv dO dO'. \quad (18)$$

Здесь  $W_{kn}$  — вероятность комбинационного рассеяния с частотой  $v'$  при возбуждении линией с частотой  $v$ , индексы  $k$  и  $n$  указывают соответственно начальное и конечное состояния молекулы;  $q_j(v, O) dv dO$  — плотность энергии возбуждающего излучения поляризации  $j$ , испускаемого в интервале частот  $dv$  в телесный угол  $dO$ ,  $q_{j'}(v', O') dv' dO'$  — то же для рассеянного излучения.

В этой формуле первый член представляет «спонтанное» комбинационное рассеяние. Отношение интенсивностей антистоксовой и стоксовой линий для спонтанного и стимулированного рассеяния различно:

$$\left( \frac{I_{as}}{I_s} \right)_{\text{сп}} = \left( \frac{v + v_{kn}}{v - v_{kn}} \right)^4 e^{-\frac{hv_{kn}}{kT}}, \quad (19)$$

$$\left( \frac{I_{as}}{I_s} \right)_{\text{ст}} = \frac{(v + v_{kn})}{(v - v_{kn})} \frac{q_{j'}(v + v_{kn}, O')}{q_{j'}(v - v_{kn}, O')} e^{-\frac{hv_{kn}}{kT}}. \quad (20)$$

Обычно кювета с исследуемым веществом помещается в резонатор типа интерферометра Фабри — Перо. Порог для возбуждения стимулированного комбинационного рассеяния достигается в том случае, когда благодаря возрастанию плотности  $q(v', O')$  стимулированного рассеянного излучения выигрыш в рассеянном излучении компенсирует потери в резонаторе. Если  $\Pi$  — объемная плотность энергии в резонаторе,  $\Delta v'$  — средняя ширина линии стимулированного комбинационного рассеяния, то

$$\Pi = q(v') \Delta v'.$$

Потери энергии даются выражением

$$\frac{d\Pi}{dt} = - \frac{\Pi(1-R)u}{l}. \quad (21)$$

Здесь  $R$  — коэффициент отражения пластин интерферометра,  $l$  — расстояние между пластинами,  $u$  — скорость распространения энергии в интерферометре. Выигрыш в энергии рассеянного излучения равен

$$\frac{d\Pi}{dt} = N(W_{kn})_{\text{ст}} hv', \quad (22)$$

где  $N$  — число молекул в начальном состоянии  $k$  на единицу объема внутри интерферометра. Порог достигается при

$$N(W_{kn})_{\text{ст}} \frac{hv'}{\Delta v'} = \frac{(1-R)u}{l} q(v'). \quad (23)$$

Если  $P_{\text{сп}}$  — мощность спонтанного рассеяния,  $V$  — освещаемый объем в интерферометре в отсутствие отражающих пластин, то

$$P_{\text{сп}} = \frac{(1-R)u}{l} \frac{8\pi h}{\lambda'^3} \Delta v' V. \quad (24)$$

Численные расчеты по этой формуле показывают, что необходимых значений мощности  $P_{\text{сп}}$  можно достичь только при очень мощных источниках возбуждения.

Джаван<sup>13</sup> дает квантовомеханическую схему расчета вынужденного комбинационного рассеяния. По существу, в этой схеме заложены те же идеи, которые были рассмотрены при обсуждении полуклассической теории явления. Однако запись основных положений теории в квантовомеханической форме позволяет лучше понять некоторые особенности процессов.

Рассмотрим систему с двумя уровнями, на которую действуют два поля с частотами  $\Omega$  и  $\omega$ , причем  $\omega < \Omega$ . Разность частот  $\Omega - \omega = (E_n - E_i)/\hbar$ , где  $E_n$  и  $E_i$  — энергии верхнего и нижнего уровней. В начальный момент времени присутствует достаточное количество фотонов обоих частот  $\omega$  и  $\Omega$ , поэтому индуцируются переходы из нижнего состояния в верхнее (фотон частоты  $\Omega$  поглощается, фотон частоты  $\omega$  испускается) и обратные переходы (фотон  $\omega$  поглощается, фотон  $\Omega$  испускается). Предположим, что  $W_r$  — скорость таких двухфотонных переходов ( $W_r$  одинакова для переходов  $i \rightarrow n$  и  $n \rightarrow i$ ). Полная испускаемая мощность на частоте  $\omega$  есть

$$P_i = (n_i - n_n) W_r \hbar \omega. \quad (25)$$

Мы имеем, таким образом, выигрыш мощности, если температура положительна ( $n_i > n_n$ ). Это — процесс индуцированный, и  $W_r$  пропорциональна полному числу падающих фотонов с частотами  $\Omega$  и  $\omega$ .  $W_r$  задается соотношением

$$W_r = \frac{2\pi}{\hbar} |K_{if}|^2 \varrho(\omega), \quad (26)$$

где  $\varrho(\omega)$  — плотность конечных состояний и

$$K_{if} = \sum_n \frac{\langle i | v | n \rangle \langle n | v | f \rangle}{E_i - E_n} \quad (27)$$

— матричный элемент возмущения второго порядка, связывающий начальное и конечное состояния, просуммированный по всем промежуточным состояниям. Если частота подкачки поглощается в полосе  $\Delta\Omega$ , то происходит усиление, определяемое полушириной полосы  $\Delta\Omega$ , где  $\Delta\Omega$  — полоса частот, большая чем ширина линии перехода. При этом фазовая когерентность не существенна.

В случае когерентного источника поле излучения можно рассматривать по классической теории. Поле  $E e^{i\omega t}$ , которое испускается, генерирует поляризуемость на единицу объема

$$\gamma = \chi E e^{i\omega t}, \quad (28)$$

где  $\chi = \chi' + i\chi''$  — комплексная восприимчивость. Средняя мощность, испускаемая в результате взаимодействия поля с поляризуемостью,

$$\Delta P = -\frac{1}{T} \operatorname{Re} \int_0^T \dot{\gamma} E dt = \frac{1}{2} \chi'' E_0^2 \omega, \quad (29)$$

где  $T = 1/\omega$ . Если предположить, что все атомы вначале находятся в основном состоянии, и разделить  $\Delta P$  на число атомов, то скорость переходов равна

$$W_r = \frac{\Delta P_a}{\hbar \omega} = \frac{1}{2} \chi''_a E_0^2, \quad (30)$$

где  $\chi''_a$  — восприимчивость на один атом.

Решение задачи проводится при помощи формального аппарата матрицы плотности  $\rho$ .

Для комбинационного рассеяния необходимы по крайней мере три уровня (рис. 3). Начальное (1) и конечное (3) состояния не связаны каким-либо дипольным матричным элементом. Однако промежуточный уровень (2) обеспечивает появление матричных элементов  $\mu_{1,2}$  и  $\mu_{2,3}$ , тогда как  $\mu_{1,3} = 0$ . Поляризуемость определяется из условия

$$\gamma = \sum_k \mu_{nk} Q_{kn} = \mu_{2,1} Q_{1,2} + \mu_{3,2} Q_{2,3} + \text{компл. сопр.} \quad (31)$$

Уравнения движения при наличии полей  $E_1$  и  $E_2$ :

$$\left. \begin{aligned} \dot{Q}_{1,2} + \frac{Q_{1,2}}{T} - i\omega_{2,1} Q_{1,2} &= -\frac{i}{h} \mu_{1,2} E (Q_{2,2} - Q_{1,1}) + \frac{i}{h} \mu_{3,2} E Q_{1,3}, \\ \dot{Q}_{2,3} + \frac{Q_{2,3}}{T} - i\omega_{3,2} Q_{2,3} &= -\frac{i}{h} \mu_{2,3} E (Q_{3,3} - Q_{2,2}) - \frac{i}{h} \mu_{2,1} E Q_{1,3}, \\ \dot{Q}_{1,3} + \frac{Q_{1,3}}{T} - i\omega_{3,1} Q_{1,3} &= -\frac{i}{h} \mu_{1,2} E Q_{2,3} + \frac{i}{h} \mu_{2,3} E Q_{1,2}. \end{aligned} \right\} \quad (32)$$

Здесь

$$\omega_{i,j} = \frac{E_i - E_j}{h}.$$

Таким образом, для схемы уровней на рис. 3 частоты  $\omega_{2,1}$  и  $\omega_{3,1}$  положительны, а  $\omega_{3,2}$  отрицательны. В этих уравнениях  $Q_{1,2}/T$  характеризует распад матричного элемента, связывающего состояния 1 и 2,  $(Q_{2,2} - Q_{1,1})$  — разность заселенностей состояний 2 и 1, а последний член представляет взаимодействие между состояниями 1 и 3 и т. д. Электрическое поле задается в виде

$$E = E_1 \cos(\omega t + \varphi_1) + E_2 \cos(\Omega t + \varphi_2). \quad (33)$$

Решения для  $Q_{1,2}$ ,  $Q_{2,3}$  и  $Q_{1,3}$  в пренебрежении насыщением имеют вид

$$\left. \begin{aligned} Q_{1,2} &= \lambda_{1,2} e^{i\omega t} + \lambda_{1,2}^- e^{-i\omega t} + \Lambda_{1,2} e^{i\Omega t} + \Lambda_{1,2}^- e^{-i\Omega t}, \\ Q_{2,3} &= \lambda_{2,3} e^{i\omega t} + \lambda_{2,3}^- e^{-i\omega t} + \Lambda_{2,3} e^{i\Omega t} + \Lambda_{2,3}^- e^{-i\Omega t}, \\ Q_{1,3} &= D^+ e^{i(\Omega-\omega)t} + D^- e^{-i(\Omega-\omega)t}. \end{aligned} \right\} \quad (34)$$

Рис. 3. Схема переходов при комбинационном рассеянии света.

Коэффициенты  $\lambda_{1,2}^-$ ,  $\lambda_{2,3}^-$  связаны с  $\Lambda_{1,2}$  и  $\Lambda_{2,3}$  через  $D^+$ , тогда как  $\lambda_{1,2}$ ,  $\lambda_{2,3}$  связаны с  $\Lambda_{1,2}^-$ ,  $\Lambda_{2,3}^-$  через  $D^-$ . Далее, полагая  $\Omega > \omega$ , находим, что уравнение для  $Q_{1,3}$  имеет резонанс, когда  $\Omega - \omega \approx \omega_{3,1}$ , что приводит к тому, что набор значений ( $\lambda_{1,2}^-$ ,  $\lambda_{2,3}^-$ ,  $\Lambda_{1,2}$  и  $\Lambda_{2,3}$ ) много шире, чем набор значений ( $\lambda_{1,2}$ ,  $\lambda_{2,3}$ ,  $\Lambda_{1,2}^-$  и  $\Lambda_{2,3}^-$ ). Полное выражение для каждого набора представляет собой четыре неоднородных линейных уравнения. Эти уравнения упрощаются, если предположить, что  $E_2 \gg E_1$ . В этом случае мы получаем коэффициенты, определяющие комбинационное рассеяние:

$$\lambda_{1,2}^- = -i \left| \frac{\mu_{2,3} E_2}{2h\Omega} \right|^2 \frac{\mu_{1,2}}{2h} (Q_{2,2} - Q_{3,3}) T \frac{E_1}{-i[\omega_{3,1} - (\Omega - \omega)] + \frac{1}{T}}, \quad (35)$$

где предполагается  $\Omega \gg \omega_{ij}$ , и

$$\lambda_{2,3}^- = -i \left| \frac{\mu_{1,2} E_2}{2\hbar \Omega} \right|^2 \frac{\mu_{2,3}}{2\hbar} (Q_{1,1} - Q_{2,2}) T \frac{E_1}{-i[\omega_{3,1} - (\Omega - \omega)] + \frac{1}{T}}, \quad (36)$$

где предполагается, что  $\Omega$  и  $\omega$  гораздо больше  $\omega_{ij}$ .

Поляризуемость определяется выражением

$$\gamma = \mu_{2,1} \lambda_{1,2}^- + \mu_{3,2} \lambda_{2,3}^- + \text{компл. сопр.} \quad (37)$$

Если подставить в  $\gamma$  выражения для  $\lambda_{1,2}^-$  и  $\lambda_{2,3}^-$ , то заселенность уровня  $Q_{2,2}$  выпадает. Итак,  $\gamma$  пропорционально  $(Q_{1,1} - Q_{3,3})$ , что можно было ожидать, исходя из обсуждавшегося уже вопроса о скорости излучения фотонов.

Прирост мощности дается формулой

$$\Delta P = \frac{\omega}{2} \chi'' E_1^2 l, \quad (38)$$

где  $l$  — длина образца. При этом из выражения  $\gamma = (\chi' + i\chi'') E e^{i\omega t}$  имеем

$$\chi'' = \left| \frac{\mu_{2,3} E_2}{2\hbar \Omega} \right|^2 \frac{|\mu_{1,2}|^2}{\hbar} T (Q_{1,1} - Q_{3,3}). \quad (39)$$

Отметим, что при  $Q_{1,1} > Q_{3,3}$ , т. е. при положительной температуре,  $\chi''$  положительна, в результате чего  $E_1$  усиливается.

Прирост стимулированного рассеянного излучения  $\Delta P/P$  можно получить, разделив приведенное выше выражение для  $\Delta P$  на  $P = E_1^2 l$ , что дает

$$G = \frac{\omega \chi''}{2}. \quad (40)$$

Это выражение можно привести к более привычному виду. Для этого сделаем упрощающее предположение, что все атомы находятся в состоянии 1, т. е.  $Q_{3,3} = 0$ . Далее заметим, что величина

$$A = \frac{\omega_{1,2}}{2} \frac{|\mu_{1,2}|^2 T Q_{1,1}}{\hbar} \quad (41)$$

есть коэффициент поглощения для наложенного поля. Эта величина может быть измерена непосредственно. Таким образом,

$$G = \frac{\omega}{\omega_{1,2}} \left| \frac{\mu_{2,3} E_2}{2\hbar \Omega} \right|^2 A. \quad (42)$$

В действительности могут существовать несколько уровней, играющих роль промежуточных состояний. Предыдущее обсуждение относится к наиболее важному уровню, для перехода на который поглощение наибольшее. Вообще говоря, нужно производить суммирование по всем промежуточным состояниям.

В конкретном случае, когда мощность излучения составляет 1 Мвт или  $E = 600$  CGSE, для электрического дипольного момента в 1 дебай и при  $\Omega = 10^{14}$  гц выигрыш мощности имеет вид

$$G = \frac{\omega}{\omega_{1,2}} A \left| \frac{\mu E}{2\hbar \Omega} \right|^2 \approx \frac{\omega}{\omega_{1,2}} A \left| \frac{10^{-18} \cdot 600}{10^{-27} \cdot 6 \cdot 10^{14}} \right|^2 \approx \frac{\omega}{\omega_{1,2}} A \cdot 10^{-6}.$$

Чтобы получить выигрыш, равный единице, нужно иметь сильное поглощение на частоте  $\omega_{1,2}$ .

Для антистоксовой линии нужно изменить роли  $\omega$  и  $\Omega$ . Для этого предположим, что в начальный момент имеется большое поле с частотой  $\Omega$ . Затем накладывается второе поле на частоте  $\omega_{as}$ , где  $\omega_{as} > \Omega$  и  $\omega_{as} - \Omega \approx \omega_{3,1}$ ; тогда фотоны с частотой  $\omega_{as}$  будут поглощаться. Так же как и выше, получим

$$\gamma_{as} = -i \left| \frac{\mu_{2,3} E_2}{2\hbar \Omega} \right|^2 \frac{\mu_{1,2}^2}{2\hbar} T E_{as} (q_{1,1} - q_{3,3}). \quad (43)$$

Здесь  $E_{as}$  — амплитуда поля с антистоксовой частотой. Таким образом, этот член комбинационного рассеяния всегда дает поглощение, если  $q_{1,1} > q_{3,3}$ .

Однако тот же самый набор уравнений при наличии полей с частотами  $\Omega$  и  $\omega$ , где  $\Omega - \omega \approx \omega_{3,1}$ , может привести к возрастанию осциллирующей компоненты  $\gamma$  на частоте  $\Omega + \omega_{3,1}$ . Этот эффект может привести к усилению антистоксовой компоненты, вопреки ее поглощению, согласно приведенному выше уравнению. Этот эффект имеет форму резонансного оптического смещения частот.

Запишем уравнения для матрицы плотности. В упрощающих предположениях, что температура низка, причем  $q_{1,1} = 1$ ,  $q_{2,2} = q_{3,3} = 0$ , получим

$$\left. \begin{aligned} \dot{q}_{1,2} + \frac{q_{2,1}}{T} - i\omega_{2,1} q_{1,2} &= \frac{i}{\hbar} \mu_{1,2} E q_{1,1} + i\hbar \mu_{3,2} E q_{1,3}, \\ \dot{q}_{2,3} + \frac{q_{2,3}}{T} - i\omega_{3,2} q_{2,3} &= \frac{i}{\hbar} \mu_{3,2} E q_{1,3}, \\ \dot{q}_{1,3} + \frac{q_{1,3}}{T} - i\omega_{3,1} q_{1,3} &= -\frac{i}{\hbar} \mu_{1,2} E q_{2,3} + \frac{i}{\hbar} \mu_{2,3} E q_{1,2}. \end{aligned} \right\} \quad (44)$$

Здесь

$$\begin{aligned} E &= E_1 \cos(\omega t + \varphi_1) + E_2 \cos(\Omega t + \varphi_2) = \\ &= (E_1^+ e^{i\omega t} + E_1^- e^{-i\omega t}) + (E_2^+ e^{i\Omega t} + E_2^- e^{-i\Omega t}), \end{aligned} \quad (45)$$

$$\text{причем } E_1^\pm = \frac{1}{2} E_1 e^{\pm i\varphi_1}, \quad E_2^\pm = \frac{1}{2} E_2 e^{\pm i\varphi_2}.$$

Далее,

$$\omega_{i,j} = \frac{E_i - E_j}{\hbar}.$$

Мы будем предполагать, что уровень 2 отстоит далеко от среднего расстояния между уровнями 1 и 3.

Отметим, что член  $\lambda_{1,2}^- e^{-i\omega t}$  имеет двойное происхождение. Одна часть коэффициента  $\lambda_{1,2}^-$  обсуждалась выше, она обуславливает член комбинационного рассеяния. Имеется другая часть, которая возникает из-за обычного резонансного поглощения на крыле, обусловленном взаимодействием одиночного кванта с уровнями 1, 2. Мы запишем ее как  $\Gamma_{1,2}^- e^{i\omega t}$ . В этом случае действительная часть  $\Gamma_{1,2}^-$  много больше, чем мнимая часть. Эта действительная часть не играет никакой роли в абсорбции одиночного кванта с частотой  $\omega$ , рассматриваемой здесь. Ее значение

$$\Gamma_{1,2}^- = \frac{\mu_{1,2} q_{1,1} E_1^-}{\hbar (\omega + \omega_{2,1})}.$$

Это значение можно получить из уравнения для  $\dot{q}_{1,2}$ , пренебрегая членом, пропорциональным  $q_{1,3}$ , и оценивая амплитуду при осциллирующей компоненте  $e^{-i\omega t}$ . Отметим, что упрощающее предположение  $q_{2,2} = q_{3,3} = 0$  дает  $\Gamma_{2,3} = 0$ , что очевидно из уравнения для  $\dot{q}_{2,3}$ . Заметим также, что в уравнении для  $\dot{q}_{1,3}$  величина  $q_{1,2}$  связана с  $E$ . Это дает осциллирующий член с частотой  $\Omega - \omega$  в  $q_{1,3}$ . Этот член имеет резонанс при  $\Omega - \omega \approx \omega_{3,1}$ .



Допустим, что такой резонанс имеет место. Тогда из  $\dot{Q}_{1,3}$  мы получим для компоненты  $Q_{1,3}$  с частотой  $\Omega - \omega \approx \omega_{3,1}$

$$Q_{1,3} = -\frac{i\mu_{1,2}\mu_{2,3}Q_{1,1}\Gamma}{\hbar^2(\omega + \omega_{2,1})} E_2^+ E_1^- e^{i(\Omega - \omega)t}. \quad (46)$$

Эта компонента  $Q_{1,3}$  в уравнениях для  $\dot{Q}_{1,2}$  и  $\dot{Q}_{2,3}$  порождает осциллирующие компоненты этих двух величин с частотой  $2\Omega - \omega$  вследствие связи  $Q_{1,3}$  с  $E$ . В результате имеем

$$Q_{1,2} = -\frac{i|\mu_{2,3}|^2\mu_{1,2}Q_{1,1}\Gamma}{\hbar^3(\omega + \omega_{2,1})(\Omega - \omega_{2,3})} E_2^+ E_2^+ E_2^- e^{i(2\Omega - \omega)t}, \quad (47)$$

$$Q_{2,3} = -\frac{i|\mu_{1,2}|^2\mu_{2,3}Q_{1,1}\Gamma}{\hbar^3(\omega + \omega_{2,1})(\Omega + \omega_{2,1})} E_2^+ E_2^+ E_2^- e^{i(2\Omega - \omega)t}, \quad (48)$$

$$\gamma = \mu_{2,1}Q_{1,2} + \mu_{3,2}Q_{2,3} + \text{компл. сопр.};$$

$\gamma$  равно действительной части величины

$$-i \frac{(\omega_{2,1} + \omega_{2,3})}{(\Omega + \omega_{2,1})(\Omega - \omega_{2,3})} \cdot \frac{2|\mu_{1,2}\mu_{2,3}|^2 Q_{1,1}\Gamma}{\hbar^3(\omega + \omega_{2,1})} E_2^+ E_2^+ E_2^- e^{i(2\Omega - \omega)t}.$$

Заметим, что если уровень 2 находится как раз по середине между уровнями 1 и 3, то  $\omega_{2,1} = -\omega_{2,3}$  и это выражение обращается в нуль. Однако если уровень 2 выше уровня 3,  $\omega_{2,1} \gg \omega_{3,1}$  и  $\omega_{2,1}$  сравнима с  $\Omega$  (например,  $\Omega$  порядка  $2\omega_{2,1}$ ), то

$$\gamma = -\beta \frac{2i|\mu_{1,2}\mu_{2,3}|^2 Q_{1,1}\Gamma}{\hbar^3\Omega^2} E_2^+ E_2^+ E_2^- e^{i(2\Omega - \omega)t}, \quad (49)$$

где  $\beta$  в указанных условиях порядка единицы.

Эта осциллирующая компонента может излучать с частотой  $2\Omega - \omega$ , равной частоте антистоксовой линии. Для антистоксовой линии, генерируемой полем  $E_2$ , мы имеем, как уже указывалось выше,

$$\gamma = -\beta \frac{2i|\mu_{1,2}\mu_{2,3}|^2 Q_{1,1}\Gamma}{\hbar^3\Omega^2} E_2^2 E_{as} e^{i(\Omega + \omega_{3,1})t}. \quad (50)$$

Отметим, что если  $E_2 \gg E_{as}$ , то в направлении, где  $2\varphi_2 - \varphi_1 = 0$  мы, получим параметрическое усиление на частоте  $2\Omega - \omega = \Omega + \omega_{3,1}$ , которое больше, чем потери.

Подобные эффекты могут существовать и для гармоник более высокого порядка.

В работе В. С. Машкевича<sup>14</sup> дается теория вынужденного комбинационного рассеяния в стоксовой области на основе кинетических уравнений. Автор приходит к выводу, что для получения узкочастотной генерации на «красных» спутниках желательно применять резонатор с максимальной частотной дисперсией. Это позволит использовать подкачку в интервале частот, который равен ширине линии рассеяния.

#### в) Теоретические расчеты некоторых процессов, характерных для вынужденного комбинационного рассеяния

Более детальные расчеты, позволившие охарактеризовать временной ход нарастания интенсивности вынужденного комбинационного рассеяния, а также уменьшение ширины излучаемой комбинационной линии, проведены в работах Хелуарса<sup>15, 16</sup>.

Хелуарс рассматривает активное в отношении комбинационного рассеяния света вещество, находящееся в полости резонатора. Начальная

фаза интересующего нас процесса характеризуется следующими условиями: а) имеется большое число  $n_\alpha$  фотонов в каждой моде резонатора вблизи частоты лазера  $\omega_\alpha$ ; б) в веществе лазера избыточная заселенность за счет формирования мощного импульса снизилась почти до нуля и не изменяется существенно во время комбинационного рассеяния; в) вещество, в котором происходит комбинационное рассеяние, находится в термодинамическом равновесии. Вещество рубинового лазера, следовательно, не участвует в исследуемом процессе вынужденного комбинационного рассеяния: его поглощение входит в общие потери в резонаторе. Оптические моды резонатора в основном описываются плоскими волнами, бегущими в противоположных направлениях, с постоянной амплитудой в области с сечением  $a$  и амплитудой, равной нулю за пределами этой области. Подобные лучи, проходя через активное в отношении комбинационного рассеяния вещество, вызывают прирост интенсивности смещенного по частоте излучения. Пусть  $g_\beta$  — прирост на длине 1 см излучения с частотой  $\omega_\beta$ , волновым вектором  $\mathbf{k}_\beta$  и поляризацией  $\mathbf{e}_\beta$ . В дальнейшем мы будем рассматривать только направление вдоль оси системы.

Если  $l$  — длина столба рассеивающего вещества (вдоль оси),  $\gamma_\beta$  — потери при прохождении светового луча через резонатор один раз, то условие усиления излучения с частотой  $\omega_\beta$  есть

$$g_\beta l > \gamma_\beta. \quad (51)$$

При этом величина  $\tau/\gamma_\beta$  является естественным временем затухания мод, близких к оси,  $\tau$  — время прохождения света через резонатор один раз.

Согласно теории вынужденного комбинационного рассеяния прирост интенсивности излучения, вызываемый плоскими волнами интенсивности  $I_\alpha$  (фотон/см<sup>2</sup>сек), равен

$$g_\beta = \sum_\alpha I_\alpha \sigma_{\alpha\beta} \lambda_\beta^4 \left[ 1 - \exp\left(-\frac{h\Delta_{\alpha\beta}}{kT}\right) \right] c_\beta^{-1} \quad [\text{см}^{-1}]. \quad (52)$$

Здесь  $\lambda_\beta$  — длина волны рассеянного света,  $c_\beta$  — скорость этой волны в веществе,  $\Delta_{\alpha\beta} = \omega_\alpha - \omega_\beta$ ,  $\sigma_{\alpha\beta}$  — сечение комбинационного рассеяния с изменением частоты от  $\omega_\alpha$  к  $\omega_\beta$  на единицу длины волны (в веществе), рассчитанное на 1 стерадиан и на единицу объема вещества. Для линейно поляризованного рассеянного света

$$\sigma_{\alpha\beta} = B \cos^2 \theta + C,$$

где  $\theta$  — угол между  $\mathbf{e}_\alpha$  и  $\mathbf{e}_\beta$ ;  $B$  и  $C$  — величины, зависящие от  $\omega_\alpha$  и  $\Delta_{\alpha\beta}$ . Уравнение (52) справедливо в предположении термодинамического равновесия, которое практически выполнено.

Теперь рассмотрим, каким образом фотон переходит из «падающей» моды резонатора  $\alpha$  в «рассеянную» моду  $\beta$ . Число фотонов  $n_\beta$  в каждой рассеянной моде резонатора должно подчиняться условию

$$\frac{dn_\beta}{dt} = \frac{n_\beta}{\tau} \left( g_\beta l - \gamma_\beta \right). \quad (53)$$

В этом уравнении учтены обычные потери в резонаторе и стимулированное комбинационное рассеяние, но не учтено обычное комбинационное рассеяние. Последнее можно учесть, заменив  $n_\beta$  на  $n_\beta + 1$ . Это уточнение существенно только для начального момента ( $t = 0$ ), так как в последующие моменты времени  $n_\beta \gg 1$ . Теперь можно составить уравнения, определяющие изменение  $g_\beta$  во времени. Для этого более удобно выразить  $g_\beta$  через число  $n_\alpha$  фотонов в каждой из падающих мод. Если  $I_\alpha$  — сумма

интенсивностей волн, распространяющихся вправо и влево, то  $n_\alpha = I_\alpha \tau a$ . При этом из (52) получаем

$$g_\beta - \sum_\alpha \sigma_{\alpha\beta} n_\alpha \lambda_\beta^4 \left[ 1 - \exp \left( -\frac{\hbar \Delta_{\alpha\beta}}{kT} \right) \right] c_\beta \tau a, \quad (54)$$

$$\frac{dn_\beta}{dt} = n_\beta \left( \sum_\alpha n_\alpha G_{\alpha\beta} - \omega_\beta \right), \quad (55)$$

где

$$G_{\alpha\beta} = \sigma_{\alpha\beta} \lambda_\beta^4 \left[ 1 - \exp \left( -\frac{\hbar \Delta_{\alpha\beta}}{kT} \right) \right] l / c_\beta \tau^2 a. \quad (56)$$

Здесь  $\omega_\beta (= \gamma_\beta \tau)$  — естественная скорость затухания моды  $\beta$  резонатора. Сумма по падающим модам  $\alpha$  в (55) означает, что фотоны из  $\alpha$ -мод резонатора переходят в  $\beta$ -моды; отсюда следует

$$\frac{dn_\alpha}{dt} = -n_\alpha \left( \sum_\beta n_\beta G_{\alpha\beta} + \omega_\alpha \right). \quad (57)$$

Уравнения (55) — (57) описывают стимулированное комбинационное рассеяние. Ввиду большой трудности решения этой системы рассматриваются два предельных случая.

Случай рассеяния малой доли падающих фотонов. В большинстве экспериментов, в которых наблюдалось стимулированное комбинационное рассеяние, в действительности рассеивалась только малая доля ( $10^{-3}$ — $10^{-1}$ ) числа падающих фотонов. Благодаря этому число падающих фотонов  $X(t) = \sum_\alpha n_\alpha$  можно считать убывающим только за счет нормального затухания  $X_0 \exp(-wt)$ . При этом интегрирование системы уравнений (55) дает

$$n_\beta = \eta \exp \left[ \frac{G_\beta X_0 (1 - e^{-wt})}{w} - \omega_\beta t \right]. \quad (58)$$

Здесь  $X_0$  — полное число фотонов, вызванных в начале мощным импульсом,

$$\eta = \left\{ 1 - \exp \left( -\frac{\hbar \omega_\beta}{kT} \right) \right\}^{-1}$$

— число фотонов, первоначально присутствующих в каждой  $\beta$ -моды. Для колебательных переходов молекул  $\eta \approx 1$ . Поскольку каждая  $\alpha$ -мода дает одинаковый эффект, имеем  $G_{\alpha\beta} = G_\beta$ . Из (58) видно, что отношение  $r_\beta$  начального прироста в  $\beta$ -моды к потерям в  $\alpha$ -моды должно удовлетворять условию

$$r_\beta = \frac{G_\beta X_0}{w} \gg \frac{\omega_\beta}{w}, \quad (59)$$

чтобы обеспечить такой большой рост, прежде чем число падающих фотонов затухнет.

Вычислим сначала полную мгновенно рассеянную мощность

$$\Phi(t) \equiv \sum_\beta \omega_\beta (n_\beta - \eta)$$

(фотон/сек), даваемую  $\beta$ -модой. К моменту времени, когда  $\Phi$  вырастает достаточно, чтобы дать заметный сигнал,  $r_\beta (1 - e^{-wt})$  настолько велико,

что предельная аппроксимация суммы по  $\beta$  выполняется очень точно. В связи с этим примем  $r_\beta \approx r(1 - \delta^2)$ , где для линии дисперсионной формы  $\delta$  представляет смещение частоты  $\beta$ -моды от центра линии в единицах полуширины линии. Моды можно считать распределенными непрерывно с плотностью  $\varrho$ . Следовательно, из (58) (предполагая  $w_\beta = W = \text{const}$ )

$$\Phi(t) \rightarrow W\varrho\eta\pi^{1/2} [r(1 - e^{-wt})]^{-1/2} \exp[r(1 - e^{-wt}) - Wt]. \quad (60)$$

Это выражение применимо для моментов времени вскоре после того, как началось рассеяние (т. е. для  $wt > r^{-1}$ ). Выходная мощность имеет пик в момент  $t_m$ , который приближенно получается из условия

$$wt_m = \ln \left( \frac{rw}{W} \right) \quad (61)$$

и может достигать нескольких постоянных времени  $w^{-1}$ , так как при заметном лазерном действии  $r \gg W/w$ . Это означает, что значение выходной мощности в пике приблизительно равно

$$\Phi_m \approx W\varrho\eta \left( \frac{W}{wr} \right)^{W/w} e^{r-W/w} \left( \frac{\pi}{r} \right)^{1/2}. \quad (62)$$

(В (60) мы приближенно заменили множитель  $[1 - \exp(-wt)]^{-1/2}$  единицей.) Кривые зависимости  $\Phi$  от  $wt - \ln r$  (при нескольких значениях параметра  $W/w$ ) приведены на рис. 4. С точки зрения эксперимента представляет интерес величина  $\xi_\beta$  — доля начальных фотонов  $X_0$ , которые рассеиваются в  $\beta$ -моды при различных отклонениях  $\delta$  от центра линии, а также  $\sum_{\beta} \xi_\beta$ , пропорциональная

Рис. 4. График уравнения (60) для рассеянной мощности  $\Phi$  как функции  $wt - \ln r$ .  $w$  — естественная скорость затухания мод падающего света,  $r$  — отношение пикового начального прироста комбинационного рассеяния  $X_0 G$  к потерям  $w$  падающей моды. Кривые 1, 2 и 3 соответствуют  $W/w = 1/2, 1$  и  $2$ , где  $W$  — естественная скорость затухания рассеянных мод.

интегральной интенсивности линии с частотой  $\omega_\beta$ . Согласно (55)

$$\xi_\beta = G_\beta \int_0^\infty n_\beta(s) \frac{X(s)}{X_0} ds. \quad (63)$$

Принимая во внимание (58) и заменяя  $v = re^{-wt}$ , имеем

$$\xi_\beta = \eta r_\beta^{-W/w} e^{r_\beta} \int_0^r e^{-v} \frac{v^{W/w}}{X_0} dv. \quad (64)$$

При заметном рассеянии  $W/w \ll r$ . Следовательно, для наиболее важных мод вблизи центра линии подынтегральное выражение в (64) при  $v = r$  так мало, что верхний предел можно заменить на  $\infty$ . Следовательно,

$$\xi_\beta = r_\beta^{-W/w} X_0^{-1} \Gamma \left( 1 + \frac{W}{w} \right) \exp(-r_\beta), \quad (65)$$

где  $\Gamma(x)$  — гамма-функция. Отсюда видно, что полуширина рассеянной линии сужается по сравнению с обычной линией комбинационного

рассеяния в  $\delta_{1/2}$  раз, где

$$\delta_{1/2} = \left( \frac{\ln 2}{r} \right)^{1/2} \quad (66)$$

(конечно, каждая мода испускает очень узкую линию).

Рассмотрим теперь случай, когда рассеивается значительная доля падающих фотонов (до 30%, по наблюдениям с нитробензолом). В этом случае проведенное рассмотрение будет непригодно ввиду большой чувствительности решений уравнений (55) и (57) к небольшим изменениям  $w_\beta$  и  $G_\beta$ . Более того, сама идея об отдельных модах теряет свое значение, так как рост мощности излучения в моде за время однократного прохождения света в резонаторе оказывается значительным и моды перекрываются.

Мы преобразуем уравнения (55) — (57), полагая, что потери для всех фотонов одинаковы ( $w_\beta = W$ ) и усиление одинаково ( $G_\beta = G$ ). Обозначив сумму рассеянных фотонов через  $Y(t)$ , запишем

$$\frac{dY}{dt} = Y(XG - W), \quad (67)$$

$$\frac{dX}{dt} = -X(YG + w), \quad (68)$$

где  $G$  — пиковое значение, получаемое из (56). Начальное значение предположительно представляет собой число термических фотонов, присутствующих в модах.

Разделив уравнение (67) на (68) и проинтегрировав результат, находим

$$(X - X_0 + Y - Y_0) G \frac{w}{W} = \ln \left( \frac{XY_0}{YX_0} \right). \quad (69)$$

Отсюда в принципе можно получить  $X(Y)$  и, подставляя в (68), найти  $X(t)$ . Ввиду математических трудностей, мы ограничимся оптимальным и наиболее интересным случаем, когда  $w = W$ . При этом из (67) и (68)

$$X + Y = (X_0 + Y_0) e^{-wt}, \quad (70)$$

что вместе с (69) дает

$$Y = be^{-wt} \left\{ 1 + d \exp \left[ \frac{Gb(e^{-wt} - 1)}{w} \right] \right\}^{-1}, \quad (71)$$

где  $b = X_0 + Y_0$  и  $d = X_0/Y_0$ . Это решение для  $X_0G/w = 40$ ,  $d = 10^{15}$  представлено на рис. 5. На том же рисунке приведен график для  $X(t)$ . Как можно видеть,  $X(t)$  затухает нормально по экспоненте:  $X_0 \exp(-wt)$ , пока  $Y(t)$  растет от сравнительно малых значений почти до максимума. Затем  $X(t)$  внезапно падает почти до нуля, причем все фотоны, которые

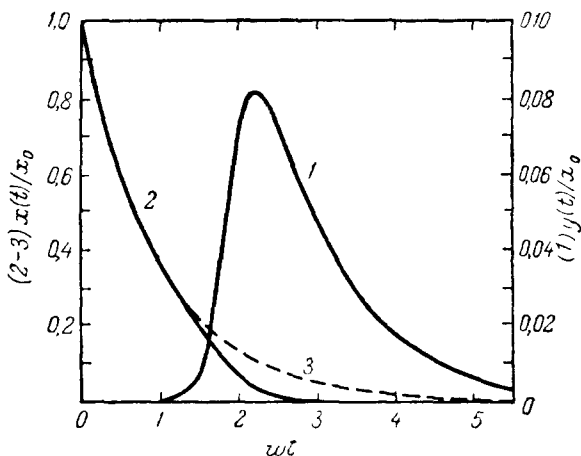


Рис. 5. Кривая 1, (правая система ординат) дает график уравнения (71) для отношения числа рассеянных фотонов к начальному числу фотонов в возбуждающем импульсе  $Y/X_0$  как функции  $wt$  для значения параметра  $d = \frac{X_0}{Y_0} = 10^{15}$ . Кривая 2 (левая система ординат) дает отношение числа возбуждающих фотонов к начальному числу фотонов  $X/X_0$  как функцию  $wt$ . Кривая 3 показывает, как вело бы себя  $X/X_0$  в зависимости от  $wt$  в отсутствие вынужденного комбинационного рассеяния.

были в возбуждающем свете, переходят в рассеянный свет. Рассеянный свет затухает затем по экспоненциальному закону. Из (71) следует, что время  $t_m$  для достижения максимума рассеяния подчиняется тому же условию (61), как и в случае слабого рассеяния. Оценка спектральной ширины выходящей линии дает такой же результат, как для слабого рассеяния (см. (66)). Таким образом, два граничных случая дают в этом отношении согласующиеся результаты. Численные оценки, проведенные на основе развитой выше теории, дали результаты, хорошо согласующиеся с экспериментальными данными для нитробензола.

#### 4. ОПТИЧЕСКИЕ КВАНТОВЫЕ ГЕНЕРАТОРЫ НА ОСНОВЕ ВЫНУЖДЕННОГО КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ СВЕТА

Обсуждавшиеся выше экспериментальные и теоретические работы показывают, что вынужденное комбинационное рассеяние света имеет большие перспективы практического использования для преобразования лазерного излучения из одной спектральной области в другую. Наряду с этим на основе явления вынужденного комбинационного рассеяния могут быть созданы разнообразные оптические квантовые генераторы.

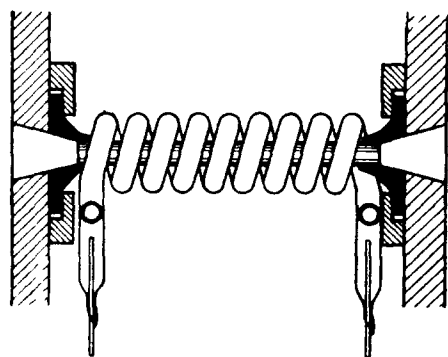


Рис. 6. Схема установки для наблюдения обращенного спектра комбинационного рассеяния.

Как указывалось выше, при экспериментальных исследованиях вынужденного комбинационного рассеяния в качестве источника возбуждающего излучения использовался оптический квантовый генератор на рубине. Это обусловлено тем, что порог генерации вынужденного комбинационного рассеяния довольно высок, т. е. требуются большие плотности энергии, порядка  $1000 \text{ (вт/см}^2\text{)/см}^{-1}$ , достичь которые

с помощью других известных источников излучения затруднительно. Но, безусловно, получение вынужденного комбинационного рассеяния от «обычных» источников возбуждающего излучения представляется в принципе вполне возможным.

Относительно недавно стала известна работа Беккера<sup>18</sup>, в которой предпринята попытка получить оптический квантовый генератор, работающий на принципе комбинационного рассеяния. На рис. 6 схематически показана установка, которая была использована в этом эксперименте. В качестве исследуемого объекта взят  $\alpha$ -кварц. Образец из  $\alpha$ -кварца был изготовлен в виде цилиндра с полированными торцами. Полировка торцов проводилась с допусками на параллельность поверхностей и на их плоскостность, обычными для оптических квантовых генераторов. Цилиндр вырезался таким образом, чтобы его ось совпадала с осью симметрии кристалла. В качестве источника возбуждающего излучения использовалась специально изготовленная мощная кварцевая лампа спиральной формы с электродами из жидкой ртути. Лампа откачивалась до высокого вакуума. Для того чтобы получить максимальную световую мощность, лампа использовалась в импульсном режиме. Подводимая к лампе электрическая энергия накапливалась на высоковольтных конденсаторах. Установка позволяла получать электрические разряды с энергией от 0,25 до 250 дж. В этих условиях максимальная мощность

электрического разряда достигала 20 *Мвт*. Регистрация излучения проводилась на специально разработанной для этой цели спектральной установке, включающей кварцевый спектрограф и поворотный стол. Поворотный стол позволял менять положение оси симметрии образца относительно оси спектрографа, что давало возможность в значительной мере уменьшить

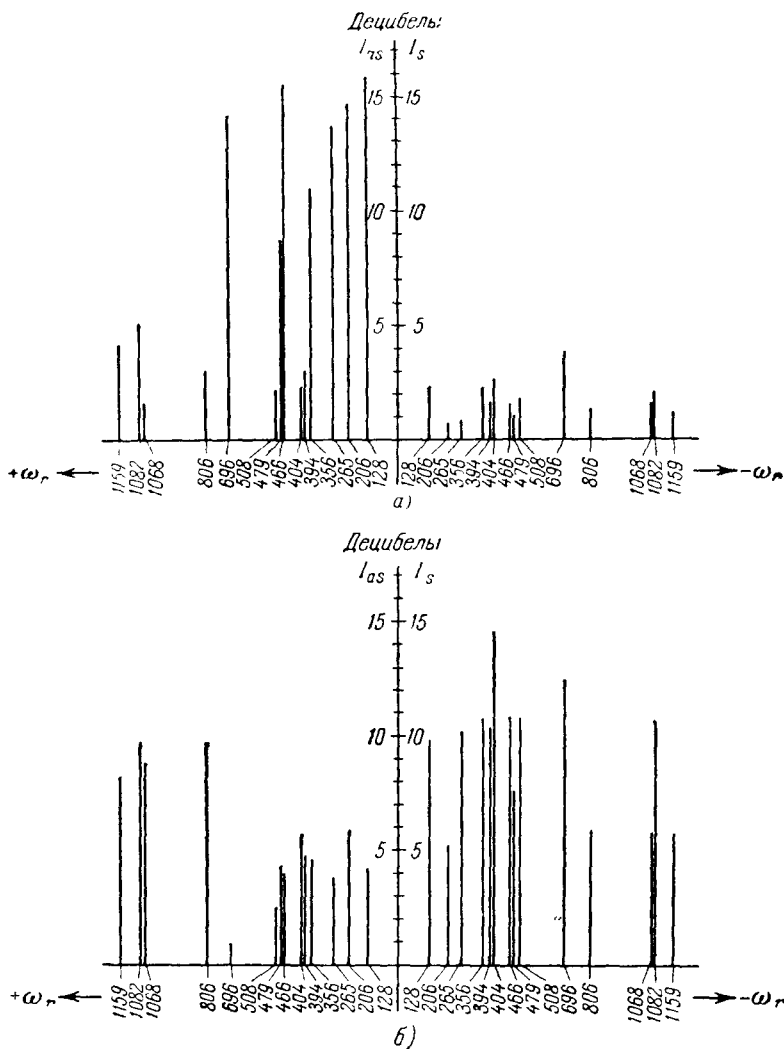


Рис. 7. Спектр комбинационного рассеяния  $\alpha$ -кварца (основные колебания), полученный при импульсном возбуждении: а) обращенный, б) обычный спектр.

долю паразитного ультрафиолетового излучения, попадающего в спектрограф. При этих условиях удавалось исследовать линии  $\alpha$ -кварца в интервале от 93 до 1500  $\text{см}^{-1}$ . Максимальная эффективность установки была достигнута при фотоэлектрической регистрации. В этом случае входная щель фотоумножителя совмещалась с фокальной плоскостью камеры.

В работе исследовалась зависимость отношения интенсивностей Stokesовых линий комбинационного рассеяния к антистоксовым от энергии подсветки. Исследование проводилось при возбуждении спектров ком-

бинационного рассеяния ультрафиолетовыми линиями ртути 2537 и 3650 Å. Автор мог варьировать энергию подкачки в широких пределах: при возбуждении спектров комбинационного рассеяния линией 2537 Å подкачка менялась от 6 до 100 дж, а при возбуждении линией 3650 Å — от 0,25 до 15 дж.

Из теории известно (см., например, <sup>12</sup>), что в нормальных условиях отношение интенсивностей антистоксовых линий  $I_{as}$  к стоксовым  $I_s$  всегда меньше единицы. Автор наблюдал аномальный эффект, т. е.  $I_{as}/I_s > 1$ . Этот эффект — эффект обращения — наблюдался не только у линий основных частот, но и у обертонов и составных частот. В общей сложности обращение наблюдалось более чем у 70 линий. На рис. 7, а схематически приведен обычный (т. е. при малых энергиях вспышки) спектр комбинационного рассеяния α-кварца. Уже здесь для некоторых линий  $I_{as}/I_s$  больше единицы. Автор объясняет это тем, что время вспышки малό и, следовательно, молекулы не могут следить за интенсивностью подкачки из-за ангармоничности. На рис. 7, б приведен вид спектра при большой энергии подкачки. Из рисунка видно, что все антистоксовы линии имеют бόльшую интенсивность, чем стоксовы. В ходе эксперимента выяснилось, что линия 3650 Å более эффективна. Например, при энергии подкачки 6 дж спектр комбинационного рассеяния, возбужденный линией 3650 Å, полностью обращен, а спектр от линии 2537 Å имеет нормальный вид. Автор обнаружил, что эффект обращения наступает при достижении определенного порога, причем этот порог достаточно резко выражен (изменение напряжения на батарее конденсаторов на 10% приводит к полному обращению спектра). Необходимо отметить, что исследования проводились без использования резонатора.

Чтобы объяснить полученные результаты, автор провел теоретическое исследование возможности создания оптического квантового генератора на основе явления комбинационного рассеяния. Исходя из теории Плачека <sup>12</sup> и используя его методы, Беккер получил <sup>18</sup> выражения для вероятностей переходов в единицу времени на частотах собственных колебаний молекул и на антистоксовых частотах. Из анализа этих выражений автор приходит к выводу о принципиальной возможности создания оптического квантового генератора, основанного на явлении комбинационного рассеяния света. Физическая картина этого явления фактически не отличается от картины, описанной Таунсом и др. (см. гл. 3).

Рассматривая известное выражение для отношения интенсивностей антистоксовых линий к стоксовым линиям комбинационного рассеяния

$$\frac{I_{as}}{I_s} = \frac{N_+}{N_0} \left( \frac{\omega_0 + \omega_r}{\omega_0 - \omega_r} \right)^4,$$

где  $\omega_0$  и  $\omega_r$  — частоты возбуждающего излучения и колебания молекул соответственно, а  $N_+/N_0$  — отношение заселенностей возбужденного и невозбужденного состояний, автор приходит к выводу, что обращение может получиться только в том случае, если температура системы отрицательна. Действительно, в обычных условиях отношение  $N_+/N_0$  подчиняется бoльцмановскому распределению, т. е.

$$\frac{N_+}{N_0} = e^{-\frac{\hbar\omega_r}{kT}}.$$

Таким образом, в обычных условиях  $I_{as}/I_s$  всегда меньше единицы. Следовательно,  $I_{as}/I_s > 1$  можно получить только в том случае, если в системе наблюдается обращенная заселенность, т. е.  $T < 0$ . Автор <sup>18</sup> считает, что его эксперимент доказывает наличие обращенной заселенности, а это открывает возможность получения генерации на частоте  $\omega_r$ .



Приведенные в данной работе результаты представляют большой интерес, но, как нам кажется, требуют осторожного подхода. Так, например, автор утверждает, что он наблюдал явление квантовомеханического усиления порядка 25 дБ для антистоксовых линий с частотами 1230 и 1398  $\text{см}^{-1}$  (третья гармоника частоты 466  $\text{см}^{-1}$ ). Но для того чтобы на какой-либо частоте наблюдалось усиление, необходимо присутствие излучения на этой частоте. Автор выяснил, что антистоксова линия с частотой 1230  $\text{см}^{-1}$  совпадает с линией ртутного спектра 28 622  $\text{см}^{-1}$ , т. е. для нее данное условие выполняется. Однако для антистоксовой линии с частотой 1398  $\text{см}^{-1}$  какого-либо ультрафиолетового излучения обнаружено не было, поэтому усиление на этой частоте не объяснено.

Возможность создания оптических квантовых генераторов (в том числе в инфракрасной области спектра), работа которых основана на явлении комбинационного рассеяния света, обсуждалась и в других работах, например Таунсом<sup>10</sup>, Джаваном<sup>13</sup>. Более того, Лаудон<sup>19</sup> теоретически исследовал возможность создания оптического квантового генератора, работающего на частоте колебаний кристаллической решетки. Им получено теоретическое выражение для порога генерации. Численный расчет по этой формуле дает  $n_0 > (1 - R) \cdot 2 \cdot 10^{26}$  фотон/ $\text{см}^3$ , где  $n_0$  — количество возбуждающих фотонов,  $R$  — коэффициент отражения зеркал, учитывающий все потери в резонаторе. Аналогичные расчеты были проделаны Цайгером<sup>17</sup>. Величина порога, определенная Цайгером, несколько выше, чем у Лаудона.

В заключение заметим, что исследования вынужденного комбинационного рассеяния развиваются очень быстрыми темпами. Несомненно, что в ходе дополнительных работ в этом направлении удастся получить более строгую трактовку явления и выяснить возможности его практического применения.

*Примечание при корректуре.* После того, как обзор был сдан в печать, появился ряд новых работ по вынужденному комбинационному рассеянию света.

В работах<sup>20,21</sup> разработан ряд вопросов теории двухфотонных процессов, включающих, в частности, процессы, происходящие при работе лазера на комбинационном рассеянии. В обеих статьях приводятся выражения, определяющие порог генерации лазера на комбинационном рассеянии. Работа<sup>22</sup> посвящена экспериментальной проверке нескольких противоречивых идей, предложенных в работах Терхуна<sup>7</sup> и Цайгера и Таппенвальда<sup>17</sup>, объясняющих угловое распределение в излучении лазера на комбинационном рассеянии. Две работы<sup>23,24</sup> констатируют создание комбинационных лазеров на новых веществах. Экхард и др.<sup>23</sup> получили генерацию на линиях комбинационного рассеяния алмаза, кальцита и  $\alpha$ -серы. Минк и сотр. исследовали комбинационный лазер на водороде, дейтерии и метане. Получена генерация в области спектра от 6000 до 30 950  $\text{см}^{-1}$ . В последнее время нам также удалось наблюдать вынужденное комбинационное рассеяние на некоторых органических жидкостях.

#### ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. Л. И. Мандельштам, Собр. соч., т. 1, М., Изд-во АН СССР, 1948, стр. 293; Г. С. Ландсберг, Избр. труды, М., Изд-во АН СССР, 1958, стр. 355.
2. E. J. Woodbury, W. K. Ng, Proc. IRE 50, 2367 (1962).
3. A. Javan, Bull. Amer. Phys. Soc. 3, 213 (1958); J. phys. et. radium 19, 806 (1958).
4. G. Eckhardt, R. W. Hellwarth, F. G. McClung, S. E. Schwarz, D. Weiner, E. J. Woodbury, Phys. Rev. Letts. 9, 455 (1962); Electronic Design 11, 28 (1963).
5. M. Geller, D. P. Bortfeld, W. R. Sooy, Appl. Phys. Letts. 3, 36 (1963).
6. M. Geller, D. P. Bortfeld, W. R. Sooy, E. J. Woodbury, Proc. IEEE 51, 1236 (1963).
7. R. W. Terhune, Bull. Amer. Phys. Soc. 8, 359 (1963); А. Шавлов, УФН 81 (4), 745 (1963).
8. B. P. Stoicheff, International School of Physics «Enrico Fermi», XXXI Course, August 19—31, 1963.

9. E. Garmire, F. Pandarese, C. H. Townes, Phys. Rev. Letts. **11**, 160 (1963).
  10. C. H. Townes, International School of Physics «Enrico Fermi», XXXI Course, August 19—31, 1963.
  11. G. Rivoire, R. Durey, Comp. rend. **256**, 1947 (1963).
  12. Г. Плачек, Релеевское рассеяние и раман-эффект, Харьков, Гостехиздат Украины, 1935.
  13. A. Javan, International School of Physics «Enrico Fermi», XXXI Course, August 19—31, 1963.
  14. В. С. Машкевич, Укр. фіз. ж. **8**, 1035 (1963).
  15. R. W. Hellwarth, Phys. Rev. **130**, 1850 (1963).
  16. R. W. Hellwarth, Appl. Optics **2**, 847 (1963).
  17. H. J. Zeiger, P. E. Tannenwald, Proc. Third Quantum Electronic Conference, Paris, 1963, стр. 209.
  18. C. H. Bekker, Zs. Phys. **172**, 125 (1963).
  19. R. Loudon, Pros. Phys. Soc. **82**, 393 (1963).
  20. В. Т. Платоненко, Р. В. Хохлов, ЖЭТФ **46**, 555 (1964).
  21. В. М. Файн, Э. Г. Яшин, ЖЭТФ **46**, 695 (1964).
  22. H. J. Zeiger, P. E. Tannenwald, S. Kern, R. Herendeen, Phys. Rev. Letts. **7**, 419 (1963).
  23. G. Echardt, D. P. Bortfeld, M. Geller, Appl. Phys. Letts. **3**, 137 (1963).
  24. R. W. Minck, R. W. Terhune, W. G. Rado, Appl. Phys. Letts. **3**, 181 (1963).
-