

## К ВОПРОСУ ОБ "АНОМАЛИЯХ" ВКР

*О.П.Заскалько, А.А.Зозуля, В.В.Кузьмин*

Изложены представления, позволяющие с единой точки зрения объяснить асимметрию индикатрисы, а также особенности энергетических и спектральных характеристик ВКР, наблюдаемые экспериментально и не получившие теоретического объяснения.

Экспериментальные исследования ВКР обнаружили ряд особенностей, не укладывающихся в существующую теорию <sup>1-3</sup> этого процесса. Такие особенности были названы "аномалиями" ВКР. К их числу следует отнести, во-первых, асимметрию индикатрисы рассеяния — интенсивность ВКР вперед значительно превышает интенсивность ВКР назад <sup>1</sup>. Во-вторых, насыщение рассеяния назад может наступать при интенсивности стоксовой компоненты на 2 — 3 порядка меньше интенсивности накачки <sup>4</sup> и в общем случае не связано с ее истощением, а также с возбуждением более высоких компонент ВКР. В-третьих, спектральное распределение ВКР значительно сложнее, чем это следует из теории. А именно, в спектре наблю-

дается квазирегулярная тонкая структура, при этом полная ширина спектра в области насыщения растет с ростом энергии накачки <sup>5</sup>.

В настоящем сообщении предлагается физический механизм, позволяющий с единой точки зрения объяснить все перечисленные особенности. Этот механизм состоит в возникновении самонаведенных частотных сдвигов электромагнитных волн в процессе ВКР и нарушении условий фазового синхронизма во всей области нелинейного взаимодействия.

Для описания процесса ВКР волны накачки  $E_0$  с образованием стоксовых компонент  $E_{\pm 1}$ , отвечающих рассеянию вперед и назад, соответственно, воспользуемся следующей системой уравнений:

$$\begin{aligned} \pm \frac{\partial}{\partial z} E_{\pm 1} - i \frac{\omega_s}{2nc} \delta\epsilon E_{\pm 1} &= i \frac{\omega_s}{nc} \pi N \left( \frac{\partial \alpha}{\partial Q} \right) q_{\pm 1}^* E_0, \\ \left( \frac{\partial}{\partial t} + \frac{1 + i\Delta_{\pm 1}}{T_2} \right) q_{\pm 1} &= \frac{i}{4M\Omega} \left( \frac{\partial \alpha}{\partial Q} \right) E_0 E_{\pm 1}^*, \\ \frac{\partial}{\partial t} \delta\epsilon &= - \frac{\omega_s}{\omega_0} A \frac{\partial}{\partial z} |E_0|^2 \equiv A \frac{\partial}{\partial z} (|E_1|^2 - |E_{-1}|^2). \end{aligned} \quad (1)$$

Система (1) записана в общепринятых обозначениях и отличается от обычно применяемой для описания ВКР <sup>3</sup> наличием нелинейной добавки к диэлектрической проницаемости среды  $\delta\epsilon$ . Чтобы показать, что обсуждаемые эффекты имеют место при интенсивности рассеяния значительно меньшей интенсивности накачки, истощением накачки пренебрежено везде, а исключением уравнения для  $\delta\epsilon$ , где оно определяет число квантов ВКР, возникающих в единице объема в единицу времени.

Появление добавки  $\delta\epsilon$  связано с двумя механизмами. При ВКР из волны накачки в среду передается поток энергии  $i(\Omega N/8)(\partial\alpha/\partial Q)[E_0 E_{\pm 1}^* q_{\pm 1}^* + E_0 E_1^* q_1^* - \text{к.с.}]$ , который тратится на перевод молекул из основного в возбужденное состояние. В веществах с малым временем релаксации колебательной энергии ( $T_1 \ll t_n, t_n$  — длительность импульса накачки)  $\delta\epsilon$  обусловлена нагревом среды, в соответствии с чем  $A = (\partial n/\partial T) cn^2 \Omega/4\pi\omega_s \rho c_p$ . Напротив, в веществах с большим временем релаксации ( $T_1 \gg t_n$ )  $\delta\epsilon$  обусловлена разностью  $\Delta\alpha$  поляризуемости молекул  $\alpha$  в основном и возбужденном состоянии, в соответствии с чем  $A = (\Delta\alpha/\alpha) \cdot (n^2 - 1) cn/4\pi\hbar\omega_s N$ . Наличие меняющейся во времени добавки к диэлектрической проницаемости среды  $\delta\epsilon$  приводит к возникновению у волн  $E_0, E_{\pm 1}$  сдвигов мгновенных частот при их распространении по нелинейной среде. В случае стационарного рассеяния, когда интенсивности волн  $E_0, E_{\pm 1}$  не зависят от времени, это отвечает амплитудам взаимодействующих волн вида:

$$E_0(z, t) = \mathcal{E}_0(z) \exp \left[ i \frac{\omega_0 A}{2nc} \int_0^z dz' \frac{\partial}{\partial z'} (|\mathcal{E}_1(z')|^2 - |\mathcal{E}_{-1}(z')|^2) t \right], \quad (2)$$

$$E_{\pm 1}(z, t) = \mathcal{E}_{\pm 1}(z) \exp \left[ i \frac{\omega_s A}{2nc} \int_l^z dz' \frac{\partial}{\partial z'} (|\mathcal{E}_1(z')|^2 - |\mathcal{E}_{-1}(z')|^2) t \right],$$

где амплитуды  $\mathcal{E}_{0, \pm 1}$  зависят только от координаты; интегрирование в формуле для  $E_{\pm 1}$  ведется на интервале  $(l, z)$ , а в формуле для  $E_0$  на интервале  $(0, z)$ ; здесь  $z=0$  и  $z=l$  — границы нелинейной среды, накачка входит со стороны границы  $z=0$ .

Как следует из формулы (2), возникающие в процессе ВКР нелинейные добавки к частоте электромагнитных волн явно зависят от координаты. В результате появляется меняющаяся в пространстве отстройка от центра линии усиления. Такую отстройку невозможно компенсировать никаким подбором  $\Delta_{\pm 1}$ , следовательно, эффективность рассеяния должна понижаться. Для доказательства этого утверждения проанализируем решение системы уравнений (1). Вначале рассмотрим ВКР с возбуждением только одной из рассеянных волн, для

определенности  $E_{-1}$ . Решение системы (1) дает следующее соотношение, определяющее максимизированную по  $\Delta_{-1}$  интенсивность рассеяния назад  $I_{-1} = cn |E_{-1}(0)|^2 / 8\pi$  как функцию интенсивности накачки  $I_0 = cn |E_0|^2 / 8\pi$

$$\ln I_{-1}(0)/I_{\text{ш}} + \frac{1}{2} h_{\text{н}}^2 I_{-1}^2(0) = gI_0 l. \quad (3)$$

Здесь  $I_{\text{ш}}$  — интенсивность шумовой затравки,  $g = (4\pi^2 N \omega_s T_2 / c^2 M \Omega n^2) (\partial \alpha / \partial Q)^2$ ,  $h_{\text{н}} = (4\pi A \omega_s T_2 / c^2 n^2) (1 + \omega_0 / \omega_s)$ . При этом частотный сдвиг выходящего рассеянного излучения равен

$$\Delta_{-1} = -h_{\text{н}} I_{-1}(0). \quad (4)$$

Из формулы (3) следует, что экспоненциальный рост интенсивности рассеянного излучения при достижении уровня рассеяния  $I_{-1}(0) \sim h_{\text{н}}^{-1} (gI_0 l)^{1/2}$  сменяется медленным корневым ростом. При рассеянии вперед получаем уравнение, аналогичное (3), но насыщение будет определяться параметром  $h_{\text{в}} = h_{\text{н}} (1 - \omega_0 / \omega_s) (1 + \omega_0 / \omega_s)^{-1} \approx h_{\text{н}} / 20$ . Таким образом, насыщение рассеяния назад происходит на существенно более низком уровне, по сравнению с рассеянием вперед, и в общем случае не связано с истощением накачки. При этом насыщение рассеяния вперед может быть не связано с обсуждаемым механизмом и определяться истощением накачки или параметрическим возбуждением высших компонент ВКР.

Совместное решение системы (1) для волн  $E_{+1}$  и  $E_{-1}$  при условии отсутствия насыщения рассеяния вперед приводит к еще более жесткому по сравнению с (3) насыщению рассеяния назад

$$I_{-1}(0) = I_{\text{ш}} \exp(gI_0 l) [1 + h_{\text{н}}^2 I_{\text{ш}}^2 \exp(2gI_0 l)]^{-1/2}. \quad (5)$$

Таким образом, обсуждаемый механизм позволяет объяснить асимметрию индикатрисы рассеяния (уровень рассеяния вперед выше) и насыщение рассеяния назад на уровне  $I_{-1}(0) \approx h_{\text{н}}^{-1}$ . Например, для жидкого азота,  $T_1 \approx 2$  с,  $\Delta\alpha/\alpha = 1,5 \cdot 10^{-2}$  и  $T_2 = 75$  пс<sup>3</sup>,  $h_{\text{н}} = \frac{\Delta\alpha}{\alpha} \frac{n^2 - 1}{n} \frac{T_2}{\hbar N c} \left(1 + \frac{\omega_s}{\omega_0}\right) \approx 0,5 \cdot 10^{-4}$  см<sup>2</sup>/МВт, откуда  $I_{-1}^{\text{max}}(0) = 20$  ГВт/см<sup>2</sup>. Это

находится в хорошем согласии с наблюдаемым уровнем насыщения ВКР назад в азоте<sup>4,6</sup>. Для веществ с малым  $T_1$  в предположении, что на характерном масштабе изменения поля рассеянной волны поперек пучка  $l_{\perp}$  успевает произойти тепловое расширение ( $l_{\perp}/v_s < t_{\text{н}}$ ,  $v_s$  — скорость звука) параметр насыщения  $h_{\text{н}} = [(\partial n / \partial T)_P / \rho c_P] \Omega T_2 (1 + \omega_0 / \omega_s) / c$ . В результате, например, для нитробензола, где  $(\partial n / \partial T)_P / \rho c_P \approx 10^{-10}$  см<sup>3</sup>·с<sup>2</sup>/г,  $\Omega T_2 \approx 2 \cdot 10^2$ , получим интенсивность насыщения  $\sim 80$  ГВт/см<sup>2</sup>, что также хорошо согласуется с экспериментальными результатами работ<sup>4,6</sup>.

В работе<sup>4</sup> была предложена теория, объясняющая "аномальное" насыщение ВКР уравниванием заселенности основного и возбужденного колебательного состояния молекул за счет ВКР. Она не может считаться удовлетворительной по двум причинам. Во-первых, эта теория применима только к веществам с большим  $T_1$  (жидкий азот), в то время, как сами авторы<sup>4</sup> наблюдают такой же эффект насыщения в нитробензоле, где  $T_1 \ll t_{\text{н}}$  и изменение заселенности пренебрежимо мало. Во-вторых, даже для жидкого азота, где время релаксации возбужденного колебательного состояния составляет секунды, по утверждению самих авторов<sup>4</sup> их теория не дает количественного согласия с экспериментом и требует дополнительных предположений об ограничении числа молекул, участвующих в процессе ВКР. Подчеркнем, что в нашем случае насыщение ВКР получено в приближении малой заселенности возбужденного колебательного состояния молекул.

Наконец, в рамках рассмотренного нами механизма находят объяснение квазирегулярные линейчатые структуры спектра ВКР<sup>5</sup>. Они возникают вследствие того, что в эксперименте интенсивность накачки  $I_0(t)$  меняется во времени. При этом меняется во времени также интенсивность рассеянного излучения и, согласно (4), частотный сдвиг излучения. Результа-

том подобного свипирования частоты, как было показано в работе <sup>7</sup>, являются линейчатые структуры в интегральном по времени спектре излучения. Из формулы (4) также очевидным образом получает объяснение и факт уширения интегрального по времени спектра ВКР в области насыщения.

Авторы благодарны И.Л.Фабелинскому за обсуждение работы.

#### Литература

1. *Бломберген Н.* Нелинейная оптика. М.: Мир, 1966.
2. *Луговой В.Н.* Введение в теорию вынужденного комбинационного рассеяния. М.: Наука, 1968.
3. *Ахманов С.А., Коротев Н.И.* Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света. М.: Наука, 1981, с. 222.
4. *Окладников Н.В., Зверев В.В., Бреховских Г.Л., Соколовская А.И.* Квантовая электроника, 1984, 11, 1105; *Brekhovskikh G.L., Zverev K.V., Okladnikov N.V., Sokolovskaja A.I.* Opt. Comm., 1985, 58, 59.
5. *Морозова Е.А., Соколовская А.И.* Квантовая электроника, 1977, 4, 2052.
6. *Кудрявцева А.Д., Соколовская А.И.* Квантовая электроника, 1974, 1, 964.
7. *Горбунов Л.М.* ЖЭТФ, 1983, 84, 1655.

Физический институт им. П.Н.Лебедева  
Академии наук СССР

Поступила в редакцию  
19 марта 1986 г.