

# Комплексный резонанс и спектроскопия комплексных частот

Н. Н. Розанов<sup>1)</sup>

ФГУП НПК “Государственный оптический институт им. С.И. Вавилова”, 199034 Санкт-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 6 июля 2009 г.

Выполнен анализ отклика среды на излучение с комплексной частотой, отвечающей экспоненциальному временному убыванию амплитуды излучения. Продемонстрирован эффект комплексного резонанса, при котором и вещественная, и мнимая части комплексной частоты излучения приближаются, соответственно, к вещественной и мнимой частям комплексной частоты затухающих собственных колебаний осцилляторов среды. В самом резонансе модуль показателя преломления неограниченно велик и излучение полностью отражается от границы среды. Показано, что сканирование не только вещественной, но и мнимой части частоты зондирующего излучения расширяет возможности спектроскопии и позволяет, например, различать резонансы даже с совпадающими (вещественными) частотами и близкими (одного порядка величины) ширинами.

PACS: 03.50.De, 42.65.Tg

Измерение отклика среды на воздействующее на нее излучение с варьируемой частотой является широко распространенным и эффективным методом спектроскопического анализа вещества. Этот метод основан на наличии в среде различных резонансов, связанных со специфическими для данной среды электронными, колебательными и/или вращательными переходами. Раскачка квазимонохроматическим излучением соответствующего осциллятора эффективна, если затухание осциллятора слабо и частота излучения близка к частоте собственных колебаний осциллятора.

Наличие затухания осцилляторов (релаксации) означает, что частота их собственных колебаний комплексна, что отвечает экспоненциальному временному убыванию амплитуды колебаний. Поэтому можно ожидать, что восприимчивость – отклик среды на излучение – будет возрастать в условиях “комплексного резонанса”, когда не только “обычная” (вещественная) частота излучения близка к частоте осциллятора, но и амплитуда излучения убывает со временем экспоненциально с декрементом, близким к скорости затухания осциллятора. Отклик среды на излучение с комплексной частотой анализировался в [1] применительно к аналитическим свойствам диэлектрической проницаемости сплошной среды, включая расположение полюсов на комплексной плоскости частоты. Как отмечено в [1], реализация идеального монохроматического излучения с экспоненциально убывающей амплитудой невозможна ввиду неограниченного нарастания амплитуды поля при

временах  $t \rightarrow -\infty$ . Поэтому имеется в виду импульс падающего на среду излучения, для которого установившийся режим достигается после переходного процесса с длительностью, определяемой временами релаксационных процессов.

Другое ограничение связано с тем, что для резонансных комплексных частот, отвечающих полюсам диэлектрической проницаемости, модуль показателя преломления и волнового числа обращаются в бесконечность. Формально это соответствует нулевой длине волны излучения. Поэтому электродинамика сплошных сред, справедливая при значительном превышении длины волны излучения над межатомным расстоянием, строго говоря, теряет применимость в окрестности полюсов. В этой области необходима уже микроскопическая теория. Это означает ограниченность понятия полюсов диэлектрической проницаемости в оптике. Если при “обычном” резонансе отклик осциллятора ограничивается его линейным затуханием, то при комплексном резонансе это ограничение снимается, и его роль будут играть нелинейность отклика среды и даже слабо выраженное неоднородное уширение (см. ниже).

Излучение с комплексной частотой естественным образом возникает в задаче о параметрическом эффекте Доплера [2, 3] для режима неоднородных плоских волн, где и указывалась возможность метода спектроскопии комплексных частот [4]. Ниже рассмотрен более простой вариант получения излучения с комплексной частотой и сравниваются возможности такого метода и традиционной спектроскопии.

Схема установки спектроскопии комплексных частот для анализа образца (изотропная среда,

<sup>1)</sup>e-mail: nrosanov@yahoo.com

магнитная проницаемость  $\mu = 1$ ) следующая. Распространяющееся в вакууме излучение обладает “обычной” (вещественной) частотой, которая может перестраиваться. Излучение проходит через модулятор, отражается от образца и попадает на детектор, измеряющий интенсивность излучения. Коэффициент пропускания модулятора меняется со временем так, что на некотором временном интервале, протяженность которого заметно превышает обратный декремент убывания пропускания модулятора, прошедшее модулятор излучение обладает экспоненциально убывающей со временем амплитудой. Тем самым на указанном временном интервале прошедшее излучение с высокой точностью характеризуется комплексной частотой  $\omega = \omega' + i\omega''$ .

Образец считается протяженным, и достигаются условия, когда отраженное от его задней грани излучение не попадает в детектор. Тогда амплитудные коэффициенты отражения  $r$  и пропускания  $\tau$  даются формулами Френеля (случай нормального падения)

$$r = \frac{1 - n}{1 + n}, \quad \tau = \frac{2}{1 + n}, \quad (1)$$

где  $n$  – комплексный показатель преломления исследуемого образца:

$$n = n(\omega) = n' + in'' = \sqrt{\varepsilon(\omega)}, \quad n' = \text{Re } n \geq 0. \quad (2)$$

Здесь  $\varepsilon$  – также комплексная диэлектрическая проницаемость образца. Коэффициент отражения по интенсивности

$$R = |r|^2 = 1 - \frac{4n'}{1 + 2n' + |n|^2} \quad (3)$$

определяется значением зависящей от частоты диэлектрической проницаемости  $\varepsilon$ . Отметим, что в полюсах диэлектрической проницаемости, которые могут быть расположены только в нижней полуплоскости комплексной частоты [1], модуль показателя преломления  $|n| \rightarrow \infty$ , так что коэффициент отражения вблизи полюса приближается к единице (ограничения указаны выше). Вблизи полюсов  $R \approx 1 - 4n'/|n|^2$ .

Прибегнем к лоренцевской модели среды, согласно которой [5]

$$\varepsilon(\omega) = 1 + \sum_{m=1}^M \frac{\omega_{pm}^2}{\omega_{0m}^2 - \omega^2 - i\gamma_m \omega}. \quad (4)$$

Здесь суммирование ведется по типам осцилляторов, обладающих собственными частотами колебаний  $\omega_{0m}$ , скоростями затухания  $\gamma_{0m}$  и плазменными частотами  $\omega_{pm}$  (квадрат последних пропорционален концентрации данного типа осцилляторов). Хотя исходно модель являлась феноменологической, она

подтверждается и последовательной квантовомеханической и статистической (учет релаксации) теорией. Расположение полюсов диэлектрической проницаемости (нулей знаменателей дробей в (4))

$$\Omega_m^{(\pm)} = -i\frac{\gamma_m}{2} \pm \sqrt{\omega_{0m}^2 - \left(\frac{\gamma_m}{2}\right)^2}. \quad (5)$$

Проиллюстрируем спектральные зависимости коэффициента отражения для выбранной модели дисперсии. Частоты и скорости затухания нормируем на собственную частоту колебаний первого осциллятора (тогда  $\omega_{01} = 1$ ).

1. *Среда из осцилляторов единственного типа* ( $M = 1$ ). Полагаем  $\gamma = 0.01$ ,  $\omega_p = 0.1$ . “Обычная” зависимость коэффициента отражения  $R$  от вещественной частоты излучения имеет стандартный резонансный вид, но максимальный коэффициент отражения в данном случае не превышает значения 0.06 (рис.1а).

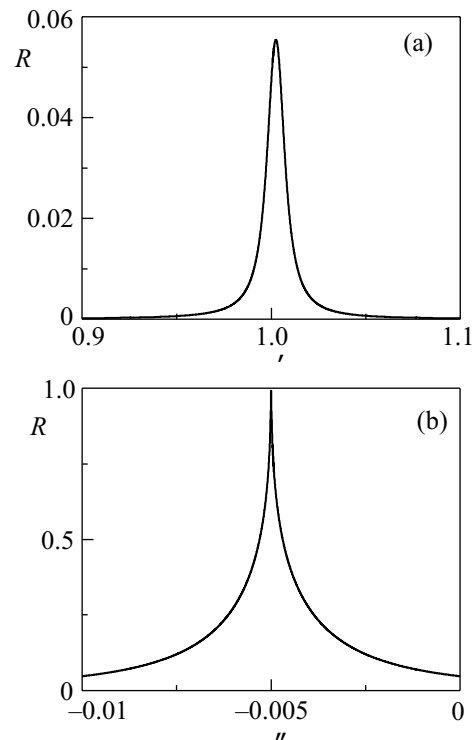


Рис.1. Частотная зависимость коэффициента отражения  $R$  от вещественной частоты при  $\omega'' = 0$  (а) и от мнимой части частоты при  $\omega' = 1$  (б)

На рис.1б фиксирована вещественная часть частоты  $\omega' = 1$  и варьируется ее мнимая часть в окрестности “комплексного резонанса”, в котором  $\omega'' = -\gamma/2$ . Видно, что в этом случае максимальный коэффициент отражения практически достигает единицы (для получения точного максимума следовало

бы сдвинуть вещественную часть частоты на малую величину  $\sim \gamma^2$ . Тем самым этот резонанс гораздо более выражен, чем в варианте вещественных частот. Зависимость коэффициента отражения от вещественной и мнимой частей частоты в окрестности комплексного резонанса представлена на рис.2.

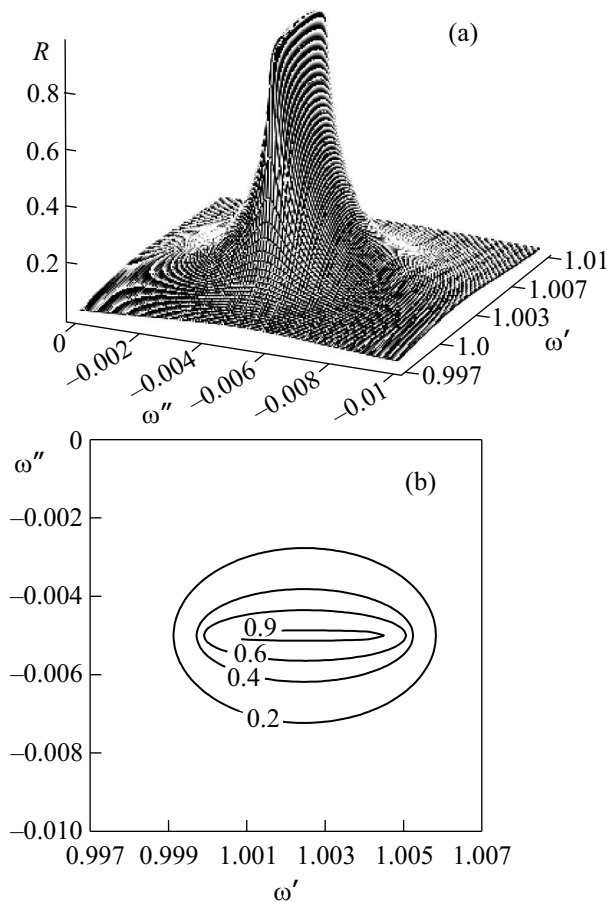


Рис.2. Зависимость коэффициента отражения  $R$  от вещественной и мнимой частей частоты в окрестности комплексного резонанса для среды из одинаковых осцилляторов (трехмерный график – (a) и линии уровня – (b))

2. Среда из двух типов лоренцевских осцилляторов ( $M = 2$ ). В “обычной” спектроскопии вещественных частот в соответствии с критерием Релея [6] сложно разделить резонансы для осцилляторов с совпадающими собственными частотами и близкими по порядку величины скоростями затухания. Положим  $\omega_{01} = \omega_{02} = 1$ ,  $\gamma_1 = 0.01$ ,  $\gamma_2 = 0.03$ ,  $\omega_{p1} = \omega_{p2} = 0.1$ . На рис.3а показана зависимость коэффициента отражения от (вещественной) частоты. При этом наличие двух типов осцилляторов в среде не проявляется заметным образом, а максимальный коэффициент

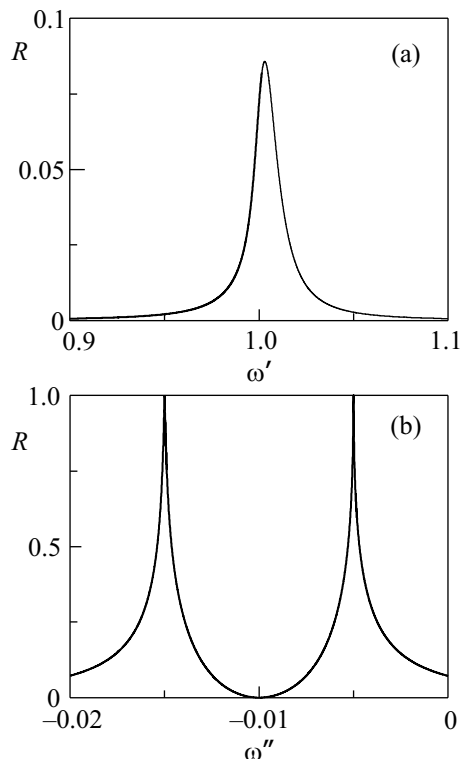


Рис.3. То же, что на рис.1, для среды из осцилляторов двух типов

отражения невелик ( $< 0.1$ ). В то же время сканирование мнимой части частоты в окрестности “комплексного резонанса” (рис.3b) выявляет два четких пика, отвечающих соответствующим полюсам, причем максимальный коэффициент отражения близок к единице. Это обстоятельство подтверждает рис.4, где представлена зависимость коэффициента отражения и от вещественной, и от мнимой частей частоты.

Для анализа среды с неизвестным расположением резонансов в эксперименте следует проварьировать с малым шагом (меньше расстояния между соседними полюсами) вещественную и мнимую части частоты, получить коэффициент отражения на такой достаточно густой сетке, а затем компьютерной обработкой извлечь из этих данных положение полюсов и соответствующие вычеты. Эти данные и будут служить сигнатурой исследуемой среды.

Практически излучение включается в некоторый момент времени, например,  $t = 0$ , и отклик осциллятора устанавливается после переходного периода длительностью  $T \sim 2/\gamma$ , поскольку амплитуда свободных колебаний лоренцевского осциллятора затухает как  $\exp(-\gamma t/2)$ . Как указывалось выше, дли-

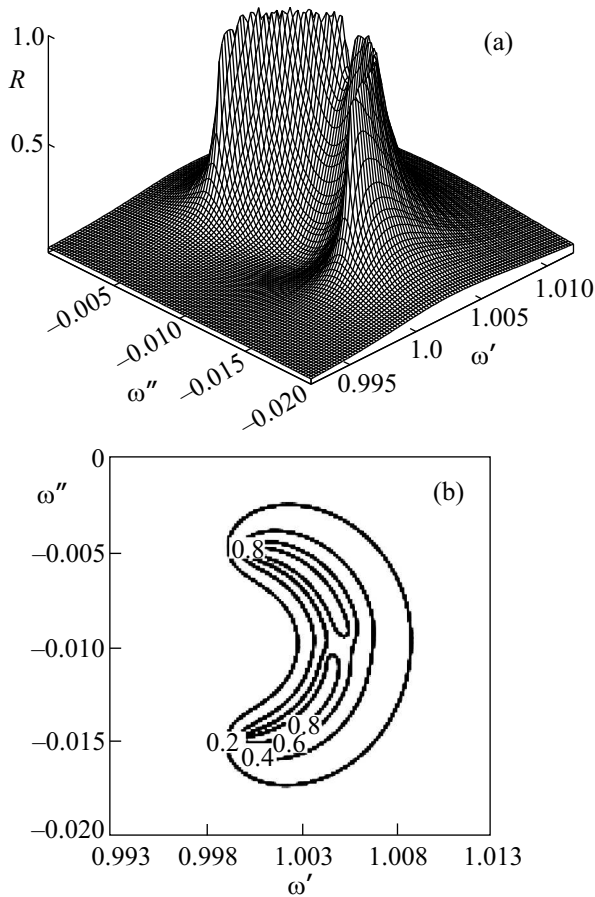


Рис.4. То же, что на рис.2, для среды из осцилляторов двух типов

тельность импульса излучения должна значительно превышать величину  $T$ . При этом возникают ограничения на уровень интенсивности, чтобы отклик среды оставался линейным. В результате интенсивность излучения должна заметно превышать уровень шума, но быть заметно ниже интенсивности насыщения переходов среды. Ввиду гигантского различия этих двух уровней выполнение указанного условия не вызывает затруднений почти всюду, вне малой окрестности полюсов диэлектрической проницаемости. В самих же этих окрестностях коэффициент отражения столь близок к единице, что поле практически не проникает в среду (глубина скин-слоя на частоте комплексного резонанса обращается в нуль). Ситуация напоминает случай металла, так как для идеального металла модуль показателя преломления также обращается в бесконечность. Нарушение условий применимости электродинамики сплошных сред в области комплексного резонанса не сказывается на коэффициенте отражения, который приближается в этой области к максимально возможному значению

$R = 1$ . При небольшом удалении от комплексного резонанса слой среды пропускает излучение с коэффициентом пропускания по интенсивности  $|\tau|^2 \approx 4/|\varepsilon|$  и обладает высоким по модулю показателем преломления. Наконец, ввиду резонансного возрастания значения поляризации среды на границе среды возможно усиление линейных и нелинейных поверхностных эффектов, включая комбинационное рассеяние на приповерхностных молекулах. Объемные нелинейные эффекты также могут быть в определенной степени усилены, но вне окрестности комплексного резонанса, при котором излучение не проникает в среду.

3. *Неоднородное уширение.* Тогда (4) заменяется на следующее выражение:

$$\varepsilon(\omega) = 1 + \int \frac{W(\nu, \gamma)}{\nu^2 - \omega^2 - i\gamma\omega} d\nu d\gamma. \quad (6)$$

В случае полной скоррелированности распределений собственной частоты  $\nu$  и скорости затухания  $\gamma$  осцилляторов  $W(\nu, \gamma) = w(\nu)\delta(\gamma - \Gamma(\nu))$ . Предел однородного уширения отвечает выбору  $w(\nu) = \sum_m \omega_{pm}^2 \delta(\nu - \nu_m)$ . Используем модель неоднородного уширения вида

$$w(\nu) = w_0 \{ \exp[-\mu^2(\nu - \nu_0)^2] + \exp[-\mu^2(\nu + \nu_0)^2] \},$$

$$\Gamma(\nu) = \gamma_0 + \gamma_2 \nu^2.$$

(7)

Тогда диэлектрическая проницаемость выражается через интеграл вероятности  $\Phi$ :

$$\varepsilon(\omega) = 1 + \frac{i\pi w_0}{(1 - i\gamma_2\omega)\sqrt{z}} \{ [1 - \Phi(\mu\beta_1)] \exp(\mu^2\beta_1^2) + [1 - \Phi(\mu\beta_2)] \exp(\mu^2\beta_2^2) \}, \quad (8)$$

$$\beta_1 = i(\nu_0 - \sqrt{z}), \quad \beta_2 = -i(\nu_0 + \sqrt{z}),$$

$$z = \frac{\omega^2 + i\gamma_0\omega}{1 - i\gamma_2\omega}, \quad \text{Im} \sqrt{z} \geq 0.$$

Переход к случаю однородного уширения происходит при условии  $\mu|\nu_0 \pm \sqrt{z}| \gg 1$ . Это условие нарушается в точке, отвечающей при однородном уширении комплексному резонансу ( $\nu_0^2 - z = 0$ ). Соответствующая сверхчувствительность к неоднородному уширению служит одним из механизмов ограничения диэлектрической проницаемости и недостижимости ее полюсов.

С точки зрения физики, предложенный вариант спектроскопии интересен возможностью экспериментальной проверки изложенных в [1] аналитических свойств диэлектрической проницаемости на комплексной плоскости частот. При этом здесь раскрывается ограниченный смысл понятия полюсов

(ввиду указанного нарушения применимости электродинамики сплошных сред). Практический интерес представляет получение больших по модулю показателей преломления и, в особенности, дополнительные возможности спектроскопического диагностирования материалов. При этом могут быть обнаружены линии даже с совпадающими вещественными частями частоты, если их мнимые части (затухание) различаются. Представляется, что таким образом можно изучить детали различных релаксационных процессов. В то же время этот подход затруднительно реализовать для сред с выраженным неоднородным уширением. По-видимому, такой метод перспективен для спектроскопии сред с квантовыми точками (из-за дискретного характера спектра в таких наноструктурах), для ультрахолодных атомарных газов (с подавлением доплеровского уширения) и вблизи экситонных резонансов. Наконец, ввиду общности физики колебаний спектроскопия комплексных частот может оказаться полезной не только в оптике, но и в других разделах науки и техники, в которых

существенны резонансные явления. Принципиальной является возможность отделить вынужденные колебания осцилляторов от свободных, что можно реализовать, например, численно преобразованием Лапласа регистрируемого сигнала с точностью, определяемой уровнем шумов.

Автор благодарен Е.Б.Александрову за стимулирующие обсуждения. Работа частично поддержана грантами Российского фонда фундаментальных исследований # 09-02-12129-офи\_м и 08-02-90112-Мол\_а и Министерства образования и науки РНП # 2.1.1/4694.

1. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред*, М.: Наука, 1982.
2. Н. Н. Розанов, Письма в ЖЭТФ **88**, 577 (2008).
3. Н. Н. Розанов, ЖЭТФ **135**, 154 (2009).
4. Н. Н. Розанов, Опт. и спектр. **106**, 641 (2009).
5. М. Б. Виноградова, О. В. Руденко, А. П. Сухоруков, *Теория волн*, М.: Физматлит, 1991.
6. М. Борн, Э. Вольф, *Основы оптики*, М.: Наука, 1970.