

ВЫНУЖДЕННОЕ ТЕМПЕРАТУРНОЕ РАССЕЯНИЕ

ВБЛИЗИ РЕЗОНАНСА

В.А.Алексеев

Рассмотрен спектр вынужденного рассеяния на флуктуациях плотности в газах вблизи резонанса поглощения. Показано, что рассеяние такого типа обладает низким порогом ~ 10 Вт/см².

1. Вынужденное температурное рассеяние, обусловленное поглощением (ВРП), было предсказано теоретически в [1] и впервые наблюдалось экспериментально в работах [2, 3]. Механизм возникновения ВРП объясняется следующим образом. Пусть в поглощающей среде распространяются две монохроматические волны: сильная $E_l e^{ik_l r - i\omega_l t}$ и слабая $E_s e^{ik_s r - i\omega_s t}$ волна пробного поля. В результате поглощения света в среде выделяется тепло $Q(r, t)$, в выражении для которого содержится интерференционный член $Q(r, t) \sim E_l^* E_s e^{-iqr + i\Omega t}$, $q = k_l - k_s$, $\Omega = \omega_l - \omega_s$. Это приводит к модуляции температуры и к расщеплению звуковых волн, что в свою очередь вызывает рассеяние. В работах [1, 4, 5] возникновение ВРП было связано с модуляцией вещественной части диэлектрической проницаемости ϵ , что справедливо в тех случаях, когда за поглощение ответственна широкая относительно слабая полоса. В настоящей статье показано, что при рассеянии в газах вблизи узкого резонанса поглощения существенный вклад в рассеяние вносит модуляция мнимой части ϵ . В этом случае изменяется форма спектра и снижается порог вынужденного рассеяния, так что явление можно наблюдать при плотности мощности $\frac{c}{8\pi} |E_l|^2 \sim 10$ Вт/см².

2. Изменение ϵ приводит к появлению нелинейных добавок к линейному коэффициенту поглощения (усиления) $\alpha_{\text{л}}$ слабой волны $\alpha = (\omega/c) \epsilon''(\omega_s)$, который представим в виде

$$\alpha(\omega_s) = \alpha_{\text{л}}(1 + g), \quad g = g_1 + g_2. \quad (1)$$

Величины g_1 и g_2 связаны соответственно с температурным рассеянием и рассеянием на звуковых волнах.

Остановимся сначала на температурном рассеянии. В этом случае модуляция ϵ вызвана изменением температуры $\delta\epsilon = (\partial\epsilon/\partial T)_p \delta T$, а δT подчиняется уравнению (см., например, [5])

$$\frac{\partial(\delta T)}{\partial t} - \kappa \Delta(\delta T) = \frac{1}{Nc_p} Q(r, t), \quad (2)$$

κ — коэффициент теплопроводности, N — плотность газа, c_p — теплоемкость при постоянном давлении. Для поглощаемого тепла имеем

$$Q(r, t) = \frac{\pi \hbar \omega}{8} \left(\frac{d_0}{\hbar} \right)^2 N_0 E_l^* E_s e^{-iqr + i\Omega t} f''(\Delta\omega_0), \quad (3)$$

d_0 — дипольный момент поглощаемого перехода, N_0 — заселенность начального состояния, \hbar — постоянная Планка, $\Delta\omega_0 = \omega_0 - \omega_l$ — отстройка от резонанса, $f(\Delta\omega_0) = f'(\Delta\omega_0) + if''(\Delta\omega_0)$ — форма линии поглощения (дисперсии).

Диэлектрическую проницаемость газа примем равной

$$\epsilon = 1 + 4\pi^2 \sum_j \frac{d_j^2}{\hbar} N_j f(\Delta\omega_j), \quad \Delta\omega_j = \omega_j - \omega_l, \quad (4)$$

откуда для $(\partial\epsilon/\partial T)_p$ получаем

$$\left(\frac{\partial\epsilon}{\partial T} \right)_p = - \left(4\pi^2 / \hbar T \right) \sum_j d_j^2 A_j N_j f(\Delta\omega_j); \quad A_j = 1 - \frac{E_j - \langle E_j \rangle}{kT},$$

где $\langle E_j \rangle$ — средняя внутренняя энергия молекул, k — постоянная Больцмана. Используя эти соотношения и решая (2), находим $\epsilon''(\omega_s)$ и $\alpha(\omega_s)$. Для g_1 получим

$$g_1 = - \frac{\pi \hbar \omega}{2c_p T} \frac{1}{N} \sum_j A_j N_j \left(\frac{d_j E_l}{\hbar} \right)^2 \frac{-\Omega f'(\Delta\omega_j) + \Gamma_1 f''(\Delta\omega_j)}{\Omega^2 + \Gamma_1^2}, \quad (5)$$

$\Gamma_1 = \kappa q^2$ — ширина центральной части релеевской компоненты спектра рассеяния.

Аналогичным образом находится величина g_2 . Используя (4) и следуя [5], получим

$$g_2 = \frac{\pi \hbar \omega}{2c_p T} \frac{1}{N} \sum_j B_j N_j \left(\frac{d_j E_l}{\hbar} \right)^2 4 \Omega_{\text{МБ}}^2 \frac{(\Omega_{\text{МБ}} - \Omega) f'(\Delta\omega_j) + \Gamma_2 f''(\Delta\omega_j)}{(\Omega^2 - \Omega_{\text{МБ}}^2)^2 + \Gamma_2^2 \Omega_{\text{МБ}}^2}, \quad (6)$$

где $B_j = A_j - \frac{c_p}{c_v} \frac{E_j - \langle E_j \rangle}{kT}$, $\Omega_{\text{МБ}} = qv_{\text{ЗВ}}$ — частота, Γ_2 — скорость затухания звука.

3. В формуле (1) в линейное поглощение дает вклад только резонансный переход $\alpha_{\text{Л}} = \frac{4\pi^2\omega}{\hbar c} d_{\text{о}}^2 N_{\text{о}} f''(\Delta\omega_{\text{о}})$, тогда как нелинейные добавки определяются суммой по всем переходам молекулы. В работах [1, 4, 5] фактически предполагалось, что основной вклад в эту сумму вносят нерезонансные члены. В этом случае можно положить $f'(\Delta\omega_j) \approx \frac{1}{\pi\Delta\omega}$, $f''(\Delta\omega) = 0$, где $\Delta\omega$ — характерная отстройка частоты ω_l от частоты полосы, дающей основной вклад в дисперсию (как правило

$\Delta\omega < 0$). Полагая $\sum_j \frac{N_j}{N} d_j^2 = d^2$, $A_j \approx B_j \approx 1$, из (5) и (6) получаем

$$g = g_1 + g_2 = \frac{\hbar\omega}{2c_p T} \frac{1}{\Delta\omega} \left(\frac{dE_l}{\hbar} \right)^2 \left[\frac{\Omega}{\Omega^2 + \Gamma_1^2} - 4\Omega_{\text{МБ}}^2 \frac{\Omega - \Omega_{\text{МБ}}}{(\Omega^2 - \Omega_{\text{МБ}}^2)^2 + \Gamma_2^2 \Omega_{\text{МБ}}^2} \right], \quad (7)$$

что с учетом конкретного вида диэлектрической проницаемости (4) совпадает с [4, 5]. Зависимость (7) величины g от Ω показана на рис.1, а. Эта зависимость в корне меняется, если основной вклад в суммы (5), (6) дает резонансный член $j = 0$. При точном резонансе $\Delta\omega_{\text{о}} = 0$, $f'(\Delta\omega_{\text{о}}) = 0$, $f''(\Delta\omega_{\text{о}}) = \frac{1}{\pi\Delta\omega_{\text{л}}}$, где $\Delta\omega_{\text{л}}$ — ширина линии поглощающего перехода, и g принимает вид

$$g_p = g_{1p} + g_{2p} = \frac{\hbar\omega}{2c_p T} \frac{N_{\text{о}}}{N} \frac{1}{\Delta\omega_{\text{л}}} \left(\frac{d_{\text{о}} E_l}{\hbar} \right)^2 \left[-A_{\text{о}} \frac{\Gamma_1}{\Omega^2 + \Gamma_1^2} + B_{\text{о}} \frac{4\Omega_{\text{МБ}}^2}{(\Omega^2 - \Omega_{\text{МБ}}^2)^2 + \Gamma_2^2 \Omega_{\text{МБ}}^2} \right]. \quad (8)$$

Характерная для этого случая зависимость g_p от Ω показана на рис.1, б. В области частот $|\Omega| \lesssim \Gamma_1$ образуется провал, а в области $|\Omega \pm \Omega_{\text{МБ}}| \lesssim \Gamma_2$ пик в зависимости поглощения слабой волны $\alpha(\omega_s)$ от частоты $\omega_s = \omega_l - \Omega$ (см. рис.2). Если центральный провал достаточно интенсивен, поглощение переходит в усиление. Интересно, что максимум усиления достигается при $\Omega = 0$, т.е. вынужденное рассеяние в этом случае не сопровождается изменением частоты. При отстройке в крыло линии зависимость величины g_p от Ω меняется и в далеком крыле $f''(\Delta\omega_{\text{о}}) \gg f'''(\Delta\omega_{\text{о}})$ качественно совпадает с (7).

4. Отношение вкладов в суммы (5) и (6) резонансных и нерезонансных слагаемых по порядку величины равно $g_p/g \approx \frac{N_{\text{о}}}{N} \frac{\Delta\omega}{\Delta\omega_{\text{л}}} \frac{d_{\text{о}}^2}{d^2} \approx \frac{N_{\text{о}}}{N} \frac{\Delta\omega}{\Delta\omega_{\text{л}}} \times \frac{A_{\text{о}}}{A} \left(\frac{\omega}{\omega_{\text{о}}} \right)^3$, где $A_{\text{о}}$, A — вероятности поглощающего и оптически разрешенного переходов, $\omega_{\text{о}}$ и ω — их частоты. Имея в виду, что за поглощение ответственны колебательно вращательные молекулярные переходы

ды положим $\frac{A_0}{A} \approx 10^{-7}$; $\frac{\Delta\omega}{\Delta\omega_L} \approx 10^7$; $\frac{\omega}{\omega_0} \approx 10^3$. В итоге получим, что отношение $g_p/g \approx \frac{N_0}{N} \cdot 10^3$ может значительно превышать единицу.

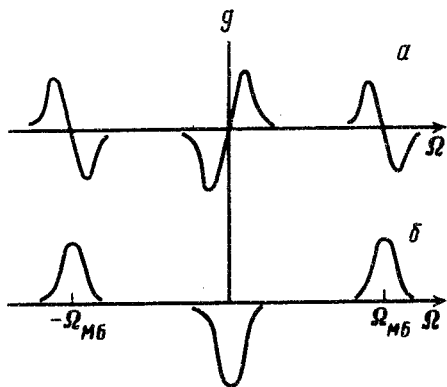


Рис.1. Качественная зависимость величины g от частоты расстройки Ω ; a — основной вклад в g вносят нерезонансные слагаемые (формула (7)), b — основной вклад в g дает поглощающий переход (формула (8))

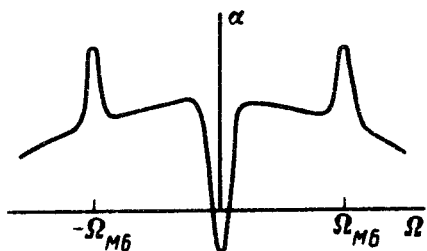


Рис.2. Качественная зависимость коэффициента поглощения слабой волны $\alpha(\omega_s)$ от частоты расстройки Ω при условии, что основной вклад в g вносит поглощающий переход

Оценим теперь плотность мощности P_{Π} , при которой нелинейные добавки (8) близки к единице. Из условия $\frac{\hbar\omega_0}{c_p T} \frac{N_0}{N} \left(\frac{d_0 E_L}{\hbar}\right)^2 \frac{1}{\Delta\omega_L \Gamma} = 1$ получаем $P_{\Pi} = \frac{\pi}{8} \frac{c_p T}{\hbar\omega_0} \frac{\hbar\omega_0 N \Gamma}{\alpha}$. При заданном угле рассеяния $\Gamma \sim 1/N$.

В области небольших давлений ширина линии определяется эффектом Доплера $\Delta\omega_L = \Delta\omega_D$, и коэффициент поглощения $\alpha \sim N$. В итоге P_{Π} уменьшается с ростом плотности $P_{\Pi} \sim 1/N$, достигая минимума в области давлений, при которых ударная ширина линии γ превышает доплеровскую. Полагая $c_p T / \hbar\omega_0 = 0,1$, $N = 3 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$, $\Gamma = 10^4 \text{ см}^{-1}$, $\hbar\omega_0 = 6 \cdot 10^{-20} \text{ Дж}$, $\alpha = 2 \text{ см}^{-1}$ (переход $\lambda = 3,39 \cdot 10^5 \text{ нм}$ в метане), получим $P_{\Pi} = 5 \text{ Вт/см}^2$. Отметим, что применение метода синхронного детектирования может позволить зафиксировать величины $g \sim 10^{-2}$, т.е. структура (8) доступна для наблюдения при мощности сигнала порядка $5 \cdot 10^{-2} \text{ Вт/см}^2$.

При выводе (3) предполагалось, что поглощенная молекулой энергия мгновенно релаксирует в тепло. Учет времени установления этого процесса τ приводит к домножению (3) на фактор $(1 + i\Omega\tau)^{-1}$ [4]. Поэтому выражение (8) применимо при $\Omega \ll 1/\tau$. В случае обратного соотношения $\Omega > 1/\tau$ изменяются не только абсолютные и относительные значения величин g_{1p} и g_{2p} , но и их спектральный вид. Это может позволить измерить, например, время тушения молекулярных колебаний.

Обладая низким порогом, процесс ВРП может играть также важную роль при распространении света в резонансной среде, приводя к изменениям в угловом и частотном составе излучения.

Благодарю И.И.Собельмана и Б.Я.Зельдовича за советы и обсуждения.

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

Поступила в редакцию
1 мая 1981 г.

Литература

- [1] R.M.Herman, M.A.Gray. Phys. Rev. Lett., 19, 824, 1967.
 - [2] Г.И.Зайцев, Ю.И.Кызыласов, В.С.Старунов, И.Л.Фабелинский. Письма в ЖЭТФ, 6, 802, 1967.
 - [3] D.H.Rank, C.W.Cho, N.D.Foltz, T.A.Wiggins. Phys. Rev. Lett., 19, 828, 1967.
 - [4] M.A.Gray, R.M.Herman. Phys. Rev., 181, 374, 1969.
 - [5] Б.Я.Зельдович, И.И.Собельман. УФН, 101, 3, 1970.
-