

# Соотношение между спектральными плотностями коэффициентов Эйнштейна для поглощения и вынужденного испускания. Физические следствия.

А. М. Шалагин<sup>1)</sup>

Институт автоматики и электрометрии Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 28 января 2002 г.

Спектральные плотности коэффициентов Эйнштейна для поглощения и вынужденного испускания в двухуровневой квантовой системе перестают быть равными друг другу за пределами линии поглощения (испускания) в условиях, когда однородное уширение из-за взаимодействия с термостатом существенно преобладает над естественным. В настоящей работе соотношение между ними получено на основе общих термодинамических требований. С этим соотношением связаны новые эффекты – инверсия заселенностей при нерезонансном поглощении непрерывного излучения и усиление излучения без инверсии заселенностей.

PACS: 42.50.–p

Интенсивности лазерного излучения существующих в настоящее время источников настолько высоки, что способны обеспечить нелинейные процессы в квантовых системах в условиях, далеких от резонансных. Когда квантовой системой являются частицы газа, сталкивающиеся друг с другом и с частицами буферного газа, нелинейные процессы обычно описывают широко известными квантовыми кинетическими уравнениями (см., например, [1–4]). Одним из следствий такого описания является распространенное представление о том, что непрерывное лазерное излучение с повышением его интенсивности выравнивает заселенности комбинирующих уровней двухуровневой квантовой системы. Оказывается, что в нерезонансных условиях и при частых столкновениях это представление, привычное для специалистов в лазерной физике, перестает быть справедливым [5]. Следуя [5], покажем это на частном примере двухуровневого атома в атмосфере буферного газа, а затем сделаем обобщение на произвольный случай двухуровневой квантовой системы в термостате.

Рассмотрим простую модель двухуровневого атома с основным уровнем  $n$  и возбужденным  $m$ . Газ таких атомов взаимодействует с излучением и с частицами буферного газа. Будем считать, что столкновения сами по себе не вызывают переходов между уровнями. При большом ударном уширении линии (по сравнению с естественным и доплеровским) уравнение баланса для заселенности уровня  $m$  имеет следующий простой вид:

$$\frac{dN_m}{dt} + A_{mn}N_m = I[b_{nm}(\Omega)N_n - b_{mn}(\Omega)N_m],$$

$$\Omega \equiv \omega - \omega_{mn}, \quad N_n + N_m = N. \quad (1)$$

Здесь  $N_n, N_m$  – заселенности соответствующих уровней,  $N$  – концентрация поглощающих частиц,  $A_{mn}$  – константа радиационной релаксации уровня  $m$  (первый коэффициент Эйнштейна для перехода  $m - n$ ),  $I, \omega$  – интенсивность и частота излучения,  $\omega_{mn}$  – частота перехода. Величины  $b_{nm}(\Omega)$  и  $b_{mn}(\Omega)$  – спектральные плотности коэффициентов Эйнштейна  $B_{nm}$  и  $B_{mn}$  для поглощения и вынужденного испускания, соответственно, то есть, по определению:

$$B_{nm} = \int b_{nm}(\omega)d\omega, \quad B_{mn} = \int b_{mn}(\omega)d\omega. \quad (2)$$

Величина  $Ib_{nm}(\Omega)$  в уравнении (1) есть число актов поглощения фотонов в единицу времени,  $Ib_{mn}(\Omega)$  – число актов вынужденного испускания в единицу времени. В теории, основанной на распространенных кинетических уравнениях [1–4], выполняется соотношение

$$Ib_{nm}(\Omega) = Ib_{mn}(\Omega) = \frac{2|G|^2\Gamma}{\Gamma^2 + \Omega^2}, \quad G \equiv \frac{Ed_{mn}}{2\hbar}, \quad (3)$$

где  $\Gamma$  – ударная полуширина линии поглощения,  $E$  – амплитуда электрического поля излучения,  $d_{mn}$  – матричный элемент дипольного момента перехода,  $G$  – частота Раби. Если справедливо соотношение (3), то в правой части (1) в качестве множителя выделяется разность заселенностей  $N_n - N_m$ , так что при любом значении  $\Omega$  рост интенсивности излучения приводит к выравниванию заселенностей.

<sup>1)</sup>e-mail: shalagin@iae.nsk.su

Упомянутые квантовые кинетические уравнения получены в предположении, что радиационные процессы происходят в течение времени свободного пробега, а в акте столкновения ими можно пренебречь. При значительном ударном уширении ( $\Gamma \gg A_{mn}$ ) и при  $|\Omega| \gg \Gamma$  ситуация радикально меняется. Как показано в работах [6, 7], в этих условиях, наоборот, радиационные процессы происходят преимущественно в течение акта столкновения (так называемые оптические столкновения). В еще более далеком (квазистатическом) крыле линии поглощения оптический переход занимает вовсе малую долю длительности акта столкновения (см., например, [6, 8]). Отмеченное обстоятельство имеет существенные физические последствия.

Как в рамках стандартных квантовых кинетических уравнений [1–4], так и в теории оптических столкновений [6, 7] установлено, что столкновения, сбивающие фазу, локализируют частицу на энергетическом уровне. В этом отношении они являются не вполне упругими (более детальное обсуждение этого вопроса см. в [6]). Рассмотрим ситуацию  $|\Omega| \gg \Gamma \gg A_{mn}$ . Так как акты поглощения и вынужденного испускания фотонов “привязаны” к относительно кратковременному (по сравнению с временем свободного пробега) акту столкновения поглощающего атома с буферной частицей, к соответствующему процессу (оптические столкновения в терминологии [6]) мы можем применить закон сохранения энергии в распространенной формулировке: энергия до взаимодействия равна энергии после взаимодействия. Пусть изначально атом находился на нижнем уровне  $n$ , а в результате столкновения с поглощением фотона перешел на уровень  $m$  (рисунок а). В процессе столкновения поглотился квант излучения с энергией

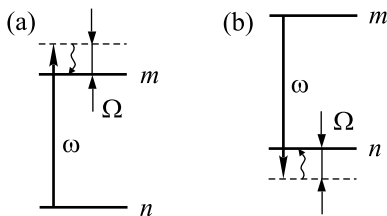


Схема переходов при оптических столкновениях: (а) переход с поглощением кванта излучения; (б) переход с вынужденным испусканием кванта

$\hbar\omega$ . Если  $\Omega > 0$  (на рисунке изображен именно этот случай), то образовался избыток энергии  $\hbar\Omega$ , который с очевидностью пошел на увеличение кинетической энергии разлетающихся частиц. При вынужденном испускании (рисунок б) атом изначально находился на уровне  $m$ , а после столкновения перешел

на уровень  $n$ , испустив при этом фотон с энергией  $\hbar\omega$ . При  $\Omega > 0$  для осуществления этого процесса нужна дополнительная энергия  $\hbar\Omega$ , которая может быть взята только из поступательной энергии частиц до столкновения. Поэтому не все частицы способны осуществить такой акт, а только те партнеры по столкновению, у которых на это хватает поступательной энергии. Отсюда с очевидностью следует, что при  $\Omega > 0$  вероятность процесса поглощения должна преобладать над вероятностью процесса вынужденного испускания. Более того, из общих термодинамических требований следует, что если для перехода из одного состояния ( $m$ ) в другое ( $n$ ) требуется получить некоторую энергию ( $\hbar\Omega$ ) из термостата, то частота переходов  $m \rightarrow n$  на больцмановский фактор  $\exp[-\hbar\Omega/k_B T]$  меньше частоты обратных переходов  $n \rightarrow m$  независимо от конкретного механизма взаимодействия при столкновении ( $k_B$  – постоянная Больцмана,  $T$  – температура газа). Отсюда вытекает следующее соотношение между величинами  $b_{nm}(\Omega)$  и  $b_{mn}(\Omega)$ :

$$b_{nm}(\Omega) = b_{mn}(\Omega) \exp[\hbar\Omega/k_B T]. \quad (4)$$

Легко убедиться в том, что соотношение (4) сохраняет силу при любом знаке  $\Omega$ . При подстановке его в уравнение (1) мы приходим к уравнению

$$\frac{dN_m}{dt} + A_{mn}N_m = I b_{nm}(\Omega) \left[ N_n - N_m \exp\left(-\frac{\hbar\Omega}{k_B T}\right) \right]. \quad (5)$$

Из соотношения (4) и уравнения (5) следует неэквивалентность процессов поглощения и вынужденного испускания. В этом проявились статистические свойства термостата. Неэквивалентность процессов поглощения и испускания установлена уже сравнительно давно в частном случае квазистатического крыла спектральной линии [9]. Более того, из результатов [9] следует и соотношение (4). В относительно недавней работе [10] (см. также [11]) для спектральной плотности коэффициента поглощения получено соотношение, формально совпадающее с правой частью уравнения (5) (с точностью до несущественного для обсуждаемого вопроса множителя). Однако в качестве  $N_n$  и  $N_m$  в [10, 11] фигурируют некоторые “эффективные (вспомогательные)” населенности, а вывод соответствующего соотношения довольно сложен. Ниже мы предлагаем предельно простой вывод соотношения (4), основанный на самых общих термодинамических требованиях и относящийся не только к частицам газа, но к любым двухуровневым квантовым системам, взаимодействующим с

произвольным термостатом. Как из частных примеров (рассмотренного выше и разобранный в [9]), так и из предлагаемого общего вывода следует, что величины  $N_n$  и  $N_m$ , входящие в (5), являются истинными заселенностями, а не “эффективными”.

Рассмотрим излучение с широким спектром (эффективная ширина  $\Delta\omega$ ). В условиях  $|G|^2 \ll (\Delta\omega)^2 + \Gamma^2 + \Omega^2$  вместо уравнения (1) изменение заселенности уровня  $m$  описывается уравнением

$$dN_m/dt + A_{mn}N_m = \int u(\omega)[b_{nm}(\omega - \omega_{mn})N_n - b_{mn}(\omega - \omega_{mn})N_m]d\omega. \quad (6)$$

Здесь  $u(\omega)$  – спектральная плотность излучения. В случае предельно узкой линии поглощения в уравнении (6) величина  $u(\omega)$  выносится из-под интеграла со значением  $\omega = \omega_{mn}$  и в стационарных условиях получаем соотношение

$$A_{mn}N_m = u(\omega_{mn})[B_{nm}N_n - B_{mn}N_m]. \quad (7)$$

Это соотношение берется за основу во всех учебниках (см., например, [12]) при выводе распределения Планка “по Эйнштейну” и связи между коэффициентами Эйнштейна  $A_{mn}$ ,  $B_{nm}$ ,  $B_{mn}$ :

$$A_{mn} = \frac{\hbar\omega_{mn}^3}{\pi^2c^3}B_{mn}; \quad B_{nm} = B_{mn}. \quad (8)$$

В настоящей работе вырождение уровней не учитывается, так что статистический вес каждого из уровней равен единице; соответствующее обобщение очевидно и не представляет труда.

Далее мы будем пользоваться той же физической аргументацией, что используется при стандартном выводе соотношений (8), но будем исходить не из (7), а из более общего уравнения (6). При этом будем полагать распределение Планка твердо установленным фактом. Итак, при тепловом равновесии среды и излучения уровни квантовой системы должны быть заселены согласно распределению Больцмана, а спектр излучения должен соответствовать распределению Планка. В данном случае из уравнения (6) следует соотношение

$$A_{mn} = \int \frac{\hbar\omega^3}{\pi^2c^3}b_{mn}(\Omega) \left[ \frac{b_{nm}(\Omega)}{b_{mn}(\Omega)} \exp\left(\frac{\hbar\omega_{mn}}{k_B T}\right) - 1 \right] \times \left[ \exp\left(\frac{\hbar\omega}{k_B T}\right) - 1 \right]^{-1} d\omega, \quad (9)$$

которое должно выполняться тождественно – при любой частоте перехода и при любой температуре среды. В то же время, первый коэффициент Эйнштейна  $A_{mn}$  является характеристикой перехода  $m - n$

и не должен зависеть от характеристик термостата, в частности, от его температуры. Для того, чтобы это выполнить, необходимо потребовать, чтобы частное от деления выражений в квадратных скобках под интегралом равнялось единице. Из этого требования вытекает соотношение (4) между спектральными плотностями  $b_{nm}(\Omega)$  и  $b_{mn}(\Omega)$ . При выполнении этого соотношения из (9) следует

$$A_{mn} = \int \frac{\hbar\omega^3}{\pi^2c^3}b_{mn}(\Omega)d\Omega. \quad (10)$$

Если ширина спектральной линии индуцированного испускания предельно мала по сравнению с частотой перехода  $m - n$ , то соотношение (10) с очевидностью переходит в первое соотношение (8). Для справедливости второго соотношения (8), как следует из (4) и (2), необходимо, чтобы эффективная ширина линии поглощения (испускания) в шкале энергии была много меньше средней тепловой энергии термостата.

В соотношение (4) не входят характеристики излучения. Как  $b_{mn}(\Omega)$ , так и  $b_{nm}(\Omega)$  зависят от характеристик квантовой системы и термостата, поэтому соотношение (4) между ними справедливо не только при тепловом спектре излучения, но и при воздействии на квантовую систему излучения любого спектрального состава. Это заключение подтверждается и способами получения (4) в частных случаях.

Вернемся теперь к уравнению (5) и обсудим физические следствия, к которым оно может привести. В стационарных условиях из этого уравнения следует

$$\frac{N_m}{N_n} = \frac{Ib_{nm}(\Omega)}{A_{mn} + Ib_{nm}(\Omega) \exp[-\hbar\Omega/k_B T]}. \quad (11)$$

При достаточно высокой интенсивности излучения, а именно при условии

$$Ib_{nm}(\Omega) > \frac{A_{mn}}{1 - \exp[-\hbar\Omega/k_B T]}, \quad (12)$$

из (11) следует  $N_m > N_n$ , то есть возникает инверсия заселенностей. Это принципиально новый момент, из которого следует возможность усиления и генерации излучения на резонансной частоте  $\omega_{mn}$  перехода  $m - n$ , что и наблюдалось в работе [5]. Максимальное значение инверсии достигается при условии  $Ib_{nm}(\Omega) \gg A_{mn} \exp[\hbar\Omega/k_B T]$  и составляет ( $\Omega > 0$ )

$$N_m/N_n = \exp[\hbar\Omega/k_B T]. \quad (13)$$

Сделаем оценку параметров лазерного излучения и газовой среды, при которых выполняется условие (12) для инверсии заселенностей. В условиях  $\Omega \gg \Gamma$  (крыло линии поглощения) справедлива формула [6]

$$Ib_{nm}(\Omega) = 2|G|^2\Gamma_{oc}/\Omega^2, \quad (14)$$

где  $\Gamma_{oc}$  – скорость фазовой релаксации при оптических столкновениях [6]. Величина  $\Gamma_{oc}$  так же, как и ударная полуширина  $\Gamma$ , пропорциональна давлению буферного газа, но может быть существенно больше  $\Gamma$  ровно в той мере, в какой реальное поглощение в крыле линии может превышать значение, даваемое формулой (3). Как видно из формулы (14), величина  $Ib_{nm}(\Omega)$  растет пропорционально интенсивности излучения и давлению буферного газа. Будем иметь в виду электронные переходы атомов с характерным значением  $A_{mn} \sim 10$  МГц и с характерным уширением частицами буферного газа  $\sim 20$  МГц/тор. Величину отстройки частоты  $\Omega$  выберем равной  $50 \text{ см}^{-1}$  (фактически это уже квазистатическое крыло линии поглощения). Имея в виду оценку сверху для интенсивности излучения, в качестве  $\Gamma_{oc}$  возьмем величину  $\Gamma$ , для которой при атмосферном давлении буферного газа следует  $\Gamma \approx 10^4$  МГц. В этих условиях порог (12) достигается при значении  $|G| \approx 3 \text{ см}^{-1}$ , чему отвечает интенсивность излучения  $I \approx 10 \text{ МВт/см}^2$ . Реально пороговая интенсивность должна быть существенно (на порядок и более) ниже при учете превышения  $\Gamma_{oc}$  над  $\Gamma$ . Тем не менее, требуемая интенсивность излучения все еще довольно значительна. Легче всего она достигается с помощью импульсных лазеров. Для того, чтобы пользоваться результатами непрерывного режима облучения, нужно, как следует из уравнения (5), выполнить условие

$$A_{mn} + Ib_{nm}(\Omega)[1 + \exp(-\hbar\Omega/k_B T)] \gg 1/\Delta t, \quad (15)$$

где  $\Delta t$  – длительность импульса излучения. Многие импульсные лазеры имеют длительность импульса  $\Delta t \approx 5 - 10$  нс, так что в условиях, оговоренных выше, соотношение (15) заведомо выполнено. Таким образом, условия для проявления эффекта инверсии заселенностей при существующих источниках излучения вполне могут быть выполнены.

Другой качественно новый физический эффект – усиление без инверсии заселенностей. Если в силу каких-то причин заселенности уровней  $m$  и  $n$  оказались близки, но  $N_m$  все еще не превышает  $N_n$ , то в “красном” крыле спектральной линии реализуется для излучения режим усиления (на такую возможность первым обратил внимание С.А.Бабин). Действительно, коэффициент поглощения (усиления)  $\alpha_\mu$  пробного излучения в крыле линии связан с правой частью уравнения (5) соотношением

$$\alpha_\mu = \frac{1}{4\pi} \lambda_\mu^2 \frac{A_{mn} \Gamma_{oc}(\Omega_\mu)}{\Omega_\mu^2} [N_n - N_m \exp(-\hbar\Omega_\mu/k_B T)]. \quad (16)$$

Здесь индексом  $\mu$  помечены характеристики пробного излучения ( $\lambda_\mu$  – длина волны). Если заселенности одинаковы ( $N_n = N_m = N/2$ , где  $N$  – полная концентрация взаимодействующих с полем частиц), а отстройка частоты  $\Omega_\mu$  отрицательна, то  $\alpha_\mu < 0$ , то есть мы получаем усиление без инверсии заселенностей. При положительной отстройке имеем  $\alpha_\mu > 0$ , что тоже является неожиданным результатом при условии равенства заселенностей. Этот эффект можно условно назвать избыточным поглощением.

Наиболее эффективный способ выравнивания заселенностей – использование интенсивного лазерного излучения, резонансного переходу  $m - n$ . Наблюдение эффекта при этом будет состоять в сопоставлении интенсивности проходящего через среду пробного излучения в отсутствии и в присутствии сильного: в первом случае пробное излучение поглощается, а во втором случае – усиливается. Обозначим через  $\alpha_\mu^0$  коэффициент поглощения в условиях, когда сильное излучение отсутствует и все частицы находятся на нижнем уровне  $n$ . Для отношения  $\alpha_\mu/\alpha_\mu^0$  получаем следующую простую формулу:

$$\frac{\alpha_\mu}{\alpha_\mu^0} = \frac{1}{2} [1 - \exp(-\hbar\Omega_\mu/k_B T)]. \quad (17)$$

Как видим, коэффициент усиления по величине может быть сопоставим с максимально возможным коэффициентом поглощения при той же отстройке частоты. Поскольку поглощение в крыльях спектральных линий вполне надежно регистрируется, то и эффект усиления без инверсии также может быть легко зарегистрирован с учетом того, что сильное излучение способно просветлять среду при достаточно высокой концентрации поглощающих частиц (в случае атомов до  $10^{15} \text{ см}^{-3}$  и выше). Подобный вывод с очевидностью относится и к регистрации эффекта избыточного поглощения.

Мы привели вывод соотношения (4) на основе общих термодинамических требований. В каждой конкретной физической ситуации оно может быть обосновано конкретным физическим механизмом и одновременно могут быть выявлены границы его применимости, как, например, это сделано здесь в случае частиц газа (оптические столкновения). О границах применимости соотношения (4) в общем случае можно сказать, что оно справедливо тогда, когда в квантовой системе дефазированные процессы, обусловленные взаимодействием с термостатом, протекают существенно быстрее, чем радиационная релаксация. Поскольку неравенство спектральных плотностей коэффициентов Эйнштейна существенно лишь в далеком крыле спектральной линии, то даже в услови-

ях справедливости соотношения (4) речь не идет об уточнении, а тем более о пересмотре, результатов решенных ранее задач лазерной физики, нелинейной оптики и нелинейной спектроскопии. В этих задачах всегда имелась в виду спектральная область вблизи резонанса, на несколько порядков более узкая, чем  $k_B T / \hbar$ . Иное дело, если специально рассматривать задачи (нелинейные в том числе) в области больших отстроек частоты. Там, как мы видим, могут возникать новые эффекты. Мы надеемся, что два новых физических эффекта, связанные с соотношением (4) и рассмотренные в настоящей работе, не являются исчерпывающим следствием этого соотношения.

Автор признателен С. Г. Раутиану, Е. В. Подивиллову и С. А. Бабину за плодотворные дискуссии, а также участникам общепрограммных семинаров ОИФАН и ИСАН за результативные обсуждения.

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (грант # 01-02-17433), Программой Минпромнауки "Физика квантовых и волновых процессов" и Программой "Интеграция".

1. R. F. Snider, J. Chem. Phys. **32**, 1051 (1960).
2. В. А. Алексеев, Т. Л. Андреева, И. И. Собельман, ЖЭТФ **62**, 614 (1972).
3. V. S. Letokhov and V. P. Chebotajev, *Nonlinear Laser Spectroscopy*, Springer, Berlin, 1977.
4. S. G. Rautian and A. M. Shalagin, *Kinetic Problems of Nonlinear Spectroscopy*, North-Holland, Amsterdam, 1991.
5. Р. В. Марков, А. И. Плеханов, А. М. Шалагин, ЖЭТФ **120**, 1185 (2001).
6. С. И. Яковленко, УФН **136**, 593 (1982).
7. Д. С. Бакаев, Ю. А. Вдовин, В. М. Ермаченко, С. И. Яковленко, ЖЭТФ **83**, 1297 (1982).
8. Л. А. Вайнштейн, И. И. Собельман, Е. А. Юков, *Возбуждение атомов и уширение спектральных линий*, М.: Наука, 1979.
9. R. E. M. Hedges, D. L. Drummond, and A. Gallagher, Phys. Rev. **A6**, 1519 (1972).
10. Ю. К. Земцов, А. Н. Старостин, ЖЭТФ **103**, 345 (1993).
11. Ю. К. Земцов, А. Ю. Сечин, А. Н. Старостин и др., ЖЭТФ **114**, 135 (1998).
12. Г. С. Ландсберг, *Оптика*, М.: Наука, 1976.