УДК 535.375.01

К ТЕОРИИ ВЫНУЖДЕННОГО КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ

П. В. Елютин

На основе модели точечных источников получены основные характеристики первой стоксовой компоненты вынужденного комбинационного рассеяния: интенсивность, форма линии, распределение интенсивности в ближней зоне для неоднородного пучка накачки. Вычислен порог генерации стоксовой компоненты за счет обратной связи, возникающей в результате релеевского рассеяния стоксова излучения.

Теория вынужденного комбинационного рассеяния, основанная на модели точечных источников, была предложена и развита Луговым [1–5]. Исходным для этой теории является представление об излучении поля стоксовой частоты отдельными молекулами в среде с материальным уравнением, измененным под действием излучения накачки. Основное внимание в работах [1–5] уделено свойствам высших стоксовых и антистоксовых компонент; для первой стоксовой компоненты получено лишь выражение для полной по всем частотам и направлениям мощности в сильном поле накачки. В этой связи представляет интерес более подробный расчет характеристик первой стоксовой компоненты, проведенный в настоящей работе.

В разделе 1 получены выражения для интенсивности и формы линии стоксовой компоненты, пригодные для описания как спонтанного, так и вынужденного рассеяния в однородном пучке, и уточнено выражение для полной мощности, полученное в [1]. В разделе 2 вычислено поперечное распределение интенсивности в ближней зоне для поперечно-неоднородных параллельного и расходящегося пучков накачки.

В экспериментах неоднократно наблюдалось [6–8] аномальное возрастание интенсивности стоксовой компоненты при мощности накачки, меньшей порога самофокусировки, имеющее пороговый характер. Высказывалось предположение [6, 8, 9], что аномальное усиление может быть связано с возникновением обратной связи. В работе [9] в качестве механизма обратной связи было предложено релеевское рассеяние излучения стоксовой частоты. В разделе 3 вычислен порог релеевской генерации в модели плоских волн для однородного пучка и в модели точечных источников для поперечно-неоднородного пучка.

1. Интенсивность и форма линии стоксовой компоненты. Однородный пучок накачки

Будем считать, что объем рассеяния имеет вид цилиндра радиуса a и длины L, причем $a \ll L$; в дальнейшем мы будем называть объем рассеяния стержнем. Спектральная интенсивность первой стоксовой компоненты, создаваемая одним затравочным источником в однородном плоскополяризованном поле накачки, имеет вид [1]

$$s_\omega = \frac{c\sqrt{\varepsilon}}{8\pi N} d_\omega^2 \frac{k^4}{\rho^2} \sin^2\Theta \exp g_\omega \rho \sin^2\Theta. \tag{1}$$

Здесь Θ — угол между направлением распространения стоксовой волны и вектором $\mathbf{E}_L$, N — число молекул рассеивающего вещества в единице объема, g_ω — коэффициент усиления для интенсивности, совпадающий с коэффициентом усиления в модели плоских волн [10]

$$g_\omega = \frac{2\pi\omega_s^2}{c\sqrt{\varepsilon}\,\omega_\nu \Gamma}\lambda^2 \frac{|E_L|^2}{1+\Delta^2} = \frac{g_0}{1+\Delta^2}, \tag{2}$$

где Δ — расстройка частоты: $\Delta = \frac{\omega - \omega_L + \omega_\nu}{\Gamma}$, Γ — полуширина линии спонтанного КР. Спектральная плотность затравочных источников

$$d_\omega^2 = \frac{\hbar}{2\pi\Gamma\omega_\nu}\lambda^2 \frac{|E_L|^2}{1+\Delta^2}. \tag{3}$$

Формула (1) применима для описания как спонтанного (СКР), так и вынужденного (ВКР) рассеяния.

Вычислим интенсивность стоксовой компоненты в направлении оси стержня. Для тонкого стержня можно положить $\sin^2\Theta = 1$. Спектральная интенсивность на выходе определится интегрированием по всем затравочным источникам

$$S_\omega = \int_V s_\omega N\, dV. \tag{4}$$

Интенсивность непосредственно на торце стержня, вычисленная по формуле (4), оказывается бесконечной, чего и следовало ожидать для интенсивности в точке расположения источника. Поэтому всюду в дальнейшем мы будем вычислять интенсивность в точке, отстоящей на расстоянии R от торца стержня. Одновременно с изменением пределов интегрирования в (4) мы должны ввести множитель $\exp(-g_\omega R)$, учитывающий отсутствие усиления вне стержня. В результате интегрирования получим

$$S_\omega = p_\omega \pi a^2 \left[g_\omega \operatorname{Ei}(g_\omega \rho) - \frac{\exp g_\omega \rho}{\rho} \right]\Bigg|_R^{R+L} \exp(-g_\omega R), \tag{5}$$

где Ei — интегральная показательная функция. Мы ввели здесь обозначение

$$p_\omega = \frac{c\sqrt{\varepsilon}\,\hbar k^4}{4\pi^2\Gamma\omega_\nu}\lambda^2 \frac{|E_L|^2}{1+\Delta^2} = \frac{p_0}{1+\Delta^2}. \tag{6}$$

Эта величина пропорциональна мощности стоксовой компоненты, рассеянной единичным объемом в среде без усиления. Для спонтанного рассеяния спектральная интенсивность в дальней зоне ($R \gg L$)

$$S_\omega = p_\omega \frac{\pi a^2 L}{R^2} \tag{7}$$

пропорциональна длине стержня.

Для сильного поля накачки ($g_\omega R \gg 1$) спектральная интенсивность в ближней зоне (при $L \gg R$ и не слишком малых R)

$$S_\omega = p_\omega \frac{\pi a^2 \exp g_\omega L}{g_\omega L^2}. \tag{8}$$

В дальней зоне (при $R \gg L$) спектральная интенсивность имеет вид

$$S_\omega = p_\omega \frac{\pi a^2 [\exp g_\omega L - 1]}{g_\omega R^2}. \tag{9}$$

При $g_\omega \to 0$ формула (9) переходит в (7). Выражение (9) справедливо для любого положения точки наблюдения внутри телесного угла $\Omega_0 = \frac{\pi a^2}{L^2}$ с центром на оси стержня.

Выражение для спектральной интенсивности в ближней зоне можно преобразовать, использовав значение g_ω из (2)

$$S_\omega = S_\omega^{+} \Omega_0 \exp g_\omega L, \tag{10}$$

где

$$S_\omega^{+} = \frac{\hbar \omega^3}{8\pi^3 c^2} \tag{11}$$

есть удвоенная спектральная интенсивность нулевых колебаний. Выражение (10) формально совпадает с выражением, известным в модели плоских волн [9]

$$S_\omega (L) = S_\omega (0) \exp g_\omega L, \tag{12}$$

однако в (10) входит телесный угол Ω_0, определяемый геометрией стержня, которая принципиально несущественна в модели плоских волн. Из (10) следует, что спонтанным рассеянием в комбинационном усилителе можно пренебречь, если мощность входного сигнала $P(0) \gg P_N = S_\omega^{+} \Omega_0 \pi a^2 \Delta\omega$. Для типичных значений: $a = 0.1$ см; $L = 10$ см; $\Delta\omega = 10^{11}$ сек.$^{-1}$, $\omega = 3 \cdot 10^{15}$ сек.$^{-1}$, $P_N = 4 \cdot 10^{-6}$ вт.

Форма линии стоксовой компоненты определится из (2) и (9)

$$F(\omega) = \frac{\exp g_\omega L - 1}{\exp g_0 L - 1}. \tag{13}$$

Для спонтанного рассеяния форма линии лоренцева: $F(\omega) = \frac{1}{1 + \Delta^2}$; для больших усилений

$$F(\omega) = \exp - g_0 L \frac{\Delta^2}{1 + \Delta^2}. \tag{14}$$

Такое выражение известно и в модели плоских волн [10]. Однако в этой модели формула (14), справедливая для любых усилений, описывает не форму линии стоксовой компоненты, а форму полосы усиления. Здесь же отметим, что для больших усилений форму линии можно считать гауссовой

$$F(\omega) = \exp - g_0 L \frac{\Delta^2}{1 + \Delta^2} \approx \exp - g_0 L \Delta^2. \tag{15}$$

Полную интенсивность найдем, проинтегрировав (9) по частоте

$$S = p_0 \frac{\pi^2 a^2 L \Gamma}{R^2} \exp \frac{g_0 L}{2} \left[I_0 \left(\frac{g_0 L}{2} \right) - \frac{1}{2} I_1 \left(\frac{g_0 L}{2} \right) \right], \tag{16}$$

где I_0 и I_1 — функции Бесселя мнимого аргумента нулевого и первого порядка соответственно. В случае слабой накачки (СКР)

$$S = p_0 \frac{\pi a^2 L \Gamma}{R^2} \tag{17}$$

интенсивность пропорциональна мощности накачки. При больших усилениях

$$S = p_0 \frac{\pi^{3/2} a^2 \Gamma}{2R^2} \sqrt{\frac{L}{g_0}} \exp g_0 L. \tag{18}$$

В этом случае можно пренебречь потоком стоксовой компоненты вне телесного угла Ω_0. Полная мощность стоксовой компоненты (с учетом излучения как вперед, так и назад)

$$P = P_{\text{скр.}} \frac{3a^2 \exp g_0 L}{4\pi^{3/2} \sqrt{g_0 L}\, L^2}. \tag{19}$$

Это выражение отличается от полученного в [1]. Различие связано с тем, что в работах [1, 5] форма линии считается гауссовой; между тем из характера приближения, сделанного в (15), видно, что гауссова форма линии у́же, чем описываемая формулой (13).

Здесь же приведем выражение для полной интенсивности, создаваемой одним затравочным диполем

$$s = p_0 \frac{\pi\Gamma}{N\rho^2}\sin^2\Theta \exp\frac{g_0\rho\sin^2\Theta}{2}\, I_0\left(\frac{g_0\rho\sin^2\Theta}{2}\right). \qquad (20)$$

Это выражение пригодно для любых интенсивностей накачки. При больших усилениях формула (20) переходит в

$$s = p_0 \frac{\sqrt{\pi}\,\Gamma}{N\rho^2}\left(g_0\rho\sin^2\Theta\right)^{-1/2}\exp g_0\rho\sin^2\Theta. \qquad (21)$$

Это выражение совпадает с полученным в [1].

2. Интенсивность стоксовой компоненты. Неоднородный пучок накачки

Лазерные пучки, применяемые для возбуждения ВКР, фактически имеют неоднородную структуру как в поперечном, так и в продольном направлениях. В неоднородном плоскополяризованном пучке накачки спектральная интенсивность первой стоксовой компоненты, создаваемая одним затравочным источником, имеет вид

$$s_\omega = \frac{c\sqrt{\varepsilon}}{8\pi N}\, d_\omega^2 \frac{k^4}{\rho^2}\sin^2\Theta \exp\left(\sin^2\Theta\int_0^\rho g_\omega(\tau)\, d\tau\right), \qquad (22)$$

где интегрирование проводится вдоль прямой, соединяющей источник и точку наблюдения. Мы воспользуемся этим выражением для расчета поперечного распределения интенсивности вблизи торца стержня для поперечно-неоднородного пучка накачки; при этом мы ограничимся рассмотрением вынужденного КР с большим усилением: $\exp g_\omega L \gg 1$. Распределение интенсивности в пучке накачки, а следовательно, и распределение коэффициента усиления мы будем считать параболическим. Для параллельного пучка

$$g_\omega(r) = G_\omega\left(1 - \frac{r^2}{a^2}\right). \qquad (23)$$

Такое распределение в центральной части пучка, наиболее важной при больших усилениях, незначительно отличается от обычно используемого гауссова распределения. Заметим, что центральный коэффициент усиления G_ω в параболическом пучке в два раза больше коэффициента усиления для однородного пучка. Для спектральной интенсивности стоксовой компоненты вблизи торца стержня

$$S_\omega = p_\omega \frac{3a^2\exp G_\omega L}{G_\omega\left(G_\omega L + 6\ln 2\right)}\exp - \frac{x^2 G_\omega L}{3a^2}\left(\frac{3G_\omega L + 24\ln 2}{4G_\omega L + 24\ln 2}\right), \qquad (24)$$

где x — расстояние от оси пучка накачки. Таким образом, поперечное распределение спектральной интенсивности будет гауссовым, причем ширина распределения будет уменьшаться с ростом $G_\omega L$. Полная интенсивность описывается формулой

$$S = p_0 \frac{3\sqrt{\pi}\,a^2\Gamma e^{G_0 L}}{\left(G_0 L + 6\ln 2\right) G_0\sqrt{G_0 L}}\; \frac{\exp - \dfrac{x^2 G_0 L}{3a^2}\left(\dfrac{3G_0 L + 24\ln 2}{4G_0 L + 24\ln 2}\right)}{\sqrt{1 - \dfrac{x^2}{3a^2}\left(\dfrac{3G_0 L + 24\ln 2}{4G_0 L + 24\ln 2}\right)}}. \qquad (25)$$

Хотя расходимость лазерных пучков, используемых для возбуждения КР, как правило, мала, при использовании образцов большой длины наличие расходимости может оказать заметное влияние на характеристики стоксова излучения. В расходящемся пучке коэффициент усиления будет меняться как в поперечном, так и в продольном направлении

$$g_\omega(\rho, r) = G_\omega \frac{a^2(0)}{a^2(\rho)}\left[1 - \frac{r^2}{a^2(\rho)}\right]. \tag{26}$$

Считая зависимость ширины пучка от длины линейной

$$a(\rho) = a + \Theta\rho, \tag{27}$$

где Θ — угол расходимости, получим выражение для спектральной интенсивности вблизи торца стержня

$$S_\omega = p_\omega \frac{3(a+L\Theta)^2 a e^{\frac{G_\omega La}{a+L\Theta}}}{L^2G_\omega[6\ln 2(a+L\Theta)+aG_\omega L]} \exp - \frac{x^2 G_\omega La}{3(a+L\Theta)^3}\left[\frac{3G_\omega La+24\ln 2(a+L\Theta)}{4G_\omega La + 24\ln 2(a+L\Theta)}\right]. \tag{28}$$

Полная интенсивность стоксовой компоненты имеет вид:

$$S = p_0 \frac{\sqrt{3\pi}\,\Gamma(a+L\Theta)^3\sqrt{a(a+L\Theta)}}{L^2G_0[6\ln 2(a+L\Theta)-aG_0L]\sqrt{G_0L}} \exp\frac{G_0La}{a+L\Theta}\times$$
$$\times\left[3(a+L\Theta) - x^2\frac{3aG_0L+24\ln 2(a+L\Theta)}{4aG_0L+24\ln 2(a+L\Theta)}\right]^{-1/2}\exp -$$
$$- \frac{x^2G_0La}{3(a+L\Theta)^3}\left[\frac{3aG_0L+24\ln 2(a+L\Theta)}{4aG_0L+24\ln 2(a+L\Theta)}\right]. \tag{29}$$

При $\Theta = 0$ эти выражения переходят в формулы (24) и (25) соответственно. Из (28) видно, что с увеличением угла расходимости накачки ширина поперечного распределения стоксовой компоненты быстро увеличивается.

3. Влияние релеевского рассеяния на усиление стоксовой компоненты

Рассмотрим влияние релеевского рассеяния на усиление стоксовой компоненты комбинационного рассеяния в однокомпонентной жидкости. В этом случае [11] спектр молекулярного рассеяния будет содержать четыре компоненты: линию Ландау—Плачека (рассеяние на флуктуациях энтропии, ширина линии $\delta\nu \approx 10^{-4}$ см$^{-1}$), дублет Мандельштама—Бриллюэна (рассеяние на флуктуациях давления, смещение линий $\Delta\nu \approx 1$ см$^{-1}$, $\delta\nu \approx 10^{-3}$ см$^{-1}$) и крыло линии Релея (рассеяние на флуктуациях анизотропии, ширина линии ~ 10 см$^{-1}$). Так как ширина полосы усиления [10]

$$\delta\nu = \Gamma\sqrt{\frac{\ln 2}{g_0L}}$$

при больших усилениях будет весьма малой, то заметно усиливаться будут только волны несмещенной стоксовой частоты, рассеянные на флуктуациях энтропии.

Интенсивность стоксовой волны, распространяющейся по направлению к выходной грани стержня, будет суммой интенсивностей экспоненциально усиленной входной волны и стоксовых волн, претерпевших четное число рассеяний.

Потерями за счет релеевского рассеяния как для излучения накачки, так и для стоксова излучения пренебрегаем. Интенсивность двукратно рассеянного поля на расстоянии z от входной грани

$$S^{(2)}_\omega(z) = S_\omega(0)\,R^2 \int_0^z \Omega(z-x)\, e^{g_\omega(z-x)}dx \int_0^L \Omega(y-x)\, e^{g_\omega(2y-x)}dy, \tag{30}$$

где R — коэффициент энтропийного рассеяния назад, $\Omega(\rho)$ — телесный угол, под которым видно поперечное сечение пучка с расстояния ρ на оси. Заменяя телесный угол его минимальным значением Ω_0, получаем

$$S_\omega^{(2)}(z) = S_\omega(0)\,\frac{R^2\Omega_0^2}{4g_\omega^2}\,e^{g_\omega z}\left[e^{2g_\omega L} - e^{-2g_\omega(z-L)} - 2g_\omega z e^{-2g_\omega L}\right]. \tag{31}$$

При больших усилениях последним слагаемым можно пренебречь, и формула принимает вид

$$S_\omega^{(2)}(z) = S_\omega(0)\,e^{g_\omega z}\left(1 - e^{-2g_\omega z}\right)\left(\frac{R\Omega_0}{2g_\omega}\,e^{g_\omega L}\right)^2. \tag{32}$$

Оценим возможность замены телесного угла его минимальным значением; аппроксимируя телесный угол выражением

$$\Omega(\rho) = \frac{\pi a^2}{\left(\rho + \frac{a}{\sqrt{2}}\right)^2} \tag{33}$$

для двукратно рассеянного поля на выходе, получим

$$S_\omega^{(2)}(L) = S_\omega(0)\,e^{g_\omega L} R^2\pi^2 a^4 e^{-g_\omega\sqrt{2}\,a}\left[\frac{e^{2g_\omega L}}{L}\left(\frac{1}{2L} - g_\omega\right) + 2g_\omega\,\mathrm{Ei}\,(2g_\omega L)\left(g_\omega - \frac{1}{L}\right) + \right.$$
$$\left. + \frac{\sqrt{2}\,e^{g_\omega\sqrt{2}\,a}}{a}\left(\frac{1}{\sqrt{2}\,a} + g_\omega - \frac{1}{L}\right) - 2g_\omega\,\mathrm{Ei}\,(\sqrt{2}\,g_\omega a)\left(\frac{2\sqrt{2}}{a} - \frac{1}{L} - g_\omega\right)\right]. \tag{34}$$

При больших усилениях ($g_\omega L \gg 1$) можно воспользоваться асимптотическим разложением Ei, тогда

$$S_\omega^{(2)}(L) = S_\omega(0)\,e^{g_\omega L}\left(\frac{R\Omega_0}{2g_\omega}\,e^{g_\omega L}\right)^2\left(1 + \frac{3}{g_\omega L}\right). \tag{35}$$

Из сравнения (35) и (32) видно, что при $g_\omega L \gg 1$ интенсивность двукратно рассеянного света хорошо описывается формулой (32). Для интенсивности четырехкратно рассеянного света, используя замену телесного угла минимальным значением, получим

$$S_\omega^{(4)}(z) = S_\omega(0)\,e^{g_\omega z}\left(1 - e^{-2g_\omega z}\right)\left(\frac{R\Omega_0}{2g_\omega}\,e^{g_\omega L}\right)^4. \tag{36}$$

Полная интенсивность рассеянного света определится суммированием интенсивностей волн четной кратности рассеяния

$$S_\omega^{(e)}(z) = S_\omega(0)\,e^{g_\omega z}\left(1 - e^{-2g_\omega z}\right)\sum_{n=1}\left(\frac{R\Omega_0}{2g_\omega}\,e^{g_\omega L}\right)^{2n}. \tag{37}$$

Интенсивность рассеянного света быстро возрастает при удалении от торцов стержня; поэтому во всем стержне, кроме области, прилежащей к входной грани, интенсивность стоксовой волны описывается формулой

$$S_\omega(z) = S_\omega(0)\,\frac{e^{g_\omega z}}{1 - K}, \tag{38}$$

где коэффициент релеевской обратной связи $K = \left(\frac{R\Omega_0}{2g_\omega}\,e^{g_\omega L}\right)^2$. Это выражение совпадает с формулой для интенсивности излучения в лазере с диффузным резонатором [12] с альбедо рассеивающих поверхностей $\alpha = \frac{R}{2g_\omega}\,2\pi$ и длиной активной области L.

Условие генерации в таком лазере

$$\frac{R\Omega_0}{2g_\omega}\,e^{g_\omega L} = 1. \tag{39}$$

В поперечно-неоднородном (параболическом) пучке накачки мы можем учесть релеевское рассеяние введением на торцах стержня вторичных затравочных источников с интенсивностью

$$S'_\omega = S_\omega \frac{R}{2G_\omega}, \tag{40}$$

где S_ω — интенсивность падающего стоксова излучения.

Выражение для спектральной интенсивности, создаваемой вторичными источниками, может быть получено непосредственно из (24) заменой p_ω на $S_\omega R/2$. Поперечное распределение спектральной интенсивности рассеянного излучения будет гауссовым, причем ширина распределения будет зависеть от кратности рассеяния. При увеличении кратности рассеяния параметр распределения будет стремиться к пределу

$$A^2 = a^2 \frac{2\sqrt{3}}{G_\omega L}. \tag{41}$$

Расчеты показывают, что уже после четвертого рассеяния ширина распределения будет отличаться от предельной менее чем на 1%. Условие генерации в параболическом пучке

$$\frac{3}{2+\sqrt{3}} \frac{a^2 R e^{G_\omega L}}{L^3 G_\omega^2} = 1. \tag{42}$$

Пороговые мощности накачки, рассчитанные по (42) для условий опыта, описанного в [8], равны 440 квт для жидкого кислорода и 370 квт для жидкого азота. Экспериментально найденные значения — 160 и 130 квт соответственно; отношение пороговых мощностей полностью согласуется с наблюденным. Различие между теоретическими и опытными порогами может быть связано с временной неоднородностью излучения накачки [7].

Возможность экспериментального обнаружения генерации за счет релеевской обратной связи ограничивается самофокусировкой излучения накачки. Заметим, что условие релеевской генерации определяет при данной геометрии образца пороговую интенсивность накачки, в то время как возможность самофокусировки определяется пороговой мощностью. Поэтому можно ожидать, что в веществах с относительно высоким порогом самофокусировки релеевская генерация стоксовой частоты будет возможна при использовании достаточно длинных образцов и тонких пучков накачки.

Автор глубоко признателен Д. Н. Клышко за плодотворные дискуссии и интерес к работе.

Литература

[1] В. Н. Луговой. Опт. и спектр., *20*, 996, 1966.
[2] В. Н. Луговой. Опт. и спектр., *21*, 293, 1966.
[3] В. Н. Луговой. Опт. и спектр., *21*, 432, 1966.
[4] В. Н. Луговой. ЖЭТФ, *51*, 931, 1966.
[5] В. Н. Луговой. Введение в теорию вынужденного комбинационного рассеяния. Изд. «Наука», М., 1968.
[6] G. G. Bret, M. M. Denariez. Phys. Lett., *22*, 583, 1966.
[7] G. Bisson, G. Mayer. J. Phys., *29*, 97, 1968.
[8] I. B. Grun, A. K. McQuillan, B. P. Stoicheff. Phys. Rev., *180*, 61, 1969.
[9] Н. Бломберген. УФН, *97*, 307, 1969.
[10] Chen-Show Wang. Phys. Rev., *182*, 482, 1969.
[11] И. Л. Фабелинский. Молекулярное рассеяние света, Изд. «Наука», М., 1965.
[12] Р. В. Амбарцумян, Н. Г. Басов, П. Г. Крюков, В. С. Летохов. ЖЭТФ, *51*, 724, 1966.

Поступило в Редакцию 25 июня 1970 г.