

УСИЛЕНИЕ ИНФРАКРАСНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА ВОЗБУЖДЕННЫХ КОЛЕБАТЕЛЬНЫХ УРОВНЯХ МОЛЕКУЛ ПРИ ВКР

Б. А. Медведев и О. М. Паршков

Получены формулы, определяющие пороговые интенсивности входного лазерного излучения, необходимые для усиления ИК излучения на возбужденных колебательных уровнях молекул при ВКР. Определены область рассеивающей среды, где происходит усиление, и интенсивности ИК сигнала в случае затравки его как когерентным, так и шумовым излучениями. Соответствующие оценки проведены для газообразных и жидких сред.

Создание усилителей и генераторов ИК излучения является актуальной проблемой нелинейной оптики. Одним из возможных путей решения этой задачи является использование нелинейных взаимодействий лазерного, стоксового и ИК поля при ВКР.

Усиление ИК излучения при когерентном параметрическом взаимодействии лазерной, стоксовой и ИК волн, впервые предложенное в [1, 2], широко обсуждалось теоретически и получило экспериментальное подтверждение. Другой принцип усиления ИК излучения с помощью ВКР, впервые предложенный в [3] и позже исследованный в [4], заключается в использовании инверсии населенностей, создаваемой при ВКР между возбужденными колебательными уровнями молекул, высший из которых относится к активному в ВКР колебанию. В данной работе мы исследуем процесс формирования импульса ИК излучения и оценим интенсивности лазерного излучения на входе в рассеивающую среду, необходимые для усиления ИК излучения, степень усиления и область рассеивающей среды, где оно происходит. Мы ограничиваемся рассмотрением усиления ИК излучения при взаимодействии бегущих волн в жидкостях и газах.

Рабочая схема уровней представлена на рис. 1. Уровни 2 и 3 относятся к различным нормальным колебаниям. При этом переход 1—3 разрешен в КР, но запрещен в ИК спектре, а переход 2—3 запрещен в КР, но разрешен в ИК области.

Результаты работ [3, 4] показывают, что для создания инверсии населенностей между уровнями 2 и 3 в большинстве случаев необходимы такие интенсивности лазерного излучения, которые обычно получаются от лазеров с модулированной добротностью с длительностью импульса (τ), составляющей 10^{-7} — 10^{-8} сек. Поэтому для большинства рассматриваемых здесь экспериментальных ситуаций должно выполняться условие

$$T_{ik} \ll \tau \ll T^{ik}, \quad (1)$$

где T_{ik} и T^{ik} ($i, k=1, 2, 3$) — поперечные и продольные времена релаксации соответственно. Действительно, $T_{ik} \sim 10^{-10}$ — 10^{-11} сек.,

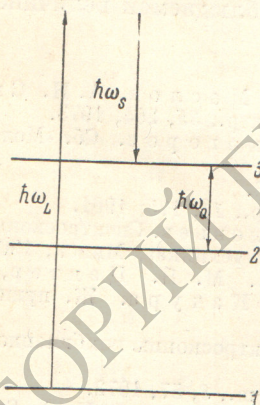


Рис. 1.

$T_{ik}/T^{ik} \sim 10^{-5} \div 10^{-9}$ в конденсированных средах [5, 6], а в газах при нормальных условиях $T_{ik} \sim 10^{-8} \div 10^{-9}$ сек., $T^{ik} \sim 10^{-1} \div 10^{-3}$ сек. [7].
Гамильтониан взаимодействия молекулы с электрическим полем

$$E = i \left[E_L e^{i(k_L z - \omega_L t)} + E_S e^{i(k_S z - \omega_S t)} + E_Q e^{i(k_Q z - \omega_Q t)} + \text{к. с.} \right]$$

может быть записан в виде

$$V = -\hat{\alpha} \tilde{E}_L \tilde{E}_S^* e^{i[(k_L - k_S)z - \omega_{31}t]} - \hat{p} E_Q e^{i(k_Q z - \omega_Q t)} + \text{к. с.}, \quad (2)$$

где i — орт-вектор оси x , $\hat{\alpha}$ и \hat{p} — xx - и x -компоненты операторов поляризуемости и дипольного момента, индексы L, S, Q относятся к характеристикам лазерной, стоксовой и ИК волн соответственно, $E_i = E_i(z, t)$ ($i=L, S, Q$) — медленные амплитуды соответствующих полей, знак « \sim » над ними указывает на локальное поле. Предполагается также, что $\omega_L - \omega_S = \omega_{31}$, $\omega_Q = \omega_{32}$. Первый член в (2) учитывает КР на уровнях $1-3$, а второй — ИК переходы между уровнями 2 и 3 .

Для упрощения анализа предполагаем, что лазерный импульс на входе в образец ($z=0$) имеет прямоугольную форму

$$E_L(0, t) \equiv E_{L0}(t) = \begin{cases} \tilde{E}_{L0} = \text{const} & 0 \leq t \leq \tau, \\ 0 & t < 0, t > \tau. \end{cases} \quad (3)$$

Ограничиваясь, кроме того, случаем слабого ИК сигнала (т. е. такого ИК импульса, воздействие которого на рассеивающую среду представляет малое возмущение относительно воздействия лазерного и стоксового импульсов), мы можем считать, что функции E_L и E_S имеют тот же вид, как и при отсутствии ИК излучения. В работе [5] показано, что при $\tau \gg T_{ik}$ уравнения нестационарного ВКР переходят в обычные уравнения стационарной теории при преобразовании к собственному времени импульса лазера, если взаимодействие волн рассматривается на длине $l < l_{1 \text{ кор.}}$, где $l_{1 \text{ кор.}} = \tau |g_L^{-1} - g_S^{-1}|^{-1}$, g_L и g_S — групповые скорости лазерной и стоксовой волн. Если $\tau \sim 10^{-7} \div 10^{-8}$ сек., $|g_L - g_S| \sim g_L \sim 10^{10}$ см/сек., то $l_{1 \text{ кор.}} \sim 10^2 - 10^3$ см. При $l < l_{1 \text{ кор.}}$ можно, следовательно, для E_L и E_S использовать обычные формулы [8], относя границы условия к предшествующему моменту времени $\zeta = t - (z/g_L)$

$$E_L(z, t) = \frac{E_{L0}(\zeta) \exp\left[-\frac{1}{2} \beta E_{L0}^2(\zeta) w z\right]}{\{q + \exp[-\beta E_{L0}^2(\zeta) w z]\}^{1/2}}, \quad (4)$$

$$E_S(z, t) = \frac{\left(q \frac{\omega_S \eta_L}{\omega_L \eta_S}\right)^{1/2} E_{L0}(\zeta)}{\{q + \exp[-\beta E_{L0}^2(\zeta) w z]\}^{1/2}}, \quad (5)$$

где

$$w = \frac{8\pi^2 N L_L L_S \omega_S |a_{13}|^2 T_{13}}{\hbar \eta_L \eta_S c^2}, \quad (6)$$

$\beta = c\eta_L/2\pi$, η_i и $L_i = [(\eta_i^2 + 2)/3]^2$ — показатель преломления и множитель Лоренца на частоте ω_i ($i=L, S, Q$), N — число частиц в ед. объема. Формулы (4) и (5) записаны для случая, когда затравкой ВКР служит СКР и величина q есть квантовый выход СКР. При этом предполагается, что $q \ll 1$.

Гамильтониан (2) используется при составлении кинетических уравнений для матрицы плотности. Условие (1) позволяет пренебречь в них производными недиагональных матричных элементов и членами, описывающими продольную релаксацию. Кроме того, используя соображения, приведенные в [4], будем в дальнейшем предполагать, что относительная населенность уровня 1 от времени не зависит и равна своему равновесному

значению, величину которого можно положить равной единице. Если от матрицы плотности в представлении Шредингера ρ перейти к медленным амплитудам R по формулам

$$\begin{aligned} \rho_{ii} &= R_{ii} \quad (i=1, 2, 3), \quad \rho_{13} = R_{13} e^{i[\omega_{31}t - (k_L - k_S)z]}, \\ \rho_{23} &= R_{23} e^{i(\omega_Q t - k_Q z)}, \quad \rho_{12} = R_{12} e^{i[\omega_{21}t - (k_L - k_S - k_Q)z]}, \end{aligned}$$

то, учитывая сделанные предположения и пренебрегая нерезонансными слагаемыми, получим следующую систему уравнений:

$$R_{12} = T_{12} (A_{32} R_{13} - A_{13} R_{32}), \quad (7a)$$

$$R_{13} = T_{13} (A_{13} + A_{23} R_{12}), \quad (7b)$$

$$R_{23} = T_{23} [A_{23} (R_{22} - R_{33}) + A_{13} R_{21}], \quad (7b)$$

$$\partial R_{22} / \partial t = 2 \operatorname{Re} (A_{32} R_{23}), \quad (7r)$$

$$\partial R_{33} / \partial t = 2 \operatorname{Re} (A_{13} R_{31}) + 2 \operatorname{Re} (A_{23} R_{32}), \quad (7d)$$

где

$$A_{23} = -\frac{i}{\hbar} p_{23} \tilde{E}_Q^* = -A_{32}^*, \quad A_{13} = -\frac{i}{\hbar} a_{13} \tilde{E}_L \tilde{E}_S = -A_{31}^*, \quad (8)$$

При записи (7б) учитывалось, что если в процессе усиления R_{11} всегда близко к единице, то $R_{33} \ll 1$, и поэтому можно пренебречь слагаемым $-A_{13} R_{33}$ по сравнению с A_{13} .

Волновое уравнение, определяющее изменение интенсивности ИК излучения ($I_Q = (c \eta_Q / 2\pi) E_Q^2$) в приближении медленных огибающих, записывается в виде

$$\frac{1}{u_Q} \frac{\partial I_Q}{\partial t} + \frac{\partial I_Q}{\partial z} + \gamma_0 I_Q = i \omega_Q (P E_Q - \text{к. с.}), \quad (9)$$

где $P = NL_Q^2 p_{23} R_{32}$, $u_Q = c / \eta_Q$ — фазовая скорость ИК излучения в среде, γ_0 — коэффициент нерезонансных потерь.

Предположение о слабом ИК сигнале, сделанное выше, позволяет решить систему (7) методом последовательных приближений по ИК полю (МПП), считая, что в нулевом приближении $E_Q = 0$ [4]. При этом удобно перейти к новым переменным

$$\zeta = t - \frac{z}{g_L}, \quad z = z. \quad (10)$$

Исключение из (7) членов, описывающих продольную релаксацию, а также использование МПП ограничивает анализ значениями $\zeta \leq \tau$.

Однако в области $\zeta > \tau$ (т. е. после прохождения лазерного и стоксового импульсов) может происходить лишь убывание интенсивности ИК излучения.

Находя из (7) R_{23} в первом приближении МПП и используя (9), в котором после замены (10) опущено слагаемое $(1/u_Q - 1/g_L) \partial I_Q / \partial z$, что допустимо, если усиление рассматривается на длинах $l < l_{2\text{кор.}} = \tau |u_Q^{-1} - g_L^{-1}|^{-1}$ (обычно $l_{2\text{кор.}} \sim l_{1\text{кор.}}$), приходим к уравнению

$$\frac{\partial I_Q}{\partial z} = \left(\frac{wv}{\hbar \omega_S} I_L I_S \zeta^{l-1} - \gamma \right) I_Q, \quad \zeta \leq \tau, \quad (11)$$

где

$$v = \frac{4\pi \omega_Q L_Q |P_{23}|^2 T_{23}}{c \hbar \eta_S}, \quad \gamma = v N^e + \gamma_0, \quad (12)$$

$N^e = N (R_{22}^e - R_{33}^e)$ — равновесная разность населенностей уровней 2 и 3, а $I_i = (c \eta_i / 2\pi) E_i^2$ ($i = L, S$) — интенсивности лазерного и стоксового излучений.

Решение (11) с использованием формул (3), (4) и (5) имеет вид

$$I_Q(z, \zeta) = I_{Q0}(\zeta) \begin{cases} \exp(-\gamma z), & \zeta < 0 \\ \exp \left[\frac{vq}{\hbar\omega_L} \frac{1 - \exp(-I_{L0} w z)}{q + \exp(-I_{L0} w z)} I_{L0} \zeta - \gamma z \right], & 0 \leq \zeta \leq \tau, \end{cases} \quad (13)$$

где $I_{L0} = (c\eta_L/2\pi) \bar{E}_{L0}^2$ — интенсивность лазерного излучения на входе в рассеивающую среду, $I_{Q0}(\zeta)$ — интенсивность ИК сигнала при $z = 0$.

Формула (13) показывает, что до прихода лазерного импульса ($\zeta < 0$) $I_Q(z, \zeta)$ уменьшается с ростом z по закону Бугера. Для дальнейшего анализа достаточно предположить, что $I_{Q0}(\zeta) = \bar{I}_{Q0} = \text{const}$. Характер функции $I_Q(z, \zeta)$, заданной формулой (14), определяется тогда соотношением величин I_{L0} и $I_{L0}^{\text{нор}}$, где

$$I_{L0}^{\text{нор}} = \left(\frac{4\hbar\omega_L \gamma}{v w \tau} \right)^{1/2}. \quad (15)$$

Если $I_{L0} < I_{L0}^{\text{нор}}$, то функция $I_Q(z, \zeta = \text{const})$ монотонно убывает с ростом z для $0 \leq \zeta \leq \tau$ и, следовательно, усиления ИК сигнала не происходит.

Если $I_{L0} > I_{L0}^{\text{нор}}$, то при $\zeta_{\min} < \zeta \leq \tau$, где ζ_{\min} определяется соотношением

$$\zeta_{\min} = \frac{4\hbar\omega_L \gamma}{v w I_{L0}^2}, \quad (16)$$

функция $I_Q(z, \zeta = \text{const})$ будет иметь минимум и максимум в точках z_- и z_+ соответственно, при этом

$$z_-(\zeta) = -\frac{1}{w I_{L0}} \ln p_-(\zeta), \quad z_+(\zeta) = -\frac{1}{\omega I_{L0}} \ln p_+(\zeta), \quad (17)$$

$$p_{\pm}(\zeta) = q \left[\left(\frac{v w I_{L0}^2 \zeta}{2\hbar\omega_L \gamma} - 1 \right) \mp \sqrt{\left(\frac{v w I_{L0}^2 \zeta}{2\hbar\omega_L \gamma} - 1 \right)^2 - 1} \right], \quad (18)$$

а минимальное и максимальное значения интенсивностей ИК излучения [$I_{Q-}(\zeta)$ и $I_{Q+}(\zeta)$ соответственно] даются формулами

$$I_{Q\mp}(\zeta) = I_Q(z_{\mp}(\zeta), \zeta) = I_{Q0} \exp \left[\frac{vq}{\hbar\omega_L} \frac{1 - p_{\mp}(\zeta)}{q + p_{\mp}(\zeta)} I_{L0} \zeta - \gamma z_{\mp}(\zeta) \right]. \quad (19)$$

Следовательно, при $I_{L0} > I_{L0}^{\text{нор}}$ и $\zeta_{\min} < \zeta \leq \tau$ в области $z_-(\zeta) < z < z_+(\zeta)$ происходит усиление ИК излучения, при этом с ростом ζ величина $z_-(\zeta)$ уменьшается, в то время как $z_+(\zeta)$ и $I_{Q\mp}(\zeta)$ увеличиваются. Величина области усиления $z_+(\zeta) - z_-(\zeta)$, а также $I_{Q\mp}(\zeta)$ достигают своего наибольшего значения при $\zeta = \tau$. При $z > z_+(\zeta)$ интенсивность ИК излучения снова уменьшается с ростом z . Сказанное выше качественно иллюстрируется на рис. 2.

Полученная картина развития усиления ИК излучения интерпретируется следующим образом. Используя МПП для решения системы (7), можно показать, что $\Delta - \Delta^e \sim I_L I_S \zeta$, где $\Delta = R_{33} - R_{22}$ (см. формулы (8) в [4]). Учтя закон сохранения числа лазерных и стоксовых фотонов, получаем, что при фиксированном ζ величина Δ максимальна в такой точке z_{\max} , доходя до которой половина всех лазерных фотонов преобразуется в стоксовы. Если E_L и E_S определяются формулами (3) ÷ (6), то z_{\max} не зависит от ζ . Поэтому инверсия населенностей между уровнями 2 и 3, возникшая первоначально в точке z_{\max} с ростом ζ , распространяется вправо и влево от точки z_{\max} , образуя расширяющуюся область усиления.

Проведенные рассуждения позволяют видоизменить (13) и (14), чтобы получить интенсивность ИК излучения при затравке шумовыми фотонами [$I_Q^{\text{ш}}(z, \zeta)$]. Учтя, что при $I_{L0} > I_{L0}^{\text{нор}}$; $\zeta < \zeta_{\min}$ в области $z < z_-(\zeta)$

величина $I_{\bar{Q}}^m(z, \zeta)$ будет поддерживаться постоянной за счет спонтанных процессов, не учитываемых данной теорией, получаем

$$I_{\bar{Q}}^m(z, \zeta) = I_{\bar{Q}0}^m \begin{cases} 1, & \text{при } \zeta < \zeta_{\min} \text{ и при } \zeta \geq \zeta_{\min}, z < z_-(\zeta); \\ \exp \left\{ \frac{\nu q}{\hbar \omega_L} \frac{p_-(\zeta) - \exp(-I_{L0} \omega z)}{q + \exp(-I_{L0} \omega z)} \frac{1 + q}{q + p_-(\zeta)} I_{L0} \zeta - \gamma [z - z_-(\zeta)] \right\}, & \text{при } \zeta \geq \zeta_{\min}, z \geq z_-(\zeta). \end{cases} \quad (20)$$

где $I_{\bar{Q}0}^m$ — интенсивность квантового шума на частоте ω_Q . Величина $z_-(\zeta)$ определяет теперь просто начало области усиления. Своего наибольшего значения функция $I_{\bar{Q}}^m(z, \zeta)$ достигает при $\zeta = \tau$, $z = z_+(\tau)$. Качественный вид функции $I_{\bar{Q}}^m(z, \zeta = \text{const})$ приведен на рис. 2.

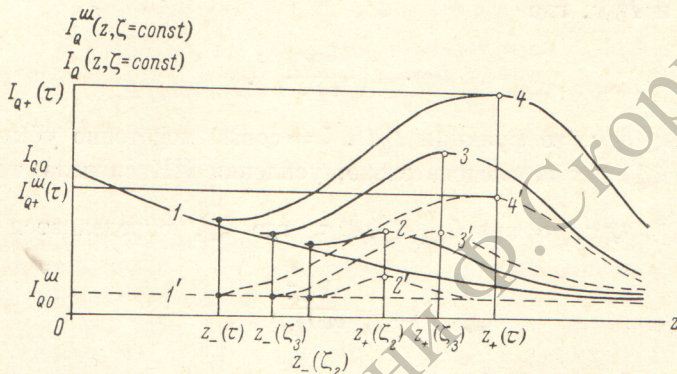


Рис. 2. Качественная картина развития усиления ИК излучения при когерентном (сплошная линия) и шумовом (штриховая) возбуждении ИК сигнала для $I_{L0} > I_{L0}^{\text{np}}$.

Кривые 1 и 1' соответствуют $\zeta = \zeta_1 < \zeta_{\min}$, 2 и 2' — $\zeta = \zeta_2 > \zeta_{\min}$, 3 и 3' — $\zeta = \zeta_3 > \zeta_2$, 4 и 4' — $\zeta = \tau > \zeta_3$.

Ограничение, налагаемое на допустимые значения интенсивности лазерной волны предположением $R_{11} = 1$, можно получить, находя из (7) R_{33} в нулевом приближении МПП и используя условие $R_{33} - R_{33}^e \ll 1$

$$I_{L0}^2 \ll \frac{4\hbar\omega_L N}{w\tau}. \quad (22)$$

Ограничение, налагаемое на интенсивность ИК поля применением МПП, дается формулой (20) работы [4] и в наших обозначениях имеют вид

$$I_Q \ll \min \left(\frac{\hbar^2 c \eta_Q}{2\pi |p_{23}|^2 L_Q T_{23} \tau}, \frac{2\pi}{c} \frac{L_L L_S}{L_Q} \frac{\eta_Q}{\eta_L \eta_S} \frac{|\alpha_{13}|^2}{|p_{23}|^2 T_{23} |\Delta^e|} I_L I_S \right). \quad (23)$$

Расположение уровней, приведенное на рис. 1, характерно для большого числа многоатомных молекул, активных в ВКР. Ниже проводятся оценки по формулам (15), (17), (19) и (21) для жидкостей и газов. При этом предполагается, что $\omega_L = \omega_S = 2.7 \cdot 10^{15}$ сек.⁻¹, $\omega_Q = 10^{13}$ сек.⁻¹, $q = 10^{-6}$, $|\alpha_{13}| = 10^{-25}$ см³, $|\Delta^e| = 10^{-2}$, $\tau = 10^{-7}$ сек. Для жидкостей при $T_{13} = T_{23} = 10^{-10}$ сек., $\eta_i = 1.5$, $L_i = 2$ ($i = L, S, Q$), $N = 10^{22}$ см⁻³, $\gamma_0 = 1$ см⁻¹, $|p_{23}|^2 = 10^{-40}$ ед CGSE получаем: $I_{L0}^{\text{np}} \approx 3 \cdot 10^8$ вт/см². При $I_{L0} = 7 \cdot 10^8$ вт/см² (что находится в согласии с (22)) $z_-(\tau) \approx 0.3$ см, $z_+(\tau) \approx 0.6$ см, $I_{Q+}(\tau) \approx 10 I_{Q0}$, $I_{\bar{Q}+}^m(\tau) \approx 3 \cdot 10^4 I_{\bar{Q}0}^m$. Пределы применимости МПП, согласно (23), имеют вид: $I_Q(z, \zeta) \ll 10^6$ вт/см². Если усиливаемое когерентное излучение вводить в усиливающую среду при $z = z_-(\tau)$, то степень усиления ($I_{Q+}(\tau)/I_{Q0}$) будет такой же, как и в случае возбуждения квантовым шумом. Изменение величины $|p_{23}|$ чрезвычайно сильно сказывается на интенсивности выходного сигнала. Так, если $|p_{23}|^2 = 10^{-41}$ ед. CGSE, то при прежних прочих условиях усиление практически пропадает: $I_{Q+}(\tau) = 3 \cdot I_{Q0}$. Увеличение γ_0 также играет отрицательную роль, при-

вода к увеличению $I_{L0}^{пор}$. Зависимость $z_{\mp}(\tau)$ от $|p_{23}|^2$ и γ_0 незначительна: при $\gamma_0=10 \text{ см}^{-1}$, $|p_{23}|^2=10^{-41}$ ед. CGSE и прежних значениях остальных величин $z_{-}(\tau)\approx 0.4 \text{ см}$, $z_{+}(\tau)\approx 0.5 \text{ см}$. В связи с сильной зависимостью степени усиления от $|p_{23}|$ следует обратить внимание на молекулы, в которых $|p_{23}|$ велико за счет резонанса Ферми. Например, для CS_2 колебания 658 и 397 см^{-1} участвуют в резонансе Ферми и колебание 658 см^{-1} активно в КР.

В случае газов при $T_{23}=T_{13}=10^{-8}$ сек., $|p_{23}|^2=10^{-41}$ ед. CGSE, $N=3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$, $\eta_i=L_i=1$ ($i=L, S, Q$), $\gamma_0=0$ находим: $I_{L0}^{пор}\approx 4 \cdot 10^7 \text{ Вт/см}^2$. При $I_{L0}=10^8 \text{ Вт/см}^2$ (это допускается условием (22)) $z_{-}(\tau)\approx 12 \text{ см}$, $z_{+}(\tau)\approx 21 \text{ см}$, $I_{Q+}\approx 3 \cdot 10^4 I_{Q0}$, $I_{Q+}^w(\tau)\approx 3 \cdot 10^6 I_{Q0}^w$. Условие (23) выполняется в данном случае при $I_Q(z, \zeta) \ll 10^5 \text{ Вт/см}^2$. Как и в случае жидкости, степень усиления ИК излучения в газах (при $\gamma_0=0$) сильно зависит от $|p_{23}|$, однако $I_{L0}^{пор}$, $z_{\mp}(\tau)$ от $|p_{23}|$ не зависят. Сравнение показывает, что несмотря на падение концентрации частиц при переходе от жидкостей к газам (кроме того, для газов взято при оценках меньшее значение величины $|p_{23}|^2$) степень усиления ИК излучения увеличилась. Это объясняется увеличением эффективности взаимодействия отдельной молекулы с излучением за счет сужения линий и уменьшения коэффициента нерезонансных потерь, а также за счет увеличения длины области усиления.

В заключение авторы выражают благодарность М. А. Ковнеру и Г. В. Скроцкому за ценные указания и внимание к работе.

Литература

- [1] E. Garmire, F. Pandarose, C. H. Townes. Phys. Rev. Letters, 11, 160, 1963.
- [2] R. Loudon. Proc. Roy. Soc., 482, 393, 1963.
- [3] В. С. Горелик, В. А. Зубов, М. М. Сущинский, В. А. Чирков. Письма в ЖЭТФ, 4, 52, 1966.
- [4] М. А. Ковнер, Б. А. Медведев, О. М. Паршков. Опт. и спектр., 34, 702, 1973.
- [5] С. А. Ахманов, К. Н. Драбович, А. П. Сухорук, А. С. Чиркин. ЖЭТФ, 59, 485, 1970.
- [6] П. Г. Крюков, В. С. Летохов. Усп. физ. наук, 99, 169, 1969.
- [7] I. C. Polanyi. J. Chem. Phys., 34, 347, 1961.
- [8] Н. Б. Бломберг. Нелинейная оптика. Изд. «Мир», М., 1966.

Поступило в Редакцию 12 мая 1973 г.