УДК 535.2

ИЗМЕНЕНИЕ СТАТИСТИЧЕСКИХ ХАРАКТЕРИСТИК СВЕТОВОГО ПОТОКА В ПРОЦЕССЕ МНОГОКВАНТОВОГО ПОГЛОЩЕНИЯ

П. П. Барашев

Теоретически показано, что процесс распространения амплитудно-флуктуирующего излучения в среде, которой присуще многоквантовое поглощение, сопровождается изменением статистических свойств светового потока. Функция распределения классической интегральной интенсивности излучения видоизменяется по мере проникновения светового потока в среду таким образом, что флуктуации интенсивности убывают, причем в случае заметного многоквантового поглощения исходное флуктуирующее излучение трансформируется практически в δ-функцию (т. е. нелинейно поглощающая среда является «шумовым» фильтром). Показано также, что изменение статистических свойств поля излучения следует учитывать при корректной оценке измеряемых на опыте интегральных характеристик многоквантовых процессов.

Для наблюдения и изучения многоквантовых процессов требуются, как правило, интенсивные световые потоки ($J \geqslant 10^{18} \div 10^{20}$ фотонов$\cdot$см$^{-2}\cdot$с$^{-1}$). Обычно в качестве источников столь интенсивного излучения используются лазеры, излучение которых по своим статистическим (когерентным) свойствам существенно отличается от излучения тепловых источников света. Известно [1], что статистические свойства лазерного и теплового полей излучения совершенно различны даже в том случае, когда энергетические, спектральные и угловые характеристики обоих полей излучения совпадают. Однако в настоящее время существует несколько способов получения столь же интенсивных монохроматических полей излучения, практически не отличающихся по своим когерентным свойствам от излучения тепловых (некогерентных) источников света. Речь идет об излучении лазеров с нерезонансной обратной связью и лазеров, работающих в режиме сверхизлучения. Теоретические расчеты и эксперименты показали [2, 3], что излучение лазеров подобных типов является по сути дела излучением чрезвычайно яркого черного тела и существенно отличается по своим флуктуационным (статистическим) свойствам от излучения одномодовых лазеров с резонансной обратной связью. Наконец, используя набор дифракционных решеток, можно из когерентного лазерного поля излучения получить обладающее теми же самыми энергетическими и спектральными параметрами некогерентное (хаотическое) излучение, характеризуемое равновероятным значением флуктуаций фазы в интервеле $(0, 2\pi)$ [4].

Основной целью настоящей работы является выяснение влияния флуктуационных (статистических) свойств поля излучения на процесс распространения светового потока в среде, которой присуще многоквантовое поглощение, так как в этом случае по мере распространения излучения в среде должно наблюдаться изменение флуктуационных характеристик светового потока.[1] В заключение работы в свете полученных результа-

[1] В процессе линейного (одноквантового) поглощения изменения флуктуационных характеристик поля излучения не происходит, так как коэффициент поглощения не зависит от интенсивности светового потока.

тов обсуждается проблема корректной обработки получаемых на опыте интегральных характеристик процесса многоквантового поглощения.

Постановка задачи такова. Пусть на среду, занимающую полупространство $z>0$ и характеризуемую феноменологическим коэффициентом k-квантового поглощения $\varkappa_k$ ($[\varkappa_k]=\text{см}^{-1}$), падает параллельный оси OZ световой поток с известным значением распределения классической интегральной интенсивности $P(J_0)dJ_0$ в плоскости $z=0$. Требуется найти, каким образом трансформируется функция распределения классической интегральной интенсивности $P(J)dJ$ в любой плоскости z внутри нелинейно поглощающей среды и как меняются значения первого и k-го моментов функции распределения $P(J)$ по мере распространения излучения в среде, т. е. найти средние значения $\langle J(z)\rangle_{P(J)}$ и $\langle [J(z)]^k\rangle_{P(J)}$ как функции расстояния z, пройденного лучом света в среде. Предполагается, что интенсивность светового потока такова, что насыщение поглощения отсутствует. Влияние насыщения при многоквантовом поглощении на статистические характеристики светового потока было изучено в работе [5].

В среде, которой присуще k-квантовое поглощение, интенсивность излучения цилиндрически симметричного светового пучка, параллельного оси OZ, убывает по закону [6]

$$J(z,\ r,\ t)=J_0\,[1+(k-1)\,\beta_k z J_0^{k-1}]^{1/(1-k)}\ (k\geqslant 2), \tag{1}$$

где $J_0\equiv J(0,\ r,\ t)$ — пространственно-временное распределение интенсивности излучения на поверхности среды, а $\beta_k=\sigma_k n_0$ — независящий от интенсивности светового потока истинный коэффициент k-квантового поглощения, равный произведению сечения k-квантового поглощения σ_k $\{[\sigma_k]=(\text{погл. частица})^{-1}\cdot(\text{фотон})^{-k+1}\cdot\text{см}^{2k}\cdot\text{с}^{k-1}\}$ и концентрации поглощающих излучение частиц n_0 и связанный с феноменологическим коэффициентом поглощения $\varkappa_k$ соотношением $\varkappa_k=\beta_k J^{k-1}$. Выражение (1) описывает, строго говоря, локальное мгновенное значение интенсивности светового потока в плоскости z внутри поглощающей среды и поэтому справедливо для средних значений интенсивности излучения в сечении z лишь в тех случаях, когда флуктуации интенсивности излучения на входе в среду отсутствуют, т. е. когда распределение $P(J_0)$ имеет вид

$$P(J_0)=\delta(J_0-\langle J_0\rangle), \tag{2}$$

характерный для случая излучения идеального одномодового лазера [1]. Поэтому все результаты предыдущих работ [6–10], где исследовались феноменологические характеристики световых потоков в нелинейно поглощающих средах, справедливы лишь для идеального (нефлуктуирующего) излучения, когда $J_0\equiv\langle J_0\rangle$. Если же падающее на среду излучение флуктуирует, т. е. характеризуется распределением классической интенсивности в форме $P(J_0)$, отличной от (2), то средние значения первого и k-го моментов интенсивности излучения определяются выражениями

$$\langle J(z)\rangle=\int JP(J)\,dJ,\quad \langle [J(z)]^k\rangle=\int J^k P(J)\,dJ, \tag{3}$$

где значение $J(z)$ определяется выражением (1), а $P(J)$ — функция распределения интенсивности в заданной плоскости z.

Для иллюстрации изменения статистических свойств излучения в процессе его распространения в нелинейно поглощающей среде проведем сравнительный анализ решений задачи о распространении излучения для двух типов полей: когерентного излучения с распределением интенсивности в форме (2) и некогерентного (теплового) излучения с распределением интенсивности в форме [1]

$$P(J_0)=\frac{1}{\langle J_0\rangle}\exp\left[-\frac{J}{\langle J_0\rangle}\right], \tag{4}$$

причем для определенности предположим, что средние значения интенсивностей на входе в среду $\langle J_0\rangle$ в обоих случаях равны.

Выразив $J_0=f(J)$ из соотношения (1) и продифференцировав полученное для J_0 выражение по J, можно, подставив эти значения для $J_0=f(J)$ и dJ_0/dJ в известное выражение для функции распределения интенсивности на входе в среду $P(J_0)dJ_0$, найти выражение для функции распределения интенсивности $P(J)$ в любом произвольном сечении z внутри среды. Выполнив эти операции для случая теплового распределения (4), получим, что

$$P(J)=\frac{1}{\langle J_0\rangle}\left[1-\tilde{z}\left(\frac{J}{\langle J_0\rangle}\right)^{k-1}\right]^{k/(1-k)}\exp\left\{-\frac{J}{\langle J_0\rangle}\left[1-\tilde{z}\left(\frac{J}{\langle J_0\rangle}\right)^{k-1}\right]^{1/1-k}\right\},\qquad(5)$$

где $\tilde{z}=(k-1)\beta_k z\langle J_0\rangle^{k-1}$ — безразмерный параметр, а для распределения (2), как нетрудно заметить, всегда $P(J)=\delta(J-\langle J\rangle)$, причем значение $\langle J(z)\rangle$ определяется выражением (1), в котором следует положить $J_0\equiv\langle J_0\rangle$. Нужно сказать, что в работе [11], где впервые была предпринята попытка оценить влияние флуктуаций светового потока на процесс распространения излучения в среде с двухквантовым поглощением, было получено выражение типа (5). Однако в этой работе из совершенно правильного условия его применения в области значений параметра $\tilde{z}<(\langle J_0\rangle/J(z))$ (для случая $k=2$) сделан неверный вывод о невозможности корректного учета таким способом больших флуктуаций светового потока, когда параметр $\tilde{z}>(\langle J_0\rangle/J(z))$ (предэкспоненциальный множитель в выражении (5) становится при этом отрицательным). На самом деле это не так и вот почему. Значения мгновенной интенсивности J_0 на входе в среду связаны со значением интенсивности $J(z_0)$ в произвольном сечении z_0 вдоль световой трубки соотношением (1), из которого следует, что для предэкспоненциального множителя в выражении (6) всегда выполняется неравенство

$$0<\left[1-\tilde{z}_0\left(\frac{J}{\langle J_0\rangle}\right)^{k-1}\right]\equiv\left(\frac{J}{J_0}\right)^{k-1}<1.\qquad(6)$$

Таким образом, если учесть, что величины z_0 и $J(z_0)$ не независимы, а связаны при заданном значении J_0 соотношением (1), то выражение (5) описывает функцию распределения интенсивности в любом произвольном сечении z_0 для всех (сколь угодно больших) значений мгновенной интенсивности на входе J_0, так как условие неотрицательности (6) выражения (5) всегда выполняется автоматически для любых значений параметра $\tilde{z}$.

Значения первого и k-го моментов распределения интенсивности излучения в фиксированной плоскости z_0 т. е. при известном значении параметра $\tilde{z}_0$) равны (см. выражение (3))

$$\langle J(z_0)\rangle_{\text{ког.}}=\langle J_0\rangle\,[1+\tilde{z}_0]^{1/(1-k)}\qquad(7)$$

и

$$\langle [J(z_0)]^k\rangle_{\text{ког.}}=\langle J_0\rangle^k\,[1+\tilde{z}_0]^{k/(1-k)}\qquad(8)$$

для распределения интенсивности на входе в форме (2);

$$\langle J(z_0)\rangle_{\text{неког.}}=\langle J_0\rangle\int\limits_0^\infty y\,[1+\tilde{z}_0y^{k-1}]^{1/(1-k)}\exp(-y)\,dy\qquad(9)$$

и

$$\langle [J(z_0)]^k\rangle_{\text{неког.}}=\langle J_0\rangle^k\int\limits_0^\infty y^k\,[1+\tilde{z}_0y^{k-1}]^{k/(1-k)}\exp(-y)\,dy\qquad(10)$$

для распределения интенсивности на входе в форме (4), причем выражения (9) и (10) могут быть приведены соответственно к виду

$$\langle J(z_0)\rangle=\langle J_0\rangle(-p^2)\frac{d}{dp}\mathcal{J}_n(p)\qquad(11)$$

и

$$\langle [J(z_0)]^k \rangle = \langle J_0 \rangle^k (-1)^k p^{k-1} \frac{d^k}{dp^k} \mathcal{J}'_n(p), \tag{12}$$

где введены обозначения $n = k-1$, $p = (\tilde{z}_0)^{1/(1-k)}$, а

$$\mathcal{J}_n(p) = \int\limits_0^\infty (1 + x^n)^{-1/n} \exp(-px)\, dx \tag{13}$$

и

$$\mathcal{J}'_n(p) = \int\limits_0^\infty (1 + x^n)^{-(n+1)/n} \exp(-px)\, dx. \tag{14}$$

В общем случае для произвольных значений k интегралы в выражениях (9)—(14) могут быть найдены методом Лапласа или методом перевала, причем в последнем случае для вычислений удобнее использовать соответствующие выражения в форме (13) и (14).

Основные закономерности изменения статистических свойств излучения в процессе распространения в нелинейно поглощающей среде мы проследили в дальнейшем на примере частного случая двухквантового поглощения ($k=2$). Нетрудно заметить (см. выражение (5)), что функция распределения интенсивности падающего на среду теплового излучения трансформируется по мере распространения излучения в среде с двухквантовым поглощением по закону

$$P(I) = \frac{1}{\langle J_0 \rangle} [1 - \tilde{z} I]^{-2} \exp\left[-\frac{I}{1 - \tilde{z} I}\right], \tag{15}$$

где введено обозначение $I = J/\langle J_0 \rangle$. Соотношение (15) позволяет легко найти функцию распределения интенсивности излучения в любой произвольной фиксированной плоскости z_0 внутри среды. Для этого достаточно подставить в выражение (15) соответствующее значение безразмерного параметра $\tilde{z}_0 = \beta_2 z_0 \langle J_0 \rangle$. На рис. 1 графически (в относительных координатах с $P(\langle I_0 \rangle) = 1$) изображена картина трансформации функции распределения интенсивности $P(I)$ для различных значений $\tilde{z}_0$. Из этого рисунка видно, что по мере распространения излучения наряду с ослаблением интенсивности наблюдается изменение статистических свойств излучения. Для наглядности в сечении $\tilde{z}_0 = 3$ функция распределения $P(I)$ изображена также в том же масштабе, что и в сечении $\tilde{z}_0 = 0$. Штрихованная кривая на рис. 1 описывает изменение интенсивности для случая нефлуктуирующего излучения, определяемого, согласно (7), формулой $I(\tilde{z}_0) = (1 + \tilde{z}_0)^{-1}$. Расчеты показывают, что при значениях $\tilde{z}_0 \geqslant 1$ (т. е. при $z_0 \geqslant (\beta_2 \langle J_0 \rangle)^{-1}$) функция распределения интенсивности $P(I)$ практически не отличается от δ-образной. Таким образом, нелинейная поглощающая среда обладает способностью ограничивать флуктуации падающего излучения в процессе его распространения.[2] Можно показать, что в общем случае k-квантового поглощения трансформация функции распределения исходного хаотического излучения в δ-образное осуществляется, как правило, на расстояниях $(k-1)\beta_k z_0 \langle J_0 \rangle^{k-1} \equiv \tilde{z}_0 \geqslant 1$. Эта способность нелинейной среды быть «шумовым фильтром» наглядно подтверждается и расчетами изменения флуктуационных характеристик распространяющегося в среде светового потока. Если определить дисперсию интенсивности излучения $D(z_0)$ в произвольном сечении по формуле

$$D(z_0) = \langle J \rangle^2 [\gamma - 1], \tag{16}$$

где $\gamma = \langle J^2 \rangle / \langle J \rangle^2$, то в частном случае двухквантового поглощения теплового излучения имеем (см. (9) и (10))

$$D(z_0) = \langle J_0 \rangle^2 \left\{ 2\tilde{z}_0^2 \exp\left(\frac{1}{2\tilde{z}_0}\right) W_{-2,\,1/2}\left(\frac{1}{\tilde{z}_0}\right) \left[\exp\left(\frac{1}{\tilde{z}_0}\right) \mathrm{Ei}\left(-\frac{1}{\tilde{z}_0}\right) + \tilde{z}_0\right]^{-2} - 1 \right\}, \tag{17}$$

[2] Способность нелинейно поглощающей среды быть ограничителем интенсивности светового потока анализировалась в работе [6].

где $W_{\lambda, \mu}(x)$ — функция Уиттекера, а $\mathrm{Ei}(-x)$ — интегральная показательная функция. При малых значениях z_0 ($\tilde{z}_0 \ll 1$) имеем

$$D(z_0) \simeq \langle J_0 \rangle^2 [1 - 8\tilde{z}_0], \tag{18}$$

а при $\tilde{z}_0 \to \infty$ величина $D \to 0$, что характерно для распространения нефлуктуирующего излучения в форме (2). Расчеты по формуле (17) показывают, что при $\tilde{z}_0 = 1$ величина $D \approx 0.5 \langle J_0 \rangle^2$, в то время как на входе в среду (при $\tilde{z}_0 = 0$) величина $D = \langle J_0 \rangle^2$. График зависимости $\gamma(\tilde{z}_0)$ представлен на рис. 2 (кривая *а*). Там же (кривая *б*) изображена зависимость $\eta(\tilde{z}_0) = \langle J(\tilde{z}_0) \rangle_{\text{неког.}} / \langle J(\tilde{z}_0) \rangle_{\text{ког.}}$, характеризующая, каким образом меняется среднее значение интенсивности некогерентного (теплового) светового потока по сравнению со случаем освещения среды когерентным световым потоком с тем же значением средней интенсивности $\langle J_0 \rangle$ на входе в среду,

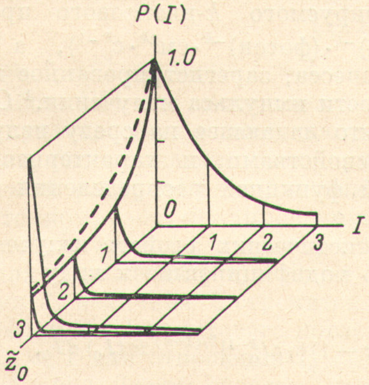

Рис. 1. Изменение нормированной функции распределения классической интегральной интенсивности $P(I)$ при распространении излучения в среде с двухквантовым поглощением.

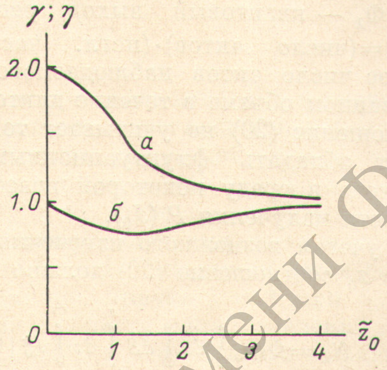

Рис. 2. Зависимости $\gamma(\tilde{z}_0) = \langle [J(\tilde{z}_0)]^2 \rangle / \langle J(\tilde{z}_0) \rangle^2$ (кривая *а*) и $\eta(\tilde{z}_0) = \langle J(\tilde{z}_0) \rangle_{\text{неког.}} / \langle J(\tilde{z}_0) \rangle_{\text{ког.}}$ (кривая *б*) для случая распространения теплового излучения в среде с двухквантовым поглощением.

которой свойственно двухквантовое поглощение. Расчеты по формулам (7) и (9) показывают, что

$$\eta = \frac{1 + \tilde{z}_0}{\tilde{z}_0^2} \left[\exp\left(\frac{1}{\tilde{z}_0}\right) \mathrm{Ei}\left(-\frac{1}{\tilde{z}_0}\right) + \tilde{z}_0 \right]. \tag{19}$$

При $\tilde{z}_0 \ll 1$ выражение (19) принимает вид

$$\eta \simeq 1 - \tilde{z}_0 + 4\tilde{z}_0^2,$$

а при $\tilde{z}_0 \to \infty$ величина $\eta \to 1$. Наиболее интересным является тот факт, что функция $\eta(\tilde{z}_0)$ имеет минимум, лежащий в области значений $\tilde{z}_0 \simeq 1.4$. Это связано с тем, что вначале (т. е. при $\tilde{z}_0 \lesssim 1$) тепловое излучение поглощается в среде более интенсивно, чем когерентное излучение с тем же значением средней интенсивности на входе. Действительно, в энергетическом спектре теплового излучения имеется заметный флуктуационный разброс по амплитуде, который и вносит вклад в избыточное (по сравнению со случаем когерентного излучения) поглощение, так как вероятность двухквантового поглощения пропорциональна квадрату мгновенного локального значения интенсивности излучения. Поглощение этих «избыточных» интенсивностей сопровождается более быстрым уменьшением среднего значения интенсивности хаотического светового потока. В области значений $\tilde{z}_0 \gtrsim 1$, когда флуктуации распространяющегося теплового излучения вследствие их поглощения практически исчезают, процесс распространения светового потока начинает в принципе ничем не отличаться от соответствующего случая распространения когерентного (нефлуктуирующего) излучения. Таким образом, на первой стадии процесса поглощения происходит достаточно быстрое «сглаживание» флуктуаций интенсивности, а на второй стадии — поглощение образовавшегося практически нефлуктуирующего излучения.[3] Расчеты показывают, что для случая двухквантового поглощения величина $(\eta)_{\min} \simeq 0.75$.

В заключение применим полученные результаты для анализа проблемы корректной обработки получаемых на опыте интегральных характеристик процесса многоквантового поглощения. Обычно для оценки величины интегрального выхода k-квантового процесса, измеряемого на фиксированной длине z_0 с поперечным сечением пучка с площадью S, используют выражение

$$N_k = \Phi_k n_0 \int\limits_t \int\limits_S \int\limits_{z_0} [J(z, r, t)]^k \, dt dS dz, \tag{20}$$

где Φ_k — квантовый выход регистрируемого k-квантового процесса $\{[\Phi_k] = (\text{число актов}) \cdot (\text{погл. частица})^{-1} \cdot (\text{фотон})^{-k} \cdot \text{см}^{2k} \cdot \text{с}^{k-1}\}$, а N_k — полное число актов наблюдаемого процесса, зарегистрированное в фиксированном объеме в течение длительности импульса излучения.[4] Однако соотношение (20) не учитывает того, что падающее на среду излучение может обладать флуктуационными свойствами и характеризоваться на входе в среду некоторой известной функцией распределения интенсивности излучения $P(J_0)$.

С учетом возможного изменения статистических свойств излучения на длине z_0 соотношение (20) должно быть модифицировано к виду

$$N_k = \Phi_k n_0 \int\limits_t dt \int\limits_S dS \int\limits_0^{z_0} dz \int\limits_0^{\infty} J_0^k \left[1 + (k-1)\beta_k z J_0^{k-1}\right]^{k/(1-k)} P(J_0) \, dJ_0. \tag{21}$$

Для наглядности рассмотрим в дальнейшем простой случай, когда световой импульс имеет во времени прямоугольную форму с длительностью τ_0, а радиальное распределение интенсивности на входе в среду таково, что $f(r) = 1$ при $r \leqslant r_0$ и $f(r) = 0$ при $r > r_0$. Тогда выражение (21) принимает вид

$$N_k = \Phi_k n_0 S_0 \tau_0 \langle J_0 \rangle^k z_0 \, \mathrm{F}\left(\frac{k}{k-1}, 1, 2; -\bar{z}_0\right) \tag{22}$$

для распределения интенсивности (2) и

$$N_k = \Phi_k n_0 S_0 \tau_0 \langle J_0 \rangle^k \int\limits_0^{z_0} dz \int\limits_0^{\infty} y^k \left[1 + \bar{z} y^{k-1}\right]^{k/(1-k)} \exp(-y) \, dy \tag{23}$$

для распределения $P(J_0)$ в форме (4) (здесь S_0 — площадь светового пучка, $\bar{z}_0 = (k-1)\beta_k z_0 \langle J_0 \rangle^{k-1}$, а $\mathrm{F}(\alpha, \beta, \gamma; x)$ — гипергеометрическая функция Гаусса). Чтобы проследить влияние статистических свойств светового потока на значение измеряемых на опыте на длине z_0 интегральных характеристик многоквантового процесса, сравним соответствующие значения N_k для распределений (2) и (4) в частном случае двухквантового поглощения ($k = 2$). При этом выражение (22) принимает вид

$$N_2 = \Phi_2 n_0 S_0 \tau_0 \langle J_0 \rangle^2 z_0 \left[1 + \bar{z}_0\right]^{-1}, \tag{24}$$

а выражение (23)

$$N_2 = \Phi_2 n_0 S_0 \tau_0 \langle J_0 \rangle^2 z_0 \frac{1}{\bar{z}_0^3} \left[-\exp\left(\frac{1}{\bar{z}_0}\right) \mathrm{Ei}\left(-\frac{1}{\bar{z}_0}\right) - \bar{z}_0 + \bar{z}_0^2\right], \tag{25}$$

---

[3] Об этом свидетельствует и наличие точки перегиба на кривой $\gamma(\bar{z}_0)$ (рис. 2, *а*).

[4] Напоминаем, что величина β_k характеризует вероятность первичного процесса многоквантового поглощения, а величина Φ_k — вероятность вторичного процесса, обусловленного многоквантовым поглощением (например, люминесценции, фотохимического разложения и т. д.).

где введено обозначение $\tilde{z}_0 = \beta_2 z_0 \langle J_0 \rangle$. В области малых значений параметра $\tilde{z}_0 \ll 1$ (т. е. при малом поглощении излучения в среде, так как $\tilde{z}_0 = \varkappa_2 z_0$) выражения (24) и (25) принимает соответственно вид

$$N_2 = \Phi_2 n_0 S_0 \tau_0 \langle J_0 \rangle^2 z_0 (1 - \tilde{z}_0 + \tilde{z}_0^2) \tag{26}$$

и

$$N_2 = \Phi_2 n_0 S_0 \tau_0 2 \langle J_0 \rangle^2 z_0 (1 - 3\tilde{z}_0 + 12\tilde{z}_0^2). \tag{27}$$

Отношение

$$\xi = \frac{(N_2)_{\text{неког.}}}{(N_2)_{\text{ког.}}}$$

явно характеризует влияние статистических свойств излучения на интегральные характеристики двухквантового процесса. Из соотношений (26) и (27) видно, что в области малых значений $\tilde{z}_0$

$$\xi \simeq 2(1 - 2\tilde{z}_0),$$

т. е. при $\tilde{z}_0 \ll 1$ значение $\xi \simeq 2$.

В работе [12], где исследовались статистические свойства ультракоротких импульсов света с помощью двухквантового поглощения в полупроводниках, было показано, что нормально флуктуирующий сигнал, характеризуемый распределением интенсивности в форме (4), затухает в оптически тонком слое полупроводника ($\tilde{z}_0 \ll 1$) вдвое быстрее, чем сигнал одномодового лазера с той же средней энергией излучения. Анализ отношения ξ для выражений (24) и (25) в случае $\tilde{z}_0 \simeq 1$ показывает, что с ростом значения $\tilde{z}_0$ величина ξ стремится к единице, причем $\xi \simeq 1$ при $\tilde{z}_0 \geqslant 1$. В общем случае k-квантового поглощения в области малых значений параметра $\tilde{z}_0 \ll 1$ для отношения $\xi_k = (N_k)_{\text{неког.}}/(N_k)_{\text{ког.}}$ справедливо выражение $\xi_k = k!\,(1 - k\tilde{z}_0)$. Таким образом, при $\tilde{z}_0 = 0$ (т. е. при $z_0 = 0$) величина $\xi_k = k!$. Это является следствием того, что отношение моментов k-го порядка для распределений интенсивности в форме (2) и (4) равно, как известно, $k!$ [13].

Если вспомнить, что на опыте обычно измеряется величина интегрального выхода $N_k(z_0)$ и среднее значение интенсивности излучения на входе в среду $\langle J(z=0) \rangle$, то становится ясным, что выражение для нормированного на интенсивность излучения и единицу объема и времени квантового выхода процесса

$$Y_k = \frac{N_k}{S_0 \tau_0 n_0 z_0 \langle J_0 \rangle^k}$$

должно быть скорректировано на величину ξ_k для случая возбуждения среды флуктуирующим излучением. При этом нужно помнить следующее. При соблюдении условия

$$(k-1)\,\beta_k z_0 \langle J_0 \rangle^{k-1} \equiv \tilde{z}_0 \ll 1 \tag{28}$$

функциональная зависимость $N_k = f(\langle J_0 \rangle)$ сохраняет характерный для вероятности элементарного акта k-квантового поглощения вид $N_k \sim \langle J_0 \rangle^k$ и в случае возбуждения флуктуирующим излучением. Поэтому при малых значениях параметра $\tilde{z}_0$ (т. е. в случае оптически тонкого слоя) величина $Y_k = \Phi_k \xi_k$ не зависит от интенсивности светового потока, а изменение статистических свойств поля излучения сказывается лишь на абсолютной величине значения Y_k. К сожалению, соответствующие поправки, отражающие изменение статистических свойств излучения, не были учтены при оценке величин нормированного квантового выхода, например в работах [14–17], где изучались различные двухквантовые фотохимические реакции в условиях, когда $\tilde{z}_0 \ll 1$. В области значений $\tilde{z}_0 \geqslant 1$ величина $\xi \simeq 1$, и поэтому поправка на статистические свойства излучения становится несущественной. Однако, как показывает анализ выражения (25), в оптически толстых слоях при $\tilde{z}_0 \geqslant 1$ подобно случаю нефлуктуирующего излучения, разобранному в работе [10], наблюдается заметное отклонение измеряемой на опыте на фиксированной длине z_0 интегральной зависимости $N_k = f(\langle J_0 \rangle)$ от вида $N_k \sim \langle J_0 \rangle^k$, характерного для оптически тонкого слоя. Оказывается [10], что в оптически толстых слоях интегральные характеристики процесса k-квантового поглощения характеризуются зависимостью от интенсивности падающего потока в форме

$$N_k \sim \langle J_0 \rangle^m, \text{ где } 1 < m (\langle J_0 \rangle, z_0) < k. \tag{29}$$

Поэтому величина Y_k, определяемая по данным интегральных характеристик светового потока при $z_0 \geqslant 1$, начинает зависеть от интенсивности светового потока, что и было обнаружено экспериментально в работах [8], где изучался двухквантовый фотолиз иодоформа под действием излучения лазера в условиях, когда $\tilde{z}_0 \geqslant 1$. В этих работах величина квантового выхода также оценена неверно, так как авторы рассчитывали ее, исходя из условия $N_2 \sim \langle J_0 \rangle^2$, т. е. предполагая, что $\tilde{z}_0 \ll 1$.

Таким образом, для корректной оценки величины квантового выхода многоквантовых процессов следует, во-первых, работать с такими световыми пучками, для которых выполняется условие (28), и, во-вторых, учитывать при этом статистические свойства излучения (особенности корректной постановки эксперимента по измерению квантового выхода при многоквантовом поглощении подробно обсуждаются в работе [18]). Зависимость интегрального выхода от интенсивности излучения имеет при этом всегда вид $N_k = A \langle J_0 \rangle^k$, характерный для вероятности элементарного акта поглощения, а статистические свойства влияют лишь на значение коэффициента A. Если же условие (28) не выполняется (т. е. поглощение излучения на длине z_0 значительно), то оценку квантового выхода следует проводить по формуле (21) для известного значения распределения интенсивности излучения $P(J_0)$ на входе в среду, причем регистрируемая на опыте зависимость $N_k = f(\langle J_0 \rangle)$ может иметь вид (29).

Автор благодарен А. В. Шумакову за стимулирующие критические замечания.

Литература

[1] Дж. Клаудер, Э. Сударшан. Основы квантовой оптики. Изд. «Мир», М., 1970.
[2] Н. Г. Басов, В. С. Летохов. Усп. физ. наук, *96*, 585, 1968.
[3] А. В. Елецкий, Б. М. Смирнов. Газовые лазеры. Атомиздат, М., 1971.
[4] F. Shiga, S. Imamura. Phys. Lett., *25A*, 706, 1967.
[5] Ф. А. Воробьев, Р. И. Соколовский. Опт. и спектр, *35*, 779, 1973.
[6] В. В. Арсеньев, В. С. Днепровский, Д. Н. Клышко, А. Н. Пенин. ЖЭТФ, *56*, 760, 1969.
[7] В. В. Арсеньев, В. С. Днепровский, Д. Н. Клышко, Л. А. Сысоев. ЖЭТФ, *60*, 114, 1971.
[8] S. Speiser, S. Kimel. J. Chem. Phys., *51*, 5614, 1969; *53*, 2392, 1970; Chem. Phys. Lett., *7*, 19, 1970.
[9] S. Speiser, O. Kafri, S. Kimel. Chem. Phys. Lett., *14*, 369, 1972.
[10] П. И. Барашев. ЖЭТФ, *61*, 2287, 1971.
[11] H. P. Weber. IEEE J. Quant. Electron., *7*, 189, 1971.
[12] В. В. Арсеньев, В. С. Днепровский, Д. Н. Клышко, Ф. С. Фокин, В. У. Хаттатов. ЖЭТФ, *63*, 776, 1972.
[13] В. А. Коварский. ЖЭТФ, 57, 1613, 1969.
[14] D. L. Rousseau, G. E. Leroi, G. L. Link. J. Chem. Phys., *42*, 4048, 1965.
[15] S. Speiser, I. Oref, T. Goldstein, S. Kimel. Chem. Phys. Lett., *11*, 117, 1971.
[16] J. T. Richards, J. K. Thomas. Chem. Phys. Lett., *5*, 527, 1970.
[17] D. L. Rousseau, W. F. Falconer, G. E. Leroi. Chem. Phys. Lett., *13*, 45, 1972.
[18] А. П. Александров, В. И. Бредихин. Опт. и спектр., *30*, 72, 1971.

Поступило в Редакцию 21 июня 1974 г.