МНОГОЧАСТОТНОЕ ВЫНУЖДЕННОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ НА ВРАЩАТЕЛЬНЫХ ПЕРЕХОДАХ МОЛЕКУЛ

В. П. Кочанов

Институт оптики атмосферы им. В. Е. Зуева Сибирского отделения Российской академии наук 634021, Томск, Россия

> Поступила в редакцию 29 июня 2018 г., после переработки 29 июня 2018 г. Принята к публикации 22 августа 2018 г.

Развита теория многочастотного вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) света на вращательных переходах молекул, моделируемых трехуровневой квантовой системой. Показано, что применение бихроматической накачки увеличивает ширину спектра рассеянного излучения. Для наиболее простого варианта синхронного ВКР на переходах с пренебрежимо малой собственной частотой получено точное алгебраическое решение для амплитуд волн. Данное решение содержит регулярные пространственные осцилляции всех компонент рассеяния. Установлено, что возрастание отношения частоты комбинационного перехода к частоте изучения накачки приводит к преобладанию антистоксовой ветви рассеяния. Рассмотрено влияние на ВКР асинхронизма волн, возникающего вследствие линейной и нелинейной дисперсий среды, а также разности фаз волн накачки. Все эти виды асинхронизма приводят к сужению спектра генерируемых частот и к подавлению антистоксовой ветви рассеяния. Нелинейная дисперсия обеспечивает положительные значения амплитуд волн за счет скачков фаз на π при распространении волн в среде.

DOI: 10.1134/S0044451019010024

1. ВВЕДЕНИЕ

К настоящему времени экспериментально и теоретически установлено, что возбуждение вращательного вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) бихроматической накачкой, разность частот которой равна частоте комбинационного перехода, приводит к генерации широкого спектра стоксовых и антистоксовых компонент [1–10]. Ширина спектра рассеянного излучения при малых отношениях волновой расстройки к коэффициенту усиления (η) линейно растет с оптической толщиной активной среды (ζ). В оптимальных условиях ширина спектра сравнима с частотой накачки. Такое излучение с гребенчатым спектром применяется в лазерном термоядерном синтезе с целью повышения порога неустойчивости плазмы [7], для генерации узконаправленного белого света [3-6,8] и формирования фемтосекундных импульсов [11].

Характеристики полихроматического вынужденного комбинационного рассеяния определяются множеством факторов. Так, наряду с расширением спектра следует ожидать пространственных осцилляций компонент рассеяния, поскольку каждая из них, усиливаясь в процессе распространения, выступает в качестве накачки для соседних компонент. Истощение накачки приводит к уменьшению ее амплитуды, которая вновь будет возрастать под влиянием смежных по частоте волн. На данный основной кинематический механизм пространственного развития ВКР накладываются другие механизмы, которые могут кардинально трансформировать спектр. Основным фактором, ограничивающим ширину спектра, является волновой асинхронизм, вследствие которого пространственные осцилляции коэффициентов в волновых уравнениях для медленных амплитуд волн (см., например, [2, 9, 12] и (32)) ослабляют связь компонент. Можно показать, что частота этих осцилляций с изменением ζ для вращательных переходов ряда молекул достаточно мала, около 10⁻³-10⁻² [12]. Это позволяет пренебречь осцилляциями коэффициентов на интервале $\zeta \leq 10$ –100, на котором происходит истощение накачки и ее эффективное преобразование в высшие компоненты рассеяния. В этом случае реализуется

ÉE-mail: koch@iao.ru

когерентное ВКР¹⁾, при котором преобразование накачки в рассеянное излучение максимально эффективно, и уравнения для медленных амплитуд волн приобретают предельно простой вид (см., например, уравнения (1), (2) в [9] и (4) в [2], а также уравнения (20) в разд. 2). Вместе с тем, как отмечено в работе [9], аналитическое решение этих упрощенных уравнений в литературе отсутствует. Одна из задач данной работы заключается в нахождении такого решения и качественном анализе на его основе кинематических особенностей когерентного многочастотного ВКР.

Волновой асинхронизм в условиях, когда существенна нелинейная дисперсия среды, зависит от эволюции фаз в процессе распространения волн, что приводит к нелинейному захвату и скачку фаз [12, 13]. В дополнение к этому, в зависимости от суммарной фазы волн накачки на входе в среду возможна деструктивная интерференция поляризаций нерезонансных дипольно-разрешенных переходов, которая при определенных условиях создает интерференционное подавление ВКР [12].

При рассмотрении ВКР в газовых средах обычно используется простейшая трехуровневая модель среды, в которой два нижних уровня с одинаковой четностью образуют комбинационно-активный переход (Л-система). В дальнейшем ограничимся этой моделью, полагая частоту активного перехода малой по сравнению с частотой накачки. Такое соотношение частот характерно, например, для вращательных переходов молекул, на которых ранее наблюдалась генерация широкого спектра рассеянного излучения [1-10]. В то же время отметим, что отличие А-системы от реальной сетки вращательных уровней молекул может создавать неточность описания ВКР, обусловленную, например, наличием резонансов между различными вращательными переходами. Также до сих пор не выяснена роль в ВКР соотношений между характерными частотами задачи: комбинационного вращательного перехода, излучения накачки и его отстройки от частоты нерезонансного дипольно-разрешенного перехода.

К другим факторам, усложняющим описание процесса многочастотного ВКР, относятся: ограниченная длительность импульса накачки, насыщение ВКР мощностью излучения [14, 15], наличие двухфотонного резонанса накачки [1, 16] и конусного и обратного по направлению [17] рассеяний, а также дифракционной расходимости пучков света [9]. При больших давлениях газа и интенсивностях излучения возможны кооперативные явления при ВКР [18,19]. Перечисленные выше факторы делают многочастотное ВКР одним из самых насыщенных по своему физическому содержанию явлений нелинейной оптики, многие аспекты которого до сих пор нуждаются в прояснении.

Цель данной работы заключается в выводе уравнений для многочастотного ВКР с учетом некоторых из перечисленных выше физических факторов и выяснении их качественного влияния на ВКР с помощью численных экспериментов.

В рассматриваемых моделях ВКР приняты следующие приближения:

• Молекула моделируется Λ -системой с незаселенным верхним электронным состоянием.

• ВКР считается ненасыщенным по мощности излучения, а заселенности уровней в разд. 2 полагаются равновесными.

• Рассматривается только осевое ВКР в направлении распространения излучения накачки.

• Генерация большого числа компонент рассеяния не ограничивается длительностью импульсов излучения накачки.

• Ширина спектра стоксовых компонент меньше основной частоты накачки.

• Компоненты рассеяния нерезонансны дипольно-разрешенным переходам молекулы.

• Отсутствуют двух- и многофотонные резонансы накачки.

• Нет кооперативных явлений.

• Доплеровским уширением можно пренебречь по сравнению со столкновительным.

2. ПРОСТЫЕ ВАРИАНТЫ ВКР ПРИ ПОЛНОМ ФАЗОВОМ СИНХРОНИЗМЕ

Обозначим два нижних вращательных и верхнее электронно-возбужденное состояния соответственно как 1, 2 и 3. Система уравнений для матрицы плотности среды для ненасыщенного по мощности ВКР в модели релаксационных констант включает уравнения только для недиагональных элементов матрицы плотности (поляризаций переходов) и имеет вид [12]

¹⁾ Когерентность означает, что волновые уравнения для ВКР не могут быть сведены к уравнениям для интенсивностей волн, и взаимодействуют между собой амплитуды. В случае относительных волновых отстроек, $\eta \ge 0.2$, ВКР становится некогерентным [12].

$$-\dot{\rho}_{31} + \omega_{31}\rho_{31} = \frac{\mathcal{E}}{\hbar} \left(d_1 \rho_1^{(0)} + d_2 \rho_{21} \right),$$

$$-\dot{\rho}_{32} + \omega_{32}\rho_{32} = \frac{\mathcal{E}}{\hbar} \left(d_2 \rho_2^{(0)} + d_1 \rho_{21}^* \right),$$

$$\dot{\rho}_{21} + (\Gamma + i\omega_{21})\rho_{21} = \frac{i\mathcal{E}}{\hbar} \left(d_2 \rho_{21} - d_1 \rho_{32}^* \right),$$

$$\omega_n = \omega_0 + n\omega_{21}, \quad k_n = \frac{n_d \omega_n}{c}, \quad u = \frac{c}{n_d} = \text{const},$$

$$\mathcal{E} = E \sum_n E_n(z) \cos \Psi_n,$$

$$\Psi_n = \omega_n t - k_n z = \omega_n \tau, \quad \tau \equiv t - \frac{z}{u},$$

$$E_n(0) = \delta_{n,0} + q_{-1} \delta_{n,-1} + q_1 \delta_{n,1},$$

(1)

$$\delta_{m,n} \equiv \begin{cases} 1, & m = n, \\ 0, & m \neq n. \end{cases}$$

Здесь ω_{ij} — частоты нерезонансных дипольноразрешенных переходов $1\leftrightarrow 3,\,2\leftrightarrow 3$ и комбинационного перехода 1 \leftrightarrow 2, $d_{1,2}$ — дипольные моменты нерезонансных переходов, $\rho_{1,2}^{(0)}$ — равновесные заселенности уровней комбинационного перехода, Г однородная полуширина линии перехода 1
 \leftrightarrow 2, Eамплитуда электрического поля основной волны накачки на входе в активную среду, $q_{\pm 1}$ — начальные относительные амплитуды антистоксовой и стоксовой компонент накачки [12] (в дальнейшем для простоты ограничимся двухволновой накачкой с $q_1 = 0$), z — продольная координата, k_n — волновые числа, n_d — показатель преломления среды, c — скорость света в вакууме, u — скорость света в среде, полагаемая в данном разделе одинаковой для всех волн, \hbar — постоянная Планка. Постоянные фазы волн в данном разделе не учитываются; их влияние на ВКР будет рассмотрено в разд. 3.

Выделим быстрые осцилляции поляризаций переходов:

$$\rho_{31} = e^{-i\omega_0\tau} \sum_n R_{1,n} e^{-in\omega_{21}\tau},$$

$$\rho_{32} = e^{-i\omega_{-1}\tau} \sum_n R_{2,n} e^{-in\omega_{21}\tau},$$

$$\rho_{21} = r e^{-i\omega_{21}\tau}.$$
(2)

Подстановка выражений (2) в уравнения (1) и применение приближения вращающейся волны (отбрасывание быстрых осцилляций) приводят к стационарным уравнениям, решение которых с точностью до кубических по амплитудам полей членов есть

$$R_{1,n} = \frac{d_1 E}{2\hbar\Delta(1 - n\varepsilon_1)} \times \\ \times \left(E_n \rho_1^{(0)} + \frac{in_{12}d_2^2 E^2}{4\hbar^2\Gamma\Delta^2} E_{n-1}Q \right), \\ R_{2,n} = \frac{d_2 E}{2\hbar\Delta(1 - n\varepsilon_1)} \times \\ \times \left(E_{n-1}\rho_2^{(0)} - \frac{in_{12}d_1^2 E^2}{4\hbar^2\Gamma\Delta^2} E_nQ \right), \quad (3) \\ r = \frac{in_{12}d_1d_2 E^2}{4\hbar^2\Gamma\Delta} Q, \\ Q \equiv \sum_m \frac{E_{m-1}E_m}{1 - m\varepsilon_1}, \quad \Delta \equiv \omega_{31} - \omega_0, \\ \varepsilon_1 \equiv \frac{\omega_{21}}{\Delta} \ll 1, \quad n_{12} \equiv \rho_1^{(0)} - \rho_2^{(0)}. \end{cases}$$

Макроскопическая поляризация среды определяется как

$$P = N \operatorname{Sp}\left(\hat{\rho}\hat{d}\right) = 2N \operatorname{Re}(d_1\rho_{31} + d_2\rho_{32}) \equiv \\ \equiv \sum_n (P_{sn}\sin\Psi_n + P_{cn}\cos\Psi_n), \quad (4)$$

где N — плотность активных молекул. Из уравнений (2), (3) и (4) имеем

$$P_{sn} = \frac{Nn_{12}d_1^2d_2^2E^2}{4\hbar^3\Gamma\Delta^2} Q\left(\frac{E_{n-1}}{1-n\varepsilon_1} - \frac{E_{n+1}}{1-(n+1)\varepsilon_1}\right),$$

$$P_{cn} = \frac{N}{\hbar\Delta} \left(\frac{d_1^2\rho_1^{(0)}}{1-n\varepsilon_1} + \frac{d_2^2\rho_2^{(0)}}{1-(n+1)\varepsilon_1}\right)E_n.$$
(5)

Подстановка (5) в волновые уравнения для медленных амплитуд [12]

$$\frac{dE_n}{dz} = -\frac{2\pi\omega_n}{c} P_{sn}$$

приводит к системе уравнений для безразмерных амплитуд компонент рассеяния:

$$\frac{dE_n}{d\zeta} = -(1+n\varepsilon_2)Q\left(\frac{E_{n-1}}{1-n\varepsilon_1} - \frac{E_{n+1}}{1-(n+1)\varepsilon_1}\right),$$

$$E_n(0) = \delta_{n,0} + q_{-1}\delta_{n,-1},$$

$$\zeta \equiv Gz, \quad G = \frac{\pi N n_{12} d_1^2 d_2^2 E^2 \omega_0}{2c\hbar^3 \Gamma \Delta^2},$$

$$\varepsilon_2 \equiv \frac{\omega_{21}}{\omega_0} = \frac{\Delta}{\omega_0} \varepsilon_1 \ll 1.$$
(6)

Здесь ζ — безразмерная длина или оптическая толщина активной среды, G — коэффициент усиления ВКР. Тот факт, что изменение амплитуды n-й компоненты по координате пропорционально разности амплитуд (n-1)-й и (n+1)-й компонент, умноженных на близкие к единице факторы, означает, что

обмен энергией в принятых приближениях происходит между ближайшими соседними по частоте компонентами²⁾. При этом энергия перераспределяется от компонент с большей частотой к компонентам с меньшей частотой. Слагаемые, содержащие ε_1 и ε_2 , создают асимметрию системы уравнений (6) относительно стоксовых и антистоксовых компонент, которая определяется соотношением частот ω_{21} , ω_0 и Δ . Величины ε_1 и ε_2 характеризуют потери либо прирост энергии фотонов накачки на величину $\mp \hbar \omega_{21}$ в актах комбинационного рассеяния (КР) света, являющегося по определению неупругим процессом. В дальнейшем параметр ε_2 будем называть показателем (индексом) неупругости КР.

Проведем на основе (6) вывод соотношения Мэнли–Роу, полученного в монографии [20], исходя из общих соображений. Для этого умножим уравнения (6) на $E_n / (1 + n\varepsilon_2)$ и просуммируем их:

$$\frac{1}{2}\sum_{n}\frac{1}{1+n\varepsilon_2}\frac{dE_n^2}{d\zeta} =$$
$$= -Q\sum_{n}\left(\frac{E_nE_{n-1}}{1-n\varepsilon_1} - \frac{E_nE_{n+1}}{1-(n+1)\varepsilon_1}\right). \quad (7)$$

Во втором члене правой части (7) заменим индекс суммирования $n \to n - 1$. После этого второй член по абсолютной величине становится равным первому, но имеет противоположный знак, вследствие чего правая часть обращается в нуль. После интегрирования преобразованного уравнения (7) с нулевой правой частью имеем закон сохранения числа квантов при многочастотном комбинационном рассеянии или соотношение Мэнли–Роу:

$$\sum_{n} \frac{E_n^2}{1 + n\varepsilon_2} \propto \sum_{n} \frac{W_n}{\hbar\omega_n} = \text{const},$$

$$W_n = \frac{1}{8\pi} E_n^2, \quad \omega_n = \omega_0 (1 + n\varepsilon_2),$$
(8)

где W_n — плотность энергии для *n*-й волны.

Покажем теперь, что величина Q в (6) при $\varepsilon_1, \varepsilon_2 \ll 1$ медленно меняется с изменением длины. Дифференцируя Q (3) по безразмерной координате ζ и подставляя в выражение для $dQ/d\zeta$ производные $dE_{n,n-1}/d\zeta$ из уравнений (6), а также проводя соответствующие замены индексов суммирования, получаем

$$\frac{dQ}{d\zeta} = \sum_{n} \frac{1}{1 - n\varepsilon_1} \left(E_{n-1} \frac{dE_n}{d\zeta} + E_n \frac{dE_{n-1}}{d\zeta} \right) =$$
$$= \sum_{n} \left(\frac{E_{n-1}}{1 - n\varepsilon_1} + \frac{E_{n+1}}{1 - (n+1)\varepsilon_1} \right) \frac{dE_n}{d\zeta} =$$
$$= -Q \sum_{n} E_n^2 \left[\frac{1 + (n+1)\varepsilon_2}{\left[1 - (n+1)\varepsilon_1\right]^2} - \frac{1 + (n-1)\varepsilon_2}{(1 - n\varepsilon_1)^2} \right]. \quad (9)$$

Разлагая дроби в правой части (9) по малым параметрам ε_1 и ε_2 с сохранением только первых степеней малости, получим первое уравнение для определения Q:

$$\frac{dQ}{d\zeta} = -2(\varepsilon_1 + \varepsilon_2)Q\mathcal{J}, \quad \mathcal{J} \equiv \sum_n E_n^2.$$
(10)

Действуя аналогично, для суммарной интенсивности компонент \mathcal{J} получаем второе уравнение:

$$\frac{d\mathcal{J}}{d\zeta} = -2\varepsilon_2 Q^2. \tag{11}$$

Начальные условия для системы уравнений (10), (11) следуют из (6):

$$\mathcal{J}(0) = 1 + q_{-1}^2, \quad Q(0) = q_{-1}.$$
 (12)

Система уравнений (10), (11) имеет интеграл движения

$$\left(1 + \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}\right) \mathcal{J}^2 - Q^2 = \text{const} =$$
$$= \left(1 + \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}\right) \mathcal{J}^2(0) - Q^2(0) =$$
$$= \left(1 + \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}\right) (1 + q_{-1}^2)^2 - q_{-1}^2, \quad (13)$$

откуда следует выражение Q через \mathcal{J} :

$$Q^{2} = \xi(\mathcal{J}^{2} - g^{2}); \quad \xi \equiv 1 + \frac{\varepsilon_{1}}{\varepsilon_{2}} = 1 + \frac{\omega_{0}}{\Delta} > 1,$$

$$g^{2} \equiv (1 + q_{-1}^{2})^{2} - \frac{q_{-1}^{2}}{\xi} > 0.$$
(14)

Подставляя (14) в (11), получим уравнение для определения \mathcal{J} :

$$\frac{d\mathcal{J}}{d\zeta} = -\xi(\mathcal{J}^2 - g^2). \tag{15}$$

Решением (15) с граничными условиями (12) является

$$\mathcal{J}(\zeta) = g \frac{1 + p e^{-4\varepsilon_2 \xi g \zeta}}{1 - p e^{-4\varepsilon_2 \xi g \zeta}}, \quad p \equiv \frac{1 + q_{-1}^2 - g}{1 + q_{-1}^2 + g}.$$
 (16)

²⁾ Учет в уравнениях (1), (3) членов порядка $\Gamma/\omega_{21} \ll 1$ приводит к слабой связи между всеми компонентами.

Из выражений (16) и (14) имеем

$$Q(\zeta) = \sqrt{\xi} \sqrt{\mathcal{J}^2(\zeta) - g^2}.$$
 (17)

Из формул (16) и (17) следует, что функции $\mathcal{J}(\zeta)$ и $Q(\zeta)$ медленно и монотонно убывают с ростом ζ от своих максимальных значений при $\zeta = 0$ до минимумов, к которым эти функции стремятся при $\zeta \to \infty$. Пределы изменения полной интенсивности излучения \mathcal{J} определяются соотношениями

$$\mathcal{J}(0) = 1 + q_{-1}^2,$$

$$\mathcal{J}(\infty) = \sqrt{1 + \left(1 + \frac{\omega_0}{\omega_{31}}\right) q_{-1}^2 + q_{-1}^4},$$

$$\mathcal{J}(0) - \mathcal{J}(\infty) = \frac{\omega_0}{\omega_{31}} \times$$
(18)
$$q_{-1}^2$$

$$\times \frac{q_{-1}}{1 + q_{-1}^2 + \sqrt{1 + \left(1 + \frac{\omega_0}{\omega_{31}}\right)q_{-1}^2 + q_{-1}^4}} > 0.$$

Формулы (16) и (17) проверялись путем их численного сопоставления с результатами прямых расчетов величин $\mathcal{J}(\zeta)$ и $Q(\zeta)$, следующих из численных решений уравнений (6) при $q_{-1} = 0.5$, $\varepsilon_1 = 0.01$ и $\varepsilon_2 = 0.03$. Расхождения соответствующих величин составили менее 0.1 %.

Как следует из (18), в случае монохроматической накачки, когда $q_{-1} \rightarrow 0$ (нижний предел здесь определяется спонтанным КР [12, 17]), убывание интенсивности $\mathcal{J}(\zeta)$ по длине практически отсутствует. Таким образом, такое убывание (диссипация энергии излучения) заметно проявляется только при двух(и более) частотной накачке.

Отметим, что убывание $\mathcal{J}(\zeta)$ по мере развития ВКР в пространстве не противоречит закону сохранения полного числа квантов (8), который выполняется фактически строго при большом выходе из резонанса излучения с дипольно-разрешенными переходами $1 \leftrightarrow 3$ и $2 \leftrightarrow 3$. Это убывание есть следствие механизма диссипации энергии излучения, связанного с возбуждением вращательных уровней энергии (в рассматриваемой Л-системе возбуждается промежуточное состояние 2) при доминировании стоксовых компонент неупругого рассеяния света. В принципе, данный механизм изменения заселенности уровней комбинационно активных переходов может быть явно включен в уравнения для матрицы плотности среды. Однако оценки относительной величины изменения суммарной интенсивности (18) применительно к молекуле водорода дают небольшие значения, порядка 6 %. Такое небольшое уменьшение и без того малой в рассматриваемом случае интенсивности практически не изменит заселенности уровней и приведет к непринципиальному изменению уравнений (6).

Рассмотрим теперь наиболее простой предельный случай «почти упругого» ВКР, когда частотой комбинационного перехода можно пренебречь, ε_1 , $\varepsilon_2 \rightarrow 0$, вследствие чего величина Q постоянна по длине: $Q(\zeta) \approx Q(0) = q_{-1}$. Уравнения (6) при этом приводятся к виду

$$\frac{1}{q_{-1}} \frac{dE_n}{d\zeta} = E_{n+1} - E_{n-1},$$

$$E_n(0) = \delta_{n,0} + q_{-1}\delta_{n,-1}.$$
(19)

Переопределим коэффициент усиления в (6): $G \to q_{-1}G$. После этого уравнения (19) принимают вид

$$\frac{dE_n}{d\zeta} = E_{n+1} - E_{n-1}.$$
 (20)

Из (16) следует, что суммарная интенсивность \mathcal{J} в данном случае постоянна.

Формальное решение системы уравнений (20) есть

$$\mathbf{E}(\zeta) = e^{\mathbf{A}\zeta} \mathbf{E}(0); \tag{21}$$

$$\mathbf{E} = \| \dots E_{-n}, \dots E_0, \dots E_n, \dots \|^T,$$
$$\mathbf{E}(0) = \| \dots 0, 0, q_{-1}, 1, 0, 0, \dots \|^T,$$
$$\mathbf{A} = \|a_{mn}\|, \quad a_{mn} = -\delta_{m-1,n} + \delta_{m,n-1}.$$

Для приведения матричной экспоненты в (21) к виду обычной матрицы необходимо вычислить корни λ характеристического уравнения

$$|\mathbf{A} - \lambda \mathbf{I}| = 0, \tag{22}$$

где **I** — единичная матрица.

С помощью разложения определителей D_n уравнения (22) с ограничением их размерности величиной n получаем систему разностных уравнений

$$D_n = \lambda D_{n-1} + D_{n-2}, \quad n \ge 3,$$

$$D_1 = \lambda, \quad D_2 = \lambda^2 + 1,$$
(23)

решением которой является

$$D_n = \frac{1}{2^n} \left[\left(\frac{\lambda^2 + 2}{s} + \lambda \right) (s + \lambda)^{n-1} + (-1)^n \times \left(\frac{\lambda^2 + 2}{s} - \lambda \right) (s - \lambda)^{n-1} \right], \quad s \equiv \sqrt{\lambda^2 + 4}. \quad (24)$$

Для n=2m+1выражение (24) преобразуется к виду

$$D_{2m+1} = \frac{\lambda}{2^{2m}} \left\{ \lambda^{2m} + \sum_{l=0}^{m-1} \frac{(2m)!}{(2m-2l)!(2l+1)!} \times \lambda^{2l} (\lambda^2 + 4)^{m-l-1} \left[(2m+1)\lambda^2 + 4(m+l+1) \right] \right\}.$$
 (25)

Последовательное решение уравнений $D_{2m+1} = 0$ для m = 1, 2, 3, ... показывает, что все корни λ различны и представимы в виде

$$\pm i\lambda_{2m+1,k}, \quad \lambda_{2m+1,k} \begin{cases} >0, & 1 \le k \le m, \\ =0, & k=0. \end{cases}$$
(26)

Приведем точные выражения для характеристических показателей $\lambda_{2m+1,k}$ с $1 \le m \le 5$:

$$\lambda_{3,1} = \sqrt{2},$$

$$\lambda_{5,1} = 1, \quad \lambda_{5,2} = \sqrt{3},$$

$$\lambda_{7,1} = \sqrt{2 - \sqrt{2}}, \quad \lambda_{7,2} = \sqrt{2},$$

$$\lambda_{7,3} = \sqrt{2 + \sqrt{2}},$$

$$\lambda_{9,1} = \sqrt{\frac{3 - \sqrt{5}}{2}}, \quad \lambda_{9,2} = \sqrt{\frac{5 - \sqrt{5}}{2}},$$

$$\lambda_{9,3} = \sqrt{\frac{3 + \sqrt{5}}{2}}, \quad \lambda_{9,4} = \sqrt{\frac{5 + \sqrt{5}}{2}},$$

$$\lambda_{11,1} = \sqrt{2 - \sqrt{3}}, \quad \lambda_{11,2} = 1, \quad \lambda_{11,3} = \sqrt{2},$$

$$\lambda_{11,4} = \sqrt{3}, \quad \lambda_{11,5} = \sqrt{2 + \sqrt{3}}.$$
(27)

Результаты численного расчета $\lambda_{2m+1,k}$ для $1 \leq m \leq 15$ представлены на рис. 1. На рис. 1 видно, что с ростом числа участвующих в ВКР компонент характеристические показатели сходятся к своим предельным значениям, так что зависимости $\lambda_{2m+1,k}$ от отношения k/m для m > 12 различаются между собой на доли процента. С погрешностью не более 1% они аппроксимируются формулой

$$\lambda_{2m+1,k} = 3.4823 \frac{1 - \exp(-0.8578x^2)}{x}, \quad x \equiv \frac{k}{m}.$$
 (28)

Определив характеристические показатели (27), (28), проведем обращение матричной экспоненты с



Рис. 1. Характеристические показатели $\lambda_{2m+1,k}$ — решения уравнения (22) в зависимости от отношения k/m для $1 \le m \le 15$

размерностью $(2m+1) \times (2m+1)$ в решении (21) с помощью формулы Лагранжа – Сильвестра [21]:

$$e^{\mathbf{A}\zeta} = \prod_{l=1}^{m} (\mathbf{A}^{2} + \lambda_{2m+1,l}^{2} \mathbf{I}) / \prod_{l=1}^{m} \lambda_{2m+1,l}^{2} + (-1)^{m} \mathbf{A} \sum_{k=1}^{m} [\mathbf{A} \cos(\lambda_{2m+1,k}\zeta) - \lambda_{2m+1,k} \sin(\lambda_{2m+1,k}\zeta) \mathbf{I}] \prod_{\substack{l=1\\l \neq k}}^{m} (\mathbf{A}^{2} + \lambda_{2m+1,l}^{2} \mathbf{I}) / \left(\lambda_{2m+1,k}^{2} \prod_{\substack{j=1\\j \neq k}}^{m} (\lambda_{2m+1,k}^{2} - \lambda_{2m+1,j}^{2}) \right). \quad (29)$$

Формулы (21) и (27)–(29) являются алгебраическим решением поставленной во Введении задачи о многочастотном ВКР в его наиболее простом варианте. Проверка этих формул проводилась посредством их сопоставления с результатами численного решения исходных уравнений (20) для m = 3. Результаты расчетов в этих двух вариантах полностью совпали. Из выражения (29) следует, что поведение амплитуд компонент при изменении длины взаимодействия осцилляционное. Спектр частот пространственных осцилляций определяется характеристическими показателями (27), (28). Из этих выражений следует, что период осцилляций волн рассеяния обратно пропорционален величине q_{-1} (6), равной отношению амплитуд стоксовой и основной компонент накачки на входе в среду. При



Рис. 2. Пространственные осцилляции компонент ВКР, следующие из решения (21), (28), (29), а также из численного решения (20); ζ — оптическая толщина комбинационно-активной среды по определению (6); компоненты рассеяния обозначены сплошными линиями (n < 0 — стоксова ветвь, n > 0 — антистоксова), $\eta = 0$, $\varepsilon_1 = \varepsilon_2 = 0$, $\varphi = 0$, $q_{-1} = 0.5$

 $q_{-1} \to 0$, когда накачка почти монохроматическая, осцилляции происходят с большим периодом. В случае равных интенсивностей двух компонент накачки, $q_{-1} = 1$, осцилляции имеют наименьший период. Таким образом, применение двухчастотной накачки с $q_{-1} \to 1$ повышает эффективность обмена энергией между компонентами ВКР, что приводит к расширению спектра рассеянного излучения.

Осцилляционное поведение компонент ВКР, следующее из решения (21), (28), (29), представлено на рис. 2. На рисунке видна определенная симметрия стоксовой и антистоксовой ветвей рассеяния и расширение спектра рассеянного излучения, пропорциональное оптической толщине. Наблюдаются также осцилляции в зависимости от номера компоненты рассеяния при фиксированной длине. Период и амплитуда этих осцилляций убывают с увеличением номера компоненты, и, в частности, при переходе от стоксовых к антистоксовым компонентам. Численное решение уравнений (6), представленное на рис. 3, показывает, что относительная симметрия решений (19), имеющая место при устремлении к нулю частоты комбинационного перехода, заметно нарушается даже при небольших ненулевых значениях $\varepsilon_1, \varepsilon_2 \sim 10^{-2}$. Колебания интенсивностей компонент при этом существенно отличаются от почти гармонических, присущих «идеальному» ВКР, которое проиллюстрировано на рис. 2. Отметим, что при



Рис. 3. Численное решение уравнений (6), представляющее действие неупругости КР (конечности величины ω_{21}/ω_0) в сравнении с «идеальным» ВКР, представленным на рис. 2, при $\eta = 0, \varepsilon_1 = 0.01, \varepsilon_2 = 0.03, \varphi = 0, q_{-1} = 0.5$

данных значениях ε_1 и ε_2 число антистоксовых компонент примерно в два раза превышает число стоксовых компонент. Преобладание антистоксовой ветви рассеяния над стоксовой при увеличении индекса неупругости ε_2 объясняется множителем $1 + n\varepsilon_2$ перед правой частью (6), который с увеличением nвозрастает, тем более заметно, чем больше $\varepsilon_2 \propto \omega_{21}$.

3. ВКР С УЧЕТОМ АСИНХРОНИЗМА И ФАЗ ВОЛН

Волновой асинхронизм и фазы волн будем рассматривать, следуя схеме, изложенной в работе [12], посвященной трехволновому ВКР, а также представленной в упрощенном варианте в разд. 2. Электрическое поле в среде представим в виде

$$\mathcal{E}(t,z) = E \sum_{n} E_n(z) \cos \Psi_n,$$

$$\Psi_n = \omega_n t - k_n(z)z + \varphi_n,$$
(30)

где волновые числа k_n зависят от длины распространения z, и φ_n — фазы волн на входе в среду; при двухволновой накачке (6) $\varphi_n = \varphi \delta_{n,-1}$.

Вместо уравнений для матрицы плотности (1) будем использовать аналогичные уравнения (1) из работы [12], которые включают заселенности уровней, так как последние необходимы для расчета нелинейной дисперсии среды, определяющей пространственное изменение фаз волн. Последовательность действий по нахождению поляризаций среды на дипольно-разрешенных и комбинационно-активном переходах, а также волновых уравнений для амплитуд и фаз волн, обобщающих уравнения (8) и (10) в [12], та же, что в работе [12] и разд. 2. Представим волновые числа компонент в виде сумм независящей от поля и квадратичной по амплитуде поля частей:

$$k_{n} = k_{n}^{(0)} + k_{n}^{(2)},$$

$$k_{n}^{(0)} = \frac{\omega_{0}}{c} (1 + n\varepsilon_{2}) \times$$

$$\times \{1 + 2\pi\chi_{1} [1 + n\varepsilon_{1} + \beta (1 + (n+1)\varepsilon_{1})]\},$$

$$k_{n}^{(2)} = 2\pi \frac{\omega_{0}}{c} \chi_{3}\kappa_{n};$$

$$Nd_{2}^{2} a^{(0)} = Nd_{c}^{2} d_{2}^{2} n_{10} E^{2}$$
(31)

$$\chi_1 = \frac{N d_1^2 \rho_1^{(0)}}{\hbar \Delta}, \quad \chi_3 = \frac{N d_1^2 d_2^2 n_{12} E^{12}}{4\hbar^3 \Gamma \Delta},$$
$$\beta = \frac{d_2^2 \rho_2^{(0)}}{d_1^2 \rho_1^{(0)}},$$

где κ_n — безразмерные нелинейные части волновых чисел, а остальные параметры, кроме явно вводимых в (31), определены ранее.

Опуская громоздкие промежуточные вычисления, выпишем окончательную систему связанных уравнений для безразмерных амплитуд полей и нелинейных частей волновых чисел, которая будет использована далее для проведения численных расчетов:

$$\frac{dE_n}{d\zeta} = (1+n\varepsilon_2) \left\{ \frac{E_{n+1}}{1-(n+1)\varepsilon_1} \sum_m \frac{E_m E_{m-1}}{1-m\varepsilon_1} \times \cos \Phi_{n+1,m} - \frac{E_{n-1}}{1-n\varepsilon_1} \times \sum_m \frac{E_m E_{m-1}}{1-m\varepsilon_1} \cos \Phi_{n,m} \right\}, \quad (32)$$

$$\frac{d\kappa_n}{d\zeta} = \frac{1+n\varepsilon_2}{E_n} \left\{ \frac{E_{n+1}}{1-(n+1)\varepsilon_1} \sum_m \frac{E_m E_{m-1}}{1-m\varepsilon_1} \times \right. \\ \left. \times \sin\Phi_{n+1,m} - \frac{E_{n-1}}{1-n\varepsilon_1} \sum_m \frac{E_m E_{m-1}}{1-m\varepsilon_1} \sin\Phi_{n,m} \right\}; \\ \eta = 8(1+\beta)\varepsilon_1\varepsilon_2\Gamma\Delta\left(\frac{\hbar}{d_2E}\right)^2 \frac{\rho_1^{(0)}}{n_{12}}, \\ \left. \frac{k_n^{(0)}}{G} = -\frac{1}{2}n(n+1)\eta, \right\}$$

$$\begin{split} \Phi_{n,m} &= (m-n)\eta\zeta + \kappa_n - \kappa_{n-1} - \kappa_m + \kappa_{m-1} + \\ &+ \varphi \left(\delta_{n,-1} - \delta_{n,0} - \delta_{m,-1} + \delta_{m,0} \right). \end{split}$$

Единственное отличие первых уравнений для амплитуд в (32) от уравнений (6) для синхронного ВКР заключается в появлении фазовых множителей с косинусами, задающими линейный (определяемый параметром η) и нелинейный по амплитудам поля волновой асинхронизм. Эти фазовые множители входят в суммы с бинарными произведениями амплитуд полей, которые формируют величины Q, входящие в поляризации (3) и уравнения (6) при синхронизме волн. Отметим, что в отличие от трех- и четырехволнового ВКР, когда изменение амплитуд волн определяется неизменной волновой расстройкой $\Delta k \propto 2k_0 - k_{-1} - k_1$ (соотношения (4), (8) в [12] и (4) в [9]), фазы в аргументах косинусов в первых уравнениях (32) содержат различные комбинации четырех нелинейных частей волновых чисел, зависящих от номеров компонент. Это указывает на более сложное взаимодействие фаз и амплитуд волн в общем случае полихроматического ВКР по сравнению с трех- и четырехволновым ВКР. Не зависящая от поля волновая отстройка Δk_n , отнесенная к коэффициенту усиления $G (\Delta k_n / G \propto \eta)$, получается из выражений для $k_n^{(0)}$ (31) для тех же комбинаций индексов, которые имеют нелинейные части волновых чисел в $\Phi_{n,m}$ (32). Отметим также, что оба вида асинхронизма, линейный и нелинейный по полю, входят в аргументы $\Phi_{n,m}$ косинусов и синусов в (32) аддитивно с комбинацией начальных разностей фаз накачки пропорциональных φ . Благодаря данному обстоятельству, можно ожидать, что действие трех перечисленных выше причин асинхронизма волн будет качественно сопоставимо.

Далее рассмотрим генерацию волн рассеяния в условиях линейной и нелинейной дисперсий среды. В первом случае нелинейные части волновых чисел полагаются равными нулю, $\kappa_n = 0$, и дифференциальные уравнения для κ_n в (32) отбрасываются. Оценка величин параметров задачи приведена в [12] применительно к молекуле водорода. А именно, для вращательного перехода $J = 1 \leftrightarrow J = 3, \omega_{21} =$ = 587 см⁻¹, $\omega_0 = 1.88 \cdot 10^4$ см⁻¹ ($\lambda = 532$ нм), $\omega_{31} =$ $= 10^5 \text{ cm}^{-1}, N = 2.69 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ (давление 1 атм), $\rho_1^{(0)} = 0.493, \, \rho_2^{(0)} = 0.249, \, n_{12} = 0.244, \, \Gamma = 0.1 \, \, \mathrm{cm}^{-1},$ $d_1 = d_2 = 5$ Д и интенсивности основной компоненты накачки 50 MBт/см² рассчитываемые параметры таковы: $\Delta = 4.8 \cdot 10^4$ см⁻¹, G = 0.175 см⁻¹, $\eta = 0.02, \ \varepsilon_1 = 0.011, \ \varepsilon_2 = 0.031, \ \chi_1 = 3.1 \cdot 10^{-5},$ $\chi_3 = 7.8 \cdot 10^8, \ \beta = 0.5.$

Воздействие на ВКР волновой отстройки пропорциональной η , обусловленной линейной дисперсией среды, в отсутствие других механизмов асин-



Рис. 4. Эффект линейного по полю асинхронизма, следующий из решения уравнений для амплитуд (32) с $\kappa_n = 0$; $\eta = 0.01$ (a), 0.2 (b), 1 (b), 10 (c); $\varepsilon_1 = \varepsilon_2 = 0$, $\varphi = 0$, $q_{-1} = 0.5$

хронизма волн и при нулевом индексе неупругости ε_2 представлено на рис. 4. Примечательно, что резкое отличие картины генерации от таковой в случае полного синхронизма (рис. 2) наступает, начиная с малых $\eta \sim 0.01$ (рис. 4*a*). «Линейный» асинхронизм, в отличие от действия неупругости КР (рис. 3), приводит к существенному подавлению антистоксовой ветви рассеяния. Начиная с относительно небольших $\eta \sim 0.1$, спектр рассеяния с ростом η заметно сужается, а пространственные колебания амплитуд волн хаотизируются. Рисунок 5 совместно с рис. 2 иллюстрируют существенное влияние на ВКР начальной разности фаз волн накачки φ . В соответствии со случаем трехволнового ВКР, при $\varphi = \pi/2$ (рис. 5б) число компонент рассеяния уменьшается вплоть до одной, что можно интерпретировать как интерференционное подавление ВКР, подробно рассмотренное в работе [12]. Рисунок 6 дает представле-

ние о проявлениях изменения фаз компонент рассеяния при распространении волн в среде (рис. 66), обусловленного нелинейной дисперсией среды. Из сравнения рис. 6а и 6в видно, что автоподстройка фаз, следующая из совместного решения полной системы уравнений (32), приводит к тому, что амплитуды волн E_n всегда положительные. Такая же ситуация имеет место и в случае трехволнового ВКР [12]. В принципе, форма представления поля (30) как раз и предполагает положительность амплитуд E_n . Отрицательными они становятся в результате решения укороченной системы уравнений (32) с нулевыми «нелинейными» волновыми числами к_n. Формальное объяснение механизма приведения амплитуд к положительным значениям $E_n > 0$ заключается в том, что при решении уравнений (32) для амплитуд E_n некоторые из них становятся отрицательными в силу особенностей самих уравнений, приводящих,



Рис. 5. Воздействие на ВКР начальной разности фаз основной и стоксовой компонент накачки (решение уравнений для амплитуд (32) с $\kappa_n = 0$): $\varphi = 0$ (рис. 2), $\pi/4$ (*a*), $\pi/2$ (*б*); $\eta = 0$, $\varepsilon_1 = \varepsilon_2 = 0$, $q_{-1} = 0.5$

так же как и в простом случае (20), к пространственным осцилляциям. Очевидно, что смена знака амплитуд означает скачок фаз соответствующих волн на π . Но если решать полную систему уравнений (32), в которой учтены согласованные изменения амплитуд и фаз, то, вследствие наличия множителей $1/E_n$ перед правыми частями уравнений для κ_n , при устремлении E_n к нулю производные κ_n по координате резко возрастают, что приводит к скачку суммарных фаз $\Phi_{n,m}$ на π рад [12,13]. Таким образом, меняются знаки косинусов и, соответственно, правых частей уравнений (32) для амплитуд. В результате, после приближения к нулю, изначально положительные амплитуды остаются и далее поло-

жительными. Тот факт, что численное решение (32) это подтверждает (рис. 6а), говорит о самосогласованности системы уравнений (32), поскольку происходит изменение величин $\Phi_{n,m}$, содержащих комбинации из четырех волновых чисел κ_n , в точности на π рад, в то время как уравнения для κ_n выписаны раздельно для каждой из компонент рассеяния и заранее не очевидно, что суммарное изменение квартетов κ_n будет равно π . Из сравнения рис. 6*a* и 6*b* следует, что нелинейная дисперсия среды (изменение волновых чисел и фаз в процессе распространения волн) приводит к большему подавлению антистоксовой ветви ВКР (рис. 6а) по сравнению со случаем, когда существенна только линейная дисперсия (рис. 66). При этом, как видно на рис. 66, волновые числа испытывают наибольшие изменения для антистоксовой ветви.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Рассмотрены качественные проявления ряда физических факторов, влияющих на генерацию широкого спектра компонент вынужденного комбинационного рассеяния. А именно, с помощью численных расчетов и аналитически показано, что при полном фазовом синхронизме и малой степени неупругости КР ($\omega_{21} \ll \omega_0$) для всех компонент рассеяния имеют место пространственные осцилляции, период которых обратно пропорционален отношению амплитуд стоксовой и основной компонент бихроматической накачки. Увеличение индекса неупругости ω_{21}/ω_0 приводит к заметному подавлению стоксовой ветви рассеяния.

Выведены уравнения, в которых учтены неупругость КР и асинхронизм волн, обусловленный линейной и кубической по амплитудам полей дисперсиями среды, а также разностью фаз двухчастотной накачки. Все эти три вида асинхронизма подавляют антистоксову ветвь КР. При этом даже небольшая величина безразмерной волновой расстройки пропорциональной η , вызванной линейной дисперсией, $\eta \sim 0.01$, создает существенную асимметрию ветвей рассеяния. С возрастанием η пространственные осцилляции, наиболее выраженные в случае синхронного ВКР, становятся нерегулярными, и спектр порождаемых частот сужается, смещаясь в сторону бо́льших длин волн. Разность фаз волн накачки на входе в среду φ также сильно влияет на ширину спектра ВКР, который при изменении φ от 0 до $\pi/2$ сужается вплоть до одной стоксовой компоненты, что является аналогом интерференционного подав-



Рис. 6. Влияние на ВКР нелинейной дисперсии среды, следующее из совместного решения уравнений для амплитуд и волновых чисел κ_n (32) (*a*), в сравнении со случаем линейной дисперсии, когда $\kappa_n = 0$ (*b*). Поведение волновых чисел $\kappa_n(\zeta)$ показано на рис. δ ; $\eta = 0.01$, $\varepsilon_1 = 0.01$, $\varepsilon_2 = 0.03$, $\varphi = 0$, $q_{-1} = 0.5$

ления ВКР, предсказанного ранее для случая трех волн [12]. Нелинейная дисперсия среды даже в отсутствие насыщения ВКР мощностью излучения создает ярко выраженные качественные изменения в картине рассеяния. А именно, взаимно зависимые изменения амплитуд и нелинейных частей фаз волн при их распространении в среде обеспечивают положительные значения амплитуд, так как скачки фаз на π , приводящие к смене знака амплитуд волн в отсутствие нелинейной дисперсии, автоматически создаются в результате совместной эволюции амплитуд и нелинейных частей волновых чисел. Антистоксова ветвь рассеяния при этом дополнительно подавляется.

Соотношения Мэнли–Роу, обозначающие закон сохранения числа квантов при двухволновом ВКР, обобщены на случай многочастотного ВКР. Показано, что суммарная интенсивность волн в случае сопоставимых амплитуд основной и стоксовой компонент двухволновой накачки убывает по мере распространения волн в среде вплоть до ненулевой конечной величины. Максимальная разность суммарных интенсивностей пропорциональна отношению интенсивностей компонент накачки. Отмеченный механизм диссипации энергии обусловлен передачей энергии от излучения к среде в процессе неупругого рассеяния света с эффективным преобладанием стоксовых компонент рассеяния. Оценки показывают, что для ВКР на вращательных переходах водорода при атмосферном давлении до шести процентов энергии излучения накачки может переходить в энергию возбуждения вращательных уровней.

ЛИТЕРАТУРА

- Г. В. Венкин, Г. М. Крочик, Л. Л. Кулюк и др., ЖЭТФ 70, 1674 (1976).
- D. Eimerl, R. S. Hargrove, and J. A. Paisner, Phys. Rev. Lett. 46, 651 (1981).
- T. Imasaka, S. Kawasaki, and N. Ishibashi, Appl. Phys. B 49, 389 (1989).
- T. Imasaka, T. Higashijima, S. Kawasaki, and N. Ishibashi, Appl. Opt. 29, 1727 (1990).
- S. Kawasaki, T. Imasaka, and N. Ishibashi. Appl. Phys. B 52, 211 (1991).
- S. Kawasaki, T. Imasaka, and N. Ishibashi, N. J. Opt. Soc. Amer. B 8, 1461 (1991).

- D. Eimerl, W. L. Kruer, and A. M. Campbell, Comments Plasma Phys. Controlled Fusion 15, 85 (1992).
- S. Yoshikawa and T. Imasaka, Opt. Comm. 96, 94 (1993).
- 9. Л. Л. Лосев, А. П. Луценко, КЭ 20, 1054 (1993).
- **10**. Н. Г. Иванов, В. Ф. Лосев, В. Е. Прокопьев, Оптика атмосферы и океана **12**, 1056 (1999).
- Kien Fam Le, J. Q. Liang, M. Katsuragawa et al., Phys. Rev. A 60, 1562 (1999).
- 12. В. П. Кочанов, КЭ 40, 1131 (2010).
- **13**. В. С. Бутылкин, А. Е. Каплан, Ю. Г. Хронопуло, Е. И. Якубович, *Резонансные взаимодействия* света с веществом, Наука, Москва (1977).

- **14**. В. П. Кочанов, Ю. В. Богданова, ЖЭТФ **123**, 233 (2003).
- **15**. В. П. Кочанов, ЖЭТФ **136**, 1057 (2009).
- 16. В. П. Кочанов, КЭ 42, 111 (2012).
- В. П. Кочанов, А. Н. Куряк, М. М. Макогон, И. С. Тырышкин, Опт. и спектр. 101, 195 (2006).
- 18. С. Г. Раутиан, Б. М. Черноброд, ЖЭТФ 72, 1342 (1977).
- С. Г. Раутиан, Б. М. Черноброд, ЖЭТФ 78, 1365 (1980).
- **20**. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, Электродинамика сплошных сред, Наука, Москва (1982).
- 21. Ф. Р. Гантмахер, *Теория матриц*, Наука, Москва (1967).