

# Эффективность антистоксовой генерации в нестационарном вынужденном комбинационном рассеянии

Н.И.Шамров

*Аналитически решены уравнения нестационарного ВКР для коротких образцов в приближении заданного возбуждающего поля и численно – для более протяженных сред с учетом истощения накачки. Исследована зависимость энергий стоксовой и антистоксовой волн от их пространственного рассогласования. Найден оптимальный угол антистоксовой генерации в зависимости от длины системы, энергии импульса накачки и скорости поперечной релаксации.*

**Ключевые слова:** нестационарное вынужденное комбинационное рассеяние, пространственное рассогласование, интенсивности стоксовой и антистоксовой волн, оптимальный угол, поперечная релаксация.

## 1. Введение

Антистоксово излучение обычно возникает при воздействии световой волны на возбужденные молекулы. Наряду с этим оно может зародиться также в результате параметрического взаимодействия лазерной и стоксовой волн [1–4]. В общем случае в ВКР присутствуют оба явления и различие между ними до некоторой степени условно [4]. При низкой энергии возбуждения молекул перекачка энергии от лазерной и стоксовой волн в антистоксову является преобладающим процессом, питающим антистоксову волну. Его эффективность зависит от разности фаз  $\Delta kz$  (см. ниже формулу (2)) взаимодействующих волн [1–12].

Теоретически установлено, что при стационарном ВКР в отсутствие фазового сдвига ( $\Delta k = 0$ ) имеет место подавление генерации как стоксова, так и антистоксова излучения [1–3]. Экспериментально это явление часто проявляется в виде темной области в картине стоксова излучения однопроходных комбинационных усилителей [5, 6].

В нестационарном случае, когда длительность импульса накачки меньше времени поперечной релаксации молекул или сравнима с ним, влияние пространственного рассогласования  $\Delta k$  на эффективность антистоксовой генерации оказывается несколько иным [7–12]. При аналитическом решении соответствующих уравнений в приближении заданного поля накачки найдено, что в асимптотическом приближении вдали от входной границы интенсивность антистоксовой компоненты максимальна при некотором  $\Delta k$ , в то время как при  $\Delta k = 0$  и  $\Delta kz \gg 1$ , как и в стационарном случае, она равна нулю [7, 8].

Численное же решение более полной задачи показало, что дополнительное влияние на эффективность парамет-

рического взаимодействия оказывает интенсивность затравочного стоксова излучения [9, 10]. Когда она мала, имеет место ситуация, аналогичная стационарному ВКР [1–4], что нашло также подтверждение в эксперименте [11]. Если же интенсивность входного стоксова сигнала значительна и лишь на порядок меньше интенсивности накачки, то эффективность преобразования энергии стоксовой и лазерной волн в антистоксову максимальна при нулевом  $\Delta k$  и падает с его ростом [9, 10, 12].

В работах [7–9, 12] исследовалось ВКР в режиме усиления, когда наряду с импульсом накачки на входной торец образца подавались также слабые сигналы на смещенных частотах. В настоящей работе анализируется ситуация, имеющая, например, место в однопроходном комбинационном генераторе, в котором стоксово излучение зарождается вследствие спонтанного комбинационного рассеяния (КР). Эта задача аналогична исследованной ранее в работе [8], но в отличие от нее здесь рассматривается нестационарное ВКР как в относительно коротких образцах, интенсивность возбуждающей волны в которых практически не изменяется, так и в более протяженных средах, в которых существенно истощение накачки. Принимается во внимание как стохастическая природа спонтанного КР, так и конечность времени поперечной релаксации на комбинационном переходе.

## 2. Уравнения модели

Рассмотрим среду, представленную одинаковыми молекулами с частотами  $\omega_{rq}$  и дипольными моментами  $d_{rq}$  переходов, причем  $q = 1, 2$  отвечает начальному и конечному уровням КР-перехода, а  $r = 3, 4, 5, \dots$  – промежуточным состояниям ( $d_{12} = 0$ ). На эту среду падает плоская линейно поляризованная волна, интенсивность которой не очень велика, а частота далека от резонанса с каким-либо из переходов молекулы:  $|d_{rq}E_L| \ll \hbar(\omega_L - \omega_{rq}), \hbar\omega_{rq}$ .

Поскольку эффективность встречного стоксова рассеяния в нестационарном случае незначительна [13], а интенсивности ВКР-компонент выше первого порядка относительно малы [14], поле в среде представим в виде

Мордовский государственный педагогический институт им. М.Е.Евсевьева, физико-математический факультет, Республика Мордовия, 430007 Саранск, ул. Студенческая, 11а

Поступила в редакцию 7 июля 2001 г.

$$E(\mathbf{r}, t) = \sum_{f=L,s,a} \mathbf{e}_f E_f(z, t) \exp(-i\omega_f t + i\mathbf{k}_f \mathbf{r}) + \text{компл. сопр.} \quad (1)$$

Здесь  $E_f$  – медленно меняющиеся амплитуды лазерного ( $f = L$ ), попутных стоксовой ( $f = s$ ) и антистоксовой ( $f = a$ ) волн;  $\mathbf{e}_f$  – соответствующий единичный вектор поляризации;  $\omega_s = \omega_L - \omega_{21}$ ;  $\omega_a = \omega_L + \omega_{21}$ ;  $\omega_{21}$  – частота КР-перехода. При этом степень рассогласования фаз волн вдоль оси  $z$

$$\Delta k = k_{sz} + k_{az} - 2k_{Lz}, \quad k_{sx, sy} + k_{ax, ay} - 2k_{Lx, Ly} = 0, \quad (2)$$

где  $k_f = \omega_f/v_f = \eta_f \omega_f/c$ ;  $v_f$  – скорость соответствующей волны;  $\eta_f$  – линейная часть показателя преломления на частоте  $\omega_f$ ;  $z$  и  $x, y$  – оси соответственно вдоль и перпендикулярно направлению распространения волны  $E_L$  (рис.1).

В типичных условиях эксперимента [11] интенсивность накачки составляет  $\sim 5 \cdot 10^9$  Вт/см<sup>2</sup> и менее, поэтому для газа при нормальных условиях и видимого излучения ( $\lambda \sim 0.5$  мкм) среднее число фотонов, приходящихся на одну молекулу, не превышает  $1.5 \cdot 10^{-2}$ , т. е. в этом случае населенности уровней можно считать постоянными. Для попутных волн в газах при длинах образца  $L \sim 1$  м и менее величина  $L|v_f^{-1} - v_f^{-1}|$  ( $f, f' = L, s, a$ ), определяющая время их группового запаздывания, не превышает  $10^{-14}$  с. Таким образом, при наносекундных импульсах влиянием различия скоростей взаимодействующих волн на кинетику ВКР можно пренебречь. Однако учет дисперсии КР-среды может оказаться важным при оценке угла антистоксовой генерации.

Нестационарное ВКР при указанных условиях описывается системой уравнений [15]

$$\frac{\partial \mathcal{E}_L}{\partial \xi} = 2i[\alpha Q \mathcal{E}_s + \beta Q^* \mathcal{E}_a \exp(iq\xi)], \quad (3)$$

$$\frac{\partial \mathcal{E}_s}{\partial \xi} = 2ir_s \alpha^* \mathcal{E}_L Q^*, \quad (4)$$

$$\frac{\partial \mathcal{E}_a}{\partial \xi} = 2ir_a \beta^* \mathcal{E}_L Q \exp(-iq\xi), \quad (5)$$

$$\frac{\partial Q}{\partial \tau} = i[\alpha^* \mathcal{E}_L \mathcal{E}_s^* + \beta \mathcal{E}_L^* \mathcal{E}_a \exp(iq\xi)] - \gamma Q. \quad (6)$$

Здесь  $\mathcal{E}_f = \eta E_f / (\pi n_0 \hbar \omega_L)^{1/2}$  – безразмерные комплексные амплитуды стоксова ( $f = s$ ), антистоксова ( $f = a$ ) и лазерного ( $f = L$ ) полей;  $n_0$  – концентрация молекул;  $\eta = \eta_f$  ( $f = L, s, a$ );  $Q$  – недиагональный элемент коллективной матрицы плотности, определяющий поляризацию, введенную в среде;  $\xi = z/v\Omega^{-1}$  – безразмерная координата;

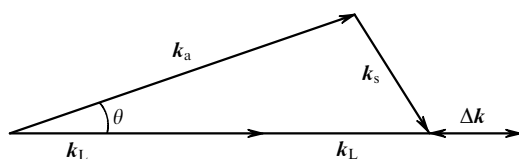


Рис.1. Векторная диаграмма при антистоксовой параметрической генерации.

$v = v_f$  ( $f = L, s, a$ );  $\tau = (t - z/v)/\Omega^{-1}$  – безразмерное запаздывающее время;  $\gamma = \Gamma/\Omega$ ;  $q = \Delta k v/\Omega$ ;  $r_{s,a} = \omega_{s,a}/\omega_L$ ;  $\alpha = \mu_s/|\mu_s|$ ;  $\beta = \mu_a/|\mu_s|$ ;  $\Gamma$  – скорость поперечной релаксации в переходе  $|1\rangle - |2\rangle$ ;  $\mu_s = \mu_{12}^s$ ,  $\mu_a = \mu_{21}^a$  – комбинационные поляризуемости, определяемые выражением

$$\mu_{mn}^f = \frac{1}{\hbar} \sum_r \frac{(\mathbf{d}_{mr} \mathbf{e}_f)(\mathbf{d}_{rn} \mathbf{e}_L)}{\omega_m + \omega_L} + \frac{(\mathbf{d}_{mr} \mathbf{e}_L)(\mathbf{d}_{rn} \mathbf{e}_f)}{\omega_m - \omega_L}$$

( $f = s, a$ ;  $m \neq n = 1, 2$ ). Величина  $\Omega^{-1} = \eta^2 / \pi n_0 \omega_L |\mu_s|$  определяет временной, а величина  $v\Omega^{-1}$  – пространственный масштабы нестационарного ВКР. При этом принимается во внимание зависимость показателя преломления от частоты света в формуле (2). Аналогичный подход использовался в работе [14].

Будем полагать, что стоксово излучение генерируется в среде вследствие спонтанного КР, эффективно описываемого заданием малой начальной поляризации

$$\mathcal{E}_s(0, \tau) = 0, \quad (7)$$

$$Q(\xi, 0) = a, \quad (8)$$

а антистоксова компонента порождается за счет параметрического взаимодействия лазерной и стоксовой волн, т. е.

$$\mathcal{E}_a(0, \tau) = 0. \quad (9)$$

В формуле (8)  $a$  – случайная величина, подчиняющаяся распределению Гаусса

$$P_0(a) = \frac{2a}{\kappa^2} \exp\left(-\frac{a^2}{\kappa^2}\right), \quad (10)$$

где  $\kappa = 1/\sqrt{N}$  – ширина распределения [16–18];  $N$  – полное число молекул образца.

Из вида уравнений (3)–(6) следует, что их решения обладают определенной симметрией относительно величины  $q$ :

$$\mathcal{E}_f(-q) = -\mathcal{E}_f^*(q) \quad (f = L, s, a), \quad Q(-q) = Q^*(q). \quad (11)$$

Таким образом, интенсивности волн и поляризация среды не зависят от знака  $q$ .

Как и в более ранних работах [7–12], рассмотрим рассеяние в случае слабой зависимости рамановских поляризуемостей от частоты:

$$\omega_s |\mu_s|^2 \approx \omega_a |\mu_a|^2.$$

### 3. Решение уравнений Максвелла – Блоха

Оценим ряд величин, входящих в уравнения (3)–(6), на примере ВКР в водороде. Согласно работе [19] время поперечной релаксации  $T_2$  для колебательно-вращательного перехода  $Q_{01}(1)$  составляет  $7.5 \cdot 10^{-9}$  с·атм/ $p_0$  ( $p_0$  – давление газа). При низком давлении из-за движения молекул время релаксации поляризации  $T_2^* = 2/(k_L - k_s) \bar{V}$  ( $\bar{V}$  – средняя тепловая скорость молекул), что составляет для данного перехода и комнатной температуры ( $T = 300$  К) около  $4.3 \cdot 10^{-10}$  с.

С ростом давления из-за уменьшения длины свободного пробега молекул и приближения ее к длине  $1/(k_L - k_s)$  средняя скорость, определяющая доплеровское уширение, становится меньше средней тепловой скорости  $\bar{V}$  и постепенно снижается [20]. При этом неоднородное уширение стоксовой линии уменьшается, а однородное – возрастает, так что ее полная ширина вначале уменьшается, вблизи  $p_0 = 1.85$  атм достигает минимального значения  $\Delta\omega_{\min} = 4 \cdot 10^8$  с<sup>-1</sup> (эффект Дике), а затем увеличивается [21]. Поскольку вблизи  $\Delta\omega_{\min}$  время  $T_2 \simeq 4.1 \cdot 10^{-9}$  с, то время  $T_2^*$  составит около 6.7 нс.

Если в качестве накачки выбрать излучение второй гармоники неодимового лазера ( $\lambda_L = 5.32 \cdot 10^{-7}$  м), то, т. к. ширина  $\Delta\nu$  перехода  $Q_{01}(1)$  равна  $4158.55$  см<sup>-1</sup> [22], длина стоксовой волны  $\lambda_s = 6.83 \cdot 10^{-7}$  м. Поскольку на такой длине волны дифференциальное сечение КР для молекул водорода  $d\sigma/d\Omega \simeq 5.28 \cdot 10^{-31}$  см<sup>2</sup>/(моль·ср) [23], то величина  $|\mu_s|^2 = k_s^4 d\sigma/d\Omega$  будет приблизительно равна  $5 \cdot 10^{-51}$  см<sup>6</sup>.

При давлении  $p_0 = 3$  атм и температуре  $T = 300$  К концентрация молекул  $n_0 = 7.2 \cdot 10^{19}$  см<sup>-3</sup>. Учитывая, что в этом случае лишь 66.7% молекул находятся в основном состоянии, получаем  $\Omega = 3.7 \cdot 10^{10}$  с<sup>-1</sup>. Следовательно, временной масштаб  $t_0 = \Omega^{-1} \simeq 2.7 \cdot 10^{-11}$  с, а пространственный масштаб  $L_0 = v\Omega^{-1} \simeq 8.2$  мм. Таким образом, выбирая длительность импульса накачки  $t_L < T_2^* \simeq 7$  нс (сотни  $t_0$ ), мы можем пренебречь влиянием неоднородного уширения, в то время как учет поперечной релаксации необходим.

### 3.1. Короткий образец

Обратимся вначале к среде относительно малых размеров, т. е. к случаю  $L \simeq (1 - 2)L_0$  (для вышеприведенных экспериментальных условий  $L \sim 1$  см). Тогда изменением поля накачки в процессе ВКР можно пренебречь и считать его заданным, т. е.  $\mathcal{E}_L = \mathcal{E}_L(0, \tau)$  [24].

Перейдем к новым амплитудам полей и поляризации

$$\begin{aligned} A_s &= \alpha \mathcal{E}_s \frac{\exp(\gamma\tau)}{\mathcal{E}_L}, \\ A_a &= \beta \frac{\exp(iq\xi) \mathcal{E}_a \exp(\gamma\tau)}{\mathcal{E}_L}, \end{aligned} \quad (12)$$

$$B = Q \exp(\gamma\tau),$$

с использованием которых уравнения (4)–(6) примут вид

$$\frac{\partial A_s}{\partial \xi} = ipB^*, \quad (13)$$

$$\frac{\partial A_a}{\partial \xi} = iqA_a + ipB, \quad (14)$$

$$\frac{\partial B}{\partial \tau} = i|\mathcal{E}_L|^2 A_s^* + i|\mathcal{E}_L|^2 A_a,$$

где  $p/2 = r_s = r_a |\beta|^2$ . Введем новую переменную

$$u(\tau) = \int_0^\tau |\mathcal{E}_L|^2 d\tau,$$

пропорциональную энергии импульса накачки к моменту времени  $\tau$ . В этом случае уравнение для  $\partial B/\partial \tau$  значительно упростится:

$$\frac{\partial B}{\partial u} = iA_s^* + iA_a. \quad (15)$$

Продифференцируем уравнение (15) по  $\xi$  и примем во внимание уравнения (13), (14). В результате получим новое уравнение для поляризации, не содержащее амплитуды стоксова поля:

$$\frac{\partial^2 B}{\partial u \partial \xi} = -qA_a. \quad (16)$$

Таким образом, на первом этапе задача сводится к решению системы двух уравнений (14) и (16). Их решение может быть найдено методом последовательных приближений по параметру  $q$ . Оно имеет вид

$$A_a = -\frac{a}{u} \exp(iy) \sum_{k=0}^{\infty} j_k(y) \frac{(-ix)^{k+1}}{(k!)^2}, \quad (17)$$

$$B = a \left\{ 1 + y \exp(iy) \sum_{k=0}^{\infty} [j_k(y) - ij_{k+1}(y)] \frac{(-ix)^{k+1}}{[(k+1)!]^2} \right\}. \quad (18)$$

Амплитуда  $A_s$  определяется с помощью уравнения (15):

$$\begin{aligned} A_s &= \frac{a}{u} \exp(-iy) \sum_{k=0}^{\infty} [(k+1)j_k(y) - yj_{k+1}(y) \\ &\quad + iyj_k(y)] \frac{(ix)^{k+1}}{k!(k+1)!}, \end{aligned} \quad (19)$$

где  $y = q\xi/2$ ;  $j_k(y)$  – сферическая функция Бесселя первого рода  $k$ -го порядка;  $x = q\xi$ ;  $g = pu$ . Решение (17)–(19) справедливо при любых  $x$  и  $y$ , т. е. при любых  $g$ ,  $q$  и  $\xi$ . Величина  $2y = q\xi = \Delta kz$  – разность фаз взаимодействующих волн. Смысл величины  $x$  будет выяснен позже. Принимая во внимание преобразование (12), окончательно получаем

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_a(\xi, \tau) &= -a \frac{p\xi}{\beta} \mathcal{E}_L(0, \tau) \exp\left(-i \frac{q\xi}{2} - \gamma\tau\right) \\ &\quad \times \sum_{k=0}^{\infty} j_k\left(\frac{q\xi}{2}\right) \frac{[-ip\xi u(\tau)]^k}{(k!)^2}, \end{aligned} \quad (20)$$

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_s(\xi, \tau) &= a \frac{p\xi}{\alpha} \mathcal{E}_L(0, \tau) \exp\left(-i \frac{q\xi}{2} - \gamma\tau\right) \sum_{k=0}^{\infty} \frac{[ip\xi u(\tau)]^k}{k!(k+1)!} \\ &\quad \times \left[ (k+1)j_k\left(\frac{q\xi}{2}\right) - \frac{q\xi}{2} j_{k+1}\left(\frac{q\xi}{2}\right) + i \frac{q\xi}{2} j_k\left(\frac{q\xi}{2}\right) \right], \end{aligned} \quad (21)$$

$$\begin{aligned} Q(\xi, \tau) &= a \frac{q\xi}{2} \exp\left(-i \frac{q\xi}{2} - \gamma\tau\right) \\ &\quad \times \sum_{k=0}^{\infty} \left[ j_{k-1}\left(\frac{q\xi}{2}\right) - j_k\left(\frac{q\xi}{2}\right) \right] \frac{[-ip\xi u(\tau)]^k}{(k!)^2}. \end{aligned} \quad (22)$$

Для дальнейшего анализа представляет интерес рассмотреть два частных случая решений (20)–(22):  $q = 0$  и  $|q|\xi \gg 1$ . Поскольку для малого аргумента  $j_k(y) \approx \sqrt{\pi} \times (y/2)^{k+1/2} [2\Gamma(k+3/2)]^{-1}$  (где  $\Gamma(z)$  – гамма функция), при  $q = 0$  мы имеем

$$\mathcal{E}_a(\xi, \tau) = -ia \frac{P}{\beta} \xi \mathcal{E}_L(0, \tau) \exp(-\gamma\tau), \quad (23)$$

$$\mathcal{E}_s(\xi, \tau) = ia \frac{P}{\alpha} \xi \mathcal{E}_L(0, \tau) \exp(-\gamma\tau), \quad (24)$$

$$Q(\xi, \tau) = a \exp(-\gamma\tau). \quad (25)$$

Для  $|q|\xi \gg 1$ , пользуясь асимптотическим представлением  $j_k(y) \approx \sin(y - k\pi/2)/y$  при  $y \gg 1$ , найдем

$$\mathcal{E}_a = a \frac{P}{\beta q} \mathcal{E}_L(0, \tau) \exp(-\gamma\tau) \left\{ J_0([4p\xi u(\tau)]^{1/2}) - \exp(-iq\xi) I_0([4p\xi u(\tau)]^{1/2}) \right\}, \quad (26)$$

$$\mathcal{E}_s = a \frac{i}{\alpha} \mathcal{E}_L(0, \tau) \exp(-\gamma\tau) \left( \frac{p\xi}{u(\tau)} \right)^{1/2} I_1([4p\xi u(\tau)]^{1/2}), \quad (27)$$

$$Q = a \exp(-\gamma\tau) I_0([4p\xi u(\tau)]^{1/2}), \quad (28)$$

где  $J_n(z)$  и  $I_n(z)$  – функция Бесселя и модифицированная функция Бесселя порядка  $n$ . Видно, что в этом случае антистоксовой компонентой можно пренебречь и мы получим решение, аналогичное ранее найденному Карманом и др. [25].

Решения (20), (21) или (23), (24), (26), (27) позволяют найти интенсивность соответствующей волны

$$I_f = \frac{c\eta |E_f|^2 / 2\pi}{\hbar\omega_f n_0 SL} S = \frac{\Omega}{2r_f l} |\mathcal{E}_f|^2, \quad (29)$$

представляющую собой число фотонов с частотой  $\omega_f$  ( $f = s, a$ ), пролетающих за единицу времени через поперечное сечение образца  $S$  (в расчете на одну молекулу). Энергия стоксова (антистоксова) импульса длительностью  $t_L$  есть

$$W_f = \int_0^{t_L} I_f(L, t) dt = \frac{1}{2r_f l} \int_0^{\tau_L} |\mathcal{E}_f(l, \tau)|^2 d\tau \quad (f = s, a), \quad (30)$$

где  $\tau_L = t_L/t_0$ ;  $l = L/L_0$ .

Для прямоугольного импульса с амплитудой  $E_L^{(0)}$  и длительностью  $t_L$  выражение (30) может быть записано явно:

$$W_f = a^2 M_f^2 \quad (f = s, a).$$

Здесь

$$M_s^2 = \sum_{k,n=0}^{\infty} \{ [(k+1)j_k(y) - yj_{k+1}(y)][(n+1)j_n(y) - yj_{n+1}(y)] + y^2 j_k(y)j_n(y) \} \frac{x^{k+n+1}}{[(k+1)!(n+1)!]^2} \times (k+n)! \gamma^*(k+n+1, 2\gamma\tau_L), \quad (31)$$

$$M_a^2 = \sum_{k,n=0}^{\infty} j_k(y)j_n(y) \frac{x^{k+n+1}}{(k!n!)^2} (k+n)! \gamma^*(k+n+1, 2\gamma\tau_L), \quad (32)$$

где  $\gamma^*(m, z)$  – неполная гамма функция [26];  $y = ql/2 = \Delta kL/2$ ;  $x = p\mathcal{E}_L^{(0)}\tau_L l = GL$ ;  $\gamma\tau_L = \Gamma t_L$ ;  $\mathcal{E}_L^{(0)}$  – безразмерная амплитуда, соответствующая  $E_L^{(0)}$ ;

$$G = \frac{g}{v\Omega^{-1}} = \frac{4\pi^2 n_0 |\mu_s|^2 P_L t_L}{c\eta^3 \hbar} k_s \quad (33)$$

– нестационарный коэффициент усиления;  $P_L$  – интенсивность лазерного излучения.

Мы видим, что стоксова и антистоксова компоненты ведут себя по-разному при разных  $q$  или  $\Delta k$ . При полном фазовом согласовании ( $\Delta k = 0$ ), т. е. в направлении угла

$$\theta_0 = \left( \frac{4k_a k_L - 4k_L^2 - k_a^2 + k_s^2}{2k_a k_L} \right)^{1/2}$$

(рис.1), как следует из формул (23), (24) и (29), интенсивности  $I_s$  и  $I_a$  близки друг другу и не увеличиваются с течением времени, даже если  $\Gamma = 0$ . Эта ситуация аналогична стационарному ВКР [1–4]. Если же рассогласование волн становится значительным ( $|\Delta k|z \gg 1$ ), т. е. углы  $\theta$  между ними становятся гораздо больше  $\theta_0$ , то связь антистоксовой волны со стоксовой полностью утрачивается и первая не генерируется, в то время как усиление второй максимально.

Если в (27), (28)  $t = (4pu\xi)^{1/2} \gg 1$ , то, пользуясь асимптотическим представлением  $I_1(t) \sim (2\pi t)^{-1/2} \exp t$ , можно записать

$$I_s \sim \xi^{1/2} \exp [2(4g\xi)^{1/2}] \sim z^{1/2} \exp [4(Gz)^{1/2}].$$

Таким образом, величина  $x$ , входящая в решения (17)–(22), определяет инкремент интенсивности стоксова излучения в отсутствие антистоксовой компоненты.

Поскольку в формуле  $W_f = a^2 M_f^2$  параметр  $a$  – случайная величина, то энергии стоксова и антистоксова импульсов  $W_{s,a}$  флуктуируют. Их функции распределения аналогичны ранее найденным [18]:

$$P(W_f) = \frac{1}{\bar{W}_f} \exp \left( -\frac{W_f}{\bar{W}_f} \right), \quad (34)$$

где средние энергии импульсов

$$\bar{W}_f = \int_0^{\infty} W_f P(W_f) dW_f = \kappa^2 M_f^2, \quad (35)$$

а их относительные стандартные отклонения

$$\delta_f = \left[ \int_0^{\infty} (W_f - \bar{W}_f)^2 P(W_f) dW_f \right]^{1/2} \bar{W}_f^{-1} = 1 \quad (f = s, a). \quad (36)$$

Так как средняя энергия антистоксова импульса в соответствии с формулами (32), (35), (23) и (26) близка к нулю при малом и большом параметре  $q$ , то следует ожидать, что при некотором промежуточном  $q_{opt}$  эта энергия будет максимальной (рис.2). Расчеты, проведенные на основе формул (32), (35), показали, что в отсутствие поперечной релаксации, действительно, при  $|y| \approx x/4$  ( $|q_{opt}| \approx g/2$ ) или

$$|\Delta k_{opt}| \approx \frac{G}{2} \quad (37)$$

энергия  $\bar{W}_a$  становится наибольшей. Средняя же энергия стоксова импульса монотонно возрастает с увеличением  $|q|$ .

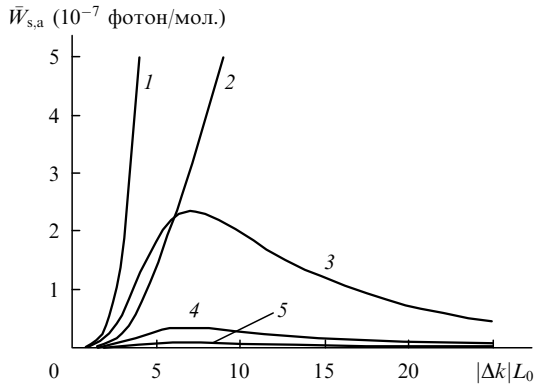


Рис.2. Зависимости средних энергий стоксовых (1, 2) и антистоксовых (3–5) импульсов в случае слабого истощения накачки от пространственного рассогласования при скорости поперечной релаксации  $\Gamma = 0$  (1, 3),  $0.005\Omega$  (2, 4),  $0.010\Omega$  (5),  $t_L = 200t_0$ ,  $\mathcal{E}_L^{(0)} = 0.2$ ,  $L = 2L_0$ ,  $\kappa = 10^{-6}\sqrt{2}$ .

Таким образом, при нестационарном ВКР в случае слабого истощения накачки существует оптимальная разность волновых векторов взаимодействующих волн, определяющая направление  $\theta$  наиболее интенсивной антистоксовой генерации (рис.1). Поскольку  $|\Delta k_{\text{opt}}|$  составляет несколько обратных сантиметров и, таким образом, много меньше  $k_f$ , угол  $\theta$ , как следует из рис.1, определяется выражением

$$\theta = (\theta_0^2 + \Delta\theta^2)^{1/2}, \quad (38)$$

где  $\Delta\theta^2 = k_s|\Delta k_{\text{opt}}|/k_a k_L$ . Угол  $\Delta\theta$  сравним с углом  $\theta_0$  и составляет несколько миллирадиан. Так, в условиях эксперимента, описанного выше, при  $p_0 = 3$  атм,  $t_L = 5 \cdot 10^{-9}$  с и  $P_L = 5 \cdot 10^9$  Вт/см<sup>2</sup> имеем  $|\Delta k_{\text{opt}}| \simeq 5.8$  см<sup>-1</sup>. Это дает  $\theta_0 = 3.0$  мрад и  $\Delta\theta = 3.2$  мрад.

Поперечная релаксация в рассматриваемом здесь случае ( $t_L \sim T_2$ ) практически не изменяет направления наиболее интенсивного антистоксова излучения, но снижает энергии импульсов ВКР на обеих частотах.

### 3.2. Протяженная система

При увеличении длины образца интенсивность стоксовой компоненты возрастает. Если  $L > L_0$ , этот рост значителен и интенсивность стоксова излучения становится соизмеримой с интенсивностью лазерного. Следовательно, в этом случае необходимо отказаться от приближения заданного поля накачки.

С учетом истощения возбуждающей волны из уравнений (3)–(5) следует закон сохранения числа фотонов:

$$N_L(\xi, \tau) + N_s(\xi, \tau) + N_a(\xi, \tau) = N_L(0, \tau), \quad (39)$$

где

$$N_f(\xi, \tau) = \frac{\eta^2 |E_f|^2 / 2\pi}{\hbar\omega_f n_0} = \frac{|\mathcal{E}_f|^2}{2r_f} \quad (f = L, s, a)$$

– число фотонов с частотой  $\omega_f$  в расчете на одну молекулу. Таким образом, рост интенсивности стоксовой волны ограничен интенсивностью накачки.

Из уравнения (5) видно, что интенсивность антистоксовой генерации определяется произведением поля накачки и поляризации. Последняя, в свою очередь, как показывает уравнение (6), зависит в основном от произведения амплитуд стоксовой и лазерной волн ( $I_a \ll I_s$ ). При

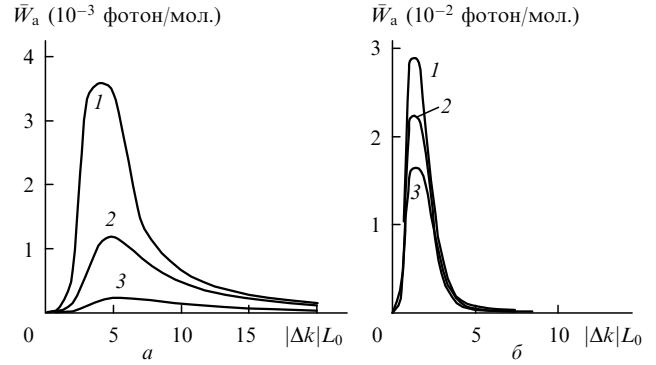


Рис.3. Зависимости средних энергий антистоксовых импульсов в случае сильного истощения накачки от пространственного рассогласования для длины образца  $L = 5L_0$  (а) и  $10L_0$  (б) при разных скоростях поперечной релаксации. Остальные параметры те же, что и на рис.2.

$|\Delta k|z \ll 1$  мала амплитуда  $\mathcal{E}_s$  (подавление роста  $\mathcal{E}_s$ ), а при  $|\Delta k|z \gg 1$  – амплитуда  $\mathcal{E}_L$  (истощение накачки  $\mathcal{E}_L$  из-за роста  $\mathcal{E}_s$ ). Произведение амплитуд  $\mathcal{E}_s \mathcal{E}_L$  с учетом (39) будет максимальным, когда они соизмеримы, т. е. при некотором промежуточном значении  $|\Delta k|$ . Следовательно, в данном случае, как и при слабом истощении накачки, имеется оптимальное пространственное рассогласование взаимодействующих волн, при котором интенсивность антистоксовой компоненты максимальна. Численное решение уравнений (3)–(5) подтверждает это (рис.3).

Чем больше  $L$ , тем выше инкремент интенсивности стоксова излучения и декремент интенсивности накачки, а значит, меньше разность  $|\Delta k|$ , при которой произведение  $\mathcal{E}_s \mathcal{E}_L$  максимально. Вследствие этого с ростом длины  $L$  разность  $|\Delta k_{\text{opt}}|$  уменьшается ( $|\Delta k_{\text{opt}}| \sim L^{-1}$ ) и при большом  $L$  приближается к нулю. Наряду с уменьшением  $|\Delta k_{\text{opt}}|$ , т. е. угла оптимальной антистоксовой генерации, с увеличением длины образца происходит также уменьшение угловых размеров антистоксова кольца (рис.3).

В отличие от разд.3.1, при сильном истощении накачки длительность ее импульса слабо влияет на разность  $|\Delta k_{\text{opt}}|$ , а значит, и на угол  $\Delta\theta$ ; наблюдается лишь незначительный рост этих величин с увеличением  $t_L$ . Аналогичное влияние на них в рассматриваемом здесь случае  $t_L \sim T_2$  оказывает также и поперечная релаксация. Однако с ростом ее скорости быстро уменьшается энергия антистоксовых импульсов, хотя чувствительность  $\bar{W}_a$  к изменению этого параметра с увеличением  $L$  падает.

### 4. Заключение

В режиме генерации ВКР-импульсов с длительностью, сравнимой с временем поперечной релаксации в рамановском переходе, в направлении полного пространственного согласования лазерной, стоксовой и антистоксовой волн, определяемом углом  $\theta_0$ , имеет место подавление усиления как стоксовой, так и антистоксовой компоненты. При угле излучения, много большем  $\theta_0$ , связь антистоксовой волны со стоксовой полностью утрачивается и первая волна не генерируется, в то время как усиление последней максимально. Следовательно, существует оптимальное пространственное рассогласование волн, вовлеченных в параметрический процесс, при котором интенсивность антистоксова излучения максимальна.

Для относительно коротких образцов ( $L \leq L_0$ ), в которых ослаблением лазерного излучения можно пренебречь, угол наиболее эффективной антистоксовой генерации  $\theta$  превышает угол полного фазового согласования  $\theta_0$  примерно вдвое. Для таких образцов оптимальный угол  $\theta$  не зависит от их длины и прямо пропорционален корню квадратному из энергии возбуждающего импульса. Направление наиболее эффективного антистоксова излучения практически стабильно, в то время как энергия соответствующих импульсов испытывает крупномасштабные (примерно 100 %-ные) флуктуации.

Для протяженных систем ( $L > L_0$ ), в которых истощение импульсов накачки существенно, с увеличением длины  $L$  оптимальный угол антистоксовой генерации уменьшается примерно обратно пропорционально  $L^{1/2}$  и при больших  $L$  приближается к углу полного фазового согласования. Длительность импульса накачки в протяженных средах слабо влияет на угол  $\theta$ . Как и для образцов малой длины, разброс оптимальных углов антистоксовой генерации весьма мал. Дисперсия энергии как стоксовых, так и антистоксовых импульсов с увеличением  $L$  падает и, когда  $L \simeq 10L_0$ , составляет в направлении угла  $\theta$  при отсутствии фазовой релаксации 10–15 %.

В условиях сохранения фазовой памяти молекул угловая ширина антистоксова кольца (на полувысоте) близка к разности  $\theta - \theta_0$ . Усиление столкновительной дефазировки существенно уширяет антистоксовы кольца и незначительно увеличивает их средние углы. При этом разброс энергий стоксовых и антистоксовых импульсов также заметно не увеличивается.

1. Bloembergen N., Shen Y.R. *Phys.Rev.*, **133**, A37 (1964).
2. Marchand R., Fedosejevs R., Tomov I.V. *Can.J.Phys.*, **64**, 743 (1986).
3. Djojtan G.P., Bakos J.S. *J.Mod.Optics*, **41**, 1687 (1994).
4. Bobbs B., Warner C. *J.Opt.Soc.Amer.B*, **7**, 234 (1990).
5. Chiao R. *Phys.Rev.Letts*, **12**, 290 (1964).
6. Perry B.N., Rabinowitz P., Bomse O.S. *Optics Letts*, **10**, 146 (1985).
7. Херрман И. *Квантовая электроника*, **2**, 364 (1975).
8. Пивцов В.С., Раутиан С.Г., Сафонов В.П. и др. *ЖЭТФ*, **81**, 468 (1981).
9. Hickman H.P., Bishell W.K. *Proc.SPIE*, **874**, 151 (1988).
10. Hickman H.P., Bishell W.K. *Phys.Rev.A*, **37**, 2516 (1988).
11. Duncan M.D., Mahon R., Tankersley L.L., Reintjes J. *Optics Letts*, **11**, 803 (1986).
12. Reizer C., Raymond T.D., Michie R.B., Hickman H.P. *J.Opt.Soc.Amer.B*, **6**, 1959 (1989).
13. Михеев Г.М. *Квантовая электроника*, **18**, 337 (1991).
14. Hickman H.P., Paisner J.A., Bishell W.K. *Phys.Rev.A*, **33**, 1788 (1986).
15. Шамров Н.И. *ЖПС*, **63**, 725 (1996).
16. Haake F., King H., Schroder G., Haus J., Glauber R. *Phys.Rev.A*, **20**, 2047 (1979).
17. Шамров Н.И. *Квантовая электроника*, **30**, 248 (2000).
18. Шамров Н.И. *Квантовая электроника*, **30**, 986 (2000).
19. Capasso F., De Martini F. *Optics Comms*, **9**, 172 (1973).
20. Murray J.R., Javan A. *J.Mol.Spectr.*, **42**, 1 (1972).
21. De Martini F., Simoni F. *Optics Comms*, **9**, 176 (1973).
22. Fenner W.R., Hyatt H.A., Kellam J.M. et al. *J.Opt.Soc.Amer.*, **63**, 73 (1973).
23. Ritchie V. *Phys.Rev.A*, **35**, 5108 (1987).
24. Черноброд Б.М. *Оптика и спектроскопия*, **49**, 692 (1980).
25. Carman R.L., Shimizu F., Wang C.S., Bloembergen N. *Phys.Rev.*, **2**, 60 (1970).
26. *Справочник по специальным функциям*. Под ред. М.Абромовица и И.Стигана (М., Наука, 1979).