

РЕЛЕЕВСКОЕ И КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТООВОГО ИМПУЛЬСА В ОДНОРОДНОЙ ГАЗОВОЙ СРЕДЕ

М. Л. ТЕР-МИКАЕЛЯН

Институт физических исследований НАН Армении

(Поступила в редакцию 8 апреля 1997г.)

В работе рассматривается релеевское и комбинационное рассеяние на двухуровневом атоме и в однородной газовой среде. Рассмотрение ведется в двух предельных случаях, допускающих простые аналитические решения (мгновенное и адиабатическое включения взаимодействия атомов с лазерным излучением). Показано, что релеевское рассеяние может наблюдаться и в бесконечной, однородной среде. Получены выражения для соответствующих вероятностей релеевского и комбинационного рассеяния в случае мгновенного включения взаимодействия.

1. Введение

Хорошо известно, что амплитуда релеевского рассеяния в однородной бесконечной среде в результате интерференции рассеяний на различных атомах зануляется по всем направлениям, кроме направления «вперед» (т.е. вдоль направления движения рассеиваемых фотонов), что и приводит к изменению скорости распространения света в среде. Релеевское рассеяние в бесконечной однородной среде может возникать только при наличии флуктуаций параметров среды (флуктуаций плотности, ориентаций молекул и т.д.). Этому направлению оптики, возникшему еще в прошлом веке, посвящена большая литература (см., например, [1]). В связи с успехами лазерной техники это направление получило большое развитие, новейшие достижения которого и история вопроса суммированы в обстоятельном обзоре [2]. Одновременно с изучением рассеяния света в макроскопических средах в последние годы начаты исследования по рассеянию лазерного излучения на отдельных атомах (см., например, [3], [4] и приведенную там литературу). Эти экспериментальные работы проводились в стационарном режиме, т.е. когда время действия лазерного излучения превышало время радиационного распада атома. Такие эксперименты выполняются обычно на атомных пучках, где время взаимодействия

$\tau \sim \frac{l}{v_{ат}} \gg \gamma$ (l — пространственные размеры лазерного пучка, $v_{ат}$ — скорость атомов, γ — время радиационного распада). Они привели к открытию и изучению «трехпиковой» структуры в резонансной флуоресценции, а также к вынужденным процессам поглощения и излучения пробного поля системой «атом + поле излучения».

В настоящей работе рассмотрены процессы взаимодействия лазерных импульсов с отдельными атомами при обратном условии

$\tau < \gamma$, т.е. когда время взаимодействия меньше времени радиационного распада. Проанализированы процессы рассеяния и в бесконечной однородной газовой среде и показано, что некогерентное релеевское рассеяние не зануляется и может быть экспериментально наблюде-
но. Аналогичные явления рассмотрены и для комбинационного рассеяния. Оказывается, что характеристики рассеяния зависят от временной структуры лазерного импульса, способа включения взаимодействия и параметра интенсивности a^2 .

2. Двухуровневый атом в поле лазерного импульса

Для простоты рассмотрим взаимодействие лазерного светового импульса с постоянной амплитудой, движущегося вдоль оси x с резким передним фронтом, что соответствует мгновенному включению взаимодействия в точке нахождения атома r_i в момент t_i (векторные величины в дальнейшем обозначаются жирным шрифтом):

$$E(x, t) = \varepsilon(t) e^{ikx - i\omega t} + \text{к.с.}, \quad (1)$$

$$\varepsilon(t) = \begin{cases} \varepsilon & \text{при } t > t_i, \\ 0 & \text{при } t < t_i. \end{cases} \quad (2)$$

В плоскости yz импульс для простоты предполагается безграничным. Решение уравнения Шредингера для i -го атома в поле импульса будем искать в виде разложения по полной ортонормированной системе функций невозмущенного двухуровневого атома:

$$\Psi_{1,2}^{(i)} = U_{1,2}^{(i)} e^{-iE_{1,2}t}, \quad \int \Psi_i^* \Psi_i dV = \delta_{ik}. \quad (3)$$

Для двухуровневого атома волновая функция атома в поле импульса может быть представлена в виде

$$\Phi^{(i)} = a_1^{(i)} \Psi_1^{(i)} + a_2^{(i)} \Psi_2^{(i)}. \quad (4)$$

Коэффициенты разложения $a_{1,2}^{(i)}$ определяются из уравнения Шредингера

$$\begin{aligned} ia_1^{*(i)} - a_2^{(i)} V^* e^{-i\Delta(t-t_i) + ikx_i}, \\ ia_2^{*(i)} = a_1^{(i)} V e^{-i\Delta(t-t_i) + ikx_i}. \end{aligned} \quad (5)$$

При выводе уравнений (5) предполагалось, что расстройка резонанса удовлетворяет следующему условию:

$$\Delta = |E_{21} - \omega| < E_{21}, \quad (6)$$

где $E_{21} = E_2 - E_1$ и энергии атомных уровней E_2, E_1 измеряются в единицах сек^{-1} .

Взаимодействие электромагнитного поля с двухуровневым атомом, находящимся в точке с координатой r_i , определяется величиной V :

$$V = \frac{d_{21}^{(i)} \varepsilon}{\hbar} = \frac{|d\varepsilon|}{\hbar} e^{i(\tau + \tau_1^{(i)} - \tau_2^{(i)} + \tau)}, \quad (7)$$

где $\varphi_1^{(i)}$ и $\varphi_2^{(i)}$ — случайные фазы ψ_1 и ψ_2 ; φ — постоянная фаза ε .

Электрический дипольный момент i -го атома, в дальнейшем обозначаемый через $d^{(i)}$, равен

$$d_{21}^{(i)} = \int \Psi_2^{(i)*} e r_{ie} \Psi_1^{(i)} dV_i = d^{(i)}. \quad (8)$$

Координата электрона r_{ie} отсчитывается от центра тяжести i -го атома. Поскольку в дальнейшем будет использоваться дипольное приближение, то $kr_{ie} \ll 1$. Однако множитель $\exp(ikr_i)$ в дальнейшем необходимо удерживать при рассмотрении интерференционных явлений между процессами, происходящими на различных атомах. При выводе уравнений (5) пренебрегалось всеми релаксационными процессами (столкновениями, радиационным затуханием, доплеровским уширением) и предполагалось, что в правой части уравнения (5) можно сохранить только резонансный член [5]). Эти ограничения, часть из которых в дальнейшем может быть снята, дают возможность использовать известное аналитическое решение о поведении двухуровневого атома в поле волны с резким передним фронтом (см., например, [6], где, однако, имеются опечатки, что сразу видно из приведенных в [6] волновых функций $\Phi_{1,2}$, которые не удовлетворяют условию ортонормированности). Правильные ортонормированные функции $\Phi_{1,2}^{(i)}$, удовлетворяющие начальным условиям, получаются при подстановке в выражение (4) следующих значений $a_{1,2}^{(i)}$:

$$a_1^i = \exp \left\{ -i \frac{\Delta}{2} (t - t_i) - i \frac{kx_i}{2} \right\} \left[\cos \frac{\Omega}{2} (t - t_i) + \frac{i\Delta}{\Omega} \sin(t - t_i) \right], \quad (9)$$

$$a_2^i = - \exp \left\{ -i \frac{\Delta}{2} (t - t_i) + i \frac{kx_i}{2} \right\} \left[\sin \frac{\Omega}{2} (t - t_i) \frac{2i(\varepsilon d)}{h\Omega} \right],$$

$$\text{где } \Omega = \sqrt{\Delta^2 + 4|V|^2}. \quad (10)$$

Волновые функции в этом случае можно представить в следующем виде:

$$\Phi_1^i = a_1^i \Psi_1 - a_2^i \Psi_2, \quad (11)$$

$$\Phi_2^i = -a_2^{i*} \Psi_1 + a_1^{i*} \Psi_2.$$

Волновые функции Φ_1^i и Φ_2^i удовлетворяют следующим начальным условиям:

$$\Phi_1^i \rightarrow \Psi_1 e^{-i \frac{kx_i}{2}} \text{ при } t \leq t_i, \quad (12)$$

$$\Phi_2^i \rightarrow \Psi_2 e^{-i \frac{kx_i}{2}} \text{ при } t \leq t_i.$$

Используя выражения (12), найдем дипольные электрические моменты в состояниях Φ_1^i и Φ_2^i соответственно. Рассмотрим вначале диполь-

ные моменты системы «атом+поле», когда состояние системы не меняется. Используя (9) и (12), для дипольного момента атома в резонансном поле

$$D_{11}^i = \int \Phi_1^{(i)} \mathbf{e} r \Phi_1^{(i)} dV, \quad (8')$$

получим

$$D_{11}^i(t > t_i) = -D_{22}^i = \frac{d^*(\mathbf{s}d)}{\hbar\Omega} e^{ikx_i} \left[\frac{\Delta}{\Omega} e^{-i(\omega_0)(t-t_i)} - \frac{1}{2} \left(\frac{\Delta}{\Omega} - 1 \right) e^{-i(\omega_0-2)(t-t_i)} - \frac{1}{2} \left(\frac{\Delta}{\Omega} + 1 \right) e^{-i(\omega_0+2)(t-t_i)} \right] + \text{к.с.} \quad (13)$$

Отметим, что электрический дипольный момент (13) системы «атом+резонансное поле» i -го атома не зависит от случайных фаз атомных волновых функций φ_1 и φ_2 . Это условие приведет к тому, что при вычислении рассеяния в среде все атомы будут действовать когерентно, т.е. при вычислении рассеяния на совокупности атомов должны складываться амплитуды рассеяния на каждом атоме. Кроме когерентных переходов, когда волновые функции системы «атом+поле» не изменяются, возможны и переходы с изменением состояния системы. С помощью простого расчета можно прийти к следующему результату для электрического дипольного момента перехода $\Phi_1^{i_1} \rightarrow \Phi_2^{i_2}$:

$$D_{21}^i(t > t_i) = D_{12}^{i*}(t > t_i) = e^{ikx_i} d^* \left[\frac{2(\mathbf{s}d)^2}{\hbar^2\Omega^2} e^{-i\omega_0(t-t_i)} + \frac{(\mathbf{s}d)^2}{\hbar^2\Omega^2} \left[e^{-i(\omega_0+2)(t-t_i)} + e^{-i(\omega_0-2)(t-t_i)} \right] + e^{-ikx_i} d \left[2 \left| \frac{\mathbf{s}d}{\hbar\Omega} \right|^2 e^{i\omega_0(t-t_i)} + \frac{1}{4} \left(1 + \frac{\Delta}{\Omega} \right)^2 e^{i(\omega_0+2)(t-t_i)} + \frac{1}{4} \left(1 - \frac{\Delta}{\Omega} \right)^2 e^{i(\omega_0-2)(t-t_i)} \right] \right]. \quad (14)$$

В этом случае дипольный момент перехода D_{21}^i зависит от случайных фаз атомных волновых функций и поэтому, как мы увидим ниже, рассеяния светового импульса на различных атомах не будут интерферировать друг с другом, т.е. при вычислении рассеяния на совокупности атомов должны складываться интенсивности рассеяния на каждом атоме, а не их амплитуды.

3. Рассеяние света в однородной среде

Для вычисления рассеяния света в среде мы применим следующий прием. Вначале рассчитываются электрические дипольные моменты атомов в поле движущегося светового импульса, а затем вычисляется излучение этих дипольных моментов. Таким образом, задача рассеяния света на двухуровневой системе сводится к расчету излучения наведенных дипольных моментов в резонансном поле дви-

жушегося светового импульса. Для расчета спонтанного излучения системой атомов в объеме V мы воспользуемся следующим выражением для вероятности спонтанного излучения фотона с частотой ω' , волновым вектором k' и поляризацией e' в телесный угол $d\Theta'$ [7]:

$$dW = \frac{\omega'^3}{2\pi\hbar c^3} \left| \sum_i e' \cdot D_i^- e^{ik'r_i} \right|^2 d\Theta'. \quad (15)$$

Выражение (15) при умножении на число фотонов с частотой ω' , k' , e'

$$n_{\omega k'} = \frac{8\pi^3 c^3}{\hbar \omega'^3} I_{\omega k'}, \quad (15')$$

где $I_{\omega k'}$ — спектрально-угловая плотность интенсивности вынуждающего излучения

$$I = \int I_{\omega} d\omega = \int I_{\omega k'} d\Theta' d\omega, \quad (15'')$$

будет определять вынужденное излучение фотона ω' , k' , e' . При этом $d\Theta'$ в (15') будет определять телесный угол вынуждающего переход излучения $I_{\omega k'}$. Вероятность поглощения будет определяться тем же выражением, только вместо отрицательной частотной части дипольного момента «атом + резонансное поле» будет входить его положительная частотная часть.

Рассмотрим прежде всего когерентное релеевское излучение. Для этого в выражения (15) нужно подставить первое слагаемое выражения (13) и просуммировать по всем атомам среды в объеме рассеяния V . Легко заметить, что вынужденные процессы излучения и поглощения соответствующих фотонов, благодаря условию $D_{11}^- = D_{11}^{+*}$, будут компенсировать друг друга, а выражение для вероятности спонтанного процесса излучения примет вид

$$dW(\omega', k', e') = \frac{\omega^3}{8\pi\hbar c^3} |de'^*|^2 \frac{\alpha^2}{(1+\alpha^2)^2} d\Theta' \left| \sum_i e^{i(kx_i - k'r_i)} \right|^2. \quad (16)$$

Из (16) следует, что рассеяние существенным образом зависит от параметра интенсивности α .

В таблице приведены значения параметра $\alpha = \frac{2}{\hbar} \left| \frac{ed}{\Delta} \right|$ для различных интенсивностей лазерного излучения и различных расстройек $\tilde{\Delta}$ при $d = 5 \cdot 10^{-18}$ CGSE. Обратим внимание, что четвертая строка таблицы дает значение величины $2 \left| \frac{ed}{\hbar} \right| = 2|V|$ в обратных сантиметрах. Эта величина в литературе иногда называется частотой Раби и характеризует частоту осцилляций электрона между уровнями под действием сильного поля E (см., например, [1]). Для сравнения с экспериментальными данными удобнее пользоваться расстройкой $\tilde{\Delta} = \frac{\Delta}{2\pi c}$ в обратных сантиметрах. Величина $\tilde{\Delta} = \tilde{\nu}_{21} - \tilde{\nu}$, где частота атомного пере-

хода $\tilde{\nu}_{21} = \frac{E_{21}}{2\pi c}$ и частота линии возбуждения $\tilde{\nu} = \frac{\omega}{2\pi c}$ также выражены в обратных сантиметрах. Внутри области, ограниченной жирным контуром, $\alpha \geq 1$, и обычная теория возмущений неприменима.

Таблица

$I_{\omega k'} \tilde{\nu}_{21}$, Вт/см ²	1	10 ²	10 ³	10 ⁴	10 ⁵	
$ E $, В/см	13,5	$4,3 \cdot 10^2$	$1,35 \cdot 10^3$	$4,3 \cdot 10^4$	$1,35 \cdot 10^5$	
α	$\tilde{\Delta} = 10^{-3} \text{см}^{-1}$	2,25	72,4	$2,25 \cdot 10^3$	$7,24 \cdot 10^4$	$2,25 \cdot 10^5$
	$\tilde{\Delta} = 1 \text{см}^{-1}$	$2,25 \cdot 10^{-3}$	$7,24 \cdot 10^{-2}$	2,25	72,4	$2,25 \cdot 10^3$
	$\tilde{\Delta} = 10 \text{см}^{-1}$	$2,25 \cdot 10^{-4}$	$7,24 \cdot 10^{-3}$	$2,25 \cdot 10^{-1}$	7,24	$2,25 \cdot 10^2$

Легко видеть, что из-за последнего множителя в выражении (16) когерентное релеевское рассеяние в безграничной среде зануляется. В ограниченной же среде, например, в самом простом случае среды, состоящей из двух двухуровневых атомов, расположенных в точках r_1 и $r_1 + L$, интерференционный член дает $|1 + e^{i(k-k')L}|^2 = 2[1 + \cos(k-k')L]$, что и определяет обычную интерференционную картину рассеяния света на двух центрах. При $\alpha^2 \ll 1$ мы имеем результаты обычной теории возмущения, при $\alpha^2 \geq 1$ выражения (16) учитывают эффект «насыщения». В общем случае ограниченной среды когерентное усиление, пропорциональное квадрату числа атомов, будет наблюдаться в направлениях рассеяния на когерентной длине $L_{\text{ког}}$, удовлетворяющей условию $(k-k')L_{\text{ког}} \ll 1$. Однако в безграничной среде амплитуда релеевского рассеяния зануляется, кроме рассеяния вперед, когда $k' = k$.

Аналогичные результаты можно получить при спонтанном излучении фотонов с частотами $\omega \pm \Omega$. Приведем для примера выражения для вероятностей рассеяния на одном атоме:

$$dW(\omega \mp \Omega, e') = \frac{(\omega \mp \Omega)^2}{32\pi\hbar c} |de'|^2 \frac{a^2}{(1+a^2)^2} [\sin \Delta \mp \sqrt{1+a^2}]^2 d\theta'. \quad (17)$$

Интерференционный член имеет тот же вид, что и в выражении (15), и его анализ проводится аналогично предыдущему.

Другие физические результаты получаются при расчете некогерентного излучения фотонов ω , $\omega \pm \Omega$ которое связано с дипольным «моментом» перехода D_{21} . Поскольку дипольный момент D_{21}^i для каждого атома зависит от произвольных фаз волновых функций φ_1^i , φ_2^i , то при рассмотрении суммарного излучения от всех атомов необходимо усреднить выражение по произвольным случайным фазам. Это приводит к замене интерференционного множителя, входящего в (16), на N , где N есть полное число атомов в рассеивающем объеме. Кро-

ме того, нужно обратить внимание, что из выражения (14) следует, что вынужденные процессы излучения и поглощения на частотах $\omega \pm \Omega$ не компенсируют друг друга, поскольку коэффициенты при соответствующих экспоненциальных множителях, отвечающих излучению $e^{-(\omega \pm \Omega)(t-t_i)}$ и поглощению $e^{(\omega \pm \Omega)(t-t_i)}$, различны. В результате расчета вероятностей некогерентного излучения фотонов ω , $\omega \pm \Omega$ в объеме с числом атомов, равным N , вероятность принимает вид

$$dW(\omega, \mathbf{e}) = N \frac{\omega^3}{8\pi_{\text{эф}} c^2} |d\mathbf{e}'|^2 \frac{\alpha^4}{(1+\alpha^2)^2} d\Theta', \quad (18)$$

$$dW(\omega \mp \Omega, \mathbf{e}') = N \frac{(\omega \mp \Omega)^3}{32\pi_{\text{эф}} c^2} \frac{|d\mathbf{e}'|^2}{(1+\alpha^2)^2} [\alpha^4(n'+1) - (\text{sign} \Delta \mp \sqrt{1+\alpha^2})^4 n'] d\Theta'. \quad (19)$$

Заметим, что выражение (19) при некоторых значениях параметров может принимать отрицательные значения. Это будет означать, что происходит поглощение, а не излучение. Отметим, что сумма выражений (16) и (18) в случае рассеяния на одном атоме приводит к формуле для полного релеевского (несмещенного) рассеяния [8]

$$dW = dW_{\text{кор}} + dW_{\text{некор}} = \frac{\omega^3}{8\pi_{\text{эф}} c^3} \frac{|d\mathbf{e}'|^2 \alpha^2}{(1+\alpha^2)} d\Theta'. \quad (20)$$

Выражение (20) при $\alpha^2 \ll 1$ совпадает с известным выражением Крамера-Гейзенберга для несмещенного релеевского рассеяния в случае двухуровневой системы. При $\alpha^2 \gg 1$ $dW \sim dW_{\text{некор}}$ и порядка вероятности спонтанного излучения невозмущенного поля атома.

Приведенные выше выражения для рассеяния квантов на отдельном атоме или в однородной среде относились к специальному способу включения взаимодействия, когда можно использовать простые аналитические решения. Очевидно, что мгновенное включение, т. е. импульс с бесконечно резким фронтом, является идеализацией экспериментальной ситуации. Однако можно показать, что характерным временем включения τ , при котором приведенные в тексте результаты сохранят свой вид, является величина $|\Delta|^{-1}$, которая должна удовлетворять условию $\tau \ll \frac{1}{|\Delta|}$. Вообще говоря, метод, использованный нами при расчете рассеяния, должен быть несколько уточнен, поскольку выражения (13) и (14) справедливы при $t > t_i$. Поэтому наведенные дипольные моменты D_{11} и D_{22} при разложении в интеграл Фурье по времени будут еще иметь некоторую «размазку» частот ω и $\omega \pm \Omega$ порядка τ^{-1} , что не сильно меняет результат.

Можно рассмотреть и другой предельный случай рассеяния на отдельном атоме, когда взаимодействие включается адиабатически, т. е. $\tau \gg \frac{1}{|\Delta|}$. При этом в этом случае можно учесть и влияние радиационного затухания [9], т. е. распространить формализм квазиэнергетических функций на стационарный режим, когда $\tau > \gamma$. При этом в

[9] получены результаты, совпадающие с расчетами резонансной флуоресценции [4]. Оказывается, что результаты при адиабатическом включении взаимодействия резко отличаются от рассмотренных выше результатов при мгновенном включении, поскольку при адиабатическом включении все релеевские рассеяния являются когерентными и, следовательно, релеевское рассеяние в однородной среде за нуляется. Сумма вероятностей когерентного и некогерентного релеевского рассеяния при мгновенном включении взаимодействия (20), т.е. полное сечение рассеяний на несмещенной частоте совпадает с сечением релеевского рассеяния в случае адиабатического включения. Можно получить аналитические решения задачи и для целого класса импульсов со специально подобранной зависимостью формы импульса от времени, допускающей решение уравнений (5), и убедиться, что процессы рассеяния на двухуровневых системах в однородной среде будут определяться формой импульса и способом включения взаимодействия.

Работа выполнена в рамках темы 96—772, финансируемой из государственных централизованных источников РА, а также по гранту № 170 ер Международного научного фонда.

ЛИТЕРАТУРА

1. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц. Электродинамика сплошных сред. М., Наука, 1974.
2. И. Л. Фабелинский. УФН, 164, 897 (1994).
3. H. Walther, W. Hartig, W. Rasmussen, R. Schider. Zeit. Phys. A, 278, 205 (1976).
4. R. Grove, F. Wu, S. Ezekiel, Phys. Rev. A, 15, 227 (1977).
5. М. Л. Тер-Микаелян. «Резонансная нелинейная оптика», Препринт ИФИ АН Армении, №74—11, Ереван, 1974.
6. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц. Квантовая механика, §41, М., Наука, 1974.
7. В. Гайтлер. Квантовая теория излучения. М., Иностран. лит., 1956.
8. М. Л. Тер-Микаелян, А. О. Меликян. ЖЭТФ, 58, 281 (1970).
9. В. V. Kryzhanovsky, A. O. Melikyan. Opt. Comm., 29, 164 (1979).

RAYLEIGH AND COMBINATIONAL SCATTERINGS OF LIGHT PULSE IN A HOMOGENEOUS GASEOUS MEDIUM

M. L. TER-MIKAELIAN

The Rayleigh and combinational scatterings on a two-level atom in a homogeneous gaseous medium are considered in two limiting cases when analytical solutions are possible. Analytical expressions for the corresponding probabilities of the Rayleigh and combinational scatterings are obtained for the case of a non-stationary switching on of the interaction.