

В.Н. Иванов, И.В. Иванов

Комбинационное рассеяние лазерного излучения атомами, участвующими в колебательном движении

Омский государственный технический университет

Поступила в редакцию 4.12.2003 г.

Теоретически рассматривается процесс рассеяния интенсивного когерентного электромагнитного излучения ансамблем водородоподобных атомов. Предполагается, что в этом ансамбле возбуждена стоячая звуковая волна, а внешнее излучение является резонансным переходу между двумя нижними энергетическими уровнями этих атомов. Колебания атомов около положения равновесия учитываются с помощью оператора дрейфа в гамильтониане нелинейного уравнения Шредингера, записанного для одного из атомов ансамбля. Получено, что в рассеянном излучении должны присутствовать комбинации частот падающего излучения и звуковой волны.

Явление дифракции света на стоячих звуковых волнах в среде хорошо известно. Это явление связывают в первую очередь с пространственными осцилляциями плотности рассеивающих частиц. При этом удается довольно точно рассчитать распределение энергии в дифракционной картине. Однако такой подход к описанию рассеяния света не является исчерпывающим. В частности, он не учитывает того факта, что молекулы и атомы образуют кластеры и ван-дер-ваальсовские молекулы. А в таких образованиях у отдельных атомов есть положения равновесия, относительно которых они совершают гармонические колебания. Поэтому при рассеянии света на ансамбле таких атомов можно ожидать, что в спектре могут наблюдаться комбинационные частоты. Данная работа посвящена теоретическому рассмотрению такого «комбинационного» рассеяния света ван-дер-ваальсовскими молекулами.

Исходными предположениями являются следующие допущения: свет является монохроматической плоской волной большой интенсивности (плотность энергии волны значительно больше энергии, которую может запасти молекула в единице объема)

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \cos[\omega t - (\mathbf{K} \cdot \mathbf{R})], \quad (1)$$

частота его близка к собственной частоте переходов атомов среды из возбужденного состояния в основное. В (1) \mathbf{E}_0 — амплитуда световой волны; ω — циклическая частота; t — время; \mathbf{K} — волновой вектор; \mathbf{R} — координата точки. Среду можно рассматривать как ансамбль водородоподобных атомов, первоначально находящихся в основном состоянии и могущих переходить под действием излучения на второй энергетический уровень. Эти атомы участвуют в колебаниях, обусловленных возбуждением в среде стоячей звуковой волны:

$$V = 2V_0 \cos(\mathbf{K}_0 \cdot \mathbf{R}) \cos(\omega_0 t), \quad (2)$$

где V_0 — амплитуда скорости среды, вовлеченной в колебания звуковой волной; ω_0 — циклическая частота этой волны; \mathbf{K}_0 — ее волновой вектор.

Поскольку атомы среды вовлечены в коллективное движение, рассматривать их как изолированные образования нельзя. Изменение их состояний должно вызывать изменение состояний соседних частиц и, как следствие, через влияние соседей сказываться на состоянии самих этих атомов. Учет этого обстоятельства производится в нашей работе с помощью нелинейного уравнения Шредингера [1, 2], которое с точностью до членов меньшего порядка малости для водородоподобного атома имеет вид

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} = \frac{1}{1 + i\alpha} \frac{1}{2m} \hat{\mathbf{P}}^2 \Psi + e\phi \Psi + (\mathbf{E} \cdot \mathbf{d}) \Psi + \frac{m}{2e} (\dot{V} \cdot \mathbf{d}) \Psi + \frac{i\alpha}{1 + \alpha^2} \langle \Psi | \frac{1}{2m} \hat{\mathbf{P}}^2 | \Psi \rangle \Psi. \quad (3)$$

В (3) введены стандартные обозначения; параметр α (величина больше нуля) учитывает в неявной форме плотность окружающей среды: этот параметр тем больше, чем плотнее среда.

Регулярные по времени решения уравнения (3) можно найти, решая уравнение вида

$$i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} = \frac{1}{1 + i\alpha} \frac{1}{2m} \hat{\mathbf{P}}^2 \psi + e\phi \psi + (\mathbf{E} \cdot \mathbf{d}) \psi + \frac{m}{2e} (\dot{V} \cdot \mathbf{d}) \psi. \quad (4)$$

Функции Ψ и ψ связаны соотношением

$$\Psi = \psi / \langle \psi | \psi \rangle^{1/2}. \quad (5)$$

Если принять во внимание правила отбора, справедливые для атома водорода в дипольном приближении, то решение уравнения (4) можно представить в виде

$$\begin{aligned} \Psi = & b_1(t) \exp\left(-\frac{i}{\hbar} E_1 t - \gamma_1 t\right) \Psi_1(\mathbf{r}) + \\ & + \exp\left(-\frac{i}{\hbar} E_2 t - \gamma_2 t\right) [b_2(t) \Psi_2(\mathbf{r}) + b_3(t) \Psi_3(\mathbf{r})]. \end{aligned} \quad (6)$$

Здесь E_i — энергия стационарного состояния водородоподобного атома; γ_i — константа затухания. Волновые функции $\Psi_i(\mathbf{r})$ ортогональны друг другу, а у дипольного момента отличны от нуля матричные элементы: \mathbf{d}_{12} , \mathbf{d}_{23} и комплексно сопряженные с ними величины.

После подстановки (6) в уравнение (4) несложно получить систему дифференциальных уравнений

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial b_1}{\partial t} = & b_2(\mathbf{E} \cdot \mathbf{d}_{12}) \exp\left(-i \frac{E_2 - E_1}{\hbar} t - (\gamma_2 - \gamma_1)t\right), \\ i\hbar \frac{\partial b_2}{\partial t} = & b_1(\mathbf{E} \cdot \mathbf{d}_{21}) \times \\ & \times \exp\left(-i \frac{E_1 - E_{12}}{\hbar} t - (\gamma_1 - \gamma_2)t\right) + b_3 \frac{m}{2e} (\dot{\mathbf{V}} \cdot \mathbf{d}_{23}), \\ i\hbar \frac{\partial b_3}{\partial t} = & b_2 \frac{m}{2e} (\dot{\mathbf{V}} \cdot \mathbf{d}_{32}). \end{aligned} \quad (7)$$

Система (7) записана в предположении, что частота лазерного излучения намного порядков превосходит звуковую частоту.

В предположении, что длительность лазерного импульса значительно превосходит время жизни возбужденного состояния, в адиабатическом по звуковым колебаниям приближении с точностью до постоянного для всех коэффициентов $b_i(t)$ множителя справедливы следующие соотношения:

$$\begin{aligned} b_1(t) = & \exp\left\{-i \left(\Omega + \frac{\varepsilon}{2}\right) - \frac{(\gamma_2 - \gamma_1)}{2} \left(1 - \frac{\varepsilon}{2\Omega}\right) t\right\}, \quad (8) \\ b_2(t) = & \exp\left\{-i \left(\Omega - \frac{\varepsilon}{2}\right) + \frac{(\gamma_2 - \gamma_1)}{2} \left(1 + \frac{\varepsilon}{2\Omega}\right) t\right\} \times \\ & \times \exp[i(\mathbf{K} \cdot \mathbf{R})] \left[1 - \left(\frac{m\omega_0}{e\hbar\Omega}\right)^2 |(\mathbf{V}_0 \cdot \mathbf{d}_{23})|^2 \times \right. \\ & \left. \times \cos^2(\mathbf{K}_0 \cdot \mathbf{R}) \sin^2(\omega_0 t)\right], \quad (9) \end{aligned}$$

V.N. Ivanov, I.V. Ivanov. Raman scattering of laser radiation by atoms participating in oscillatory movement.

The process of scattering of intense coherent electromagnetic radiation by an ensemble of hydrogen-like atoms is considered theoretically. It is supposed that in this ensemble the standing sound wave is excited, and the external radiation is resonant to the transition between the two lower energy levels of these atoms. The fluctuations of atoms about the equilibrium state are taken into account by the drift operator in the Hamiltonian of the non-linear Schrodinger equation written for one of the atoms. It is obtained, that the scattered radiation should include combinations of frequencies of the incident radiation and the sound wave.

$$\begin{aligned} b_3(t) = & \exp\left\{-i \left(\Omega - \frac{\varepsilon}{2}\right) + \frac{(\gamma_2 - \gamma_1)}{2} \left(1 + \frac{\varepsilon}{2\Omega}\right) t\right\} \times \\ & \times \frac{m\omega_0}{\hbar\Omega} (\mathbf{V}_0 \cdot \mathbf{d}_{32}) \cos(\mathbf{K}_0 \cdot \mathbf{R}) \sin(\omega_0 t). \end{aligned} \quad (10)$$

В формулах (8)–(10) ε — отстройка частоты лазерного излучения от собственной частоты атома:

$$\varepsilon = \frac{E_2 - E_1}{\hbar} - \omega, \quad (11)$$

а Ω — штарковский сдвиг:

$$\Omega = \frac{|(\mathbf{E}_0 \cdot \mathbf{d}_{12})|}{2\hbar}. \quad (12)$$

Подстановка найденных соотношений в волновую функцию приводит при вычислении индуцированного у атома дипольного момента к следующему выражению:

$$\begin{aligned} \langle \mathbf{d} \rangle \approx & \langle \Psi | \mathbf{d} | \Psi \rangle = \{ \mathbf{d}_{12} \exp[-i\omega t] + i(\mathbf{K} \cdot \mathbf{R}) \} \times \\ & \times \left[1 - \left(\frac{m\omega_0}{e\hbar\Omega}\right)^2 |(\mathbf{V}_0 \cdot \mathbf{d}_{23})|^2 \cos^2(\mathbf{K}_0 \cdot \mathbf{R}) \sin^2(\omega_0 t) \right] + \\ & + \mathbf{d}_{23} \left(\frac{m\omega_0}{e\hbar\Omega}\right) (\mathbf{V}_0 \cdot \mathbf{d}_{32}) \cos(\mathbf{K}_0 \cdot \mathbf{R}) \sin(\omega_0 t) + \\ & + K.C. \left/ \left[2 - \left(\frac{m\omega_0}{e\hbar\Omega}\right)^2 |(\mathbf{V}_0 \cdot \mathbf{d}_{23})|^2 \cos^2(\mathbf{K}_0 \cdot \mathbf{R}) \sin^2(\omega_0 t) \right] \right\}. \end{aligned} \quad (13)$$

Наличие в (13) слагаемых, осциллирующих с частотой звуковых колебаний, показывает, что в рассеянном излучении должны присутствовать кроме основной частоты еще как низкочастотные электромагнитные волны (нечетные гармоники звуковой частоты), так и волны с частотами $\omega \pm 2n\omega_0$ (n — целое число), т.е. должно иметь место комбинационное рассеяние света. Пространственная модуляция величины дипольного момента отдельного атома показывает, что развитый в данной работе формализм применим при описании явления дифракции интенсивного лазерного излучения на стоячих звуковых волнах.

1. *Иванов В.Н.* Эвристический способ описания релаксации квантовых систем // Изв. вузов. Физ. 1996. Т. 39. № 2. С. 7–13.
2. *Ivanov V.N.* Frequency conversion of the light scattered by the atoms oscillating in heat bath // Proc. SPIE. 1998. V. 3485. P. 553–559.