«Оптика атмосферы и океана», **5**, № 11 (1992)

УДК 535.31.326:345

И.И. Ипполитов

УСЛОВИЯ СТАЦИОНАРНОСТИ КОЭФФИЦИЕНТА ПОГЛОЩЕНИЯ ПРИ РАСПРОСТРАНЕНИИ ОПТИЧЕСКОГО ИМПУЛЬСА В ДВУХУРОВНЕВОЙ СРЕДЕ

Рассмотрено распространение гауссовского импульса в двухуровневой среде. Исходя из системы уравнений Блоха–Максвелла последовательно выясняются приближения, которые приводят к широко используемому в задачах распространения радиации закону Бугера с независящим от времени коэффициентом поглощения.

В большинстве методов дистанционного лазерного зондирования атмосферы как первый этап рассматривается распространение оптического импульса от выходной апертуры лазера к удаленному объему атмосферы и как второй этап – распространение переизлученного этим объемом излучения к приемной апертуре. В соответствии с этим для учета энергетических потерь зондирующего и переизлученного импульсов в уравнение зондирования вводится квадрат (для несмещенных частот) либо произведение (для смещенных частот) прозрачностей, определяемых на основе эмпирического закона Бугера. Практически всегда справедливо введение определяемой таким образом прозрачности для переизлученного импульса, прежде всего из-за его очень малой мощности. Что касается распространения зондирующего импульса, то возможны отклонения от закона Бугера в тех случаях, когда частота импульса лежит в пределах линии поглощения молекулы. Наиболее известный пример такого отклонения – эффект насыщения в поглощении [1]. Для того чтобы найти условия применимости закона Бугера, воспользуемся уравнениями Блоха-Максвелла, описывающими в полуклассическом приближении взаимодействие зондирующего оптического импульса с двухуровневой системой, моделирующей молекулярное поглощение.

Пусть индекс b отвечает нижнему энергетическому состоянию, индекс a – верхнему, а $\omega_0 = (\varepsilon_a - \varepsilon_b)/\hbar$ – частота перехода. Динамика двухуровневой системы, взаимодействующей с электрическим полем E, может быть описана системой уравнений Блоха для элементов матрицы населенностей [2]:

$$\dot{\rho}_{aa} = \frac{n_a - \rho_{aa}}{T_1} + i\,\frac{\mu_{ab}}{\hbar}\,E(z',\ t)\,(\rho_{ba} - \rho_{ab}); \tag{1}$$

$$\dot{\rho}_{bb} = \frac{n_b - \rho_{bb}}{T_1} + i\,\frac{\mu_{ab}}{\hbar}\,E(z',\ t)\,(\rho_{ab} - \rho_{ba}); \tag{2}$$

$$\dot{\rho}_{ab} = (-i\omega_0 - 1/T_2)\,\rho_{ab} + i\,\frac{\mu_{ab}}{\hbar}\,E(z',\ t)\,(\rho_{bb} - \rho_{aa}), \tag{3}$$

$$\rho_{ba} = \rho_{ab}^{*}.$$

Здесь $\rho_{aa}(z',\ t)$, $\rho_{bb}(z',\ t)$ представляют собой населенности уровней a и b в точке z' для молекул, имеющих компоненту скорости v_z; μ_{ab} – матричный элемент электрического дипольного момента; T_1 и T_2 – продольное и поперечное время релаксации. Величины n_a и n_b представляют собой равновесные значения населенностей и определяются как

$$n_a = \frac{N_a\,e^{-v_z^2/\bar{u}^2}}{\bar{u}\sqrt{\pi}}, \tag{4}$$

где N_a – полная плотность молекулы на уровне a; $\bar{u}$ – средняя скорость молекулы.

Поле $E(z,\ t)$ определяется из уравнения Максвелла

$$-\frac{\partial^2 E}{\partial z^2} + \frac{1}{c^2}\,\frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = -\frac{4\pi}{c^2}\,\frac{\partial^2 P}{\partial t^2}. \tag{5}$$

Поляризуемость среды P определяется как

$$P(z,\ t) = \int\limits_{-\infty}^{+\infty} \bar{\mu}(z,\ v_z,\ t)\,dv_z; \tag{6}$$

$$\bar{\mu}(z, v_z, t) = \mu_{ab}\left[\rho_{ba}(z, v_z, t) + \rho_{ab}(z, v_z, t)\right]. \tag{7}$$

Следует заметить, что в соответствии с [2] поле $E(z', t)$ в (1)—(3) определено в системе координат, жестко связанной с молекулой, тогда как уравнение (5) определяет поле в лабораторной системе координат. Связь между полями в этих двух системах координат осуществляется с помощью нерелятивистского ($v_z/c \ll 1$) преобразования

$$z' = z - v_z t;$$

$$\Omega' = \Omega - k v_z;$$

$$k' = k, \ t' = t. \tag{8}$$

Практически вычисления должны строиться следующим образом: задается определенное приближение для поля $E(z', t)$ и из системы (1)—(3) находится соответствующее приближение, например, для $\rho_{ab}(z', \Omega', t)$. Далее осуществляется преобразование (8), подстановка в (5)—(7) и находится следующая итерация для $E(z, t)$.

Этот процесс, в сущности, весьма прост, поскольку преобразование (8) сохраняет полную фазу поля $\Omega' t - kz' = \Omega t - kz$.

Представим $E(z', t)$, $\rho_{ab}(z', t)$, $P(z, t)$ в виде

$$E(z', t) = \frac{1}{2} E_0(z', t) \exp\left[i(\Omega' t - kz')\right] + \frac{1}{2} E_0^*(z', t) \exp\left[-i(\Omega' t - kz')\right]; \tag{9}$$

$$\rho_{ab}(z', t) = \tilde{\rho}_{ab}(z', t) \exp\left[-i(\Omega' t - kz')\right]; \tag{10}$$

$$P(z, t) = \frac{1}{2} P_0(z, t) \exp\left[i(\Omega t - kz)\right] + \frac{1}{2} P_0^*(z, t) \exp\left[-i(\Omega t - kz)\right]; \tag{11}$$

$$P_0(z, t) = 2\mu_{ab} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\rho}_{ba}(z' \to z - v_z t, \ \Omega' \to \Omega - k v_z, \ t)\, dv_z. \tag{12}$$

Для медленных амплитуд $E_0(z', t)$ и $\tilde{\rho}_{ab}(z', t)$ получим, подставляя (9) и (10) в (1)—(3) и воспользовавшись приближением вращающейся волны, следующие уравнения:

$$\dot{\tilde{\rho}}_{ba} = (-i\Delta - 1/T_2)\tilde{\rho}_{ba} - i\frac{\mu_{ab}}{2\hbar} E_0 n; \tag{13}$$

$$\dot{n} = \frac{n_0 - n}{T_1} + i\frac{\mu_{ab}}{\hbar}(E_0 \tilde{\rho}_{ab} - E_0^* \tilde{\rho}_{ba}); \tag{14}$$

$$\Delta = \Omega' - \omega_0; \ n = \rho_{bb} - \rho_{aa}; \ n_0 = n_b - n_a.$$

Укороченные уравнения Максвелла для медленных амплитуд можно записать в виде

$$\frac{\partial E_0}{\partial z} + \frac{1}{c}\frac{\partial E_0}{\partial t} = 2\pi i k P_0, \tag{15}$$

где P_0 определяется формулой (12).

Если выделить явно вещественные и мнимые части E_0 и P_0:

$$E_0 = \mathrm{E}^0 + \mathrm{E}_c + i\mathrm{E}_s; \tag{16}$$

$$P_0 = P_c + iP_s, \tag{17}$$

то можно показать, что уравнения (15) справедливы при соблюдении следующих неравенств:

$$\left|\frac{\partial \mathrm{E}_c}{\partial z^2}\right| \ll 2k\left|\frac{\partial \mathrm{E}_s}{\partial z}\right|;$$

$$\left|\frac{\partial^2 \mathrm{E}_s}{\partial t^2}\right| \ll 2\Omega\left|\frac{\partial \mathrm{E}_c}{\partial t}\right|;$$

$$\left|\frac{\partial^2 P_c}{\partial t^2}\right| \ll 2\Omega \left|\frac{\partial P_s}{\partial t}\right|;$$
$$\left|\frac{\partial P_s}{\partial t}\right| \ll \frac{\Omega}{2}|P_c|. \quad (18)$$

К этим неравенствам следует добавить такие же, но с заменой

$$P_c \leftrightarrow P_s, \; E_c \leftrightarrow E_s.$$

Далее мы рассмотрим распространение в среде, занимающей положительную область оси z, оптического импульса с огибающей гауссовской формы.

$$E^0(z, t) = \text{П} \exp\left[-\frac{4(t - z/c)^2}{\tau_и^2}\right].$$

Начальное и граничное условие задачи есть

$$E(z, -\infty) = 0;$$
$$E(0, t) = \text{П} \exp\left(-\frac{4t^2}{\tau_и^2}\right) \cos \Omega t.$$

Здесь $\tau_и$ — длительность импульса, определяемая по уровню e^{-1}.

Введем безразмерные переменные

$$\tau = \frac{t - z/c}{\tau_и}; \; x = z/c\tau_и$$

и безразмерные функции

$$N = n/n_0; \; R = \tilde{\rho}_{ba}/n_0; \; Z = E_0/\text{П}. \quad (19)$$

В этих переменных система уравнений (13)—(15) примет вид

$$\frac{\partial R}{\partial \tau} + (i\lambda_1 + \lambda_2) R = -i\frac{\lambda_3}{2} ZN;$$
$$\frac{\partial N}{\partial \tau} + \lambda_4 (N - 1) = i\lambda_3 (ZR^* - Z^*R);$$
$$\frac{\partial Z}{\partial x} = -i\lambda_5 \int_{-\infty}^{+\infty} \exp(-v_z^2/\bar{u}^2) R dv_z \quad (20)$$

с безразмерными параметрами

$$\lambda_1 = \Delta\tau_и, \; \lambda_2 = \tau_и/T_2, \; \lambda_3 = \Omega_R \tau_и;$$
$$\lambda_4 = \tau_и/T_1, \; \lambda_5 = \frac{4\pi k c \tau_и \mu_{ab} (N_b - N_a)}{\bar{u}\sqrt{\pi}\text{П}} \quad (21)$$

и начальными и граничными условиями

$$\tau = -\infty: \; N_0 = 1, \; R_0 = 0, \; Z_0 = 0, \; x = 0: \; Z_0 = \exp(-4\tau^2).$$

В (21) Ω_R есть частота Раби, определяемая как

$$\Omega_R = \frac{\mu_{ab} \text{П}}{\hbar}.$$

Из (20) следует, что при малых значениях λ_3 оптический импульс оказывает пренебрежимо малое воздействие на систему двухуровневых молекул. Сделаем поэтому допущение:

$$\lambda_3 \ll 1 \quad (22)$$

и представим искомое решение в виде

$$R = \sum_{m=0}^{\infty} \lambda_3^m R_m; \quad N = \sum_{n=0}^{\infty} \lambda_3^n N_n; \quad Z = \sum_{\kappa=0}^{\infty} \lambda_3^\kappa Z_\kappa. \tag{23}$$

Условие (22) с учетом (21) сводится к следующему ограничению на длительность импульса

$$\tau_и \ll \Omega_R^{-1} = \hbar/\mu_{ab}\Pi. \tag{24}$$

Подстановка (23) в систему уравнений (20) дает в первом порядке по λ_3 решения

$$R = \lambda_3 R_1,$$

$$N = 1,$$

$$Z = Z_0 + \lambda_3 Z_1;$$

$$R_1 = -\frac{i}{2}\exp\left[-(i\lambda_1+\lambda_2)\tau\right]\int_{-\infty}^{\tau}\exp\left[-4y^2+(i\lambda_1+\lambda_2)y\right]dy;$$

$$Z_1 = -\frac{\sqrt{\pi}}{2}\bar{u}\lambda_5 Z_0\int_0^{\infty}\exp\left[-\left(4+\frac{k^2u^2\tau_и^2}{4}\right)y^2-(\lambda_2-8\tau+i\Delta_1\tau_и)y\right]dyx;$$

$$\Delta_1 = \Omega - \omega_0. \tag{25}$$

Из (19), (26), переходя от безразмерной координаты x к координате z, получим в рассмотренном приближении для медленной амплитуды поля $E_0(z, t)$

$$E_0(z, \tau) = \Pi\exp(-4\tau^2)(1-Kz); \tag{26}$$

$$K = \frac{\sqrt{\pi}\bar{u}}{2c\tau_и}\lambda_3\lambda_5\int_0^{\infty}\exp\left[-\left(4+\frac{k^2\bar{u}^2\tau_и^2}{4}\right)y^2-(\lambda_2-8\tau+i\Delta_1\tau_и)y\right]dy = K_1 - iK_2.$$

Из (16), (26) следует, что

$$\mathrm{E}_c = -\Pi\exp(-4\tau^2)K_1 z; \quad \mathrm{E}_s = \Pi\exp(-4\tau^2)K_2 z; \tag{27}$$

$$K_1 = \frac{\sqrt{\pi}\bar{u}}{2c\tau_и}\lambda_3\lambda_5\int_0^{\infty}\exp\left[-\left(4+\frac{k^2\bar{u}^2\tau_и^2}{4}\right)y^2-(\lambda_2-8\tau)y\right]\cos\Delta_1\tau_и y\,dy;$$

$$K_2 = \frac{\sqrt{\pi}\bar{u}}{2c\tau_и}\lambda_3\lambda_5\int_0^{\infty}\exp\left[-\left(4+\frac{k^2\bar{u}^2\tau_и^2}{4}\right)y^2-(\lambda_2-8\tau)y\right]\sin\Delta_1\tau_и y\,dy.$$

Вычислим интенсивность оптического импульса, используя следующие соотношения:

$$J = \frac{c}{4\pi}\frac{1}{2T}\int_{-T}^{+T}|E|^2dt = \frac{c}{8\pi}\left[(\mathrm{E}^0+\mathrm{E}_c)^2+\mathrm{E}_s^2\right]. \tag{28}$$

Подставляя в (28) выражения (27) и ограничиваясь линейными по z членами, получим:

$$J = J_0(1-2K_1 z), \tag{29}$$

где $J_0 = \dfrac{c\Pi^2}{8\pi}\exp(-8\tau^2)$ – интенсивность падающего на среду гауссовского импульса.

Для рассматриваемого здесь случая слабого поглощения закон Бугера имеет вид

$$J = J_0\exp(-\chi z) \simeq J_0(1-\chi z). \tag{30}$$

Из сравнения (29) и (30) получаем для коэффициента поглощения

$$\chi = \frac{\sqrt{\pi}\,\bar{u}}{c\tau_и}\lambda_3\lambda_5\int\limits_0^\infty \exp\left[-\left(4+\frac{k^2\bar{u}^2\tau_и^2}{4}\right)y^2-(\lambda_2-8\tau)\,y\right]\cos\Delta_1\tau_и\,y\,dy. \tag{31}$$

Выполнив замену переменных $\left(4+\frac{k^2\bar{u}^2\tau_и^2}{4}\right)^{1.2} y=\xi$ подставив явные выражения для λ_3 и λ_5, из (21) найдем

$$\chi = \frac{8\pi^2\Omega\mu_{ab}^2(N_b-N_a)\,\tau_и}{hc\sqrt{4+\frac{k^2\bar{u}^2\tau_и^2}{4}}}\int\limits_0^\infty \exp\left(-\xi^2-\frac{\lambda_2-8\tau}{\sqrt{4+\frac{k^2\bar{u}^2\tau_и^2}{4}}}\,\xi\right)\cos\frac{\Delta_1\tau_и\,\xi}{\sqrt{4+\frac{k^2\bar{u}^2\tau_и^2}{4}}}\,d\xi. \tag{32}$$

Теперь следует учесть, что при выводе уравнений Блоха (1)—(3) в [2] было сделано допущение о том, что поле $E(z,\,t)$ линейно поляризовано вдоль оси x, т. е. $E(z,\,t)=E_x(z,\,t)$ и $\mu=\mu_x$. Для матричного элемента дипольного момента можем записать

$$\mu_{ab}=(\mu_x)_{ab}=\boldsymbol{e}\cdot\boldsymbol{\mu}_{ab}=|\mu_{ab}|\cos\theta,$$

где $\boldsymbol{e}$ — единичный вектор вдоль оси x, $\boldsymbol{\mu}$ — вектор дипольного момента. Поскольку молекулы в газе ориентированы случайным образом, то выходящую в (32) величину $(\mu_x)_{ab}^2$ следует усреднить по углу θ, что даст [1]:

$$(\mu_x)_{ab}^2=\frac{1}{3}\,|\boldsymbol{\mu}_{ab}|^2.$$

Структура коэффициента поглощения в форме (32) позволяет сделать вывод о нестационарности процесса поглощения для любых конечных длительностей импульса. Переход в (32) к пределу $\tau_и\to\infty$ дает

$$\chi_\infty=\frac{8\pi^2\Omega|\mu_{ab}|^2(N_b-N_a)}{3hc}\,\frac{2}{k\bar{u}}\int\limits_0^\infty \exp\left(-\xi^2-\frac{2T_2^{-1}}{k\bar{u}}\,\xi\right)\cos\frac{2(\Omega-\omega_0)}{k\bar{u}}\,\xi d\xi. \tag{33}$$

Это выражение отвечает профилю Фойгта [3]. В предельном случае $T_2^{-1}/k\bar{u}\gg 1$ из (33) следует дисперсионный контур

$$\chi_L=\frac{S}{\pi}\,\frac{\gamma_L}{(\Omega-\omega_0)^2+\gamma_L^2} \tag{34}$$

с интенсивностью линии

$$S=\frac{8\pi^3}{3hc}\,\omega_0|\boldsymbol{\mu}_{ab}|^2(N_b-N_a) \tag{35}$$

и полушириной

$$\gamma_L=\frac{1}{2\,\pi\,T_2}\,. \tag{36}$$

При этом в (35) сделана замена позволяющая относить S к фундаментальной характеристике каждого перехода и реально не искажающая частотной зависимости из-за весьма малых ширин спектральных линий.

В другом предельном случае $T_2^{-1}/ku\ll 1$ из (33) следует доплеровский контур спектральной линии:

$$\chi_Д=\frac{2S}{\sqrt{\pi}\gamma_Д}\exp\left[-\frac{(\Omega-\omega_0)^2}{\gamma_Д^2}\right], \tag{37}$$

где S определяется формулой (35),

$$\gamma_Д = k\bar{u} = \frac{\Omega}{c}\,\bar{u} \simeq \frac{\omega_0}{c}\,\bar{u}, \quad \bar{u} = 2\left(\frac{2\ln 2 k_Б T}{M}\right)^{1/2},$$

$k_Б$ — постоянная Больцмана, M — масса молекулы, так что

$$\gamma_Д = \omega_0 \left(\frac{2\ln 2 k_Б T}{M}\right)^{1/2}. \tag{38}$$

Условие $\tau_и \to \infty$ является слишком неопределенным для оценок. Из (32) следует, что процесс поглощения может считаться стационарным в случаях:

$$\text{а)}\ \ k\bar{u}\tau_и \ll 1;\ \tau_и/T_2 \gg 1.$$

Этот случай отвечает пренебрежимо малой доплеровской ширине $\gamma_Д = k\bar{u}$ и должно выполняться условие $\tau_и \gg T_2$.

$$\text{б)}\ \ k\bar{u}\tau_и \gg 1.$$

В этом случае $\tau_и \gg \dfrac{1}{k\bar{u}}$, а форма контура определяется отношением $T_2^{-1} / k\bar{u}$.

В случае нестационарного поглощения имеем: $\tau_и \ll \dfrac{1}{k\bar{u}},\ \tau_и \ll \dfrac{1}{T_2}$.

В последнем случае предельно малых длительностей импульсов следует проверить справедливость условий (18) подстановкой в них, например, выражений (27).

В заключение приведем некоторые оценки для конкретной лидарной системы [4]. Излучение рубинового лазера с длиной волны 634, 383 нм совпадает с центром линии поглощения водяного пара, для которой $\mu_{ab} = 3{,}8 \cdot 10^{22}$ CGSE. Импульс с энергией 1 Дж длительностью $2 \cdot 10^{-8}$ с, сколлимированный телескопом до расходимости $2 \cdot 10^{-4}$ рад обеспечивает в объеме, удаленном на 1 км от лидара, величину $\Omega_R \sim 6 \cdot 10^6\ с^{-1}$. Следовательно, $\lambda_3 = 0{,}12$ и можно считать процесс поглощения линейным. Для условий тропосферы доплеровская ширина линии 694,383 нм H_2O $k\bar{u} \sim 1{,}2 \cdot 10^9\ с^{-1}$ и $k\bar{u}\tau_и = 24 \gg 1$. Поперечное время релаксации T_2 можно определить из ширины (~ 0.1 см$^{-1}$) линии и составляет $T_2 \simeq 5 \cdot 10^{-11}$ с. Тогда $T_2^{-1} / k\bar{u} = 17 \gg 1$ и реализуется условие стационарности процесса поглощения, отвечающее пункту «б», сформулированному выше.

1. Лоудон Р. Квантовая теория света. М.: Мир, 1976. 488 с.
2. Лазерная и когерентная спектроскопия. /Дж. Стейнфелд, П. Хаустон, Т. Шмольц и др. М.: Мир, 1982. 629 с.
3. Пеннер С. Количественная молекулярная спектроскопия и излучательная способность газов. М.: ИЛ, 1963. 493 с.
4. Лазерное зондирование тропосферы и подстилающей поверхности /Самохвалов И.В, Копытин Ю.Д., Ипполитов И.И. и др. Новосибирск: Наука, 1987. 262 с.

Сибирский физико-технический институт им. В.Д. Кузнецова
при Томском госуниверситете

Поступила в редакцию
18 июня 1992 г.

I.I. Ippolitov. **Condition of Stalionarity of the Absorption Coefficient at an Optical Pulse Propagation through a Double-Level Medium**.

Propagation of a Gaussian pulse through a double-level medium is considered. Based on the system of Bloch-Maxwell equations the approaches that result in a well known in optics Bouguer Law with the absorption coefficient independent of time arc successively analyzed.