«Оптика атмосферы и океана», **24**, № 3 (2011)

УДК 551.521; 621.378

Рэлеевское рассеяние фемтосекундного лазерного импульса

Ю.Н. Пономарев, С.Р. Уогинтас*

Институт оптики атмосферы им. В.Е. Зуева СО РАН
634021, г. Томск, пл. Академика Зуева, 1

Поступила в редакцию 2.11.2010 г.

В результате анализа системы уравнений для матрицы плотности получено выражение для суммарных потерь энергии нерезонансного фемтосекундного импульса вследствие спонтанного рэлеевского рассеяния на неполярных молекулах. Показано, что при типичных значениях параметров фемтосекундного импульса, генерируемого Ti:Sa-лазером, интенсивность рэлеевского рассеяния в сотни раз меньше интенсивности вынужденного комбинационного рассеяния.

Ключевые слова: рэлеевское рассеяние, лазер, фемтосекундный импульс, атмосфера; Rayleigh scattering, laser, femtosecond pulse, atmosphere.

Введение

Распространение мощного фемтосекундного лазерного импульса в атмосфере сопровождается ослаблением его интенсивности за счет различных каналов убыли энергии поля, таких как, например, ионизация и диссоциация молекул [1], одно- и многофотонное поглощение [2, 3], процессы спонтанного и вынужденного рассеяния света (рэлеевского и комбинационного) [4, 5]. Специфика большинства процессов зависит от длительности импульса, которая связана с его спектральной шириной, а большие значения интенсивности излучения приводят к нелинейности взаимодействия со средой.

При интенсивностях излучения, ниже критической, когда можно пренебречь самофокусировкой и процессами ионизации, а также в отсутствие прямого поглощения основным каналом ослабления будут являться процессы рассеяния. В [4, 5] рассмотрено нерезонансное взаимодействие неполярных молекул с импульсом фемтосекундной длительности в рамках нестационарной теории возмущений с использованием формализма матрицы плотности, и показано, что потери энергии импульса за счет вынужденного комбинационного рассеяния имеют нелинейный характер и пропорциональны четвертой степени амплитуды поля.

В настоящей статье в рамках той же модели рассматривается задача о рэлеевском рассеянии фемтосекундного лазерного импульса неполярными молекулами.

Теория

Нерезонансное взаимодействие центрально симметричных молекул с фемтосекундным лазерным импульсом может быть описано при помощи укороченной системы уравнений для матрицы плотности ρ [4]:

$$i\hbar\dot{\tilde{\rho}}_{gg} = \tilde{V}_{ge}\tilde{\rho}_{eg} - \tilde{\rho}_{ge}\tilde{V}_{eg}, \quad (1а)$$

$$i\hbar\dot{\tilde{\rho}}_{eg} = \tilde{V}_{ee}\tilde{\rho}_{eg} + \tilde{V}_{eg}\tilde{\rho}_{gg}. \quad (1б)$$

В (1) V есть оператор взаимодействия

$$V = -\mathbf{dE}(\mathbf{r},t) \quad (2)$$

с импульсом, задаваемым вектором напряженности электромагнитного поля:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \frac{1}{2}E_0(\mathbf{r},t)[\mathbf{e}\exp(-i\Omega t) + \mathbf{e}^*\exp(i\Omega t)], \quad (3)$$

где вещественная амплитуда $E_0(\mathbf{r},t)$ определяет временную форму импульса и распределение напряженности поля в плоскости, перпендикулярной направлению распространения; $\mathbf{e}$ — комплексный единичный вектор поляризации:

$$\mathbf{e}^*\cdot\mathbf{e} = 1; \quad (4)$$

$\mathbf{d}$ — оператор дипольного момента молекулы; Ω — несущая частота импульса. Для произвольного оператора A запись A_{ij} означает

$$A_{ij} = P_i A P_j, \ \ i,j = e,g, \quad (5)$$

где P_g и P_e есть операторы проектирования на основное и возбужденные электронные состояния:

$$P_g = \sum_{\mu}|\mu\rangle\langle\mu|, \ \ P_e = \sum_{n}|n\rangle\langle n|, \ \ P_g + P_e = 1. \quad (6)$$

Здесь и далее в записи для матричных элементов латинские индексы обозначают возбужденные элек-

* Юрий Николаевич Пономарев (yupon@iao.ru); Сергей Ромуальдович Уогинтас (uogintas@mail.ru).

тронные состояния, а греческие — подуровни основного электронного состояния.

Знак тильды над операторами означает их запись в представлении взаимодействия относительно невозмущенного гамильтониана H_0

$$\tilde{A}(t) = \exp(\frac{i}{\hbar}H_0 t)A(t)\exp(-\frac{i}{\hbar}H_0 t). \tag{7}$$

При получении укороченной системы уравнений (1) мы пренебрегли заселенностью возбужденных электронных состояний и когерентностью между ними, а также всеми релаксационными процессами, поскольку при нормальных условиях их характерные времена значительно больше длительности фемтосекундного импульса.

Когерентности ρ_{eg} между основным и возбужденными электронными состояниями являются «быстрыми» переменными системы и могут быть выражены в виде функционала от матрицы плотности основного состояния ρ_{gg}. Решение уравнения (1б) запишем в виде

$$\tilde{\rho}_{eg}(t) = -\frac{i}{\hbar}\int_{-\infty}^{t} K_{ee}(t,t')\tilde{V}_{eg}(t')\tilde{\rho}_{gg}(t')dt', \tag{8}$$

где

$$K_{ee}(t,t') = \exp\left[-\frac{i}{\hbar}\int_{-\infty}^{t}\tilde{V}_{ee}(t_1)dt_1\right]\exp\left[\frac{i}{\hbar}\int_{-\infty}^{t'}\tilde{V}_{ee}(t_2)dt_2\right]. \tag{9}$$

Для молекул с центром симметрии когерентности ρ_{eg} определяют индуцированный дипольный момент и связанную с ним диэлектрическую проницаемость среды.

В наинизшем порядке теории возмущений ($K_{ee}(t,\ t') \approx 1$) найдем

$$\rho^{(1)}_{n\mu}(t) = \frac{E_0(\mathbf{r},t)}{2\hbar}\left[\frac{(\mathbf{d}_{n\mu}\cdot\mathbf{e})e^{-i\Omega t}}{\omega_{n\mu}-\Omega} + \frac{(\mathbf{d}_{n\mu}\cdot\mathbf{e}^*)e^{i\Omega t}}{\omega_{n\mu}+\Omega}\right]\rho^0_{\mu\mu}. \tag{10}$$

Здесь $\rho^0_{\mu\mu}$ — начальная матрица плотности, которая в нашем случае описывает состояние термодинамического равновесия.

При получении (10) мы использовали приближение медленно меняющейся амплитуды в смысле выполнения условия

$$|\omega_{nn'} \pm \Omega|\tau \gg 1, \tag{11}$$

где τ — характерная длительность импульса.

Из (10) найдем средний дипольный момент молекулы, индуцированный фемтосекундным импульсом:

$$p_i(t) = Spd_i\rho^{(1)}_{n\mu}(t) = \frac{E_0(\mathbf{r},t)}{2}\times$$
$$\times\sum_j\left[\langle\alpha_{ij}\rangle^0 e_j\exp(-i\Omega t) + \langle\alpha_{ji}\rangle^0 e^*_j\exp(i\Omega t)\right]. \tag{12}$$

Здесь индексы i и j обозначают проекции на декартовы оси лабораторной системы координат; $\langle\alpha_{ij}\rangle^0$ есть термодинамическое среднее тензора динамической поляризуемости основного электронного состояния

$$\langle\alpha_{ij}\rangle^0 = \sum_\mu(\alpha_{ij})_{\mu\mu}\rho^0_{\mu\mu}, \tag{13}$$

$$(\alpha_{ij})_{\mu\mu'} = \frac{1}{\hbar}\sum_n\left[\frac{(d_i)_{\mu n}(d_j)_{n\mu'}}{\omega_{n0}-\Omega} + \frac{(d_j)_{\mu n}(d_i)_{n\mu'}}{\omega_{n0}+\Omega}\right]. \tag{14}$$

При нормальной температуре $T \approx 300$ К вкладом возбужденных колебательных состояний в средний дипольный момент можно пренебречь и рассмотреть только вращательные состояния основного колебательного уровня. С учетом данного замечания явные вычисления матричных элементов дают

$$\mathbf{p}(t) = \frac{E_0(\mathbf{r},t)\bar{\alpha}}{2}[\mathbf{e}\exp(-i\Omega t) + \mathbf{e}^*\exp(i\Omega t)] = \bar{\alpha}\mathbf{E}(\mathbf{r},t), \tag{15}$$

где $\bar{\alpha}$ есть средняя поляризуемость, выраженная через компоненты в молекулярной системе координат:

$$\bar{\alpha} = \frac{1}{3}(\alpha_{xx} + \alpha_{yy} + \alpha_{zz}). \tag{16}$$

Выражение (16) является инвариантом вращения и не зависит от квантовых чисел основного электронного состояния.

Ускоренное движение классического диполя $\mathbf{p}(t)$ приводит к модулированному по амплитуде рэлеевскому рассеянию падающего излучения на несущей частоте импульса. Мощность рассеянного излучения I определяется формулой [6]:

$$I(t) = \frac{2}{3c^3}\left|\ddot{\mathbf{d}}(t)\right|^2. \tag{17}$$

В рассматриваемом нами случае медленного изменения амплитуды поля

$$\left|\frac{1}{\Omega E_0}\frac{\partial E_0(\mathbf{r},t)}{\partial t}\right| \sim \frac{1}{\Omega\tau} \ll 1 \tag{18}$$

усредненная за период колебаний мощность рассеянного излучения будет равна

$$\bar{I}(\mathbf{r},t) = \frac{1}{3c^3}\Omega^4\left(\bar{\alpha}E_0(\mathbf{r},t)\right)^2. \tag{19}$$

Интегрируя (19) по времени и поперечному сечению лазерного луча, найдем для гауссова импульса радиуса r_0

$$E_0(\mathbf{r},t) = E_0 e^{-(t/\tau)^2}e^{-(\mathbf{r}_\perp/r_0)^2} \tag{20}$$

потери энергии на единицу длины за время взаимодействия в результате рэлеевского рассеяния

$$Q_{Рэлей} = \frac{\sqrt{2\pi}\,\pi}{12c^3}\tau N(\bar{\alpha}E_0 r_0)^2\Omega^4, \tag{21}$$

где N — концентрация молекул.

Используя выражение для полной энергии импульса [4]:

$$E_f = \frac{\sqrt{2\pi}}{32} c\tau (E_0 r_0)^2, \qquad (22)$$

получим известную формулу Рэлея для коэффициента экстинкции [7]:

$$h[\text{см}^{-1}] = \frac{Q_{\text{Рэлей}}}{E_f} = \frac{8\pi}{3}\left(\frac{\Omega}{c}\right)^4 \bar{\alpha}^2 N. \qquad (23)$$

Сравнивая с потерями энергии за счет вынужденного комбинационного рассеяния [4]:

$$k[\text{см}^{-1}] = \frac{16\pi}{15\hbar}\left(\frac{\Delta\alpha}{cr_0}\right)^2 B_e S E_f N, \qquad (24)$$

имеем

$$\eta = \frac{h}{k} = \frac{80}{\sqrt{2\pi}} \frac{\hbar\Omega^4}{c^3 \tau B_e S E_0^2}\left(\frac{\bar{\alpha}}{\Delta\alpha}\right)^2. \qquad (25)$$

Здесь $\Delta\alpha = \alpha_{zz} - \alpha_{xx}$ — анизотропия электронной поляризуемости; B_e [с^{-1}] — вращательная постоянная молекулы; S — сумма по вращательным уровням j:

$$S = \frac{1}{Z}\sum_{j=0}^{\infty} g_j (j+1)(j+2)\exp(-(B_e(2j+3)\tau)^2) \times$$

$$\times \left[\exp\left(-\beta\hbar B_e j(j+1)\right) - \exp\left(-\beta\hbar B_e (j+2)(j+3)\right)\right], \qquad (26)$$

где g_j — вырождение вращательных уровней, связанное со спином ядер; $\beta = 1/k_B T$ — обратная температура; Z — вращательная статистическая сумма.

Для часто используемого в экспериментах фемтосекундного Ti:Sa-лазера с параметрами $\Omega = 2{,}35 \cdot 10^{15}\ \text{с}^{-1}$ (800 нм), $\tau = 100$ фс, $E_0 = 10^4$ ед. СГСЭ, для молекулярного азота при $T = 300$ К потери энергии за счет вынужденного комбинационного рассеяния на два порядка превышают потери за счет рэлеевского рассеяния

$$\eta \approx 10^{-2}. \qquad (27)$$

Заключение

На основе системы уравнений для матрицы плотности [4, 5] получено выражение для суммарных потерь энергии фемтосекундного импульса, взаимодействующего с неполярными молекулами. Данное выражение в приближении медленно меняющейся огибающей (18) совпадает с формулой Рэлея (23). Численные оценки показывают, что при исследовании распространения нерезонансного фемтосекундного излучения ближнего ИК-диапазона длительностью 100–10 фс в воздухе спонтанным рэлеевским рассеянием можно пренебречь в отличие от вынужденного комбинационного рассеяния.

Работа выполнена при поддержке программы Президиума РАН № 12 (проект 1) и СО РАН (проект № 81).

1. *McKenna J., Suresh M., Srigengan B., Williams I.D., Bryan W.A., English E.M.L., Stebbings S.L., Newell W.R., Turcu I.C.E., Smith J.M., Divall E.J., Hooker C.J., Langley A.J., Collier J.L.* Ultrafast ionization study of N_2 in intense linear and circular polarized laser fields // Phys. Rev. A. 2006. V. 73, N 4. P. 043401-1–043401-9.
2. *Yamaoko Y., Zeng L., Minoshima K., Matsumoto H.* Measurements and Numerical Analysis for Femtosecond Pulse Deformations After Propagation of Hundreds of Meters in Air with Water-Vapor Absorption Lines // Appl. Opt. 2004. V. 43, N 29. P. 5523–5530.
3. *Киселев А.М., Пономарев Ю.Н., Степанов А.Н., Тихомиров А.Б., Тихомиров Б.А.* Поглощение фемтосекундного излучения Ti:Sa-лазера атмосферным воздухом и водяным паром // Оптика атмосф. и океана. 2006. Т. 19, № 8. С. 678–683.
4. *Ponomarev Yu.N., Uogintas S.R.* Nonresonant interaction of femtosecond laser pulse with centrosymmetric molecules // Opt. Commun. 2010. V. 283, N 4. P. 591–594.
5. *Уогинтас С.Р.* Нерезонансное взаимодействие молекул с фемтосекундным лазерным импульсом // Оптика атмосф. и океана. 2008. Т. 21, № 9. С. 803–808.
6. *Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М.* Теория поля. М.: Наука, 1967. 460 с.
7. *Собельман И.И.* К теории рассеяния света в газах // Успехи физ. наук. 2002. Т. 172, № 1. С. 85–90.

Ponomarev Yu.N., Uogintas S.R. **Rayleigh scattering of femtosecond laser pulse.**

Based on the system of equations for the density matrix derived earlier, we obtain an expression for integral energy loss due to spontaneous Rayleigh scattering of nonresonant femtosecond pulse on non-polar molecules. It is shown that at typical femtosecond pulse parameters generated by Ti:Sa laser, the intensity of Rayleigh scattering is hundreds of times less than that of stimulated Raman scattering.