

ОПТИЧЕСКОЕ ВЫПРЯМЛЕНИЕ И УДВОЕНИЕ ЧАСТОТЫ В ПАРАХ МЕТАЛЛОВ

*В. П. Кочанов**

*Институт оптики атмосферы Сибирского отделения Российской академии наук
634 055, Томск, Россия*

Поступила в редакцию 18 марта 2008 г.

Теоретически показано, что в условиях двухфотонного поглощения излучения парами металлов возникает значительная по величине постоянная поляризация среды и происходит эффективное удвоение частоты. Выявлены два физических механизма данных эффектов, обусловленных кольцевым смещением частот и образованием квадратичной по амплитуде поля нелинейности поляризации вследствие электрического квадрупольного поглощения на запрещенном переходе. Предсказанные эффекты могут являться основой новых оптических методов измерения электрического квадрупольного и магнитного дипольного моментов на запрещенных переходах атомов.

PACS: 42.65.Dr, 42.65.Ky, 42.50.Dv, 42.50.Gy

1. ВВЕДЕНИЕ

Современная нелинейная оптика началась с обнаружения в 1962 г. удвоения частоты и оптического выпрямления лазерного излучения в кристаллах [1–3]. Физическая природа этих фундаментальных эффектов одинакова и заключается в преобразовании частоты на квадратичной нелинейности поляризации твердых тел:

$$P = \chi^{(1)}\mathcal{E} + \chi^{(2)}\mathcal{E}^2 + \dots, \quad (1)$$

где $\chi^{(1)}$ и $\chi^{(2)}$ — линейная и квадратичная диэлектрические восприимчивости, \mathcal{E} — амплитуда электрического поля световой волны. Подставляя в (1) монохроматическое поле в виде $\mathcal{E} = E \cos \omega t$, получим

$$P = \chi^{(1)}E \cos \omega t + \frac{1}{2}\chi^{(2)}E^2(1 + \cos 2\omega t) + \dots \quad (2)$$

Постоянная составляющая и часть P (2), пропорциональная $\cos 2\omega t$, дают соответственно оптическое выпрямление и удвоение частоты.

При электродипольном взаимодействии излучения с газовыми средами квадратичная нелинейность поляризации отсутствует вследствие ее симметрии по отношению к отражению осей координат [3–5]

и первый нелинейный член поляризации — кубический:

$$P = \chi^{(1)}\mathcal{E} + \chi^{(3)}\mathcal{E}^3 + \dots \quad (3)$$

Нелинейная часть поляризации P (3) в случае монохроматического излучения пропорциональна

$$\mathcal{E}^3 = E^3 \cos^3 \omega t = \frac{1}{3}E^3(4 \cos \omega t + \cos 3\omega t)$$

и осциллирует с исходной и утроенной частотой, на основании чего можно сделать вывод, что в газовых средах удвоение частоты и оптическое выпрямление невозможны.

Однако такой вывод неверен для полихроматического излучения. В этом случае ключом к получению оптического выпрямления и удвоения частоты является кольцевое смещение частот. Его условием при использовании трех частот является соотношение

$$\omega_3 = \omega_1 \pm \omega_2. \quad (4)$$

В частности, кольцевое смещение с суммой частот ω_1 и ω_2 реализуется при двухфотонном поглощении (ДФП), а с разностью — в случае двухволнового вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР), замкнутого излучением с частотой ω_3 [6]. Нетрудно убедиться, что подстановка в (3) поля в виде

$$\mathcal{E} = E_1 \cos \omega_1 t + E_2 \cos \omega_2 t + E_3 \cos(\omega_1 \pm \omega_2)t$$

*E-mail: koch@iao.ru

в числе различных комбинаций частот $m\omega_1 \pm n\omega_2$, $m, n = 0, 1, 2, 3$, дает как постоянную составляющую P (оптическое выпрямление), так и удвоенные частоты $2\omega_1, 2\omega_2$.

Представленная иллюстрация механизма рассматриваемых эффектов в значительной степени условна, поскольку она основана на модели классического ангармонического осциллятора, и корректное описание требует квантовомеханического расчета P . Тем не менее она отражает основную черту нелинейного преобразования частот, связанную со сложением и компенсацией вынужденных колебаний электронного облака в атоме. Квантовомеханическое рассмотрение будем проводить применительно к парам металлов, преимущественно щелочных и щелочноземельных, так как хорошей моделью для них является трехуровневая Ξ -система (каскадная или лестничная) с основным s - и промежуточным p -состояниями. Для такой системы в условиях резонанса частоты ω_3 с частотой запрещенного перехода наиболее эффективным процессом является ДФП. Простая постановка экспериментов осуществляется в случае одночастотного ДФП, для которого в формуле (4) полагаем $\omega_1 = \omega_2 \equiv \omega$, $\omega_3 = 2\omega$ ($2\omega = \omega + \omega$). Далее будем рассматривать именно этот случай.

Цель данной работы заключается в теоретическом обосновании существования и исследовании оптического выпрямления и эффективного удвоения частоты в парах металлов в условиях ДФП. В разд. 3 рассмотрена ситуация, в которой происходит оптическое выпрямление при кольцевом смещении частот. А именно, решается задача о двухфотонном поглощении излучения с частотой ω в оптически тонкой среде в присутствии коллинеарной волны с частотой 2ω . Вследствие электрического квадрупольного и магнитного дипольного поглощений атомами излучения с двойной частотой наведенная полем поляризация на запрещенном переходе осциллирует с частотой 2ω . Такие же осцилляции возникают в результате ДФП. В связи с этим возникает вопрос о возможности усиления данной затравки в оптически плотной среде. Если излучение с двойной частотой порождается и достаточно быстро усиливается, то кольцевое смещение частот, а следовательно, оптическое выпрямление и удвоение частоты будут происходить и в отсутствие волны с частотой 2ω на входе в среду. Самосогласованные задачи о генерации второй и высших гармоник при возбуждении паров металлов монохроматическим и дихроматическим излучением решаются в разд. 4.

Значительный интерес с точки зрения механиз-

ма формирования оптического выпрямления и удвоения частоты представляет поглощение одночастотного излучения, резонансного запрещенному переходу Ξ -системы. Это связано с тем, что правила отбора по четности для электрического квадрупольного и магнитного дипольного поглощений противоположны таковым для электрического дипольного поглощения [7]. Поэтому в соответствии со схемой вывода соотношения (3) [3–5], проводимого для электрического дипольного взаимодействия излучения со средой, учет поглощения на дипольно запрещенных переходах должен привести к образованию четных степеней в разложении поляризации среды по амплитудам световых полей. Тем самым открывается возможность оптического выпрямления и удвоения частоты в газовых средах, альтернативная кольцевому смешению частот. Существование данного механизма доказывается в разд. 3 путем прямого расчета нелинейной поляризации трехуровневой квантовой системы.

2. ИСХОДНЫЕ УРАВНЕНИЯ

Обозначим основное, первое возбужденное (промежуточное) и верхнее состояния рассматриваемой Ξ -системы соответственно как 0, 1 и 2. Гамильтониан взаимодействия излучения с атомом, выраженный через наблюдаемые напряженность электрического и индукцию магнитного полей световой волны, есть [3, 8, 9]

$$\hat{U} = -\hat{\mathbf{d}} \cdot \boldsymbol{\mathcal{E}} - \hat{\mathbf{m}} \cdot \mathbf{B} + \frac{1}{6}(\nabla \hat{\mathbf{Q}}) \cdot \boldsymbol{\mathcal{E}}, \quad (5)$$

где $\boldsymbol{\mathcal{E}}$ — напряженность электрического поля, \mathbf{B} — магнитная индукция, $\hat{\mathbf{d}}$ — оператор дипольного момента, $\hat{\mathbf{m}}$ — оператор магнитного дипольного момента, включающий спин электронов, $\hat{\mathbf{Q}}$ — оператор электрического квадрупольного момента, ∇ — градиент.

Рассмотрим линейно поляризованное излучение. Поскольку резонансное взаимодействие поля с запрещенным переходом $0 \leftrightarrow 2$ слабое, а для разрешенных переходов $0 \leftrightarrow 1$ и $1 \leftrightarrow 2$ взаимодействие нерезонансное, дисперсией среды можно пренебречь и поле излучения представим как

$$\boldsymbol{\mathcal{E}} = (0, 0, \mathcal{E}), \quad \mathbf{B} = (B, 0, 0),$$

$$\begin{aligned} \mathcal{E} &= \sum_{l=1}^L E_l(y) \cos(l\Psi + \varphi_l), \\ B &= \sum_{l=1}^L [B_{cl}(y) \cos(l\Psi + \varphi_l) + B_{sl}(y) \sin(l\Psi + \varphi_l)], \\ \Psi &\equiv \omega t - ky, \quad k \approx \omega/c, \end{aligned} \quad (6)$$

где k — волновое число, c — скорость света, y — продольная координата.

Из второго уравнения Максвелла

$$\text{rot } \mathcal{E} + \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} = 0$$

и уравнения (6) в приближении вращающейся волны (ПВВ) для импульсов излучения, длина которых много больше длины волны, имеем

$$B_{cl} = \frac{kc}{\omega} E_l \approx E_l, \quad B_{sl} = -\frac{c}{\omega} \frac{dE_l}{dy} \approx 0. \quad (7)$$

Используя выражение (7) и дифференцируя только фазы волн, гамильтониан (5) представим как

$$\begin{aligned} \hat{U} &= -(\hat{d} + \hat{m}) \mathcal{E} + \hat{q} \tilde{\mathcal{E}}, \\ \hat{q} &\equiv \frac{1}{6} k \hat{Q}, \quad \tilde{\mathcal{E}} = \sum_{l=1}^L l E_l \sin(l\Psi + \varphi_l). \end{aligned} \quad (8)$$

Искомые поляризация P и намагниченность M среды, постоянные составляющие которых задают оптическое выпрямление, а осциллирующие — генерацию гармоник, определяются как квантовые средние значения операторов эффективного электрического дипольного момента \hat{D} [8, 9] и магнитного дипольного момента \hat{m} в единице объема среды. С учетом правил отбора и резонанса ДФП на дипольно запрещенном переходе $0 \leftrightarrow 2$ эти величины следующим образом выражаются через элементы матрицы плотности среды $\hat{\rho}$:

$$\begin{aligned} P &= N \text{Sp}(\hat{D} \hat{\rho}) = \\ &= N \sum_{l=0}^2 \langle q_l \rangle \rho_l + 2N \text{Re}(d_1 \rho_{10} + d_2 \rho_{21} + 2iq \rho_{20}), \\ M &= N \text{Sp}(\hat{m} \hat{\rho}) = N \sum_{l=0}^2 \langle m_l \rangle \rho_l + 2Nm \text{Re} \rho_{20}, \\ \hat{D} &= \hat{d} - 2i\hat{q}, \quad D_{02} = -D_{20} = 2iq, \\ q &\equiv q_{02} = q_{20}, \quad m \equiv m_{02} = m_{20}, \\ d_1 &\equiv d_{01} = d_{10}, \quad d_2 \equiv d_{12} = d_{21}, \end{aligned} \quad (9)$$

$$q_l \equiv q_{ll}, \quad m_l \equiv m_{ll}, \quad \rho_l \equiv \rho_{ll}, \quad l = 0, 1, 2.$$

Здесь N — плотность активных атомов, угловые скобки означают усреднение магнитных дипольных и электрических квадрупольных моментов в состояниях 0, 1 и 2 по направлениям. В отсутствие внешних постоянных электрического и магнитного полей эти средние равны нулю.

Конкретизируем уравнения для матрицы плотности в модели релаксационных констант:

$$\left\{ \begin{aligned} (A_1 + \gamma) \rho_0 + A_1 \rho_2 &= (A_1 + \gamma) \rho_0^0 + A_1 \rho_2^0 + \\ &+ \frac{2}{\hbar} d_1 \mathcal{E} \text{Re} i \rho_{10} + \frac{2}{\hbar} W \text{Re} i \rho_{20}, \\ (A_2 + \gamma) \rho_2 &= (A_2 + \gamma) \rho_2^0 - \frac{2}{\hbar} d_2 \mathcal{E} \text{Re} i \rho_{21} - \\ &- \frac{2}{\hbar} W \text{Re} i \rho_{20}, \\ -i\dot{\rho}_{10} + \omega_{10} \rho_{10} &= \frac{\mathcal{E}}{\hbar} (d_1 n_{01} + d_2 \rho_{20}), \\ -i\dot{\rho}_{21} + \omega_{21} \rho_{21} &= \frac{\mathcal{E}}{\hbar} (d_2 n_{12} - d_1 \rho_{20}), \\ \dot{\rho}_{20} + (\Gamma + i\omega_{20}) \rho_{20} &= \\ &= \frac{i}{\hbar} [\mathcal{E} (d_2 \rho_{10} - d_1 \rho_{21}) + W n_{02}], \\ n_{jl} &\equiv \rho_j - \rho_l, \quad j, l = 0, 1, 2, \\ \rho_0 + \rho_1 + \rho_2 &= 1, \quad \Gamma = \frac{A_2}{2} + \Gamma_c, \end{aligned} \right. \quad (10)$$

$$\begin{aligned} W &\equiv m \mathcal{E} - q \tilde{\mathcal{E}} = \sum_{l=1}^L \mu_l E_l \cos(l\Psi + \varphi_l + \chi_l), \\ \mu_l &\equiv \sqrt{m^2 + l^2 q^2}, \quad \chi_l \equiv \arctg \frac{lq}{m}. \end{aligned}$$

Здесь A_1 и A_2 — первые коэффициенты Эйнштейна для дипольно разрешенных переходов соответственно $0 \leftrightarrow 1$ и $1 \leftrightarrow 2$, γ и Γ_c — константы продольной и поперечной столкновительной релаксации, ω_{jl} — частоты переходов $j-l$, $\rho_{0,2}^0$ — равновесные заселенности уровней, \hbar — постоянная Планка.

В уравнениях (10) приняты следующие приближения. 1) Заселенности уровней полагаются постоянными. С помощью их разложения в ряды Фурье и последующего преобразования уравнений можно показать, что погрешность данного приближения порядка $\mu d^2 E^3 / 8 \hbar^3 \Gamma \Delta \omega$, где $\Delta = \omega_{10} - \omega \gg \Gamma$ — отстройка частоты от нерезонансного дипольно разрешенного перехода. Оценки для чистых паров калия показывают, что равенство данного параметра единице достигается при интенсивностях излучения порядка 2 ГВт/см². 2) Принято, что в основном

осцилляции недиагональных матричных элементов ρ_{10}, ρ_{21} (поляризаций разрешенных переходов) определяются нерезонансным электродипольным взаимодействием. Относительный вклад магнитодипольного и электрического квадрупольного взаимодействий порядка $(\mu/d)(\Gamma/\Delta)^{1/2}$. Данный параметр не зависит от интенсивности излучения и для паров К составляет примерно 10^{-6} . 3) Состояния системы считаются не вырожденными по проекциям полных угловых моментов. Оценки величины намагниченности, возникающей вследствие расщепления магнитных подуровней за счет постоянного магнитного поля и динамического эффекта Штарка, будут проведены отдельно.

Таким образом, уравнения (10) применимы при интенсивностях излучения, не превышающих 0.1 ГВт/см^2 . Это позволяет рассматривать нелинейные эффекты при довольно высоких степенях насыщения поглощения, так как интенсивности насыщения ДФП $I_{sat} = c\Gamma\Delta(\hbar/d)^2/(2\pi)$ [6] по оценкам для паров щелочных металлов в отсутствие столкновений порядка 10 кВт/см^2 , а интенсивности насыщения магнитодипольного поглощения в тех же условиях примерно $1\text{--}10 \text{ Вт/см}^2$ [9].

Для решения задачи о генерации гармоник в оптически плотной среде системы уравнений (9), (10) должны быть дополнены волновыми уравнениями для медленно меняющихся амплитуд. Подстановка выражений (6), (7) в первое уравнение Максвелла

$$\text{rot } \mathbf{B} - \frac{1}{c} \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial t} = \frac{4\pi}{c} \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} + 4\pi \text{rot } \mathbf{M},$$

определение

$$\mathbf{P} = (0, 0, P), \quad \mathbf{M} = (M, 0, 0),$$

$$P = \sum_{l=1}^L [P_{cl}(y) \cos(l\Psi + \varphi_l) + P_{sl}(y) \sin(l\Psi + \varphi_l)],$$

$$M = \sum_{l=1}^L [M_{cl}(y) \cos(l\Psi + \varphi_l) + M_{sl}(y) \sin(l\Psi + \varphi_l)]$$

и применение ПВВ дают

$$\frac{dE_l}{dy} = -\frac{2\pi l\omega}{c} P_{sl}, \quad (11)$$

$$P_{sl} \equiv P_{sl} + M_{sl}, \quad l = 1, 2, 3, \dots$$

В отсутствие внешних постоянных полей величины на $P = P + M$ определяется из (9) как

$$P = 2N \text{Re}(d_1\rho_{10} + d_2\rho_{21} + \mu e^{-i\chi}\rho_{20}), \quad (12)$$

$$\mu \equiv \sqrt{m^2 + 4q^2}, \quad \chi \equiv \arctg \frac{2q}{m}.$$

3. ОПТИЧЕСКОЕ ВЫПРЯМЛЕНИЕ

Рассмотрим дихроматическое поле (6) в оптически тонкой среде:

$$\mathcal{E} = E_1 \cos \Psi + E_2 \cos(2\Psi + \varphi), \quad (13)$$

$$W = \mu_1 E_1 \cos(\Psi + \chi_1) + \mu_2 E_2 \cos(2\Psi + \varphi + \chi).$$

Решение уравнений (10) с периодическими коэффициентами (13) (уравнений Гилла [10]) ищем в виде плоских волн поляризации

$$\rho_{10} = \sum_{n=-2}^2 R_{1,n} e^{-in\Psi}, \quad \rho_{21} = \sum_{n=-2}^2 R_{2,n} e^{-in\Psi}, \quad (14)$$

$$\rho_{20} = r e^{-i(2\Psi + \varphi + \chi)}.$$

Резонансное приближение в выражении (14) для поляризации на запрещенном переходе ρ_{20} имеет такую же погрешность, как и указанная в разд. 2 при обсуждении уравнений (10). Применение ПВВ и представления (14) в решении уравнений Гилла в рассматриваемом случае вполне оправдано, поскольку выход из резонанса Δ для паров щелочных металлов составляет примерно $0.1\text{--}0.2\omega$, что на 2–3 порядка больше частот Раби $d_{1,2}E_{1,2}/\hbar$ для принятых интенсивностей меньших 0.1 ГВт/см^2 .

Подстановка формул (13), (14) в третье и четвертое уравнения (10) и применение ПВВ дают выражения компонент поляризаций на нерезонансных дипольно разрешенных переходах через постоянную часть r поляризации на запрещенном переходе и разности заселенностей уровней:

$$R_{1,n} = \frac{1}{2\hbar\Delta_n} \times$$

$$\times \left\{ d_1 [E_1(\delta_{n,-1} + \delta_{n,1}) + E_2(e^{i\varphi}\delta_{n,-2} + e^{-i\varphi}\delta_{n,2})] n_{01} + \right.$$

$$\left. + d_2 e^{-i(\varphi + \chi)} (E_1\delta_{n,1} + E_2 e^{i\varphi}\delta_{n,0}) r \right\},$$

$$R_{2,n} = \frac{1}{2\hbar\Delta_{2-n}} \times$$

$$\times \left\{ -d_2 [E_1(\delta_{n,-1} + \delta_{n,1}) + E_2(e^{i\varphi}\delta_{n,-2} + e^{-i\varphi}\delta_{n,2})] n_{12} + \right.$$

$$\left. + d_1 e^{-i(\varphi + \chi)} (E_1\delta_{n,1} + E_2 e^{i\varphi}\delta_{n,0}) r \right\},$$

$$\Delta_n \equiv \omega_{10} - n\omega, \quad \Delta_1 \equiv \Delta,$$

$$\delta_{n,m} \equiv \begin{cases} 1, & n = m, \\ 0, & n \neq m. \end{cases} \quad (15)$$

Из формул (15) следует, что поляризации на разрешенных переходах, входящие в поляризацию среды (9), (12), содержат отличные от нуля постоянные

составляющие (члены, пропорциональные $\delta_{n,0}$), а также осцилляции с двойной частотой ($\delta_{n,\pm 2}$). Испытывающее ДФП излучение с амплитудой E_1 и частотой ω инициирует осцилляции поляризаций с той же частотой, а при учете большего числа гармоник в (14) также осцилляции с нечетными частотами. В то же время излучение с амплитудой E_2 и частотой 2ω , связанное с однофотонным мультипольным поглощением, создает только четные гармоники, включая постоянные составляющие поляризаций. Постоянные составляющие поляризаций на разрешенных переходах обусловлены нелинейной интерференцией ρ_{10} и ρ_{21} , осуществляющейся посредством поляризации на запрещенном переходе ρ_{20} .

Подстановка формул (13)–(15) в уравнения (10) и применение ПБВ приводят к следующим уравнениям для эффективной двухуровневой системы (запрещенного перехода):

$$\left\{ \begin{array}{l} (A_1 + \gamma)\rho_0 + A_1\rho_2 - 2\Gamma \operatorname{Re}(i\mathcal{V}^*r) = \\ = (A_1 + \gamma)\rho_0^0 + A_1\rho_2^0, \\ (A_2 + \gamma)\rho_2 + 2\Gamma \operatorname{Re}(i\mathcal{V}^*r) = (A_2 + \gamma)\rho_2^0, \\ r = \frac{i}{1 - i\delta_1} \mathcal{V}n_{02}, \end{array} \right. \quad \mathcal{V} \equiv V_2 + e^{i\Phi}V_1, \quad V_1 \equiv \frac{d_1d_2E_1^2}{4\hbar^2\Gamma\Delta}, \quad V_2 \equiv \frac{\mu E_2}{2\hbar\Gamma}, \quad (16)$$

$$\delta_1 \equiv \delta - \beta_1V_1 + \beta_2V_2^2, \quad \beta_1 \equiv \frac{d_1^2 - d_2^2}{d_1d_2},$$

$$\beta_2 \equiv \frac{\Gamma}{\mu^2} \left(\frac{d_1^2}{\omega_{21}} + \frac{d_2^2}{\omega_{10}} \right),$$

$$\delta \equiv \frac{2\omega - \omega_{20}}{\Gamma}, \quad \Phi \equiv \varphi + \chi.$$

Входящая в выражения (16) безразмерная комплексная частота Раби \mathcal{V} представляет совместное действие мультипольного (магнитодипольного и электрического квадрупольного) (V_2) и двухфотонного (V_1) механизмов поглощения на запрещенном переходе, осуществляющихся со сдвигом по фазе Φ . Величины V_2 и V_1 являются соответствующими параметрами насыщения.

Решение (16) есть

$$\begin{aligned} r &= r' + ir'', \\ r' &= -\frac{n_{02}^0}{D} [\delta_1V_2 + V_1(\sin\Phi + \delta_1\cos\Phi)], \\ r'' &= \frac{n_{02}^0}{D} [V_2 + V_1(\cos\Phi - \delta_1\sin\Phi)], \\ n_{02} &= \frac{1 + \delta_1^2}{D} n_{02}^0, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \rho_0 &= \frac{1}{D} \left[\left(1 + \delta_1^2 + \frac{2\Gamma u}{A_2 + \gamma} \right) \rho_0^0 + \right. \\ &\quad \left. + \frac{2\Gamma(A_1 + A_2 + \gamma)u}{(A_1 + \gamma)(A_2 + \gamma)} \rho_2^0 \right], \\ \rho_2 &= \frac{1}{D} \left[\frac{2\Gamma u}{A_2 + \gamma} \rho_0^0 + \right. \\ &\quad \left. + \left(1 + \delta_1^2 + \frac{2\Gamma(A_1 + A_2 + \gamma)u}{(A_1 + \gamma)(A_2 + \gamma)} \right) \rho_2^0 \right], \\ \rho_1 &= 1 - \rho_0 - \rho_2, \quad D = 1 + \delta_1^2 + \xi u, \\ u &= V_1^2 + V_2^2 + 2V_1V_2\cos\Phi, \\ \xi &= \frac{2\Gamma(2A_1 + A_2 + 2\gamma)}{(A_1 + \gamma)(A_2 + \gamma)}, \quad n_{02}^0 \equiv \rho_0^0 - \rho_2^0. \end{aligned} \quad (17)$$

Из формул (14), (15) и (17) для индуцированных излучением постоянных по времени поляризации P_0 и намагниченности M_0 (9) в отсутствие внешних электрического и магнитного полей имеем

$$\begin{aligned} P_0 &= 2N(d_1R'_{1,0} + d_2R'_{2,0}) = \frac{2Nn_{02}^0d_1d_2\Delta}{\hbar\omega_{10}\omega_{21}} \frac{E_2}{D} \times \\ &\times [V_2(-\sin\chi + \delta_1\cos\chi) + V_1(\sin\varphi + \delta_1\cos\varphi)], \quad (18) \\ M_0 &= 0. \end{aligned}$$

Из выражения (18) следует, что в принятой постановке задачи эффект оптического выпрямления заключается в образовании только электрической поляризации среды. Учет в ρ_{20} (14) постоянной составляющей, как показывают соответствующие расчеты, дает $M_0 \approx 10^{-6}P_0$. Пропорциональность P_0 амплитуде E_2 поля с частотой 2ω означает отсутствие оптического выпрямления в оптически тонкой среде в случае ее взаимодействия с монохроматическим излучением с частотой ω , когда действует только двухфотонное поглощение. Слагаемые в числителе P_0 (18), пропорциональные V_2 и V_1 , обусловлены соответственно мультипольным и двухфотонным механизмами резонансного поглощения на запрещенном переходе.

Нетривиальным и не отмеченным ранее в литературе следствием резонансного поглощения на запрещенном переходе квантовой Ξ -системы является оптическое выпрямление монохроматического излучения с частотой $2\omega \approx \omega_{20}$. Действительно, полагая в формуле (18) $E_1 = 0$ и $V_1 = 0$, получаем отличную от нуля постоянную поляризацию $P_0 \propto E_2^2$. Таким образом, поглощение на запрещенном переходе при наличии возмущающего состояния приводит к квадратичной по амплитуде поля составляющей нелинейной поляризации газовой среды. Соответственно, распространенные в литературе [3–5] и основанные

на свойствах симметрии утверждения о том, что разложение поляризации газов по степеням амплитуды поля содержит только нечетные степени амплитуды, применимы исключительно к взаимодействию излучения с дипольно разрешенными переходами, так как в них не учитывается нелинейное мультипольное поглощение на запрещенных переходах. Механизму выпрямления, основанному на кубической нелинейности поляризации среды в условиях кольцевого смещения частот ω и 2ω , соответствует второй (интерференционный) член в числителе P_0 (18), пропорциональный произведению $E_2V_1 \propto E_2E_1^2$ (16). Первое же слагаемое обусловлено выявленной выше квадратичной нелинейностью $P_0 \propto E_2^2$, появляющейся в результате однофотонного мультипольного поглощения на запрещенном переходе.

Зависимость постоянной поляризации P_0 от фазы χ (12), обусловленной квадрупольным взаимодействием излучения с двойной частотой с запрещенным переходом, и разности фаз φ полей с частотами ω и 2ω на входе в среду создает возможность измерения отношения величин электрического квадрупольного и магнитного дипольного моментов на запрещенном переходе, а также знака квадрупольного момента. Дополнительные измерения величины коэффициента поглощения излучения с частотой 2ω на запрещенном переходе позволят определить абсолютные значения данных моментов.

Другим важным свойством постоянной поляризации (18) является то, что она не обращается в нуль при усреднении по случайным флуктуациям фазы φ . При этом, как нетрудно показать на основании уравнений (17), (18), в случае малых параметров насыщения V_1 и V_2 проинтегрированная по фазе φ поляризация P_0 определяется в основном мультипольным поглощением. Для больших параметров насыщения вклады в усредненную поляризацию мультипольного поглощения и ДФП сравнимы по величине. Таким образом, оптическое выпрямление будет существовать также и в случае некогерентного излучения. Более того, использование некогерентного излучения со случайной модуляцией фаз и решение соответствующей обратной задачи на основе выражения (18) позволит проводить количественные оценки степени случайной фазовой модуляции излучения.

В случае разреженных газов необходимо учесть поступательное движение атомов и связанный с ним доплеровский сдвиг частот. Для этого замечаем $\omega \rightarrow \omega - kv$, где v — скорость атома, и усредним P_0 (18) по скоростям с максвелловским распределением по скоростям, пренебрегая в Δ доплеровским

сдвигом. Для усредненной постоянной поляризации имеем

$$P_{0av} = \frac{\sqrt{\pi} B}{\kappa \sqrt{1 + \xi u}} \operatorname{Re} [(a - \kappa bz)w(z)],$$

$$z = x + iy, \quad x = \frac{\delta_1}{\kappa}, \quad y = \frac{\sqrt{1 + \xi u}}{\kappa},$$

$$\kappa \equiv \frac{2k\bar{v}}{\Gamma}, \quad w(z) = \frac{i}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-t^2} dt}{z - t}, \quad (19)$$

$$a \equiv V_2(-\sin \chi + \delta_1 \cos \chi) + V_1(\sin \varphi + \delta_1 \cos \varphi),$$

$$b \equiv V_2 \cos \chi + V_1 \cos \varphi,$$

$$B \equiv \frac{2Nn_{02}^0 d_1 d_2 \Delta}{\hbar \omega_{10} \omega_{21}} E_2, \quad \bar{v} = \sqrt{\frac{2k_B T}{m_a}},$$

где $w(z)$ — интеграл вероятности от комплексного аргумента [11], k_B — постоянная Больцмана, T — температура газа, m_a — масса активных атомов.

При малых давлениях газа ($\kappa \gg 1, y \ll 1$) из (19) получаем

$$P_{0av} = \frac{\sqrt{\pi} B}{\kappa \sqrt{1 + \xi u}} \left[(V_1 \sin \chi - V_2 \sin \chi)w' + (V_1 \cos \chi + V_2 \cos \chi)\sqrt{1 + \xi u}w'' \right],$$

$$w' \approx e^{-x^2} + y \left[2xF(x) - \frac{2}{\sqrt{\pi}} \right], \quad (20)$$

$$w'' \approx F(x) - 2xye^{-x^2},$$

$$F(x) = e^{-x^2} \int_0^x e^{t^2} dt,$$

где интеграл Досона $F(x)$ [11] с погрешностью около 1.5% аппроксимируется формулой

$$F(x) \approx \frac{x}{1 + 0.914(x^2)^{5/4}}.$$

При больших давлениях буферного газа ($\kappa \ll 1$) P_{0av} (19) сводится к P_0 (18).

Величина постоянной поляризации измеряется посредством помещения кюветы с исследуемой средой в конденсатор. Напряжение на его обкладках, обусловленное оптическим выпрямлением, следующим образом выражается через поляризацию P_{0av} (19) [3]:

$$U = -\frac{4\pi l_y l_z}{l_c} P_{0av}, \quad (21)$$

где l_y и l_z — продольный и поперечный размеры активной среды, l_c — длина конденсатора.

Зависимости напряжения U от входящих в P_{0av} (19) параметров приведены на рис. 1 применительно

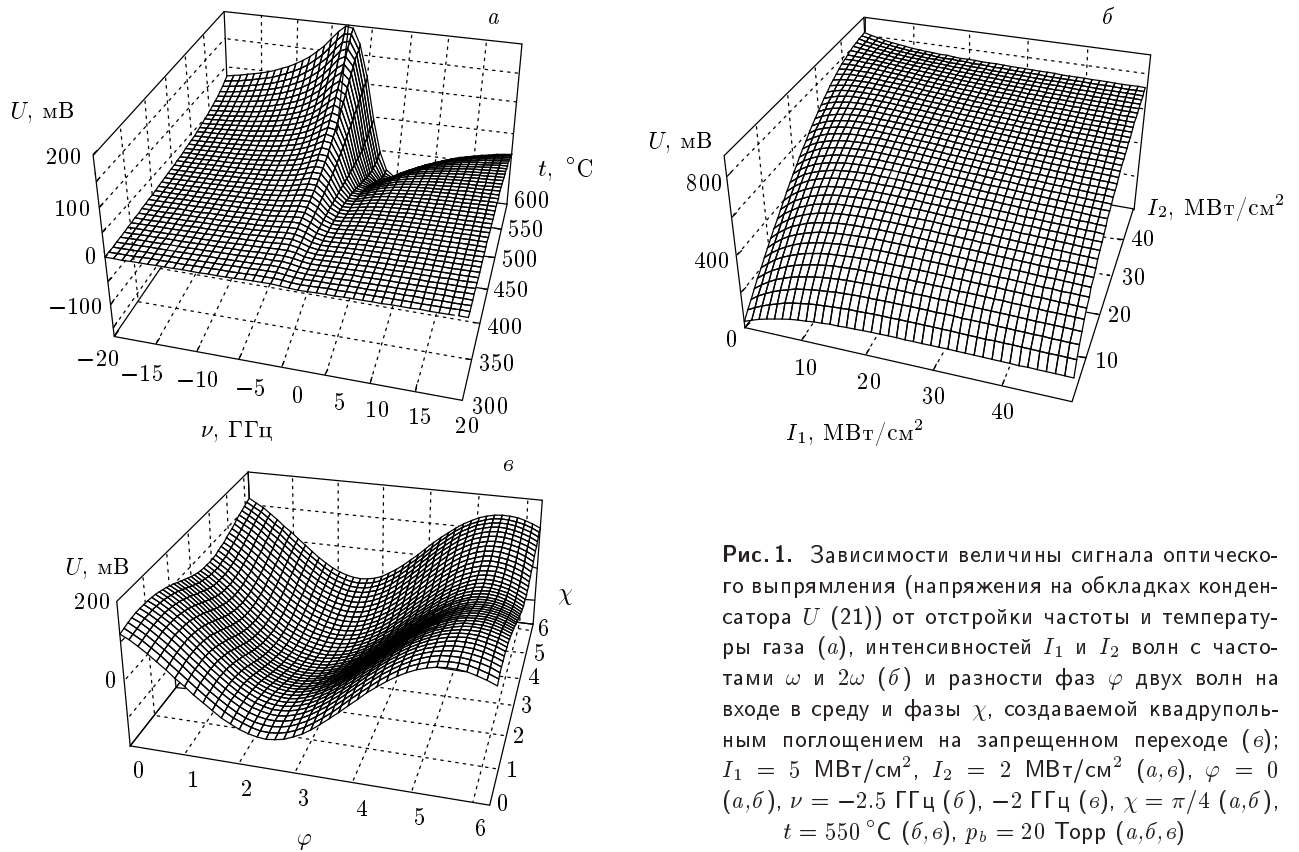


Рис. 1. Зависимости величины сигнала оптического выпрямления (напряжения на обкладках конденсатора U (21)) от отстройки частоты и температуры газа (а), интенсивностей I_1 и I_2 волн с частотами ω и 2ω (б) и разности фаз φ двух волн на входе в среду и фазы χ , создаваемой квадрупольным поглощением на запрещенном переходе (в); $I_1 = 5$ МВт/см², $I_2 = 2$ МВт/см² (а, в), $\varphi = 0$ (а, б), $\nu = -2.5$ ГГц (б), -2 ГГц (в), $\chi = \pi/4$ (а, б), $t = 550$ °С (б, в), $p_b = 20$ Торр (а, б, в)

к парам калия и запрещенному переходу $4s \leftrightarrow 5s$. Промежуточные уровни $4p^2P_{1/2}^0$ и $4p^2P_{3/2}^0$ считались одним возмущающим состоянием. Для построения рис. 1 были взяты следующие значения параметров: $\omega_{10} = 2.454 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $\omega_{21} = 1.511 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $\omega_{20} = 3.965 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $\Delta = 4.715 \cdot 10^{14} \text{ с}^{-1}$, $\omega = 1.982 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$ ($\lambda = 2\pi/k = 950.2 \text{ нм}$, $\lambda/2 = 475.1 \text{ нм}$) [12], $d_1 = 12.6 \text{ Д}$, $d_2 = 6.71 \text{ Д}$, $A_1 = 3.7 \cdot 10^7 \text{ с}^{-1}$, $A_2 = 2.18 \cdot 10^7 \text{ с}^{-1}$ [13, 14], $\Gamma_c = \Gamma_p(p_a + p_b)$, $\gamma = \gamma_p(p_a + p_b)$, где p_a и p_b — давления паров калия и буферного газа, $\Gamma_p = 30 \text{ МГц/Торр}$, $\gamma_p = 10 \text{ МГц/Торр}$, $l_z = 0.5 \text{ см}$, $l_y = 20 \text{ см}$, $l_c = 25 \text{ см}$, $n_{02}^0 = 1$. Величина μ полагалась равной магнетону Бора $\mu_B = 0.9273 \cdot 10^{-20} \text{ СГСЭ}$. Связь давления паров p_a и температуры T бралась из таблиц [15], концентрация N определялась из закона $p_a = Nk_B T$.

Числовой эксперимент, представленный на рис. 1, показывает, что величина постоянной поляризации уверенно измеряется при интенсивностях излучения I_1 и I_2 порядка 1 МВт/см². С учетом того, что техника измерения малых напряжений хорошо развита, можно рассчитывать

на вполне измеримый сигнал при интенсивностях порядка 1–10 кВт/см². Отметим, что зависимость $U(\omega, \varphi, \chi, I_1, I_2, T, p_b)$ достаточно характерна и, как показывают дополнительные расчеты, чувствительна к изменению параметров. Таким образом, решение обратной задачи по измерению магнитного дипольного и электрического квадрупольного моментов не создает проблем.

Определим величину постоянной намагниченности M_H во внешнем магнитном поле H , направленном вдоль оси z . Из (9) имеем

$$M_H = N \sum_{l=0}^2 \langle m_l \rangle \rho_l. \quad (22)$$

В соответствии с [16] величина расщепления уровней ΔE_H и средний магнитный момент в состоянии l при величине расщепления много меньшей бoльцмановского фактора $k_B T$ определяются как

$$\Delta E_H = \mu_B g_l M_H, \quad \langle m_l \rangle \approx f_l \frac{\mu_B H}{k_B T} \mu_B,$$

$$f_l = \frac{g_l^2}{2J_l + 1} \sum_{M=-J_l}^{J_l} M^2,$$

$$g_l = 1 + \frac{J_l(J_l + 1) - L_l(L_l + 1) + S_l(S_l + 1)}{2J_l(J_l + 1)},$$

где J_l и L_l — полный угловой и орбитальный моменты и S_l — спин электронов в состоянии l , M — проекция полного углового момента атома в состоянии l на ось z , g_l — фактор Ланде. В качестве состояний $l = 0, 1$ и 2 возьмем состояния К

$$4s^2S_{1/2}, 4p^2P_{1/2}^0 + 4p^2P_{3/2}^0, 5s^2S_{1/2},$$

для которых $f_0 = f_2 = 1$ и $f_1 = 7/3$. Расчет M_H (22) с использованием выражений для заселенностей уровней (17), усредненных по скоростям,

$$\rho_{0av} = 1 - \frac{2\Gamma(A_1 + A_2 + \gamma)}{(A_1 + \gamma)(A_2 + \gamma)} W,$$

$$\rho_{1av} = \frac{2\Gamma A_2}{(A_1 + \gamma)(A_2 + \gamma)} W, \quad \rho_{2av} = \frac{2\Gamma}{A_2 + \gamma} W,$$

$$W \equiv \frac{\sqrt{\pi} u}{\kappa\sqrt{1 + \xi u}} \operatorname{Re} w \left(\frac{\delta_1 + i\sqrt{1 + \xi u}}{\kappa} \right),$$

а также P_{0av} (19), для величины магнитного поля $H = 1000$ Гс, интенсивностей волн с частотами ω и 2ω $I_1 = 5$ МВт/см² и $I_2 = 2$ МВт/см², $\varphi = 0$, $\chi = \pi/4$, отстройки частоты $\nu = (2\omega - \omega_{20})/2\pi = -2$ ГГц, $n_{02}^0 = 1$, $p_b = 20$ Торр и температуры $t = 550^\circ\text{C}$ дает $M_H = 2.71 \cdot 10^{-7}$ СГСЭ, $P_{0av} = -8.61 \cdot 10^{-4}$ СГСЭ, $M_H/P_{0av} = -3.15 \cdot 10^{-3}$, $\Delta E_H/\hbar = 1.6$ ГГц.

Порядок величины расщепления магнитных подуровней вследствие динамического эффекта Штарка определяется выражением $\Delta E_S \sim \sim d^2 E^2/(4\hbar\Delta)$ [3]. Данное расщепление приводит к обратным эффектам Фарадея и Коттона–Мутона [3]. Для интенсивности излучения 14 МВт/см², $d = 12.6$ Д, $\Delta = 4.7 \cdot 10^{14}$ с⁻¹ величина $\Delta E_S/\hbar = 1.6$ ГГц, что совпадает с полученным выше значением $\Delta E_H/\hbar$ для расщепления подуровней магнитным полем. Таким образом, из оценок следует, что намагниченность в обоих случаях намного меньше поляризации.

4. УДВОЕНИЕ ЧАСТОТЫ И ГЕНЕРАЦИЯ ГАРМОНИК

Продолжая начатое в разд. 3 решение задачи с дихроматическим излучением (13), выделим из поляризации P (12) переменные составляющие

$$P = P_0 + P_{s1} \sin \Psi + P_{c1} \cos \Psi + P_{s2} \sin(2\Psi + \varphi) + P_{c2} \cos(2\Psi + \varphi).$$

Уравнения (11) для амплитуд полей в рассматриваемом случае имеют вид

$$\frac{dE_1}{dy} = -\frac{2\pi\omega}{c} P_{s1}, \quad \frac{dE_2}{dy} = -\frac{4\pi\omega}{c} P_{s2}. \quad (23)$$

Из уравнений (12), (14), (15) и (17) имеем

$$P_{s1} = \frac{2Nn_{02}^0 d_1 d_2}{\hbar\Delta} \frac{E_1}{D} [V_1 + V_2(\cos \Phi + \delta_1 \sin \Phi)], \quad (24)$$

$$P_{s2} = 2Nn_{02}^0 \frac{\mu}{D} [V_2 + V_1(\cos \Phi - \delta_1 \sin \Phi)].$$

Объединяя (23), (24) и переходя к безразмерным величинам, получим связанные уравнения для безразмерной интенсивности V_1 (16) волны с частотой ω и безразмерной амплитуды V_2 (16) волны с частотой 2ω :

$$\begin{cases} \frac{dV_1}{d\zeta} = -\frac{V_1}{D} [V_1 + V_2(\cos \Phi + \delta_1 \sin \Phi)], \\ \frac{dV_2}{d\zeta} = -\frac{\eta^2}{2D} [V_2 + V_1(\cos \Phi - \delta_1 \sin \Phi)], \end{cases} \quad (25)$$

$$\zeta \equiv \alpha y, \quad \alpha = \frac{8\pi N n_{02}^0 d_1 d_2 \omega}{c\hbar\Delta}, \quad \eta^2 \equiv \frac{\mu^2}{d_1 d_2} \frac{\Delta}{\Gamma},$$

где зависящие от V_1, V_2 величины D, δ_1 и Φ конкретизированы в формулах (16), (17). Отметим, что уравнения (25) в случае резонанса $2\omega = \omega_{20}$ с точностью до обозначений совпадают с уравнениями (12) [6], которые описывают двухволновое ВКР в Λ -системе, замкнутое излучением, резонансным комбинационному переходу, если в последних положить равными амплитуды и частоты волн накачки и Стокса.

Замещая в уравнениях (25) $\delta_1 \rightarrow \delta_1 - \kappa v/\bar{v}$ и проведя усреднение по скоростям, для произвольных соотношений столкновительной и доплеровской ширины имеем

$$\begin{cases} \frac{dV_1}{d\zeta} = -\frac{\sqrt{\pi} V_1}{\kappa\sqrt{1 + \xi u}} \operatorname{Re} [(V_1 + V_2 \cos \Phi - iV_2 \sqrt{1 + \xi u} \sin \Phi) w(z)], \\ \frac{dV_2}{d\zeta} = -\frac{\sqrt{\pi} \eta^2}{2\kappa\sqrt{1 + \xi u}} \operatorname{Re} [(V_2 + V_1 \cos \Phi + iV_1 \sqrt{1 + \xi u} \sin \Phi) w(z)]. \end{cases} \quad (26)$$

В целях эффективного удвоения частоты целесообразен выбор промежуточного между доплеровским и однородным типами уширения, когда $\Gamma \sim k\bar{v}$. В этом случае практически все атомы взаимодействуют с полем накачки V_1 , и необходимое насыщение поглощения ($V_1, V_2 \propto \Gamma^{-1} \sim 1$) достигается при

умеренных интенсивностях. Поэтому качественный анализ возможности удвоения проведем на основе более простых уравнений (25).

Из уравнений (25) следует, что в случае подачи в среду одного излучения с частотой 2ω происходит только его поглощение и поле V_1 не возникает. Для монохроматического поля накачки с частотой ω граничными условиями на входе в среду являются $V_1(0) \neq 0$ и $V_2(0) = 0$. В этом случае за счет наличия в числителе второго уравнения (25) члена, пропорционального V_1 , происходит генерация излучения с удвоенной частотой. Рассмотрим начальный этап усиления, когда $V_1 \approx V_1(0) \approx \text{const}$ и $|V_2| \ll V_1$. Второе уравнение (25) при этом приближенно можно представить как

$$\frac{dV_2}{d\zeta} \approx -\frac{1}{2}\eta^2 V_1 \sin \chi \frac{\delta - \beta_1 V_1}{1 + \xi V_1^2 + (\delta - \beta_1 V_1)^2}. \quad (27)$$

Из уравнения (27) следует, что генерация поля с двойной частотой возможна при условиях $\sin \chi \neq 0$ и $\delta \neq \beta_1 V_1$. Первое из этих условий с учетом определения χ (12) ($\sin \chi = 2q/\mu$) означает, что удвоение частоты происходит за счет квадрупольного взаимодействия излучения с запрещенным переходом. При этом амплитуда V_2 положительна или отрицательна в зависимости от знака произведения $(\delta - \beta_1 V_1) \sin \chi$ — меньше или больше нуля. Максимальное абсолютное значение амплитуды дисперсионного контура в правой части уравнения (27), а тем самым и максимальный коэффициент усиления, достигается при отстройках частоты $\delta = \beta_1 V_1 \pm \sqrt{1 + \xi V_1^2}$. Коэффициент усиления (правая часть уравнения (27)) при этом есть $(\eta^2/2) \sin \chi V_1 / (1 + \xi V_1^2)^{1/2}$, из чего при $\xi \sim 1-2$ следует оптимальное значение безразмерной интенсивности накачки $V_1 \sim 2$. При этом для $\Gamma = k\bar{v}$ и $t = 500^\circ\text{C}$ интенсивность I_1 составляет 22 МВт/см².

Измерения коэффициента усиления поля V_2 при малых оптических толщинах среды могут быть использованы как способ определения фазы χ , дополнительный к способу определения χ на основе оптического выпрямления.

В случае больших отстроек, $|\delta| \gg V_1, |V_2|$, уравнения (25) приобретают простой вид:

$$\frac{dV_1}{d\zeta} \approx -\frac{\sin \chi}{\delta} V_1 V_2, \quad \frac{dV_2}{d\zeta} \approx \frac{\eta^2 \sin \chi}{2\delta} V_1, \quad (28)$$

$$V_2(0) = 0.$$

Решение (28) есть

$$V_2 = \eta \sqrt{V_1(0)} \frac{e^{g\zeta} - 1}{e^{g\zeta} + 1}, \quad V_1 = V_1(0) - \frac{V_2^2}{\eta^2}, \quad (29)$$

$$g \equiv \eta \sqrt{\frac{V_1(0)}{\delta}} \sin \chi.$$

Пределами V_2 (29) при больших оптических толщинах, $|g\zeta| \gg 1$, являются

$$V_2(\infty) = \frac{\mu E_2(\infty)}{2\hbar\Gamma} = \text{sign} \left(\frac{\sin \chi}{\delta} \right) \eta \sqrt{V_1(0)} =$$

$$= \text{sign} \left(\frac{\sin \chi}{\delta} \right) \frac{\mu E_1(0)}{2\hbar\Gamma}. \quad (30)$$

Из выражения (30) следует, что предельный коэффициент преобразования интенсивности накачки в интенсивность излучения с удвоенной частотой $E_2^2(\infty)/E_1^2(0) = 1$. Оценим длину 50-процентного преобразования $L_{1/2} = 1/(g\alpha)$, которая достигается при $g\zeta = \ln 3$. Для параметров, приведенных в рассмотренном в разд. 3 примере паров К, и $t = 500^\circ\text{C}$ ($N = 1.62 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$), $I_1 = 1 \text{ МВт/см}^2$, $\Gamma = 6.23 \cdot 10^9 \text{ с}^{-1}$, $\chi = \pi/4$ и $\delta = 10$ эта длина составляет 5.2 см.

Интересной особенностью уравнений (25) для двух связанных волн является возможность усиления излучения с частотой ω в случае дихроматической накачки, когда $V_1(0) \neq 0$ и $V_2(0) \neq 0$. Для достижения этого эффекта необходимо, чтобы правая часть первого уравнения (25) была положительной, а правая часть второго уравнения (25) — отрицательной (при $V_2 > 0$). Отсюда получаем два неравенства для отстройки частоты δ :

$$\delta < \beta_1 V_1 - \beta_2 V_2^2 - \text{ctg } \Phi - \frac{V_1}{V_2 \sin \Phi}, \quad (31)$$

$$\delta < \beta_1 V_1 - \beta_2 V_2^2 + \text{ctg } \Phi + \frac{V_2}{V_1 \sin \Phi}.$$

Эти неравенства совместимы и выполняются для отрицательных отстроек и $\sin \Phi \neq 0$.

Численные решения уравнений (26) применительно к парам калия при подаче в среду монохроматического излучения с частотой ω и дихроматического излучения с частотами ω и 2ω приведены соответственно на рис. 2 и 3. Из рис. 2 следует, что удвоение частоты ω в условиях ДФП происходит с высокой эффективностью. Коэффициент преобразования интенсивности накачки в интенсивность второй гармоники для взятых значений параметров составляет от 30 до 80 %, а длина преобразования находится в пределах от 10 до 50 см. Согласно (29), с увеличением отстройки частоты эффективность повышается, но оптимальная длина увеличивается. Смена

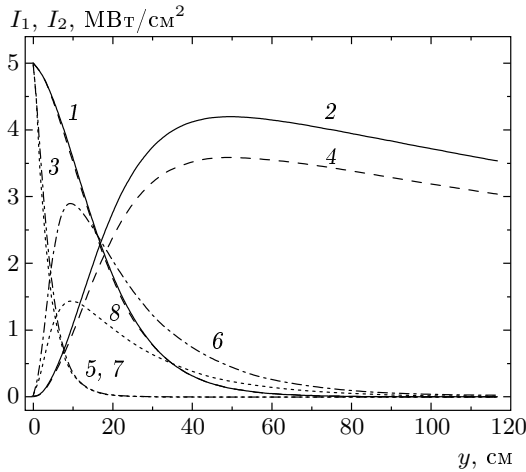


Рис. 2. Интенсивности I_1 и I_2 волн с частотами ω и 2ω в зависимости от длины их распространения в среде при ее облучении излучением с частотой ω для отстроек частот $\nu = -20$ ГГц (кривые 1, 2), 20 ГГц (3, 4), -5 ГГц (5, 6) и 5 ГГц (7, 8) (нечетные номера кривых относятся к I_1 , четные — к I_2); $I_1(0) = 5$ МВт/см², $I_2(0) = 0$, $t = 450$ °С, $p_b = 20$ Торр, $\chi = \pi/4$, $\varphi = 0$

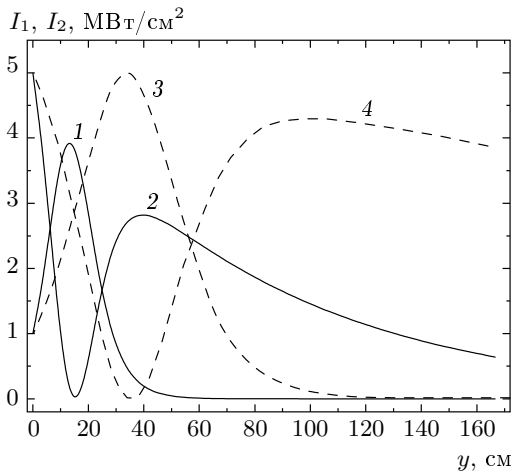


Рис. 3. Интенсивности I_1 и I_2 волн с частотами ω и 2ω в зависимости от длины при облучении среды дихроматическим излучением с частотами ω и 2ω для отстроек частот $\nu = -10$ ГГц (кривые 1, 2), -25 ГГц (3, 4) (нечетные номера кривых относятся к I_1 , четные — к I_2); $I_1(0) = 1$ МВт/см², $I_2(0) = 5$ МВт/см², $t = 450$ °С, $p_b = 20$ Торр, $\chi = \pi/4$, $\varphi = 0$

знака отстройки частоты с положительного на отрицательный увеличивает эффективность, и это увеличение более значительно при меньших отстройках частоты.

Генерация в среде излучения с удвоенной частотой при ее возбуждении монохроматическим излучением с частотой $\omega \approx \omega_{20}/2$ в соответствии с результатами разд. 3 приводит к оптическому выпрямлению. Регистрируемое напряжение U на обкладках конденсатора можно определить, переходя от формулы (21) к ее интегральному по длине представлению, но и без этого из рис. 2 ясно, что напряжение U будет несколько меньше, чем для максимального значения интенсивности излучения с удвоенной частотой, но сохранит порядок величины.

Рисунок 3 демонстрирует возможность усиления излучения с частотой ω в присутствии более интенсивного излучения с двойной частотой в условиях (31). Для значений параметров, взятых для построения рис. 3, максимальное усиление составляет от 4-х до 5 раз. При достижении интенсивности излучения с частотой ω максимума интенсивность излучения с двойной частотой обращается в нуль и далее возрастает, что связано с изменением знака амплитуды второй волны с плюса на минус.

Рассмотрим теперь генерацию высших гармоник с частотами $n\omega$, ограничившись числом частот $n \leq 4$. В случае одночастотной накачки, для которой $E_1(0) \neq 0$, $\varphi = 0$, $E_l(0) = 0$, $l = 2, 3, 4$, взамен соотношений (13), (14) для поля в среде и поляризации полагаем

$$\mathcal{E} = \sum_{l=1}^4 E_l \cos(l\Psi), \quad W = \sum_{l=1}^4 \mu_l E_l \cos(l\Psi + \chi_l), \quad (32)$$

$$\rho_{10} = \sum_{n=-4}^4 R_{1,n} e^{-in\Psi}, \quad \rho_{21} = \sum_{n=-4}^4 R_{2,n} e^{-in\Psi}, \quad (33)$$

$$\rho_{20} = r e^{-i(2\Psi + \chi)}.$$

Из формул (10) и (32), (33) для поляризации на разрешенных переходах аналогично (15) получаем

$$R_{1,n} = \frac{1}{2\hbar\Delta_n} \{d_1 [\theta(-n-1)E_{-n} + \theta(n-1)E_n] n_{01} + d_2 e^{-i\chi} [\theta(-n+1)E_{-n+2} + \theta(n-3)E_{n-2}] r\}, \quad (34)$$

$$R_{2,n} = \frac{1}{2\hbar\Delta_{2-n}} \{-d_2 [\theta(-n-1)E_{-n} + \theta(n-1)E_n] n_{12} + d_1 e^{-i\chi} [\theta(-n+1)E_{-n+2} + \theta(n-3)E_{n-2}] r\},$$

$$\theta(n) \equiv \begin{cases} 1, & n \geq 0, \\ 0, & n < 0. \end{cases}$$

Подстановка соотношений (32)–(34) в (10) приводит к уравнениям (16) с новыми и частично переопределенными параметрами (не изменившиеся параметры здесь не указаны):

$$\mathcal{V} = V_2 + e^{i\chi}U, \quad U \equiv V_1^2 - 2\varepsilon_1 V_1 V_3 - \frac{2\varepsilon_2 V_2 V_4}{\eta},$$

$$\delta_1 = \delta - \sum_{n=1}^4 \beta_n V_n^2 [1 + (\eta^{-2} - 1)\delta_{n,2}], \quad (35)$$

$$\beta_n \equiv 2\Delta \left(\frac{\omega_{10}}{\omega_{10}^2 - n^2\omega^2} \frac{d_1}{d_2} + \frac{\omega_{21}}{\omega_{21}^2 - n^2\omega^2} \frac{d_2}{d_1} \right),$$

$$\varepsilon_n \equiv \frac{\Delta^2}{(\omega_{10} + n\omega)(\omega_{21} + n\omega)}, \quad n = 1, 2,$$

$$V_n \equiv \frac{1}{2\hbar} \sqrt{\frac{d_1 d_2}{\Gamma\Delta}} E_n, \quad n = 1, 3, 4.$$

Решение уравнений (16), (35) для случая четырех частот сохраняет вид (17), где теперь

$$\begin{aligned} u &\equiv |\mathcal{V}|^2 = U^2 + V_2^2 + 2UV_2 \cos \chi, \\ r' &= -\frac{1}{D} [\delta_1 V_2 + U(\sin \chi + \delta_1 \cos \chi)], \\ r'' &= \frac{1}{D} [V_2 + U(\cos \chi - \delta_1 \sin \chi)]. \end{aligned} \quad (36)$$

Использование формул (9), (11), (17) и (32)–(36) дает эквиваленты уравнений (25) и (26) для связанных амплитуд волн в случаях однородного и неоднородного уширений:

$$\begin{aligned} \frac{dV_1}{d\zeta} &= -\frac{V_1 + \varepsilon_1 V_3}{2D} Y, \\ \frac{dV_2}{d\zeta} &= -\frac{\eta^2}{2D} [V_2 + U(\cos \chi - \delta_1 \sin \chi)], \\ \frac{dV_3}{d\zeta} &= \frac{3\varepsilon_1 V_1}{2D} Y, \quad \frac{dV_4}{d\zeta} = \frac{2\varepsilon_2 V_2}{\eta D} Y, \\ Y &\equiv U + V_2(\cos \chi + \delta_1 \sin \chi), \end{aligned} \quad (37)$$

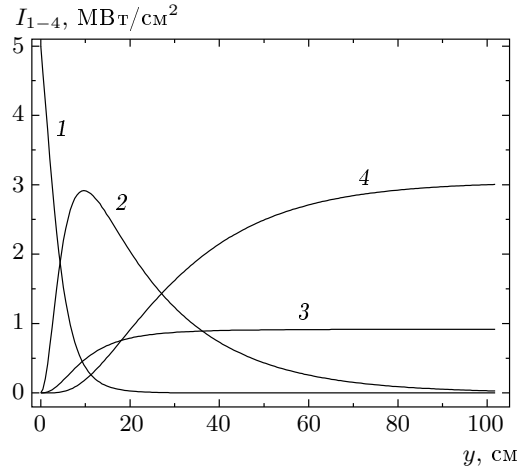


Рис. 4. Интенсивности I_1 (кривая 1), I_2 (2), I_3 (3) и I_4 (4) волн с частотами ω , 2ω , 3ω и 4ω в зависимости от длины при возбуждении среды монохроматическим излучением с частотой ω . Интенсивности третьей и четвертой волн умножены на 100; $\nu = -5$ ГГц, $I_1(0) = 5$ МВт/см², $I_{2-4}(0) = 0$, $t = 450$ °С, $p_b = 20$ Торр, $\chi = \pi/4$, $\varphi = 0$

$$\begin{aligned} \frac{dV_1}{d\zeta} &= -\frac{1}{2}(V_1 + \varepsilon_1 V_3)w_1, \quad \frac{dV_2}{d\zeta} = -\frac{\eta^2}{2} w_2, \\ \frac{dV_3}{d\zeta} &= \frac{3}{2}\varepsilon_1 V_1 w_1, \quad \frac{dV_4}{d\zeta} = 2\frac{\varepsilon_2}{\eta} V_2 w_1, \\ w_1 &\equiv \frac{\sqrt{\pi}}{\kappa\sqrt{1+\xi u}} \times \\ &\times \operatorname{Re} \left\{ \left[U + V_2 \left(\cos \chi - i \sin \chi \sqrt{1+\xi u} \right) \right] w(z) \right\}, \\ w_2 &\equiv \frac{\sqrt{\pi}}{\kappa\sqrt{1+\xi u}} \times \\ &\times \operatorname{Re} \left\{ \left[V_2 + U \cos \chi + 2\varepsilon_2 \eta^{-1} V_4 (U + V_2 \cos \chi) + \right. \right. \\ &\left. \left. + i(U - 2\varepsilon_2 \eta^{-1} V_2 V_4) \sin \chi \sqrt{1+\xi u} \right] w(z) \right\}. \end{aligned} \quad (38)$$

Из выражений (37), (38) следует, что производные амплитуд третьей и четвертой волн пропорциональны соответственно параметрам ε_1 и ε_2 . Расчет этих параметров для паров К приводит к малым значениям $\varepsilon_1 = 1.44 \cdot 10^{-2}$ и $\varepsilon_2 = 0.63 \cdot 10^{-2}$. Соответственно, эффективность преобразования накачки в третью и четвертую гармоники будет значительно меньше, чем для второй гармоники. Рисунок 4, построенный с помощью численного решения уравнений (38) применительно к парам К для тех же значений параметров, которые относятся к кривым 5 и 6 на рис. 2, показывает, что накачка с интенсивностью $I_1 = 5$ МВт/см² порождает третью гармонику с интенсивностью $I_3 \sim 10$ кВт/см² и четвертую — с

$I_4 \sim 30 \text{ кВт/см}^2$ при длине преобразования порядка метра. При этом поведение и величины интенсивностей накачки и второй гармоники практически совпадают с кривыми 5, 6 на рис. 2, построенными без учета влияния третьей и четвертой гармоник.

5. ОБСУЖДЕНИЕ И ВЫВОДЫ

Из теоретических результатов и численных расчетов разд. 3, 4 следует, что в парах металлов в типичных условиях экспериментов возможна реализация эффектов оптического выпрямления и удвоения частоты, ранее обнаруженных и применяющихся в кристаллах. Выявлены два новых физических механизма оптического выпрямления, дающих аддитивный вклад в этот эффект. Первый из них связан с кольцевым смещением частот в условиях двухфотонного поглощения, замкнутого излучением, резонансным дипольно запрещенному переходу квантовой Ξ -системы. Выпрямление в этом случае происходит за счет компенсации осцилляций поляризации на нерезонансных дипольно разрешенных переходах вследствие их интерференции, имеющей место при одновременном двухфотонном и однофотонном мультипольном поглощении на запрещенном переходе. Второй механизм обусловлен образованием квадратичной по амплитуде поля нелинейности поляризации газовой среды, являющейся следствием магнитного дипольного и электрического квадрупольного поглощений излучения, резонансного дипольно запрещенному переходу. Данный механизм не требует кольцевого смещения частот и действует в случае монохроматического излучения. Оба механизма создают постоянную электрическую поляризацию среды, а возникающая при этом намагниченность меньше на несколько порядков величины. Немонохроматичность излучения, связанная со случайной модуляцией фазы, не препятствует наблюдению оптического выпрямления и может количественно изменяться на основе этого эффекта.

Показано, что в случае оптически плотной среды при ее возбуждении монохроматическим излучением с частотой, попадающей в резонанс ДФП, происходит эффективное удвоение этой частоты с коэффициентом преобразования по мощности, составляющим десятки процентов, а также генерация третьей и четвертой гармоник, интенсивности которых могут достигать десятков кВт/см^2 . Порождаемое в среде излучение с двойной частотой, смешиваясь с излучением накачки, приводит к оптическому выпрямлению. Таким образом, в оптически плотных

парах металлов оптическое выпрямление возможно с использованием единственной частоты $\omega \approx \omega_{20}/2$. В оптически тонкой среде для этого необходимо подавать на вход либо дихроматическое излучение с частотами ω и 2ω , либо монохроматический свет с частотой 2ω . При определенных условиях облучение оптически плотной среды излучением с частотами ω и 2ω приводит к усилению излучения с частотой ω .

Оптическое выпрямление и удвоение частоты в газовых средах могут быть использованы как основа новых оптических методов измерения фундаментальных констант атомов — матричных элементов магнитного дипольного и электрического квадрупольного моментов на запрещенных переходах. Удвоение частоты и генерация гармоник в парах металлов представляются перспективными как средство расширения спектрального состава лазерного излучения, которое в ряде случаев может являться подходящей заменой удвоению частоты в нелинейных кристаллах. Интересные практические приложения оптического выпрямления может получить в плазме, поскольку возникающая в результате постоянной поляризации в объеме плазмы должна менять ее свойства, в частности, влиять на плазменные колебания. Следует отметить, что в то время как удвоение частоты в кристаллах повсеместно используется в практике лазерных экспериментов, оптическое выпрямление в твердых телах не получило широкого применения в плане количественных измерений и остается, по сути, на уровне демонстрационных опытов. Возможно, что представленные выше свойства оптического выпрямления в газовых средах могут найти большие применения и вызвать определенную «реанимацию» этого эффекта.

На основе уравнений, аналогичных приведенным в разд. 2–4, можно показать, что оптическое выпрямление будет также существовать и в случае Λ -системы в схеме двухволнового вынужденного комбинационного рассеяния в присутствии излучения, резонансного комбинационному переходу. При отстройках частот накачки и стоксовой волны от частот нерезонансных дипольно разрешенных переходов, сравнимых по величине с определенной в разд. 2 отстройкой Δ , величина постоянной поляризации будет того же порядка величины, что и рассмотренная выше для Ξ -системы.

Отметим, что теория рассмотренных эффектов развита на основе представления поля в среде (6) в виде набора частот $n\omega$, где $n = 1, 2, 3, \dots$. Более полное описание должно включать также возможность усиления спонтанного испускания на переходах $0 \leftarrow 1$ и $1 \leftarrow 2$, так как состояния 1 и 2 заселя-

ются излучением. Генерация излучения на линиях разрешенных переходов паров бария при их квазирезонансном возбуждении X -излучением F^* -лазера ранее наблюдалась в работе [17]. Возбуждение паров натрия лазером на красителях с частотой, близкой к частоте двухфотонного перехода, создавало генерацию на желтых резонансных линиях [18]. С учетом этого нового физического фактора более полный набор частот есть $n\omega \pm m\omega_{10} \pm l\omega_{21}$. К такому же набору приводит дополнительный учет вынужденного комбинационного и гиперкомбинационного рассеяния, которые, как показано в экспериментах с парами К [19], могут происходить в том числе и на разрешенных переходах при накачке, резонансной запрещенному переходу. Интересная возможность дальнейшего расширения спектра частот связана с ВКР на магнитных подуровнях состояний, расщепленных вследствие динамического эффекта Штарка или постоянными магнитным и электрическим полями. При этом разность частот накачки и стоксовой волны будет порядка величин расщепления $\Delta E_S/\hbar$, $\Delta E_H/\hbar$, которые для интенсивностей излучения от долей до десятков МВт/см² и напряженностей постоянного магнитного поля 10^2 – 10^3 Гс составляют сотни МГц. Нелинейное смешение этих волн может привести к генерации в среде низкочастотного излучения, близкого к гигагерцовому диапазону. Обозначенные варианты дальнейшего развития постановки задачи требуют специального рассмотрения и проведения соответствующих экспериментов. Применительно к оптическому выпрямлению и удвоению частоты за счет двух предложенных механизмов, новые физические факторы должны сказаться на величине наблюдаемых сигналов вследствие конкуренции отмеченных выше процессов, но не могут их полностью устранить. Представляется вполне вероятным, что определенные в данной статье величины сигналов оптического выпрямления и степень эффективности удвоения частоты сохраняют порядок величины.

По-видимому, единственные к настоящему времени наблюдения оптического выпрямления в газовых средах — парах калия и рубидия проведены в работах [20, 21] и цитированных там работах того же авторского коллектива. В них регистрировался сигнал электродвижущей силы на катушке, в которую помещалась кювета с парами. Использовались импульсы излучения с длительностью 20 нс и частотой, близкой к резонансу ДФП, интенсивность достигала сотен МВт/см². Сигнал интерпретировался авторами как следствие наводимой излучением в среде постоянной намагниченности, физический механизм которой не был однозначно опре-

делен. К сожалению, постоянная электрическая поляризация среды в данных экспериментах не измерялась, что делает затруднительным сопоставление результатов [20, 21] с развитой выше теорией. Возможно, что измерявшийся сигнал ЭДС в значительной мере обусловлен изменением постоянной поляризации P_0 за время действия короткого импульса излучения. Такая возможность не исключается и авторами [20, 21]. В соответствии с первым уравнением Максвелла изменение поляризации будет вызывать магнитную индукцию в среде и вследствие закона электромагнитной индукции Фарадея создавать ЭДС на катушке. Таким образом, наблюдавшийся эффект вполне может быть связан с рассмотренными в данной статье механизмами оптического выпрямления.

ЛИТЕРАТУРА

1. J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan, *Phys. Rev.* **127**, 1918 (1962).
2. M. Bass, P. A. Franken, J. F. Ward, and G. Weinreich, *Phys. Rev. Lett.* **9**, 446 (1962).
3. И. Р. Шен, *Принципы нелинейной оптики*, Наука, Москва (1989) [Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*, John Wiley & Sons, New York (1984)].
4. А. Ярив, *Квантовая электроника и нелинейная оптика*, Советское радио, Москва (1973), с. 314 [A. Yariv, *Quantum Electronics*, John Wiley & Sons, New York (1967)].
5. Р. Лоудон, *Квантовая теория света*, Мир, Москва (1976), с. 254 [R. Loudon, *The Quantum Theory of Light*, Clarendon Press, Oxford (1973)].
6. В. П. Кочанов, Ю. В. Богданова, *ЖЭТФ* **123**, 233 (2003).
7. *Атомные и молекулярные процессы*, под ред. Д. Бейтса, Мир, Москва (1964) [*Atomic and Molecular Processes*, ed. by D. R. Bates, Academic Press, New York, London (1962)].
8. Д. И. Блохинцев, *Основы квантовой механики*, Наука, Москва (1976).
9. В. П. Кочанов, *Оптика атмосферы и океана* **20**, 764 (2007).
10. В. А. Якубович, В. М. Старжинский, *Линейные дифференциальные уравнения с периодическими коэффициентами и их приложения*, Наука, Москва (1972).

11. *Справочник по специальным функциям*, под ред. М. Абрамовица, И. Стиган, Наука, Москва (1979) [*Handbook of Mathematical Functions*, ed. by M. Abramowitz and I. A. Stegun, NBS, Applied Mathematics Series 55 (1964)].
12. А. С. Яценко, *Диаграммы Гроттриана нейтральных атомов*, Наука, Новосибирск (1993).
13. П. Ф. Груздев, *Вероятности переходов и радиационные времена жизни уровней атомов и ионов*, Энергоатомиздат, Москва (1990).
14. Г. А. Касабов, В. В. Елисеев, *Спектроскопические таблицы для низкотемпературной плазмы. Справочник*, Атомиздат, Москва (1973).
15. *Таблицы физических величин. Справочник*, под ред. И. К. Кикоина, Атомиздат, Москва (1976).
16. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Квантовая механика. Нерелятивистская теория*, Наука, Москва (1974).
17. В. С. Верховский, В. М. Клишкин, В. Е. Прокопьев, и др., КЭ **9**, 2151 (1982).
18. Р. В. Марков, А. И. Плеханов, А. М. Шалагин, ЖЭТФ **120**, 1185 (2001).
19. D. Cotter and M. A. Yuratic, Opt. Comm. **29**, 307 (1979).
20. А. М. Бадалян, А. А. Дабагян, М. Е. Мовсесян и др., Изв. АН СССР. Сер. физ. **43**, 304 (1979).
21. А. А. Дабагян, М. Е. Мовсесян, З. Е. Мовсесян, Письма в ЖЭТФ **29**, 586 (1979).