

Насыщенное двухфотонное поглощение одночастотного излучения в газовых средах

В.П.Кочанов

Развита теория насыщенного нерезонансного двухфотонного поглощения (ДФП) квазимонохроматического излучения атомом в модели трехуровневой каскадной квантовой системы. Показано, что излучение с удвоенной частотой, возникающее вследствие мультипольного взаимодействия излучения с дипольно-запрещенным переходом, испытывает пространственные осцилляции при произвольных интенсивностях излучения накачки. Рассмотрено влияние на ДФП суммарной фазы волн с исходной и удвоенной частотами при их кольцевом смещении в среде.

Ключевые слова: двухфотонное поглощение, насыщение, удвоение частоты, нелинейная дисперсия.

1. Введение

Один из фундаментальных эффектов нелинейной оптики – двухфотонное поглощение (ДФП) – применяется для возбуждения высоковозбужденных состояний атомов, имеющих ту же четность, что и основное состояние. На основе ДФП развиты различные методы нелинейной лазерной спектроскопии [1, 2]. Для этих и других применений ДФП оптимальными являются интенсивности, при которых происходит насыщение поглощения. В атомарных газах и парах металлов насыщение достигается при умеренных интенсивностях: от десятков кВт/см² в случае разреженных газов до десятков МВт/см² в условиях однородного уширения линий [3–5]. Вместе с тем теория ДФП, за исключением последних цитированных работ, основана на учете первых нелинейных членов разложения поляризации среды в ряд по степеням амплитуд полей и не описывает насыщения [6–8].

Трехуровневая модель среды позволяет проводить расчеты поляризации без ее разложения в ряд и тем самым учитывать насыщение ДФП. Такой учет проведен в работе [3] применительно к квантовой Λ -системе для случая точного резонанса монохроматического излучения запрещенному переходу. Для многих атомов, в частности атомов щелочных и щелочно-земельных металлов, ДФП осуществляется в Ξ -системе (каскадной или лестничной) с основным (s) и промежуточным (p) состояниями. В этом варианте насыщенное одночастотное ДФП рассмотрено в работах [5, 9], в которых было теоретически показано, что в оптически плотных газовых средах возникает оптическое выпрямление и происходит эффективная генерация второй гармоники. Удвоение частоты обусловлено мультипольным (электрическим квадрупольным и маг-

нитным дипольным) взаимодействием излучения с дипольно-запрещенным переходом. Однако в работах [5, 9] сделан акцент на механизмах данных эффектов и их приложениях, а свойства насыщенного ДФП детально не обсуждались.

К таким свойствам, в частности, относится то, что в условиях насыщения поглощения и кольцевого смещения частот поглощаемого излучения и второй гармоники существенную роль играет нелинейная дисперсия среды [10, 11]. Она определяет расстройку фаз волн в среде (волновой асинхронизм), которая при когерентном смещении волн влияет на развитие ДФП в пространстве и удвоение частоты. Данный физический механизм приводит к качественному изменению генерации излучения с удвоенной частотой, а именно к пространственным осцилляциям его интенсивности (см. разд.4). Удвоение частоты рассмотрено в работе [5] в оптимальных условиях полного волнового синхронизма, и поэтому приведенные там оценки эффективности удвоения в более общем случае произвольного асинхронизма требуют соответствующих уточнений.

Кроме того, вследствие истощения накачки за счет генерации второй гармоники будет происходить дополнительное ослабление подаваемого в среду излучения, зависящее от отстройки частоты. Это может изменить контур линии ДФП по сравнению со случаем, когда мультипольное взаимодействие является слабым и удвоение частоты отсутствует. Данный аспект ДФП также ранее в литературе не рассматривался.

Цель настоящей работы заключается в построении теории ДФП с учетом указанных выше физических факторов и в анализе следствий насыщения поглощения, фазовых соотношений и генерации второй гармоники применительно к контуру линии и эффективной длине ДФП. Ограничимся случаем нерезонансного ДФП и детально рассмотрим его при однородном уширении линии. Генерацию излучения второй гармоники будем рассматривать только в направлении поглощаемого излучения, т.к. учет обратной волны не привносит качественно новых моментов, связанных с обсуждаемыми механизмами [12].

В.П.Кочанов. Институт оптики атмосферы им. В.Е.Зуева СО РАН, Россия, 634021 Томск, пл. Акад. Зуева, 1; e-mail: koch@iao.ru

Поступила в редакцию 9 ноября 2011, после доработки – 6 декабря 2011 г.

2. Поляризация среды

Обозначим основное, промежуточное и верхнее состояния рассматриваемой Ξ -системы как 0, 1 и 2 соответственно. Уравнения для матрицы плотности среды в модели релаксационных констант имеют вид [5]

$$\begin{aligned} (A_1 + \gamma)\rho_0 + A_1\rho_2 &= (A_1 + \gamma)\rho_0^{(0)} + A_1\rho_2^{(0)} \\ &+ \frac{2}{\hbar}(d_1\mathcal{E}\text{Re}i\rho_{10} + W\text{Re}i\rho_{20}), \\ (A_2 + \gamma)\rho_2 &= (A_2 + \gamma)\rho_2^{(0)} - \frac{2}{\hbar}(d_2\mathcal{E}\text{Re}i\rho_{21} + W\text{Re}i\rho_{20}), \\ -i\dot{\rho}_{10} + \omega_{10}\rho_{10} &= \frac{\mathcal{E}}{\hbar}(d_1n_{01} + d_2\rho_{20}), \\ -i\dot{\rho}_{21} + \omega_{21}\rho_{21} &= \frac{\mathcal{E}}{\hbar}(d_2n_{12} - d_1\rho_{20}), \\ \dot{\rho}_{20} + (\Gamma + i\omega_{20})\rho_{20} &= \frac{i}{\hbar}[\mathcal{E}(d_2\rho_{10} - d_1\rho_{21}) + Wn_{02}]; \end{aligned} \quad (1)$$

$$n_{jl} = \rho_j - \rho_l \quad (j, l = 0, 1, 2), \quad \rho_0 + \rho_1 + \rho_2 = 1, \quad \Gamma = A_2/2 + \Gamma_c.$$

Здесь ρ_j – населенности уровней; ρ_{jl} – недиагональные элементы матрицы плотности, или, с точностью до множителя, поляризации переходов $j \leftrightarrow l$; $\rho_{0,2}^{(0)}$ – равновесные населенности уровней; A_1 и A_2 – первые коэффициенты Эйнштейна для дипольно-разрешенных переходов $0 \leftrightarrow 1$ и $1 \leftrightarrow 2$ соответственно; Γ_c – константа ударного уширения дипольно-запрещенного перехода $0 \leftrightarrow 2$; γ – скорость затухания возбужденных уровней; ω_{jl} – частоты переходов; d_1 и d_2 – матричные элементы операторов дипольного момента для дипольно-разрешенных переходов; \mathcal{E} – амплитуда электрического поля света в среде; W – энергия взаимодействия поля с дипольно-запрещенным переходом; \hbar – постоянная Планка.

Поле в среде \mathcal{E} и энергию W его взаимодействия с переходом $0 \leftrightarrow 2$ представим в виде [4, 5, 9]

$$\mathcal{E} = E_1(z)\cos\Psi_1 + E_2(z)\cos\Psi_2, \quad W = \mu E_2(z)\cos(\Psi_2 + \chi); \quad (2)$$

$$\Psi_1 = \omega t - k_1 z + \varphi_1, \quad \Psi_2 = 2\omega t - k_2 z + \varphi_2,$$

$$\mu = \sqrt{m^2 + k_2^2 Q^2/36}, \quad \chi = \arctan \frac{k_2 Q}{9m},$$

где E_1 , ω , k_1 и φ_1 – соответственно амплитуда электрического поля, частота, волновое число и фаза излучения, испытывающего ДФП; E_2 , k_2 и φ_2 – амплитуда электрического поля, волновое число и фаза порождаемой в среде второй гармоники, m и Q – матричные элементы операторов магнитного дипольного и электрического квадрупольного моментов для дипольно-запрещенного перехода; z – продольная координата.

Решение уравнений (1) ищем в виде

$$\rho_{10} = \sum_{n=-2}^2 R_{1n} \exp(-in\Psi_1), \quad \rho_{21} = \sum_{n=-2}^2 R_{2n} \exp(-in\Psi_1), \quad (3)$$

$$\rho_{20} = r \exp[-i(\Psi_2 + \chi)].$$

Ограничение суммирования в формулах (3) значениями $|n| \leq 2$ позволяет учесть основную и удвоенную частоты излучения. Такого приближения вполне достаточно, т. к. интенсивности третьей и четвертой гармоник на два порядка меньше, чем первой и второй [5].

Подстановка выражений (2), (3) в уравнения (1) и применение приближения вращающейся волны [13] приводят к стационарным уравнениям, решение которых есть

$$\begin{aligned} R_{1-2} &= \frac{d_1 E_2 \exp(-i\Theta)}{2\hbar(2\omega + \omega_{10})} n_{01}, \quad R_{1-1} = \frac{d_1 E_1}{2\hbar(\omega + \omega_{10})} n_{01}, \\ R_{10} &= \frac{d_2 E_2 \exp(-i\chi)}{2\hbar\omega_{10}} r, \quad R_{11} = \frac{E_1}{2\hbar(\omega_{10} - \omega)} \\ &\times \{d_1 n_{01} + \exp[i(\Theta - \chi)] d_2 r\}, \quad R_{12} = \frac{d_1 E_2 \exp(i\Theta)}{2\hbar\omega_{21}} n_{01}, \\ R_{2-2} &= \frac{d_2 E_2 \exp(-i\Theta)}{2\hbar(2\omega + \omega_{21})} n_{12}, \quad R_{2-1} = \frac{d_2 E_1}{2\hbar(\omega + \omega_{21})} n_{12}, \end{aligned} \quad (4)$$

$$R_{20} = -\frac{d_1 E_2 \exp(-i\chi)}{2\hbar\omega_{21}} r, \quad R_{21} = \frac{E_1}{2\hbar(\omega - \omega_{21})}$$

$$\times \{-d_2 n_{12} + \exp[i(\Theta - \chi)] d_1 r\}, \quad R_{22} = -\frac{d_2 E_2 \exp(i\Theta)}{2\hbar\omega_{10}} n_{12};$$

$$r = \frac{i(1 + i\delta_1)}{D} \{V_2 + \sigma \exp[i(\Theta - \chi)] V_1\} n_{02}^{(0)}, \quad n_{jl}^{(0)} = \rho_j^{(0)} - \rho_l^{(0)},$$

$$n_{01} = n_{01}^{(0)} - \xi_1(2 - 3\xi_2) \frac{U}{D} n_{02}^{(0)},$$

$$n_{12} = n_{12}^{(0)} + \xi_1(1 - 3\xi_2) \frac{U}{D} n_{02}^{(0)},$$

$$D = 1 + \delta_1^2 + U, \quad U = \xi_1[V_1^2 + 2\sigma \cos(\Theta - \chi) V_1 V_2 + V_2^2],$$

$$\delta_1 = \delta - \beta_1 V_1 + \beta_2 V_2^2, \quad \delta = (2\omega - \omega_{20})/\Gamma,$$

$$V_1 = \frac{d_1 d_2 E_1^2}{4\hbar^2 \Gamma \Delta}, \quad V_2 = \frac{\mu E_2}{2\hbar \Gamma}, \quad \Delta = |\omega_{10} - \omega| \gg \Gamma,$$

$$\sigma = \text{sign}(\omega_{10} - \omega), \quad \beta_1 = \sigma \frac{d_1^2 - d_2^2}{d_1 d_2}, \quad \beta_2 = \frac{\Gamma}{\mu^2} \left(\frac{d_1^2}{\omega_{21}} + \frac{d_2^2}{\omega_{10}} \right),$$

$$\xi_1 = \frac{2\Gamma(2A_1 + A_2 + 2\gamma)}{(A_1 + \gamma)(A_2 + \gamma)}, \quad \xi_2 = \frac{A_1 + \gamma}{2A_1 + A_2 + 2\gamma},$$

$$\Theta = 2\Psi_1 - \Psi_2 = (k_2 - 2k_1)z + 2\varphi_1 - \varphi_2.$$

Поляризация среды с учетом взаимодействия поля с дипольно-запрещенным переходом определяется как [4, 5]

$$P = 2N \operatorname{Re}[d_1 \rho_{10} + d_2 \rho_{21} + \mu \exp(i\chi) \rho_{20}]$$

$$\equiv P_0 + P_{s1} \sin \Psi_1 + P_{c1} \cos \Psi_1 + P_{s2} \sin \Psi_2 + P_{c2} \cos \Psi_2, \quad (5)$$

где N – концентрация активных атомов. Подстановка выражений (3) и (4) в (5) дает

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

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

$$P_{c1} = \frac{2NE_1}{\hbar} \left(\frac{d_1^2 \omega_{10}}{\omega_{10}^2 - \omega^2} n_{01} - \frac{d_2^2 \omega_{21}}{\omega^2 - \omega_{21}^2} n_{12} \right) - \frac{2Nn_{02}^{(0)} d_1 d_2 E_1}{\hbar D \Delta} \{ \delta_1 V_1 + \sigma V_2 [\delta_1 \cos(\Theta - \chi) + \sin(\Theta - \chi)] \},$$

$$P_{c2} = -\frac{2NE_2}{\hbar} \left(\frac{d_1^2 \omega_{10}}{4\omega^2 - \omega_{10}^2} n_{01} + \frac{d_2^2 \omega_{21}}{4\omega^2 - \omega_{21}^2} n_{12} \right) - \frac{2Nn_{02}^{(0)} \mu}{D} \{ \delta_1 V_2 + \sigma V_1 [\delta_1 \cos(\Theta - \chi) - \sin(\Theta - \chi)] \},$$

$$P_0 = \frac{2Nn_{02}^{(0)} d_1 d_2 E_2 \Delta}{\hbar \omega_{10} \omega_{21} D} [V_1 (\delta_1 \cos \Theta - \sin \Theta) + \sigma V_2 (\delta_1 \cos \chi - \sin \chi)].$$

Постоянная поляризация среды P_0 создает оптическое выпрямление излучения, подробно рассмотренное в работе [5].

3. Волновые уравнения для полей и суммарной фазы

Из уравнений (7), приведенных в работе [11], и формул (6) получаем систему связанных уравнений для безразмерной интенсивности поглощаемого излучения V_1 , безразмерной амплитуды поля с удвоенной частотой V_2 и суммарной фазы волн Θ (4):

$$\frac{dV_1}{d\zeta} = -\frac{V_1}{D} \{V_1 + \sigma V_2 [\cos(\Theta - \chi) - \delta_1 \sin(\Theta - \chi)]\},$$

$$\frac{dV_2}{d\zeta} = -\frac{\eta}{D} \{V_2 + \sigma V_1 [\cos(\Theta - \chi) + \delta_1 \sin(\Theta - \chi)]\},$$

$$\frac{d\Theta}{d\zeta} = -\frac{f_1 n_{01} - f_2 n_{12}}{n_{02}^{(0)}} + \frac{1}{D} \{ \delta_1 V_1 + \sigma V_2 [\delta_1 \cos(\Theta - \chi) + \sin(\Theta - \chi)] \} - \frac{\eta}{D} \{ \delta_1 + \sigma \frac{V_1}{V_2} [\delta_1 \cos(\Theta - \chi) - \sin(\Theta - \chi)] \}; \quad (7)$$

$$f_1 = \frac{3\omega^2 \omega_{10} d_1 \Delta}{(\omega_{10}^2 - \omega^2)(4\omega^2 - \omega_{10}^2) d_2}, \quad f_2 = \frac{3\omega^2 \omega_{21} d_2 \Delta}{(\omega^2 - \omega_{21}^2)(4\omega^2 - \omega_{21}^2) d_1},$$

$$\zeta = Gz, \quad G = \frac{8\pi N n_{02}^{(0)} d_1 d_2 \omega}{c \hbar \Delta}, \quad \eta = \frac{\mu^2 \Delta}{2\Gamma d_1 d_2},$$

где c – скорость света.

Из третьего уравнения в (7) следует, что скорость изменения фазы в среде определяется населенностями уровней (первое слагаемое в правой части) и суммарным (интерференционным) взаимодействием излучения с частотами ω и 2ω с атомом (соответственно второе и третье слагаемые). При малых и больших интенсивностях излучения населенности уровней постоянны, и первое слагаемое является постоянной безразмерной волновой расстройкой, задающей линейное по длине изменение фазы. Второе и третье слагаемые содержат фазу и определяют ее сложное поведение при распространении излучения в среде. Наличие в третьем слагаемом члена $\propto V_2^{-1}$ предопределяет скачки фазы и положительные значения амплитуды поля с удвоенной частотой [11].

Обобщение уравнений (7) на случай неоднородного уширения можно получить, произведя замену $\delta \rightarrow \delta - k_2 v / \Gamma$ (v – проекция скорости поглощающей молекулы на ось z) и усреднив по скоростям правые части уравнений (7) по распределению Максвелла. В результате получаем

$$\frac{dV_1}{d\zeta} = -\frac{\sqrt{\pi} \Gamma V_1}{k_2 \bar{v} \sqrt{1+U}} \{ [V_1 + \sigma V_2 \cos(\Theta - \chi)] \operatorname{Re} w(Z) - \sigma V_2 \sqrt{1+U} \sin(\Theta - \chi) \operatorname{Im} w(Z) \},$$

$$\frac{dV_2}{d\zeta} = -\frac{\sqrt{\pi} \Gamma \eta}{k_2 \bar{v} \sqrt{1+U}} \{ [V_2 + \sigma V_1 \cos(\Theta - \chi)] \operatorname{Re} w(Z) + \sigma V_1 \sqrt{1+U} \sin(\Theta - \chi) \operatorname{Im} w(Z) \}, \quad (8)$$

$$\frac{d\Theta}{d\zeta} = -\frac{f_1 n_{01}^{(0)} - f_2 n_{12}^{(0)}}{n_{02}^{(0)}} + \frac{\sqrt{\pi} \Gamma}{k_2 \bar{v} \sqrt{1+U}} \left\{ [(2 - 3\xi_2) f_1 + (1 - 3\xi_2) f_2] U + \sigma (\eta V_1 + V_2) \sin(\Theta - \chi) \operatorname{Re} w(Z) - \sqrt{1+U} \left[\eta - V_1 + \sigma \left(\eta \frac{V_1}{V_2} - V_2 \right) \cos(\Theta - \chi) \right] \operatorname{Im} w(Z) \right\};$$

$$w(Z) = \frac{i}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\exp(-x^2) dx}{Z - x} \approx \sum_{n=1}^4 \frac{a_n}{b_n + Z},$$

$$Z = \frac{\Gamma}{k_2 \bar{v}} (\delta_1 + i \sqrt{1+U}), \quad \bar{v} = \sqrt{\frac{2k_B T}{m_a}}, \quad k_2 \approx \frac{2\omega}{c},$$

где k_B – константа Больцмана; T – температура; m_a – масса поглощающих атомов. Выражения для комплексных коэффициентов a_n и b_n в приближенном представлении интеграла вероятности от комплексного аргумента [14] приведены в работах [15, 16].

Уравнения (7) и (8) являются обобщением уравнений (25) и (26) из работы [5] на случай, когда суммарная фаза Θ меняется в процессе распространения волн в среде. С целью выявления воздействия переменной фазы на ДФП выпишем уравнения (7) в случае постоянной фазы $\Theta = 2\varphi_1 - \varphi_2 \equiv \Phi + \chi$ (т.е. полного синхронизма волн):

$$\frac{dV_1}{d\zeta} = -\frac{V_1}{D}[V_1 + \sigma V_2(\cos \Phi - \delta_1 \sin \Phi)], \quad (9)$$

$$\frac{dV_2}{d\zeta} = -\frac{\eta}{D}[V_2 + \sigma V_1(\cos \Phi + \delta_1 \sin \Phi)].$$

Дальнейшим упрощением ситуации является случай, когда мультипольное взаимодействие излучения с дипольно-запрещенным переходом отсутствует ($\mu, \eta = 0$) и генерация второй гармоники не происходит ($V_2 = 0$). Тогда из уравнений (9) и формул (4) получаем

$$\frac{dV_1}{d\zeta} = -\frac{V_1^2}{1 + \delta^2 - 2\beta_1 V_1 + \vartheta V_1^2}, \quad \vartheta = \xi_1 + \beta_1^2. \quad (10)$$

Трансцендентное решение уравнения (10) есть

$$\zeta = (1 + \delta^2) \left[\frac{1}{V_1} - \frac{1}{V_1(0)} \right] + \vartheta [V_1(0) - V_1] - 2\beta_1 \ln \frac{V_1(0)}{V_1}. \quad (11)$$

При точном резонансе ($\delta = 0$) формула (11) сводится к явному выражению для зависимости интенсивности поглощаемого излучения от координаты:

$$V_1(\zeta) = \frac{Q + \vartheta V_1^2(0) - V_1(0)\zeta - 1}{2\vartheta V_1(0)} = \frac{2V_1(0)}{Q - \vartheta V_1^2(0) + V_1(0)\zeta + 1}, \quad (12)$$

$$Q = \sqrt{[1 + V_1(0)\zeta - \vartheta V_1^2(0)]^2 + 4\vartheta V_1^2(0)}.$$

Формула (12) с точностью до обозначений совпадает с выражением (45) из работы [3], полученным для ДФП в квантовой Λ -системе.

Для малых и больших интенсивностей излучения на входе в среду формула (12) упрощается:

$$V_1(\zeta) = \begin{cases} \frac{V_1(0)}{1 + \zeta V_1(0)}, & V_1(0) \ll 1, \\ \frac{V_1(0)}{1 + \zeta[\vartheta V_1(0)]}, & V_1(0) \gg 1. \end{cases} \quad (13)$$

Из выражения (13) следует, что в случае одночастотного ДФП имеет место медленное гиперболическое ослабление излучения. При ДФП двух волн с различными частотами ослабление является экспоненциальным. Такое различие отмечалось ранее для ненасыщенного ДФП [7]. Тот факт, что при переходе от малых к большим интенсивностям характер поглощения не изменяется, обусловлен увеличением абсолютного значения эффективной отстройки частоты δ_1 (4) вследствие динамического эффекта Штарка и выходом излучения из резонанса.

Безразмерная длина (оптическая толщина) $\zeta_{1/2}$, при которой интенсивность излучения уменьшается вдвое по сравнению с интенсивностью на входе в среду, определяется из выражения (12):

$$\zeta_{1/2} = \frac{1}{V_1(0)} + \frac{\vartheta}{2} V_1(0).$$

Минимальная длина $\zeta_{1/2}$ достигается при параметре насыщения $V_{\text{opt}} = \sqrt{2/\vartheta}$, и для $V_1(0) = V_{\text{opt}}$ имеем $\zeta_{1/2} = \sqrt{2\vartheta}$.

4. Численный эксперимент

Численные расчеты проведем для паров натрия в буферном газе. В качестве состояний 0, 1 и 2 возьмем соответственно состояния 3s, 3p и 3d. Длины волн переходов $0 \leftrightarrow 1$, $1 \leftrightarrow 2$ и $0 \leftrightarrow 2$ равны соответственно 5889.9, 8194.8 и 3426.88 Å [17]. Примем $N = 5 \times 10^{14}$ см³, $d_1 = 9.1 \times 10^{-18}$, $d_2 = 1.16 \times 10^{-17}$ [18], $\mu = 2.8 \times 10^{-20}$ ед. СГСЭ, $\Gamma = 5.65 \times 10^9$ с⁻¹ (давление буферного газа ~30 Тор), $\gamma = \Gamma/3$, $A_1 = 5.9 \times 10^7$, $A_2 = 4.8 \times 10^7$ с⁻¹ [18], $\chi = \pi/4$, $\rho_0^{(0)} = 1$, $\rho_1^{(0)} = \rho_2^{(0)} = 0$. При этом $\sigma = 1$, $\xi_1 = 11.85$, $\xi_2 = 0.494$, $\beta_1 = -0.490$, $\beta_2 = 0.563$, $\eta = 0.591$, $G = 0.256$ см⁻¹, $f_1 = 0.478$, $f_2 = 0.528$, $V_{\text{opt}} = 0.407$, $\zeta_{1/2} = 4.92$, $z_{1/2} = 19.2$ см. Интенсивности насыщения I_{s1} и I_{s2} для поглощаемой волны и волны с удвоенной частотой, определяемые из равенств $V_{1,2} = 1$, в данных условиях составляют 12.8 и 21.6 МВт/см² соответственно.

Коэффициент G (7) прямо пропорционален концентрации поглощающих атомов N , а другие параметры зависят от N только через аддитивные составляющие констант релаксации Γ и γ . При наличии буферного газа с достаточно большим давлением эти добавки относительно малы, и поэтому переход к другим концентрациям не требует перерасчета зависимостей $V_{1,2}(\zeta)$ — для этого необходима только соответствующая перенормировка оптической толщины ζ , которая не сказывается на виде уравнений (7).

Зависимости $V_{1,2}(\zeta)$ и $\Theta(\zeta)$, полученные с помощью численного решения уравнений (7) при малом и большом параметрах насыщения $V_1(0)$, представлены на рис.1. Из рис.1,б и в видно, что излучение с удвоенной частотой испытывает пространственные осцилляции, период которых слабо изменяется при увеличении интенсивности поглощаемого излучения, а именно для $V_1(0) = 0.001$ период составляет 13.3, а для $V_1(0) = 5$ он несколько меньше и равен 10.3. Отметим, что при трехволновом вынужденном комбинационном рассеянии (ВКР) при определенных значениях волновой расстройки также имеют место пространственные осцилляции амплитуд волн (преимущественно антистоксовой волны) [11]. Осцилляции в случае поля с малой интенсивностью наблюдаются на крыльях линии усиления поля с удвоенной частотой, и его генерация максимальна при нулевой отстройке частоты δ . С ростом интенсивности максимум генерации $V_2(\zeta)$ смещается от центра линии к крыльям (рис.1,д) и происходит асимметрично для положительных и отрицательных отстроек частоты. Данная асимметрия обусловлена тем, что вследствие фазовых соотношений контуры линий поглощения и усиления (правые части двух первых уравнений (7)) представляют собой сумму лоренцевского и дисперсионного контуров, а эффективная отстройка δ_1 (4) зависит от интенсивностей полей.

Из уравнений (7) и (9) следует, что при $V_1 \gg V_2$ коэффициент ДФП пропорционален V_1^2 . В соответствии с этим поглощение слабого поля (рис.1,а) изменяется значительно медленнее, чем поглощение в случае насыщенного ДФП (рис.1,з). Вместе с тем отношение V_2/V_1 больше для слабого поля. При насыщении интенсивность V_1 испытывает слабо выраженные пространственные осцилляции на крыльях линии (рис.1,з).

Фаза в среде Θ при $V_1(0) \ll 1$ резко изменяется, начиная с небольших значений ζ , и далее ее поведение устанавливается: скачок при изменении знака отстройки ча-

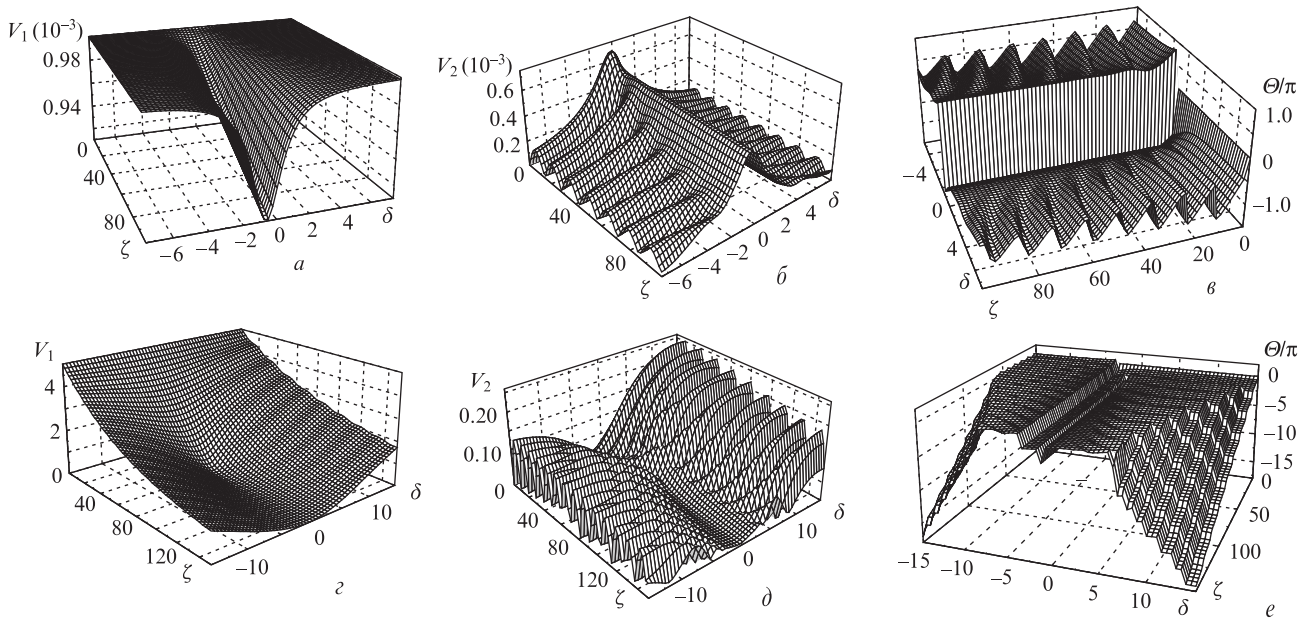


Рис.1. Поведение безразмерной интенсивности поглощаемого излучения $V_1(a, z)$, безразмерной амплитуды поля V_2 с удвоенной частотой (b, d) и суммарной фазы волн $\Theta(\theta, e)$ в зависимости от оптической толщины ζ и безразмерной отстройки частоты δ при $V_1(0) = 0.001$ ($a - e$) и 5 ($z - e$), $V_2(0) = 10^{-12}$, $\chi = \pi/4$ и $\Phi = 0$.

соты и пространственные осцилляции с относительно небольшой амплитудой (рис.1, θ). Для положительных отстроек ($\delta > 0$), фаза отрицательна, а для $\delta < 0$ она положительна. Увеличение интенсивности поглощаемого излучения качественно меняет поведение фазы (рис.1, e). При небольших ζ фаза сохраняет начальное значение, а далее, начиная с определенных, уменьшающихся по абсолютной величине оптических толщин, она линейно уменьшается с расстоянием, оставаясь везде отрицательной, и испытывает скачки. Пространственные осцилляции фазы в данном случае отсутствуют.

Расчеты показывают, что вариация начальной суммарной фазы волн на входе в среду Φ никак не влияет на V_1 и V_2 . Зависимости $\Theta(\Phi)$ для различных $V_1(0)$ близки по виду к зависимости, представленной на рис.2, θ в работе [11]. Основная особенность поведения фазы Θ заключается в том, что она испытывает скачки при $\zeta = 0$, а также при изменении Φ в области определенного значения Φ_0 , причем Φ_0 сдвигается в положительную сторону с возрастанием начальной интенсивности $V_1(0)$. Качественное объяснение скачков фазы остается таким же, как и в случае трехволнового ВКР [11]. При больших интенсивно-

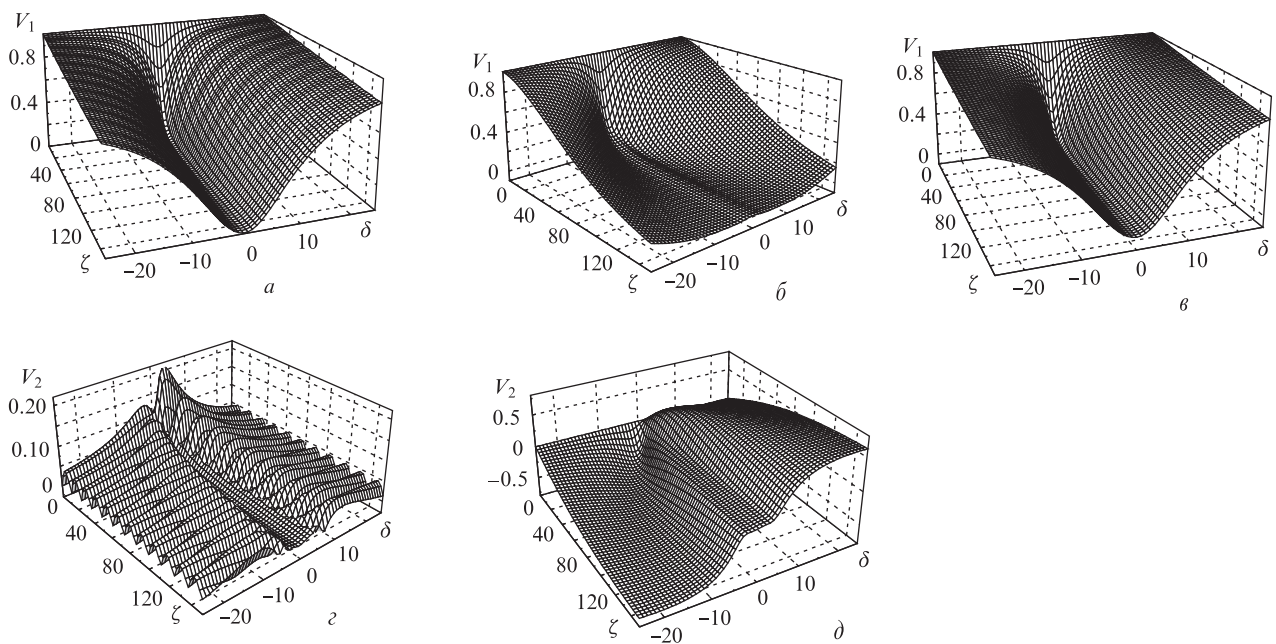


Рис.2. Сравнение зависимостей интенсивности $V_1(a - e)$ и амплитуды $V_2(z, d)$ от оптической толщины ζ и отстройки частоты δ , рассчитываемых на основе точных уравнений (7) (a, z) и приближенных уравнений (9) (b, d) и (10) (e) для $V_1(0) = 1$, $V_2(0) = 10^{-12}$, $\chi = \pi/4$ и $\Phi = 0$.

стях происходят слабо выраженные пространственные осцилляции фазы $\Theta(\zeta)$.

Сравнение численных решений приближенных уравнений (9) и (10) с решением уравнений (7), учитывающих изменение фазы в среде, приведено на рис.2. Из рис.2,а и в следует, что аналитическое решение (11) для предельно упрощенного уравнения (10) с точностью до нескольких процентов совпадает с решением, полученным на основе точных уравнений (7). Это объясняется относительно малой амплитудой генерируемого поля V_2 с удвоенной частотой (рис.2,в) и соответственно малым ослаблением излучения накачки вследствие такой генерации. В частности, для $\zeta = 60$ и $\delta = 10$ отношение интенсивностей волн $I_2/I_1 = V_2^2/(2\eta V_1) \approx 0.01$. В случае фиксированной фазы Θ решения уравнений (9) для V_1 и V_2 существенно отличаются от соответствующих решений уравнений (7), а именно контур линии ДФП на рис.2,б значительно шире и имеет особенность вблизи $\delta = 0$. Генерация поля с удвоенной частотой (рис.2,д) качественно отличается от генерации в случае с переменной фазой. Отличия заключаются в том, что амплитуда V_2 меняет знак (объяснение этому факту приведено в работе [11]), не испытывает пространственных осцилляций и в несколько раз больше на крыльях линии по сравнению с амплитудой, представленной на рис.2,в. Отношение интенсивностей I_2/I_1 при этом составляет 0.25. Таким образом, неучет взаимной подстройки фаз волн в среде приводит к завышению расчетной интенсивности излучения с удвоенной частотой более чем на порядок.

5. Заключение

Таким образом, в настоящей работе развита наиболее полная теория нерезонансного ДФП квазимонохроматического излучения с учетом насыщения поглощения, генерации излучения с удвоенной частотой вследствие электрического квадрупольного и магнитного дипольного взаимодействий излучения с дипольно-запрещенным переходом атома и изменения суммарной фазы волн в процессе их распространения, обусловленного нелинейной дисперсией газовой среды.

На основе численных расчетов показано, что заметное ДФП происходит при оптических толщинах среды $\zeta > 20$, генерация поля с удвоенной частотой возникает при $\zeta > 5$, а его амплитуда испытывает пространственные осцилляции как при малых, так и при больших интенсив-

ностях поглощаемого излучения. Ее эффективность в парах металлов сравнительно невелика, и отношение интенсивностей волн с удвоенной и исходной частотами не превышает нескольких процентов. Данное, заранее не очевидное обстоятельство («отрицательный результат») позволяет использовать простое аналитическое выражение (11) для количественного описания насыщенного ДФП подаваемого в среду излучения.

В том случае, когда интерес представляет генерация второй гармоники, в расчетах необходимо учитывать изменение суммарной фазы при распространении волн в среде, т.е. использовать уравнения (7) или (8). Неучет этого фактора в уравнениях (9) приводит к существенным качественным и количественным различиям поведения волн по сравнению с их поведением, воспроизводимым на основе полного описания ДФП.

Показано, что в отличие от трехволнового ВКР [11] интенсивности волн, участвующих в ДФП, не зависят от начальной фазы Φ . Такая зависимость проявляется только в сложном поведении суммарной фазы в среде Θ , в большой степени зависящем от интенсивности излучения.

1. Летохов В.С., Чеботаев В.П. *Принципы нелинейной лазерной спектроскопии* (М.: Наука, 1975).
2. *Нелинейная спектроскопия*. Под ред. Н.Бломбергена (М.: Мир, 1979).
3. Кочанов В.П., Богданова Ю.В. *ЖЭТФ*, **123**, 233 (2003).
4. Кочанов В.П. *Оптика атмосферы и океана*, **20**, 764 (2007).
5. Кочанов В.П. *ЖЭТФ*, **134**, 231 (2008).
6. Goppert-Mayer M. *Ann. Phys.*, **9**, 273 (1931).
7. Шен И.Р. *Принципы нелинейной оптики* (М.: Наука, 1989).
8. Стенхольм С. *Основы лазерной спектроскопии* (М.: Мир, 1987).
9. Кочанов В.П. *ЖЭТФ*, **136**, 1057 (2009).
10. Бутылкин В.С., Каплан А.Е., Хронополо Ю.Г., Якубович Е.И. *Резонансные взаимодействия света с веществом* (М.: Наука, 1977).
11. Кочанов В.П. *Квантовая электроника*, **40**, 1131 (2010).
12. Кочанов В.П., Куряк А.Н., Макогон М.М., Тырышкин И.С. *Оптика и спектроскопия*, **101**, 195 (2006).
13. Аллен Л., Эберли Дж. *Оптический резонанс и двухуровневые атомы* (М.: Мир, 1978).
14. *Справочник по специальным функциям*. Под ред. М. Абрамовица, И. Стигана (М.: Наука, 1979).
15. Кочанов В.П. *Оптика атмосферы и океана*, **24**, 275 (2011).
16. Kochanov V.P. *J. Quant. Spectrosc. Rad. Transfer*, **112**, 1931 (2011).
17. Яценко А.С. *Диаграммы Гроттриана нейтральных атомов* (Новосибирск: Наука, 1993).
18. Груздев П.Ф. *Вероятности переходов и радиационные времена жизни уровней атомов и ионов* (М.: Энергоатомиздат, 1990).