

ШЕСТИ- И ВОСЬМИФОТОННЫЕ РЕЗОНАНСНЫЕ ПРОЦЕССЫ В ПАРАХ НАТРИЯ

*К.Н. Дравович, А.И. Ковригин, С.М. Першин,
Н. М. Снялевский, А.Л. Суروهгин*

Впервые методами спектроскопии оптического смешивания исследованы четырех- и шестифотонные резонансы в атомах натрия. Экспериментально доказана возможность спектроскопического зондирования многофотонных переходов в атомах на основе параметрических эффектов высших порядков.

1. В данной статье излагаются результаты экспериментов, в которых впервые наблюдаются четырех- и шестифотонные резонансы в парах натрия методами спектроскопии оптического смешения. Измерены матричные элементы четырехфотонного резонанса $3s - 4s$ в атомах натрия. Показано, что спектроскопия оптического смешения позволяет вести такие исследования при умеренных мощностях возбуждающего излучения. Это открывает широкие возможности для изучения стационарных и нестационарных эффектов при многофотонных резонансах.

2. К настоящему времени широкое распространение получила спектроскопия смешения оптических частот. Различные модификации этого метода успешно применяются для исследования комбинационных и двухфотонных резонансов [1, 2], поляритонных возбуждений в кристаллах [3] и т. д. Использование пикосекундной техники позволяет проводить прямые измерения времен дефазировки квантовых переходов в среде [1, 2, 4].

Однако до сих пор все измерения такого рода основывались на наблюдении четырехфотонных процессов, протекающих на нелинейности третьего порядка $\chi^{(3)}$. Большой интерес представляет разработка аналогичных методов, базирующихся на резонансных параметрических процессах высших порядков, что позволило бы существенно расширить возможности и область применения нелинейной спектроскопии. На это указывалось в работах [5, 6]. Экспериментальные же исследования таких процессов до настоящего времени отсутствовали.

3. В наших экспериментах многофотонные резонансы зондировались с помощью простейших вырожденных по частоте, параметрических процессов высших порядков — генерации пятой гармоники на нелинейностях пятого и седьмого порядков. В качестве нелинейной среды были выбраны пары натрия. Источником накачки служил перестраиваемый по частоте параметрический генератор света (ПГС) (см. рис. 1); излучение которого фокусировалось в кювету с парами натрия. Импульс излучения имел длительность ~ 30 нсек и пиковую мощность $\sim 50 + 200$ кВт при ширине спектра $\Delta\nu \approx 3 + 5$ см $^{-1}$. Чувствительность системы регистрации на частоте пятой гармоники достигала $\sim 10^{-15}$ Дж.

Для уменьшения разброса экспериментальных точек из-за неконтролируемых флуктуаций поперечного распределения интенсивности в пучке

накачки сигнал пятой гармоники S_5 нормировался на сигнал третьей гармоники S_3 , генерируемой в кристалле CaCO_3 опорного канала.

4. Экспериментально исследовалась зависимость энергии пятой гармоники от длины волны излучения ПГС λ . При перестройке λ в диапазоне $15550 + 15350 \text{ \AA}$ наблюдалось резкое увеличение эффективности преобразования вблизи четырехфотонного резонанса с переходом $3s - 4s$ в атомах натрия ($\lambda_4 = 15535 \text{ \AA}$) и вблизи шестифотонного резонанса с переходом $3s - 8s$ ($\lambda_6 = 15393 \text{ \AA}$) см. рис. 2). Вдали от указанных резонансов сигнал гармоники был ниже уровня чувствительности регистрирующей аппаратуры. Коэффициент преобразования в точном четырехфотонном резонансе при мощности накачки $P_1 \approx 200 \text{ кВт}$ составлял $\sim 10^{-10}$.

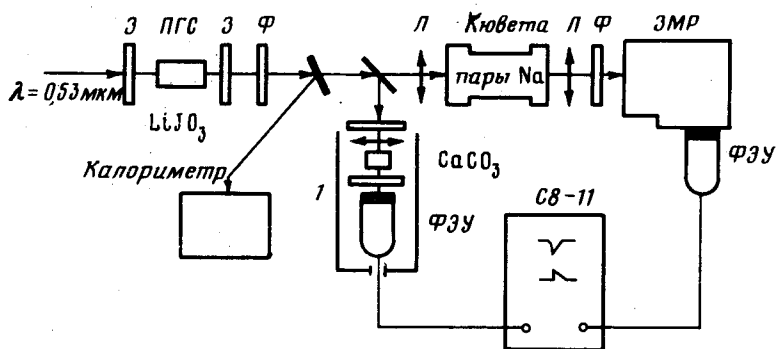


Рис. 1. Схема принципиальной части экспериментальной установки: 1 — опорный канал, З — зеркала, Ф — светофильтры

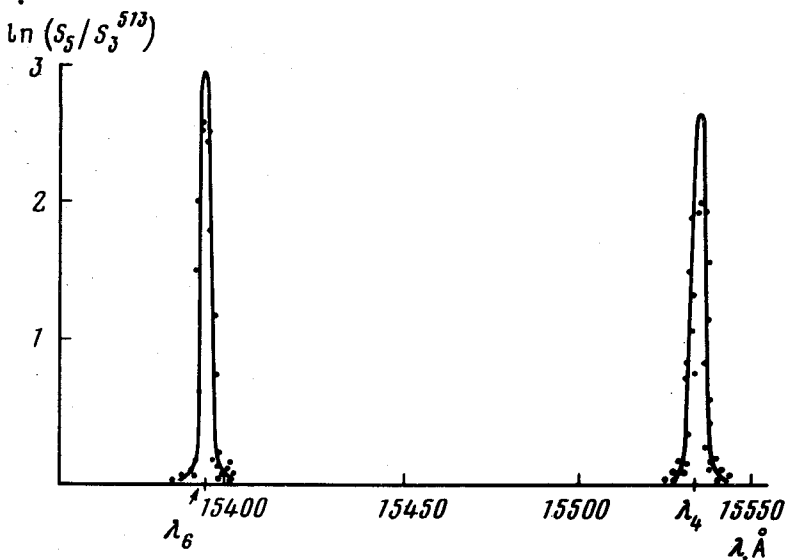


Рис. 2. Зависимость энергии пятой гармоники от длины волны излучения ПГС

5. Полученные результаты указывают на то, что в наших экспериментах генерация пятой гармоники происходила как за счет шестифотонного процесса на нелинейности пятого порядка $\chi^{(5)}(5\omega)$, так и за счет восьмифотонного смешивания частот $6\omega - \omega \rightarrow 5\omega$ на нелинейности $\chi^{(7)}(6\omega - \omega)$ (см. рис. 3). Заметим, что восьмифотонный процесс является низшим процессом, в котором возможно проявление наблюдаемого шестифотонного резонанса $3s - 8s$.

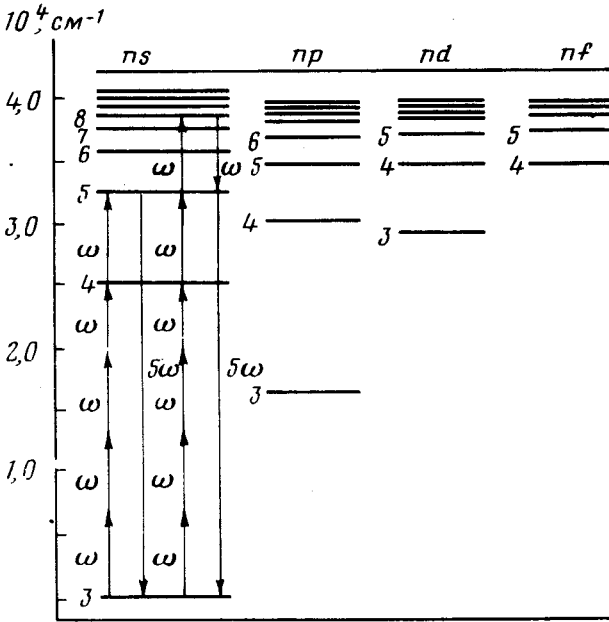


Рис. 3. Диаграмма уровней натрия и схемы наблюдаемых процессов

В расчетах излучение ПГС моделировалось шумом с гауссовой статистикой. Для мощности гармоники P_5 , генерируемой в прямом шестифотонном процессе, была получена формула

$$P_5 \approx 9,6 (10\lambda)^{-6} N^2 b^{-2} P_1^5 F\left(b \Delta k, \frac{b}{L}\right) |Q_m r_m|^2 I(\delta). \quad (1)$$

Здесь N — концентрация атомов натрия, b — конфокальный параметр, $\Delta k = k_5 - 5k_1$ — расстройка волновых векторов, L — длина нелинейной среды, F — функция фокусировки (см. [7]), Q_m и r_m — матричные элементы многофотонных переходов между уровнями m -фотонного резонанса [6]. Функция $I(\delta)$ зависит от частотной расстройки резонанса $\delta = m\omega - \omega_{21}$. При $|\delta| \lesssim \Delta\omega = 2\pi c \Delta\nu$ она имеет вид:

$$I(\delta) \approx m!(5-m)! \sqrt{\frac{\pi \ln 2}{m}} \frac{4}{\Delta\omega_0} \int_0^\infty \exp\left(-\frac{\gamma_0^2}{2} \tau^2 - 2\gamma\tau - \frac{\beta^2 \tau_0^2}{2\sqrt{m}}\right) \times \\ \times \left[1 + \Phi\left(\frac{\sqrt{2}\tau}{\tau_0} - \frac{\beta^* \tau_0}{2\sqrt{m}}\right)\right] d\tau, \quad (2)$$

где γ_0 — доплеровская полуширина линии, γ — однородная ширина перехода, $\beta = \gamma + i\delta$, $\tau_0 = 4\sqrt{\ln 2}/\Delta\omega_0$. Множитель $m!(5-m)!$ возникает из

учета гауссовой статистики излучения. Аналогичные формулы справедливы и для восьмифотонного процесса.

Для четырехфотонного резонанса получено хорошее количественное согласие экспериментальных и теоретических данных. В расчетах учтено, что в нашем эксперименте $N \approx 0,8 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$, $b \approx 4 \text{ см}$, $L \approx 8 \text{ см}$, $F(b \Delta k, b/L) \approx 0,1$ [7], $m = 4$. Матричные элементы Q_4 и r_4 вычислялись с использованием дипольных моментов, приведенных в [8]. Расчетное значение $|Q_4 r_4| \approx 3,6 \cdot 10^{-30}$ ед. CGSE хорошо согласуется с экспериментальной величиной $|Q_4 r_4| \approx 2,5 \cdot 10^{-30}$ ед. CGSE.

Для восьмифотонного процесса данные о функции фокусировки отсутствуют, поэтому сравнение теории и эксперимента имеет качественный характер: расчетная кривая 2 на рис. 2 "привязывалась" к экспериментальному значению в точном шестифотонном резонансе. Видно, что ход теоретической кривой хорошо согласуется с экспериментом.

Вклад в сигнал пятой гармоники могут давать и каскадные процессы, имеющие резонансный выигрыш в эффективной нелинейности: $3\omega \rightarrow 3\omega + \omega + \omega \rightarrow 5\omega$ — для четырехфотонного резонанса и соответственно $3\omega \rightarrow 3\omega + 3\omega - \omega \rightarrow 5\omega$, $3\omega \rightarrow 3\omega + \omega + \omega + \omega - \omega \rightarrow 5\omega$, $5\omega \rightarrow 5\omega + \omega - \omega \rightarrow 5\omega$ — для шестифотонного резонанса. Заметим, однако, что для спектроскопического зондирования многофотонных резонансов в принципе несущественно, в каком процессе рождается наблюдаемый сигнал — в прямом или в каскадном.

В заключение заметим, что процессы смешения частот высших порядков позволяют изучать квантовые переходы, недоступные методам двухфотонной спектроскопии и спектроскопии четырехволнового смешения. Например, шестифотонные параметрические процессы оказываются низшими процессами, с помощью которых можно зондировать из основного состояния f -уровни в атомах щелочных металлов. Применение в экспериментах излучения накачки с несколькими частотами, безусловно, расширит спектроскопические возможности этих методов. Использование же импульсов пикосекундной длительности позволит наблюдать нестационарные многофотонные резонансные эффекты: затухание свободной поляризации, многофотонные нутации и т. д. Предварительные результаты в этом направлении уже получены¹⁾.

Авторы глубоко признательны С.А.Ахманову за полезные обсуждения, А.Н.Дубовику, В.И.Кузнецову и Н.К.Подсотской за помощь в проведении экспериментов.

Московский государственный университет. Поступила в редакцию
им. М.В.Ломоносова 19 июня 1980 г.

Литература

- [1] С. А. Ахманов. Кн. "Нелинейная спектроскопия". М., 1979. стр. 267.
- [2] P. F. Liao, N. P. Economou, R. R. Freeman. Phys. Rev. Lett., 39, 1473, 1977.

¹⁾ Эксперименты с пикосекундными импульсами проводились нами совместно с сотрудниками Вильнюсского государственного университета. Результаты будут опубликованы.

- [3] Ф. Де Мартини. Кн. "Нелинейная спектроскопия", М., 1979, стр. 417.
- [4] В. Кайзер, А. Лоберо. Кн. "Нелинейная спектроскопия", М., 1979, стр. 628.
- [5] С. А. Ахманов. Кн. "Нелинейная спектроскопия", М., 1979, стр. 323.
- [6] К. Н. Драбович, А. Н. Дубовик, А. Л. Суroveгин. Изв. АН СССР, сер. физ., 42, 2580, 1978.
- [7] А. Н. Будовик. Вестник МГУ, сер. физ. 18, 82, 1977.
- [8] H. Eicher IEEE, J. of Quant. Electr. QE-11, 121, 1975.
-