

РЕЗОНАНСНЫЕ ЧЕТЫРЕХФОТОННЫЕ ПАРАМЕТРИЧЕСКИЕ ПРОЦЕССЫ В Ne В ПОЛЕ ОДНОЧАСТОТНОГО $\text{He} - \text{Ne}$ ЛАЗЕРА И ИХ ПРИМЕНЕНИЕ В НЕЛИНЕЙНОЙ СПЕКТРОСКОПИИ

*Им Тхек-де, О.П.Подалова, А.К.Попов,
Г.Х.Тартаковский*

Методом гетеродинирования зарегистрировано параметрическое излучение на частоте $\omega_\nu = 2\omega_0 - \omega_\mu$. Все частоты лежат внутри естественной ширины линии. Показана возможность использования этого процесса для нелинейной спектроскопии сверхвысокого разрешения.

1. Исследованы четырехфотонные параметрические процессы (ЧПП) внутри естественной и столкновительной ширины линии электронного перехода атома. Эффект наблюдался в поле слабого высокомонохроматического лазера. За счет резонансности реализованы нелинейные восприимчивости $\chi^3 \sim 10^{-7}$ ед. CGSE, на девять порядков превышающие нерезонансные восприимчивости в твердом теле. Резонансность взаимодействия обусловила большие инкременты нарастания и поглощения волн. Одновременно исследовалась зависимость поглощения слабого поля в присутствии сильного. Зарегистрирована сильная зависимость компонент тензоров нелинейной восприимчивости от поляризации волн, эффектов столкновения и аксиального магнитного поля. Экспериментальные результаты сопоставлены с теорией. Предлагается новый метод нелинейной спектроскопии сверхвысокого разрешения, основанный на резонансных ЧПП.

2. Квазирезонансные ЧПП обычно исследуются в полях мощных импульсных лазеров, имеющих сложную спектрально-временную структуру [1, 2]. Создание в последнее время лазеров на красителях с непрерывным режимом генерации и сравнительно узким спектром позволило наблюдать ряд интересных сильно нелинейных эффектов в крыльях доплеровских резонансов [3]. Газовые лазеры малой мощности позволяют достигать рекордной монохроматичности излучения. В данной работе продемонстрирована возможность изучения сильно нелинейных резонансных взаимодействий в поле таких лазеров и осуществления нелинейной спектроскопии сверхвысокого разрешения на основе ранее не использовавшихся для этой цели нелинейных процессов.

3. ЧПП возбуждались за счет смешения двух волн с разностью частот $\Delta = \omega_0 - \omega_\mu$. Биения разности заселенностей на частоте Δ приводят как к изменению поляризации среды (поглощения) на частоте $\omega_0 - \Delta = \omega_\mu$, так и к появлению поляризации (параметрического излучения) на новой частоте $\omega_\nu = \omega_0 + \Delta$. Это излучение регистрировалось гетеродинированием с более сильным полем на частоте ω_μ . Сигнал биений I_μ возникает на частоте $|\omega_\mu - \omega_\nu| = 2\Delta$. Используемый метод позволял регистрировать мощности параметрического излучения порядка 10^{-9} вт. Схема эксперимента приведена на рис. 1. Линейно поляризованное излуче-

ние одночастотного He-Ne лазера ($\lambda = 0,63 \text{ мкм}$) с селекцией мод давлением и выходной мощностью $1,5 \text{ мвт}$ с помощью системы зеркал 2, 3, 5 разбивалось на две волны различной интенсивности. Сильное поле E_0 , отражаясь от движущихся под действием пилообразного напряжения зеркал 4, приобретало доплеровский сдвиг по частоте $\Delta = 32 \text{ гц}$ относительно слабого поля. Таким образом, на входе кюветы 7 с помощью смесительной пластинки 6 формировались две строго коллинеарные волны, частоты и фазы которых жестко связаны. Кювета имела длину $l = 60 \text{ см}$, внутренний диаметр $3,5 \text{ мм}$ и заполнялась Ne, который возбуждался разрядом постоянного тока. Поляризации волн регулировались с помощью фазовых пластинок 8. Поляризатор 9 позволял задерживать сильное поле E_0 и пропускать слабые E_μ и E_ν , которые регистрировались квадратичным фотодетектором 10 и селективным усилителем 11, настроенным на частоту $2\Delta = 64 \text{ гц}$. При регистрации нелинейной добавки к поглощению поля E_μ зеркала 4 оставались неподвижными, а сильное поле модулировалось с помощью прерывателя 12 с частотой 64 гц . Сигнал усилителя 11 при этом пропорционален изменению интенсивности прошедшего поля $E_\mu \delta I_\mu$. Изменяя давление Ne в ячейке 7 и величину приложенного к ней магнитного поля H , можно исследовать влияние процессов столкновений и расщепления вырожденных уровней на нелинейные эффекты.

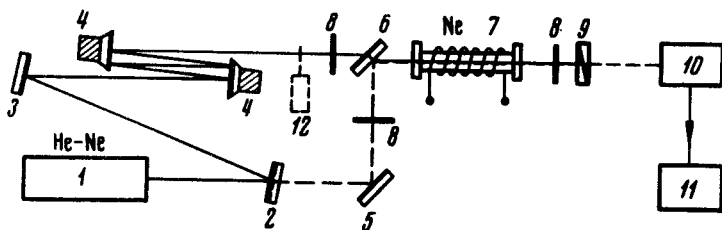


Рис. 1

4. Уравнения для медленных комплексных амплитуд взаимодействующих волн E_j^a ($j = 0, \mu, \nu$) можно представить в виде:

$$2 \frac{dE_j^a}{dz} = -\Lambda E_j^a + \theta_j^a \delta \gamma \beta E_0^\delta E \gamma^* E_j^\beta + \delta_{j\nu} \delta_{\alpha+\beta} \delta + \gamma \gamma_\nu^\alpha \delta \gamma \beta E_0^\delta E \gamma F_\mu^{\beta*}. \quad (1)$$

Здесь $\alpha, \beta, \gamma, \delta = \pm 1$ индексы круговых поляризаций, Λ — показатель линейного поглощения, $\hat{\theta}$ — тензор нелинейной восприимчивости, ответственный за изменение поглощения слабого поля E_μ в присутствии сильного E_0 , а $\hat{\sigma}$ — за параметрическую генерацию. По дважды повторяющимся вверх и вниз индексам предполагается суммирование. Второй символ Кронекера отражает закон сохранения суммарного момента фотонов при отсутствии когерентных столкновений атомов с передачей момента. Для перпендикулярных поляризаций E_0 и E_μ решение уравнения (1) имеет вид:

$$I_{\nu\mu} = \frac{c}{8\pi} |E_\mu(0)|^2 \frac{F_2}{2(\Lambda - F_0)} \left[1 - \exp\{- (\Lambda - F_0) l\} \right] \exp\{- (\Lambda - F_1) l\};$$

$$\delta I_{\mu} = \frac{c}{8\pi} |E_{\mu}(0)|^2 \exp\{-\Lambda l\} [\exp\{F_1 l\} - 1]; F_0 = (\theta_{0111}^1 + \theta_{0-1-1+1}^1) \frac{|E_0(0)|^2}{2};$$

$$F_1 = (\theta_{\mu 111}^1 + \theta_{\mu-1-1+1}^1 - \theta_{\mu+1-1-1}^1) \frac{|E_0(0)|^2}{2}; F_2 = (\sigma_{\mu 111}^1 - \sigma_{\mu+1-1-1}^1) \frac{|E_0(0)|^2}{2}.$$

(2)

Тензоры $\hat{\theta}$ и $\hat{\sigma}$ могут быть рассчитаны в модели "сильных": столкновений [4] с помощью матрицы плотности. Для вырожденного перехода с полными моментами $J_m = 1 \rightarrow J_n = 2$, соответствующего исследуемому переходу Ne, расчет дает:

$$\frac{F_1}{F_2} = \frac{23}{6} + \frac{25}{3} \frac{\sum_{j=m,n} \left\{ \tau_{2j}^{\prime\prime\prime} + \tau_{2j}^{\prime\prime\prime} \frac{2\sqrt{\pi}\Gamma}{k_0 \bar{v}} \exp\left[-\left(\frac{\Omega_0}{k_0 \bar{v}}\right)^2\right] \right\}}{\sum_{j=m,n} \left\{ \tau_{1j} + \tau_{2j} \frac{2\sqrt{\pi}\Gamma}{k_0 \bar{v}} \exp\left[-\left(\frac{\Omega_0}{k_0 \bar{v}}\right)^2\right] \right\}} / (2J_j + 1).$$

(3)

Здесь Γ — однородная, а $k_0 \bar{v}$ — доплеровская полуширина линий, $\Omega_0 = \omega_0 - \omega_{mn}$. Состояние атома характеризуется значениями энергии $E_m > E_n$, скорости v и проекции полного момента M . τ_{1j} , τ_{2j}^{\prime} , $\tau_{2j}^{\prime\prime}$, $\tau_{2j}^{\prime\prime\prime}$ — времена жизни соответственно в состояниях jMv , $jM\bar{v}_p$, $jM_p v$, $jM_p \bar{v}_p$.

Первое есть время до столкновений любого типа, остальные после столкновений, в результате которых только один, либо оба параметра принимают равновесное значение [4]. F_2 не содержит вкладов деполяризующих столкновений, разрушающих когерентность подуровней и обращающих ЧПП в нуль. Напротив, некогерентная часть в F_1 зависит от времен $\tau_{2j}^{\prime\prime}$ и $\tau_{2j}^{\prime\prime\prime}$.

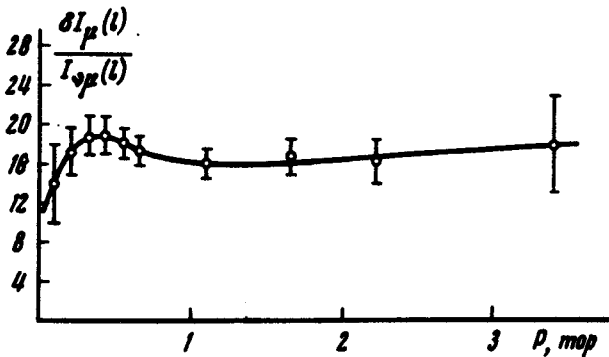


Рис. 2

5. а) Поляризационные измерения показали, что для противоположных круговых поляризаций E_0 и E_{μ} сигнал биений $I_{\nu\mu}$ в пределах шумов отсутствует, что соответствует отсутствию когерентных столкновений. Для перпендикулярных поляризаций E_0 и E_{μ} отношение сигнала к шуму равнялось 10.

б) Зависимость экспериментальных значений $\delta I_{\nu\mu} / I_{\nu\mu} \approx 2F_1 / F_2$ от давления Ne , вычисленных из измерений $I_{\nu\mu}, \delta I_{\nu\mu}$ и с помощью формул (2), приведена на рис. 2. Это отношение не должно зависеть от разности заселенностей $N_n - N_m$. Экстраполяция кривой в нуль давления дает значение близкое к теоретическому. Увеличение отношения F_1 / F_2 с ростом давления можно связать с возрастающей ролью деполяризующих столкновений, характеризуемых временами τ_{2j}'' и τ_{2j}''' . В области давлений до 1 *тора* основным механизмом столкновений этого типа является пленение излучения с уровня j . В области больших давлений пленение можно считать полным. Этим, по-видимому, объясняется выход кривой на плато. В этой области экспериментальное значение отношения сумм в формуле (3) близко к $1/2$. Для определения конкретных времен и сечений требуются дополнительные данные об отношениях $\tau_{2j}'' / \tau_{2j}'''$ и τ_{1j} / τ_{2j} .

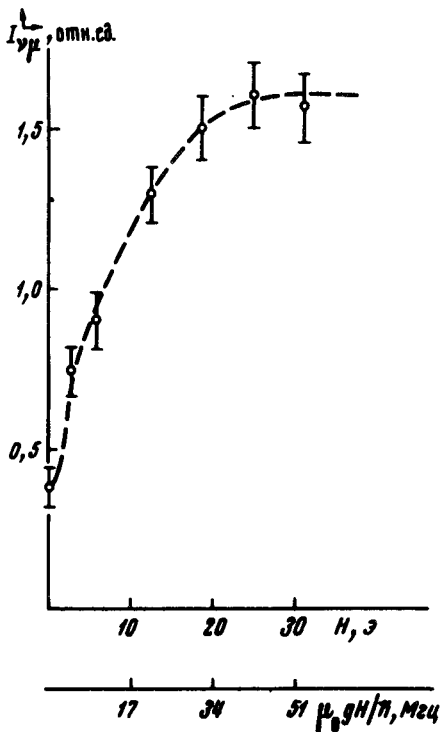


Рис. 3

в) Экспериментальная зависимость $I_{\nu\mu}$ от магнитного поля в области его малых значений приведена на рис. 3. Из-за зеемановского расщепления уровней с ростом поля появляется и возрастает действительная часть нелинейных восприимчивостей. При этом решение уравнений (1) становится сложным, что соответствует появлению эффектов типа захвата фаз и т. п. Анализ компонент тензора $\hat{\sigma}$ показывает, что $\sigma_{\nu 111}^1$ от поля H не зависит, а $\sigma_{\nu -11-1}^1$ с ростом H убывает по закону суммы двух лоренцианов. Это объясняет ход кривой рис. 3. Обработка таких кривых позволяет получить информацию о ширинах линий и уровней. В области больших значений H метод позволяет исследовать элек-

тродинамику сильно нелинейного взаимодействия. Предложенный метод не требует стабилизации частоты лазера.

Авторы благодарят С.Г.Раутиана и С.А.Ахманова за обсуждение работы и полезные советы.

Институт физики им. Л.В.Киренского
Академии наук ССР
Сибирское отделение

Поступила в редакцию
27 декабря 1974 г.

Литература

- [1] Ю.М.Кирип, С.Г.Раутиан, А.Е.Семенов, Б.М.Черноброд. Письма в ЖЭТФ, 11, 340, 1970.
 - [2] С.А.Ахманов, А.И.Ковригин, С.А.Максимов, В.Е.Оглуздин. Письма в ЖЭТФ, 15, 186, 1972.
 - [3] J. E. Bjorkholm, A. Ashkin. Phys. Rev. Lett., 32, 129, 1974.
 - [4] С.Г.Раутиан, Г. И. Смирнов, А.М.Шалагин. ЖЭТФ, 62, 2096, 1972.
-