

ВЛИЯНИЕ ПОГЛОЩЕНИЯ НАКАЧКИ НА ГЕНЕРАЦИЮ ИНФРАКРАСНОГО ВЫНУЖДЕННОГО ЭЛЕКТРОННОГО КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ В ПАРАХ ЩЕЛОЧНЫХ МЕТАЛЛОВ

А. И. Агафонов, Г. Г. Григорян, Н. В. Знаменский, Э. А. Маныкин,

*Ю. В. Орлов, Е. А. Петренко, М. Г. Ситников**

*Российский научный центр «Курчатовский институт»
123182, Москва, Россия*

Ю. П. Малакян

*Институт физических исследований
378410, Аштарак-2, Армения*

Поступила в редакцию 27 августа 2001 г.

Экспериментально и теоретически исследованы основные характеристики инфракрасного вынужденного электронного комбинационного рассеяния (ВЭКР) на переходе $6^2S_{1/2}-7^2S_{1/2}$ атома цезия в зависимости от концентрации атомов, которая варьировалась от 10^{11} до 10^{16} см^{-3} . Установлено существенное влияние процесса однофотонного поглощения накачки при перестройке ее частоты вблизи частот переходов $6^2S_{1/2}-7^2P_{1/2,3/2}$ на эффективность генерации стоксова излучения. С использованием уравнения для матрицы плотности, описывающего эволюцию трехуровневой системы, построена теория резонансного возбуждения ИК-излучения при однофотонном поглощении на смежном переходе, хорошо описывающая основные особенности ИК ВЭКР в парах щелочных металлов.

PACS: 42.55.Lt, 32.80.Bv

1. ВВЕДЕНИЕ

Пары щелочных металлов, атомы которых имеют низкорасположенные, узкие энергетические уровни, связанные сильными дипольными переходами, являются весьма удобными средами для возбуждения процесса резонансного вынужденного электронного комбинационного рассеяния света (ВЭКР), позволяющего сравнительно просто и в то же время эффективно преобразовывать излучение лазеров видимого диапазона в ИК-область спектра. Например, в [1–3] при использовании в качестве рабочей среды паров цезия с помощью ВЭКР было осуществлено преобразование видимого излучения лазера на красителях в ИК-излучение, перестраиваемое в диапазоне $500\text{--}5000 \text{ см}^{-1}$ (2–20 мкм).

В [4] при возбуждении ВЭКР в парах калия было получено перестраиваемое по частоте в пределах $2850\text{--}3500 \text{ см}^{-1}$ (2.85–3.5 мкм) ИК-излучение, с помощью которого изучался ИК-спектр поглощения углекислого газа. Можно также отметить работы [5–9], в которых осуществлено эффективное ВЭКР-преобразование в парах цезия и калия пикосекундных лазерных импульсов видимого диапазона в ИК-область спектра.

Как следует из теоретических оценок, подтвержденных экспериментальными результатами, эффективность возбуждения ВЭКР должна возрастать с ростом интенсивности накачки I_L или при приближении ее частоты ω_L к частоте разрешенного атомного перехода. Вместе с тем, при больших значениях I_L в квазирезонансных условиях ИК ВЭКР может подавляться вследствие развития других нелинейно-оптических процессов, например,

*E-mail: zarja@issosph.kiae

многофотонной ионизации [10]. Квазирезонансное воздействие мощного электромагнитного излучения на атомную систему должно также приводить к изменению контура линии поглощения (см., например, [11–14]). При этом, если время Γ^{-1} однофотонного или каскадного высвечивания верхнего уровня с переходом в основное состояние мало по сравнению со временем вынужденного испускания стоксова фотона частоты ω_S , процесс однофотонного поглощения накачки должен стать доминирующим по сравнению с процессом ВЭКР.

Возмущение спектра поглощения простейшей двухуровневой системы, находящейся в сильном квазирезонансном поле излучения, хорошо изучено как теоретически, так и экспериментально. То же самое можно сказать об основных характеристиках процесса ИК ВЭКР, возбуждаемого вблизи резонанса. Однако вопрос о роли поглощения накачки на процесс ИК ВЭКР в резонансных условиях до сих пор детально не исследован, хотя в ряде работ (см., например, [2]) наблюдалось уменьшение энергии стоксова излучения при приближении ω_L к резонансу с частотами разрешенных атомных переходов, что объяснялось поглощением накачки.

Экспериментальному и теоретическому изучению проблемы влияния поглощения накачки на эффективность ИК ВЭКР в парах щелочных металлов и посвящена настоящая работа.

2. СХЕМА ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ УСТАНОВКИ И МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Экспериментально исследовался процесс ИК ВЭКР на частоте ω_S при перестройке частоты возбуждающего излучения ω_L вблизи частот переходов $6^2S_{1/2}-7^2P_{1/2,3/2}$ атома цезия (рис. 1). Пары цезия создавались в специальной кювете длиной $l = 20$ см, полностью изготовленной из лейкосапфира [15]. Несколько граммов цезия чистоты 99.9 % вводились под вакуумом 10^{-5} Торр в кювету, помещенную в нагревательную печь. Последняя была сконструирована таким образом, что температура в ее центральной части была несколько ниже, чем температура на концах. Это позволяло избежать конденсации паров на оптических окошках кюветы. Давление паров варьировалось от 10^{-5} до 1 Торр. Это соответствовало изменению концентрации атомов цезия в диапазоне $N = 10^{11}-10^{16}$ см $^{-3}$.

В качестве источника возбуждающего излучения использовался лазер на красителях с перестраивае-

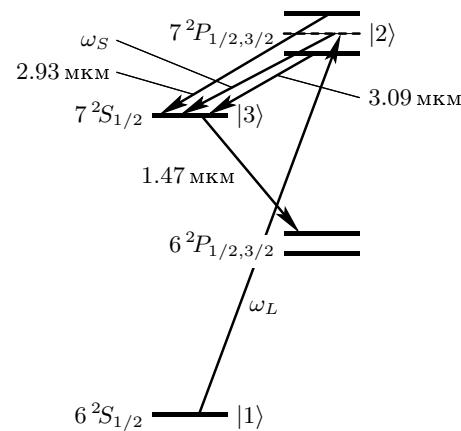


Рис. 1. Схема энергетических уровней атома цезия

мой частотой, накачиваемый импульсным эксимерным XeCl-лазером. Такая система позволяла осуществлять плавную перестройку частоты генерации ω_L в спектральном диапазоне $21700-22050$ см $^{-1}$, включающем в себя два резонанса с переходами $6^2S_{1/2}-7^2P_{1/2,3/2}$ в атоме цезия, и имела следующие параметры: длительность импульса $\tau_L = 15$ нс; максимальная энергия в импульсе $W_L = 5$ мДж, ширина линии генерации $\Gamma_L/2\pi c = 1$ см $^{-1}$.

Излучение лазера на красителях с помощью длиннофокусной линзы фокусировалось в кювету с парами цезия так, что диаметр лазерного пучка, составляющий на входе 5 мм, уменьшался до 0.5 мм в ее центральной части.

В экспериментах одновременно исследовались зависимости энергии видимого излучения накачки, прошедшей через пары, и энергии сигнала ИК ВЭКР от ω_L при различных значениях концентрации атомов N . Видимое излучение, выходящее из кюветы, регистрировалось с помощью фотодиода. Стоксов сигнал с помощью сферического серебряного зеркала фокусировался на приемную площадку фотоприемника, которое представляло собой охлаждаемое жидким азотом фотосопротивление и широкополосный усилитель, смонтированные в одном корпусе.

При перестройке ω_L вблизи частот переходов $6^2S_{1/2}-7^2P_{1/2,3/2}$ кроме ИК ВЭКР возбуждаются еще три ИК-линии с длинами волн 1.47, 2.93 и 3.09 мкм, соответствующие атомным переходам $6^2P_{1/2}-7^2S_{1/2}$ и $7^2S_{1/2}-7^2P_{1/2,3/2}$ (см. рис. 1). Однако ИК-излучение на длинах волн 2.93 и 3.09 мкм генерируется только тогда, когда частота ω_L с точностью до своей ширины $\Gamma_L/2\pi c$ совпадает с частотами соответствующих ИК-линий.

дает с частотами переходов $6^2S_{1/2}-7^2P_{1/2,3/2}$, а длина волны линии 1.47 мкм лежит вне области спектральной чувствительности фотоприемника. Поэтому в большинстве экспериментов стоксово излучение направлялось непосредственно на приемную площадку фотоприемника без использования ИК-монохроматора.

Система, обрабатывающая сигналы с фотодиода и фотоприемника и управляющая частотой ω_L генерации лазера на красителях, состоит из модулей АЦП и управления шаговым двигателем, выполненных в стандарте КАМАК, и контроллера, связывающего магистраль КАМАК с компьютером. Блок АЦП работал в режиме пикового детектора. Для защиты от помех использовался режим совпадений. Синхроимпульс эксимерного лазера управлял линейными воротами, которые пропускали сигнал на вход преобразователя только одновременно с лазерным импульсом. Среднее десяти измерений вносились в память компьютера вместе с текущим значением ω_L , после этого вырабатывалась команда для перестройки частоты генерации лазера на красителях и цикл измерений повторялся. Обработка полученных результатов и их графическое представление осуществлялись с помощью стандартных математических программ. При этом относительная погрешность измерений не превышала 3 %.

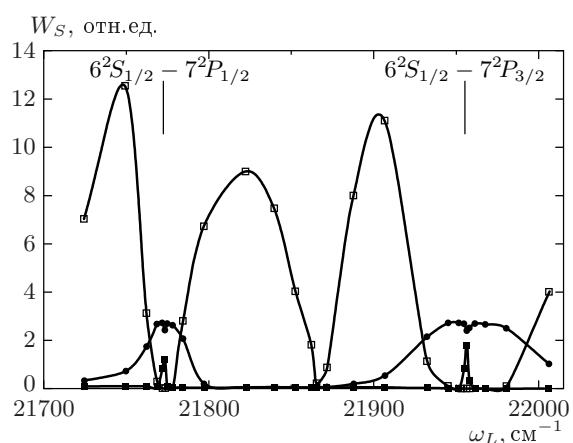


Рис. 2. Частотные зависимости энергии ИК ВЭКР при различных значениях концентрации атомов цезия: ■ — $N_1 = 8 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-3}$; ● — $N_2 = 4 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$; □ — $N_3 = 5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$

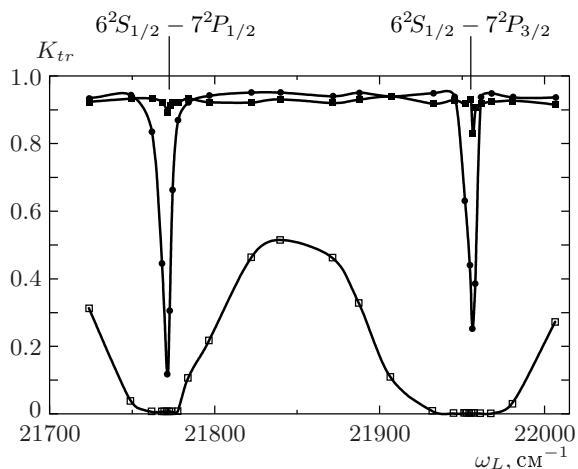


Рис. 3. Частотные зависимости коэффициента пропускания кюветы с парами цезия при различных значениях концентрации атомов N : ■ — $N_1 = 8 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-3}$; ● — $N_2 = 4 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$; □ — $N_3 = 5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$

3. ОСНОВНЫЕ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 2 приведены графики частотной зависимости энергии W_S ИК ВЭКР в парах цезия для трех различных значений концентрации атомов: $N_1 = 8 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-3}$, $N_2 = 4 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$ и $N_3 = 5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$. Энергия лазерного излучения оставалась постоянной и составляла $W_L = 0.3 \text{ мДж}$. Как и следовало ожидать, при $N_1 = 8 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-3}$ энергия ИК-сигнала достигает максимальных значений при настройке ω_L в резонанс с частотами атомных переходов $6^2S_{1/2}-7^2P_{1/2,3/2}$. С увеличением концентрации паров растут как величина стоксова сигнала, так и область значений перестройки частоты ω_L , при которых возбуждается ИК-излучение. Однако уже при $N_2 = 4 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$ вблизи переходов $6^2S_{1/2}-7^2P_{1/2,3/2}$ энергия ИК ВЭКР уменьшается. Дальнейшее увеличение концентрации атомов ($N_3 = 5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$) приводит к существенному увеличению и уширению провалов вблизи резонансов на графике частотной зависимости энергии ИК-излучения.

На рис. 3 приведены графики частотной зависимости коэффициента пропускания лазерного излучения, прошедшего сквозь пары цезия. Как и в предыдущих экспериментах, $W_L = 0.3 \text{ мДж}$, а концентрация атомов цезия составляла $N_1 = 8 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-3}$, $N_2 = 4 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$ и $N_3 = 5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$. Хорошо видно, что при $N_1 = 8 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-3}$ десятипроцентное поглощение накачки практически наблюдается

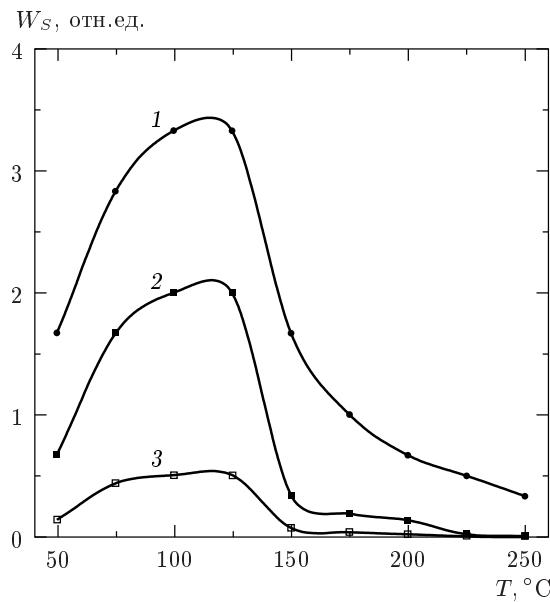


Рис. 4. Зависимости энергии генерации ИК ВЭКР при $\Delta_0 \approx 0$ от температуры паров для энергий накачки $W_L = 1$ мДж (1), 0.3 мДж (2), 0.04 мДж (3)

лишь в точных резонансах с частотами переходов $6^2S_{1/2}-7^2P_{1/2,3/2}$. Увеличение концентрации паров приводит к существенному росту степени поглощения лазерного излучения ($N_2 = 4 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$) и к расширению значений расстроек $\Delta_0 = \omega_{21} - \omega_L$ (ω_{21} — частота атомного перехода $6^2S_{1/2}-7^2P_{1/2}$ или $6^2S_{1/2}-7^2P_{3/2}$), при которых имеет место сильное поглощение накачки ($N_3 = 5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$). Из сравнения графиков, приведенных на рис. 2 и 3, можно сделать однозначный вывод о том, что в случае, когда возбуждающее излучение эффективно поглощается атомами цезия, на графике частотной зависимости энергии ИК ВЭКР возникает провал при приближении ω_L к частотам переходов $6^2S_{1/2}-7^2P_{1/2,3/2}$. Его ширина и глубина становятся тем больше, чем эффективнее происходит процесс поглощения накачки.

С целью оптимизации процесса возбуждения ИК ВЭКР в парах цезия вблизи частот переходов $6^2S_{1/2}-7^2P_{1/2,3/2}$ была исследована зависимость энергии стоксова излучения от температуры паров при различных значениях энергии накачки. Результаты этих экспериментов для случая $\Delta_0 \approx 0$, полученные при $W_L = 1, 0.3$ и 0.04 мДж, приведены на рис. 4 (соответственно кривые 1, 2 и 3). Хорошо видно, что I_S растет с увеличением W_L . При этом существует оптимальное значение температуры паров ($T \approx 130^\circ\text{C}$), соответствующее концентрации атомов

цезия $N \approx 7 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$), для которого эффективность возбуждения ИК ВЭКР максимальна. В условиях наших экспериментов она могла достигать 40 % по числу квантов.

4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Для теоретического анализа полученных результатов ограничимся случаем, когда расстройка Δ_0 частоты накачки от частот атомных переходов $6^2S_{1/2}-7^2P_{1/2,3/2}$ мала по сравнению с тонким расщеплением терма $7P$. В этом случае можно использовать модель трехуровневого атома с основным ($6^2S_{1/2}$), промежуточным ($7^2P_{1/2}$ или $7^2P_{3/2}$) и конечным ($7^2S_{1/2}$) уровнями, которые в дальнейшем будем обозначать соответственно через $|1\rangle$, $|2\rangle$ и $|3\rangle$. Это хорошо известная А-система, которая в последние годы интенсивно исследуется с точки зрения эффектов атомной когерентности (см., например, [16]). Однако эти эффекты проявляются при условиях, обратных тем, при которых имеет место ВЭКР, и поэтому в дальнейшем обсуждаться не будут.

Рассмотрим распространение импульсов накачки и ИК-излучения с частотами ω_L и ω_S по оси z в среде из трехуровневых атомов в условиях, когда поле накачки резонансно взаимодействует с атомами только на переходе $|1\rangle-|2\rangle$, а поле ИК-излучения — на переходе $|2\rangle-|3\rangle$. Поля представим в виде

$$\mathbf{E}_i = \mathbf{e}_i E_i(z, t) \exp(ik_i z - i\omega_i t), \quad (1)$$

где $E_i(z, t)$ — медленные комплексные амплитуды, а k_i — волновые векторы полей, $i = L, S$.

В резонансном приближении гамильтониан взаимодействия системы имеет вид

$$H_{int} = \hbar\Delta_0|2\rangle\langle 2| + \hbar(\Delta_0 - \Delta_1)|3\rangle\langle 3| + (\mu_{21}E_L|2\rangle\langle 1| + \mu_{23}E_S|2\rangle\langle 3| + \text{H.c.}), \quad (2)$$

где μ_{ik} — дипольный матричный элемент перехода $i \rightarrow k$, $\Delta_0 = \omega_{21} - \omega_L$ и $\Delta_1 = \omega_{23} - \omega_S$ — расстройки полей от соответствующих атомных переходов, ω_{ik} — частотная разность уровней i и k .

В общем случае ИК-излучение состоит из двух компонент — стоксова излучения, которое генерируется на основе ВЭКР, и вынужденного излучения на атомном переходе $|2\rangle-|3\rangle$, которое усиливается благодаря инверсии населенностей между уровнями $|2\rangle$ и $|3\rangle$. В случае ВЭКР частота ИК-излучения $\omega_S = \omega_L - \omega_{31}$ меняется с изменением частоты накачки, в то время как вынужденное излучение генерируется на фиксированной частоте ω_{23} , поскольку

в этом случае переход атома в состояние 3 происходит с реального уровня 2, где атомы оказываются из-за влияния собственного давления и за счет взаимодействия атома с широкополосной лазерной накачкой. Очевидно, что при $\Delta \leq \Gamma_L$, где Γ_L — ширина накачки, оба излучения имеют одинаковую частоту ω_{23} и описываются одним полем E_S . В случае больших расстроек ($\Delta \gg \omega_L$) они генерируются уже на разных частотах и, в принципе, в гамильтониане (3) мы должны учесть вклады обоих полей одновременно, причем с разными амплитудами. Однако, как следует из экспериментальных данных работы [17], полученных в схожих условиях в парах таллия, уже при $\Delta > 3\Gamma_L$ и для интенсивностей накачки $I_L \geq 1 \text{ МВт/см}^2$ генерация вынужденного излучения подавлена по сравнению с ВЭКР более чем на порядок. Поэтому в дальнейшем мы примем, что в случае $\Delta > \Gamma_L$ генерируется только стоксово излучение на частоте $\omega_S = \omega_L - \omega_{31}$, и соответственно положим $\Delta_1 = \Delta_0 = \Delta$ в (3).

Эволюция системы во времени описывается следующим уравнением для матрицы плотности ρ :

$$\frac{d\rho}{dt} = -\frac{i}{\hbar}[H, \rho] + \Lambda\rho, \quad (3)$$

где Λ — релаксационная матрица. В нашем случае продольная релаксация определяется спонтанным распадом уровней $|2\rangle$ и $|3\rangle$ и двухфотонной резонансной ионизацией. Ширину последней, Γ_{ion} , можно оценить с помощью формулы

$$\Gamma_{ion} = n_{ph}\sigma_{ion},$$

где n_{ph} — поток фотонов в импульсе накачки, а σ_{ion} — сечение однофотонной ионизации с уровня $|3\rangle$. Отсюда следует, что при $n_{ph} \sim 10^{23}-10^{24}$ фотон/ $\text{см}^2\cdot\text{с}$, что соответствует энергиям 0.1–1 мДж сфокусированного лазерного пучка с площадью поперечного сечения $S_0 \sim 10^{-3} \text{ см}^2$, и при стандартных значениях $\sigma_{ion} \approx 10^{-18}-10^{-17} \text{ см}^2$ имеем $\Gamma_{ion} \ll \tau_L$, где τ_L — длительность лазерного импульса. Радиационные ширины уровней $7^2P_{1/2,3/2}$ и $7^2S_{1/2}$ также малы по сравнению с τ_L^{-1} , так что продольными релаксациями в дальнейшем можно пренебречь. В поперечную релаксацию основной вклад дает уширение в результате резонансных столкновений с обменом возбуждением, обусловленных собственным давлением. Как показано в [18, 19], ширина однофотонных резонансных столкновений равна

$$\Gamma_{col} \approx 0.021N\lambda^3\gamma_{21}, \quad (4)$$

где λ — длина волны, а γ_{21} — естественная ширина линии перехода $|2\rangle-|1\rangle$, N — плотность паров. Согласно (4), даже при больших плотностях, когда $N \sim 10^{16} \text{ см}^{-3}$, величина Γ_{col} составляет всего $\Gamma_{col}/2\pi c \approx 10^{-2} \text{ см}^{-1}$, что намного меньше ширины накачки $\Gamma_L/2\pi c \approx 1 \text{ см}^{-1}$. Доплеровское уширение ($\Gamma_D/2\pi c \approx 10^{-2} \text{ см}^{-1}$) также мало по сравнению с Γ_L , что делает излишним усреднение конечных результатов по скоростям атомов. Таким образом, в уравнениях (3) следует учесть только фазовую модуляцию поля накачки. Представив поле $E_L(z, t)$ в виде

$$E_L(z, t) = |E_L(z, t)| \exp[-i\varphi(t)],$$

предположим, что модуляция фазы $\varphi(t)$ является случайным по времени t процессом с корреляционной функцией

$$\langle \exp[i\varphi(t)] \exp[-i\varphi(t')] \rangle = \exp[-\Gamma_L(t - t')]. \quad (5)$$

Хорошо известно [20, 21], что в области больших усилений фаза стоксовой волны следует за фазой поля накачки, так что можно записать

$$E_S(z, t) = |E_S(z, t)| \exp[-i\varphi(t)].$$

Тогда после замен

$$\rho_{21}(z, t) = \rho_{21} \exp[-i\varphi(t)],$$

$$\rho_{23}(z, t) = \rho_{23} \exp[-i\varphi(t)]$$

и усреднения уравнений (3) по флуктуациям фазы $\varphi(t)$ с учетом (5) получаем следующую систему уравнений для элементов матрицы плотности ρ_{ij} :

$$\dot{\rho}_{11} = 2\Omega_L \operatorname{Im} \rho_{21}, \quad (6)$$

$$\dot{\rho}_{33} = 2\Omega_S \operatorname{Im} \rho_{23}, \quad (7)$$

$$\dot{\rho}_{31} = i\Omega_L \rho_{32} - i\Omega_S \rho_{21}, \quad (8)$$

$$\dot{\rho}_{21} = (-i\Delta + \Gamma_L)\rho_{21} - i\Omega_L(\rho_{11} - \rho_{22}) - i\Omega_S \rho_{31}, \quad (9)$$

$$\dot{\rho}_{23} = -(i\Delta + \Gamma_L)\rho_{23} - i\Omega_S(\rho_{33} - \rho_{22}) - i\Omega_L \rho_{13}, \quad (10)$$

$$\rho_{22} = 1 - \rho_{11} - \rho_{33}, \quad (11)$$

которые решаются с начальными значениями $\rho_{ij} = \delta_{ij}\delta_{j1}$. Здесь действительные частоты Раби для полей $E_i(z, t)$ ($i = L, S$) определены как $\Omega_L = \mu_{21}|E_L|/\hbar$ и $\Omega_S = \mu_{23}|E_S|/\hbar$.

Учитывая, что $\Gamma_L \gg \tau_L^{-1}$, в уравнениях (9), (10) можем опустить производные по t и для ρ_{21} и ρ_{23} находим

$$\rho_{21} = -\frac{i}{\Delta - i\Gamma_L} [\Omega_L(\rho_{11} - \rho_{22}) + \Omega_S \rho_{31}], \quad (12)$$

$$\rho_{23} = -\frac{i}{\Delta - i\Gamma_L} [\Omega_S(\rho_{33} - \rho_{22}) + \Omega_L \rho_{13}]. \quad (13)$$

Распространение полей накачки и ИК-излучения задаются уравнениями Максвелла:

$$\frac{d}{dz} |E_L(z, t)| = \frac{2\pi\omega_L}{c} N \mu_{21} \operatorname{Im} \rho_{21}(z, t), \quad (14)$$

$$\frac{d}{dz} |E_S(z, t)| = \frac{2\pi\omega_S}{c} N \mu_{23} \operatorname{Im} \rho_{23}(z, t). \quad (15)$$

Удобно от (14), (15) перейти к уравнениям для $\Omega_i^2(z, t)$, которые имеют вид

$$\frac{d}{dz} \Omega_L^2(z, t) = \alpha \Omega_L^2(z, t) \operatorname{Im} \left[\frac{\Gamma_L}{\Omega_L} \rho_{21}(z, t) \right], \quad (16)$$

$$\frac{d}{dz} \Omega_S^2(z, t) = \alpha g \Omega_S^2(z, t) \operatorname{Im} \left[\frac{\Gamma_L}{\Omega_S} \rho_{23}(z, t) \right], \quad (17)$$

где

$$\alpha = \frac{4\pi N \omega_L \mu_{21}^2}{\hbar c \Gamma_L}, \quad g = \frac{\omega_S \mu_{23}^2}{\omega_L \mu_{21}^2}.$$

Мы считаем, что генерация ИК-излучения начинается со спонтанных шумов, интенсивность которых пропорциональна интенсивности накачки на входе в среду. Последняя задается в виде

$$I_L(z = 0, t) = I_L f(t), \quad (18)$$

где безразмерная функция $f(t)$ определяет времененную форму импульса накачки длительностью τ_L . Без нарушения общности можно считать, что импульсы накачки и ИК-излучения имеют одинаковую временную форму во всей области взаимодействия, т. е.

$$\Omega_i^2(z, t) = \Omega_i^2(z) f(z, t), \quad i = L, S, \quad (19)$$

где $f(z, t) = f(z = 0, t)$. Это приближение оправдывается тем, что временная зависимость поля $E_S(z, t)$ из (15) определяется функцией $\rho_{23}(t)$, а последняя, согласно (13), адиабатически изменяется в соответствии с полем накачки. Кроме того, оно позволяет существенно упростить вычисления, поскольку при выполнении (19) уравнения (6)–(8), (11) допускают аналитическое решение, если ввести новую переменную

$$\theta(z, t) = \int_{-\infty}^t f(z, \tau) d\tau.$$

Эти решения имеют довольно громоздкий вид, поэтому ниже мы приводим их только для $\operatorname{Im} \rho_{21}$ и $\operatorname{Im} \rho_{23}$:

$$\begin{aligned} \operatorname{Im} \left[\frac{\Gamma_L}{\Omega_L} \rho_{21} \right] = & -\frac{\Gamma_L^2}{V(\Delta^2 + \Gamma_L^2)} \times \\ & \times \left\{ U_L \exp(-V\theta) + U_S \exp(-V\theta) \times \right. \\ & \left. \times \left[\cos \left(\frac{V\theta\Delta}{\Gamma_L} \right) + \frac{\Delta}{\Gamma_L} \sin \left(\frac{V\theta\Delta}{\Gamma_L} \right) \right] \right\}, \quad (20) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \operatorname{Im} \left[\frac{\Gamma_L}{\Omega_S} \rho_{23} \right] = & \frac{U_L \Gamma_L^2}{V(\Delta^2 + \Gamma_L^2)} \exp(-V\theta) \times \\ & \times \left[\cos \left(\frac{V\theta\Delta}{\Gamma_L} \right) + \frac{\Delta}{\Gamma_L} \sin \left(\frac{V\theta\Delta}{\Gamma_L} \right) - \right. \\ & \left. - \exp(-3V\theta) \right], \quad (21) \end{aligned}$$

где

$$\begin{aligned} U_i(z) &= \frac{\Omega_i^2(z)}{\Delta^2 + \Gamma_L^2} \quad (i = L, S), \\ V(z) &= U_L(z) + U_S(z). \end{aligned}$$

В эксперименте измеряется выходная энергия излучений. Поэтому имеет смысл перейти от (20), (21) к уравнениям для величин

$$\begin{aligned} W_i(z) &= \frac{\Omega_i^2(z) \theta_\infty(z)}{\Gamma_L}, \quad i = L, S, \\ \theta_\infty(z) &= \int_{-\infty}^{\infty} f(z, t) dt, \end{aligned} \quad (22)$$

которые при умножении на площадь поперечного сечения S_i ($i = L, S$) совпадают с точностью до постоянных коэффициентов с энергиями в импульсах накачки и ИК-излучения. В случае накачки, однако, нужно соблюдать осторожность, поскольку из-за фокусировки лазерного пучка величина S_L становится функцией расстояния z , и, очевидно, даже в отсутствие активных атомов интенсивность накачки обратно пропорциональна сечению пучка $S_L(z)$. Нетрудно убедиться, что в уравнении для $W_L(z)$ эта зависимость учитывается дополнительным членом $-(W_L(z)/S_L) dS_L/dz$. Подставляя (20), (21) в уравнения (16), (17) и интегрируя по времени, для $W_i(z)$ окончательно получаем следующие уравнения:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dz} W_L(z) = & -\alpha \frac{W_L}{4(W_L + W_S)^2} \times \\ & \times \left\{ W_L [1 - \exp(-4I(z))] + \right. \\ & + 4W_S \left[1 - \exp(-I(z)) \cos \left(\frac{\Delta}{\Gamma_L} I(z) \right) \right] \left. \right\} - \\ & - \frac{W_L}{S_L} \frac{d}{dz} S_L, \quad (23) \end{aligned}$$

$$\frac{d}{dz} W_S(z) = \alpha g \frac{W_L W_S}{4(W_L + W_S)^2} \left\{ 3 + \exp(-4I(z)) - \right. \\ \left. - 4 \exp(-I(z)) \cos \left(\frac{\Delta}{\Gamma_L} I(z) \right) \right\}, \quad (24)$$

где

$$I(z) = \frac{[W_L(z) + W_S(z)] \Gamma_L^2}{\Delta^2 + \Gamma_L^2}.$$

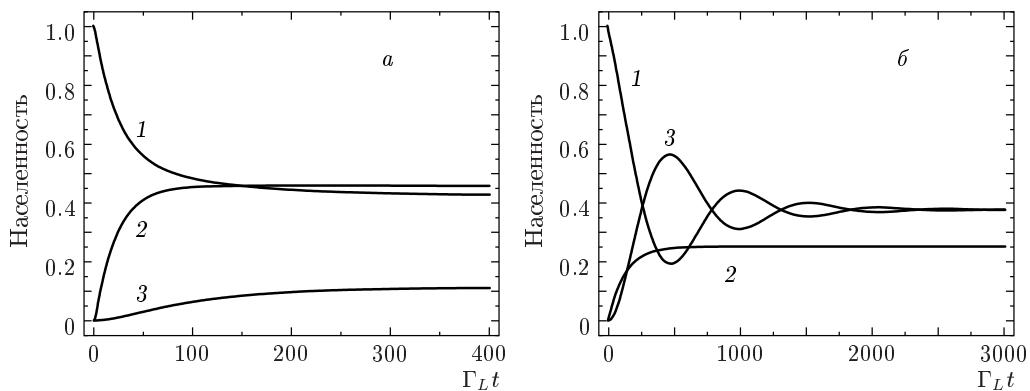


Рис. 5. Зависимость населенностей атомных уровней от времени (нормированного на Γ_L^{-1}) в случаях: *а* — $\Delta = 0$, $\Omega_L = 0.1\Gamma_L$ (соответствует интенсивности накачки около $0.1 \text{ МВт}/\text{см}^2$), $\Omega_S = 0.01\Gamma_L$ и *б* — $\Delta = 3\Gamma_L$, $\Omega_L = \Omega_S = 0.1\Gamma_L$, $\Gamma_L/2\pi c = 1 \text{ см}^{-1}$. Цифры у кривых соответствуют номерам атомных уровней

Уравнения (23), (24) интегрируются численно с заданными начальными значениями $W_i(0)$ и при известной функции $S_L(z)$. Величину $W_L(0)$ легко найти, зная начальные энергию и диаметр лазерного пучка. Для ИК-излучения, которое генерируется из спонтанных шумов, $W_S(0)$ задается в виде

$$W_S(0) = \frac{C\Gamma_L^2}{\Delta^2 + \Gamma_L^2} W_L(0), \quad (25)$$

где коэффициент C содержит неизвестные параметры, такие как площадь поперечного сечения ИК-импульса, телесный угол рассеяния и т. д. В то же время нет необходимости точно знать значение C , поскольку от него зависит только относительная величина генерированной энергии ИК-излучения. Последняя более чувствительна к отношению матричных элементов $g \sim \mu_{23}^2/\mu_{21}^2$, как это следует из уравнения (24). Поэтому g можно использовать в качестве подгоночного параметра при сравнении теоретических результатов с данными эксперимента. Для численного интегрирования уравнений (6)–(11) и (23), (24) будем использовать параметры, соответствующие переходу $6^2S_{1/2}-7^2P_{1/2}$ атома цезия. При этом коэффициент поглощения накачки для $N = 10^{12} \text{ см}^{-3}$ оказывается порядка $\alpha \approx 10^{-2} \text{ см}^{-1}$. Площадь поперечного сечения $S(z)$ импульса накачки как функция z аппроксимируется в соответствии с тем, что лазерный пучок фокусируется в центр кюветы длиной $l = 20 \text{ см}$ и имеет диаметр $d \approx 0.5 \text{ см}$ на входе в среду и $d \approx 0.05 \text{ см}$ в области фокальной плоскости. Это приводит к тому, что на малых расстояниях интенсивность накачки настолько мала, что генерация ИК-излучения отсутствует. Она имеет место только в области сильной фокусировки

лазерного пучка, длину которой в наших вычислениях мы выбрали равной приблизительно 2 см.

На рис. 5 показана временная зависимость населенностей атомных уровней для разных значений интенсивностей полей и расстройки Δ . Видно, что при нулевой расстройке, $\Delta = 0$, и слабом ИК-излучении (рис. 5*a*) населенности атома очень быстро выходят на постоянное значение, причем уровень $|3\rangle$ заселяется слабо, а состояния $|1\rangle$ и $|2\rangle$ имеют примерно одинаковые населенности. Обратная ситуация имеет место при больших расстройках и значительном усилении ИК-излучения (рис. 5*б*), когда его частота Раби Ω_S становится равной Ω_L (здесь следует иметь в виду, что $\mu(7^2S_{1/2}-7^2P_{1/2}) \gg \mu(6^2S_{1/2}-7^2P_{1/2})$). При этом наблюдаются временные осцилляции населенностей состояний $|1\rangle$ и $|3\rangle$, которые не что иное, как осцилляции Раби при двухфотонном переходе $|1\rangle-|3\rangle$. Очевидно, что эти осцилляции должны проявляться также в частотной зависимости ИК-излучения (см. ниже, рис. 10). Необходимо отметить, что осцилляции Раби отсутствуют в случае $\Delta < \Gamma_L$ из-за сильной дефазировки атомных поляризаций на переходах $|1\rangle-|2\rangle$ и $|2\rangle-|3\rangle$, вызванной некогерентностью поля накачки. Напомним, что в условиях настоящего эксперимента $\Gamma_L \tau_L \approx 4000$.

На рис. 6 приведен спектр прохождения накачки при входной энергии 300 мкДж для разных значений плотности паров. В области точного резонанса поглощение и ширина спектра сильно растут с ростом N , что согласуется с данными эксперимента. Выходная энергия ИК-излучения в зависимости от частоты накачки показана на рис. 7. В случае $N = 10^{12} \text{ см}^{-3}$ (рис. 7*a*) наблюдается острый пик

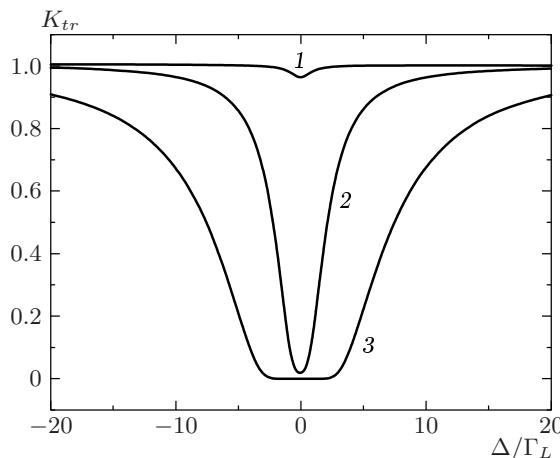


Рис. 6. Коэффициент пропускания кюветы с параметрами цезия как функция расстройки Δ при концентрации паров $N = 10^{12} \text{ см}^{-3}$ (1), 10^{14} см^{-3} (2) и 10^{15} см^{-3} (3)

при $\Delta = 0$ с шириной примерно Γ_L , причем величина пика растет с ростом энергии накачки. С увеличением плотности паров до $N = 10^{14} \text{ см}^{-3}$ (рис. 7б, в) в центре линии генерации появляется провал, глубина которого тем меньше, чем больше входная энергия накачки. Причина возникновения провала состоит в том, что при больших плотностях паров и малых значениях Δ накачка сильно поглощается уже на малых расстояниях. Поэтому генерация ИК-излучения сильно подавлена при малых Δ и наблюдается только для значений Δ , для которых поглощение накачки невелико. С ростом входной энергии накачки ее поглощение при малых Δ все еще имеет место. Однако, как это видно на рис. 8, оно уже не полное, что приводит к уменьшению глубины провала в энергии ИК-излучения. На рис. 9 показана зависимость генерации ИК-излучения при $\Delta = 0$ от температуры паров T для разных значений энергии накачки. Качественное согласие этих результатов с экспериментальными данными также неплохое.

Наконец, обсудим возможность наблюдения осцилляций интенсивности ИК-излучения по Δ , о которых говорилось выше. Эти осцилляции определяются последним членом в правой части уравнения (24), пропорциональным $\cos(I(z)\Delta/\Gamma_L)$. К сожалению, из-за малости множителя $\exp[-I(z)]$ эффект проявляется довольно слабо. В частности, в случае $N = 10^{15} \text{ см}^{-3}$ в интенсивности ИК-излучения при $\Delta = 0$ возникает слабовыраженный максимум (рис. 10), что трудно наблюдать экспериментально.

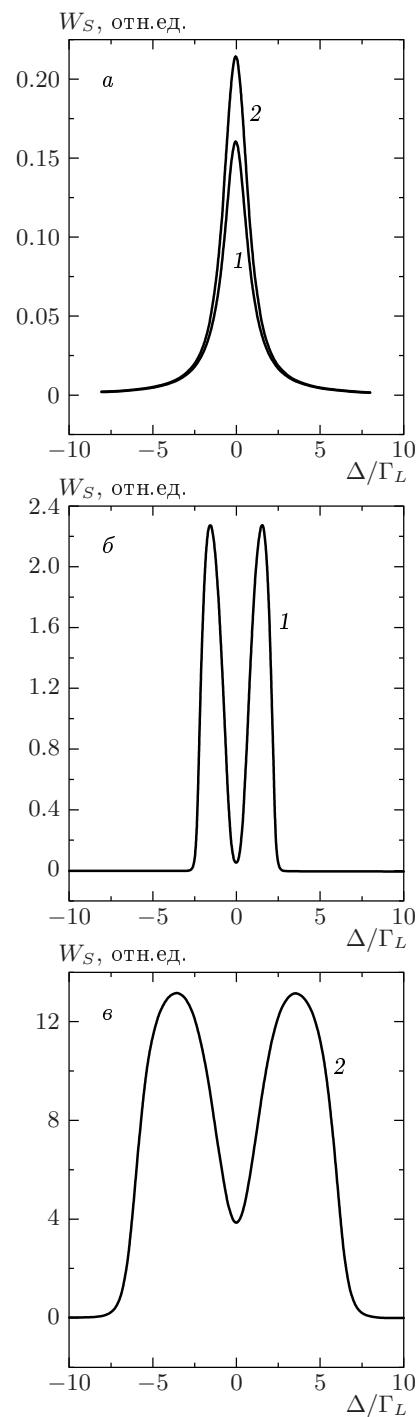


Рис. 7. Выходная энергия ИК-излучения как функция расстройки Δ в случаях $N = 10^{12} \text{ см}^{-3}$ (а) и 10^{14} см^{-3} (б, в) при начальной энергии накачки $W_L(0) = 0.04 \text{ мДж}$ (кривые 1) и 0.3 мДж (кривые 2). Параметр g в уравнении (24) выбран равным

$$g = 40$$

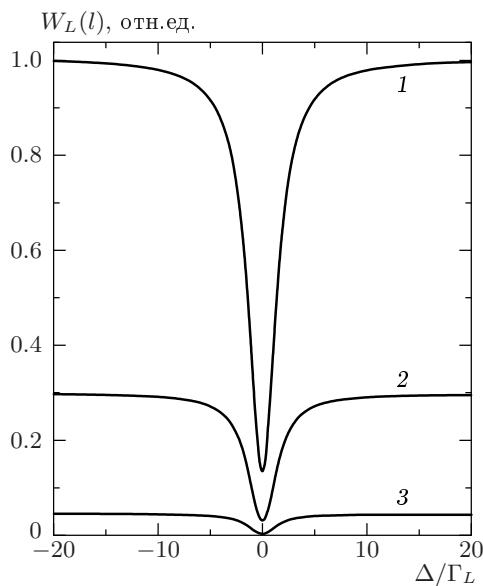


Рис. 8. Зависимость энергии накачки при $z = l/2$, где $l = 20 \text{ см}$ — длина кюветы, от расстройки Δ в случае $N = 10^{14} \text{ см}^{-3}$ для трех значений начальной энергии накачки: $W_L(0) = 1 \text{ мДж}$ (1), 0.3 мДж (2) и 0.1 мДж (3)

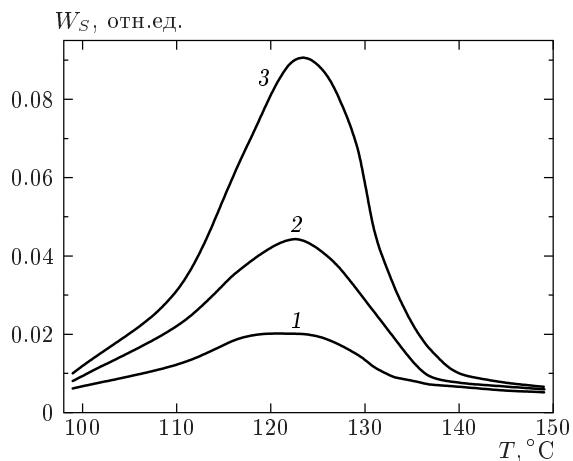


Рис. 9. Зависимость энергии ИК-излучения при $\Delta = 0$ от температуры паров для трех значений начальной энергии накачки $W_L(0) = 0.1 \text{ мДж}$ (1), 0.3 мДж (2) и 1 мДж (3); $g = 40$

5. ВЫВОДЫ

Таким образом, в настоящей работе экспериментально и теоретически исследовано влияние однофотонного резонансного поглощения накачки на эффективность ИК ВЭКР в парах цезия. Показано, что его роль существенно возрастает с ростом плот-

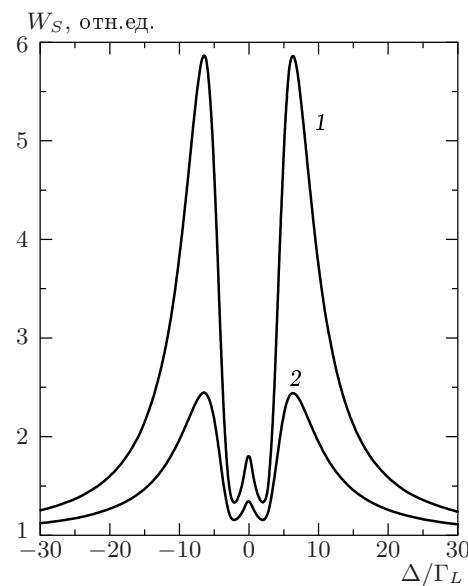


Рис. 10. Выходная энергия ИК-излучения как функция расстройки Δ в случае $N = 10^{15} \text{ см}^{-3}$ для начальной энергии накачки $W_L(0) = 1 \text{ мДж}$ (1) и 0.3 мДж (2); $g = 40$. В области $\Delta = 0$ наблюдается слабый максимум

ности атомов рабочей среды, что приводит к практически полному подавлению стоксова сигнала вблизи резонанса. Определена оптимальная температура паров, при которой эффективность возбуждения ИК ВЭКР максимальна и может достигать 40 % по числу квантов.

На основе модели трехуровневого атома развита теория резонансного ИК ВЭКР в парах щелочных металлов с учетом поглощения накачки, которая хорошо описывает экспериментально наблюдавшиеся особенности возбуждения ИК-излучения.

Полученные результаты могут быть использованы при разработке компактных, высокоэффективных лазерных источников на основе процесса резонансного ВЭКР в парах щелочных металлов, генерирующих мощное вынужденное ИК-излучение, перестраиваемое по частоте в ближнем и среднем ИК-диапазонах.

ЛИТЕРАТУРА

1. D. Cotter, D. C. Hanna, and R. Wyatt, Opt. Comm. **16**, 256 (1976).
2. D. Cotter and D. C. Hanna, Quant. Electr. **9**, 509 (1977).

3. A. L. Harris and N. S. Levinson, Appl. Opt. **26**, 3996 (1987).
4. D. Cotter, D. C. Hanna, P. A. Karkainen, and R. Wyatt, Opt. Comm. **15**, 143 (1975).
5. Д. Г. Саркисян, А. А. Бадалян, С. О. Сапонджян и др., КЭ **13**, 872 (1986).
6. Д. Г. Саркисян, КЭ **15**, 2358 (1988).
7. R. Wyatt and D. Cotter, Opt. Comm. **32**, 481 (1980).
8. M. Berg and A. L. Harris, Opt. Lett. **9**, 50 (1984).
9. H. Ohde, S. Lin, A. Minoh et al., Appl. Phys. B **62**, 15 (1996).
10. D. Popescu, C. B. Collins, B. W. Johnson, and I. Popescu, Phys. Rev. A **9**, 1182 (1974).
11. B. R. Mollow, Phys. Rev. A **5**, 1522 (1972).
12. Н. Н. Костин, М. П. Соколова, В. А. Ходовой, В. В. Хромов, ЖЭТФ **62**, 475 (1972).
13. А. М. Бонч-Бруевич, С. Г. Пржибельский, В. А. Ходовой, Н. А. Чигирь, ЖЭТФ **70**, 445 (1976).
14. С. Г. Раутиан, Г. И. Смирнов, А. М. Шалагин, *Нелинейные резонансы в спектрах атомов и молекул*, Наука, Новосибирск (1979).
15. D. H. Sarkisyan, A. S. Sarkisyan, and A. K. Yalanusyan, Appl. Phys. B **66**, 241 (1998).
16. S. E. Harris, G. Y. Yin, M. Jain et al., Phil. Trans. Roy. Soc. Lond. A **355**, 2291 (1997).
17. M. G. Raymer and J. L. Carlsten, Phys. Rev. Lett. **39**, 1326 (1977).
18. А. П. Казанцев, ЖЭТФ **51**, 1751 (1969).
19. P. R. Berman and W. E. Lamb, Phys. Rev. **187**, 221 (1969).
20. С. А. Ахманов, К. Н. Драбович, А. П. Сухоруков, А. С. Чиркин, ЖЭТФ **59**, 485 (1970).
21. R. L. Carman, F. Shimizu, C. S. Wang, and N. Bloembergen, Phys. Rev. A **2**, 60 (1970).