

Оптический эффект Штарка и керровские нелинейности атомных сред в нелинейно-оптических процессах

И.А.Кулагин, Т.Усманов

Показано, что резонансное усиление оптического эффекта Керра и оптический эффект Штарка одного порядка обусловлены одним и тем же изменением состояния атомной системы. На основе анализа известных экспериментальных данных продемонстрирована тождественность их влияния на нелинейно-оптические процессы. Показано, что раздельный учет влияния штарковского сдвига и резонансно усиленных керровских нелинейностей приводит к некорректным результатам.

Ключевые слова: оптический эффект Керра, оптический эффект Штарка, генерация гармоник.

Одними из основных факторов, определяющих взаимодействие оптического излучения с атомными средами, являются оптические эффекты Керра и Штарка. Описание этих эффектов проводится с помощью теории возмущения, в рамках которой за исходный базис принимается невозмущенный атомный спектр, а действие поля сводится к малым поправкам к невозмущенным энергиям связанных состояний [1–4]. При этом штарковский сдвиг уровня можно разложить в ряд по степеням поля, коэффициенты которого являются восприимчивостями различного порядка [5]. В частности, коэффициент пропорциональности квадратичного по полю сдвига основного уровня является линейной поляризуемостью атома, сдвига четвертого порядка – керровской нелинейностью третьего порядка. Керровскими нелинейностями третьего порядка описывается квадратичный (электронный) эффект Керра. Таким образом, эти два эффекта связаны между собой.

Однако существует и более глубокая связь, обусловленная одной природой возникновения штарковского сдвига и резонансных частей оптических нелинейностей, в частности керровских нелинейностей. Тем не менее в различных работах оба эти фактора рассматриваются как независимые и проводится анализ их взаимной конкуренции и компенсации (см., напр., работу [6] и цитируемые в ней ссылки, а также [7, 8]). В настоящей работе показано, что оптический штарковский сдвиг уровней атомных состояний и их вклад в керровскую нелинейность того же порядка обусловлены одним и тем же изменением состояния атомной системы, и проведен анализ влияния этих эффектов на преобразование частоты лазерного излучения в газообразных средах.

Отклик атомной среды на резонансное взаимодействие с оптическим излучением вида $\mathcal{E}_1 = \{E_1 \exp[i(\omega t - k_1 z)] + \text{компл. сопр.}\}/2$ может быть описан суммой резонансных и нерезонансных частей поляризации [4–6]. Резонансная часть поляризации пропорциональна элемен-

ту матрицы плотности резонансного перехода σ_{n1} . Эволюция σ_{n1} может быть описана в рамках модели обобщенной двухуровневой системы [4, 5]:

$$\frac{\partial \sigma_{n1}}{\partial t} + i \left(\delta + \Omega_n - \frac{i}{T_2} \right) \sigma_{n1} = \frac{i}{\hbar} \eta V_n, \quad (1)$$

$$\frac{\partial \eta}{\partial t} + \frac{\eta - \eta_0}{T_1} = -\frac{4}{\hbar} \text{Im}(\sigma_{n1} V_n^*),$$

где η – разность населенностей резонансного перехода; η_0 – равновесная разность населенностей; T_1 и T_2 – времена продольной и поперечной релаксации; $\delta = \omega_{n1} - \omega$ – частотная отстройка от резонанса; вид возмущения V_n определяется порядком резонанса n ; аналогично параметр штарковского сдвига Ω_n определяется порядком используемого приближения n . В третьем порядке метода усреднения

$$V_1 = \frac{1}{2} q_1 E_1 + \frac{1}{8} q_3 |E_1|^2 E_1, \quad V_2 = \frac{1}{4} q_2 E_1^2,$$

$$\Omega_2 = (4\hbar)^{-1} [\chi_1^{(1)}(\omega; \omega) - \chi_n^{(1)}(\omega; \omega)] |E_1|^2,$$

где $\chi_i^{(1)}(\omega; \omega)$ – линейная восприимчивость атома, находящегося в состоянии $|i\rangle$; q_n – составной матричный элемент, вид которого определяется порядком резонанса ($q_1 = \mu_{12}$, $q_2 = \hbar^{-1} \sum' \mu_{1i} \mu_{i3} (\omega_{i1}^r - \omega)^{-1}$ и т. д.; $\omega_{ij}^r = \omega_{ij} - i/T_{ij}$; μ_{ij} и ω_{ij} – матричный элемент дипольного момента и частота перехода между состояниями $|i\rangle$ и $|j\rangle$). Штрих означает отсутствие учета резонансного члена. Решения (1) в стационарном случае и в приближении адиабатического слежения имеют соответственно вид (см., напр., [6])

$$\sigma_{n1}^s = \frac{[i + (\delta + \Omega_n) T_2] T_2 \eta_0 V_n}{1 + (\delta + \Omega_n)^2 T_2^2 + 4 T_1 T_2 |V_n|^2}, \quad (2)$$

$$\sigma_{n1}^a = \frac{[i + (\delta + \Omega_n) T_2] \eta_0 V_n}{[(\delta + \Omega_n)^2 + 4 |V_n|^2]^{1/2} (\delta + \Omega_n) T_2}. \quad (3)$$

Выражения для линейных восприимчивостей и нелинейностей, описывающих оптический эффект Керра, можно получить на основе методов теории возмущения (см., напр., [2–5, 9]):

$$\chi^{(1)}(\omega; \omega) = \hbar^{-1} \sum_i \mu_{i1} \mu_{i1} \left[(\omega_{i1}^r - \omega)^{-1} + (\omega_{i1}^r + \omega)^{-1} \right], \quad (4)$$

$$\chi^{(3)}(\omega; \omega, \omega, -\omega) = \hbar^{-3} \sum_{ijk} \mu_{ij} \mu_{jk} \mu_{ki} (C_{1i,1j,1k} - C_{i1,j1,k1}), \quad (5)$$

где

$$\begin{aligned} C_{1i,1j,1m} &= [(\omega_{k1}^r - \omega)^{-1} + (\omega_{k1}^r + \omega)^{-1}] \\ &\times (\omega_{i1}^r - \omega)^{-1} (\omega_{j1}^r - 2\omega)^{-1} \pm (1 - \delta_{1j}) \\ &\times [(\omega_{k1}^r - \omega)^{-1} + (\omega_{k1}^r + \omega)^{-1}] (\omega_{j1}^r \pm \omega)^{-1} / \omega_{i1}^r \\ &+ \delta_{1j} [(\omega_{k1}^r - \omega)^{-1} + (\omega_{k1}^r + \omega)^{-1}] (\omega_{i1}^r \pm \omega)^{-2}. \quad (6) \end{aligned}$$

Отметим, что наличие секулярных членов при выводе (5) создает необходимость решения уравнений вида (1). Это приводит к отличию (6) от выражений, полученных феноменологическим путем, которое заключается в появлении последнего члена в правой части (6). Из анализа (5) следует, что штарковский сдвиг и соответствующая часть керровской нелинейности описываются одним и тем же изменением σ_{n1} . Последнее можно также заметить, разлагая в ряд (2) и (3) с учетом (4)–(6) при небольшом сдвиге $\Omega_n \ll \delta$ и существенной отстройке от резонанса $\delta \gg 1/T_2$.

В случае одnofотонного резонанса первый член разложения описывает резонансный вклад в линейную восприимчивость, а также вклад в керровскую нелинейность третьего порядка, обратно пропорциональный частотной отстройке (члены разложения более высокого порядка в методе усреднения описывают вклад в керровские нелинейности более высокого порядка, также обратно пропорциональные частотной отстройке). Второй член разложения описывает вклад в керровские нелинейности третьего и пятого порядков, обратно пропорциональные квадрату частотной отстройки. При этом сдвиг возбужденного и основного уровней соответствует вкладу во второе и третье слагаемые суммы (6) соответственно. Аналогичным образом можно сопоставить вклады в керровские нелинейности в случае резонанса более высокого порядка.

Таким образом, при необходимости учета штарковского сдвига требуется исключение из анализа резонансного вклада соответствующих членов во всех типах нелинейностей различного порядка (как нелинейностей, описывающих самовоздействие излучения, так и нелинейностей, определяющих воздействие излучений друг на друга, например нелинейностей вида $\chi^{(3)}(\omega_i; \omega_i, \omega, -\omega)$, $\chi^{(5)}(3\omega; \omega, \omega, \omega, -\omega)$ и т. п.).

Игнорирование этого обстоятельства может привести к некорректным результатам. В частности, в работе [8] экспериментально и теоретически исследовалась генерация третьей гармоники излучения пикосекундного Nd:YLF-лазера в ксеноне вблизи трехфотонного резонанса в условиях сильной фокусировки в центр среды (длина среды L много больше конфокального параметра b). В данной области дисперсия среды является положительной и, как следует из анализа, сигнал гармоники не должен наблюдаться из-за фазового сдвига, вызванного фокусировкой [6]. Однако в эксперименте сигнал третьей гармоники наблюдался и его степенная зависимость от интенсивности основного излучения имела необычно высокий

порядок. Проведенный в [8] анализ влияния оптического эффекта Штарка показал, что в данных условиях этот эффект увеличивает отстройку от резонанса, не изменяя знака дисперсии и снижая эффективную нелинейность. Из этого был сделан вывод, что оптический эффект Штарка не является ответственным за преобразование и генерация гармоники обусловлена нелинейностью пятого порядка. При использовании выражений из работ [10, 11], описывающих генерацию третьей гармоники в сфокусированных пучках на нелинейности пятого порядка, и феноменологическом описании резонансно усиленного влияния керровской нелинейности было получено согласие между экспериментальными и теоретическими зависимостями сигнала гармоники от давления ксенона. Однако расчет на основе выражений [10, 11] соотношения между сигналами гармоники при оптимальных давлениях в различных условиях фокусировки приводит к отличию от экспериментально полученного соотношения более чем в 300 раз. Таким образом, представленный анализ [8] не позволил описать эксперимент, и механизмы генерации гармоники остались невыявленными.

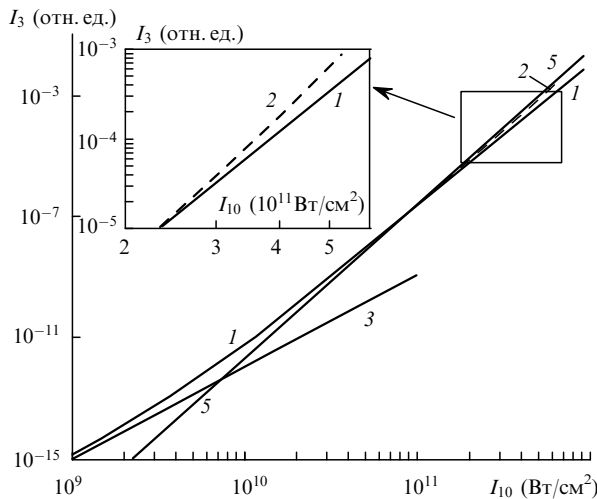
Аналогично [12] в условиях трехфотонного резонанса и в приближении адиабатического слежения для амплитуды третьей гармоники низшей моды гауссова пучка основного излучения ($E_1(\xi, r) = E_{10} \exp\{-k_1 r^2 / [b(1 + i\xi)]\} / (1 + i\xi)$, где $\xi = 2(z - f)/b$; E_{10} – максимальная амплитуда пучка в перетяжке; f – положение перетяжки пучка; z и r – продольная и поперечная координаты) получаем выражение

$$\begin{aligned} E_3(\xi, r) &= i \frac{bu_1 \gamma E_{10}^3}{2(1 + i\xi)} \exp \left[-\frac{3k_1 r^2}{b(1 + \xi^2)} - \varepsilon \kappa \int_{\xi_0}^{\xi} \frac{d\xi_1}{Z(\xi_1, r)} \right] \\ &\times \int_{\xi_0}^{\xi} \frac{1 + i\varepsilon}{Z(\xi_1, r)} \exp \left\{ i \left[\alpha \xi_1 - 2 \tan^{-1} \xi_1 \right. \right. \\ &\left. \left. - \kappa(1 + i\varepsilon) \int_{\xi_0}^{\xi_1} \frac{d\xi_2}{Z(\xi_2, r)} \right] \right\} \frac{d\xi_1}{1 + \xi_1^2}, \quad (7) \end{aligned}$$

где $\kappa = bu_3 \gamma / 2$; $\varepsilon = (\delta T_2)^{-1}$; $Z(\xi, r) = [(1 + \Omega_d)^2 + v|E_1|^6]^{1/2}$; $a = b \Delta k' / 2$; $u_1 = q_3 \eta_0 / (8\hbar \delta)$; $u_3 = \mu_{41} \eta_0 (2\hbar \delta)^{-1}$; $v = 4u_1^2$; $\Omega_d = \Omega_2 / \delta = \Omega_p / |E_1|^2$; $\gamma = 4\pi \omega_3^2 \mu_{14} N / (k_3^3)$; $\Delta k' = 3k_1 - k_3^2$ – фазовая расстройка; ω_3 и k_3 – частота и волновое число излучения гармоники; N – плотность среды. Выражение (7) приведено с точностью до постоянного фазового множителя.

Анализ (7) показывает, что в условиях сильной фокусировки лазерного излучения в средах с положительной дисперсией эффективная генерация третьей гармоники возможна и может быть обусловлена влиянием как оптического эффекта Штарка, так и насыщения. Последнее аналогично результатам работы [12], где проводился анализ генерации третьей гармоники в условиях двухфотонного резонанса. В этом случае генерация гармоники обусловлена изменением условий преобразования до и после перетяжки пучка, что нарушает условия полной перекачки излучения гармоники, генерируемой до перетяжки, в основное излучение после перетяжки пучка.

На рисунке приведена зависимость интенсивности гармоники от интенсивности основного излучения при $\kappa = 1$, $\Omega_p = 10^{-12}$ см²/Вт, $\alpha = 0$, $\varepsilon = 0$. При небольших интенсивностях основного излучения сигнал гармоники



Зависимость интенсивности третьей гармоники I_3 от интенсивности основного излучения I_{10} при определяющем влиянии оптического эффекта Штарка (1) или керровских нелинейностей (2). Прямые линии соответствуют степенным зависимостям третьего (3) и пятого (5) порядков, на вставке степенная зависимость 5 опущена.

обусловлен неточным выполнением условий сильной фокусировки (в расчетах $L/b = 40$). С ростом интенсивности сигнал гармоники резко возрастает и зависимость становится близкой к степенной зависимости пятого порядка. При дальнейшем росте интенсивности сигнал гармоники насыщается. В эксперименте наблюдалась степенная зависимость сигнала гармоники с показателем степени 4.2 [8].

Полученное на основе выражения (7) при параметрах, близких к параметрам эксперимента [8], соотношение оптимальных давлений при использовании трех линз с разными фокусными расстояниями равно 0.5:1:1.2, в эксперименте оно составило 0.8:1:1.1. (За изменение оптимальных давлений в данном случае ответственно также резонансное поглощение гармоники.) При этом сигналы гармоники должны относиться как 0.15:1:0.72, в эксперименте данное соотношение было приблизительно равно 0.125:1:0.73. Таким образом, полученное удовлетворительное согласие с экспериментом свидетельствует о том, что генерация гармоники в данном случае определяется оптическим эффектом Штарка.

Вдали от резонанса нарушение условий компенсации и генерация гармоники в условиях сильной фокусировки могут быть описаны в терминах керровских нелинейностей [13–16]. На рисунке штриховой линией 2 приведена зависимость, рассчитанная на основе методики [16] при $\alpha = -1$ и $\lambda = (-10^{-12} \text{ Вт/см}^2)/I_{10}$. (Параметр λ описывает влияние нелинейности $\chi^{(3)}(\omega_3; \omega_3, \omega, -\omega)$ [16].) Из рисунка видно, что в данном случае влияние оптических эффектов Керра и Штарка приводит к тождественным результатам при относительно небольших интенсивностях основного излучения. Зависимость сигнала третьей гармоники от интенсивности основного излучения, близкая к степенной зависимости пятого порядка, наблюдалась в экспе-

риментах [17–19], где исследовалась генерация третьей гармоники в инертных газах. Критерием механизма генерации гармоники может служить зависимость от плотности среды. При небольших плотностях влияние эффекта Керра приводит к степенной зависимости четвертого порядка, если же механизм генерации обусловлен шести-волновым процессом, то подобная зависимость должна быть квадратичной [10]. В эксперименте [18] эта зависимость была близка к зависимости четвертого порядка.

Таким образом, штарковский сдвиг и резонансные части керровских нелинейностей вызваны одним и тем же изменением состояния среды и их влияние является неразделимым. Выбор способа описания зависит от конкретной экспериментальной ситуации. При необходимости учета штарковского сдвига требуется исключение из анализа резонансного вклада соответствующих членов во всех типах нелинейностей различного порядка.

1. Собельман И.И. *Введение в теорию атомных спектров* (М., Наука, 1977).
2. Делоне Н.Б., Крайнов В.П. *Основы нелинейной оптики атомарных газов* (М., Наука, 1986).
3. Бломберген Н. *Нелинейная оптика* (М., Наука, 1965).
4. Бутылкин В.С., Каплан А.Е., Хронопулло Ю.Г., Якубович Е.И. *Резонансные взаимодействия света с веществом* (М., Наука, 1977).
5. Клышко Д.Н. *Физические основы квантовой электроники* (М., Наука, 1986).
6. Райнтжес Дж. *Нелинейные оптические процессы в жидкостях и газах* (М., Мир, 1987).
7. Middleman D.M., Douglass D.C., Henis Z., Wood II O.R., Freeman R.R., McIlrath T.J. *J. Opt. Soc. Amer. B*, **13**, 170 (1996).
8. Kutzner J., Zacharias H. *Appl. Phys. B*, **66**, 571 (1998).
9. Puell H., Vidal C.R. *Phys. Rev. A*, **14**, 2225 (1976).
10. Дубовик А.Н. *Вестн. Моск. ун-та. Сер. III*, **18**, 82 (1977).
11. Lago A., Hilber G., Wallenstein R. *Phys. Rev. A*, **36**, 3827 (1987).
12. Аникин В.И., Гора В.Д., Драбович К.Н., Дубовик А.Н. *Квантовая электроника*, **3**, 330 (1976).
13. Драбович К.Н., Кулагин И.А., Усманов Т. *Квантовая электроника*, **12**, 616 (1985).
14. Бутылкин В.С., Федорова М.Б. *Квантовая электроника*, **21**, 158 (1994).
15. Бутылкин В.С. *Квантовая электроника*, **25**, 541 (1998).
16. Кулагин И.А., Усманов Т. *Квантовая электроника*, **25**, 1121 (1998).
17. Reintjes J., Dlabal M., Tankersley L.L. *Proc. Conf. on Laser Techniques for Extreme Ultraviolet Spectroscopy* (Boulder, CO, 1982; Washington, DC, OSA, 1983, p.491).
18. Ganeev R.A., Gorbushin V.V., Kulagin I.A., Usmanov T. *Appl. Phys. B*, **41**, 69 (1986).
19. L'Hullier A., Lompre L.A., Ferray M., Mainfray G. *Europhys. Letts*, **5**, 601 (1988).

I.A.Kulagin, T.Usmanov. Optical Stark effect and Kerr nonlinearities of atomic media in nonlinear optical processes.

It is shown that the resonant enhancements of the optical Kerr effect and the optical Stark effect of the same order are caused by one and the same change in the state of an optical system. The analysis of the known experimental data is made, which shows the identity of their influence on nonlinear optical processes. It is shown that a separate analysis of the influence of Stark shift and resonantly enhanced Kerr nonlinearities leads to incorrect results.