

Временная динамика комбинационно-параметрического преобразования в среде с наведенной вращательной когерентностью

А.В.Андреев, А.А.Валеев, В.Б.Морозов, А.Н.Оленин, В.Г.Тункин

Получена коллинеарная генерация излучения с многокомпонентным спектром при рассеянии импульсов пикосекундной длительности в газообразном водороде, когерентно возбужденном с помощью импульсной бигармонической накачки, резонансной с комбинационно-активным вращательным переходом $S_0(1)$. Генерация характеризуется почти полным преобразованием пробных импульсов с длиной волны 355 нм в излучение с многокомпонентным спектром общей протяженностью $\sim 5000 \text{ см}^{-1}$ и расстоянием между компонентами 587 см^{-1} . В плосковолновом бездисперсионном приближении получено в спектральном и временном представлении решение системы уравнений для четырехфотонного комбинационно-параметрического взаимодействия, описывающей преобразование пробного излучения в газовой среде с наведенной когерентностью в произвольное число взаимодействующих спектральных компонент. Учет во втором порядке теории дисперсии обеспечивает хорошее согласие с результатами экспериментов по преобразованию в различные спектральные компоненты в зависимости от задержки пробного импульса.

Ключевые слова: комбинационно-активная среда, фазовая и частотная модуляция, когерентное рассеяние.

1. Введение

Комбинационно-параметрическое преобразование лазерной накачки молекулярной средой может сопровождаться генерацией излучения со спектром, состоящим из большого числа линий и перекрывающим широкую спектральную область в ИК, видимом и УФ диапазонах. Подобное преобразование рассматривалось в достаточно большом числе экспериментальных работ в качестве эффективного способа получения многочастотного излучения со спектром, состоящим из эквидистантных или квазиэквидистантных спектральных линий, при колебательном и/или вращательном ВКР и резонансных параметрических процессах, в частности в газообразном водороде [1–9].

ВКР-преобразование импульсов пико- и фемтосекундной длительности, протекающее в существенно нестационарных условиях, имеет ряд особенностей. Например, возможность распространения солитонов в условиях как резонансного, так и нерезонансного ВКР [10, 11]. Интересной является идея использования ВКР и четырехфотонных комбинационно-параметрических процессов наряду с фазовой самомодуляцией [12] и генерацией гармоник высокого порядка [13, 14] для получения фемто- и субфемтосекундных импульсов [9]. Несмотря на значительное число опубликованных работ, остаются малоизученными способы получения и спектрально-временные свойства генерируемого излучения.

В настоящей работе экспериментально исследуется генерация ряда стоксовых и антистоксовых компонент при распространении пробных импульсов в молекулярном водороде, возбуждаемом импульсной бигармони-

ческой накачкой, настроенной в резонанс с вращательным переходом $S_0(1)$. Теоретический анализ строится на основе рассмотрения нестационарного четырехфотонного комбинационно-параметрического взаимодействия при распространении пробных импульсов в среде с наведенной когерентностью.

2. Эксперимент

В основе изображенной на рис.1 экспериментальной установки находится Nd:YAG-лазер, генерирующий с частотой повторения 1.5 Гц пуги из 10–12 импульсов с длительностью около 30 пс каждый. Два последовательных электрооптических модулятора на кристаллах LiTaO_3 выделяют центральный импульс пуга, который усиливается в системе усилителей. В двух каналах излучение преобразуется во вторую гармонику, а в одном – в третью. Перестраиваемое по частоте излучение генерируется в лазере на красителе с синхронной накачкой. В усилителе на красителе происходит усиление и выделяется одиночный пичок с перестраиваемой длиной волны.

Одиночные импульсы второй гармоники (532 нм, 1 мДж) и лазера на красителе (550 нм, 0.8 мДж) используются в качестве бигармонической накачки (возбуждающие импульсы). Импульсы третьей гармоники (355 нм, 0.1 мДж) являются пробными и могут быть задержаны относительно возбуждающих на время τ в диапазоне от -0.1 до 5 нс с помощью переменной оптической линии задержки. Пространственное сведение пучков бигармонической накачки, имеющих скрещенные поляризации, осуществляется с помощью призмы Глана с боковым входом, а совмещение с пробным пучком производится на дихроичном зеркале. Возбуждающие и пробный пучки фокусируются в кювету с водородом с помощью линзы с фокусным расстоянием 30 см.

Бигармоническая накачка, настроенная в комбинационный резонанс с вращательным переходом $S_0(1)$ с

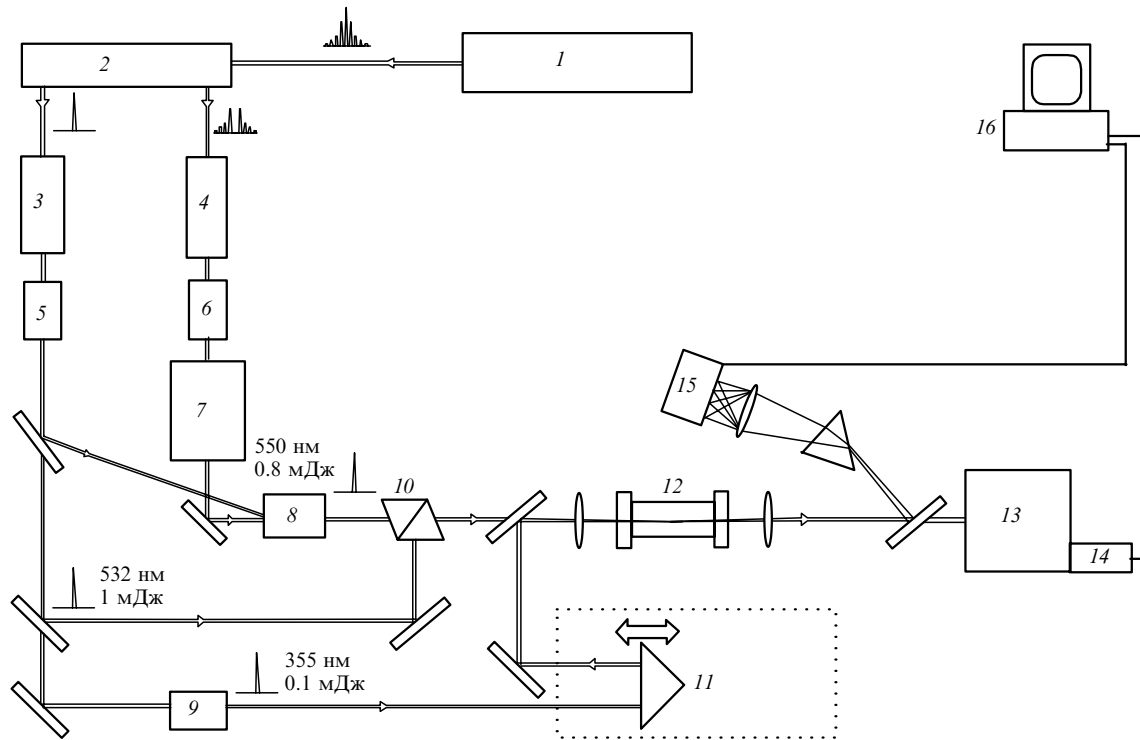


Рис.1. Схема экспериментальной установки:

1 – Nd:YAG-генератор; 2 – схема выделения одиночного импульса; 3, 4 – усилители на Nd:YAG; 5, 6 – преобразователи во вторую гармонику; 7 – лазер на красителе с синхронной накачкой; 8 – усилитель на красителе; 9 – преобразователь в третью гармонику; 10 – призма Глана; 11 – линия задержки; 12 – кювета с водородом; 13 – монохроматор; 14 – фотоумножитель; 15 – ПЗС-камера; 16 – компьютер.

частотой 587 см^{-1} , создает в среде когерентное возбуждение, при рассеянии на котором происходит преобразование пробного излучения в стоксову и антистоксову области. Использование для возбуждения и зондирования среды импульсов пикосекундной длительности поз-

воляет не принимать в расчет дефазировку непосредственно в процессе взаимодействия излучения со средой. Внесение переменной задержки τ между возбуждением и зондированием дает возможность экспериментально определить характер влияния дефазировки за время τ на генерацию последовательности комбинационных линий.

За кюветой с водородом помещалась коллимирующая линза. Выходящее из кюветы излучение разлагалось на спектральные компоненты с помощью дифракционной решетки 1200 штр./мм и регистрировалось ПЗС-камерой с установленными перед ней фильтрами УФС-1 и ЖС-20 (на схеме не показаны). На рис.2,а приведены результаты регистрации спектральных компонент выходного излучения за одну лазерную вспышку при разных задержках пробного импульса относительно возбуждающих. На рис.2,б показано соотношение энергий различных спектральных компонент при минимальной задержке пробного импульса, а также суммарный коэффициент пропускания фильтров в зависимости от частоты. Для измерения зависимости энергии отдельных спектральных компонент от времени задержки они отфильтровывались фотоэлектронным умножителем. Результаты измерений приведены далее на рис.3.

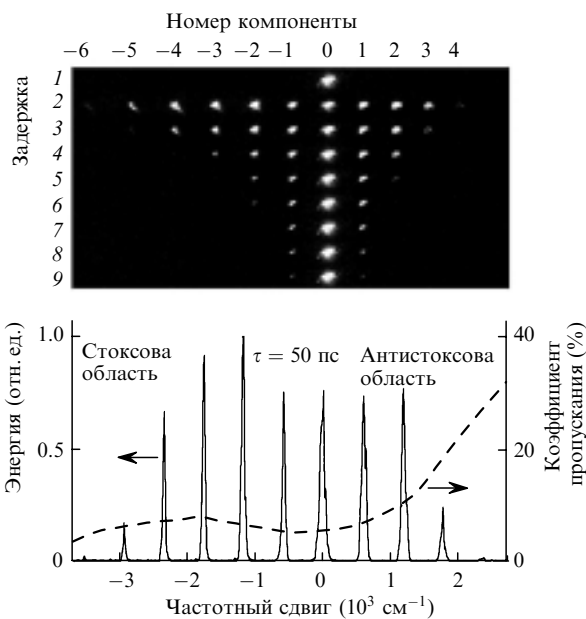


Рис.2. Спектральные компоненты генерируемого излучения на выходе кюветы с водородом при задержках пробного импульса на –100 (1), 50 (2), 120 (3), 190 (4), 260 (5), 330 (6), 400 (7), 470 (8) и 540 пс (9) и давлении водорода 26 атм (а), а также соотношение энергий спектральных компонент при времени задержки 50 пс и давлении водорода 26 атм. Штриховой кривой показан суммарный коэффициент пропускания фильтров УФС-1 и ЖС-20, стоящих перед ПЗС-камерой.

3. Основные уравнения

Рассмотрим уравнения, позволяющие описать преобразование пробного излучения в комбинационно-активной газовой среде с наведенной когерентностью. Обозначим частоту пробной волны ω_0 , тогда частоты стоксовых и антистоксовых волн примут вид $\omega_j = \omega_0 + j\Delta\omega$, где $\Delta\omega$ – разность частот волн бигармонической накачки. При этом напряженность суммарного поля E имеет вид

$$E = \sum_j A_j \exp[i(k_j z - \omega_j t)] + \text{компл. сопр.},$$

где A_j – медленно меняющиеся амплитуды; z – координата; $k_j = \omega_j n_j / c$ – волновые числа спектральных компонент; j – номера компонент для стоксовой ($j < 0$) и антистоксовой ($j > 0$) областей; n_j – фазовый показатель преломления. Различные спектральные компоненты отделены друг от друга частотой $\Delta\omega$, близкой к частоте перехода Ω_{12} .

Система уравнений для медленно меняющихся амплитуд компонент электромагнитного поля в комбинационно-активной среде с наведенной когерентностью ($\rho_{12} = \rho_{21}^*$) имеет хорошо известный вид [15]:

$$\begin{aligned} & \left(\frac{\partial}{\partial t} + u_j \frac{\partial}{\partial z} \right) A_j + i \frac{c}{n_j} a_2 \frac{j(j-1)}{2} A_j \\ & = i 2\pi\omega_j \eta_j n_j N \{ [r_{11}(\omega_j, -\omega_j)\rho_{11} + r_{22}(\omega_j, -\omega_j)\rho_{22}] A_j \\ & \quad + r_{12}(\omega_j, -\omega_{j-1})\rho_{21} A_{j-1} + r_{21}(\omega_{j+1}, -\omega_j)\rho_{12} A_{j+1} \}, \end{aligned} \quad (1)$$

где u_j – групповая скорость; ρ_{ij} – элементы матрицы плотности; η_j – групповой показатель преломления соответствующей частотной компоненты, не учитывающий нелинейных эффектов; a_2 – коэффициент при члене второго порядка в разложении волнового числа компоненты излучения в среде по ее номеру, которое всегда можно записать в виде

$$k_j = \frac{\omega_j n_j}{c} = a_0 + a_1 j + \frac{a_2 j(j-1)}{2} + \dots$$

Матричные элементы $r_{11}(\omega_j, -\omega_j)$, $r_{22}(\omega_j, -\omega_j)$ и $r_{21}(\omega_{j+1}, -\omega_j)$ имеют следующий вид:

$$\begin{aligned} r_{11}(\omega_j, -\omega_j) &= \frac{1}{\hbar} \sum_k \left(\frac{d_{1k} d_{k1}}{\Omega_{k1} - \omega_j} + \frac{d_{1k} d_{k1}}{\Omega_{k1} + \omega_j} \right), \\ r_{22}(\omega_j, -\omega_j) &= \frac{1}{\hbar} \sum_k \left(\frac{d_{2k} d_{k2}}{\Omega_{k2} - \omega_j} + \frac{d_{2k} d_{k2}}{\Omega_{k2} + \omega_j} \right), \\ r_{21}(\omega_{j+1}, -\omega_j) &= \frac{1}{\hbar} \sum_k \left(\frac{d_{2k} d_{k1}}{\Omega_{2k} - \omega_j} + \frac{d_{2k} d_{k1}}{\Omega_{k1} + \omega_j} \right), \\ r_{12}(\omega_{j+1}, -\omega_j) &= r_{21}^*(\omega_{j+1}, -\omega_j). \end{aligned} \quad (2)$$

Здесь и далее считается, что частоты дипольно-разрешенных переходов Ω_{k1} значительно превышают частоты взаимодействующих компонент: $\Omega_{k1} \gg \omega_j$.

Запишем уравнение для статистически усредненного недиагонального элемента матрицы плотности ρ (здесь и далее $\rho \equiv \rho_{21}$):

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \rho(\gamma + i\delta + iA_{21}) = -\frac{i}{\hbar} R \sum_j r_{21} A_j A_{j-1}^*, \quad (3)$$

где $A_{21} \approx \Theta \sum_j |A_j|^2$ характеризует штарковский сдвиг частоты; Θ – коэффициент пропорциональности; γ – скорость поперечной релаксации; $\delta = \Omega_{21} - \Delta\omega$ – частотная расстройка.

Уравнение усредненной разности населенностей между верхним и нижним уровнями ($R = \rho_{22} - \rho_{11}$) имеет вид

$$\frac{\partial R}{\partial t} + \frac{R - R_0}{T_1} = -\frac{2i}{\hbar} \left(\sum_k r_{12} A_k^* A_{k-1} \rho_{21} - \text{компл. сопр.} \right). \quad (4)$$

Считая r_{11} , r_{22} и r_{12} независимыми от j , пренебрегая дисперсией в уравнении (1) ($a_2 = 0$, $u_j = u$, $\eta_j = \eta$, $n_j = n$), вводя сопутствующее время $t_s = (t - z/u)$ и переходя к новым амплитудам $A'_j = A_j \exp[-2\pi i \omega_0 \eta n N (r_{11} \rho_{11} + r_{22} \rho_{22}) t]$, запишем (1) через время t и сопутствующее время t_s :

$$\frac{\partial}{\partial t} \Big|_{t_s = \text{const}} A'_j = i 2\pi \omega_0 \eta n N (r_{12} \rho A'_{j-1} + r_{21} \rho^* A'_{j+1}). \quad (5)$$

Предположим, что когерентное возбуждение среды одинаково по всей ее длине, т. е. ρ не зависит от t при $t_s = \text{const}$. При этом система дифференциальных уравнений (5) – линейная, с постоянными коэффициентами; она представляет собой рекуррентные соотношения для функций Бесселя.

На входе в среду $z = 0$ ($t = t_s$) задана амплитуда пробной волны A'_0 . Переходя к старым амплитудам A_j и координатам t, z , получаем

$$A_j(t, z) = A_0 \left(t - \frac{z}{u}, 0 \right) J_j \left(2|\xi| \frac{z}{u} \right) \exp \left[i \left(\arg \xi + \frac{\psi z}{u} \right) \right]. \quad (6)$$

Здесь $\xi = i 2\pi \omega_0 \eta n N r_{12} \rho$; $\arg \xi$ – комплексный аргумент ξ ; $\psi = 2\pi i \omega_0 \eta n N (r_{11} \rho_{11} + r_{22} \rho_{22})$; J_j – функция Бесселя порядка j . Соответственно суммарное поле имеет следующий вид:

$$\begin{aligned} E(t, z) &= E_0 \left(t - \frac{z}{u}, 0 \right) \\ &\times \exp \left\{ i \frac{z}{u} \left[2|\xi| \sin \left[-\Delta\omega \left(t_s + \frac{u-v}{uv} z \right) + \arg \xi \right] + \psi \right] \right\} \\ &+ \text{компл. сопр.} \end{aligned} \quad (7)$$

В этом выражении v – фазовая скорость в среде. Отсюда следует вывод, что в бездисперсионной модели в приближении плоских волн и линейной однонаправленной поляризации при комбинационно-параметрическом преобразовании пробного импульса на когерентно возбужденном переходе происходит фазовая модуляция излучения, определяемая (7).

4. Обсуждение результатов

Выбор в качестве исследуемого комбинационно-активного перехода вращательного перехода $S_0(1)$ ($\Omega_{21} = 587 \text{ см}^{-1}$) водорода обеспечивает выполнение условия синхронизма для генерации нескольких первых стоксовых и антистоксовых компонент при относительно больших давлениях. Коэффициенты a_j разложения волнового вектора старше первого порядка, определяющие фазовое рассогласование, задаются функцией показателя преломления от частоты. Показатель преломления газов вдали от линий поглощения хорошо описывает дисперсионная формула Коши [16] $n - 1 = A(1 + B/\lambda^2)$. Здесь λ – длина световой волны, A и B – постоянные. Для водорода при нормальных условиях $A = 13.6 \times 10^{-5}$, $B = 7.7 \times 10^{-11} \text{ см}^2$. Отсюда найдем a_2 , определяющее отстройку от синхронизма:

$$a_2 = \frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2} \Delta \omega^2 = \frac{3}{2} AB \frac{\omega \Delta \omega^2}{\pi^2 c^3} = p 0.0027 \text{ см}^{-1} \text{ атм}^{-1}.$$

Чтобы синхронизм в процессе распространения компонент излучения не нарушался, набег фаз между ними должен быть меньше π . Это условие можно записать так:

$$\frac{a_2 j_{\max}^2}{2} L < \pi$$

(L – длина среды). При $L = 3$ см, $j_{\max} = 4$ и $p_{\max} = 26$ атм условие синхронизма еще выполняется.

Бигармонический характер накачки позволяет селективно и в беспороговом режиме возбуждать избранный комбинационно-активный переход. При этом отсутствуют негативные проявления самовоздействия и искажения пространственного профиля пучков, которые могут иметь место в случае мощной одночастотной накачки. В процессе распространения импульсов накачки, вошедших в среду в момент времени $t = 0$, в среде создается волна когерентности, амплитуда которой затухает по экспоненциальному закону (в пренебрежении неоднородным уширением):

$$\rho = \rho_0 \theta \left(t - \frac{z}{u} \right) \exp \left[-\gamma \left(t - \frac{z}{u} \right) \right].$$

Здесь ρ_0 – максимальная амплитуда когерентности; $\theta = 0$ для отрицательных аргументов, $\theta = 1$ – для неотрицательных.

После прохождения пробным импульсом среды длиной z (время задержки пробного импульса $\tau = t - z/u$) будут наблюдаться частотные компоненты со следующими амплитудами:

$$A_j = A_0(z=0) J_j \left[\frac{2|\xi_0| \theta(\tau) z \exp(-\gamma\tau)}{u} \right] \exp \left[i \left(j \arg \xi + \frac{\psi z}{u} \right) \right]. \quad (8)$$

При малых z амплитуды антистоксовой и стоксовой компонент ($j = \pm 1$) линейно зависят от наведенной когерентности. При достаточно больших z появляются стоксовы и антистоксовы компоненты более высокого порядка. Значительное отличие частоты пробного импульса от частоты возбуждающих импульсов в нашем случае позволяет спектрально отделить компоненты, генерирующиеся при рассеянии пробного импульса, от компонент, генерирующихся при рассеянии возбуждающих импульсов. Сравнение энергий генерируемых компонент при минимальной задержке (рис.2,б) позволяет сделать вывод, что исходный пробный пучок почти полностью преобразуется в излучение с многокомпонентным спектром. С увеличением времени задержки эффективность преобразования уменьшается вследствие разрушения когерентного ансамбля из-за дефазировки. При давлении 26 атм время дефазировки $T_2 = 130$ пс, что в несколько раз превышает длительность возбуждающих и пробного импульсов.

На рис.3 показаны экспериментально измеренные зависимости энергии первых трех стоксовых и антистоксовых компонент от времени задержки, здесь же приведена зависимость, характеризующая изменение энергии пробного пучка. Высшие спектральные компоненты характеризуются большей скоростью спада, и с увеличением задержки число генерируемых спектральных компонент

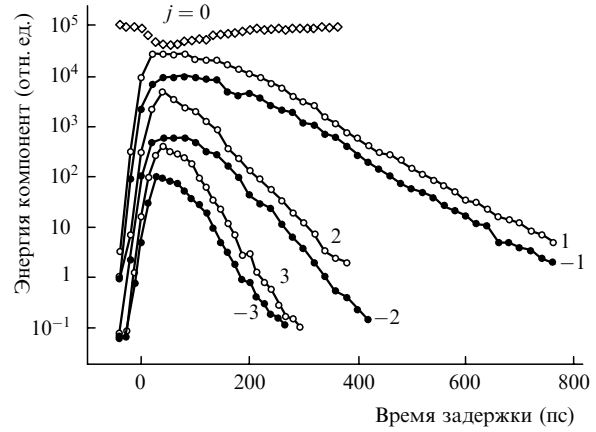


Рис.3. Экспериментальные зависимости энергии пробного излучения ($j = 0$), первых трех стоксовых ($j = -1, -2, -3$) и антистоксовых ($j = 1, 2, 3$) компонент от времени задержки пробного импульса при давлении водорода 26 атм.

уменьшается. Расположение кривых на рис.3 по вертикальной оси является произвольным и выбрано из соображений удобства представления.

Об истинном соотношении энергии спектральных компонент можно судить на основании рис.2,б. Рассчитанные на основе выражения (8) с учетом длительности пробного импульса временные зависимости энергии спектральных компонент, представленные на рис.4,а, находятся в качественном соответствии с результатами измерений. Наилучшее согласие с экспериментом достигается при учете второго порядка теории дисперсии ($\partial^2 k / \partial \omega^2 =$

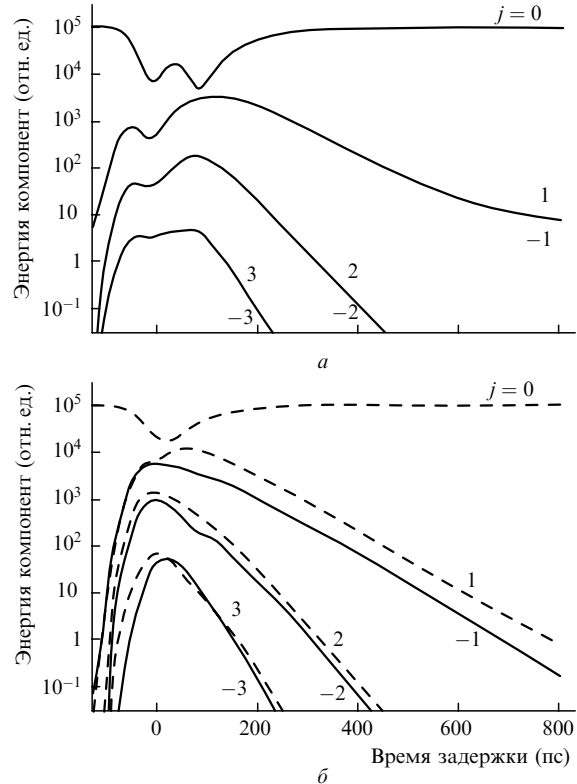


Рис.4. Рассчитанные на основе уравнения (8) (а) и с учетом второго порядка теории дисперсии (б) зависимости энергии спектральных компонент от времени задержки пробного импульса – пробное излучение ($j = 0$), первые три стоксовы ($j = -1, -2, -3$) и антистоксовы ($j = 1, 2, 3$) компоненты – при давлении водорода 26 атм.

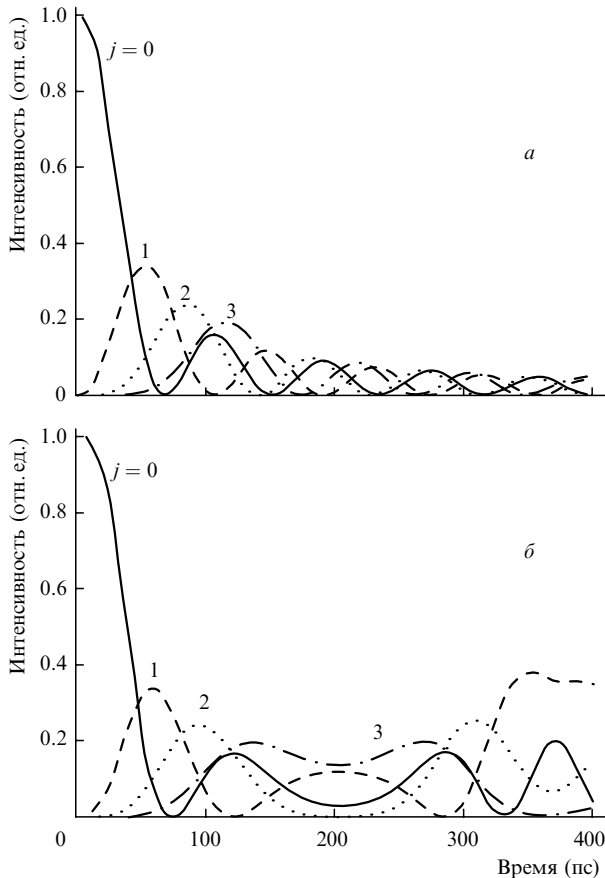


Рис.5. Рассчитанные на основе уравнения (8) (а) и с учетом второго порядка теории дисперсии (б) зависимости энергии спектральных компонент от времени распространения – пробное излучение ($j = 0$) и первые три антистоксовы компоненты ($j = 1, 2, 3$)

$8 \times 10^{-30} \text{ с}^2/\text{см}$ [16]) путем численного решения непосредственно системы уравнений (1), (3) при $a_2 \neq 0$.

Результат соответствующего численного эксперимента приведен на рис.4,б. Учет отклонения от синхронизма приводит к тому, что число генерируемых спектральных компонент не растет неограниченно. На рис.5 приведены результаты расчета в плосковолновом приближении динамики распространения пробной волны и первых трех антистоксовых компонент без учета и с учетом отклонения от синхронизма. В первом случае суммарная интенсивность этих составляющих постепенно уменьшается, что соответствует перекачке энергии в высшие спектральные компоненты. Во втором случае с течением времени энергия перераспределяется между первыми несколькими спектральными компонентами.

В плосковолновом приближении увеличение времени фактически эквивалентно увеличению давления. В проведенных экспериментах с ростом давления до 26 атм

неограниченного роста числа спектральных компонент также не наблюдалось. Из рис.5 следует, что на определенной длине распространения должна наблюдаться практически полная перекачка энергии из пробной волны. В эксперименте такая ситуация не наблюдалась, и интенсивность пробной волны на выходе из среды мало отличалась от интенсивности соседних компонент. Возможно, причиной этого является наличие фокусировки, которая делает картину преобразования более сложной. Лучшее соответствие плосковолновому приближению, вероятно, может быть достигнуто при увеличении длины среды и использовании длиннофокусной линзы.

5. Заключение

При рассеянии импульсов пикосекундной длительности в газообразном водороде, когерентно возбужденном с помощью импульсной бигармонической накачки, резонансной с вращательным переходом $S_0(1)$, получена коллинеарная генерация ряда стоксовых и антистоксовых компонент со спектром общей протяженностью $\sim 5000 \text{ см}^{-1}$ и расстоянием между компонентами 587 см^{-1} . В плосковолновом бездисперсионном приближении развита теоретическая модель, описывающая преобразование в антистоксовы и стоксовы компоненты пробных импульсов при их распространении в комбинационно-активной среде с наведенной когерентностью. Работа выполнена при поддержке РФФИ (гранты № 99-02-16093 и № 01-02-16044).

1. Морозов В.Б., Тункин В.Г., Оленин А.Н. *ЖЭТФ*, **115**, 479 (1999).
2. Беспалов В.Г., Крылов В.Н., Михайлов В.Н., Парфенов В.А., Стаселько Д.И. *Оптика и спектроскопия*, **70**, 332 (1991).
3. Драбович К.Н., Ключаков И.Л., Орлов Р.Ю., Скидан И.Б., Телегин Л.С. *Ученые записки Казанского государственного педагогического института* (Казань, 1973, вып. 125, с. 93).
4. Wilke V., Schmidt W. *Appl. Phys.*, **18**, 177 (1979).
5. Jarvis G.B., Mathew S., Kenny J.E. *Appl. Opt.*, **33**, 4938 (1994).
6. Baldwin K.G.H., Narangos J.P., Burgess D.D. *Opt. Commun.*, **52**, 351 (1985).
7. Грасюк А.З., Зубарев И.Г., Котов А.В., Михайлов С.И., Смирнов В.Г. *Квантовая электроника*, **3**, 1062 (1976).
8. Sokolov A.V., Walker D.R., Yavuz D.D., Yin G.Y., Harris S.E. *Phys. Rev. Lett.*, **85**, 562 (2000).
9. Wittmann M., Nazarkin A., Korn. G. *Phys. Rev. Lett.*, **84**, 5508 (2000).
10. Андреев А.В. *ЖЭТФ*, **86**, 412 (1998).
11. Kaplan. A.E. *Phys. Rev. Lett.*, **73**, 1243 (1994).
12. Fork R.L., Brito Cruz C.H., Becker P.C., Shank C.V. *Opt. Lett.*, **12**, 483 (1987).
13. Platonenko V.T., Strelkov V.V. *J. Opt. Soc. Am. B*, **16**, 435 (1999).
14. Платоненко В.Т., Стрелков В.В. *Квантовая электроника*, **24**, 799 (1993).
15. Шен И.Р. *Принципы нелинейной оптики* (М.: Наука, 1989).
16. Ахманов С.А., Никитин С.Ю. *Физическая оптика* (М.: изд-во МГУ, 1998).