

УДК 621.373 : 535+535.375 : 546.35

ИССЛЕДОВАНИЕ ИНФРАКРАСНОГО ВКР В ПАРАХ РУБИДИЯ ПРИ РАЗЛИЧНОЙ ШИРИНЕ СПЕКТРА НАКАЧКИ

Ф. А. Королев, В. А. Михайлов и В. И. Одинцов

Изучена частотная зависимость порога ВКР вблизи инфракрасного перехода $Rb\ 6^2P_{3/2}-5^2D_{5/2}$ при вариации ширины линии накачки от 0.2 до 20 $см^{-1}$. Определена величина критической спектральной плотности накачки. Экспериментальные результаты сопоставлены с теоретическими оценками.

В последнее время большой интерес вызывает исследование резонансного вынужденного комбинационного рассеяния света (ВКР) в инфракрасной (ИК) области спектра, возбуждаемого в парах металлов излучением лазеров на красителях с перестраиваемой частотой. Относительно большая спектральная ширина линии генерации этих лазеров может значительно превышать ширину линии перехода среды. Хотя ВКР с широкополосной накачкой в нерезонансном случае в целом уже хорошо изучено [1, 2], при возбуждении вблизи резонанса оно исследовалось лишь в [3]. В настоящей работе действие широкополосной накачки изучено при возбуждении ВКР вблизи ИК перехода $Rb\ 6^2P_{3/2}-5^2D_{5/2}$ ($\lambda=5.23\ мкм$). Ранее ВКР вблизи указанного перехода исследовалось в условиях, когда ширина линии накачки была сравнима с шириной исходного уровня [4].

Экспериментальная часть

Использовались два лазера на органических красителях с перестройкой частоты, возбуждавшиеся одним импульсом рубинового лазера с модулированной добротностью. Перестройка частоты осуществлялась с помощью дифракционных решеток. Для сужения линии генерации внутри резонатора лазера на красителе мог помещаться наклонный эталон Фабри—Перо толщиной 1 мм. В этом случае ширина линии генерации составляла $\sim 0.2\ см^{-1}$. При удалении эталона она возрастала до $10\ см^{-1}$. Дальнейшее увеличение ширины до $20\ см^{-1}$ достигалось внесением в резонатор призмы, которая уменьшала дисперсию, даваемую дифракционной решеткой. Длительность импульсов лазеров на красителях составляла 25 нс. Световые пучки обоих лазеров совмещались в пространстве с помощью полупрозрачного зеркала и после прохождения через телескопическую систему, уменьшавшую диаметр пучка, направлялись на кювету с парами рубидия длиной $l=18\ см$. Диаметр светового пучка в кювете, определявшийся на уровне половины интенсивности, составлял в среднем $\sim 1.8\ мм$. Кювета имела сапфировые окна с вертикальной ориентацией оптической оси, совпадавшей с направлением поляризации излучения обоих лазеров.

В основных экспериментах исходным уровнем для процесса ВКР являлся уровень $5^2P_{3/2}$ (рис. 1). Для заселения этого уровня частота одного из лазеров (лазер А) — ω_A — настраивалась на резонансный переход $1-2$, $\lambda=780\ нм$ (здесь и далее используются цифровые обозначения уров-

ней, приведенные на рис. 1). Ширина линии лазера A и мощность его излучения при падении на кювету составляли $\Delta\omega_A/2\pi c = 0.2$ см⁻¹, $P_A = 200$ кВт. Вторым лазером B осуществлялось возбуждение ВКР с уровня 2. Его частота ω_B варьировалась в окрестности перехода 2—3 ($\lambda = 775.8$ нм, частота $\omega_{3/2}$). Эксперименты проводились при различных значениях ширины линии лазера B $\Delta\omega_B/2\pi c = 0.2, 10$ и 20 см⁻¹.

Исследовалась сильная линия ВКР ω_s , возникавшая вблизи перехода 4—3 ($\lambda = 5.23$ мкм, частота ω_{34}). ИК излучение, выходящее из кюветы в направлении возбуждающего пучка, направлялось на щель ИК монохроматора с линейной дисперсией 5.6 см⁻¹/мм. Для измерения энергии импульсов на выходе монохроматора устанавливалось фотосопротивле-

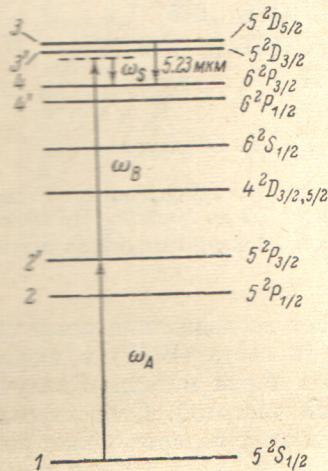


Рис. 1. Схема энергетических уровней Rb.

Слева указаны цифровые обозначения уровней.

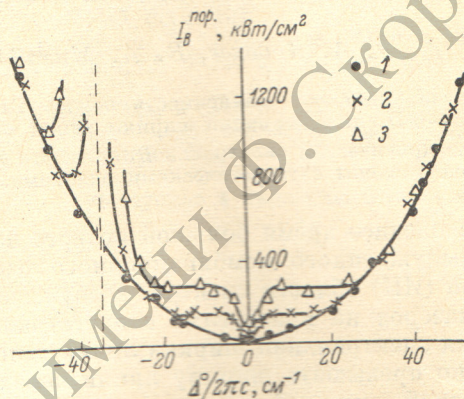


Рис. 2. Частотная зависимость порога ВКР при различной ширине спектра накачки.

1 — 0.2, 2 — 10, 3 — 20 см⁻¹.

ние, сигнал с которого поступал на осциллограф. За экспериментальный порог возбуждения принималось появление сигнала ВКР с энергией на выходе из кюветы $\sim 10^{-6}$ Дж.

На рис. 2 представлена пороговая плотность мощности (интенсивность) излучения возбуждающего лазера $I_B^{\text{пор}}$ в зависимости от расстройки центральной частоты ω_B^0 от резонансной частоты ω_{32} , $\Delta^0 = \omega_B^0 - \omega_{32}$ при различных значениях ширины его спектра. Температура паров Rb равнялась 250°C (плотность атомов $N = 5 \cdot 10^{15}$ см⁻³). Спектральная ширина щели монохроматора составляла ~ 4 см⁻¹. Пороговые кривые в пределах ошибки эксперимента симметричны относительно нулевой расстройки, за исключением области вблизи двухфотонного резонанса для перехода 1—3 (частота ω_{31}), определяемого условием $2\omega_B^0 = \omega_{31}$ и соответствующего величине расстройки $\Delta^0 = -35.2$ см⁻¹. Симметрия пороговых кривых хорошо согласуется с отсутствием заметного проявления самофокусировки и самодефокусировки обоих лазеров [4]. Форма пороговой кривой для узкой линии накачки (0.2 см⁻¹) близка к параболической. При широкой линии накачки (10 и 20 см⁻¹) ход пороговых кривых значительно усложняется. Горизонтальные участки, имеющиеся на этих кривых, показывают, что ВКР здесь возбуждается только при достижении некоторых критических значений интенсивности $I_B^{\text{кр}}$, равных соответственно 140 и 270 кВт/см² и не зависящих от величины расстройки. Для критической спектральной плотности накачки $J_B^{\text{кр}} = I_B^{\text{кр}} / \Delta\omega_B = 2\pi c J_B^{\text{кр}}$ эти значения $I_B^{\text{кр}}$ дают в пределах экспериментальной ошибки одну и ту же величину $J_B^{\text{кр}} = 14$ кВт/см. В непосредственной близости к резонансу наблюдается значительное уменьшение пороговой интенсивности накачки. Этот результат прямо про-

тивоположен полученному в [3] для ВКР вблизи резонансных переходов Rb.

При ширине линии накачки 0.2 см^{-1} ширина контура линии ВКР определялась аппаратурной шириной монохроматора, которую можно было уменьшать до 0.4 см^{-1} . Собственная ширина линии ВКР, по-видимому, не превышала $0.1-0.2 \text{ см}^{-1}$. Под действием мощного излучения лазера А возможен значительный сдвиг и расщепление уровня 2 вследствие динамического эффекта Штарка и как следствие смещение частоты линии ВКР. Для обнаружения этих явлений осуществлялось точное измерение частоты ω_3 при перестройке ω_A в небольших пределах ($\sim 2 \text{ см}^{-1}$) около резонансного перехода 1—2 (при расстройке ω_A от частоты перехода 1—2 ω_{21} заселение уровня 2 осуществляется путем трехфотонного рассеяния с основного уровня, о чем свидетельствует появление линии трехфотонного рассеяния). Хотя ошибка измерения положения линии ω_3 ($\leq 0.2 \text{ см}^{-1}$)

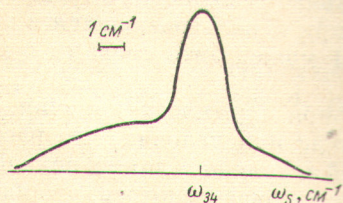


Рис. 3. Контур линии ИК излучения при наложении линии накачки на переход 2—3.

$\Delta^0 = 2 \text{ см}^{-1}$, $\Delta\omega_B/2\pi = 10 \text{ см}^{-1}$.
Спектральная ширина щели $\sim 1.5 \text{ см}^{-1}$.

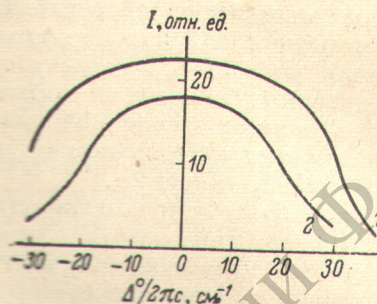


Рис. 4. Зависимость энергии ВКР от расстройки Δ^0 при ширине линии накачки 0.2 см^{-1} (1) и 10 см^{-1} (2) ($P_B = 30 \text{ кВт}$).

была существенно меньше величины ожидаемого смещения, какого-либо сдвига или уширения линии ВКР обнаружено не было. Эти измерения показывают, что эффект Штарка как будто не проявляется в линии ВКР.

При ширине линии лазера В 10 и 20 см^{-1} ширина линии ВКР была близка к ширине линии накачки. Линия ВКР повторяла вплоть до мелких деталей спектральную структуру накачки. При подходе к резонансу, когда широкая линия накачки накладывалась на атомный переход 2—3, возникала линия на частоте перехода 4—3 ω_{34} ($\lambda = 5.23 \text{ мкм}$). На фоне широкой линии ВКР она наблюдалась в виде интенсивного узкого максимума (рис. 3). При проходе через резонанс линии накачки шириной 0.2 см^{-1} аппаратурная ширина не позволяла выделить пик излучения на частоте ω_{34} .

В окрестности двухфотонного резонанса $2\omega_2 \approx \omega_{34}$ порог ВКР резко возрастал (рис. 2). В этой области происходило интенсивное излучение линии ω_{34} , обусловленное двухфотонным заселением уровня 3 [5].

При $\Delta\omega_B/2\pi = 10 \text{ см}^{-1}$ ее порог возбуждения составлял $I_B^{\text{пор}} \sim 100 \text{ кВт/см}^2$. Повышение порога ВКР при подходе к двухфотонному резонансу, очевидно, связано с заселением конечного уровня 4, происходящим при излучении этой линии.

При повышении $J_B^{\text{кр}}$ энергия импульсов ВКР W_3 при ширине линии накачки 10 и 20 см^{-1} была лишь немного меньше, чем при ширине 0.2 см^{-1} . При мощности лазера В $P_B = 20-100 \text{ кВт}$ и не слишком больших расстройках Δ^0 она слабо зависела от расстройки (рис. 4). При плотности атомов $N = 5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$ и $P_B = 100 \text{ кВт}$ энергия импульса ВКР составляла $W_3 \sim 10^{-4} \text{ Дж}$.

Как и в [7, 6, 4], наблюдалось интенсивное фиолетовое излучение вблизи перехода 1—4 ($\lambda = 420.2 \text{ нм}$). Это излучение (частота ω_D) обусловлено четырехфотонным параметрическим процессом

$$\hbar\omega_A + \hbar\omega_B \rightarrow \hbar\omega_S + \hbar\omega_D, \quad (1)$$

возникающим вследствие наличия в среде мощного излучения на частотах ω_A , ω_B и ω_S .

Частотная зависимость порога ВКР была исследована также в случае, когда исходным уровнем являлся уровень $2'$. Для его заселения частота лазера A настраивалась на резонансный переход $1-2'$ ($\lambda=794.8$ нм). Ширина линии лазера A по-прежнему составляла 0.2 см $^{-1}$. Ширина линии возбуждающего лазера B равнялась 7 см $^{-1}$. При вариации его частоты в окрестности перехода $2'-3'$ наблюдалось интенсивное излучение ВКР вблизи перехода $4'-3'$ ($\lambda=5.04$ мкм). Вид пороговой кривой был аналогичен приведенному на рис. 2 для широкой линии накачки.

Обсуждение

При проведении теоретических оценок ограничимся упрощенным рассмотрением ВКР как двухфотонного процесса, для которого начальным является уровень 2 , заселяемый путем однофотонных переходов с основного уровня 1 . При этом не учитывается вклад резонансного трехфотонного процесса в возбуждение ВКР, который при использовавшихся в эксперименте высоких интенсивностях лазера A может быть сравним с вкладом двухфотонного процесса.

Определение критической спектральной плотности накачки, данное в [2], можно использовать в нашем случае при условии, что расстройка существенно превышает ширину уровней и ширину линии накачки $\Delta\omega_B$. При расчете групповой скорости накачки u_B будем считать, что изменение коэффициента преломления с частотой ω_B определяется только переходом $2-3$. С длинноволновой стороны от резонанса это справедливо при не слишком больших расстройках, когда вклад перехода $1-2$ еще мал. Вкладом перехода $2-3'$ ввиду малой величины матричного элемента¹ можно пренебречь. Изменение коэффициента преломления с частотой ω_S , определяющее групповую скорость стоксова излучения u_S , может быть обусловлено переходами $4-3$ и $4'-3'$ (переход $4-3'$ ввиду малого матричного элемента можно не учитывать). Вблизи порога возбуждения можно пренебречь заселением уровня 4 в процессе ВКР, поскольку экспериментальный порог регистрации стоксова излучения достаточно мал. Заселение уровней $3, 3'$ не может внести существенный вклад в коэффициент преломления, поскольку при вынужденных переходах на уровни $4, 4'$ инверсная разность населенностей удерживается на очень низком уровне [5]. Это позволяет пренебречь вкладом указанных переходов в коэффициент преломления и, учитывая малость нерезонансной части линейной восприимчивости, положить $u_S=c$. Тогда величина $\nu' = |c/u_B - c/u_S|$, характеризующая расстройку групповых скоростей накачки и ВКР, равна

$$\nu' = \frac{c}{u_B} - 1 = \frac{2\pi\omega_{32}\mu_{33}^2}{\hbar\Delta\omega^2} (N_2 - N_3). \quad (2)$$

Здесь и далее N_α — концентрация атомов на уровне α , μ_{ij} — матричные элементы дипольного момента для π -переходов между подуровнями $M=\pm 1/2$ уровней i и j (ось квантования Z выбрана вдоль направления поляризации излучения лазеров A и B).

Известно [1, 2], что коэффициент усиления ВКР в поле широкополосной накачки близок к коэффициенту усиления при монохроматической накачке той же интенсивности в двух случаях: 1) при малом влиянии дисперсии среды и 2) при превышении критической спектральной плотности накачки.

Влияние дисперсии среды мало, если расстройка волновых векторов фононных волн $\Delta q = \Delta\omega_B \nu'/c$ меньше обратной длины среды

$$\Delta q L \frac{\pi}{2l} \cdot \quad (3)$$

¹ Матричные элементы вычислялись на основании данных работы [8].

Учитывая, что вблизи резонанса $I_B^{\text{пор}}$ мала, можно положить в (2) $N_3=0$, $N_2=N/2=2.5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$. Тогда неравенство (3) выполняется при ширине спектра накачки 0.2; 10 и 20 см^{-1} для расстроек, превышающих соответственно 5, 35 и 50 см^{-1} . Как видно из рис. 2, горизонтальные участки пороговых кривых для $\Delta\omega_B/2\pi c=10$ и 20 см^{-1} лежат в области меньших расстроек, где дисперсия среды существенна.

Критическая спектральная плотность накачки, согласно [2], равна $J_B^{\text{кр}}=4\nu'/b$, где b — коэффициент усиления на центральной частоте стоксовой линии, рассчитанный на единичную интенсивность монохроматической накачки. Он определяется выражением

$$b = \frac{8\pi^3 \omega_{34}^2 u_{34}^2}{c^3 h^3 \Delta\Omega \Delta\omega^2} (N_2 - N_4), \quad (4)$$

где $\Delta\Omega$ — ширина линии спонтанного рассеяния.

Из (2), (4), учитывая, что $N_4 \approx N_3$, можно получить

$$J_B^{\text{кр}} = \frac{c^2 h \omega_{34} \Delta\Omega}{\pi^2 \omega_{34}^2 u_{34}^2}. \quad (5)$$

В нашем случае $\Delta\Omega$ определяется уширением исходного уровня 2 в поле мощного излучения лазера А. В качестве приближенной оценки положим $\Delta\Omega \sim \Delta\omega_A$. Эта оценка без учета расщепления уровня 2 соответствует результатам [9]. Тогда $J_B^{\text{кр}}=6.9 \text{ кВт/см}$, что в 2 раза ниже экспериментального значения.

Теоретическая оценка $J_B^{\text{кр}}$ заведомо справедлива, лишь если $|\Delta^0|$ существенно больше $\Delta\omega_B$. Однако эксперимент показывает, что понятие критической спектральной плотности сохраняет свое значение и в непосредственной близости к резонансу вплоть до наложения крыла линии накачки на атомный переход. При этом $J_B^{\text{кр}}$ остается не зависящей от Δ^0 .

При больших расстройках, когда $I_B^{\text{пор}} > I_B^{\text{кр}}$, экспериментальные точки хорошо ложатся на общую параболу. По ней, принимая в соответствии с условиями эксперимента коэффициент усиления на проход кванты $b|I_B| = 25$, находим, что экспериментальное значение b при превышении $J_B^{\text{кр}}$ составляет $3.2 \text{ кВт}^{-1} \cdot \text{см}^{-1} (2\pi c/\Delta^0)^2$. Теоретическое значение b при монохроматической накачке, определенное из (4) при $\Delta\Omega = 0.2 \text{ см}^{-1} \cdot 2\pi c$, $N_2 = 2.5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$, $N_4=0$, равно $0.9 \text{ кВт}^{-1} \cdot \text{см}^{-1} (2\pi c/\Delta^0)^2$.

При $I_B < I_B^{\text{кр}}$ коэффициент усиления не отличается сильно от рассчитанного без учета параметрического взаимодействия спектральных компонент накачки и ВКР,² который вдали от резонанса в $\Delta\omega_B/\Delta\Omega$ раз меньше коэффициента усиления при монохроматической накачке. Однако рост коэффициента усиления при приближении к резонансу приводит к тому, что при достаточно малых $|\Delta^0|$ возбуждение ВКР становится возможным и при $I_B < I_B^{\text{кр}}$. Граничные расстройки Δ_1^0 и Δ_2^0 , определяющие горизонтальный участок пороговой кривой, должны быть связаны соотношением

$$\frac{\Delta_1^0}{\Delta_2^0} \sim \sqrt{\frac{\Delta\Omega}{\Delta\omega_B}}, \quad (6)$$

справедливым, если сигнал ВКР регистрируется вблизи частоты $\omega_s^0 = \omega_B - \omega_{34}$ при спектральной ширине щели, значительно меньшей $2|\Delta_1^0|$. Предполагается, что спектральные компоненты накачки, расположенные ближе к резонансу и, в частности, накладываются на атомный переход, ввиду истощения мощности не способны вызвать значительного изменения населенности уровней. В нашем случае (6) удовлетворительно выполняется, несмотря на относительно большую аппаратную ширину. Ход пороговой кривой при $|\Delta^0| < |\Delta_1^0|$ достаточно хорошо объясняется исто-

² Соответствующие выражения приведены в [4]. При записи формул (4), (5) в [4] пропущен множитель 2 π , численный же расчет сделан правильно.

щением накачки. Отметим, что наблюдавшийся в [3] рост порога при малых расстройках можно связать с заселением конечного уровня излучения возбуждающего лазера.

Величина энергии ВКР W_s , как и слабая зависимость ее от Δ^0 , хорошо согласуется с представлением, что W_s при достаточно больших I_B ограничивается заселением конечного уровня 4 [4]. Вследствие развития вынужденных ИК переходов [4-6] заселение уровня 4 сопровождается заселением нижерасположенных уровней $6^2S_{1/2}$, $4^2D_{3/2, 5/2}$, $5^2P_{1/2}$ и двух незаселенных подуровней $M = \pm 3/2$ уровня $5^2P_{3/2}$. Поскольку инверсная разность населенностей, требующаяся для развития вынужденных ИК переходов, очень мала [5], то при $I_B \gg I_B^{\text{кр}}$ большая часть атомов в объеме взаимодействия с накачкой V к концу импульса ВКР будет находиться на указанных уровнях. Число испущенных квантов ВКР составит $\sim NV$, что при $N = 5 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-3}$, $V \sim 0.5 \text{ см}^3$ даст $W_s \sim 10^{-4}$ Дж. Опустошение рассмотренного комплекса уровней путем спонтанных переходов не способно существенно увеличить W_s , поскольку вероятность спонтанного распада для большинства этих уровней мала по сравнению с длительностью возбуждающего импульса. К тому же очень велико влияние реабсорбции излучения на резонансных переходах атома. Отметим, что наличие четырехфотонного параметрического процесса (1) должно приводить к увеличению интенсивности ВКР.

Литература

- [1] С. А. Ахманов. Изв. вузов, радиофизика, 17, 541, 1974.
- [2] С. А. Ахманов, Ю. Е. Дьяков, А. С. Чиркин. Письма ЖЭТФ, 13, 724, 1971.
- [3] В. А. Михайлов, В. И. Одинцов, Л. Ф. Рогачева. Письма ЖЭТФ, 25, 151, 1977.
- [4] Ф. А. Королев, В. И. Одинцов, А. О. Фахми. Опт. и спектр., 40, 423, 1976.
- [5] Ф. А. Королев, В. В. Мартынов, В. И. Одинцов, А. О. Фахми. Опт. и спектр., 40, 1043, 1976.
- [6] А. М. Бонч-Бруевич, В. А. Ходовой, В. В. Хромов. Письма ЖЭТФ, 14, 487, 1971.
- [7] Ф. А. Королев, С. А. Бахрамов, В. И. Одинцов. Опт. и спектр., 30, 788, 1971.
- [8] Э. М. Андерсон, В. А. Зилитис. Опт. и спектр., 16, 382, 1964.
- [9] П. А. Апанасевич, В. А. Ходовой. Ж. прикл. спектр., 12, 848, 1970.

Поступило в Редакцию 15 августа 1977 г.