КРАТКИЕ СООБЩЕНИЯ

УДК 621.375.9 : 535

О ГЕНЕРАЦИИ ТРЕТЬЕЙ ГАРМОНИКИ В ПРИМЕСНЫХ КРИСТАЛЛАХ И КРАСИТЕЛЯХ

Е. Д. Трифонов и *А. С. Трошин*

Эффективность преобразования энергии падающей на образец монохроматической световой волны частоты ω в волну утроенной частоты зависит от степени согласования скорости новой волны в среде и скорости волны нелинейной поляризации на частоте 3ω. В среде, прозрачной для частот ω и 3ω, интенсивность генерируемой волны $I_{3\omega}(z)$ как функция длины образца z имеет вид [1-4]

$$I_{3\omega}(z) \sim \frac{1-\cos \Delta k z}{\Delta k^2}, \quad I_{3\omega}(z) \sim z^2 \text{ при } |\Delta k z| \ll 1, \tag{1}$$

где $\Delta k = 3k_1 - k_3$, k_1 и k_3 — волновые числа волн с частотами ω и 3ω. В работе [4] отмечалась возможность использования аномальной дисперсии для выполнения условия пространственного синхронизма ($\Delta k \to 0$). В работах [5-7] наблюдалась генерация третьей гармоники в красителе в условиях, когда широкая полоса поглощения имела максимум между частотами ω и 3ω и равенство показателей преломления n_1 и n_3 достигалось вследствие аномальной дисперсии. Поглощение на частоте 3ω было значительным, что снижало эффективность генерации.

В этом сообщении мы рассмотрим случай, когда частота ω является резонансной по отношению к некоторому электронно-колебательному переходу примесного центра; будет показано, что эффективность утроения частоты зависит не только от согласования фазовых скоростей, но и от согласования коэффициентов поглощения на частотах ω и 3ω. Мы обсудим возможное использование стоксовского сдвига спектров люминесценции и поглощения и применение накачки для выполнения обоих условий согласования при генерации третьей гармоники в примесных кристаллах и красителях.

Моделью центра свечения служит двухуровневая электронная система, взаимодействующая с кристаллическими или молекулярными колебаниями [8, 9]. Для этой модели в работах [10, 11] было найдено общее выражение нелинейной поляризации через преобразования Фурье спектров люминесценции $[f_r(\nu)]$ и поглощения $[f_a(\nu)]$. Чтобы получить оценку интенсивности третьей гармоники, аппроксимируем нормированные на единицу функции $f_r(\nu)$ и $f_a(\nu)$ лоренцовыми кривыми с учетом стоксовского сдвига

$$\left.\begin{aligned} f_r(\nu) &= \frac{\Gamma}{2\pi}\,\frac{1}{\Gamma^2/4 + (\omega_0 - s - \nu)^2}, \\ f_a(\nu) &= \frac{\Gamma}{2\pi}\,\frac{1}{\Gamma^2/4 + (\omega_0 + s - \nu)^2}, \end{aligned}\right\} \tag{2}$$

здесь ω_0 — частота чисто электронного перехода, $2s$ — стоксовский сдвиг, Γ — ширина линии.

Пусть частота падающей волны ω близка к ω_0; частота 3ω далека от резонанса, так что мы можем не учитывать влияния выделенного перехода и сильного поля на спектральные свойства среды в области частоты 3ω. Ограничиваясь третьим порядком теории возмущений, будем считать поле в падающей волне не слишком сильным; поэтому будем пренебрегать насыщением поглощения и изменением показателя преломления на частоте ω, зависящим от интенсивности. При этих допущениях выражение для интенсивности волны третьей гармоники имеет вид

$$I_{3\omega}(z) = \frac{9\pi^2}{4}\,\frac{d^4 I_\omega(0)^3}{n_3 c^2 \hbar^4 \omega^4}\,\frac{n_1^{(0)2}}{(n_1^{(0)} + \delta n_1 + n_3)^2}\,\frac{\alpha_1^2 + \delta k_1^2}{\Delta\alpha^2 + \Delta k^2}\,[\exp\{-6\alpha_1 z\} + \\ + \exp\{-2\alpha_3 z\} - 2\exp\{-(3\alpha_1 + \alpha_3) z\}\cos \Delta k z]. \tag{3}$$

Здесь d — электронный дипольный момент перехода, α_1 и α_3 — амплитудные коэффициенты поглощения на частотах ω и 3ω соответственно, k_1 и k_3 — волновые числа,

$n_1^{(0)}$ и n_3 — показатели преломления среды (без учета резонансного влияния примеси на величину n_1),

$$\Delta\alpha = 3\alpha_1 - \alpha_3, \quad \Delta k = 3k_1 - k_3 = \frac{3\omega}{c}\left(n_1^{(0)} + \delta n_1 - n_3\right), \tag{4}$$

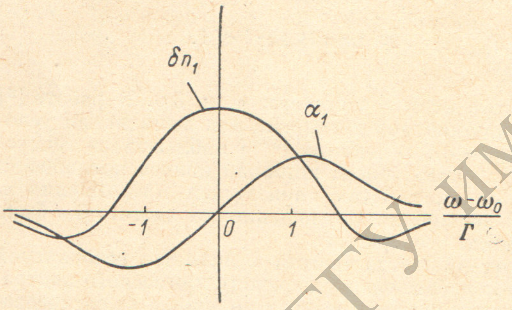
$\delta k_1 = \frac{\omega}{c}\delta n_1$ — изменение волнового числа на частоте ω, обусловленное резонансным действием выделенного нами перехода примеси. Формула (3) записана в системе единиц СГСЭ. При выводе формулы (3) было использовано неравенство $\Gamma \ll \omega_0$. Величины $\alpha_1(\omega)$ и $\delta k_1(\omega)$ в принятой модели выражаются следующим образом:

$$\alpha_1(\omega) = \mathrm{Re}\,\varkappa(\omega), \quad \delta k_1(\omega) = \mathrm{Im}\,\varkappa(\omega), \tag{5}$$

где

$$\varkappa(\omega) = \frac{2\pi d^2\omega N}{c\hbar n_1}\left[\frac{N_1}{N}\frac{\Gamma/2 + i(\omega_0 + s - \omega)}{\Gamma^2/4 + (\omega_0 + s - \omega)^2} - \frac{N_2}{N}\frac{\Gamma/2 + i(\omega_0 - s - \omega)}{\Gamma^2/4 + (\omega_0 - s - \omega)^2}\right]. \tag{6}$$

Здесь N_1 и N_2 — населенности нижнего (1) и верхнего (2) электронных уровней, N — число примесных атомов (или молекул) в 1 см^3 ($N_1 + N_2 = N$). Мы предполагаем, что действует стационарная посторонняя накачка на уровень 2, причем поглощение энергии накачки равномерно по всему объему образца. Это позволяет считать величины N_1 и N_2 не зависящими от координат и времени.



Частотная зависимость коэффициента поглощения $\alpha_1(\omega)$ и резонансной части показателя преломления $\delta n_1(\omega)$ в приближении формулы (2) для случая $N_2 = N_1$, $\Gamma = 2s$.

Как видно из формулы (3), интенсивность генерируемой волны зависит не только от согласования скоростей двух волн (Δk), но и от согласования коэффициентов поглощения ($\Delta\alpha$). В частности, если $\Delta k \to 0$ и $\Delta\alpha \to 0$,

$$I_{3\omega}(z) \sim z^2 \exp\{-2\alpha_3 z\}. \tag{7}$$

Использование аномальной дисперсии для выполнения условия $\Delta k \to 0$ требует большого значения величины δk_1, а это в отсутствие накачки ($N_2 = 0$) приводит к большим значениям α_1 и, если α_3 мало, — к большим значениям $\Delta\alpha$. Стоксовский сдвиг спектров люминесценции и поглощения позволяет выполнить оба условия согласования, если применить накачку. Заселяя верхний электронный уровень, можно добиться уменьшения α_1, обращения α_1 в ноль и появления области усиления ($\alpha_1 < 0$). При этом вследствие сдвига центров линий люминесценции и поглощения резонансная часть показателя преломления δn_1 на частоте, для которой $\alpha_1 = 0$, остается положительной и может быть близка к своему максимальному значению. Для иллюстрации на рисунке показан ход функций $\alpha_1(\omega)$ и $\delta n_1(\omega)$ в случае $N_2 = N_1$ [в приближении (2)]. При этом условии $\alpha_1(\omega_0) = 0$, а $\delta n_1(\omega)$ при $\omega = \omega_0$ достигает максимума. Таким образом, благодаря стоксовскому сдвигу, который при наличии области усиления приводит к сложному ходу дисперсии, можно выполнить условия согласования и одновременно избежать сильного поглощения первичной волны. При этом используется и резонансный характер нелинейной поляризации (на частоте ω). Осуществление такого эксперимента требует специального подбора лазерного источника и примесного кристалла (или красителя), высокой концентрации центров свечения и достаточно большой силы осциллятора электронно-колебательного перехода. Условие $N_2 = N_1$, взятое нами для упрощения оценок, разумеется, не является необходимым для получения области усиления.

Для оценки интенсивности третьей гармоники примем $\omega_0 = 3 \cdot 10^{15}$ сек.$^{-1}$, $\Gamma = 2s = 4 \cdot 10^{12}$ сек.$^{-1}$, $d = 10^{-18}$ СГСЭ, $N = 10^{20}$ см$^{-3}$, $\alpha_3 = 0$; можно считать, что разность показателей преломления образца $n_3 - n_1^{(0)}$ (без учета резонансного вклада от выделенного перехода примеси) порядка $0.1 \div 0.15$; положим $n_3 - n_1^{(0)} = 0.1$ и $n_1^{(0)} \approx n_1 \approx n_3 \approx 1.5$. При $N_2 = N_1$ для частоты $\omega = \omega_0$ получаем $\delta n_1 = 0.1$, т. е. $\Delta k = 0$. В рамках приближений, при которых получена формула (3), величина $I_\omega(z)$ ограничена условием малости параметра насыщения

$$\frac{d^2 E_\omega(z)^2}{\hbar^2\gamma\Gamma} \ll 1, \tag{8}$$

где $E_\omega(z)$ — амплитуда поля, γ — обратное время жизни возбужденного электронно-колебательного состояния. Положим $\gamma \approx 0.5 \cdot 10^{10}$ сек.$^{-1}$ и найдем максимально допустимое поле из условия

$$\frac{d^2 E_\omega(z)^2_{\max}}{\hbar^2 \gamma \Gamma} = 0.1. \tag{9}$$

Тогда, например, при коэффициенте усиления $|\alpha_1| = 1$ см$^{-1}$ (при этом $\omega = \omega_0 - \varepsilon$, $\varepsilon \ll \Gamma$) и длине образца $z = 10$ см интенсивность падающей волны $I_\omega(0)$ не должна превышать $5 \cdot 10^{-3}$ вт/см^2. В этом случае интенсивность волны утроенной частоты, согласно формуле (3), оказывается порядка 10^{-7} вт/см^2. Если же мы примем $\omega = \omega_0$, т. е. $\alpha_1 = 0$, то на выходе получим ничтожно малую величину $\sim 10^{-31}$ вт/см^2. При $\alpha_1 = 0$ и при интенсивности $I_\omega(0) = I_\omega(z) \approx 10^6$ вт/см^2 получается для $z = 10$ см $I_{3\omega}(z) \approx 10^{-3}$ вт/см^2.

Из этих оценок видно, что при наличии усиления падающей волны условие согласования фазовых скоростей является менее существенным; не имеет смысла добиваться лучшего выполнения этого условия, чем $|\Delta k| \approx |\Delta \alpha|$. Заметим также, что величина $\delta n_1(\omega)$ мало меняется в окрестности частоты ω_0, тогда как для коэффициента усиления уже весьма малый сдвиг частоты ω является существенным (см. рисунок).

Авторы благодарят Л. И. Альперовича, П. Н. Занадворова, В. М. Рысакова и Д. Ф. Смирнова за весьма полезное обсуждение работы.

Литература

[1] Н. Бломберген. Нелинейная оптика. Изд. «Мир», М., 1966.
[2] С. А. Ахманов, Р. В. Хохлов. Проблемы нелинейной оптики. Изд. ВИНИТИ, М., 1964.
[3] P. D. Maker, R. W. Terhune. Phys. Rev., *137*, A801, 1965.
[4] P. D. Maker, R. W. Terhune, C. M. Savage. Quant. Electron. Proc. of the Third Intern. Congress, Paris, vol. 2, p. 1559. N. Y., 1964 (перев. в сб. «Оптические квантовые генераторы». Изд. «Мир», М., 1966).
[5] P. P. Bey, J. F. Giuliani, H. Rabin. Phys. Rev. Lett., *19*, 819, 1967.
[6] P. P. Bey, J. F. Giuliani, H. Rabin. IEEE J. Quant. Elektr., *QE-4*, № 11, 932, 1968.
[7] R. K. Chang, L. K. Galbraith. Phys. Rev., *171*, 993, 1968.
[8] К. К. Ребане. Элементарная теория колебательной структуры спектров примесных центров кристаллов. Изд. «Наука», М., 1968.
[9] В. И. Пермогоров, Л. А. Сердюкова, М. Д. Франк-Каменецкий. Опт. и спектр., *25*, 77, 1968.
[10] Е. Д. Трифонов, А. С. Трошин, Э. Е. Фрадкин. ФТТ, *9*, 2061, 1967.
[11] E. D. Trifonov, A. S. Troshin. Phys. Stat. Solidi, *26*, 519, 1968.

Поступило в Редакцию 7 июля 1969 г.

УДК 621.375.9 : 535

ИССЛЕДОВАНИЕ СУБМИЛЛИМЕТРОВОГО ЛАЗЕРА НА $D_2O + D_2$

А. Ф. Крупнов

В предыдущих работах [1, 2] нами было получено увеличение мощности субмиллиметровых лазеров на H_2O и D_2O при добавлении в разряд соответственно водорода и дейтерия. На $H_2O + H_2$ при этом был получен отпаянный режим. Ввиду отсутствия в то время в нашем распоряжении газообразного дейтерия в опытах использовалось лишь незначительное обогащение паров D_2O дейтерием за счет реакции Лавуазье [2].

В настоящей заметке описывается работа лазера на D_2O с достаточно большой добавкой D_2 (на той же экспериментальной установке). При этом получено следующее.

1. Увеличение мощности генерации в несколько десятков раз, так что порядки мощности лазеров на $H_2O + H_2$ ($\lambda = 0.1186$ мм) и $D_2O + D_2$ ($\lambda = 0.1716$ мм) сравнялись.
2. Отпаянный режим работы лазера на $D_2O + D_2$ в течение 3 час.
3. Генерация линии 0.1077 мм (ранее полученная в [3]), которая наблюдалась при замене одного из стеклянных покрытых золотом зеркал лазера на матовое медное;