

НЕЛИНЕЙНОЕ ПОГЛОЩЕНИЕ РАЗНЕСЕННЫХ СВЕТОВЫХ ЛУЧЕЙ НА ДОПЛЕРОВСКИ УШИРЕННОМ ПЕРЕХОДЕ

II. СИЛЬНОЕ ПОЛЕ

В. С. Летохов и Б. Д. Павлик

Теоретически рассмотрено резонансное взаимодействие двух пространственно-разнесенных световых лучей одинаковой частоты с доплеровски уширенной линией поглощения без ограничения на степень насыщения поглощения. Показано, что в сильном поле сохраняются узкий резонансный провал в центре линии в случае встречных лучей и интерференционная зависимость поглощения от разности фаз между полями в случае параллельных лучей.

Постановка задачи

В работе [1] было рассмотрено нелинейное взаимодействие двух разнесенных бегущих (встречных или параллельных) световых лучей с доплеровски уширенной линией поглощения. Показано, что в этом случае возникают нелинейные и интерференционные эффекты, обусловленные нелинейным кросс-поглощением молекул, пересекающих оба луча. В частности, показано, что если поле в лучах представляет параллельные плоские бегущие волны, то поглощение одного луча зависит от степени поглощения во втором луче и разности фаз между лучами. Если бегущие световые волны антипараллельны, то нелинейное поглощение чувствительно к расстройке частоты относительно центра доплеровской линии (дэбловский провал в разнесенных лучах). Рассмотрение в [1] было ограничено случаем слабого насыщения поглощения, когда можно воспользоваться теорией возмущений (до 3-го порядка включительно). Величина обнаруженных в [1] эффектов пропорциональна степени насыщения поглощения и потому интересно выяснить эти величины при сильном насыщении без ограничения на амплитуды полей в лучах. Этому посвящена настоящая работа, являющаяся продолжением работы [1].

Поляризация молекулы в сильном поле двух разнесенных лучей

Вычисление поляризации молекулы в двух разнесенных лучах при произвольной амплитуде поля можно провести по методу работы [2]. Волновая функция системы, совершающей переход между состояниями a и b с энергиями W_a и W_b под действием переменного возмущения, имеет вид

$$\Psi(t) = C_a(t) \Psi_a + C_b(t) \Psi_b, \quad (1)$$

где Ψ_a , Ψ_b — волновые функции стационарных состояний. Если теперь подставить $\Psi(t)$ в виде (1) в нестационарное уравнение Шредингера, то последнее сводится к следующей системе уравнений для C_a — комплекс-

ной амплитуды вероятности нахождения молекулы на уровне α с энергией W_α ($\alpha = a, b$):

$$\left. \begin{aligned} i\hbar\dot{C}_a(t) &= W_a C_a(t) + \hbar V_{ab}(t) C_b(t), \\ i\hbar\dot{C}_b(t) &= \hbar V_{ba}(t) C_a(t) + W_b C_b(t). \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

Величины $\hbar V_{ab}$, $\hbar V_{ba}$ есть матричные элементы энергии взаимодействия $\hbar V(t)$, которая определяется формулой

$$\hbar V(t') = -\mu E[\mathbf{r} - \mathbf{V}(t - t'), t'], \quad (3)$$

где учтено движение молекул со скоростью \mathbf{V} .

В случае, когда поле в 1-м и 2-м лучах имеет вид плоских бегущих волн

$$\begin{aligned} E_1(z, t) &= \varepsilon_1(t) \cos(\nu t - kz + \varphi_1), \\ E_2(z, t) &= \varepsilon_2(t) \cos(\nu t - \varepsilon kz + \varphi_2), \end{aligned}$$

величина V_{ab} ($V_{ba} = V_{ab}^*$) определяется следующими выражениями:

$$V_{ab}(t') = G_1 \exp\{i[\nu t' - k(z - v(t - t')) + \varphi_1]\} \quad (\text{в луче 1}), \quad (4)$$

$$V_{ab}(t') = G_2 \exp\{i[\nu t' - \varepsilon k(z - v(t - t')) + \varphi_2]\} \quad (\text{в луче 2}). \quad (5)$$

Решение системы (2) будем искать с начальными условиями $C_a(0) = 0$, $C_b(0) = 1$. Тогда в 1-м луче решение системы (2) в момент времени t имеет следующий вид:

$$C_a(t) = \left[-i \frac{G_1}{\Omega_1} e^{-i(\varphi_1 - kz)} \sin \frac{1}{2} \Omega_1 t \right] \exp\left\{i \left[-\frac{1}{2} \nu_1 - \frac{W_a + W_b}{2\hbar} \right] t \right\}, \quad (6)$$

$$C_b(t) = \left[i \frac{\Delta_1}{\Omega_1} \sin \frac{1}{2} \Omega_1 t + \cos \frac{1}{2} \Omega_1 t \right] \exp\left\{i \left[\frac{1}{2} \nu_1 - \frac{W_a + W_b}{2\hbar} \right] t \right\}. \quad (7)$$

В промежутке между лучами C_a и C_b изменяются следующим образом:

$$C_a(\tau_0 + T) = \exp\left[-i \frac{W_a}{\hbar} T\right] C_a(\tau_0), \quad (8)$$

$$C_b(\tau_0 + T) = \exp\left[-i \frac{W_b}{\hbar} T\right] C_b(\tau_0). \quad (9)$$

И, наконец, во 2-м луче для C_a и C_b получаем следующие выражения:

$$\begin{aligned} C_a(\tau_0 + T + \tau) &= \exp\left[i \left(-\frac{1}{2} \nu_2 - \frac{W_a + W_b}{2\hbar} \right) \tau \right] \left\{ \left[-i \frac{G_2}{\Omega_2} e^{-i(\varphi_2 - \varepsilon kz)} \sin \frac{1}{2} \Omega_2 \tau e^{-i\nu_2(\tau_0 + T)} \right] \times \right. \\ &\quad \left. \times C_a(\tau_0 + T) + \left[-i \frac{\Delta_2}{\Omega_2} \sin \frac{1}{2} \Omega_2 \tau + \cos \frac{1}{2} \Omega_2 \tau \right] C_b(\tau_0 + T) \right\}, \quad (10) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} C_b(\tau_0 + T + \tau) &= \exp\left[i \left(\frac{1}{2} \nu_2 - \frac{W_a + W_b}{2\hbar} \right) \tau \right] \left\{ \left[-i \frac{G_2}{\Omega_2} e^{i(\varphi_2 - \varepsilon kz)} \sin \left(\frac{1}{2} \Omega_2 \tau \right) e^{i\nu_2(\tau_0 + T)} \right] \times \right. \\ &\quad \left. \times C_a(\tau_0 + T) + \left[i \frac{\Delta_2}{\Omega_2} \sin \left(\frac{1}{2} \Omega_2 \tau \right) + \cos \left(\frac{1}{2} \Omega_2 \tau \right) \right] C_b(\tau_0 + T) \right\}. \quad (11) \end{aligned}$$

Подставляя теперь выражения (10) и (11) в формулу $P = \mu(C_a C_b^* + C_a^* C_b)$, приходим к следующему выражению для поляризации молекулы во втором луче, пролетевшей последовательно два луча

$$\begin{aligned} P_2 &= (-\mu) \sin \Phi_2 \left\{ \left[1 - \left(\frac{G_1}{\Omega_1} \right)^2 (1 - \cos \Omega_1 \tau_0) \right] \frac{G_2}{\Omega_2} \sin \Omega_2 \tau + \right. \\ &\quad + \left[\sin \Omega_1 \tau_0 \cos \Omega_2 \tau - \frac{\Delta_1 \Delta_2}{\Omega_1 \Omega_2} (1 - \cos \Omega_1 \tau_0) \sin \Omega_2 \tau_0 \right] \frac{G_1}{\Omega_1} \cos \alpha - \\ &\quad - \left[\frac{\Delta_1}{\Omega_1} (1 - \cos \Omega_1 \tau_0) \cos \Omega_2 \tau + \frac{\Delta_2}{\Omega_2} \sin \Omega_2 \tau \sin \Omega_1 \tau_0 \right] \frac{G_1}{\Omega_1} \sin \alpha \left. \right\} + \\ &\quad + (-\mu) \cos \Phi_2 \left\{ \left[1 - \left(\frac{G_1}{\Omega_1} \right)^2 (1 - \cos \Omega_1 \tau_0) \right] \frac{\Delta_2}{\Omega_2} \frac{G_2}{\Omega_2} (1 - \cos \Omega_2 \tau) + \right. \\ &\quad + \left[\sin \Omega_1 \tau_0 \cos \Omega_2 \tau - \frac{\Delta_1 \Delta_2}{\Omega_1 \Omega_2} (1 - \cos \Omega_1 \tau_0) \sin \Omega_2 \tau \right] \frac{G_1}{\Omega_1} \sin \alpha + \left[\frac{\Delta_2}{\Omega_2} \sin \Omega_2 \tau \sin \Omega_1 \tau_0 + \right. \\ &\quad \left. \left. + \frac{\Delta_1}{\Omega_1} (1 - \cos \Omega_1 \tau_0) \left(\cos \Omega_2 \tau + \left(\frac{G_2}{\Omega_2} \right)^2 (1 - \cos \Omega_2 \tau) \right) \right] \frac{G_1}{\Omega_1} \cos \alpha \right\}, \quad (12) \end{aligned}$$

где

$$\left. \begin{aligned} \Phi_2 &= \nu_2 (\tau + T + \tau_0) - \varepsilon kz + \varphi_2, \quad \tau = \frac{x}{u}, \quad \tau_0 = \frac{d_0}{u}, \\ \alpha &= (\nu_1 - \nu_2) \tau_0 + (\omega - \nu_2) T + (\varphi_1 - \varphi_2) - (1 - \varepsilon) kz, \\ \Omega_i &= \sqrt{\Delta_i^2 + G_i^2}, \quad \Delta_i = \omega - \nu_i, \\ \nu_1 &= \omega - kv, \quad \nu_2 = \omega - \varepsilon kv, \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

d_0 — диаметр лучей; $\varepsilon = 1$ в случае параллельных волн, $\varepsilon = -1$ в случае встречных волн в лучах; величина α в случае параллельных волн в лучах имеет вид

$$\alpha = (\omega - \nu + kv) T + \varphi, \quad (14)$$

а в случае встречных волн

$$\alpha = -2kv\tau_0 + (\omega - \nu - kv) T + \varphi - 2kz. \quad (15)$$

Выражение (12) можно разбить на два члена.

Первый член (первое слагаемое в фигурных скобках), соответствующий собственной поляризации молекул во 2-м луче, вычисленной с учетом изменения заселенности в 1-м луче, как в случае встречных, так и в случае параллельных волн, не зависит от координаты z , а зависит лишь от степени насыщения в лучах 1 и 2.

Второй член, зависящий от наведенной в первом луче поляризации, зависит как от степени насыщения в лучах 1 и 2, так и от набега фазы поля в 1-м и во 2-м луче, в промежутке между лучами и от разности начальных фаз полей в лучах 1 и 2 $\varphi = \varphi_1 - \varphi_2$. В дальнейшем для краткости этот член будем называть интерференционным, ибо, как мы увидим, именно он ответствен за нелинейные интерференционные явления в поглощении двух разнесенных лучей.

Существенно, что в случае встречных волн интерференционный член является периодической (с периодом $1/2k$) функцией z и при усреднении по ансамблю дает величину порядка λ/d , где d — длина области взаимодействия частиц с полем 2-го луча по оси z . В оптическом диапазоне $d \gg \lambda$ и, следовательно, интерференционный член в случае встречных волн пренебрежимо мал.

В случае же параллельных волн интерференционный член не зависит от координаты z [формула (14)] и усреднение по z дает вполне конечную величину, которая определяется значениями параметров насыщения в лучах 1 и 2, набегом фазы поля за время пролета молекулой промежутка между лучами и разностью фаз полей в 1-м и 2-м луче.

Таким образом, поляризация молекул в луче 2 различна в случае встречных и параллельных волн в лучах, а как следствие этого различным в этих случаях является и поглощение света во 2-м луче.

Физически эти результаты можно объяснить следующим образом. Рассмотрим ансамбль молекул с заданной скоростью V . Для простоты параметр насыщения в 1-м луче выберем таким, чтобы при вылете из 1-го луча заселенность уровней a и b была бы одинаковой. В этом случае поглощение света 2-го луча полностью определяется интерференционным членом [см. формулу (12)]. Причем энергия, поглощенная во 2-м луче, в случае параллельных волн равна некой конечной величине E и одинакова для частиц с различными координатами z . В случае же встречных волн ситуация такова, что если молекулы с координатами $z_j = z + \frac{\pi}{k} j$ ($j = 1, 2, 3, \dots$) во 2-ом луче поглощают энергию E , то молекулы с координатами $z'_j = z' + \frac{\pi}{k} j$ ($j = 1, 2, 3, \dots$) такую же энергию E отдают световому полю 2-го луча.

Коэффициент кросс-поглощения света во 2-м луче

В общем случае произвольного насыщения коэффициент поглощения света во 2-м луче x_2 молекулами, пересекающими 1-й луч с заданной скоростью $\mathbf{V} = (u, v)$, вычисляется с помощью соотношения

$$x_2 = -E_2 \frac{dP_2}{dt} \frac{cE_2^2}{4\pi}, \quad (16)$$

где черта сверху означает усреднение по времени t на интервале $[0, T_0]$ и координате z в области взаимодействия $[-d, +d]$. В результате получаем следующие выражения:

а) в случае встречных волн

$$x_2(\Delta)/x_0 = \left(\frac{1 - \cos \frac{1}{\xi} a_2}{a_2^2} \right) \left[1 - \gamma_1^2 \left(\frac{1 - \cos \frac{1}{\xi} a_1}{a_1^2} \right) \right]; \quad (17)$$

б) в случае параллельных волн

$$x_2/x_0 = \left(\frac{1 - \cos \frac{1}{\xi} b_2}{b_2^2} \right) \left[1 - \gamma_1^2 \left(\frac{1 - \cos \frac{1}{\xi} b_1}{b_1^2} \right) \right] + \frac{\gamma_1}{\gamma_2} \cos \varphi \frac{1}{b_1 b_2} \times \\ \times \left\{ \sin \frac{1}{\xi} b_1 \sin \frac{1}{\xi} b_2 - \frac{x^2}{b_1 b_2} \left(1 - \cos \frac{1}{\xi} b_1 \right) \left(1 - \cos \frac{1}{\xi} b_2 \right) \right\} \cos \frac{1}{\xi} \beta x - \\ - \left[\frac{x}{b_1} \left(1 - \cos \frac{1}{\xi} b_1 \right) \sin \frac{1}{\xi} b_2 + \frac{x}{b_2} \left(1 - \cos \frac{1}{\xi} b_2 \right) \sin \frac{1}{\xi} b_1 \right] \sin \frac{1}{\xi} \beta x, \quad (18)$$

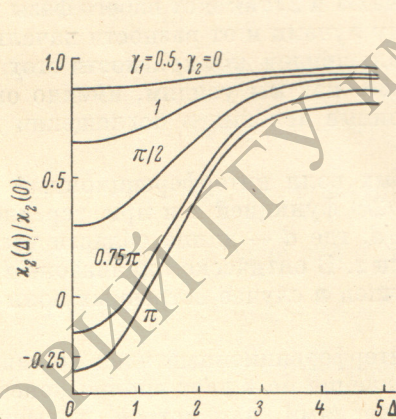


Рис. 1. Зависимость коэффициента поглощения слабого поля 2-го луча в случае двух встречных волн от расстройки $\Delta = (\omega - \nu) \tau_0$ частоты поля при различных значениях напряженности поля в первом луче: $\gamma_1 = (\mu \varepsilon_1 / \hbar) \tau_0 = 0.5, 1, \pi/2, 3\pi/4, \pi$; $\gamma_2 = (\mu \varepsilon_2 / \hbar) \tau_0 = 0$.

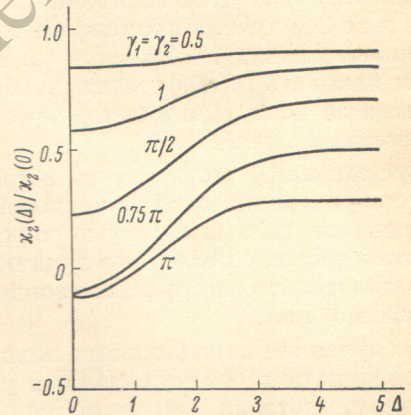


Рис. 2. Зависимость коэффициента поглощения 2-го луча от расстройки Δ для тех же значений напряженности поля, что и на рис. 1. В отличие от рис. 1, обе встречные волны имеют сильную напряженность поля, насыщающую переход.

где $x_0 = (8\pi^2/\lambda) (\mu^2 N_0 / \hbar) \tau_0$, N_0 — плотность разности заселенности нижнего и верхнего уровня молекулы, усредненная по z , а безразмерные величины и функции определены следующим образом:

$$\left. \begin{aligned} x &= kv\tau_0, \quad \xi = \frac{u}{v_0}, \quad \beta = \frac{T}{\tau_0}, \quad \gamma_i = G_i \tau_0, \quad \Delta = (\omega - \nu) \tau_0, \\ x_1 &= \Delta + x, \quad x_2 = \Delta - x, \quad b_i = \sqrt{x_1^2 + \gamma_i^2}, \quad a_i = \sqrt{x_2^2 + \gamma_i^2}. \end{aligned} \right\} \quad (19)$$

В случае моноскоростного пучка, а именно, когда $\xi = 1$, выражения (17) и (18) были численным образом усреднены по x . Результаты этого усреднения представлены на рис. 1—5.

На рис. 1 и 2 изображен коэффициент поглощения 2-го луча ($\chi(\Delta)/\chi_0$) как функция расстройки $\Delta = (\omega - \nu) \tau_0$ в случае двух встречных волн. Рассмотрен случай, когда в 1-м луче поле сильное, а во 2-м слабое, т. е. такое,

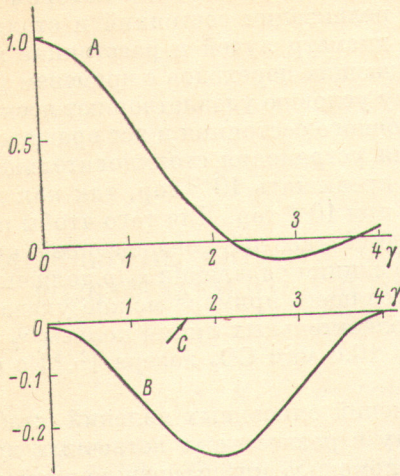


Рис. 3. Интерференционная ($B+C$) и неинтерференционная (A) части коэффициента поглощения 2-го луча в случае 2-х близкорасположенных ($\beta=0$) параллельных волн одинаковой интенсивности ($\gamma_1 = \gamma_2 = \gamma$) как функция напряженности поля γ .

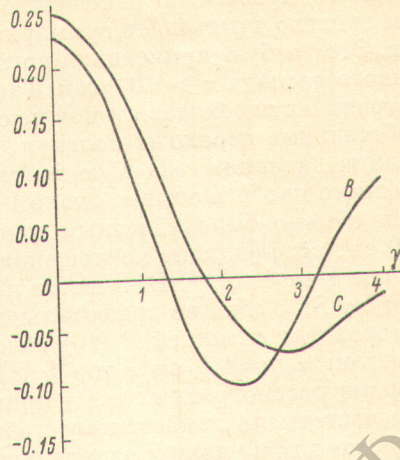


Рис. 4. Зависимость коэффициентов B и C от напряженности поля в лучах γ ($\gamma_1 = \gamma_2 = \gamma$) для $\beta = \frac{T}{\tau_0} = 0.25$.

что не вызывает насыщения заселенности (рис. 1), и случай полей одинаковой интенсивности, способных вызывать насыщение перехода (рис. 2).

В случае параллельных волн коэффициент поглощения 2-го луча (17), усредненный по доплеровскому контуру, можно записать в виде

$$\chi_2/\chi_0 = A + \frac{\gamma_1}{\gamma_2} (B + C) \cos \varphi, \quad \chi_0 = \frac{8\pi^{5/2}}{\lambda} \frac{\mu^2 N_0}{\hbar k v_0}, \quad (20)$$

$$A = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dx \left(\frac{1 - \cos b_2}{b_2^2} \right) \left[1 - \gamma_1^2 \left(\frac{1 - \cos b_1}{b_1^2} \right) \right], \quad (21)$$

$$B = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dx \left[\frac{\sin b_1}{b_1} \frac{\sin b_2}{b_2} - x^2 \left(\frac{1 - \cos b_1}{b_1^2} \right) \left(\frac{1 - \cos b_2}{b_2^2} \right) \right] \cos \beta x, \quad (22)$$

$$C = -\frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dx \left(\frac{1 - \cos b_1}{b_1^2} \frac{\sin b_2}{b_2} + \frac{\sin b_1}{b_1} \frac{1 - \cos b_2}{b_2^2} \right) x \sin \beta x. \quad (23)$$

Как видно из (21)–(23), коэффициенты B и C являются функциями $\beta = T/\tau_0$, а коэффициент A от β не зависит. На рис. 3 представлены коэффициент A и коэффициенты B и C при $\beta=0$ и $\gamma_1 = \gamma_2 = \gamma$, а на рис. 4 и 5 коэффициенты B и C соответственно при $\beta=0.25$ и 0.5 и $\gamma_1 = \gamma_2 = \gamma$.

При малых интенсивностях поля ($x \ll 1$) значения коэффициентов A , B и C на рис. 3–5 хорошо совпадают со значениями A , B и C , вычисленными аналитически в [1] (см. формулы (15) и (16) работы [1]). То же самое относится и к случаю двух встречных волн.

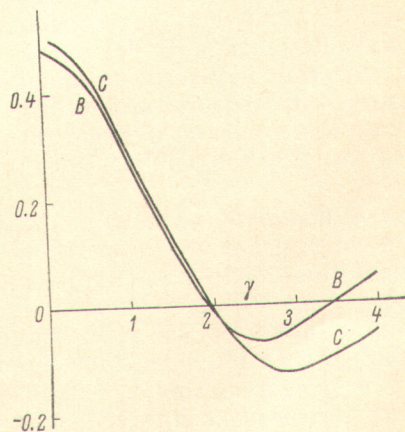


Рис. 5. То же самое, что и на рис. 4, для $\beta=0.5$.

Заключение

Для экспериментального обнаружения рассмотренных явлений необходимо работать с атомарным или молекулярным газом, в котором длина свободного пробега по отношению к релаксации состояний и столкновениям заметно превышает суммарный диаметр лучей и расстояние между ними. Это требует применения поглощающих переходов с временем радиационного распада $\tau > 10^{-4}$ сек. Такому условию удовлетворяют несколько запрещенных переходов атомов из основного состояния и все вращательно-колебательные переходы молекул. Для устранения столкновительной релаксации давление газа p не должно превышать 10^{-3} тор, так как длина свободного пробега обычно около 1 см при 10^{-3} тор. Для того чтобы поглощение обычно было заметным при длине газовой поглощающей ячейки ~ 100 см, коэффициент поглощения на единицу давления κ_0/p должен быть не менее $1 \text{ см}^{-1} \text{ тор}^{-1}$. В качестве подходящего примера можно указать на молекулу SF_6 , одна из вращательно-колебательных линий полосы ν_3 которой совпадает с линией P (16) полосы 10.6 мкм CO_2 лазера [3, 4] с коэффициентом $\kappa_0/p = 1.6 \text{ см}^{-1} \text{ тор}^{-1}$ [5].

Кроме рассмотренных в [1] применений описанных явлений (стабилизация частоты по лэмбовскому провалу в разнесенных встречных лучах, измерение длины волны излучения с помощью интерференционной зависимости в параллельных лучах), можно указать на возможность молекулярной связи двух лазеров с общей нелинейно-поглощающей ячейки низкого давления [6], которая рассмотрена в работе [7], и на возможность исследования уширения провала в распределении молекул по скоростям за счет слабых столкновений при переносе провала из одного луча в другой.

В заключение авторы выражают благодарность Н. Г. Басову за поддержку настоящей работы и А. Т. Матачун за помощь в проведении вычислений.

Литература

- [1] В. С. Летохов, Б. Д. Павлик. Опт. и спектр., 32, 856, 1972.
- [2] Н. Рамзэй. Молекулярные пучки, гл. 5, ИЛ, М., 1960.
- [3] O. R. Wood, S. E. Schwartz. Appl. Phys. Lett., 11, 88, 1967.
- [4] H. Brunet, M. Perez. Compt. Rend., 267, 1084, 1968.
- [5] C. K. Rhodes, A. Szöke. Phys. Rev., 184, 25, 1969.
- [6] В. С. Летохов. ЖЭТФ, 54, 1248, 1968.
- [7] В. С. Летохов, Б. Д. Павлик. Радиотехника и электроника, 17, 1030, 1972.

Поступило в Редакцию 16 февраля 1971 г.