

Четырехволновые параметрические процессы, наблюдаемые при исследовании ЭВКР в парах металлов

В.Г. Сокоиков, А.В. Клишкин*

*Институт оптики атмосферы им. В.Е. Зуева СО РАН
634021, г. Томск, пл. Академика Зуева, 1*

Поступила в редакцию 12.10.2011 г.

Продолжено изучение спектрального состава преобразованного излучения, возникающего при оптической накачке паров бария ХеСl*-лазером. Предложен механизм, объясняющий появление длинноволновых сателлитов у ряда линий, принадлежащих переходам в метастабильное состояние атома бария $5d^1D_2$. Эти сателлиты являются разностными частотами, которые генерируются в результате действия 4-волнового параметрического процесса (ЧВП). Начальным уровнем ЧВП является метастабильное состояние бария $5d^1D_2$. В ЧВП участвуют стоксова частота с $\lambda_s = 475$ нм, а также частоты вынужденных каскадных переходов атома бария. Предложенный механизм экспериментально проверен для случая генерации длинноволновых сателлитов, лежащих вблизи инфракрасного перехода $6p^1P^0 \rightarrow 5d^1D_2$ атома бария.

Ключевые слова: оптическая накачка, нелинейная оптика, электронное вынужденное рамановское рассеяние, 4-волновой параметрический процесс, усиленное спонтанное излучение, пары металлов; optical pumping, nonlinear optics, stimulated electronic Raman scattering, four wave parametric process, amplified spontaneous emission, metal vapors.

Введение

Излучение, наблюдаемое при оптической накачке паров бария излучением ХеСl*-лазера, имеет сложный спектральный состав. Он представлен множеством интенсивных вынужденных и спонтанных линий. С практической точки зрения наибольший интерес представляют вынужденные линии как источники когерентного излучения. Особый интерес для практических применений представляют когерентные источники, излучающие на резонансных линиях атомов и ионов. Механизмы генерации вынужденного излучения при оптической накачке паров бария излучением ХеСl*-лазера изложены в ряде работ.

Оказалось [1, 2], что наиболее интенсивное излучение в видимой области спектра с $\lambda = 475$ нм обусловлено процессом электронного вынужденного комбинационного рассеяния (ЭВКР). Эффективность преобразования при ЭВКР, наблюдаемого в парах бария при накачке ХеСl*-лазером, составляла $\eta \sim 20\%$. ЭВКР в ИК-области спектра, обнаруженный авторами [3], имел меньшую эффективность преобразования. Эффективность преобразования за счет других процессов, о которых речь пойдет ниже, не превышала единиц процента и зависела от конкретного типа наблюдаемого процесса. Было

установлено, что эти переходы являются следствием действия ряда отдельных процессов. Прежде всего, процесса индуцированной флуоресценции [6], наблюдаемой при увеличении концентрации атомов возбуждаемой среды. При дальнейшем повышении концентрации паров металла и буферного газа включается механизм преддиссоциации. Инверсия населенности на ряде атомных переходов бария является следствием каскадной накачки за счет оптических переходов сверху [2].

Для повышения интенсивности слабых линий до уровня, приемлемого для практического применения, был предложен и реализован способ их дополнительного усиления в красителях [4].

Наиболее интересным и неожиданным оказалось появление в спектре преобразованного излучения линий, обусловленных вынужденными переходами между уровнями иона бария [5].

Кроме линий излучения, вызванных переходами между уровнями атома и иона бария, были обнаружены линии, не принадлежащие таким переходам. Среди них уже упомянутые линии, обусловленные процессами ЭВКР, а также линии, возникающие при 4-волновых параметрических процессах (ЧВП) [7]. Вместе с тем в спектре преобразования остались линии, происхождение которых ранее объяснить не удалось. Речь идет о длинноволновых сателлитах, расположенных вблизи некоторых линий атома бария, наблюдаемых при вынужденных переходах в метастабильное состояние атома бария

* Владимир Григорьевич Сокоиков (gel@asd.iao.ru);
Антон Владимирович Клишкин (tosha@asd.iao.ru).

$5d^1D_2$. В частности, о линиях, излучающих вблизи инфракрасной линии атома бария с $\lambda = 1499$ нм, принадлежащей переходу $6p^1P_1^0 \rightarrow 5d^1D_2$.

В настоящей статье предложен механизм, объясняющий появление длинноволновых сателлитов у ряда линий, принадлежащих переходам в метастабильное состояние атома бария $5d^1D_2$. Этот механизм экспериментально подтвержден для случая генерации длинноволновых сателлитов, лежащих вблизи инфракрасного перехода $6p^1P_1^0 \rightarrow 5d^1D_2$ атома бария.

Механизм генерации длинноволновых сателлитов, расположенных вблизи линий, обусловленных переходом в метастабильное состояние атома бария $5d^1D_2$

При исследовании процесса ЭВКР в парах металлов используется трехуровневая схема возбуждения, включающая в себя начальный 1, промежуточный 2 и конечный 3 уровни (рис. 1, а).

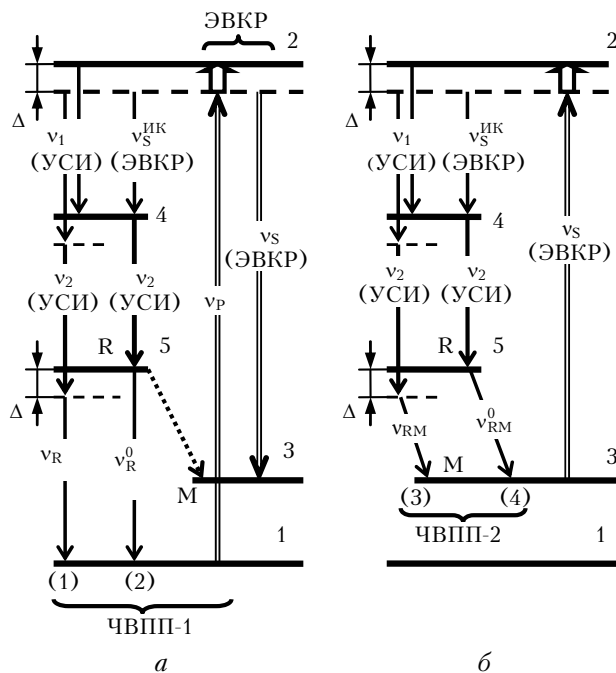


Рис. 1. Обобщенная схема уровней энергии атома, используемая для наблюдения процесса ЭВКР (уровни 1, 2 и 3). Схема поясняет механизм появления длинноволновых сателлитов v_R и v_R^0 у резонансного перехода 5–1 (а) и сателлитов v_{RM} и v_{RM}^0 у перехода 5–3 (б)

С целью увеличения сечения процесса ЭВКР частоту накачки v_P выбирают близкой к частоте перехода с начального на промежуточный уровень v_{12} . Разницу частот v_P и v_{12} называют отстройкой от резонанса $\Delta = |v_{12} - v_P|$.

Часто в реальной схеме, используемой для получения ЭВКР, между промежуточным 2 и началь-

ным 1 уровнями бывает расположено несколько уровней различной четности. В общем случае это группы четных и нечетных уровней. Однако на рис. 1, с целью упрощения, эти группы уровней условно изображены как одиночные уровни 4 и 5. В том случае, когда уровни 1, 3 и 4 четные, а уровни 2 и 5 нечетные или наоборот, может образоваться следующая цепочка оптических переходов. Это каскадные переходы между уровнями $2 \rightarrow 4 \rightarrow 5$, происходящие на частотах v_1 и v_2 . При интенсивной накачке спонтанное излучение на частотах v_1 и v_2 может перейти в режим усиленного спонтанного излучения (УСИ). Эмпирическое условие перехода излучения от спонтанного режима к вынужденному режиму в активной среде длиной L имеет следующий вид:

$$G_0 L \geq 30,$$

где G_0 — коэффициент усиления на центральной частоте соответствующего перехода. Это условие также справедливо для описания перехода от режима электронного спонтанного комбинационного рассеяния к ЭВКР [1]. Появление излучения на переходе атома $2 \rightarrow 4$ с частотой v_1 при квазирезонансной накачке обусловлено процессом индуцированной столкновениями флуоресценции [6]. Действие этого процесса представлено на рис. 1 короткой толстой стрелкой, соединяющей виртуальный (штриховые линии) и промежуточный уровень 2.

Уровень 4, так же как и уровень 3, может выступать в качестве конечного уровня в схеме ЭВКР. В этом случае стоксова частота процесса ЭВКР $v_S^{ИК}$ будет соответствовать инфракрасному диапазону. Частоты v_1 и $v_S^{ИК}$, как показано на рис. 1, отличаются на величину отстройки Δ .

Совместное или раздельное действие процессов УСИ на частоте v_1 и процесса ЭВКР на частоте $v_S^{ИК}$ приводит к заселению уровня 4. В результате на переходе между уровнями 4 и 5 создается инверсия населенности, за счет которой спонтанное излучение на частоте v_2 переходит в режим УСИ.

Таким образом, при квазирезонансной накачке системы уровней (рис. 1) излучением с частотой v_P в возбуждаемой среде может генерироваться вынужденное излучение на частотах v_1 , v_2 и $v_S^{ИК}$. Как показано в работе [7] на примере квазирезонансной накачки атома бария, эти три частоты (v_1 , v_2 и $v_S^{ИК}$) могут нелинейно взаимодействовать с частотой накачки v_P . Это взаимодействие представляет собой ЧВП-2 смешения частот вида

$$v_R = v_P - v_1 - v_2, \quad (1)$$

$$v_R^0 = v_P - v_S^{ИК} - v_2. \quad (2)$$

Результатом взаимодействия частот в среде является генерация излучения на разностных частотах v_R или v_R^0 . Процессы (1) и (2), как видно из рис. 1, начинаются и заканчиваются на начальном уровне 1, поэтому процессы такого вида часто называют процессами кольцевого смешения частот.

Важным условием эффективного протекания реакций (1) и (2) является обеспечение так называемого фазового синхронизма взаимодействующих волн [8]. Для условий, в которых наблюдались 4-волновые параметрические процессы в барии [7], имело место частичное фазовое согласование. А именно, при широком спектре генерации эксимерного лазера накачки для некоторых частот из спектра накачки условие фазового согласования выполнялось автоматически. Также известно, что выполнить условия для фазового согласования проще при фокусировке излучения накачки [9].

Таким образом, наличие уровней противоположной четности, расположенных между начальным уровнем 1 и промежуточным 2, в схеме, используемой для ЭВКР, создает условия для развития нелинейных ЧВПП генерации разностных частот. В обобщенном виде этот случай представлен на рис. 1, а. В результате действия процессов (1) и (2) у резонансного перехода $5 \rightarrow 1$ появляются длинноволновые сателлиты ν_R и ν_R^0 . И если первый сателлит ν_R сдвинут от резонансной линии на величину отстройки Δ , то второй наблюдается практически на резонансной линии. В работе [7] при накачке паров бария ХеСl*-лазером (308 нм) такие сателлиты наблюдались вблизи резонансных линий бария $6p^1P_1^0 \rightarrow 6s^1S_0$ (553,5 нм) и $5d6p^1P_1^0 \rightarrow 6s^1S_0$ (350,1 нм).

Процесс (2), приводящий к генерации на частоте ν_R^0 ($\lambda_R^0 = 589$ нм), наблюдался при накачке паров натрия вблизи $3s - 4p$ -перехода [10]. В процессе участвовали излучение стоксовой частоты $\nu_S^{\text{ИК}}$ ($\nu_S^{\text{ИК}} \sim 2500$ нм) и излучение на каскадном переходе натрия с длиной волны $\lambda_1 \sim 1140$ нм на частоте ν_1 .

Если же уровни 4 и 5 расположены выше конечного уровня 3, но ниже промежуточного уровня 2 схемы возбуждения ЭВКР, то по правилам отбора становится возможным переход с уровня 5 на уровень 3. На рис. 1, а он обозначен пунктирной стрелкой как R-M-переход. В этом случае наряду с процессами (1) и (2) возможно развитие нелинейных ЧВПП, приводящих к генерации разностных частот:

$$\nu_{\text{RM}} = \nu_S - \nu_1 - \nu_2, \quad (3)$$

$$\nu_{\text{RM}}^0 = \nu_S - \nu_S^{\text{ИК}} - \nu_2. \quad (4)$$

Схема процессов (3) и (4) представлена на рис. 1, б. Однако для реализации ЧВПП процессов вида (3) и (4) требуется выполнение дополнительных условий по сравнению с условиями, необходимыми для наблюдения процессов (1) и (2). Во-первых, населенность уровня 3 должна быть достаточно велика. Во-вторых, интенсивность ЭВКР стоксовой частоты ν_S должна быть тоже достаточно высокой. Иными словами, процесс ЭВКР, реализуемый в системе уровней 1, 2 и 3, должен быть эффективным. Чем эффективней процесс ЭВКР, тем большую интенсивность приобретает стоксова частота ν_S и тем более высокой оказывается населенность конечного уровня 3.

Так как частоты ν_1 , ν_2 и $\nu_S^{\text{ИК}}$ участвуют во всех процессах (1)–(4), то следует ожидать, что эти процессы будут конкурировать между собой.

В настоящей статье на примере паров бария, возбуждаемых ХеСl*-лазером, исследуется процесс ЧВПП вида (3) и (4), приводящий к генерации разностных частот вблизи перехода атома бария $6p^1P_1^0 \rightarrow 5d^1D_2$ ($\lambda_{\text{RM}} = 1499$ нм). Схематически эти процессы представлены на рис. 1, б. Напомним, что протекание процессов (3), (4) невозможно без эффективного процесса ЭВКР на частоте ν_S , которой соответствует длина волны λ_S .

Процесс ЭВКР ($\lambda_S = 475$ нм), наблюдаемый в парах бария при накачке ХеСl*-лазером, имеет высокую эффективность $\eta \sim 20\%$ [1, 2]. В качестве начального уровня 1 в этом случае выступает основное состояние бария $6s^1S_0$, в качестве промежуточного уровня 2 – резонансный уровень $7p^1P_1^0$, а в качестве конечного уровня 3 – метастабильное состояние бария $5d^1D_2$. Высокая эффективность процесса ЭВКР в барии приводит к значительному переносу населенности с начального уровня $6s^1S_0$ на конечный метастабильный уровень $5d^1D_2$. На это указывает экспериментально наблюдаемое в [1] насыщение коэффициента преобразования. Второе следствие высокого значения η заключается в том, что энергия излучения ЭВКР ($\lambda_S = 475$ нм) E_P достигает ~ 5 мДж [1]. Это значит, что излучение ЭВКР само может выступать как излучение накачки. При этом метастабильный уровень $5d^1D_2$ может рассматриваться как начальный уровень для различных процессов преобразования.

Таким образом, мощное излучение ЭВКР с длиной волны $\lambda_S = 475$ нм может участвовать в процессах вида (3) и (4) в качестве частоты накачки ν_S . Соответственно, уровень $5d^1D_2$, являющийся конечным уровнем 3 в схеме ЭВКР, будет выступать в качестве начального уровня для процессов (3) и (4).

Относительно того, какие конкретные из вынужденных переходов атома бария, наблюдаемых при квазирезонансной накачке паров бария ХеСl*-лазером, могут участвовать в качестве частот ν_1 , ν_2 и $\nu_S^{\text{ИК}}$, можно сказать следующее. Из рис. 1 видно, что частоты, участвующие в процессах (1) и (2) [3], также будут участвовать в процессах (3) и (4). Использование данных, полученных в работе [7], позволяет сразу представить графические схемы возможных ЧВПП вида (4) (рис. 2).

Разумеется, таких схем нелинейного смешения частот может быть и больше, чем схем, представленных на рис. 2. Напомним, что цифрами 4 и 5 на рис. 1 обозначены не отдельные уровни, а группы уровней. Кроме синглетных уровней в схеме ЧВПП могут участвовать и триплетные уровни.

Известно, что спектр генерации ХеСl*-лазера состоит из четырех полос: двух сильных, расположенных в середине спектра генерации, и двух слабых, расположенных по краям. На рис. 2 накачка

условно представлена только одной частотой. Другое упрощение заключается в том, что изображены только ЧВПИ вида (4).

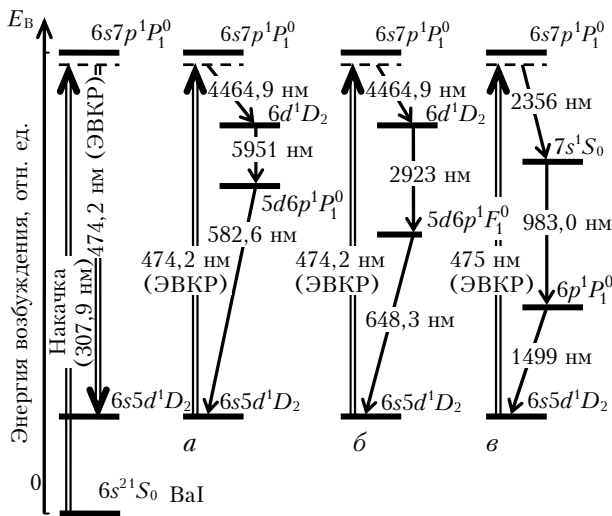


Рис. 2. Диаграмма синглетных уровней бария, иллюстрирующая возможные схемы ЧВПИ вида (4), приводящие к генерации разностных частот ν_{RM}^0 на переходах бария с длинами волн 582,6 (а), 648,3 (б), 1499 нм (в). На схеме представлен случай накачки только одной компонентой XeCl^* -лазера с $\lambda = 307,9$ нм

Для экспериментального исследования была выбрана схема, представленная на рис. 2, в. Такой выбор имеет простое объяснение. Кюветы, которые предполагалось использовать в наших экспериментах, имели окна из плавленного кварца, поглощающего излучение с $\lambda > 4000$ нм. Это обстоятельство не позволяет регистрировать излучение на переходах $\text{Ba}(6s7p^1P_1^0 \rightarrow 6s6d^1D_2)$ и $\text{Ba}(6s6d^1D_2 \rightarrow 5d6p^1P_1^0)$ в схемах, представленных рис. 2, а, б.

Экспериментальная техника

Нами использовалась типичная для такого рода исследований экспериментальная установка. Она состояла из эксимерного XeCl^* -лазера накачки, кюветы с парами бария, фокусирующей кварцевой линзы, монохроматора МДР-23 и системы регистрации преобразованного излучения. Эксимерный лазер ЭЛИ-5М, снабженный неустойчивым резонатором с увеличением $M = 12$, излучал энергию $E = 8 \div 12$ мДж. Излучение лазера накачки фокусировалось в кювету кварцевой линзой с $f = 61,4$ см. Область насыщенных паров бария в кювете имела длину 14 см. В качестве буферного газа использовался гелий.

Излучение видимого и ультрафиолетового диапазонов регистрировалось с помощью фотомножителя ФЭУ-100 или наблюдалось визуально через окуляр в фокальной плоскости выходной щели монохроматора МДР-23 или спектрометра ДФС-452. При визуальном наблюдении УФ-излучения применялись различные сцинтилляторы.

Для регистрации сигналов в ИК-диапазоне применялись фотомножители ФЭУ-62 или ФЭУ-83. ИК-излучение в области $\lambda > 1200$ нм, недоступное для регистрации вышеуказанными ФЭУ, регистрировалось германиевыми фотодиодами и фотосопротивлением на основе соединения PbS .

Весьма полезным для оперативной визуализации преобразованного инфракрасного излучения оказалось применение электронно-оптического преобразователя (ЭОП). ЭОП позволял уверенно регистрировать (визуализовать) лазерное излучение с $\lambda = 1499$ нм, принадлежащее ИК-переходу $6p^1P_1^0 \rightarrow 5d^1D_2$ атома бария. Визуализация ИК-излучения с помощью ЭОП оказалась весьма полезным приемом, позволяющим быстро установить наличие или отсутствие вынужденного инфракрасного излучения в исследуемом световом потоке.

Экспериментальное исследование процессов ЧВПИ вида (3) и (4) в парах бария

При облучении паров бария излучением XeCl^* -лазера среди множества линий УСИ наблюдается линия с $\lambda = 1499$ нм, принадлежащая известному ИК-переходу $\text{Ba}(6p^1P_1^0 \rightarrow 5d^1D_2)$. Как отмечалось ранее, вблизи линии бария 1499 нм наблюдаются два длинноволновых спутника с длинами волн 1516,1 и 1522,4 нм, которые не удалось идентифицировать с известными линиями бария. Вместе с тем разности волновых чисел этих двух спутников равна разности волновых чисел двух сильных частот в спектре генерации XeCl^* -лазера накачки. Более того, длинноволновые спутники имеют такие же длинноволновые отстройки от линии $6p^1P_1^0 \rightarrow 5d^1D_2$ бария, как и две сильные линии лазера накачки от резонансного перехода $6s^1S_0 \rightarrow 7p^1P_1^0$.

Заметим, что аналогичное поведение демонстрируют длинноволновые спутники вблизи резонансных линий бария [7], появление которых обусловлено ЧВПИ вида (1) и (2). Поэтому есть основания для предположения о том, что длинноволновые спутники с длинами волн 1516,1 и 1522,4 нм имеют параметрический механизм генерации вида (3). В соответствии с этим предположением обозначим частоты наблюдаемых спутников как ν_{RM}^1 и ν_{RM}^2 . В генерации спутника с частотой ν_{RM}^1 ($\lambda_{\text{RM}}^1 = 1516$ нм) принимают участие стоксова частота ν_S^1 ($\lambda_S^1 = 474,2$ нм) и частоты ν_1 и ν_2 , обусловленные каскадными переходами $\text{Ba}(7p^1P_1^0 \rightarrow 7s^1S_0)$ с $\lambda_1 = 2316$ нм и $\text{Ba}(7s^1S_0 \rightarrow 6p^1P_1^0)$ с $\lambda_2 = 983,0$ нм. Спутник с частотой ν_{RM}^2 ($\lambda_{\text{RM}}^2 = 1522$ нм) образуется при параметрическом взаимодействии частот ν_S^2 ($\lambda_S^2 = 474,8$ нм), ν_1 ($\lambda_1 = 2316$ нм) и ν_2 ($\lambda_2 = 983,0$ нм). Процесс генерации спутников с частотами ν_{RM}^1 и ν_{RM}^2 можно представить в виде

$$\nu_{\text{RM}}^1 = \nu_S^1 - \nu_1 - \nu_2, \quad (3a)$$

$$\nu_{\text{RM}}^2 = \nu_S^2 - \nu_1 - \nu_2. \quad (3б)$$

Частоты ν_S^1 и ν_S^2 являются стоксовыми частотами процесса ЭВКР от двух сильных частот генерации лазера накачки. То есть это две реализации ЧВПИ вида (3) для частот накачки ν_S^1 и ν_S^2 . Известно, что при некотором превышении порога спектр ЭВКР повторяет спектр накачки [1]. Спектр разностных частот ν_{RM}^1 и ν_{RM}^2 , в свою очередь, повторяет спектр стоксовых частот ν_S^1 и ν_S^2 , которые в ЧВПИ (3) выступают как частоты накачки. В связи с этим следует ожидать, что спектр спутников с частотами ν_{RM}^1 и ν_{RM}^2 в общих чертах будет повторять спектр линий генерации ХеСл*-лазера с частотами ν_P^1 и ν_P^2 .

Для того чтобы частоты (ν_1 , ν_2 и $\nu_S^{ИК}$), обусловленные различными процессами, могли нелинейно взаимодействовать с частотой ЭВКР ν_S , они должны прежде всего одновременно генерироваться в среде. Чтобы убедиться в этом, мы исследовали поведение интенсивности линий УСИ и ЭВКР, которые могут участвовать в процессах вида (3) и (4) при различных условиях возбуждения.

Для схемы, представленной на рис. 2, в и исследуемой в настоящей статье, в качестве частот ν_1 и ν_2 выступают частоты переходов Ва ($7p^1P_1^0 \rightarrow 7s^1S_0$) и Ва ($7s^1S_0 \rightarrow 6p^1P_1^0$). Длины волн этих переходов, излучающих в режиме УСИ, соответственно равны 2316 и 983,0 нм. А частоты $\nu_S^{ИК}$ и ν_S являются стоксовыми частотами ЭВКР от ХеСл*-лазера в парах бария. Их длины волн лежат в инфракрасной ($\lambda_S^{ИК} = 2365$ нм) и видимой ($\lambda_S = 475$ нм) областях спектра.

Поведение интенсивности частот ν_1 и ν_2 , $\nu_S^{ИК}$ и ν_S в зависимости от концентрации паров бария при оптической накачке ХеСл*-лазером представлено на рис. 3.

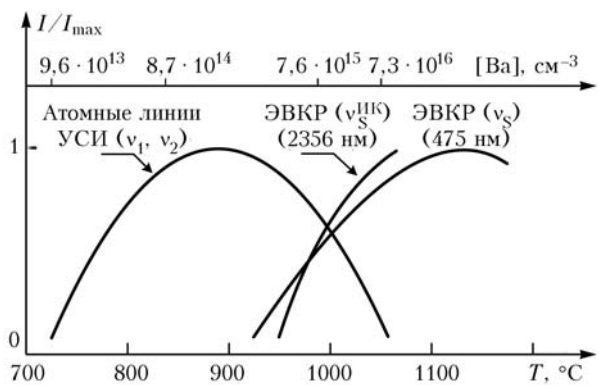


Рис. 3. Эволюция интенсивности атомных линий УСИ (ν_1 и ν_2) и линий ЭВКР в инфракрасной ($\nu_S^{ИК}$) и видимой (ν_S) областях спектра, наблюдаемая с ростом температуры кюветы

Видно, что диапазон температур кюветы, в котором одновременно излучают все четыре частоты, начинается с 950 °С и заканчивается 1050 °С.

Как следует из соответствующих осциллограмм, импульсы излучения всех частот ν_1 и ν_2 , $\nu_S^{ИК}$ и ν_S наблюдаются на переднем фронте импульса накачки. А сами осциллограммы существенно перекры-

ваются или накладываются друг на друга во всем диапазоне 950–1050 °С.

Таким образом, в диапазоне температур кюветы 950–1050 °С имеет место автоматическая временная синхронизация импульсов взаимодействующих частот. Эта синхронизация является необходимым условием для протекания процессов генерации разностных частот вида (3) и (4), и предположение о том, что длинноволновые спутники, наблюдаемые вблизи линии бария с $\lambda = 1499$ нм, являются разностными частотами процессов (3) и (4), может быть вполне справедливым.

С целью более тщательного изучения спектральной области вблизи перехода с $\lambda = 1499$ нм мы использовали спектрометр ДФС-452. Его применение позволило выявить некоторые дополнительные детали и особенности, также указывающие на параметрическую природу спутников. Запись участка спектра, в котором наблюдаются спутники, представлена на рис. 4.

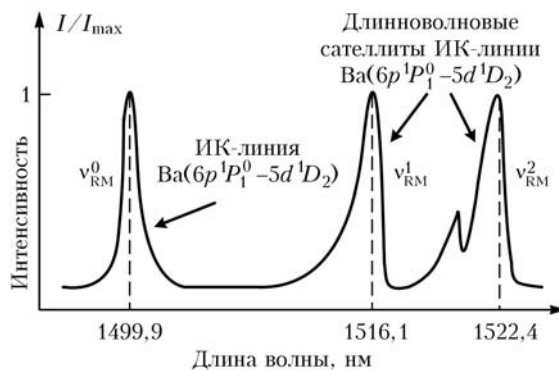


Рис. 4. Участок спектра преобразованного излучения вблизи ИК-перехода атома бария Ва ($6p^1P_1^0 \rightarrow 5d^1D_2$), в котором присутствуют длинноволновые спутники с длинами волн 1516,1 и 1522,4 нм

Видно, что эти спутники имеют спектральную ширину, большую, чем обычные линии УСИ. Так же как и спутники резонансных линий бария, спутники с частотами ν_{RM}^1 и ν_{RM}^2 в общих чертах повторяют структуру двух сильных полос генерации ХеСл*-лазера, а также стоксовых компонент от этих полос. А именно, компоненты ν_{RM}^1 и ν_{RM}^2 , как и компоненты накачки ν_P^1 и ν_P^2 [4], имеют коротковолновую монотонный спад и относительно резкую длинноволновую границу. Более того, компонента ν_{RM}^2 имеет такой же характерный провал, как и полоса ν_P^2 ХеСл*-лазера [4]. Все эти спектральные свойства спутников ν_{RM}^1 и ν_{RM}^2 указывают на параметрический характер их генерации.

На параметрическую природу генерации длинноволновых спутников ν_{RM}^1 и ν_{RM}^2 указывает и практически полная асимметрия их распространения в направлении «вперед–назад». Что касается излучения на частоте ν_{RM}^0 , то оно показывает значительно меньшую асимметрию. По-видимому, это связано с тем, что излучение на частоте ν_{RM}^0 является

следствием действия двух различных процессов. Первый из них — это ЧВПП вида (4). Второй процесс представляет собой вынужденное излучение — УСИ, возникающее в результате образования инверсии населенности на переходе $6p^1P_1^0 \rightarrow 5d^1D_2$. Часть излучения, имеющая параметрическую природу, асимметрична. Напротив, УСИ распространяется симметрично как в направлении накачки, так и в противоположном направлении.

Тот факт, что сателлиты с частотами ν_{RM}^1 и ν_{RM}^2 наблюдались только тогда, когда в спектре преобразованного излучения присутствовали частоты ν_S^1 , ν_1 , ν_2 или ν_S^2 , ν_1 , ν_2 , также подтверждает параметрическую природу генерации этих сателлитов.

Чтобы показать, что компоненты ν_{RM}^1 и ν_{RM}^2 действительно генерируются в процессах вида (3а) и (3б), пары бария возбуждались излучением на частоте ν_P^1 либо излучением на частоте ν_P^2 . Для этого излучение XeCl^* -лазера накачки направлялось в кювету с парами бария после отражения от дифракционной решетки, имеющей 3600 штр./мм. Подробно этот метод накачки описан в работе [7].

Как и следовало ожидать, исходя из предположения о параметрической природе генерации длинноволновых сателлитов, эксперименты показали следующую картину. При накачке паров бария излучением на частоте ν_P^1 , в соответствии с реакцией (3а), вблизи линии $\lambda_{RM}^0 = 1499$ нм наблюдался только один сателлит на частоте ν_{RM}^1 . И наоборот, накачка на частоте ν_P^2 вызывала появление только сателлита на частоте ν_{RM}^2 , уже в соответствии с реакцией (3б).

Следует отметить, что метод накачки, применяемый в [7] для исследования ЧВПП вида (1) и (2), при изучении процессов вида (3а) и (3б) применим в значительно более узком диапазоне экспериментальных условий. При отражении от дифракционной решетки излучение накачки ослабляется практически на порядок. Это обстоятельство препятствует генерации мощного излучения на стоксовых частотах ν_S^1 и ν_S^2 , что, в свою очередь, не всегда позволяет достичь концентраций метастабильных атомов бария $\text{Ba}(5d^1D_2)$, необходимых для протекания ЧВПП вида (3а) и (3б). Более универсальным, хотя и более дорогим для такого рода исследований, является метод селекции частот, осуществляемой в системе «генератор—усилитель».

Таким образом, результаты данного исследования подтверждают предположение о том, что длинноволновые сателлиты с длинами волн 1516,1 и 1522,4 нм, наблюдаемые вблизи линии бария с $\lambda_{RM}^0 = 1499$ нм при оптическом возбуждении паров бария излучением XeCl^* -лазера, генерируются в результате ЧВПП вида (3а) и (3б).

В обобщенном виде эти результаты представлены на рис. 5. Левая часть рисунка иллюстрирует механизм генерации ЧВПП (1) и (2), ответственных за появление длинноволновых сателлитов

вблизи резонансной линии бария. В правой части изображены процесс ЭВКР и обусловленный им ЧВПП вида (3) и (4). Две стоксовы частоты $\nu_S^{1\text{ИК}}$ и $\nu_S^{2\text{ИК}}$ от частот накачки ν_P^1 и ν_P^2 , участвующие в процессах вида (2) и (4), на рисунке изображены общей стрелкой и обозначены символом $\nu_S^{\text{ИК}}$. Процессы вида (4) для одной стоксовой частоты $\nu_S^{1\text{ИК}}$ были показаны раньше на рис. 2.

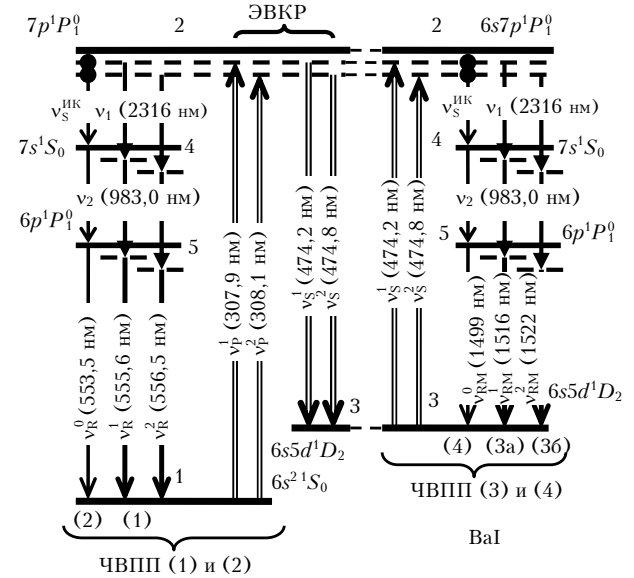


Рис. 5. Частичная диаграмма уровней атома бария, поясняющая порядок появления ЧВПП вида (1) и (2), процессов ЭВКР и ЧВПП вида (3а), (3б) и (4). Символом $\nu_S^{\text{ИК}}$ и общей стрелкой обозначены две стоксовы частоты от частот накачки ν_P^1 и ν_P^2 , участвующие в процессах вида (2) и (4)

При определенных условиях излучение на резонансных переходах [7] и на переходах в метастабильное состояние может являться следствием образования инверсии населенности на этих переходах, а не результатом ЧВПП вида (2) и (4).

Отметим, что длинноволновые сателлиты вблизи линий с $\lambda = 582,6$ и $648,3$ нм, представленных на рис. 2, наблюдались, но по причине, изложенной выше, подробно не исследовались.

Заключение

Наличие групп уровней противоположной четности, расположенных между начальным уровнем и промежуточным, в схемах, используемых для реализации ЭВКР, создает условия для появления множества линий УСИ и ЭВКР в ИК- и видимой областях спектра. Взаимодействие излучения линий УСИ и ЭВКР с излучением накачки приводит к развитию нелинейных ЧВПП генерации разностных частот вида (1) и (2). В результате действия процесса (1) у резонансных линий появляются длинноволновые сателлиты [7].

Выявлено, что при исследовании ЭВКР наряду с процессами (1) и (2) могут иметь место ЧВПП вида (3) и (4). Эти процессы возможны только при

достаточно мощном ЭВКР, как, например, ЭВКР в видимой области спектра с $\lambda_S = 475$ нм в барии [1, 2]. Действие процесса (3) приводит к появлению длинноволновых спутников у линий, оканчивающихся на конечном уровне в схеме ЭВКР. В настоящей работе такие спутники обнаружены у ряда линий бария, оканчивающихся на метастабильном уровне $Ba(5d^1D_2)$. Этот уровень используется в качестве конечного при ЭВКР излучения $XeCl^*$ -лазера в парах бария.

Таким образом, полученные результаты позволили выделить еще одну группу процессов, наблюдаемых при облучении паров бария излучением $XeCl^*$ -лазера. Учет ЧВПП вида (3) и (4) позволяет объяснить появление ряда линий в спектре преобразованного излучения. Таких как, например, спутники с длинами волн 1516,1 и 1522,4 нм, наблюдаемые вблизи линии бария с $\lambda_{RM}^0 = 1499$ нм при оптическом возбуждении паров бария излучением $XeCl^*$ -лазера.

Действие процессов вида (3) и (4) приводит к перераспределению энергии от процесса ЭВКР к ЧВПП, т.е. энергия излучения на стоксовой частоте ЭВКР расходуется на поддержание ЧВПП. Процессы вида (1) и (2) понижают эффективность процесса ЭВКР, ослабляя излучение накачки. А процессы вида (3) и (4) понижают эффективность процесса ЭВКР, ослабляя непосредственно излучение на стоксовой частоте. В определенных условиях может иметь место обратное перераспределение энергии от ЧВПП к ЭВКР.

Необходимо отметить, что действие ЧВПП вида (1)–(4) может приводить к ошибкам при измерении интенсивности линий УСИ на промежуточных атомных переходах. Это относится к тем переходам, излучение которых участвует одновременно в нескольких кольцах ЧВПП. В этом случае интенсивное когерентное излучение на промежуточном переходе может наблюдаться даже при отсутствии инверсии населенности. Такое излучение может генерироваться в результате действия ЧВПП на одном из нескольких колец. В общем случае интенсив-

ность когерентного излучения на промежуточном переходе, при наличии процессов вида (1)–(4), является суммой интенсивностей излучения от процессов УСИ и ЧВПП. Это обстоятельство затрудняет правильную интерпретацию поведения интенсивности линий в зависимости от условий возбуждения.

1. Cotter D., Zapka W. Efficient Raman conversion of $XeCl^*$ excimer laser radiation in Ba vapour // Opt. Commun. 1978. V. 26, N 2. P. 251–255.
2. Верховский В.С., Клишкин В.М., Прокопьев В.Е., Соколов В.Г., Тарасенко В.Ф., Федоров А.И. Исследование ВКР излучения эксимерных лазеров на электронных переходах атомов металлов // Квант. электрон. 1982. Т. 9, № 11. С. 2151–2155.
3. Manners J. $XeCl$ -laser generated infra-red SRS in barium vapor // Opt. Commun. 1983. V. 144, N 5. P. 366–370.
4. Клишкин В.М., Соколов В.Г. Увеличение мощности генерации на атомных и ионных переходах химических элементов // Квант. электрон. 2007. Т. 37, № 2. С. 135–140.
5. Клишкин В.М., Николаев В.Н., Соколов В.Г., Щеголов В.Б. Генерация в основное и метастабильные состояния Ba^+ при двухфотонной ионизации паров Ba излучением $XeCl^*$ -лазера // Письма в ЖЭТФ. 1980. Т. 34, вып. 3. С. 111–114.
6. Carlsten J.L., Raymer M.G. Collision and radiative effects in three-level system // Laser Spectroscopy III / Ed. J.L. Hall, M.G. Carlsten. 1977. Spring. Ser. in Opt. Sci. V. 7. 468 p.
7. Sokolov V.G., Klimkin V.M. Generation of ultraviolet and visible coherent radiation by four-wave parametric oscillation in Barium vapor // Atomic and Molecular Pulsed Lasers / V.F. Tarasenko, G.Y. Mayer, G.G. Petrushin, Eds. // Proc. SPIE. 1995. V. 2619. P. 315–323.
8. Архипкин В.Г., Попов А.К. Нелинейная оптика и преобразование света в газах // Успехи физ. наук. 1987. Т. 153, вып. 3. С. 423–469.
9. Бахрамов С.А., Тартаковский Г.Х., Хабибуллаев П.К. Нелинейные резонансные процессы и преобразование частоты в газах. Ташкент: ФАН, 1981. 160 с.
10. Han Xiaofeng, Lu Zhenguo, Ma Zuguang. Raman-resonant spontaneous four-wave parametric process in sodium vapor // Opt. Commun. 1988. V. 67, N 5. P. 383–386.

V.G. Sokolov. A.V. Klimkin. Four-wave parametric processes, observed at research of stimulated electronic Raman scattering in metal vapors.

In this paper we continue the study of spectral composition of the converted radiation due to optical pumping of barium vapor with $XeCl^*$ laser. We propose a formation mechanism of the long-wave satellites in certain lines belonging to transitions into the metastable state of atomic barium $5d^1D_2$. These satellites are difference frequencies, generated as a result of four-wave parametric oscillations (FWPO) process. The initial level of the FWPO process is the metastable state $5d^1D_2$ of barium. The FWPO process involved the interaction of the Stokes frequency $\lambda_S = 475$ nm with two frequencies of stimulated cascade transitions of the barium atom. The proposed mechanism was experimentally verified for the case of the generation of long-wavelength infrared satellites located near the $6p^1P_1^0 \rightarrow 5d^1D_2$ barium atom transition.