Краткие сообщения по физике № 7-1989 г.

УДК 621. 373. 826. 038. 823

К ТЕОРИИ УСИЛЕНИЯ ФЕМТОСЕКУНДНЫХ ИМПУЛЬСОВ СВЕТА В ЭКСИМЕРНЫХ СРЕДАХ

Э.М. Беленов, П.Г. Крюков, А.В. Назаркин

Получено уравнение, описывающее когерентное усиление короткого импульса света в среде молекул XeCl на переходе $B^2\Sigma_{1/2} \to X^2\Sigma_{1/2}$ с учетом его колебательно-вращательной структуры. Найдено устойчивое значение площади импульса и соответствующая этому значению эффективность энергосъема. Показана возможность компрессии импульса по длительности.

Эксимерные лазерные системы позволяют получать мощное импульсное когерентное излучение в широком диапазоне длин волн – от далекого УФ до видимого. Вопрос о взаимодействии короткого импульса с многоуровневой молекулярной средой, в частности, эксимерной, изучен недостаточно. В большинстве случаев усиление в таких системах описывают с помощью скоростных уравнений, то есть в приближении некогерентного взаимодействия поля с частицами /1, 2/ в то время как корректное рассмотрение усиления импульсов с длительностью τ_p, меньшей характерных времен T_2 релаксационных процессов (в эксимерных системах это времена вращательной релаксации: $T_2 \approx T_r \sim 10$ пс), требует учета когерентности взаимодействия поля с веществом /3, 4/. Целью настоящей работы является исследование особенностей взаимодействия ультракороткого импульса (УКИ) с $\tau_p \ll T_2$ с эксимерными средами. В качестве примера рассматривается среда эксимерного XeCl лазера на длине волны $\lambda = 308$ нм.

Спектр усиления молекулы XeCl в этой области имеет ширину ~ 200 см$^{-1}$ и обусловлен переходами между связанными состояниями /5/. Основной вклад в линию усиления вносят перекрывающиеся друг с другом полосы переходов с нижнего колебательного уровня v = 0 возбужденного электронного состояния B на более десяти колебательных уровней основного электронного состояния X. Вследствие значительного различия вращательных постоянных B_j в состояниях B и X, полосы P и R-ветвей практически наложены друг на друга. Частота электронного перехода между нижними колебательными уровнями составляет $\omega_e =$ $= 32405{,}8$ см$^{-1}$; собственные частоты колебаний верхнего и нижнего электронных уровней $\omega_{Bv} = 195{,}17$ см$^{-1}$, $\omega_{Xv} = 26{,}27$ см$^{-1}$.

Таким образом, особенностью спектра усиления молекулы XeCl является возможность переходов с одного колебательно-вращательного уровня v верхнего электронного состояния B на целый ряд v$'$ колебательных уровней состояния X. При длительности импульса $\tau_p \lesssim 10^{-13}$ с спектр импульса шире глубины потенциальной ямы основного электронного состояния, и усиление осуществляется на всех переходах B(v = = 0) → X(v$'$ = 0, 1, ...). Будем считать поле импульса плоскополяризованным. В этом случае переходы B → X происходят с изменением вращательного числа j на ± 1. Согласно этим правилам отбора, в поле УКИ возникают цепочки переходов типа B(v = 0, j) – X(v$'$, j ± 1) → B(v = 0, j ± 2) → X(v$''$, j ±3) и т. д. Поскольку переходы v, j → v$'$, j$'$ вырождены и по проекции m векторов j, j$'$ структура линии усиления для УКИ является весьма сложной.

Для определения отклика ансамбля молекул на внешнее поле, вообще говоря, необходимо использовать формализм матрицы плотности. Пренебрежение релаксационными процессами позволяет воспользоваться более удобным в данном случае описанием системы с помощью амплитуд вероятности. Значение поляризации и населенностей при этом получаются усреднением решений материальных уравнений с учетом того, что исходные состояния системы между собой не коррелируют. Уравнения для амплитуд имеют вид:

$$i\hbar da_k/dt = -(1/2)\sum_{k'} \mu_{kk'}\epsilon(z,t)\,e^{-i(\omega-\omega_{kk'})t}a_{k'}, \quad (1)$$

где k – набор электронных, колебательных и вращательных квантовых чисел, характеризующих состояния системы; $\mu_{kk'}$ – матричный элемент дипольного момента; $\epsilon(z, t)$ – амплитуда, ω – частота поля импульса.

В силу линейности и однородности системы (1), в каждый момент времени t решение для амплитуд $a_k(t)$ будет линейной комбинацией значений амплитуд в момент $t = 0$, т. е. до прихода импульса. При вычислении поляризации и населенностей составляем корреляторы $a_k(t)a^*_{k'}(t)$, которые после усреднения $(a_k(0)a^*_{k'}(0) = n_k\delta_{kk'}$, n_k – начальная населенность k-го уровня) зависят лишь от исходных населенностей различных состояний. Таким образом, для вычисления отклика среды достаточно вычислить отклик на возбуждение квантовой системы, начально находившейся в состоянии k, а затем просуммировать все отклики по k с весом, равным соответствующей населенности n_k.

Строгий учет вырождения сопряжен с существенным усложнением задачи. Для каждого значения проекции m вращательного числа j необходимо составить систему уравнений (1) и проделать вычисление отклика по схеме, описанной выше, после чего результаты просуммировать по m. Упрощенный подход состоит в использовании усредненных по m значений дипольных моментов переходов /3, 4/. В рамках такой модели для матричных элементов электронно-колебательно-вращательного перехода имеем:

$$\mu_{kk'} = \mu\sqrt{F_{0v'}/3}\,[\sqrt{(j+1)/(2j+1)}\,\delta_{j,j'+1} + \sqrt{j/(2j+1)}\,\delta_{j,j'-1}], \qquad (2)$$

где $k = B(v = 0, j)$; $k' = X(v', j')$; μ – приведенный матричный элемент перехода: $F_{0v'}$ – фактор Франка – Кондона для перехода.

Учитывая, что при типичных экспериментальных условиях на верхнем электронном уровне заметно заселены вращательные состояния вплоть до $j \sim 100$ /3/, с достаточной степенью точности из (2) имеем: $\mu_{kk'} = \mu(F_{0v'}/6)^{1/2}(\delta_{j,j'+1} + \delta_{j,j'-1})$. Не зависящие от j матричные элементы перехода $B(v = 0, j) - X(v', j \pm 1)$ обозначим через $\mu_{0v'}$.

Рассмотрим взаимодействие УКИ с многоуровневой системой в пределе $|\omega - \omega_{kk'}| \ll \tau_p^{-1}$. Пусть a_j – амплитуда j-го вращательного подуровня верхнего рабочего уровня $B(v = 0)$, $a_{v',j'}$ – амплитуда j'-го вращательного подуровня v'-го колебательного уровня нижнего электронного состояния $X(v)$. Система переходов является полубесконечной и для каждого m начинается с вращательных чисел j_0, $j_0 = |m|$. Уравнения для амплитуд имеют вид:

$$\begin{gathered} i\,da_j/dx = -\sum_{v'=0}^{v'_{max}} \mu_{0v'}(a_{v',j-1} + a_{v',j+1}), \\ i\,da_{v',j-1}/dx = -\mu_{0v'}(a_j + a_{j-2}), \end{gathered} \qquad (3)$$

где $x = (2\hbar)^{-1}\int_{-\infty}^{t}\epsilon(z, t')\,dt'$. Можно показать, что взаимодействие с полем группы колебательных уровней нижнего электронного состояния эквивалентно взаимодействию одного уровня. Действительно, из (3) получаем

$$i\,da_j/d\psi = -(\tilde{a}_{j-1} + \tilde{a}_{j+1}), \quad i\,d\tilde{a}_{j-1}/d\psi = -(a_j + a_{j-2}), \qquad (4)$$

где

$$\tilde{a}_j = (1/\bar{\mu})\sum_{v=0}^{v'_{max}} a_{v',j}\mu_{0v'}, \qquad \Psi = (\bar{\mu}/2\hbar)\int_{-\infty}^{t}\epsilon\,dt'.$$

Величины $\tilde{a}_j$ теперь имеют смысл амплитуд вероятности нахождения системы на эффективном колебательном уровне нижнего рабочего состояния, $\bar{\mu} = (\sum_{v'=0}^{v_{max}} \mu_{0v}^2)^{1/2}$ – эффективный дипольный момент перехода.

Таким образом, задача свелась к нахождению отклика полубесконечной системы последовательно связанных уровней с равными дипольными моментами переходов, начально находившейся на одном из верхних уровней (предполагаем, что исходно система полностью инвертирована). Опуская громоздкие, но принципиально не сложные вычисления поляризации системы (решение (4) см. в Приложении), приведем окончательный вид уравнения, описывающего распространение УКИ в активной среде эксимерного усилителя:

$$\partial\epsilon/\partial z + (1/c)\,\partial\epsilon/\partial t = (4\pi N\omega/c)\,\overline{\mu}\; Y_1\Big((2\overline{\mu}/\hbar)\int_{-\infty}^{t}\epsilon dt\Big). \qquad (5)$$

Здесь N – число активных молекул в $см^3$, Y_1 – функция Бесселя первого порядка. Устойчивое значение площади импульса $\theta = (2\overline{\mu}/\hbar)\int_{-\infty}^{\infty}\epsilon dt$ будет соответствовать нулям функции $Y_1(\theta)$, доставляющим локальные максимумы энергосъема. Для изменения энергии импульса $W = (c/8\pi)\int_{-\infty}^{\infty}\epsilon^2 dt$ из (5) получим уравнение: $dW/dz = (1/2)N\hbar\omega[1 - Y_0(\theta)]$. Устойчивые значения площади находятся из условия $\theta_i = X_{2i}$, i = 1, 2, ..., где X_{2i} – корни уравнения $Y_1(X) = 0$ с четными номерами. Поскольку максимум съема энергии приходится на корень $X_2 = 3{,}8$, то при усилении УКИ реализуется именно эта площадь $\theta_1 = 3{,}8$ /6/. Эффективность энергосъема, соответствующая этой площади, составляет $\eta = (1/2)[1 - Y_0(3{,}8)] = 0{,}7$.

В процессе усиления импульс будет испытывать сжатие по длительности аналогично усилению в двухуровневом усилителе, поскольку площадь импульса сохраняется вблизи устойчивого значения.

Таким образом, анализ усиления УКИ в среде эксимерного XeCl лазера показал принципиальность учета когерентности взаимодействия излучения с активной средой. Процесс когерентного усиления характеризуется двумя особенностями – высокой эффективностью энергосъема (~ 70%) и компрессией импульса по длительности.

Приложение

Пронумеруем последовательно связанные уровни так, чтобы отсчет велся от уровня $j = |m|$, который обозначим индексом $l = 1$ и т. д.. Тогда задача (4) формулируется следующим образом:

$$i\,da_l/d\psi = -(a_{l+1} + a_{l-1}),\quad i\,da_1/d\psi = -a_2,\quad a_l(0) = \delta_{ll_0},$$

где l_0 – какой-либо из верхних уровней системы. Решение этой задачи есть: $a_l = i^{\,l-l_0}Y_{l-l_0}(2\Psi) - i^{\,l+l_0}\times Y_{l+l_0}(2\Psi)$, где Y_l – функции Бесселя целого порядка.

ЛИТЕРАТУРА

1. Corkum P. B., Taylor R. S. IEEE Y., **QE-18**, 1962 (1982).
2. Glownia Y. H. et al. Optics Lett., **11**, 79 (1986).
3. Платоненко В. Т., Таранухин В. Д. Квантовая электроника, **14**, 62 (1987).
4. Платоненко В. Т., Тишина Е. Н. Квантовая электроника, **15**, 303 (1988).
5. Sur A., Hui A. K., Yellinghuisen G. Y. Molec., Spectroscopy, **74**, 465 (1979).
6. Беленов Э. М., Крюков П. Г., Назаркин А. В. Письма в ЖЭТФ, **43**, 68 (1986).

Поступила в редакцию 29 марта 1989 г.