

УДК 535.5:21+621.378.33

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ЭЛЛИПТИЧЕСКИ ПОЛЯРИЗОВАННЫХ ВОЛН В СПЕКТРОСКОПИИ СРЕД С ИНДУЦИРОВАННОЙ АНИЗОТРОПИЕЙ

А. М. Тумайкин, В. И. Турцманович

Обсуждается существование двух нормальных волн в изотропной среде, которая оптически накачивается насыщающим полем произвольной эллиптической поляризации. Найдено условие, при котором нормальные волны являются ортогонально поляризованными и выведено соответствующее соотношение между эллиптичностью нормальных волн и эллиптичностью сильного насыщающего поля. Рассмотрены примеры, иллюстрирующие применение полученных результатов в нелинейной поляризационной спектроскопии.

1. Поляризационные методы нелинейной лазерной спектроскопии используют, как правило, анизотропию взаимодействия различных комбинаций линейно или циркулярно поляризованных компонент пробной и насыщающей волн [1-3]. Между тем, линейно поляризованные и циркулярно поляризованные нелинейные взаимодействия являются только частными случаями взаимодействий эллиптически поляризованных волн. Полный анализ таких взаимодействий до настоящего времени не проведен. Исследование анизотропии восприимчивости, наведенной произвольным эллиптически поляризованным полем накачки, с помощью пробной эллиптически поляризованной волны имеет свои специфические особенности, определяемые параметрами эллиптичностей обеих волн [4]. Более того, использование специальным образом поляризованных пробных волн, так называемых эллиптически поляризованных нормальных волн, позволяет предложить новый метод в нелинейной поляризационной спектроскопии. Эффекты эллиптического двулучепреломления и дихроизма пробной волны, возникающие при этом, дополняют и в некоторых случаях упрощают возможности получения информации о нелинейных константах по сравнению с методами, использующими линейно и циркулярно поляризованные волны.

2. Чтобы доказать это, рассмотрим общее выражение для нелинейной восприимчивости изотропной среды на частоте слабого поля $E e^{-i\omega t}$, записанного с точностью до второго порядка по сильному полю $E_0 e_0 e^{-i\omega_0 t}$ [4, 5]:

$$P^{(3)}/E_0 E_0^* E = \chi_{122}^{(3)} e (e_0 \cdot e_0^*) + \chi_{121}^{(3)} e_0 (e \cdot e_0^*) + \chi_{121} e_0^* (e \cdot e_0) \equiv \overset{\Delta}{ae}. \quad (1)$$

Здесь e, e_0 — единичные комплексные векторы поляризаций в геометрии, когда волновые векторы k и k_0 направлены по или против оси z , а главные оси эллипса поляризации сильного поля — по осям x и y :

$$e_0 = \cos \varepsilon_0 e_x + i \sin \varepsilon_0 e_y, \quad (2)$$

ε_0 — эллиптичность сильного поля, $-\pi/4 \leq \varepsilon_0 \leq +\pi/4$, т. е. $\text{tg}|\varepsilon_0|$ равен отношению малой и большой осей эллипса, а $\text{sign}(\varepsilon_0) = +1$ соответствует правому вращению, $\text{sign}(\varepsilon_0) = -1$ — левому вращению.

Тогда без ограничения общности вектор поляризации пробного поля можно выбрать в виде

$$\mathbf{e} = (\cos \theta \cos \varepsilon - i \sin \theta \sin \varepsilon) \mathbf{e}_x + (\sin \theta \cos \varepsilon + i \sin \theta \sin \varepsilon) \mathbf{e}_y, \quad (3)$$

где ε — эллиптичность и θ — угол между большой осью эллипса поляризации и осью x . Отметим, что поляризация, перпендикулярная \mathbf{e} , может быть получена из (3) заменой параметров эллипса $\theta \rightarrow \theta \pm \pi/2$, $\varepsilon \rightarrow -\varepsilon$, т. е. $\mathbf{e}_\perp = \mathbf{e}(\theta \pm \pi/2) - \varepsilon$ [6].

Как видно из (1), из-за нелинейного взаимодействия в общем случае происходит деформация и поворот эллипса поляризации пробного поля в зависимости от поляризации насыщающего поля \mathbf{e}_0 и значений компонент $\chi_{1212}^{(3)}$, $\chi_{1221}^{(3)}$ тензора нелинейной восприимчивости [4, 5, 7]. Вследствие этого интенсивность и поляризация пробного поля на выходе из среды будут другими, чем на входе. Так для пробной волны, распространяющейся навстречу сильной (рис. 1), слабое поле на выходе из среды $\mathbf{E}(0)$ ($z=0$) следующим образом связано с полем на входе $\mathbf{E}(l)$ ($z=l$):

$$\mathbf{E}(0) = e^{-iknl} \left\{ \mathbf{E}(l) - \frac{2\pi ik}{\kappa_0} (1 - e^{-\kappa_0 l}) |\mathbf{E}_0(0)|^2 [\chi_{1112}^{(3)} \mathbf{e}(\mathbf{e}_0 \cdot \mathbf{e}_0^*) + \chi_{1212}^{(3)} \mathbf{e}_0(\mathbf{e} \cdot \mathbf{e}_0^*) + \chi_{1221}^{(3)} \mathbf{e}_0^*(\mathbf{e} \cdot \mathbf{e}_0)] \mathbf{E}(l) \right\}. \quad (4)$$

Это выражение получено интегрированием укороченного уравнения для $\mathbf{E}(z)$ с учетом (1) в приближении слабого насыщения на всем протяжении среды. Здесь \mathbf{E}_0 — насыщающее поле на границе $z=0$, κ_0 — линейный коэффициент поглощения (усиления) сильного поля, k —

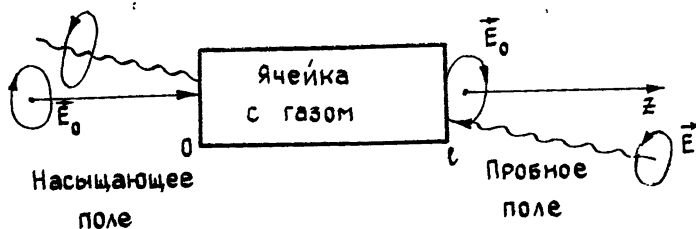


Рис. 1. Схема лазерной поляризационной спектроскопии с эллиптически поляризованными волнами.

волновой вектор пробной волны, а n — ее комплексный показатель преломления. Добавка к слабому полю на выходе из среды, отличная по поляризации от \mathbf{e} , определяется из (4) умножением на \mathbf{e}_\perp^* :

$$\delta E_\perp(0) = -\frac{2\pi i}{\kappa_0} (1 - e^{-\kappa_0 l}) |\mathbf{E}_0(0)|^2 [\chi_{1212}^{(3)} (\mathbf{e}_\perp^* \cdot \mathbf{e}_0) \times \times (\mathbf{e} \cdot \mathbf{e}_0^*) + \chi_{1221}^{(3)} (\mathbf{e}_\perp^* \cdot \mathbf{e}_0^*) (\mathbf{e} \cdot \mathbf{e}_0)] \mathbf{E}(l). \quad (5)$$

Явное выражение для коэффициентов $\chi_{ijkl}^{(3)}$, т. е. их зависимость от частоты, структуры уровней, типа уширения линий и т. д., на данном этапе не существенна. Однако в большинстве случаев, представляющих интерес для спектроскопии, резонансные особенности комплексных компонент тензора $\chi_{ijkl}^{(3)}$ одинаковы, так что отношение

$\chi_{1212}^{(3)}(\omega, \omega_0, -\omega_0, \omega) / \chi_{1221}^{(3)}(\omega, \omega_0, -\omega_0, \omega)$ является действительной величиной.

В этих случаях тензор α легко диагонализуется в базисе двух ортогональных эллиптических поляризаций e_1, e_2 со следующими параметрами ε, θ пробного поля в (3):

$$\operatorname{tg} 2\varepsilon_1 = \operatorname{tg} 2\varepsilon_0 \left(-\chi_{1221}^{(3)} + \chi_{1212}^{(3)} \right) / \left(\chi_{1221}^{(3)} + \chi_{1212}^{(3)} \right), \quad (6)$$

$$\theta_1 = 0, \quad \varepsilon_2 = -\varepsilon_1, \quad \theta_2 = \pi/2.$$

Эти собственные векторы e_1, e_2 и определяют поляризацию эллиптически поляризованных нормальных волн. Отметим, что нахождение параметров поляризаций собственных волн ($\theta_{1,2}$ и $\varepsilon_{1,2}$) эквивалентно обращению в нуль добавки $\delta E_{\perp}(0)$ (5). В то же время отличие от нулевого значения интенсивности ортогональной компоненты $\mu = |\delta E_{\perp}(0)|^2$ при варьировании параметра эллиптичности сильного поля и заданной поляризации пробного поля может служить мерой «несобственности» пробной волны.

Таким образом, главные оси эллипса поляризации нормальной волны пробного поля ориентированы по соответствующим осям сильного, тогда как отношение тангенсов двойной эллиптичности связано с отношением компонент $\chi_{1221}^{(3)} / \chi_{1212}^{(3)}$. Известные случаи насыщения линейно поляризованным ($\varepsilon_0 = 0$) и циркулярно поляризованным ($\varepsilon_0 = \pm \pi/4$) полем накачки являются предельными случаями соотношения (6) и не дают дополнительной информации о константах $\chi_{1221}^{(3)}, \chi_{1212}^{(3)}$.

В случае распространения слабой волны эллиптической поляризации, отличной от поляризации нормальной волны в среде, возникают эллиптическое двойное лучепреломление и дихроизм, определяемые разностью комплексных показателей преломления $\Delta n = n_1 - n_2$ нормальных волн:

$$\Delta n = 3\pi |E_0|^2 \left[\left(\chi_{1212}^{(3)} - \chi_{1221}^{(3)} \right)^2 \sin^2 2\varepsilon_0 + \left(\chi_{1212}^{(3)} + \chi_{1221}^{(3)} \right)^2 \cos^2 2\varepsilon_0 \right]^{1/2}. \quad (7)$$

Частные случаи, когда Δn чисто действительная или чисто мнимая величина, приводят к чисто двойному лучепреломлению или чистому дихроизму соответственно. Мнимая часть определяет разницу в коэффициентах усиления (поглощения) нормальных волн пробного поля. В поляризационной спектроскопии насыщения, где применяется линейно или циркулярно поляризованная накачка [2], используется именно это соотношение (7), тогда как дополнительная связь (6) найдена нами впервые.

3. Представляет интерес обсудить возможности применения найденного соотношения (6) в спектроскопии, использующей эллиптически поляризованные пробные волны. Пусть пробная волна распространяется в направлении, противоположном насыщающей (рис. 1). Тогда, добываясь того, чтобы пробная волна распространялась через насыщенную анизотропную среду без изменения состояния поляризации, мы можем использовать непосредственно выражение (6) для определения отношения $\chi_{1212}^{(3)} / \chi_{1221}^{(3)}$ компонент тензора нелинейной восприимчивости. В таком варианте спектроскопии будут измеряться эллипсометрическими методами [6] только параметры эллиптичности волны накачки ε_0 и пробной нормальной волны e_1 (оси эллипсов этих волн, как следует из (6), совпадают), а не абсолютные изменения интенсивности слабого поля, как это делается в поляризационной спектроскопии насыщения [4, 2]. Получение нормальной эллиптически поляризованной волны возможно, например, изменением (модуляцией) эллиптичности пробной волны на входе и выходе из среды. Кроме того, в данном способе пол-

мостью исключаются амплитудные флуктуации волны накачки, так как в (6) входит только поляризация сильного поля и не входит его интенсивность [4]. Указанные отличия, на наш взгляд, могут давать существенные преимущества данного метода в эксперименте. По существу в поляризационной спектроскопии с линейно и циркулярно поляризованными волнами измеряется изменение поглощения слабого поля по формуле (7), которое пропорционально $|E_0|^2$. Так, для линейной поляризации сильного поля ($\epsilon_0=0$)

$$\Delta n(\epsilon_0=0) = 3\pi |E_0|^2 (\chi_{1212}^{(3)} + \chi_{1221}^{(3)})$$

определяет разность интенсивностей двух ортогональных линейно поляризованных нормальных волн, а при $\epsilon_0 = \pm\pi/4$

$$\Delta n(\epsilon_0 = \pm\pi/4) = 3\pi |E_0|^2 (\chi_{1212}^{(3)} - \chi_{1221}^{(3)})$$

характеризует разность поглощения двух ортогональных циркулярно поляризованных волн. Выражения для компонент $\chi_{ijkl}^{(3)}$ на языке спектроскопических параметров среды могут быть получены для конкретной модели среды.

3.1. Рассмотрим, например, случай резонансного взаимодействия с двухуровневыми атомами. Тогда выражение для отношения компонент $\chi_{1212}^{(3)}/\chi_{1221}^{(3)}$ в (6) свободно от доплеровского уширения и связано с константами релаксации уровней:

$$\frac{\chi_{1221}^{(3)} - \chi_{1212}^{(3)}}{\chi_{1212}^{(3)} + \chi_{1221}^{(3)}} = \frac{G_1}{G_2}, \quad G_k = A \left(\frac{\left\{ \begin{matrix} 1 & k & 1 \\ J_a & J_b & J_a \end{matrix} \right\}^2}{\gamma_k^a} + \frac{\left\{ \begin{matrix} 1 & k & 1 \\ J_a & J_a & J_b \end{matrix} \right\}^2}{\gamma_k^b} \right), \quad (8)$$

где A — константа, не зависящая от k , J_a и J_b — угловые моменты верхнего и нижнего уровня соответственно, γ_k^a и γ_k^b — константы релаксации для заселенностей ($k=0$), ориентации ($k=1$) и выстраивания ($k=2$) верхнего и нижнего уровня соответственно. Символ в фигурных скобках есть $6j$ -символ. Выражение для коэффициентов G_k взято нами из работы [8]. Интересным следствием формул (6), (8) является случай $J_a=1 \rightarrow J_b=0$ -типа переходов, так как в этом случае отношение G_1/G_2 равно γ_2^a/γ_1^a . Поэтому упомянутый выше вариант спектроскопии в эксперименте будет давать непосредственно отношение $\gamma_2^{(a)}/\gamma_1^{(a)} = \text{tg } 2\epsilon_1/\text{tg } 2\epsilon_0$, что существенно проще и точнее, чем извлечение этой величины из соотношения (7). Из-за отсутствия выстраивания $G_2 \equiv 0$ для $1/2 \rightarrow 1/2$ -перехода формула (6) показывает существование только циркулярно поляризованных нормальных волн, независимо от поляризации насыщающего поля.

3.2. В качестве другого примера рассмотрим трехуровневую систему, когда насыщающее поле резонансно переходит между нижним уровнем b и верхним уровнем a , в то время как пробная волна резонансна по отношению к тому же уровню a и третьему уровню c (рис. 2) (например, в случае оптической накачки лазерной системы). Для этих случаев нетрудно вывести выражение для $(\chi_{1221}^{(3)} - \chi_{1212}^{(3)}) (\chi_{1221}^{(3)} + \chi_{1212}^{(3)})^{-1}$ в терминах значений угловых моментов J_a, J_b, J_c соответствующих уровней. Если мы пренебрегаем на каждом уровне разницей между константами релаксации ориентации и выстраивания, то возможные значения величин $(\chi_{1221}^{(3)} - \chi_{1212}^{(3)}) \times (\chi_{1221}^{(3)} + \chi_{1212}^{(3)})^{-1}$, т. е. $\text{tg } 2\epsilon_1/\text{tg } 2\epsilon_0$, для всех возможных комбинаций

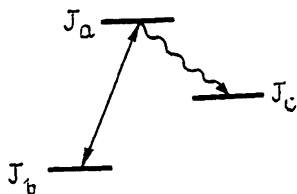


Рис. 2. Схема трехуровневой системы.

переходов, разрешенных правилами отбора, представлены в табл. 1. Таблица может быть полезна для идентификации неизвестных переходов, например, в молекулярных спектрах, особенно если один из переходов известен [9].

Таблица 1

Значения отношения $(\chi_{1221}^{(3)} - \chi_{1212}^{(3)}) / (\chi_{1221}^{(3)} + \chi_{1212}^{(3)})^{-1}$ в трехуровневой среде

Сильное поле $J_a \rightarrow J_b$	Пробное поле $J_b \rightarrow J_c$		
	$J \rightarrow J + 1$	$J \rightarrow J$	$J \rightarrow J - 1$
$J + 1 \rightarrow J$	$5 \frac{2J + 3}{2J - 1}$	$\frac{5}{2J - 1}$	-5
$J \rightarrow J$	$\frac{5}{2J - 1}$	$\frac{5}{(2J - 1)(2J + 3)}$	$\frac{-5}{2J + 3}$
$J - 1 \rightarrow J$	-5	$\frac{-5}{2J + 3}$	$5 \frac{2J - 1}{2J + 3}$

Действительно, экспериментальное определение ε_1 при различных значениях ε_0 будет давать отношение $\chi_{1221}^{(3)} / \chi_{1212}^{(3)}$ (применением (6), которая включает и определение знака эллиптичности), и дальнейшее использование таблицы может быть использовано для идентификации молекулярной ветви вращательных переходов молекул. Учитывая, что современная техника эллипсометрии достигла очень высоких уровней чувствительности [6], мы в заключение подчеркнем, что изучение поведения нормальных волн может рассматриваться как новый метод поляризационной спектроскопии, близкий к методам когерентной эллипсометрии изотропных сред, рассматриваемых в [4].

ЛИТЕРАТУРА

1. Wieman C., Hansch T. W. — Phys. Rev. Lett., 1976, 36, p. 1170.
2. Раутиан С. Г., Смирнов Г. И., Шалагин А. М. Нелинейные резонансы в спектрах атомов и молекул. — Новосибирск: Наука, 1979.
3. Tinoco I. — J. Chem. Phys., 1975, 62, p. 1006.
4. Ахманов С. А., Коротеев Н. И. Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеянного света — М.: Наука, 1981.
5. Maker P., Terhune R., — Phys. Rev. A., 1964, 137, p. 108.
6. Аззам Р., Башара Н. Эллипсометрия и поляризованный свет. — М.: Мир, 1981.
7. Nguyen Huan, Parkash V., Rivoire N. G. — Opt. Quantum. Electronics, 1981, 13, p. 95.
8. Tumaikin A. M., Haeringen W., Lenstra D. — Opt. Commun., 1981, 38, p. 303.
9. Beterov I. M., Chebotaev V. P. — Progress Quantum Electronics, 1974, 3, part 1, p. 1.

Омский политехнический институт

Поступила в редакцию 10 ноября 1983 г.

USE OF THE ELLIPTICALLY POLARIZED NORMAL WAVES IN SPECTROSCOPY OF MEDIA WITH INDUCED ANISOTROPY

A. Tumaikin, V. Turzmanovich

The existence of two normal waves in an isotropic medium when the latter is optically pumped by an inducing field of arbitrary elliptic state of polarization is discussed. The condition is given for which the normal waves have orthogonal states of polarization and the corresponding relation between the ellipticities of the normal waves and the inducing field is derived. Several examples are given to illustrate the relevance of the results in nonlinear polarization spectroscopy.