НЕЛИНЕЙНЫЕ ОПТИЧЕСКИЕ ЭФФЕКТЫ В ПЛАНЕТНЫХ АТМОСФЕРАХ

А. П. Видьмаченко[1], **Ю. Г. Кузнецова**[1,2], **В. Н. Крушевская**[1]

[1] *Главная астрономическая обсерватория НАН Украины*
ул. Академика Заболотного, 27, 03680 Киев, Украина
e-mail: vida@mao.kiev.ua

[2] *Международный центр астрономических и медико-экологических исследований*
ул. Академика Заболотного, 27, 03680 Киев, Украина

Рассмотрены основные принципы образования нелинейных эффектов в планетной атмосфере. Для анализа поведения оптического электрона, участвующего в элементарном акте излучения и/или поглощения фотона, в качестве нулевого приближения используется модель идеального гармонического осциллятора. Обсуждается возможность образования второй гармоники основных характеристических частот метанового поглощения в атмосферах Юпитера и Сатурна.

NONLINEAR OPTICAL EFFECTS IN PLANETARY ATMOSPHERES, by Vid'machenko A. P., Kuznietsova Yu. G., Krushevskaya V. N. – The paper is concerned with the basic principles of the nonlinear optical effects generation in planetary atmospheres. To analyse the behaviour of an optical electron by emitting and/or absorbing photon a model of the ideal harmonic oscillator was used as the zeroth-order approximation. The possibility of the second-harmonic generation of the methane absorption in the atmospheres of Jupiter and Saturn is discussed.

НЕЛИНЕЙНАЯ АТМОСФЕРНАЯ ОПТИКА

Нелинейная атмосферная оптика объединяет круг явлений, обусловленных зависимостью оптических параметров среды от интенсивности света. Довольно быстрое развитие нелинейной оптики как отдельной дисциплины началось вскоре после создания лазеров в начале 1960-х гг. А применение ее законов к исследованию атмосферных характеристик получило распространение после накопления определенного опыта и осмысления первых лидарных исследований в атмосфере Земли [2, 7]. Лидарные эксперименты показали, что после прохождения мощного лазерного излучения через земную атмосферу на трассе луча возникал ряд интересных эффектов, необъяснимых в рамках представлений классической атмосферной оптики [1]. Их обоснование и тщательное изучение привело в 1990-е гг. к появлению нескольких интересных работ и к разработке ряда научно-исследовательских тем по созданию нового научного направления – нелинейной атмосферной оптики [3].

Согласно класическим представлениям [1] такие оптические характеристики среды, как показатель преломления и коэффициент поглощения, не зависят от интенсивности света при условии, что реакция среды на электрическое поле световой волны $\mathbf{E}$ описывается линейным уравнением

$$\mathbf{P} = \varepsilon k \mathbf{E}. \tag{1}$$

То есть, поляризованность $\mathbf{P}$ пропорциональна напряженности электрического поля и значению диэлектрической проницаемости ε, а коэффициент пропорциональности – восприимчивость k – зависит только от свойств среды. Однако это уравнение справедливо лишь при напряженностях $\mathbf{E}$ электрического поля внешней световой волны, малых по сравнению с напряженностями E_a внутриатомных электрических полей. Для оценки E_a обычно считают, что по порядку величины

$$E_a \sim \frac{e}{4\pi\varepsilon a^2}, \tag{2}$$

где a – размер атома. Так как $a \sim 10^{-10}$ м, то $E_a \sim 10^{10}$ В/м. Чем сложнее молекула, тем ее линейные размеры больше. А следовательно, уменьшается напряженность внутримолекулярных электрических полей. В связи с этим для сложных многоатомных атмосферных составляющих (аммиак, метан и т. п.) следует ожидать более значимых проявлений нелинейных оптических эффектов, по сравнению с традиционно рассматриваемыми химически простейшими водородно-гелиевыми атмосферами планет-гигантов. В интенсивных электрических полях модель идеального гармонического осциллятора для описания поведения оптического электрона атома (т. е. электрона, участвующего в элементарном акте излучения и/или поглощения фотона) становится уже ограниченно пригодной, приводя к существенным нелинейным добавкам, вследствие чего связь поляризованности среды с напряженностью поля падающей световой волны становится нелинейной. В результате возникает зависимость оптических характеристик среды от интенсивности излучения, которая приводит не к каким-либо малым поправкам, а к принципиально новым эффектам, не существующим в линейной оптике. Так, в области оптической прозрачности среды в результате многофотонного поглощения интенсивный падающий свет может поглощаться гораздо сильнее, чем слабый. То есть, в непрерывном спектре и в сильных полосах поглощения могут иметь место довольно заметные различия образующихся в атмосфере нелинейных оптических эффектов. При достаточно больших плотностях излучения молекулярная система с некоторыми уровнями энергии ε_1 и ε_2 может поглотить в элементарном акте два фотона с такими частотами ω_1 и ω_2, что $\hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 = \varepsilon_2 - \varepsilon_1$ (в частном случае $\omega_1 = \omega_2 = {}^1\!/_2\,(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)/\hbar$). Вероятность поглощения двух фотонов будет пропорциональна произведению интенсивностей волн с частотами ω_1 и ω_2 или квадрату интенсивности при равенстве частот $\omega_1{=}\omega_2$.

ОБРАЗОВАНИЕ КРАТНЫХ ЧАСТОТ

Действующее на молекулу атмосферы электрическое поле падающей световой волны вызывает деформацию электронного облака. Это приводит к появлению у молекулы индуцированного дипольного момента, пропорционального напряженности поля волны при ее малых значениях. Но при некоторой интенсивности световой волны напряженность электрического поля уже нельзя считать пренебрежимо малой по сравнению с внутримолекулярными электрическими полями. При этом и связь индуцированного дипольного момента с напряженностью поля уже не будет линейной. Для рассмотрения нелинейной поляризуемости молекулы обычно исходят [1] из самой простой модели, лежащей в основе классической электронной теории дисперсии. Согласно этой модели смещение $x(t)$ оптического электрона из положения равновесия под воздействием поля световой волны $E(t)$ описывается уравнением

$$m\frac{d^2x}{dt^2} = eE(t) + F, \tag{3}$$

где F – сила, удерживающая электрон с массой m в положении равновесия. В первом приближении (соответствующем линейной оптике) предполагается квазиупругий характер этой силы, т. е. ее пропорциональность смещению из равновесия $F = -kx$, что отвечает квадратичной зависимости потенциальной энергии электрона от его смещения $U(x) = (1/2)kx^2$. В следующих приближениях необходимо учитывать члены более высокой степени при разложении $U(x)$ в ряд по степеням смещения из равновесия:

$$U(x) = \frac{1}{2}kx^2 - \frac{1}{3}m\beta x^3 - \frac{1}{4}m\delta x^4 + \ldots. \tag{4}$$

Здесь коэффициенты β и δ, как и k, определяются строением молекулы, причем нечетные степени в разложении $U(x)$ характерны только для молекулярных систем без центра симметрии. Пренебрегая затуханием, перепишем уравнение движения электрона (3) для некоторой модифицированной модели в виде

$$\frac{\partial^2 x}{\partial t^2} + \omega_0^2 x = (e/m)E(t) + \beta x^2 + \delta x^3 + ..., \tag{5}$$

где $\omega_0 = \sqrt{k/m}$ – частота собственных гармонических колебаний при небольших амплитудах. В случаях, когда ангармонические члены βx^2, $\delta x^3, \ldots$ имеют характер небольших поправок, уравнение (5) можно решать методом последовательных приближений. В нулевом приближении ангармонические члены отбрасываются, и (5) сводится к основному уравнению классической теории дисперсии линейной оптики. В монохроматическом световом поле вида

$$E(t) = E_0 \cos \omega t \tag{6}$$

решение этого уравнения имеет вид

$$x_0(t) = \frac{e}{m} \cdot \frac{E_0}{\omega_0^2 - \omega^2} \cos \omega t. \tag{7}$$

Такое решение дает обычное выражение для линейной поляризуемости:

$$\alpha_0 = \left(\frac{e^2}{m\varepsilon_0} \right) \Big/ (\omega_0^2 - \omega^2). \tag{8}$$

На следующем шаге решение нулевого приближения $x_0(t)$ используется для подстановки в ангармонические члены уравнения (5) вместо $x(t)$ и решается линейное уравнение, в котором его правая часть, играющая роль вынуждающей силы, содержит, кроме $\cos \omega t$, еще и гармонические слагаемые на удвоенной, утроенной и т. д. частотах:

$$\begin{aligned} \cos^2 \omega t &= \tfrac{1}{2}(1 + \cos 2\omega t), \\ \cos^3 \omega t &= \tfrac{3}{4} \cos \omega t + \tfrac{1}{4} \cos 3\omega t). \end{aligned} \tag{9}$$

Поэтому и частное решение неоднородного уравнения, описывающее установившиеся вынужденные колебания, кроме слагаемого $x_0(t)$ на основной частоте ω, содержит также слагаемые с частотами 2ω, 3ω, ...:

$$\begin{aligned} x(t) = \; & \frac{e/m}{\omega_0^2 - \omega^2} E_0 \cos \omega t + \frac{\beta}{2} \left[\frac{(e/m)E_0}{\omega_0^2 - \omega^2} \right]^2 \left[\frac{1}{\omega_0^2} + \frac{\cos 2\omega t}{\omega_0^2 - (2\omega)^2} \right] + \\ & + \frac{\delta}{4} \left[\frac{(e/m)E_0}{\omega_0^2 - \omega^2} \right]^3 \left[\frac{3 \cos \omega t}{\omega_0^2 - \omega^2} + \frac{\cos 3\omega t}{\omega_0^2 - (3\omega)^2} \right] + \ldots . \end{aligned} \tag{10}$$

Таким образом, совершающий некоторые колебания оптический электрон становится источником вторичных волн. То есть, вынужденные под действием падающей волны колебания электрона на удвоенной и утроенной частотах приводят к генерации в среде световых волн с частотами, кратными частоте падающей на среду волны. Это значит, что в сильных оптических полях нарушается принцип линейной оптики, заключающийся в неизменности частоты света при переходе из одной среды в другую. При выполнении определенных условий даже небольшой ангармонизм оптических электронов в прозрачной среде позволяет получить удвоение собственных частот проходящего света. Объединяя в (10) члены с $\cos \omega t$, находим, что результирующая поляризуемость равна

$$\alpha = \alpha_0 + \alpha_2 E_0^2, \qquad \alpha_0 = \frac{e^2/m\varepsilon_0}{\omega_0^2 - \omega^2}, \qquad \alpha_2 = \frac{3}{4} \delta \alpha_0 \frac{(e/m)^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^3}. \tag{11}$$

Следовательно, в выражении для поляризуемости молекулы появляется член, пропорциональный интенсивности световой волны. Он приводит к зависимости показателя преломления от интенсивности волны, проявляющейся в эффектах самовоздействия.

Таким образом, вынужденное движение электронов среды в поле световой волны макроскопически проявляется в возникновении поляризованности среды, которая складывается из индуцированных электрическим полем волны дипольных моментов отдельных молекул. Из-за ангармонических членов в потенциальной энергии электрона (4) эти дипольные моменты, помимо линейного члена, пропорционального напряженности электрического поля световой волны, содержат члены, пропорциональные более высоким степеням напряженности поля. Поэтому в сильных световых полях материальное уравнение, связывающее поляризованность среды с напряженностью электрического поля, становится нелинейным.

УСЛОВИЯ ГЕНЕРАЦИИ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ

Для удобства рассмотрения, как и в [1], выберем ось OZ вдоль направления входящей в нелинейную среду интенсивной волны частотой ω. На границе среды (при $z = 0$) амплитуда второй гармоники по определению равна нулю. Чтобы удовлетворить этому условию, к найденному выше частному решению нужно прибавить общее решение однородной системы известных уравнений Максвелла. Такое решение представляет собой свободно распространяющуюся в атмосфере волну $\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \mathbf{E}_2\cos(\mathbf{k}_2\mathbf{r} - \omega_2 t)$ с частотой $\omega_2 = 2\omega$ и волновым вектором $\mathbf{k}_2$, удовлетворяющим соотношению $k_2^2 = \varepsilon(\omega_2)\omega_2^2/c^2$. Ее направление распространения и амплитуду $\mathbf{E}_2$ обычно выбирают так, чтобы на всей плоскости $z=0$ суммарная напряженность поля вынужденной и свободной волн частоты 2ω обращалась в нуль. В результате для второй гармоники получаем выражение

$$\mathbf{E}(z,t) = \frac{\frac{1}{2}k_2 E_0\mathbf{E}_0}{\varepsilon(\omega)-\varepsilon(2\omega)}[\cos(2kz-2\omega t) - \cos(k_2 z - 2\omega t)]\,. \tag{12}$$

Здесь первое слагаемое представляет собой вынужденную волну, фазовая скорость которой совпадает со скоростью распространения поляризованности, т. е. со скоростью v_1 исходной волны частотой ω: $v_1 = c/n(\omega)$. Второе слагаемое описывает свободное распространение в среде вторичных волн с частотой 2ω, которое происходит с фазовой скоростью $v_2 = c/n(2\omega)$. Сложение волн одинаковой частоты 2ω, но распространяющихся с различными фазовыми скоростями, дает волну (12), амплитуда напряженности которой периодически зависит от z, т. е. от глубины проникновения в нелинейную среду:

$$\mathbf{E}(z,t) = \frac{\frac{1}{2}k_2 E_0\mathbf{E}_0}{\varepsilon(\omega)-\varepsilon(2\omega)}\sin\left(\frac{k_2-2k}{2}z\right)\sin\left(\frac{k_2+2k}{2}z - 2\omega t\right). \tag{13}$$

Интенсивность обратится в нуль при $(k_2/2-k)/z = m\pi$, где m – целое число. В таких точках вторичные волны частотой 2ω, испущенные разными точками среды, погасят друг друга в результате интерференции. Так как $k_2/2 - k = [n(2\omega)-n(\omega)]\omega/c$, то это условие можно записать в виде $z = 2ml_{kog}$, где расстояние $l_{kog} = (\lambda/4)/[n(2\omega)-n(\omega)]$ называют когерентной длиной. На интервале от 0 до l_{kog} фазовые соотношения таковы, что энергия от исходной волны передается второй гармонике. А на интервале от l_{kog} до $2l_{kog}$ – возвращается в исходную волну. Этот процесс периодически повторяется по мере распространения исходной волны в нелинейной среде. Когда показатели преломления на частотах ω и 2ω одинаковы, когерентная длина l_{kog} обращается в бесконечность. В этом случае на протяжении всего пути в нелинейной среде наблюдается переход энергии от исходной волны ко второй гармонике. Так происходит потому, что при $n(2\omega) = n(\omega)$, т. е. $k_2 = 2k$, исходная волна, создающая нелинейную поляризованность среды на частоте 2ω, и испускаемые средой на этой частоте вторичные волны распространяются с одинаковой фазовой скоростью, и фазовые соотношения между ними всюду одинаковы. Вся нелинейная среда действует как объемная сфазированная решетка элементарных диполей с максимумом излучения в направлении распространения. Условие $n(2\omega) = n(\omega)$ или $\varepsilon(2\omega) = \varepsilon(\omega)$ называется фазовым или пространственным синхронизмом исходной волны и ее второй гармоники. При его выполнении выражения (12), (13) становятся неопределенными. Чтобы раскрыть неопределенность при $\varepsilon(2\omega) = \varepsilon(\omega)$, преобразуем в нем знаменатель:

$$\varepsilon(2\omega) - \varepsilon(\omega) = n^2(2\omega) - n^2(\omega) = [n(2\omega)+n(\omega)]\cdot[n(2\omega)-n(\omega)]\,. \tag{14}$$

Учитывая, что $(k_2-2k)/2 = \Delta n\omega/c$, получим из (13) следующее выражение для интенсивности второй гармоники:

$$I_2 \sim k_2^2 I_0^2 z_0^2\left(\frac{\sin u}{u}\right)^2, \qquad u = \frac{\Delta n\omega z}{c}. \tag{15}$$

При выполнении условия фазового синхронизма $u \to 0$ для всех z отношение $(\sin u)/u$ принимает максимальное значение, равное 1. При этом произойдет пространственное накопление эффекта обмена энергией, а интенсивность второй гармоники будет пропорциональна квадрату толщины нелинейной среды. Конечно, ее энергия черпается из исходной волны, и формула (15) верна лишь для тех z, пока $I_2 \le I_0$. В противном случае метод последовательных приближений, которым она получена, становится неприменимым, так как в нем интенсивность исходной волны полагается заданной и неизменной. Но вывод о том, что для эффективного преобразования энергии исходной волны в энергию второй гармоники необходимо выполнение условия фазового синхронизма, остается в силе.

ВОЗМОЖНОСТЬ ПРОЯВЛЕНИЯ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ В СПЕКТРАХ ЮПИТЕРА И САТУРНА

При наблюдениях очень узких перекрывающихся, часто не разрешенных спектральных линий, – получив несколько регистрограмм спектров и усреднив их, – мы будем наблюдать значимое возрастание отличия каждого отдельного измерения от его среднего значения. Это вызвано тем, что мы регистрируем колебательно-вращательные линии в довольно широких молекулярных полосах (например, полосы метана CH_4 в спектрах планет-гигантов), и в каждый следующий момент времени будут получены спектры вращательно-колебательных переходов между немного отличающимися расщепленными энергетическими уровнями. Причина этого в том, что полученный спектр атмосферных составляющих формируется на разных высотах при существенно отличающихся физических характеристиках атмосферы. А поскольку к тому же атмосфера очень динамичное образование с многокомпонентным химическим составом и довольно сложными молекулами, то колебательные и вращательные энергетические уровни представляют собой очень сильно переменное во времени явление. Таким образом, получив несколько планетных спектров с высоким отношением “сигнал/шум”, усреднив их и посчитав для каждого отклонение от среднего, мы должны наблюдать заметное возрастание величины отклонения в тех участках спектра, где есть молекулярные линии (даже не разрешенные). Поскольку планетная атмосфера облучается довольно сильным посторонним источником электромагнитных волн, каким является Солнце, то в спектрах планетных атмосфер возможно проявление нелинейных оптических эффектов взаимодействия солнечного электромагнитного излучения с веществом атмосферы планеты. А именно: 1) генерация второй гармоники, 2) вынужденное комбинационное рассеяние, 3) однородное и неоднородное уширение линий и т. п. Эффекты 2) и 3) на сегодня довольно хорошо известны [4, 6]. Эффект 1) хорошо изучен и разработан только для высококогерентного лазерного излучения, взаимодействующего с некоторыми кристаллами и с земной атмосферой [3, 7]. Наши предварительные исследования спектров Юпитера и Сатурна указывают на реальную возможность регистрации в спектральном диапазоне 350–500 нм вторых гармоник мощных полос поглощения метана и аммиака. Детали такого изучения будут подробно опубликованы позже.

[1] *Бутиков Е. И.* Оптика.–М.: Высшая школа, 1986.–512 с.

[2] *Делоне Н. Б., Крайнов В. П.* Основы нелинейной оптики атомарных газов.–М.: Наука, 1986.–181 с.

[3] *Зуев В. Е., Землянов А. А., Копытин Ю. Д.* Нелинейная оптика атмосферы.–Л.: Гидрометеоиздат, 1989.–256 с.

[4] *Мороженко А. В.* Комбинационное рассеяние в атмосферах планет-гигантов и оптические свойства атмосферного аэрозоля // Кинематика и физика небес. тел.–1997.–**13**, № 4.–С. 22–33.

[5] *Gubler U., Bosshard C.* Optical third-harmonic generation of fused silica in gas atmosphere: Absolute value of the third-order nonlinear optical susceptibility $\chi^{(3)}$ // Phys. Rev. B (Condensed Matter and Materials Physics).–2000.–**61**, N 16.–P. 10702–10710.

[6] *Karkoschka E.* Methane, Ammonia and Temperature Measurements of the Jovian Planets and Titan from CCD-Spectrophotometry // Icarus.–1998.–**133**, N 1.–P. 134–146.

[7] *Zuev V. E., Zemlianov A. A., Kopytin Yu. D., et al.* High-power laser radiation in atmospheric aerosols: Nonlinear optics of aerodispersed media.–Dordrecht: Reidel, 1985.–303 p.