

УДК 535.343

Е. С. Остапенко, Д. В. Ледовских, Н. Н. РубцоваИнститут физики полупроводников СО РАН
пр. Акад. Лаврентьева, 3, Новосибирск, 630090, РоссияНовосибирский государственный университет
ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия
E-mail: linn@gorodok.net**ПОЛЕВОЕ УШИРЕНИЕ РЕЗОНАНСОВ НАСЫЩЕННОГО ПОГЛОЩЕНИЯ
В ГАЗЕ $^{13}\text{CH}_3\text{F}$**

Исследованы резонансы насыщенного поглощения в газе $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ на колебательно-вращательном переходе R(4,3) 0–1 колебательной моды ν_3 , зарегистрированные в пропускании пробной волны излучения в присутствии однонаправленной насыщающей волны. Ширина резонансов насыщенного поглощения нарастает с ростом интенсивности насыщающего излучения. В пределе сильного насыщения форма резонансов отличается от лоренцевской более резким спаданием сигнала на крыльях резонанса, а их ширина позволяет оценить величину дипольного момента перехода $d = 0,045$ Д, что хорошо согласуется с литературными данными для данного перехода $^{13}\text{CH}_3\text{F}$.

Ключевые слова: полевое уширение, резонансы насыщенного поглощения, столкновительное уширение.

Введение

Колебательно-вращательные переходы молекул расположены в инфракрасном диапазоне спектра. Однородное уширение этих переходов может быть обусловлено рядом причин, из которых наиболее важной является вращательная релаксация, т. е. тушение вращательного подуровня в результате столкновений с частицами того же или буферного газа. При давлении газа 1 мТорр столкновительное уширение не превышает десятков килогерц, что на несколько порядков величины меньше доплеровской ширины линии. Что касается канала радиационного уширения линии (важный канал уширения атомарных переходов оптического диапазона, разрешенных в электродипольном приближении), его вклад в уширение колебательно-вращательных переходов пренебрежимо мал из-за малых дипольных моментов переходов и относительно низкой частоты перехода. В разреженных молекулярных газах спектральная линия, отвечающая колебательно-вращательному переходу, имеет неоднородное уширение из-за эффекта Доплера, значительно превышающее однородное уширение.

Появление лазеров привело к разработке методов бездоплеровской спектроскопии, позволяющих регистрировать спектральную структуру, обычно скрытую эффектом Доплера. Это спектроскопия насыщенного поглощения [1–3], а также методы когерентной спектроскопии на основе фотонного эха и его разновидностей. В обоих этих подходах доплеровское уширение устраняется. В спектроскопии насыщенного поглощения это происходит в спектральной области, существенно меньшей ширины спектральной линии, неоднородно уширенной из-за эффекта Доплера. В когерентной спектроскопии эффект Доплера устраняется на протяжении короткого интервала времени формирования фотонного эха.

В отличие от методов линейной спектроскопии, спектроскопия насыщенного поглощения способна дать сведения в области низких давлений газов о различных столкновительных каналах. Это, например, столкновения с изменением скорости поступательного движения, но без изменения рабочих уровней, а также неупругие столкновения, когда частицы покидают рабочие уровни. Еще один вид упругих столкновений, при котором частицы не покидают ра-

бочих уровней, – это деполаризующие столкновения, при которых разрушаются поляризационные моменты уровней, наведенные поляризованным лазерным излучением (ориентация, выстраивание и т. п.).

В поле интенсивного лазерного излучения на однородно уширенном резонансном переходе происходят вынужденные процессы поглощения и излучения с частотой Раби dE/h , где d – матричный элемент дипольного момента оптического перехода, E – электрическое поле излучения, h – постоянная Планка. Эти осцилляции можно наблюдать как расщепление однородно уширенной линии в поглощении или флуоресценции. При неоднородном уширении из-за эффекта Доплера частота вынужденных переходов модифицируется до значения

$$((dE/h)^2 + (kv_z)^2)^{1/2},$$

где k – волновое число, v_z – проекция скорости на направление волнового вектора. В образовании сигнала насыщенного поглощения участвует диапазон скоростей v_z , поэтому вместо расщепления линии происходит уширение резонанса насыщенного поглощения.

В данной работе исследуются эффекты полевого уширения для однонаправленных волн. Все эксперименты выполнены на переходе R(4,3) колебательной полосы 0–1 моды v_3 газа $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ под действием излучения двух CO_2 -лазеров, работающих на линии 9P(32). Показано, что форма резонансов насыщенного поглощения отличается от лоренцевской в пределе сильного насыщения, а ширина резонансов нарастает пропорционально напряженности электрического поля, насыщающего излучения, т. е. в уширении преобладает динамический эффект Штарка.

Техника экспериментов

Для исследования резонансов насыщенного поглощения в работе использованы два лазера, работающих на линии генерации 9P(32), близкой к центру исследуемого перехода $^{13}\text{CH}_3\text{F}$. CO_2 -лазер низкого давления служил источником насыщающего излучения. Его частота всегда настраивалась на центр исследуемого перехода по резонансу насыщенного поглощения во встречных волнах, сформированного в дополнительной ячейке с газом $^{13}\text{CH}_3\text{F}$.

Для регистрации формы резонансов насыщенного поглощения использовалось пропускание менее интенсивного излучения волноводного CO_2 -лазера. Настройка волноводного лазера на линию генерации 9P(32) проводилась по калиброванному монохроматору ИКС-12, одно из зеркал которого заменено дифракционной решеткой для увеличения спектрального разрешения. Окончательная проверка правильности выбора линии генерации проводилась по наличию сигнала биений с лазером – источником насыщающего излучения.

Для экспериментов по насыщенному поглощению важно использовать максимально однородные пучки излучения. В нашем случае оба пучка излучения, выходящие из лазеров, имели поперечное распределение, близкое к гауссовскому. Поляризации излучения обоих лазеров были линейными.

В лазере низкого давления резонатор образован плоским зеркалом (роль которого исполняет дифракционная решетка, 100 штрихов/мм, работающая в первом порядке дифракции) и вторым диэлектрическим зеркалом с пропусканием 12 % и радиусом кривизны 6 м. Расчет пучка внутри резонатора по формуле из [4] позволил оценить размер перетяжки внутри резонатора. Для внешней схемы учитывалось влияние отрицательной линзы, образованной выходным зеркалом. Далее этот пучок проходил через расширяющий зеркальный коллиматор и направлялся в рабочую ячейку.

В волноводном лазере резонатор образован плоскостью дифракционной решетки 150 штрихов/мм и плоским выходным диэлектрическим зеркалом с пропусканием около 2 %. Перетяжка пучка располагается на торце волновода, находящемся вблизи зеркала, и ее размер можно оценить по формуле $0,64 r$, где r – радиус волновода. Этот пучок имеет гораздо большую расходимость по сравнению с пучком насыщающего излучения, и для коррекции расходимости во внешней схеме установлена линза на расстоянии от выходного торца волновода, примерно равном фокусному расстоянию линзы.

Принципиальная схема эксперимента приведена на рис. 1. На схеме показаны: CO_2 -лазер низкого давления – источник насыщающего излучения; волноводный CO_2 -лазер – источник пробного излучения; ЗГ – звуковой генератор, используемый для

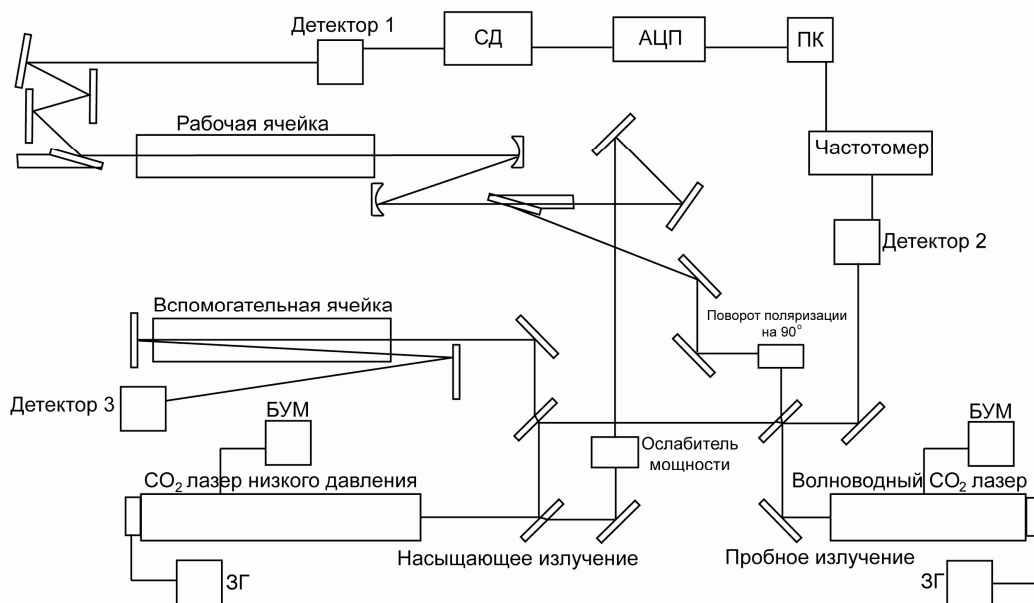


Рис. 1. Схема экспериментальной установки для регистрации резонансов насыщенного поглощения в однонаправленных волнах

развертки частоты как пробного, так и насыщающего лазера, что позволяло наблюдать на осциллографе резонансы насыщенного поглощения в рабочей и вспомогательной ячейках; БУМ – блоки управления магнотриксционными катушками лазеров; детектор 1 для регистрации пробного излучения, прошедшего через рабочую ячейку; детектор 2 регистрирует частоту биений насыщающего и пробного лазеров; детектор 3 регистрирует резонанс насыщенного поглощения во встречных волнах, сформированный во вспомогательной ячейке. Все детекторы, использованные в схеме, представляют собой фотосопротивления кадмий – ртуть – теллур, охлаждаемые до температуры жидкого азота; детекторы 2 и 3 имеют усилители сигналов с полосой не менее 20 МГц.

Для наиболее полного совмещения насыщающего и пробного пучков в объеме рабочей ячейки, а также для более простого извлечения пробного излучения после прохождения ячейки использован стандартный прием, обычно применяемый в экспериментах типа «накачка – зондирование»: линейная поляризация пробного излучения ортогональна линейной поляризации насыщающего излучения. Поворот поляризации на 90° вы-

полнен системой четырех зеркал (см. рис. 1). Для совмещения пучков перед входом в ячейку и выделения большей части мощности пробного излучения использовались пластины из оптического арсенида галлия, расположенные под углом Брюстера для насыщающего излучения. При этом для ортогональной линейной поляризации коэффициент отражения по мощности – около 70 % (оценка по формулам Френеля).

Такая схема позволяет в значительной степени избежать попадания мощного излучения на чувствительный фотодетектор. В то же время такая схема означает, что мы работаем с большим числом переходов между магнитными подуровнями. Действительно, при использовании линейно поляризованных насыщающего и пробного излучений с параллельными поляризациями правило отбора $\Delta M = 0$ по магнитному квантовому числу M означает, что в поглощении будут участвовать $2(2J + 1)$ магнитных подуровней. Для 13-фторметана (симметричный волчок) вырождение уровня с угловым моментом J составляет $2(2J + 1)$, множитель 2 возникает из-за инверсионного удвоения. В нашем случае $J = 4$ для нижнего рабочего уровня и $J = 5$ для верхнего. Для взаимно-ортогональных поляризаций насы-

щающего и пробного излучений можно считать, что при насыщающем излучении по-прежнему выполняется правило отбора $\Delta M = 0$, зато для пробного излучения будет выполняться правило отбора $\Delta M = \pm 1$, и в образовании сигнала будет участвовать вдвое больше переходов.

Перед проведением каждого измерения частота лазера – источника насыщающего излучения – устанавливалась на центр резонанса насыщенного поглощения $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ во встречных волнах. Затем на пьезокерамику лазера – источника пробного излучения – подавалось напряжение от ЗГ, что позволяло наблюдать на экране осциллографа форму резонанса насыщенного поглощения в однонаправленных волнах в рабочей ячейке.

В данной работе регистрация сигналов насыщенного поглощения проводилась по осциллограммам, а частотный масштаб определялся аналогично работе [5], т.е. масштаб задавался межмодовым расстоянием лазера – источника насыщающего излучения.

Для изменения интенсивности насыщающего излучения использован ослабитель мощности, собранный на основе поляризаторов МЛР-1. Эти поляризаторы состоят из пар пластин арсенида галлия, расположенных на вращающихся вокруг оси механических устройствах. При определенном положении поляризатора линейно поляризованное излучение падает на него под углом Брюстера (p -поляризация). При

повороте поляризатора вокруг оси линейная поляризация излучения приобретает s - и p -компоненты; s -компонента частично отражается от обеих пластин поляризатора. На выходе устройства расположен анализатор, его положение неизменно.

Для юстировки схемы оба излучения – насыщающее и пробное – необходимо было точно совместить в рабочем объеме ячейки. Для этой цели использовалась визуализация инфракрасного излучения с помощью жидкокристаллических индикаторов, реагирующих на определенную величину повышения температуры изменением цвета.

Результаты

Форма резонанса насыщенного поглощения для максимальной интенсивности насыщающего излучения приведена на рис. 2. Там же показан вид лоренцевской кривой, соответствующей той же ширине и максимальной амплитуде, что и экспериментальная кривая. Хорошо видно, что форма экспериментально зарегистрированного резонанса насыщенного поглощения существенно отличается от лоренцевской.

Давление газа $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ составляло 7,73 мТорр, интенсивность насыщающего излучения не превышала 600 мВт/см^2 , а пробного – существенно менее 10 мВт/см^2 .

Ширина резонансов насыщенного поглощения исследовалась в широком диапазоне интенсивностей, от 600 до 6 мВт/см^2 . Результаты приведены на рис. 3.

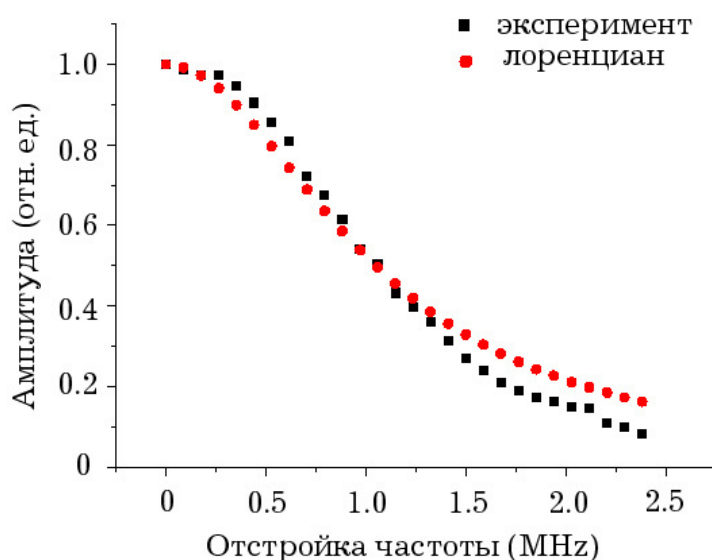


Рис. 2. Форма резонанса насыщенного поглощения в однонаправленных волнах

Рис. 3. Ширина резонансов насыщенного поглощения на полувысоте в зависимости от интенсивности насыщающего излучения; цифры у кривых – значения давления газа

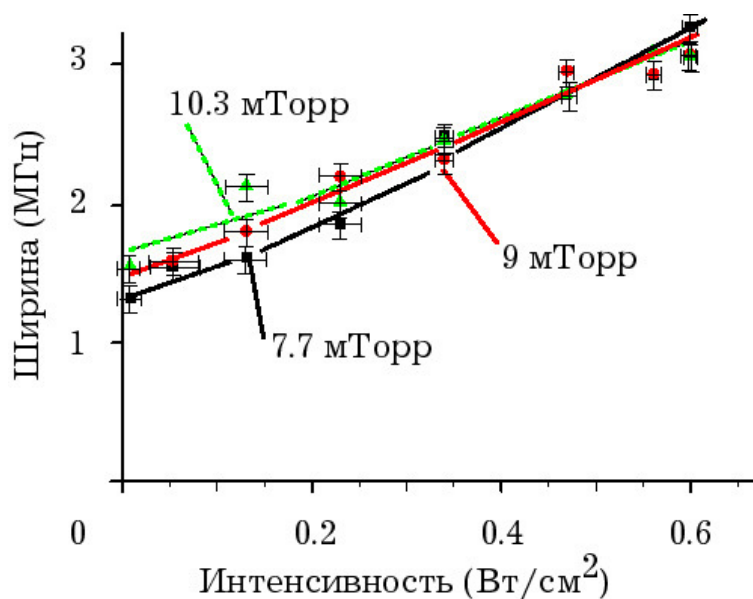
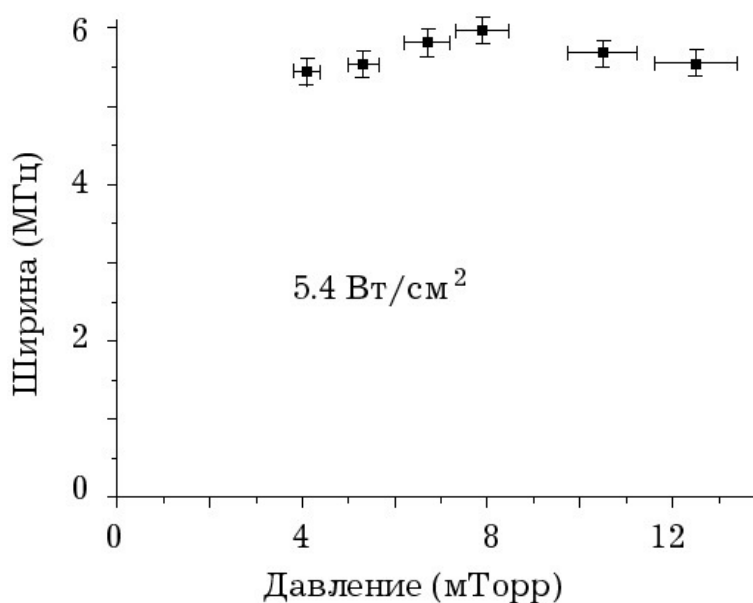


Рис. 4. Зависимость ширины резонансов насыщенного поглощения в однонаправленных волнах от давления газа при интенсивности насыщающего излучения 5,4 Вт/см²



Как видно на рис. 3, зависимость ширины резонансов от интенсивности носит явно нелинейный характер. В области малых интенсивностей, где преобладает столкновительное уширение, ширина резонанса определяется однородной шириной Γ . По мере нарастания интенсивности насыщающего излучения, начинает преобладать полевое уширение, и ширина резонанса также возрастает. В пределе малой интенсивности кривые, соответствующие более высоким давлениям газа, стремятся к большим значениям ширины.

Эксперименты, проведенные при более высокой интенсивности насыщающего излучения, позволили достигнуть противоположного предела. В этом случае основной вклад в ширину резонансов насыщенного поглощения дает именно динамический эффект Штарка. Как видно из рис. 4, ширины резонансов изменяются в пределах 5,4–6,0 МГц и практически не зависят от давления газа. Это означает преобладание полевого уширения.

Резонансы насыщенного поглощения подробно исследованы теоретически как для

однонаправленных, так и для встречных волн [1–3; 6]. В частности, из работы [6] следует, что в пределе сильного насыщения полуширина резонансов $\Delta\nu$ практически не зависит от релаксационных констант и определяется величиной $2dE/h$, где d – матричный элемент исследуемого перехода, E – напряженность поля насыщающего излучения, h – постоянная Планка.

Используя значение ширины полевого уширения резонансов в пределе сильного насыщения $\Delta\nu = 5,8$ МГц, использованную в эксперименте интенсивность насыщающего излучения $I = 5,4$ Вт/см², а также известное соотношение $I = cE^2/8\pi$ (c – скорость света), оценим величину дипольного момента перехода как $d = h\Delta\nu/4E$, что дает величину $d = 0,045$ Д. Это значение хорошо согласуется с величиной матричного элемента дипольного момента, определенного методом нестационарных оптических нутаций $d = 0,04$ Д [8].

Обсуждение результатов

Интерес к исследованию столкновений по форме резонансов насыщенного поглощения существует в теории на протяжении многих лет. В частности, в работе [6] рассмотрена задача о резонансном взаимодействии однонаправленных волн в газе в рамках модели трех релаксационных констант и в широком диапазоне параметров насыщения. Модель трех релаксационных констант также подробно рассмотрена в монографии [3]. При этом две различные по величине константы релаксации характеризует затухание верхнего и нижнего рабочих уровней, а третья относится к затуханию когерентности (однородной ширине линии). Напомним, что параметр насыщения в случае единственной константы релаксации Γ имеет вид $\kappa = (dE/h\Gamma)^2$, где d – матричный элемент дипольного момента перехода, E – электрическое поле излучения, h – постоянная Планка. В пределе сильного насыщения, согласно работе [6], форма резонанса насыщенного поглощения существенно отличается от лоренцевской, и скорее напоминает прямоугольный провал с шириной, определяемой величиной dE/h , т. е. частотой осцилляций Раби. Напомним, что работа [6] выполнена в приближении двухуровневой системы.

В наших экспериментах уровни имеют заметное вырождение по магнитному квантовому числу, плюс вырождение, связанное с инверсионным удвоением. Кроме того, переход между рабочими уровнями с угловыми моментами $J > 1$ невозможно описать одним и тем же значением матричных элементов дипольного момента перехода. Например, в работе [7] рассчитаны поправочные множители, учитывающие зависимость значений матричных элементов дипольного момента перехода от магнитных квантовых чисел M и показано, что форма резонансов насыщенного поглощения в условиях большого насыщения может существенно зависеть от поляризации насыщающего и пробного полей. Таким образом, вырождение уровней и поляризация излучений (как пробного, так и насыщающего) должны учитываться в расчетах даже в пределе сильного насыщения. Большинство расчетов выполняют в приближении плоских волн. В эксперименте это практически невозможно, поэтому на сегодняшний день сравнить экспериментальные данные с расчетными затруднительно.

Выводы

В рамках данной работы исследованы эффекты полевого уширения для однонаправленных волн. Все эксперименты выполнены на переходе R(4,3) колебательной полосы 0–1 моды ν_3 газа $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ под действием излучения двух CO_2 -лазеров, работающих на линии 9P(32). Насыщающее излучение настраивалось на центр исследуемого перехода, пробное сканировалось по частоте в окрестности центра перехода. Показано, что форма резонансов насыщенного поглощения отличается от лоренцевской в пределе сильного насыщения, а ширина резонансов нарастает с ростом интенсивности электрического поля насыщающего излучения. Получена оценка величины дипольного момента перехода $d = 0,045$ Д, что хорошо согласуется с литературными данными для данного перехода $^{13}\text{CH}_3\text{F}$.

Список литературы

1. Летохов В. С., Чеботаев В. П. Нелинейная лазерная спектроскопия сверхвысо-

кого разрешения. М.: Наука; Физматлит, 1990. 512 с.

2. Летохов В. С., Чеботаев В. П. Принципы нелинейной лазерной спектроскопии. М.: Наука, 1975. 250 с.

3. Раутиан С. Г., Смирнов Г. И., Шалагин А. М. Нелинейные резонансы в спектрах атомов и молекул. Новосибирск: Наука, 1979. 420 с.

4. Справочник по лазерам / Под ред. А. М. Прохорова. М.: Сов. радио, 1978. Т. 2.

5. Остапенко Е. С., Ледовских Д. В., Рубцова Н. Н. Столкновительное уширение колебательно-вращательного перехода в газе $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ // Материалы Междунар. студ.

конф. МНСК-2010: Тез. докл. Новосибирск, 2010. С. 104.

6. Бакланов Е. В., Чеботаев В. П. О резонансном взаимодействии однонаправленных волн в газе // ЖЭТФ. 1971. Т. 61. С. 922.

7. Насыров К. А., Шалагин А. М. Эффекты полевого расщепления уровней с большими значениями углового момента // ЖЭТФ. 1982. Т. 83. С. 1685.

8. Brewer R. G., Shoemaker R. L. Photo Echo and Optical Nutation in Molecules // Phys. Rev. Lett. 1971. Vol. 27. P. 631.

Материал поступил в редколлегию 15.12.2010

E. S. Ostapenko, D. V. Ledovskikh, N. N. Rubtsova

POWER BROADENING OF SATURATED ABSORPTION RESONANCES IN A GAS $^{13}\text{CH}_3\text{F}$

Saturated absorption resonances in a gas $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ at the vibration-rotation transition R(4,3) 0–1 of vibration mode ν_3 detected in a probe radiation wave transmission in a presence of unidirectional saturating wave are investigated. The width of saturated absorption resonances is increasing with the growth of saturating radiation intensity. In the limit of strong saturation, the resonance shape differs from Lorentzian one by the sharper decrease in the wings, and the resonance width allows to estimate the dipole transition moment $d = 0.045 D$ in good agreement with literature data for this transition of $^{13}\text{CH}_3\text{F}$.

Keywords: power broadening, resonances of saturated absorption, collision broadening.