

СУЖЕНИЕ ДВУХФОТОННОГО РЕЗОНАНСА ИЗ-ЗА УПРУГИХ СТОЛКНОВЕНИЙ

В.А. Улыбин, В.П. Чеботаяев

Исследована форма линии двухфотонного поглощения в поле стоячей волны при упругих столкновениях. Обнаружено резкое уменьшение пролетного уширения двухфотонного резонанса на колебательно-вращательных переходах молекул вследствие увеличения времени взаимодействия частиц с электромагнитным полем из-за упругих столкновений. Рассмотренный эффект позволяет получать сверхузкие оптические резонансы двухфотонного поглощения в газе низкого давления с высокой интенсивностью.

В работе ¹ было показано, что нелинейная зависимость ширины резонанса насыщенного поглощения на колебательно-вращательных переходах молекул от плотности частиц обусловлена как упругим рассеянием частиц на малые углы, так и малым вкладом в уширение столкновений, сбивающих фазу дипольного момента частицы. Малое сечение столкновений без сбоев фазы может в значительной мере способствовать получению очень узких оптических линий. Однако резонанс насыщенного поглощения при низких давлениях газа имеет ширину, определяемую полным сечением упругого рассеяния, независимо от того, сбивается фаза дипольного момента частицы при столкновении или нет (в последнем случае столкновения сопровождаются выходом частиц из резонанса вследствие большого доплеровского сдвига частоты при изменении скорости атома). Сужение при столкновениях доплеровского контура возможно лишь при достаточно высоких давлениях газа, когда длина свободного пробега частицы порядка или меньше длины волны электромагнитного поля. Для длины волны 1 мкм и тепловой скорости $\sim 10^5$ см/с необходимы давления $\sim 1 \div 10$ атм, но при таком давлении, несмотря на уменьшение ширины резонанса по сравнению с доплеровской, ее величина, ограниченная неупругим рассеянием и рассеянием со сбоем фазы, остается большой (~ 1 Гц, см., например, ²).

Совсем иная ситуация может иметь место в газе низкого давления для двухфотонного резонанса в поле стоячей волны ³. Как известно, устранение доплеровского уширения двухфотонного резонанса связано с тем, что процесс поглощения двух встречных фотонов не зависит от скорости частицы, поэтому упругие столкновения, в отличие от резонанса насыщенного поглощения, не дают вклад в уширение. Ширина резонанса двухфотонного поглощения (ДФП) в отсутствие столкновений определяется временем пролета атома поперек светового пучка. В этой работе мы показываем возможность значительного сужения пролетного контура резонанса вследствие упругих столкновений для колебательно-вращательных переходов молекул. Эффект имеет место, когда длина свободного пробега атома становится меньше диаметра светового пучка, что приводит к увеличению времени взаимодействия частицы с полем и сужению резонанса. Вследствие малого сечения неупругих и сбивающих фазу столкновений столкновительное уширение линии оказывается малым.

1. Качественное рассмотрение. Будем считать, что при упругих столкновениях отсутствует сбой фазы осциллятора. В результате таких столкновений длительность взаимодействия частицы с полем эффективно возрастает, и резонанс ДФП имеет ширину, определяемую временем диффузии молекулы в световом пучке. Если в момент времени t частица находилась, например, на оси светового пучка, то в следующий момент времени t' плотность вероятности обнаружить частицу на расстоянии R пропорциональна $\exp[-R^2/4D(t'-t)]$, где D — коэффициент диффузии. Время диффузии в световом пучке с поперечным размером a равно

$$\tau_g = a^2/4D = \nu_g \tau_0^2 / 2,$$

где $\nu_g = v_0/2D$ — диффузионная частота столкновений ($v_0 = \sqrt{2kT/M}$ — тепловая скорость,

T — температура, M — масса молекулы), $\tau_0 = a/v_0$ — пролетное время. Ширина двухфотонного резонанса $\gamma \sim \tau_g^{-1} + \Gamma_{21}$, где Γ_{21} — однородная ширина перехода $1 \rightarrow 2$, учитывающая радиационный распад уровней 1 и 2, а также неупругие столкновения. Так как τ_g и Γ_{21} пропорциональны давлению газа P , то

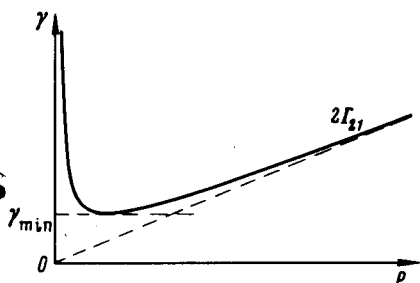
$$\gamma \sim \alpha/P + \beta P. \quad (1)$$

Качественный график зависимости $\gamma(P)$ дан на рисунке. В соответствии с (1) минимальная ширина

$$\gamma_{min} \sim \sqrt{\alpha\beta} = \sqrt{\Gamma_{21}/\tau_g}.$$

Заметим, что дополнительное увеличение времени когерентного взаимодействия частиц с полем может быть достигнуто, когда при столкновениях со стенками фаза осциллятора не сбивается.

Принципиально, что в рассмотренном нами случае сужение линии наблюдается, когда длина свободного пробега частицы Λ много больше длины волны λ . В то время, как для однофотонных переходов сужение линии имеет место при условии $\lambda \leq \Lambda$ ⁴.



Зависимость ширины γ резонанса ДФП от давления P при упругих столкновениях.

2. Форма линии. Форма линии ДФП в поле стоячей волны при упругих столкновениях была найдена с использованием метода квантового кинетического уравнения для матрицы плотности ⁵ в приближениях сильных и слабых столкновений. Например, для слабых столкновений при равных амплитудах рассеяния на уровнях 1 и 2 форма линии ДФП:

$$L(\delta) = \frac{1}{\pi} \operatorname{Re} \int_0^{\infty} \frac{\exp[-(\Gamma_{21} + i\delta)t] dt}{1 + 2(\nu_g \tau_0)^{-2} (\nu_g t - 1 + e^{-\nu_g t})}. \quad (2)$$

где δ — расстройка удвоенной частоты поля 2ω относительно частоты перехода ω_{21} с учетом сдвига из-за неупругих столкновений. Если время диффузии τ_g больше времени Γ_{21}^{-1} , то $L(\delta)$ — лоренцев контур с шириной на полувысоте $\gamma = 2\Gamma_{21} \propto P$. Случай $\tau_0 \ll \tau_g \ll \Gamma_{21}^{-1}$ соответствует сужению резонанса ДФП из-за упругих столкновений. Ширина линии много меньше пролетной и равна:

$$\gamma = \gamma_{min} = 1,5 \sqrt{\Gamma_{21}/\tau_g}.$$

При очень низких давлениях ($\nu_g \ll \tau_0^{-1}$) $L(\delta)$ представляет обычный пролетный контур с шириной $\gamma = 1,4 \tau_0^{-1}$ (см. также ⁶).

Использование модели сильных столкновений дает $L(\delta)$ в виде, отличном от (2), но в предельных случаях, аналогичных рассмотренным, результаты совпадают. Это еще раз говорит о том, что характер изменения скорости частицы при столкновениях не влияет на резонанс ДФП, важно лишь, за какое время молекула выходит из светового пучка.

3. Рассмотренный здесь, эффект сужения двухфотонного резонанса может наблюдаться, например, на колебательно-вращательных переходах молекулярного водорода. Оценки, проведенные нами с использованием ², для переходов $v_1 = 0, J \rightarrow v_2 = 1, J$ (v, J — колебательное и вращательное квантовые числа молекулы в основном состоянии) показывают, что за счет такого сужения могут быть получены резонансы ДФП с ширинами $\gamma = 7 \div 10$ кГц при

давлениях $0,01 < P < 0,1$ торр (уменьшение ширины по сравнению с пролетной происходит в ~ 10 раз). Вследствие увеличения времени взаимодействия молекулы с полем при упругих столкновениях и большой плотности частиц ($\sim 10^{15} \text{ см}^{-3}$) резонанс ДФП имеет высокую интенсивность. Для числа частиц, возбуждаемых в единицу времени на уровне 2, в расчете на единицу длины рабочей ячейки имеем:

$$dN_2/dt = 8 \cdot 10^9 \text{ с}^{-1} \cdot \text{см}^1$$

(переход $v_1 = 0, J = 1 \rightarrow v_1 = 1, J = 1$; интенсивность поля $I = 1 \text{ Вт/см}^2$, размер пучка $a = 1 \text{ см}$, температура $T = 300 \text{ К}$).

Авторы благодарят Е.В.Бакланова за обсуждение.

Литература

1. Багаев С.Н., Бакланов Е.В., Чеботаев В.П. Письма в ЖЭТФ, 1972, 16, 15.
2. Murray J.R., Javan A. J. Mol. Spectrosc., 1972, 42, 1.
3. Василенко Л.С., Чеботаев В.П., Шишаев А.В. ЖЭТФ, 1970, 12, 161.
4. Dicke R.H. Phys. Rev., 1953, 89, 472.
5. Алексеев В.А., Андреева Т.Л., Собельман И.И. ЖЭТФ, 1972, 62, 614.
6. Бакланов Е.В., Дубецкий Б.Я., Квантовая электроника, 1978, 5, 99; Borde C., C. R. Acad. Sci. Paris, 1976, 282B, 341.

Институт теплофизики
Академии наук СССР
Сибирское отделение

Поступила в редакцию
3 февраля 1983 г.