

СПЕКТР РЕЗОНАНСНОЙ ФЛЮОРЕСЦЕНЦИИ ТРЕХУРОВНЕВОЙ ПЛОТНОЙ СРЕДЫ (ПАРОВ НАТРИЯ) В СИЛЬНОМ ЛАЗЕРНОМ ПОЛЕ

А.Г.Леонов, А.А.Пантелеев, А.Н.Старостин, Д.И.Чехов

*Московский физико-технический институт
141700 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 10 ноября 1993 г.

В работе впервые получены спектры резонансной флюоресценции плотной ($N \sim 10^{15} \text{ см}^{-3}$) трехуровневой среды в интенсивном лазерном поле и зарегистрирована их многокомпонентная структура, связанная с расщеплением Раби на три квазиуровня как основного $3S$ -, так и двух возбужденных $3P$ -уровней атома натрия. Предпринятые в работе расчеты спектров хорошо согласуются с экспериментальными данными при учете пространственной неоднородности лазерного пучка и поглощения квантов флюоресценции в невозмущенных парах натрия.

Изучение спектров флюоресценции, возникающей под действием резонансной лазерной волны, играет фундаментальную роль в понимании процессов взаимодействия излучения с веществом. Хорошо известно [1-4], что для двухуровневой среды малой плотности форма такого спектра представляет собой симметричный триплет, боковые компоненты которого отстоят от центрального пика на расстояние, равное величине обобщенной частоты Раби, а в плотных средах, когда становятся важны столкновительные процессы, центр тяжести мультиплета сдвигается в сторону частоты резонансного перехода [5, 6]. Однако при больших интенсивностях лазерного пучка двухуровневое описание реальных атомных систем (таких, как, например, пары щелочных металлов) оказывается несправедливым, поскольку расстояние до соседних возмущающих уровней становится порядка частоты Раби. В данной работе впервые приводятся результаты экспериментов по наблюдению резонансной флюоресценции в интенсивном лазерном поле, в которых наблюдалась многокомпонентная структура спектров свечения резонансной среды, обязанная своим происхождением расщеплению Раби на три квазиуровня, как основного $3S$ -, так и двух возбужденных $3P$ -уровней атома натрия (см. рис.1). Величины расщепления в приближении трехуровневой среды будут определяться характеристическим уравнением, являющимся следствием решения системы нестационарных уравнений Шредингера в резонансном приближении [7]:

$$\epsilon(\epsilon + \Delta_2)(\epsilon + \Delta_3) - 1/4(\mu_{12}E/\hbar)^2(\epsilon + \Delta_3) - 1/4(\mu_{13}E/\hbar)^2(\epsilon + \Delta_2) = 0; \quad (1)$$

где $\Delta_2 = \omega_{12} - \omega_L$; $\Delta_3 = \omega_{13} - \omega_L$; ω_L - частота лазерного излучения; μ_{12} , μ_{13} , ω_{12} , ω_{13} - соответственно дипольные моменты и невозмущенные резонансные частоты $D_1(3^2S_{1/2} - 3^2P_{1/2})$ и $D_2(3^2S_{1/2} - 3^2P_{3/2})$ переходов в атоме натрия; E - напряженность электромагнитного поля лазерной волны; \hbar - постоянная Планка. Корни этого уравнения ϵ_k ($k = 1, 2, 3$) являются рабиевскими частотами осцилляции (квазиэнергиями) и определяют обобщенные частоты Раби трехуровневой системы:

$$\Omega'_j = |\epsilon_m - \epsilon_n| \quad (j = 1, 2, 3; \quad m \neq n). \quad (2)$$

Как следует из рис.1, в спектре флюоресценции трехуровневой среды должны наблюдаться до шести компонент, частоты которых удовлетворяют соотношению $\omega_j^{\pm} = \omega_L \pm \Omega'_j$, а также три вырожденные компоненты с частотами $\omega_0 = \omega_L$. При этом в пределе слабого поля (малой частоты Раби $\Omega_i = \mu_{1i} E / \hbar \ll \Delta_i$, $i = 2, 3$) обобщенные частоты Раби будут равны: $\Omega'_1 \simeq \delta$ ($\delta = \omega_{13} - \omega_{12}$), $\Omega'_2 \simeq \Delta_2$, $\Omega'_3 \simeq \Delta_3$, а соответствующие переходы будут описывать спектр хорошо известных различных типов комбинационного рассеяния (см., например, [8, 9]).

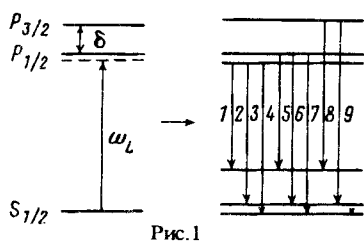


Рис.1

Рис.1. Схема сдвига и расщепления атомных энергетических уровней в поле сильной лазерной волны: 3, 5, 7 - переходы с лазерной частотой ω_L ; 6, 2 - переходы с частотами $\omega_j^{\pm} = \omega_L \pm \Omega'_j$; 8, 4 - переходы с частотами $\omega_j^{\pm} = \omega_L \pm \Omega'_j$; 9, 1 - переходы с частотами $\omega_j^{\pm} = \omega_L \pm \Omega'_j$

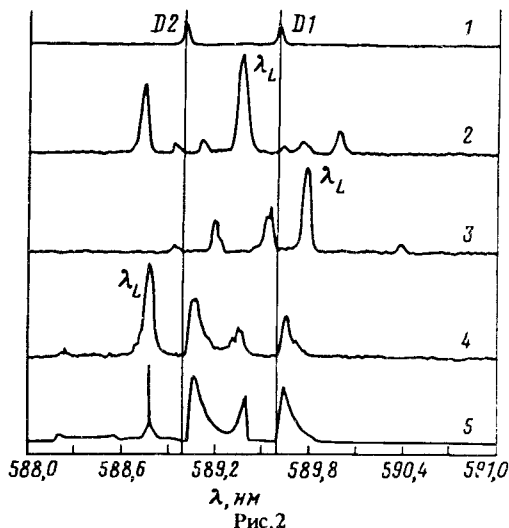


Рис.2

Рис.2. Измеренные (2-4) и рассчитанный (5) спектры флюоресценции паров натрия ($N = 2,3 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$, $\mathcal{E} = 20 \text{ МВт/см}^2$): 1 - калибровочный спектр натриевой лампы; 2: $\Delta\lambda_L = -0,37 \text{ нм}$; 3: $\Delta\lambda_L = -0,79 \text{ нм}$; 4, 5: $\Delta\lambda_L = 0,21 \text{ нм}$, $\Delta\lambda_L = \lambda_{D2} - \lambda_L$

Эксперименты проводились на установке, состоящей из нагреваемой кюветы с парами натрия, лазера на красителе и комплекса диагностической аппаратуры. Конструкция нагреваемой кюветы была аналогична описанной в [10] и позволяла создавать цилиндрический столб паров натрия плотностью $10^{13} \div 10^{16} \text{ см}^{-3}$, высотой 1,5 см. Величина плотности атомов натрия N и ее распределение по радиусу кюветы $N(r)$ восстанавливались преобразованием Абеля из измерений $\int N(r) dr$ методом крюков Рождественского с помощью интерферометра Майкельсона, освещавшегося вспомогательным широкополосным лазером на красителе. Перед проведением эксперимента кювета откачивалась до давления $10^{-5} \text{ мм рт.ст.}$, затем наполнялась инертным газом (аргоном) при давлении $\sim 0,3 \div 5 \text{ мм рт.ст.}$ и нагревалась до требуемой температуры. Как показали измерения, диаметр столба паров на полувысоте распределения составлял $8 \div 10 \text{ см}$ и слабо зависел от температуры нагрева и давления буферного газа.

Перестраиваемый лазер на красителе (родамин 6Ж) возбуждался излучением второй гармоники лазера на кристалле YAG:Nd³⁺, работавшим с частотой 10 Гц, и генерировал линейно поляризованное излучение с энергией E_0 до 6 мДж при ширине спектра 0,008 нм и длительности импульса $\tau = 18 \text{ нс}$. Лазерный пучок линзой с фокусным расстоянием 45 см фокусировался в цен-

тре кветы, пересекая столб паров натрия по его диаметру. Распределение энергии $E(r)$ лазерного пучка по его радиусу r , измеренное в области фокусировки фотодиодной линейкой, хорошо аппроксимировалась зависимостью: $E(r) \propto (r_0^2/(r_0^2 + r^2))^{1,5}$, где $r_0 = 0,4$ мм. Радиус пучка на полувьоте энергетического распределения в этой области составлял $r_{1/2} = 0,3$ мм. Интенсивность же лазерного излучения в экспериментах рассчитывалась по формуле: $\mathfrak{F} = E_0/(\tau S)$, где $S = \pi r_{1/2}^2$.

Флюоресценция паров натрия, возникающая под действием лазерного излучения, собиралась из центра кветы в направлении, перпендикулярном оси лазерного пучка, двумя объективами, строившими изображение светящейся области на входной щели дифракционного монохроматора (1200 штр./мм). За его выходной щелью размещался фотоэлектронный умножитель ФЭУ-84, сигнал с которого регистрировался стробируемым вольтметром в момент времени, соответствующий максимуму импульса генерации лазера на красителе. Следует отметить, что в пределах длительности строба (4 нс) интенсивность генерации оставалась практически постоянной. Для получения спектров флюоресценции длина волны пропускания монохроматора автоматически сканировалась в окрестностях D_1 - и D_2 -линий натрия. Спектральное разрешение такой системы измерений составляло 0,02 нм.

Зарегистрированные в экспериментах спектры флюоресценции паров натрия показаны на рис.2. Из представленных на них данных видно, что если длина волны лазерного излучения λ_L лежит между D -линиями, то спектр флюоресценции содержит 7 компонент, что отражает описанное выше расщепление трехуровневой среды в сильном лазерном поле. Если же λ_L лежит вне этого диапазона, то в спектрах наблюдается только 5 компонент, причем их характерной особенностью является тот факт, что при высокочастотных отстройках лазерного излучения от D_2 -линии наиболее интенсивные линии флюоресценции лежат в области частот, меньших, чем лазерная, а при низкочастотных от D_1 -линии – наоборот. Интенсивность же двух других компонент в этом случае весьма мала (что подтверждается расчетами – см. ниже) и находится на уровне шумов. Найденная асимметрия спектров флюоресценции при достаточно больших давлениях буферного газа и паров натрия связана, как уже упоминалось выше [5, 6], с существенной ролью столкновений. Следует, однако, отметить, что в отличие от двухуровневого случая для трехуровневой среды спектры флюоресценции не имеют строго симметричной формы даже в отсутствие столкновений [11].

Зависимость отстроек $\Delta\lambda_j = \lambda_L - \lambda_j$ длин волн максимумов зарегистрированных компонент флюоресценции λ_j от величины $\Delta\lambda_L = \lambda_{D2} - \lambda_L$ (λ_{D2} – длина волны D_2 -линии натрия) представлена на рис.3. На этом же рисунке показаны также рассчитанные из уравнений (1) и (2) положения отстроек компонент для интенсивности 20 МВт/см² (пунктирная кривая), соответствующей экспериментальным условиям. Как следует из приведенных данных, измеренные положения компонент во всем диапазоне отстроек значительно смещены относительно расчетных и примерно соответствуют существенно меньшей интенсивности $\mathfrak{F} = 5$ МВт/см², расчетная кривая для которой (сплошная) также приведена на рис.3. Такое расхождение может быть объяснено несколькими причинами. С одной стороны, на наблюдаемые в эксперименте сдвиги компонент флюоресценции (как и на их спектральную ширину) влияет пространственная неоднородность лазерного пучка по лучу наблюдения, вслед-

ствии чего неоднородна в пространстве и величина обобщенной частоты Раби Ω'_j , при этом из-за насыщения флюоресценции при больших \mathfrak{E} значительный вклад в форму регистрируемых спектров будут вносить пространственные крылья лазерного пучка, интенсивность излучения в которых относительно мала. С другой стороны, форму измеряемых спектров искажает поглощение квантов флюоресценции в невозмущенных лазерным излучением плотных парах натрия, которое, как показывают простые оценки, несмотря на достаточно большие отстройки частот компонент от резонансных, может быть достаточно велико. Помимо этого, существенной оказывается и фазовая самомодуляция лазерного излучения, влияние которой особенно проявляется в уширении несмещенной компоненты флюоресценции на частоте лазерного излучения. Следует, однако, отметить, что проведение экспериментов с временным разрешением позволило нам избавиться от изменения обобщенной частоты Раби Ω'_j в течение лазерного импульса и смещения линий флюоресценции к невозмущенным частотам переходов в послесвечении паров.

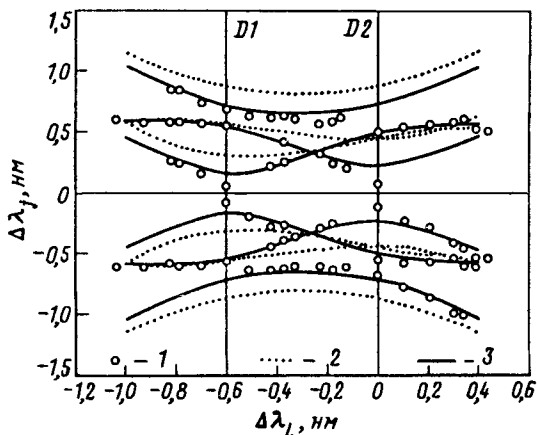


Рис.3. Измеренные (точки) и рассчитанные (пунктирные и сплошные кривые) сдвиги компонент спектра флюоресценции паров натрия. $N = 2, 3 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$, $\mathfrak{E} = 20 \text{ МВт/см}^2$ (точки и пунктирные кривые), и 5 МВт/см^2 (сплошные кривые)

Для объяснения полученных результатов в данной работе, следуя теоретической модели, развитой в [11] и основанной на формализме атомно-фотонной матрицы плотности [12–14], нами были предприняты стационарные численные расчеты спектров флюоресценции паров натрия в трехуровневом приближении и в предположении δ -образного спектра возбуждающего лазерного излучения. При моделировании спектров использовались константы уширения буферным газом и резонансного уширения, приведенные в [15, 16]. В расчетах также учитывались наиболее сильные эффекты, приводящие к деформации наблюдаемых спектров, пространственная неоднородность лазерного пучка и поглощения квантов флюоресценции в невозмущенных парах. Их результаты для случая $\Delta\lambda_L = 0, 21 \text{ нм}$ представлены на рис.2 (кривая 5) и хорошо согласуются с экспериментально измеренным спектром, за исключением несмещенной линии флюоресценции на частоте возбуждающего излучения. Как известно, в интенсивность этой линии вносят вклад две составляющие – когерентная и некогерентная (см., например, [1, 5]). Поскольку в расчетах не учитывались многочастотность возбуждающего излучения и конечная разрешающая способность монохроматора, то вычисленная ширина некогерентной компоненты оказалась порядка столкновительной и в масштабе рисунка не выражается,

а ее амплитуда значительно превышает амплитуды линий других компонент. Спектральная же интенсивность когерентной составляющей вообще пропорциональна $\delta(\omega - \omega_L)$. По обоим причинам на расчетном спектре амплитуда несмещенной линии флюоресценции показана условно.

Таким образом, в данной работе впервые получены спектры флюоресценции плотной трехуровневой среды в интенсивном лазерном поле и зарегистрирована их многокомпонентная структура, связанная с расщеплением Раби на три квазиуровня основного и двух возбужденных $3P$ -уровней атома натрия. Наблюдаемая в экспериментах асимметрия спектров флюоресценции определяется влиянием столкновений, с одной стороны, и принципиальной многоуровневостью исследуемой атомной системы, с другой. Предпринятые в работе расчеты спектров хорошо согласуются с экспериментальными данными. Тем не менее, следует отметить, что вопрос о полной применимости стационарного подхода в расчетах, описывающих флюоресценцию в условиях данного эксперимента, остается открытым.

В заключение авторы выражают глубокую благодарность Д.В.Гайдаренко за полезные обсуждения полученных результатов и А.В.Бражникову за помощь в проведении экспериментов. Данная работа выполнена при поддержке Гранта Гуманитарного Фонда Сороса, присужденного Американским Физическим Обществом.

-
1. B.R.Mollow, *Phys. Rev.* **188**, 1969 (1969).
 2. F.Shuda, C.R.Stroud, and M.J.Hercher, *J. Phys. B* **7**, L198 (1974).
 3. W.Harting, W.Rasmussen, R.Shieder, and H.Walther, *Z. Phys. A* **278**, 205 (1976).
 4. R.Grove, F.Wu, and S.Ezekiel, *Phys. Rev. A* **15**, 227 (1977).
 5. B.R.Mollow, *Phys. Rev. A* **15**, 1023 (1977).
 6. J.L.Carlsten, A.Szöke, and M.G.Raymer, *Phys. Rev. A* **15**, 1029 (1977).
 7. Н.Б.Делоне, В.П.Крайнов. Атом в сильном световом поле. М.: "Наука", 1987.
 8. Y.Shevy, M.Rosenbluch, and H.Friedmann, *Phys. Rev. A* **31**, 1209 (1985).
 9. Y.Shevy and M.Rosenbluch, *Optics Lett.* **12**, 257 (1987).
 10. M.A.Cappelli, P.G.Cardinal, H.Herchen, and R.M.Measures, *Rev. Sci. Instr.* **56**, 2030 (1985).
 11. Д.В.Гайдаренко, А.Г.Леонов, А.А.Пантелеев и др., *Laser Physics* **3**, 151 (1993).
 12. M.O.Scully and W.E.Lamb, *Phys. Rev.* **159**, 208 (1967).
 13. Е.В.Бакланов, *ЖЭТФ* **65**, 2203 (1973).
 14. M.Sargent III, D.A.Holm, and M.S.Zubary, *Phys. Rev. A* **31**, 3112 (1985); S.Stenholm, D.A.Holm, and M.Sargent III, *ibid.* 3124.
 15. R.H.Chatham, A.Gallagher, and E.L.Levis, *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.* **13**, L7 (1980).
 16. C.G.Carrington, D.M.Stacey, and J.Cooper, *J. Phys. B* **6**, 417 (1973).