

УВЕЛИЧЕНИЕ СЕЧЕНИЯ И СУЖЕНИЕ ЛИНИИ ДВУХФОТОННОГО ПОГЛОЩЕНИЯ ЗА СЧЕТ ЭФФЕКТА ДИКЕ

В.И. Баранцов, А.К. Попов

Показана возможность полного снятия некомпенсированного доплеровского уширения при двухфотонном поглощении. Сужение вплоть до естественной ширины связано с эффектом Дике и сопровождается резким увеличением поглощения. Использование при этом однофотонного резонанса дополнительно увеличивает сечение двухфотонного поглощения.

1. В работах [1, 2] была исследована угловая анизотропия доплеровской ширины линии поглощения слабого поля в присутствии сильного на смежном переходе. В последующие годы широкое использование получила схема двухквантового поглощения равных фотонов с противоположными импульсами. Соответствующий метод нелинейной спектроскопии получил название бездоплеровской двухфотонной спектроскопии (ссылки см в [3]). Поглощение двух равных фотонов в условиях двухквантового резонанса, как правило, возможно лишь при значительных выходах из промежуточного однофотонного резонанса, что сопровождается соответствующим уменьшением поглощения. По этой причине в последующих работах для приближения к промежуточному резонансу были использованы схемы с двумя неравными фотонами. Однако, при этом возникает неполная компенсация доплеровской ширины двухфотонного перехода. Последнее ограничивает спектроскопическое применение метода и снижает выигрыш в увеличении сечения поглощения.

2. Мы предлагаем использовать уругие столкновения с изменением скорости для полной компенсации доплеровского уширения в схеме с промежуточным резонансом и фотонами разной частоты. Предлагаемый способ является модификацией рассмотренного в [4]. Однако, эффект Дике используется для снятия некомпенсированной доплеровской ширины $\Delta k\bar{v}$ ИК или оптического двухфотонных переходов, а не полной неоднородной ширины реального микроволнового перехода, как в [4]. При этом достигается сужение доплеровской линии и увеличение двухфотонного поглощения в $\Delta k\bar{v}/\Gamma_{ln}$ раз, где Γ_{ln} – однородная ширина двухфотонного перехода. Кроме того, значительное увеличение сечения поглощения возможно за счет приближения к однофотонному промежуточному резонансу.

3. Рассмотрим взаимодействие с трехуровневой системой ($E_l > E_m > E_n$) двух монохроматических волн с противоположными волновыми векторами k и k_μ , уровень n – основной. Частота ω сильного поля E близка к частоте однофотонного перехода m . Анализируется форма линии поглощения слабого поля E_μ с частотой ω_μ , близкой к частоте однофотонного перехода ω_{lm} , причём $\omega_\mu + \omega \approx \omega_{ln}$. Сечение поглощения этого поля пропорционально мнимой части элемента матрицы плотности ρ_{ln} .

Уравнение для матрицы плотности $\hat{\rho}$ имеет вид

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + v \vec{\nabla} \right) \hat{\rho} = -i [\hat{V}, \hat{\rho}] + R + \left(\frac{d\rho}{dt} \right)^{CT}. \quad (1)$$

Здесь v – скорость движения атома (молекулы), \hat{V} – гамильтониан взаимодействия с полями E и E_μ , R – описывает спонтанную релаксацию, а $(d\rho/dt)^{CT}$ – изменение скорости атомов в результате упругих столкновений.

Для того, чтобы проиллюстрировать основные черты явления, достаточно удержать соответствующий член $(d\rho/dt)^{CT}$ лишь в уравнении для ρ_{ln} . При этом ограничимся моделью сильных столкновений, когда в одном столкновении происходит изменение скорости v порядка тепловой \bar{v} .

$$\left(\frac{d\rho}{dt} \right)_{ln}^{CT} = -\nu \rho_{ln}(v) + \tilde{\nu} \int W(v') \rho_{ln}(v') dv'. \quad (2)$$

Здесь v – проекция скорости на направления распространения волн; W – максвелловское распределение, ν и $\tilde{\nu}$ – частоты столкновений с изменением скорости. Аналогично [4] с точностью до $|E|^2$ получаем для сечения поглощения на частоте ω_μ :

$$\sigma(\omega_\mu) \sim \left[\frac{2\Gamma_{lm}\Gamma_{mn}}{\Gamma_m |(\omega_\mu - \omega_{lm})(\omega - \omega_{mn})|} + \text{Re} \frac{z(\omega_\mu)}{1 - \tilde{\nu}Z(\omega_\mu)} \right] \frac{|G|^2}{|(\omega_\mu - \omega_{lm})(\omega - \omega_{mn})|}. \quad (3)$$

Здесь Γ_{lm} и Γ_{mn} – однородные ширины переходов, а Γ_m – ширина уровня m , $G = -E d_{mn}/2\hbar$, d_{mn} – матричный элемент электродипольного перехода, $|\omega_\mu - \omega_{lm}| \gg k_\mu \bar{v}$, $|\omega - \omega_{mn}| \gg k\bar{v}$

$$Z(\omega_\mu) = \pi^{-1/2} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\exp\{-(v/\bar{v})^2\} dv/\bar{v}}{\Gamma_{ln} + \nu - i(\omega_\mu + \omega - \omega_{ln} - \Delta kv)}. \quad (4)$$

Здесь $\Delta k = |\omega_\mu - \omega|/c$, $\Gamma_{ln} = \Gamma_l/2$ – ширина перехода ln , определяемая релаксацией без изменения скорости (радиационной и столкновительной). Первое слагаемое в (3) соответствует ступенчатому переходу, а второе – двухфотонному. Рассмотрим предельные случаи

$$1) \text{ При } \nu = \tilde{\nu} = 0, \quad \Delta k = 0 \quad \text{Re } Z = \Gamma_{ln} / [\Gamma_{ln}^2 + (\omega_\mu + \omega - \omega_{ln})^2]. \quad (5)$$

Этот случай соответствует $k_\mu = k$ и полной компенсации доплеровского уширения.

$$2) \text{ При } \nu = \tilde{\nu} = 0, \quad \Delta k \bar{v} \gg \Gamma_{ln} \operatorname{Re} Z = (\sqrt{\pi} / \Delta k \bar{v}) \exp \{ - [(\omega_{\mu} - \omega + \omega_{ln}) / \Delta k \bar{v}]^2 \},$$

(6)

что соответствует появлению нескомпенсированного доплеровского уширения.

$$3) \text{ При } \nu \gg \Delta k \bar{v} \quad Z = [\Gamma_{ln} + \nu - i(\omega_{\mu} - \omega + \omega_{ln})]^{-1}$$

$$\operatorname{Re} Z [1 - \tilde{\nu} Z]^{-1} = (\Gamma_{ln} + \nu - \tilde{\nu}) / [(\Gamma_{ln} + \nu - \tilde{\nu})^2 + (\omega_{\mu} + \omega - \omega_{ln})^2].$$

(7)

Таким образом, если частота столкновений с изменением скорости $\nu \gg \Delta k \bar{v}$ (т. е. длина свободного пробега атомов $l = \bar{v} / \nu \ll \Delta k^{-1}$) и изменение скорости не сопровождается существенным сбоем фазы атомного осциллятора ($\nu - \tilde{\nu} \ll \Delta k \bar{v}$), имеет место снятие нескомпенсированного доплеровского уширения двухфотонного перехода (двухфотонный эффект Дике). Следовательно, использование эффекта Дике позволяет сохраняя все преимущества промежуточного резонанса, сужать ширину двухфотонного резонанса. Сужение сопровождается увеличением поглощения в максимуме в $\Delta k \bar{v} / (\Gamma_{ln} + \nu - \tilde{\nu})$ раз.

При оформлении работы в печать появилась статья [5], в которой подобное сужение наблюдалось в молекулярном газе NH_3 при двухфотонном поглощении излучения двух CO_2 -лазеров, генерирующих на различных колебательно-вращательных переходах. Изменение скорости молекул NH_3 с малым сбоем фазы осуществлялось за счет добавления буферного инертного газа Ne.

Институт физики
им. Л.В.Киренского
Академии наук СССР
Сибирское отделение

Поступила в редакцию
8 октября 1976 г.

Литература

- [1] Т.Я.Попова, А.К.Попов, С.Г.Раутиан, А.А.Феоктистов. ЖЭТФ, 57, 444, 1969.
- [2] Т.Я.Попова, А.К.Попов, С.Г.Раутиан, Р.И.Соколовский. ЖЭТФ, 57, 850, 1969.
- [3] F. Viraben, E. Giacobino, G. Grinberg. Phys. Rev., 12A, 2444, 1975.
- [4] В.И.Баранцов, Л.Т.Болотских, А.К.Попов. ЖЭТФ, 66, 866, 1974.
- [5] W. K. Bischel, P. J. Kelly, C. K. Rhodes. Phys. Rev., 13A, 1829, 1976.