

ОПТИЧЕСКАЯ НУТАЦИЯ НА КОМБИНАЦИОННО-АКТИВНОМ ПЕРЕХОДЕ

С.В.Аникеев, В.Н.Кулясов⁺, В.Б.Морозов¹⁾, А.Н.Оленин, В.Г.Тункин

Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова,
119899 Москва, Россия

⁺Государственный оптический институт им. С.И.Вавилова
194100 Санкт-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 19 мая 1999 г.

Зарегистрирована оптическая нутация на комбинационно-активном переходе $6P_{1/2} - 6P_{3/2}$ атомов таллия ($\omega_R/2\pi c = 7793 \text{ см}^{-1}$) при резонансном комбинационном возбуждении бигармоническим импульсным полем пикосекундной длительности, вызывающим существенное движение населенности. Оптическая нутация проявлялась в осциллирующем характере зависимости энергии антистоксова рассеяния пробных импульсов, следующих с фиксированной задержкой, от произведения энергий возбуждающих импульсов. Вследствие динамического эффекта Штарка, уменьшающего частоту исследуемого перехода, резонансные условия возбуждения реализовывались при отрицательных начальных отстройках частоты комбинационного возбуждения от резонанса. На основании сравнения экспериментальных данных с расчетом была оценена величина сечения комбинационного рассеяния исследуемого перехода.

PACS: 42.65.-k

1. При быстром, в масштабе времен релаксации, возбуждении оптических переходов резонансным или близким к резонансному полем временная эволюция двухуровневой системы имеет характер регулярных осцилляций разности населенности и поляризации (оптическая нутация). В случае дипольно запрещенных переходов возбуждение может производиться по двухфотонной ($\omega_1 + \omega_2 = \omega_R$) или комбинационной ($\omega_1 - \omega_2 = \omega_R$) схемах, где ω_1, ω_2 - частоты лазеров, а ω_R - частота исследуемого перехода.

При двухфотонном возбуждении перехода $3S - 4D$ атомов натрия оптическая нутация наблюдалась в [1] путем регистрации модуляции люминесценции с уровня $4D$ при ненулевой отстройке от резонанса, когда период нутации был меньше времен релаксации. В [2] наблюдалась нутация при возбуждении двухфотонного колебательно-вращательного перехода молекулы NH_3 импульсами с близкими частотами и различными интенсивностями. Отстройка от частоты резонанса 294 МГц компенсировалась за счет динамического эффекта Штарка. По утверждению автора работы, наблюдавшиеся биения интенсивности более слабого пучка, прошедшего через кювету с молекулами NH_3 , соответствовали периодической модуляции инверсии. Существенно, что в [1, 2] применялась встречная геометрия возбуждающих пучков, которая позволяла компенсировать доплеровский сдвиг.

В случае комбинационного возбуждения доплеровский сдвиг не компенсируется. При этом для относительно высокочастотных переходов время доплеровской дефазировки T_2^* может быть достаточно малым вплоть до ~ 1 нс. Универсальным методом, обеспечивающим безусловное выполнение условия когерентности возбуждения

¹⁾ e-mail: morozov@picarl1.ilc.msu.su

при регистрации нутации, является использование возбуждающих импульсов коротче времен T_1 , T_2 и T_2^* . В [3] обсуждалась возможность экспериментальной схемы, где регистрировалась бы зависимость энергии когерентного антистоксова (стоксова) рассеяния пробного импульса, следующего через среду с фиксированной задержкой, как функция произведения энергий возбуждающих импульсов.

В газовых средах выполнение условия когерентности возбуждения обеспечивается, как правило, при использовании пикосекундных импульсов. В силу малости сечения комбинационного рассеяния для получения существенного движения населенности необходимо использовать достаточно мощные пикосекундные импульсы. При этом становится значительным проявление динамического эффекта Штарка. Спектральные проявления этого эффекта при возбуждении комбинационно-активных переходов исследовались в [4, 5].

В данной работе оптическая нутация регистрировалась на комбинационно-активном переходе атомов таллия в условиях резонансного бигармонического возбуждения импульсами пикосекундной длительности, сопровождающегося существенным движением населенности. Динамический эффект Штарка проявлялся в существенной "асимметрии" характера нутации при изменении знака начальной отстройки частоты комбинационного возбуждения ($\omega_1 - \omega_2$) от резонанса ω_R .

2. В качестве возбуждающих использовались одиночные пикосекундные импульсы лазера на красителе (30 пс, $\lambda_1 \approx 0.582$ мкм, энергия 0.75 мДж) и Nd:YAG-лазера (30 пс, $\lambda_2 = 1.064$ мкм, максимальная энергия 5 мДж), а в качестве зондирующих – следующие с фиксированной задержкой одиночные импульсы второй гармоники (25 пс, $\lambda_p = 0.532$ мкм, 0.5 мДж). Излучения возбуждающих и зондирующего импульсов коллимировались в пучки диаметром ≈ 1 мм (по уровню $1/e$ интенсивности) и вводились в кювету с парами таллия длиной 15 мм, нагретую до температуры 950 К. Кювета наполнялась буферным газом неоном с давлением 3 торр при комнатной температуре.

Для уменьшения эффекта усреднения сигнала по профилю возбуждающих пучков, приводящего к сглаживанию нутаций, на расстоянии 6 см от выходного окна кюветы на оси пучков помещалась диафрагма диаметром 0.3 мм. Излучения возбуждающих импульсов, прошедшие через диафрагму, отделялись от антистоксова сигнала ($\lambda_A \approx 0.376$ мкм) и их энергии W_1 и W_2 измерялись фотодетекторами. В процессе регистрации нутации энергия W_1 возбуждающего импульса с $\lambda_1 \approx 0.582$ мкм была фиксированной, а энергия W_2 возбуждающего импульса с $\lambda_2 = 1.064$ мкм изменялась с помощью вращателя поляризации и призмы Глана. В качестве вращателя поляризации, не вызывающего сноса пучка, использовалась пластина из плавленого кварца, сдавливаемая в направлении, перпендикулярном оси пучков. Антистоксово излучение, прошедшее через двойной дифракционный монохроматор, регистрировалось фотоумножителем.

Величина фиксированной задержки 140 пс определялась следующими соображениями. Во-первых, она должна быть больше длительности возбуждающих импульсов. Во-вторых, за время задержки не должно происходить заметного уменьшения когерентного сигнала. При данной плотности буферного газа неона время столкновительной дефазировки составляет 9.3 нс [6], и она может не приниматься в расчет. Более существенен спад сигнала вследствие доплеровской дефазировки, время которой при температуре 950 К составляет 1.1 нс [6], а также в результате интерферен-

ции сверхтонких компонент исследуемого перехода $6P_{1/2} - 6P_{3/2}$, различающихся по частоте на 0.0175 см^{-1} , что приводит к квантовым биениям в импульсном отклике с периодом 1.9 нс [6]. Таким образом, на времени задержки 140 пс перечисленные факторы проявляются несущественно и не учитывались при рассмотрении.

3. Экспериментально измеренные зависимости энергии антистоксова излучения W_A от произведения энергий возбуждающих импульсов $W_1 W_2$ при различных начальных отстройках $\Delta\omega_0$ показаны на рис.1. Диапазон значений $W_1 W_2$ соответствует изменению W_2 в пределах $0 \div 400 \text{ мкДж}$ при фиксированном среднем значении $W_1 = 10 \text{ мкДж}$. Зависимости на рис.1 нормированы на максимальное значение W_A на рис.1с. Начальная отстройка определяется как $\Delta\omega_0 = (\omega_1 - \omega_2) - \omega_R$, то есть это отстройка, имеющая место при малых энергиях W_1 и W_2 , при которых можно пренебречь штарковским сдвигом. Кружками обозначены средние значения антистоксова сигнала.

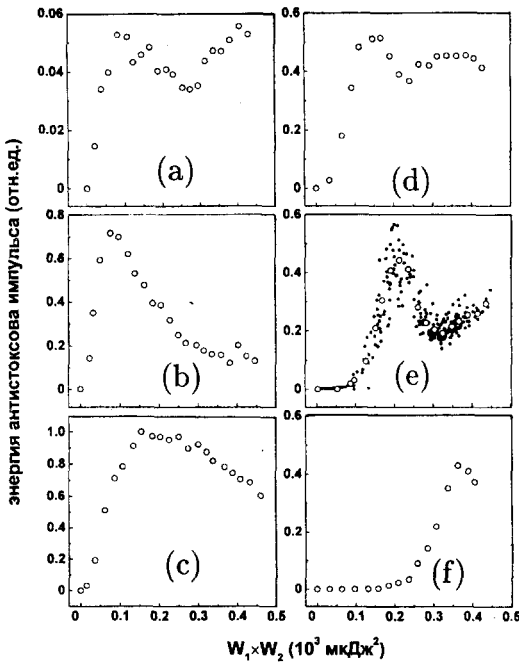


Рис.1. Экспериментальные зависимости энергии антистоксова рассеяния W_A от произведения энергии возбуждающих импульсов $W_1 W_2$ при различных начальных отстройках $\Delta\omega_0$: а) $\Delta\omega_0 = 0 \text{ см}^{-1}$; б) -1.4 см^{-1} ; в) -2.4 см^{-1} ; д) -3.2 см^{-1} ; е) -4.2 см^{-1} ; ф) -5.6 см^{-1}

В первую очередь можно отметить, что амплитуда сигнала увеличивается при переходе от нулевой начальной отстройки $\Delta\omega_0$ (рис.1а) к $\Delta\omega_0 = -1.4 \text{ см}^{-1}$ (рис.1б) и затем к $\Delta\omega_0 = -2.4 \text{ см}^{-1}$ (рис.1с). Одновременно образуются характерные подъем и спад сигнала, наиболее четко видные на рис.1б. Положение максимума на рис.1б,с смещается с ростом $|\Delta\omega_0|$ в сторону больших значений $W_1 W_2$. При дальнейшем росте $|\Delta\omega_0|$ вершина становится почти плоской (-2.4 см^{-1} , рис.1с), а затем в центре ее появляется провал (-3.2 см^{-1} , рис.1д), положение минимума которого с ростом $|\Delta\omega_0|$ также смещается в сторону больших значений $W_1 W_2$ (-4.2 см^{-1} , рис.1е). При этом с увеличением $|\Delta\omega_0|$ сигнал появляется с увеличивающимся сдвигом по шкале $W_1 W_2$ (рис.1е,ф). При изменении же $\Delta\omega_0$ от нуля в сторону положительных значений сигнал быстро спадает по величине.

В качестве примера на рис.1е, одновременно со средними значениями, точками показаны и результаты неусредненных измерений в каждой лазерной вспышке. Име-

ется ряд обстоятельств, затрудняющих регистрацию большего числа периодов нутации. Разброс экспериментальных точек, обусловленный флуктуациями импульсов, снижает контраст наблюдения нутации, что сильнее сказывается при росте фазы нутации. При этом сильнее сказывается и сглаживание нутации при усреднении по площади диафрагмы. Кроме того, достигавшаяся в экспериментах плотность мощности соответствовала напряженности светового поля до $2.5 \cdot 10^6$ В/см. При этих полях начинают проявлять себя эффекты самовоздействия в оптических элементах, не исключены и другие нелинейно-оптические эффекты, искажающие картину нутации.

4. Уравнения Блоха для обобщенной двухуровневой системы в поле бигармонической накачки во вращающейся системе координат в пренебрежении процессами дефазировки [7, 8]

$$d\rho/dt = \Omega \times \rho, \quad (1)$$

где $\rho = (u, v, w)$ – вектор Блоха, u, v – синфазная и квадратурная компоненты поляризации, w – нормированная разность населенностей нижнего и верхнего уровней, $\Omega = (-\gamma A_1 A_2, 0, \Delta\omega)$, где $\Delta\omega$ – отстройка частоты возбуждения от частоты комбинационного резонанса, $\gamma A_1 A_2$ – частота Раби для комбинационного возбуждения при $\Delta\omega = 0$ (фазовая модуляция возбуждающих импульсов отсутствует и медленно меняющиеся амплитуды A_1, A_2 действительны).

Движение вектора Блоха под действием возбуждающих импульсов усложняется за счет действия динамического эффекта Штарка, который сдвигает частоту резонанса ω_R на $\Delta\omega_{St} = (\Delta\alpha_1 A_1^2 + \Delta\alpha_2 A_2^2)/4\hbar$ [9], где $\Delta\alpha_1, \Delta\alpha_2$ – разности поляризуемостей верхнего и нижнего уровней для волн ω_1, ω_2 . Таким образом, полная отстройка от комбинационного резонанса определяется выражением

$$\Delta\omega = \Delta\omega_0 + \Delta\omega_{St} = (\omega_1 - \omega_2) - \omega_R + \Delta\omega_{St}. \quad (2)$$

Форма импульсов предполагалась гауссовой: $A_{1,2} = A_{1,2}^0 \exp(-4t^2/\tau_P^2)$, где τ_P – длительность импульсов на уровне $1/e$. Расчет проводился для случая плоских волн при очевидных начальных условиях: $u_0 = 0, v_0 = 0, w_0 = -1$.

5. В соответствии со схемой эксперимента с помощью приведенной модели (1), (2) рассчитывалось положение вектора Блоха после прохождения возбуждающих импульсов с учетом измеренного экспериментально штарковского смещения; при этом энергия импульса на антистоксовой частоте W_A находилась как величина, пропорциональная квадрату проекции вектора Блоха на плоскость ($w = 0$). На рис.2а показан результат расчета зависимости W_A от $W_1 W_2$ при различных $\Delta\omega_0$, передающий общий характер нутации в условиях проявления штарковского сдвига. Поскольку поляризуемость атома на верхнем уровне превышает поляризуемость на нижнем, частота исследуемого перехода сдвигается в сторону ее уменьшения в соответствии с временной формой возбуждающих импульсов. Экспериментально измеренный нами аддитивный вклад в смещение частоты перехода, вносимый каждым из возбуждающих импульсов, составлял 0.32 см^{-1} ($W_1 = 8 \text{ мкДж}$) и 0.67 см^{-1} ($W_2 = 70 \text{ мкДж}$), что соответствует значениям разностей поляризуемостей $\Delta\alpha_1 = 100(30) \cdot 10^{-24} \text{ см}^3$, $\Delta\alpha_2 = 25(8) \cdot 10^{-24} \text{ см}^3$.

Измерявшиеся в эксперименте зависимости энергии антистоксова сигнала W_A от произведения энергий возбуждающих импульсов $W_1 W_2$ при фиксированных начальных отстройках $\Delta\omega_0$ соответствуют срезу приведенной на рис.2а трехмерной

зависимости в плоскости $\Delta\omega_0 = \text{const}$. На рис.2b приводится результат расчета с тем же масштабом, что и на рис.2а, но без учета эффекта Штарка. В данном случае картина нутации симметрична относительно плоскости $\Delta\omega_0 = 0$: при $\Delta\omega_0 = 0$ система с ростом $W_1 W_2$ последовательно проходит через состояние максимальной поляризации (вектор Блоха лежит в горизонтальной плоскости), максимальной инверсии (вектор Блоха направлен вверх вдоль оси w), затем снова максимальной поляризации и, наконец, достигает исходного состояния. Область максимальной поляризации соответствует вершине трехмерной зависимости, а ее общая ширина определяется удвоенной частотой Раби [10, 11]. Область, обозначенная на рис.2b стрелкой, является областью инверсии.

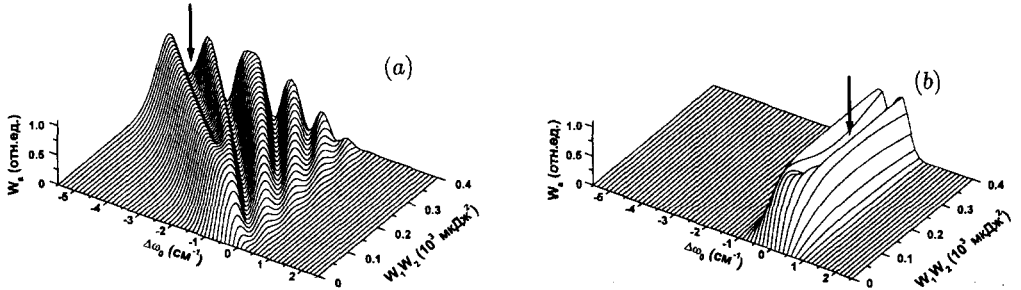


Рис.2. Расчет энергии антистоксова рассеяния W_A в зависимости от начальной отстройки $\Delta\omega_0$ и произведения энергии возбуждающих импульсов $W_1 W_2$ на основе модели (1), (2) с учетом (а) и без учета (б) динамического эффекта Штарка

Штарковский сдвиг вносит особенности в характер нутации. Даже при точной настройке на резонанс ($\Delta\omega_0 = 0$) при малых W_1 и W_2 импульс лазера на красителе с энергией $W_1 = 10$ мкДж приводит к отстройке из-за штарковского сдвига $\Delta\omega \approx 0.4 \text{ см}^{-1}$, вследствие чего амплитуда сигнала мала. При $\Delta\omega_0 > 0$ штарковский сдвиг еще больше увеличивает отстройку $\Delta\omega$ и сигнал быстро падает по величине, что подтверждается экспериментом. При $\Delta\omega_0 < 0$ выполнение условия $\Delta\omega_0 + \Delta\omega_{St} = 0$ при соответствующих амплитудах A_1, A_2 означает, что штарковский сдвиг компенсирует отрицательную начальную отстройку и вводит систему в резонанс. Чем больше $|\Delta\omega_0|$, тем при больших амплитудах полей реализуются условия резонанса. Картина нутации оказывается "скошенной" к оси $\Delta\omega_0$, вытягиваясь вдоль оси, задаваемой условием $\Delta\omega_0 + \Delta\omega_{St} = 0$, причем, с ростом $|\Delta\omega_0|$ сигнал появляется с увеличивающимся сдвигом по шкале $W_1 W_2$. В диапазоне значений $\Delta\omega_0$ от 0 примерно до -2 см^{-1} амплитуда нутации нарастает, доходя до области максимальной поляризации $u^2 + v^2 = 1$. Положение же максимума с ростом $|\Delta\omega_0|$ смещается в сторону больших значений $W_1 W_2$. При этом система еще не заходит в область инверсии, обозначенную на рис.2а стрелкой (вектор Блоха, достигнув почти горизонтального положения, движется затем вниз). При дальнейшем увеличении $|\Delta\omega_0|$ на вершине трехмерной зависимости образуется провал, обозначенный на рис.2а стрелкой, соответствующий переходу системы в область инверсии, где вектор Блоха оказывается в верхней полусфере. Глубина провала нарастает с увеличением $|\Delta\omega_0|$, но не доходит до дна при достигавшихся в эксперименте $W_1 W_2$. Подобный же характер нутации демонстрировали и экспериментально наблюдавшиеся зависимости.

Компьютерное моделирование нутации показывает, что описанные особенности оптической нутации оказываются очень чувствительными к параметрам модели: разностям поляризуемостей $\Delta\alpha_1$, $\Delta\alpha_2$ и коэффициенту γ в выражении для частоты Раби, пропорциональному сечению комбинационного рассеяния [12]. Это дало нам возможность на основании сравнения экспериментальных и расчетных зависимостей оценить величину сечения комбинационного рассеяния исследуемого перехода $d\sigma/d\Omega = 1.5(0.6) \cdot 10^{-27}$ см²/ср. Необходимо отметить, что, описывая основные качественные особенности наблюдавшейся нутации, использованная модель не обеспечивает, однако, полного соответствия, давая, в частности, бóльшую величину запаздывания сигнала по шкале $W_1 W_2$. Вероятно, это является следствием ее достаточной упрощенности.

6. Таким образом, в данной работе была зарегистрирована оптическая нутация при резонансном бигармоническом возбуждении комбинационно-активного перехода, приводящем к существенному, вплоть до инверсного, заселению верхнего уровня. Форма нутации определялась величиной начальной отстройки частоты бигармонического возбуждения от комбинационного резонанса, причем диапазон резонансного возбуждения вследствие динамического эффекта Штарка сдвигался в сторону отрицательных значений начальной отстройки.

Авторы выражают благодарность К.Н.Драбовичу за плодотворные обсуждения и ценные замечания при подготовке данного письма, А.В.Андрееву, Т.М.Ильиной и С.Ю.Никитину за обсуждение результатов. Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант 96-02-18837-а).

-
1. M. Bassini, F. Biraben, B. Gagnac, and C. Crynberg, *Optics Commun.* **21**, 263 (1977).
 2. M. M. T. Loy, *Phys. Rev. Lett.* **36**, 1454 (1976).
 3. К.Н.Драбович, Л.М.Кочарян, Г.Н.Слепченко, *Изв. АН СССР, сер. физич.* **45**, 1532 (1981).
 4. L. A. Rahn, R. L. Farrow, M. L. Koszykowski, and P. L. Mattern, *Phys. Rev. Lett.* **45**, 620 (1980).
 5. M. Pealat, M. Lefebvre, J.-P. Taran, and P. L. Kelley, *Phys. Rev.* **A38**, 1948 (1988).
 6. Ф.Ш.Ганиханов, В.Н.Кулясов, И.Г.Коновалов и др., *Опт. и спектр.* **70**, 483 (1991).
 7. Л.Аллен, Дж.Эберли, *Оптический резонанс и двухуровневые атомы*, М.: Мир, 1978, с.62 [L. Allen, J. H. Eberly, *Optical resonance and two-level atoms*, John Wiley and Sons, 1975].
 8. В.И.Аникин, К.Н.Драбович, А.Н.Дубовик, *ЖЭТФ* **72**, 1727 (1977).
 9. В.С.Бутылкин, А.Е.Каплан, Ю.Г.Хронопуло, Е.И.Якубович, *Резонансные взаимодействия света с веществом*, М.: Наука, 1977, с.24.
 10. Н.Б.Делоне, В.П.Крайнов, *Атом в сильном световом поле*, М.: Энергоатомиздат, 1984, с.51.
 11. В.М.Акулин, Н.В.Карлов, *Интенсивные резонансные взаимодействия в квантовой электронике*, М.: Наука, 1987, с.21.
 12. С.А.Ахманов, Н.И.Коротеев, *Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света*, М.: Наука, 1981, с.225.