

УДК 535.21, 533.5, 537.228.5

А. А. Рожин, Д. В. Ледовских, Н. Н. Рубцова

Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН
пр. Акад. Лаврентьева, 13, Новосибирск, 630090, Россия

Новосибирский государственный университет
ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия

E-mail: ant.rozhin@gmail.com

КОГЕРЕНТНЫЕ НЕСТАЦИОНАРНЫЕ ПРОЦЕССЫ В ГАЗЕ $^{13}\text{CH}_3\text{F}$, СФОРМИРОВАННЫЕ СТУПЕНЧАТЫМ ВКЛЮЧЕНИЕМ ЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ПОЛЯ

Исследованы сигналы нестационарных оптических нутаций и затухания свободной поляризации, возникающие в газе $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ (вращательный переход R(4,3) колебательной полосы 0–1 моды ν_3) при ступенчатом включении электрического поля в присутствии резонансного излучения CO_2 лазера. В пределе малой интенсивности излучения на фоне сигнала оптических нутаций видны интерференционные пики затухания свободной поляризации; частота их появления пропорциональна напряженности электрического поля. Число наблюдаемых пиков затухания свободной поляризации уменьшается при нарастании интенсивности лазерного излучения, и в пределе больших интенсивностей сигнал затухания свободной поляризации становится неразличимым на фоне сигнала оптических нутаций. При высокой интенсивности лазерного излучения преобладает сигнал нестационарных оптических нутаций. Результаты расчетов находятся в качественном согласии с экспериментальными данными.

Ключевые слова: нестационарные оптические нутации, штарковское переключение уровней, затухание свободной поляризации.

Введение

Исследуются два типа когерентных переходных процессов, которые формируются одновременно на одном и том же колебательно-вращательном переходе в разреженном газе $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ (вращательный переход R(4,3) колебательной полосы 0–1 моды ν_3 , давление газа порядка 1 мТорр) методом переключения уровней за счет эффекта Штарка. Этот метод был впервые предложен в [1] и оказался полезным при исследовании нестационарных когерентных процессов в полярных газах низкого давления. Нами исследованы два вида когерентных откликов – нестационарные оптические нутации и затухание свободной поляризации [2]. Каждое из этих явлений формируется группами частиц с определенными значениями проекций скоростей на направление распространения лазерного излучения, и для

каждого из явлений существуют оптимальные условия наблюдения.

Цель данной работы – выявить зависимость амплитуды и формы когерентных откликов от напряженности электрического поля и интенсивности лазерного излучения, а также провести расчеты, описывающие основные свойства наблюдаемых нестационарных сигналов.

Техника эксперимента

Для формирования когерентных откликов использовано излучение непрерывного CO_2 лазера (I на рис. 1), работающего на линии 9P(32) в центре перехода R(4,3) колебательной полосы 0–1 моды ν_3 молекулы $^{13}\text{CH}_3\text{F}$. Настройка лазерного излучения на центр линии исследуемого перехода $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ проводилась по резонансу насыщенного поглощения во вспомогательной ячейке 2, ре-

гистрируемого фотосопротивлением D_1 , с помощью блока управления током в катушках магнестрикции на арматуре лазера. Линейная поляризация излучения была ориентирована параллельно напряженности электрического поля, создаваемого в рабочей ячейке внутренними электродами. После коллимации до необходимого размера линзовым коллиматором пучок лазерного излучения проходил в рабочую ячейку 3 с внутренними электродами, на которые от генератора 4 подавалось ступенчатое по времени, регулируемое по амплитуде электрическое напряжение. Для предотвращения насыщения детектора использовалась часть прошедшего через рабочую ячейку излучения, отделенная пластинкой из фтористого бария и зарегистрированная фотосопротивлением D_2 (HgCdTe при температуре жидкого азота). Фронт включения электрического ступенчатого поля не превышал 20 нс. Полоса усилителя сигнала от фотосопротивления D_2 была не менее 20 МГц. Для регулировки интенсивности лазерного излучения использовалась пара поляризаторов МЛР-1 (германиевые пластины под углом Брюстера), первый из которых P1 мог поворачиваться вокруг своей оси на определенный угол для ослабления интенсивности, а второй P2 был неподвижным. Временная форма когерентных откликов записывалась с помощью запоминающего осциллографа Tektronix и затем анализировалась на компьютере.

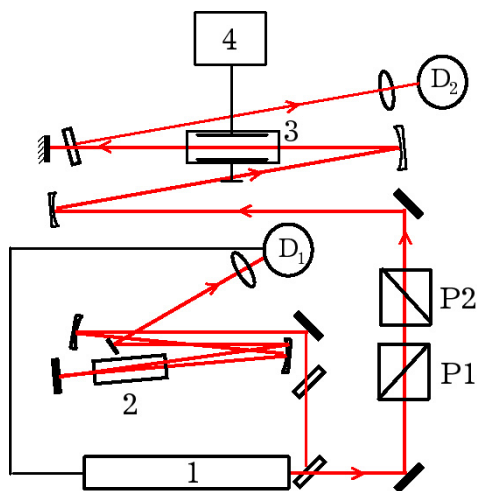


Рис. 1. Схема эксперимента по исследованию нестационарных оптических нутаций и затухания свободной поляризации методом ступенчатого включения электрического поля

Моделирование сигналов

Отклики среды можно найти из уравнения Даламбера:

$$\frac{\partial^2 E_s}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E_s}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 P}{\partial t^2}. \quad (1)$$

При решении уравнения (1) использовались стандартные приближения заданного поля, а также медленно меняющихся фаз и амплитуд поляризации. В правой части уравнения – макроскопическая поляризация среды, наведенная излучением лазера. Она представляет собой микроскопическую поляризацию среды, суммарную для всех переходов с различными магнитными квантовыми числами m и усредненную по проекциям скоростей v_z с распределением Максвелла $f(v_z)$ на направление волнового вектора излучения согласно формуле

$$P = \sum_m \int P(v_z) f(v_z) dv_z.$$

Для нахождения микроскопической поляризации среды $P(v_z)$

$$P(v_z) = Sp\{\rho \cdot d\} = 2 \operatorname{Re} \rho_{12} d$$

решалась система уравнений для элементов матрицы плотности ρ . При этом колебательно-вращательный переход R(4,3) моделировался системой из девяти невзаимодействующих двухуровневых систем (правила отбора по магнитному квантовому числу $\Delta m = 0$), т. е. в приближении отсутствия деполаризующих столкновений. Процессы релаксации учитывались феноменологически путем введения скорости релаксации Γ , одинаковой для диагональных и недиагональных элементов матрицы плотности. Лазерное излучение моделировалось плоской волной, а электрическое поле в рабочей ячейке считалось идеально однородным. В качестве начальных условий уравнений матрицы плотности использовано стационарное решение, соответствующее состоянию насыщения перехода лазерным излучением без электрического поля. В решении использовано приближение вращающейся волны. Нестационарное решение для одного перехода $m-m$ имеет следующий вид:

$$v(t) = e^{-\Gamma t} (a \cos(st) + b \sin(st)) + c, \quad (2)$$

где c – стационарное решение в присутствии электрического поля, а остальные слагаемые представляют собой нестационарный когерентный отклик. В формулу (2) входят следующие величины: $s = \{(\delta + m \cdot \epsilon)^2 + \chi^2\}^{1/2}$ – обобщенная частота Раби в присутствии

электрического поля и при наличии отстройки частоты лазерного излучения относительно центра перехода, m – магнитное число, ε – сдвиг уровней из-за эффекта Штарка для $m = 1$,

$$a = n_0 \chi \Gamma \times \left(\frac{1}{\Gamma^2 + \delta^2 + \chi^2} - \frac{1}{\Gamma^2 + (\delta + m\varepsilon)^2 + \chi^2} \right), \quad (3)$$

$$b = \frac{n_0 \chi m \varepsilon}{\Gamma^2 + \delta^2 + \chi^2} \times \frac{\Gamma^2 (\delta + m\varepsilon) - \delta((\delta + m\varepsilon)^2 + \chi^2)}{\Gamma^2 + (\delta + m\varepsilon)^2 + \chi^2} \frac{1}{s}. \quad (4)$$

В этих формулах $\frac{\mu E_{\text{las}}}{\hbar} = \chi$ – частота Раби; μ – матричный элемент дипольного момента перехода, зависящий от квантовых чисел J , m [3]; E_{las} – напряженность электрического поля электромагнитной волны, $\delta = \omega - \omega_0 - kv_z$ – отстройка частоты лазерного излучения с учетом эффекта Доплера.

В коэффициентах a и b в формулах (3)–(4) виден вклад двух видов частиц: находящихся в резонансе при $kv_z = 0$ и тех, для которых штарковский сдвиг компенсируется проекцией скорости.

Для нахождения временной формы когерентных откликов необходимо провести суммирование по всем переходам (от $m = -4$ до $m = 4$) и усреднение по скоростям с распределением Максвелла. Эта часть расчетов проведена численно с использованием программы Mathcad.

Результаты

Предел низкой интенсивности лазерного излучения. Для частиц с нулевой проекцией скорости v_z модифицированная частота Раби $(\chi^2 + (m\varepsilon)^2)^{1/2}$ может быть разложена по малому параметру χ . В пределе низкой интенсивности лазерного излучения основную роль начинают играть частотные отстройки в электрическом поле, пропорциональные $m\varepsilon$ и обусловленные эффектом Штарка.

Эквидистантность штарковских компонент спектра приводит к периодической фазировке сигналов затухания свободной поляризации (ЗСП), сформированных разными переходами [4]. Это проявляется в виде пе-

риодически расположенных пиков излучения. Сигналы ЗСП наблюдаются на фоне плавно изменяющейся кривой оптических нутаций, знак этого сигнала соответствует росту поглощения, поскольку сигнал сформирован частицами, входящими в резонанс с излучением

На рис. 2 показаны экспериментальные (верхний ряд) и рассчитанные (нижний ряд) сигналы когерентных откликов для двух значений напряженности электрического поля E_{St} . На качественном уровне расчет верно воспроизводит основные свойства сигналов. Видно, что частота появления пиков ЗСП возрастает с ростом напряженности электрического поля. На расчетных кривых сигналы ЗСП заметно более узкие и имеют большую амплитуду, чем на экспериментальных кривых. Это объясняется тем, что расчеты выполнены для приближения плоских волн, в то время как в эксперименте имеется распределение интенсивности излучения по радиусу. Кроме того, в расчетах электрическое поле считается однородным, а в эксперименте внутренние электроды имеют конечные размеры, и поле плоского конденсатора становится неоднородным из-за краевых эффектов. Оба фактора приводят к снижению амплитуды пиков ЗСП и к их уширению.

Изменение формы сигнала по мере нарастания интенсивности. В этом случае частота Раби χ сравнивается с величинами смещения уровней из-за эффекта Штарка $m\varepsilon$, и даже начинает превосходить их. Можно ожидать, что более заметный вклад в когерентный отклик начнет давать сигнал оптических нутаций.

Изменение формы когерентных откликов по мере нарастания интенсивности резонансного излучения показано на рис. 3. Экспериментальные кривые зарегистрированы при напряженности электрического поля 160 В/см для нескольких значений интенсивности излучения. Рост интенсивности лазерного излучения приводит к заметному увеличению сигнала оптических нутаций (отрицательный сигнал на рис. 3). Что касается пиков ЗСП, то они становятся менее контрастными по мере роста интенсивности.

Как и ранее, расчеты проводились в приближении плоских волн излучения и для абсолютно однородного электрического поля. Расчеты подтверждают нарастание ам-

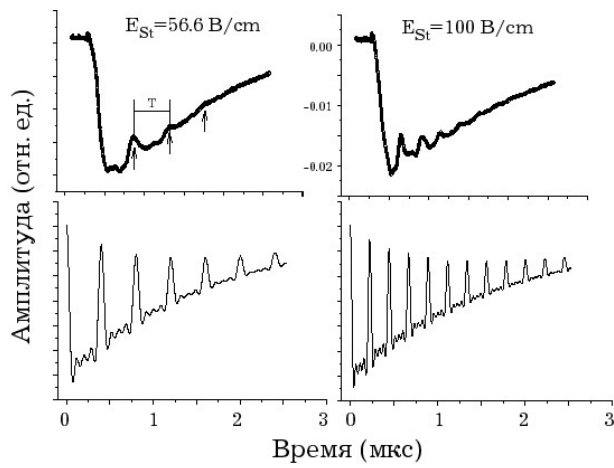


Рис. 2. Когерентные отклики в пределе малой интенсивности излучения (вверху – эксперимент, внизу – расчет). Направленные вверх пики соответствуют периодической фазировке сигналов ЗСП, частота их появления растет с ростом напряженности электрического поля

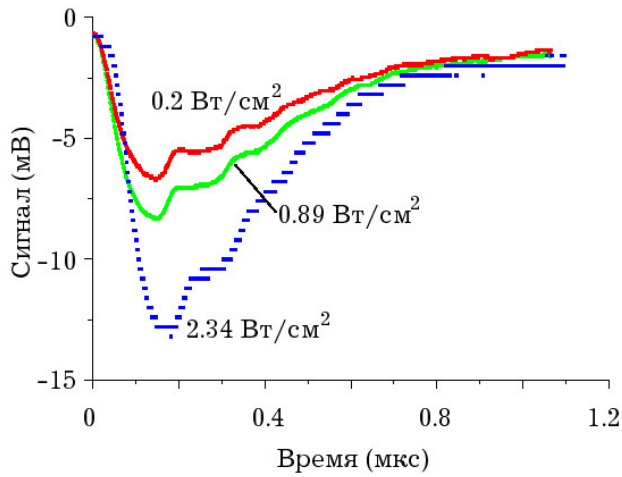


Рис. 3. Нарастание сигнала оптических нутаций с увеличением интенсивности излучения. Количество наблюдаемых пиков ЗСП уменьшается

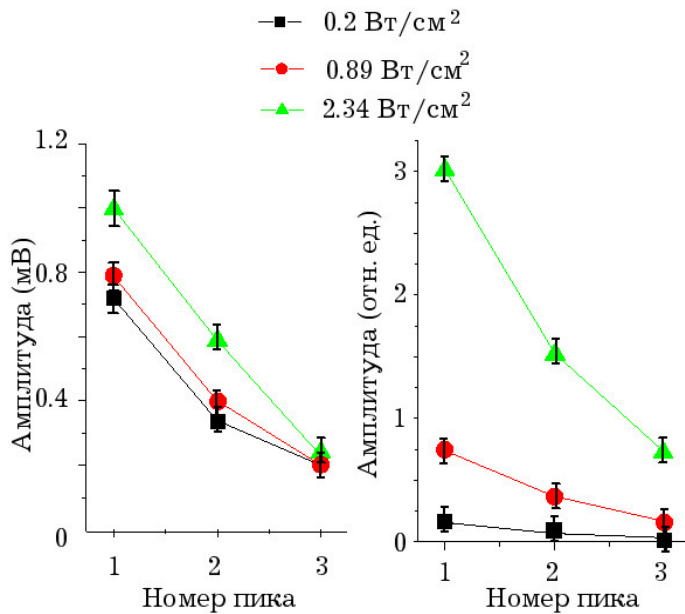


Рис. 4. Затухание пиков ЗСП в зависимости от интенсивности амплитуды оптических нутаций

плитуды оптических нутаций, а также более быстрое затухание пиков ЗСП.

На рис. 4 показано расчетное (справа) и экспериментальное (слева) затухание амплитуды интерференционных пиков ЗСП в кинетических кривых когерентных откликов. Погрешность определения амплитуды для эксперимента и расчета определялась неточностью выбора базовой линии пиков ЗСП. Амплитуда пика как функция его номера (нарастающего от момента включения ступеньки электрического поля) возрастает с увеличением интенсивности лазерного излучения (см. рис. 4).

Предел высокой интенсивности лазерного излучения. В пределе высоких интенсивностей лазерного излучения область резонансных излучению проекций скорости частиц v_z становится очень большой. Это настолько увеличивает затухание пиков ЗСП, что они становятся практически неразличимыми на фоне сигнала оптических нутаций. Эксперименты для высоких интенсивностей (до 150 Вт/см^2) лазерного излучения [5] позволили определить дипольный момент перехода по переднему фронту сигнала оптических нутаций.

На рис. 5 показаны результаты расчетов для напряженности электрического поля 42 В/см в предположении его однородности и для плоских волн излучения разных интенсивностей. Лишь для низкой интенсивности можно различить один пик ЗСП, при более высоких интенсивностях сигналы ЗСП неразличимы на фоне преобладающего сигнала оптических нутаций. Видно, что с ростом интенсивности укорачивается передний фронт и возрастает скорость затухания сигнала.

Обсуждение результатов

Метод переключения уровней (в данном случае за счет эффекта Штарка) может обеспечить некоторые преимущества по сравнению с традиционным методом формирования когерентных переходных процессов путем «включения» лазерного излучения в виде ступеньки. Действительно, для регистрации когерентных переходных процессов эта ступенька должна обеспечивать время резкого изменения взаимодействия излучения с веществом, гораздо более короткое, чем все времена релаксации. Обеспечить крутой фронт электрического поля

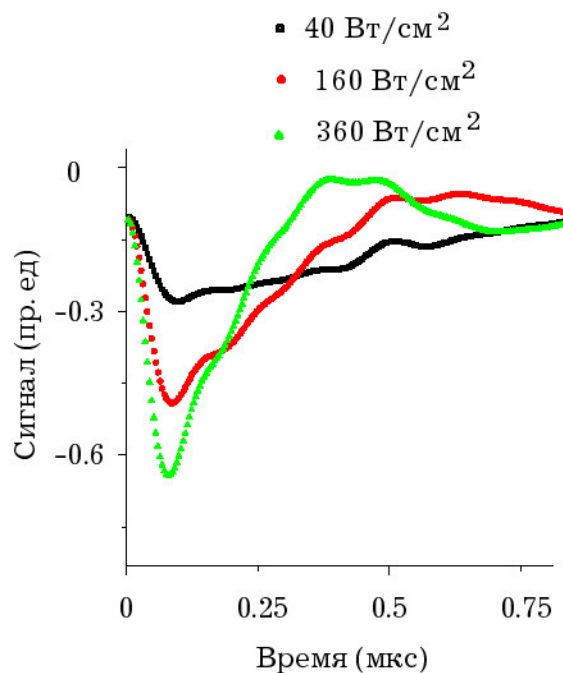


Рис. 5. В пределе высокой интенсивности излучения преобладает сигнал оптических нутаций, с ростом интенсивности укорачивается передний фронт и скорость затухания сигнала

значительно проще, чем фронт оптического сигнала. Кроме того, присутствие лазерного излучения обеспечивает возможность гетеродинного приема сигналов ЗСП, которые излучаются на частоте, смещенной за счет эффекта Штарка. Например, типичные значения пиков ЗСП, зарегистрированных в данной работе (единицы мВ) соответствуют мощности когерентного излучения среды на уровне 10^{-12} Вт . Эта техника, несомненно, выигрышна для газов, обладающим заметным эффектом Штарка, в том числе и для переходов с относительно малыми значениями матричных элементов дипольных моментов.

С другой стороны, как показывают результаты экспериментов и расчетов, сигналы когерентных откликов, сформированных таким методом, чрезвычайно чувствительны к интенсивности непрерывного излучения и напряженности электрического поля. При традиционном способе генерации когерентных откликов для формирования ЗСП и оптических нутаций необходимы разные условия – отсутствие внешнего излучения для ЗСП и обязательное присутствие непрерывного излучения для нутаций. В данном же

случае оба явления формируются одновременно. Для наблюдения ЗСП необходима низкая интенсивность насыщающего излучения. С нарастанием интенсивности излучения начинает преобладать сигнал оптических нутаций.

Выводы

Расчеты, выполненные в приближении отсутствия деполяризующих столкновений, для плоских волн излучения и однородного электрического поля в основном правильно отражают основные зависимости когерентных откликов от интенсивности лазерного излучения и напряженности электрического поля. Для количественного сравнения теории с экспериментом необходим учет неоднородности электрического поля, а также поля излучения. Кроме того, влияние столкновений, в том числе деполяризующих, может оказаться существенным при переходе в область более высоких давлений, чем единицы Торр, использованные в данной работе.

Экспериментально исследованы сигналы нестационарных оптических нутаций и затухания свободной поляризации в газе $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ на вращательном переходе R(4,3) колебательной полосы 0–1 моды ν_3 . Показано, что в пределе малой интенсивности излучения на фоне сигнала оптических нутаций видны интерференционные пики затухания свободной поляризации; частота их появления пропорциональна напряженности электрического поля. Число наблюдаемых пиков ЗСП уменьшается при нарастании

интенсивности лазерного излучения, и в пределе больших интенсивностей сигнал затухания свободной поляризации становится неразличимым на фоне сигнала оптических нутаций. При высокой интенсивности лазерного излучения преобладает сигнал нестационарных оптических нутаций. Результаты расчетов находятся в качественном согласии с экспериментальными данными.

Список литературы

1. Brewer R. G., Shoemaker R. L. Photon Echo and Optical Nutation in Molecules // Phys. Rev. Lett., 1971, Vol. 27. P. 631.
2. Шумейкер Р. Когерентная инфракрасная спектроскопия нестационарных процессов // Лазерная и когерентная спектроскопия: Пер. с англ. М., 1982.
3. Насыров К. А., Шалагин А. М. Эффекты полевого расщепления уровней с большими значениями углового момента // ЖЭТФ. 1982. Т. 83. С. 1685.
4. Rubtsova N. N., Goldort V. G., Khvorostov E. B., Ledovskikh D. V. Beating in Free Polarization Decay // Laser Phys. Lett. 2008. Vol. 5. P. 197.
5. Rubtsova N. N., Khvorostov E. B., Vorona D. A., Reshetov V. A. Coherent Control over Optical Nonstationary Processes in Gases // Laser Phys. 2005. Vol. 15. P. 763.

Материал поступил в редколлегию 12.05.2011

A. A. Rozhin, D. V. Ledovskikh, N. N. Rubtsova

COHERENT TRANSIENTS IN A GAS $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ GENERATED BY STEP SWITCH OF ELECTRIC FIELD

Transient signals of optical nutations and free polarization decay arising in a gas $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ (rotational transition R(4,3) of vibration mode 0–1 ν_3) at the step-wise switch of electric field in the presence of resonant radiation of CO_2 laser are investigated. In the limit of low intensity of radiation the peaks of free polarization decay are observed; the frequency of their appearance is proportional to the electric field strength. The number of observable peaks of free polarization decay decreases at laser intensity growth, and free polarization decay signal becomes indistinguishable at a background of optical nutations at high laser intensity. At high laser intensity the signal of transient optical nutations dominates. Results of calculations are in qualitative agreement with experimental data.

Keywords: transient optical nutations, levels Stark switching, free polarization decay.