

КОГЕРЕНТНОЕ ГИПЕРКОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА НА АВТОИОНИЗАЦИОННЫХ СОСТОЯНИЯХ АТОМОВ, ВОЗБУЖДЕННЫХ В ЭЛЕКТРОРАЗРЯДНОЙ ПЛАЗМЕ

А.М.Желтиков, О.С.Ильясов, Н.И.Коротеев

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

Поступила в редакцию 20 июня 1991 г.

Зарегистрирован четырехфотонный нелинейно-оптический процесс в условиях резонанса гиперкомбинационного типа с переходом между автоионизационным и связанным состояниями атома меди. По форме спектра определены параметры Фано.

1. В статье представлены результаты экспериментов, в которых впервые в электроразрядной плазме зарегистрирован четырехфотонный нелинейно-оптический процесс, стартующий из возбужденного состояния атома меди и имеющий резонанс гиперкомбинационного типа с переходом между автоионизационным (АИ) и связанным состояниями. Обнаружена характерная асимметрия контура сигнала, обязанная своим происхождением интерференции состояний дискретного и непрерывного спектра. Приводится простая теория зарегистрированного процесса, позволяющая методом подгонки воспроизвести полученную экспериментально форму спектра сигнала четырехфотонного рассеяния на возбужденных состояниях атома меди с участием автоионизационного состояния, и определить таким образом параметры Фано.

2. Резонансы в спектре четырехфотонного рассеяния с участием автоионизационных состояний впервые наблюдались в работе ¹ в парах атомов металлов. Большое число работ посвящено исследованию влияния индуцированных лазерным излучением автоионизационно-подобных ² резонансов на эффективность многофотонных процессов в атомах (например, ^{3,4}).

В наших экспериментах исследовались возбужденные состояния атома меди в электроразрядной плазме активной среды лазера на парах меди. Изучался спектр когерентного антистоксова рассеяния света (КАРС), идущего по схеме $\omega_a = 2\omega_1 - \omega_2$, где ω_1 - фиксированная частота второй гармоники излучения лазера на Nd:YAG, ω_2 - частота излучения перестраиваемого лазера на растворе органического красителя. При этом имел место резонанс между частотой ω_a (длина волны $\lambda_a = 4674 \text{ \AA}$) и частотой перехода между автоионизационным состоянием $^4D_{5/2}$ и дискретным возбужденным состоянием $^4F_{5/2}^0$ атома меди (см. вставку к рис. 1). Отметим, что трехфотонный резонанс такого типа связан с гиперкомбинационным рассеянием на указанных состояниях; соответствующий четырехфотонный процесс принято называть схемой активной спектроскопии гиперкомбинационного рассеяния (АСГКР) ^{5,6}.

3. Схема эксперимента приведена на рис. 2. Возбужденные атомы меди образовывались в газоразрядной трубке лазера на парах меди. Для зондирования использовался наносекундный КАРС-спектрометр ⁵. В процессе электрического разряда в газоразрядной трубке заселяются возбужденные, в том числе и автоионизационные (АИ) состояния атома меди. АИ резонанс в спектре АСГКР исследовался как в узкополосном (ширина линии генерации

лазера на красителе $\Delta\omega_2 = 0,5 \text{ см}^{-1}$), так и широкополосном ($\Delta\omega_2 = 16 \text{ см}^{-1}$) варианте.

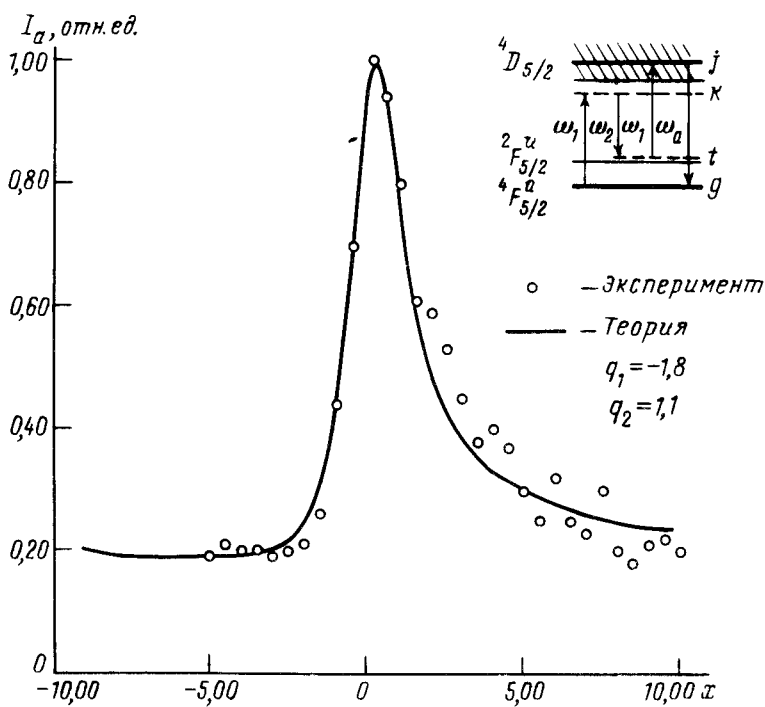


Рис. 1. Форма спектра сигнала АСГКР на атомах меди, возбужденных в электроразрядной плазме. На вставке показана схема исследуемого нелинейно-оптического процесса в случае резонанса гиперкомбинационного типа с переходом между автоионизационным и связанным состояниями

Исследована форма спектра, а также зависимость интенсивности сигнала АСГКР от времени задержки между возбуждением и зондированием в условиях резонанса с участием АИ состояния. Характерная форма автоионизационного резонанса в спектре АСГКР представлена (точками) на рис. 1.

4. Для расчета формы спектра четырехфотонного рассеяния на возбужденных состояниях атома меди воспользуемся известным выражением для нелинейной кубической восприимчивости ⁷:

$$\chi^{(3)} \sim \sum_{k,t,j} \frac{d_{gj}d_{jt}d_{tk}d_{kg}}{(\omega_{kg} - \omega_1)(\omega_{tg} - \omega_1 + \omega_2)(\omega_{jg} - \omega_a)}. \quad (1)$$

Здесь $d_{gj}d_{jt}d_{tk}$ и d_{kg} - матричные элементы дипольных моментов, при этом индекс g относится к начальному состоянию, k и t - к виртуальным состояниям, j - к автоионизационному состоянию.

В нашем случае имеет место квазирезонанс комбинационной частоты $\omega_1 - \omega_2$ частоте ω_{gt} перехода ${}^4F_{5/2}^0 - {}^2F_{5/2}^0$ (отстройка составляет 437 см^{-1} , рис. 1). Оставляя из суммы по t лишь один член с квазирезонансным знаменателем

$\omega_{tg} - \omega_1 + \omega_2 = \Delta\omega$, получаем:

$$\chi^{(3)} \sim \frac{1}{\Delta\omega} \sum_k \frac{d_{tk}d_{kg}}{(\omega_{kg} - \omega_1)} \int \frac{d_g(E)d_t(E)}{E - \hbar\omega_a} dE. \quad (2)$$

Аналогично ⁸ получаем выражение для $\chi^{(3)}$:

$$\chi^{(3)} \sim \frac{\pi N}{2\omega} d_g \psi_E d_{\psi_E t} \frac{q_1 q_2 - i(q_2 + q_1 - x)}{x - i}. \quad (3)$$

Здесь $N = \sum_k \frac{d_{tk}d_{kg}}{(\omega_{kg} - \omega_1)}$ (ввиду того обстоятельства, что исследуемый процесс четырехфотонного рассеяния стартует с возбужденного состояния атома меди, в выражении для N помимо суммирования по связанным состояниям предполагается интегрирование по состояниям непрерывного спектра); $x = \frac{E_t - \hbar\omega_a}{\pi|V_E|^2}$;

$$q_1 = \frac{\langle \Phi | d | \varphi_g \rangle}{\pi V_E^* \langle \psi_E | d | \varphi_g \rangle} \quad \text{и} \quad q_2 = \frac{\langle \Phi | d | \varphi_t \rangle}{\pi V_E^* \langle \psi_E | d | \varphi_g \rangle} - \text{параметры Фано } ^9;$$

φ_t, φ_g - волновые функции связанных состояний (в нашем случае φ_t - волновая функция состояния $^2F_{5/2}^0$); ψ_E - волновая функция состояния непрерывного спектра; Φ - волновая функция модифицированного дискретного состояния с энергией E_s ; V_E - недиагональный матричный элемент ^{9,10}.

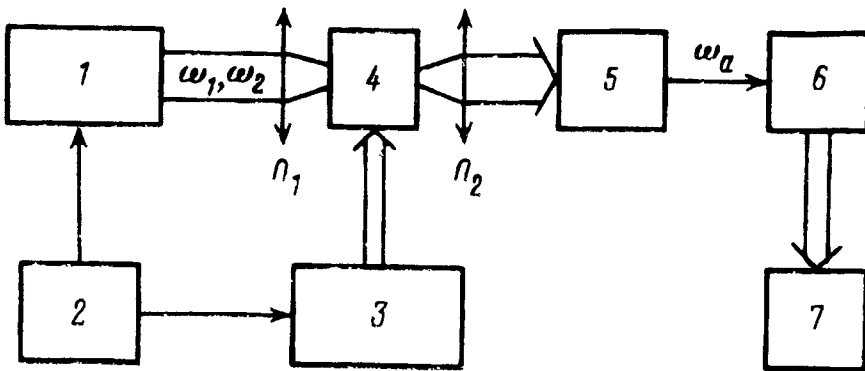


Рис. 2. Схема эксперимента: 1 - наносекундный КАРС-спектрометр; 2 - система синхронизации во время возбуждения и зондирования; 3 - источник возбуждения электроразрядной плазмы; 4 - газоразрядная трубка лазера на парах меди; 5 - монохроматор ДФС-24; 6 - многоканальный спектроанализатор; 7 - персональный компьютер

Сравнение данных эксперимента с результатами расчета формы спектра четырехфотонного рассеяния в соответствии с выражением (3) (интенсивность антистоксова сигнала $I_a \sim |\chi^{(3)}|^2$) позволяет методом подгонки определить значения q_1 и q_2 : удовлетворительное согласие достигается при значениях параметров Фано $q_1 = -1,8$ и $q_2 = 1,1$ (сплошная линия на рис. 1). Полученное значение для q_1 согласуется в пределах ошибки измерения со значением, определенным из данных по поглощению ¹¹.

В заключение авторы выражают признательность Ахманову С.А. за внимание и поддержку, Исаеву А.А. за помощь в проведении эксперимента и Гладкову С.М. за обсуждение результатов.

1. Armstrong J.A., Wynne J.J. Phys. Rev. Lett., 1974, 33, 1183.
2. Геллер Ю.И., Попов А.К. Лазерное индуцирование нелинейных резонансов в сплошных спектрах. Новосибирск, Наука, 1981.
3. Pavlov L.I., Dimov S.S., Metchkov D.I. et al. Phys. Lett., 1982, A89, 441.
4. Dimov S.S., Pavlov L.I., Stamenov K.V. et al. Appl. Phys., 1983, B30, p.35.
5. Гладков С.М., Коротеев Н.И. УФН, 1990, 160, 105.
6. Fedotov A.B., Gladkov S.M., Ilyasov O.S. et al. Proc of 10-th European CARS Workshop, Garching, 1991, p. 42.
7. Blombergen N., Lotem H., Lynch R.T. Indian J.Pure. Appl. Phys., 1978, 16, 151.
8. Армстронг Дж., Винн Дж. Кн: Нелинейная спектроскопия. Под ред. Н.Бломбергена. М.: Мир, 1979, 192.
9. Fano U. Phys. Rev., 1961, 124, 1866.
10. Fano U., Cooper J.W. Phys. Rev., 1963, 137, A1364.
11. Берик Е.Б., Исаев А.А., Михкельсоо В.Т. и др. Препринт ФИАН, М., 1986, N251.