

НЕСТАЦИОНАРНАЯ КАРС-СПЕКТРОСКОПИЯ АТОМОВ: ЗАМЕДЛЕНИЕ ДОПЛЕРОВСКОЙ ДЕФАЗИРОВКИ СТОЛКНОВЕНИЯМИ, СПЕКТРАЛЬНЫЙ ОБМЕН В СИСТЕМЕ СВЕРХТОНКИХ КОМПОНЕНТ

*Ф.Ш.Ганиханов, И.Г.Коновалов, В.Н.Кулясов, В.Б.Морозов,
В.Г.Тункин*

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

Поступила в редакцию 23 июля 1991 г.

В экспериментах по нестационарной КАРС-спектроскопии атомов тулия (Tm) зарегистрированы эффект замедления доплеровской дефазировки столкновениями, соответствующий эффекту сужения Дике в стационарной спектроскопии, и эффект спектрального обмена. Ранее эти эффекты в атомной спектроскопии оптического диапазона не наблюдались. Возбуждался и зондировался переход $4F_{7/2} - 4F_{5/2}$ атомов Tm. Спектральный обмен наблюдался в системе сверхтонких компонент этого перехода.

1. Обусловленный неадиабатичностью столкновений спектральный обмен, приводящий к слиянию близко расположенных спектральных компонент переходов в оптическом диапазоне, был теоретически рассмотрен Бурштейном и Наберухиным ¹, Алексеевым и Собельманом ². Экспериментально этот эффект наблюдался, например, методом стационарной КАРС-спектроскопии в Q-линиях некоторых молекул ³.

Ограничение свободного движения атомов (молекул) столкновениями приводит при достаточно малом столкновительном уширении к появлению минимума в зависимости ширины доплеровски уширенной линии от давления (эффект сужения Дике). Как было показано Раутианом и Собельманом ⁴, он может наблюдаться, если $\Gamma\tau_v \lesssim 0,5$, где Γ - столкновительная ширина линии, τ_v - время корреляции скорости.

Переходы, на которых методами стационарной спектроскопии оптического диапазона наблюдался эффект сужения Дике, немногочисленны: колебательно-вращательные и вращательные переходы водорода и дейтерия ^{5,6}, переходы между высоколежащими вращательными уровнями молекулы воды ⁷. В нестационарной спектроскопии ограничение свободного движения проявляется в виде замедления доплеровской дефазировки. В ⁸ этот эффект наблюдался на колебательно-вращательном переходе водорода методом пикосекундной КАРС-спектроскопии. При повышении давления водорода до ≈ 3 атм наблюдалось замедление спада временного отклика, т.е. зависимости энергии импульса на антистоксовой частоте $W_a(\tau)$ от задержки зондирующего импульса относительно возбуждающих. Для переходов в молекуле водорода $\Gamma\tau_v \approx 0,02$ и эффект сужения Дике проявляется весьма ярко. Для подавляющего же большинства переходов $\Gamma\tau_v > 0,5$, и он наблюдаться не может.

Если обратиться к нестационарной спектроскопии, и определить время дефазировки $\tau_{дф}^*$, как время спада временного отклика от уровня $W_a(0)$ до уровня $W_a(0)e^{-2m}$, то, при достаточно больших m , как показано Дьяковым ⁹, максимум в зависимости $\tau_{дф}^*$ от давления, т.е. замедление доплеровской дефазировки, может, в принципе, наблюдаться и для переходов с $\Gamma\tau_v > 0,5$. Значения $\Gamma\tau_v$, для которых это наблюдение реально, определяются динамическим диапазоном измерения временного отклика.

2. Предметом настоящего письма является изложение результатов экспериментов по нестационарной КАРС-спектроскопии атомов тулия (Тm), в которых впервые в атомной спектроскопии оптического диапазона были зарегистрированы эффект замедления доплеровской дефазировки и эффект спектрального обмена. Эксперименты выполнялись на пикосекундном КАРС-спектрометре с использованием задающего генератора на гранате с неодимом, работающего в режиме пассивной синхронизации мод с отрицательной обратной связью и нестабильностью параметров импульсов $\pm 2\%$. Энергии возбуждающих импульсов: на длине волны 1,06 мкм - 5мДж, на длине волны лазера на красителе 0,55 мкм - 0,5 мДж; энергия зондирующего импульса второй гармоники - 3 мДж; их длительности ≈ 30 пс. Импульсы фокусировались линзой с фокусным расстоянием 50 см в центральную часть нагреваемой кюветы с парами Тm и буферным газом, ее температура измерялась термопарой или оптическим пирометром и поддерживалась на уровне 1500 ± 30 К.

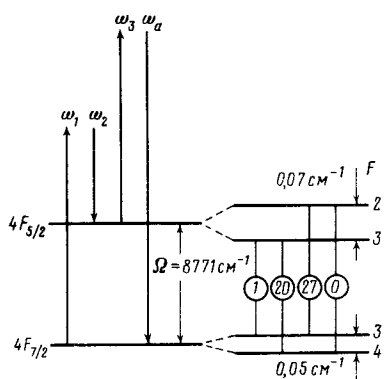


Рис. 1. Квантовая диаграмма возбуждения и зондирования перехода $4F_{7/2} - 4F_{5/2}$ атомов тулия. ω_1 и ω_2 - частоты возбуждающих импульсов, ω_3 и ω_4 - частоты зондирующего и антистоксова импульсов; F - полное квантовое число. Показано сверхтонкое расщепление уровней, а также расчетные амплитуды компонент в спектре стационарной КАРС для антисимметричного рассеяния

3. На рис.1 показана диаграмма возбуждения и зондирования перехода $4F_{7/2} - 4F_{5/2}$ атома Тm, сверхтонкое расщепление этих уровней, относительные амплитуды сверхтонких компонент (1:20:27:0) в спектре стационарной КАРС, рассчитанные по формулам ¹⁰ для антисимметричного рассеяния, на порядок превышающего по интенсивности анизотропное (изотропное запрещено правилами отбора). $4F$ -оболочка в Тm является внутренней, благодаря этому Γ достаточно мало, чтобы при достигнутом в эксперименте динамическом диапазоне измерения $10^5 \div 10^6$ можно было бы зарегистрировать замедление дефазировки.

4. Измерялись временные отклики при различных давлениях гелия или неона от 40 торр до 20 атм. На рис.2а показаны некоторые наиболее характерные из них. Сплошная линия - отклик, рассчитанный в доплеровском пределе для амплитуд компонент, приведенных на рис.1. Максимальное замедление дефазировки имеет место при давлении неона ≈ 7 атм и гелия ≈ 12 атм. На рис.2б показаны зависимости $\tau_{df}^*(p)$, определявшиеся по уровню 10^{-5} от $W_a(0)$. Максимумы на этих зависимостях лежат в области наименьшего наклона временных откликов при $\tau > 2$ нс. Причем в гелии наклон для $\tau = 2,3$ нс и $p = 11$ атм уменьшается в два раза по сравнению с доплеровским случаем.

5. Одновременно с замедлением дефазировки наблюдается смещение первого минимума временного отклика (квантовые биения обусловлены сверхтонким расщеплением). Это смещение может быть вызвано как обычным столкновением

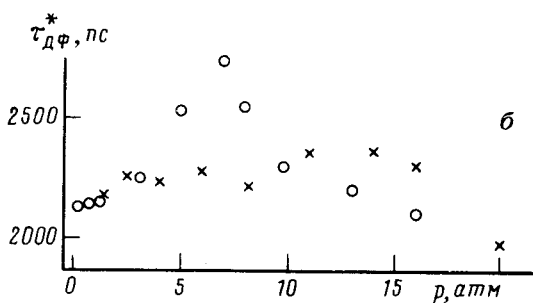
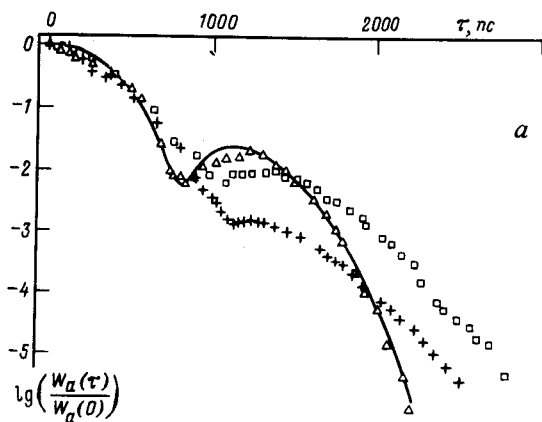


Рис. 2. *a* - Временные отклики (зависимости энергии импульса на антистоксовой частоте от задержки зондирующего импульса относительно возбуждающих) при различных давлениях буферных газов: Δ - 40 торр неон, \square - 7 атм неон, $+$ - 11 атм гелий. Сплошная линия - расчетный отклик в доплеровском пределе для температуры 1500 К и амплитуд компонент, приведенных на рис.1. *б* - Зависимости времени дефазировки $\tau_{дф}^*$ от давления буферных газов \circ - неона, \times - гелия. Зависимости определялись по уровню 10^{-5} от $W_a(0)$

тельным сдвигом, так и эффектом спектрального обмена. Если предположить, что спектрального обмена нет, то уменьшение частотного интервала между сверхтонкими компонентами в гелии составит $2 \cdot 10^{-3} \text{ см}^{-1}/\text{амага}$. Абсолютный сдвиг должен быть в несколько раз больше ¹¹. Данный переход исследовался ранее с помощью фурье-спектроскопии в ¹², где было найдено, что смещение центра сверхтонких компонент в гелии $< 5 \cdot 10^{-4} \text{ см}^{-1}/\text{амага}$. Сравнение этих величин показывает, что, по-видимому, смещение первого минимума не обусловлено обычным столкновительным сдвигом.

Спектральный обмен проявляет себя, в частности, в фазовом сдвиге между компонентами ¹³. В нестационарной спектроскопии этот сдвиг вызывает смещение по времени задержки картины квантовых биений. В результате, если в отсутствие обмена $\tau_{мин}^2/\tau_{мин}^1 = 3$, где $\tau_{мин}^{1,2}$ - время задержки, определяющее положение первого и второго минимумов, то при наличии спектрального обмена $\tau_{мин}^2/\tau_{мин}^1 \neq 3$. Второй минимум удалось зарегистрировать при использовании ксенона, в котором замедление дефазировки выражено ярче (рис.3). При этом $\tau_{мин}^2/\tau_{мин}^1 = 2,6 \pm 0,1$. Таким образом мы имеем дело с проявлением эффекта спектрального обмена.

На основе экспериментальных откликов рассчитывались спектры стационарной КАРС. Расчет показал, что в неоне сужение Дике составляет 5%, в ксеноне 30%, в гелии оно отсутствует. Это находится в соответствии с расчетными значениями $\Gamma\tau$: в неоне 0,22, в ксеноне 0,12, в гелии 0,67. Таким образом, хотя сужение Дике в гелии отсутствует, но нестационарная спектроскопия позволяет, тем не менее, наблюдать замедление доплеровской

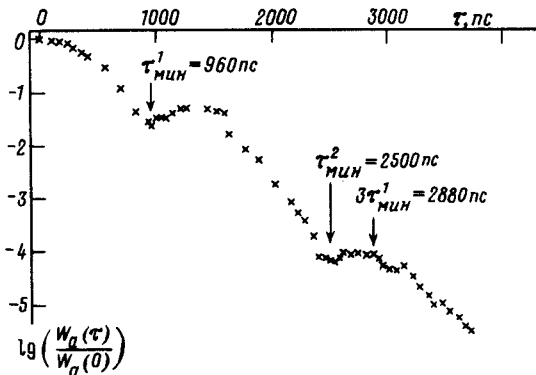


Рис. 3. Временной отклик при давлении ксенона 825 торр. Показаны времена задержки $\tau_{\text{мин}}^{1,2}$, определяющие положения первого и второго минимумов биений компонент сверхтонкой структуры, а также время задержки $3\tau_{\text{мин}}^1$, определяющее положение второго минимума биений в отсутствие спектрального обмена

дефазировки.

Авторы выражают благодарность Е.Б.Александрову, С.А.Ахманову и Н.И.Коротееву за поддержку работы, а также Ю.Е.Дьякову, С.Ю.Никитину и Д.Н.Коломойцеву за обсуждение результатов.

1. Бурштейн А.И., Наберухин Ю.И. ЖЭТФ, 1967, 52, 1202.
2. Алексеев В.А., Собельман И.И. ЖЭТФ, 1968, 55, 1874.
3. Смирнов В.В., Фабелинский В.И. Письма в ЖЭТФ, 1978, 27, 131.
4. Раутиан С.Г., Собельман И.И. УФН, 1966, 90, 209.
5. Henesian M.A., Kulevskii L. et al. Opt. Comm., 1976, 18, 225.
6. Cooper V.G., May A.G. et al. Can. J. Phys., 1968, 46, 2019.
7. Eng R.S., Calawa A.R. et al. Appl. Phys. Lett., 1972, 21, 303.
8. Магницкий С.А., Тункин В.Г. Квантовая Электроника, 1981, 8, 2008.
9. Дьяков Ю.Е. Письма в ЖЭТФ, 1983, 37, 14.
10. Алексеев А.И., Жемердеев О.В. Изв. АН СССР, сер.-физ., 1986, 50, 1529.
11. Ребане В.Н. Опт. и спектр., 1979, 47, 852.
12. Агладзе Н.И., Балашов А.А. и др. Опт. и спектр., 1987, 63, 12.
13. Файнберг Б.Д. Опт. и спектр., 1987, 62, 552.