Письма в ЖЭТФ, том 114, вып. 9, с. 604 – 607

Диполь-дипольное уширение при селективном отражении мощного лазерного излучения от границы диэлектрика и плотного резонансного газа

А. А. Бобров[+1)], *С. А. Саакян*[+*], *В. А. Саутенков*[+×], *Б. Б. Зеленер*[+*∘]

[+] *Объединенный институт высоких температур РАН, 127412 Москва, Россия*

[*] *Национальный исследовательский университет "Высшая школа экономики", 101000 Москва, Россия*

[×] *Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия*

[∘] *Национальный исследовательский университет Московский энергетический институт, 111250 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 23 сентября 2021 г.
После переработки 30 сентября 2021 г.
Принята к публикации 4 октября 2021 г.

Экспериментально исследовано диполь-дипольное уширение спектра селективного отражения интенсивного резонансного излучения от границы диэлектрика и газа естественной смеси изотопов Rb. Исследован случай большой плотности газа, такой, что допплеровским уширением можно пренебречь. Показано, что диполь-дипольное уширение уменьшается с ростом концентрации атомов в возбужденном состоянии. При интенсивности излучения, намного превышающей интенсивность насыщения резонансного перехода, в спектре отражения от границы раздела диэлектрик/газ не наблюдалось существенного полевого уширения, что объясняется тушением возбуждения атомов при столкновении с границей раздела.

DOI: 10.31857/S1234567821210047

В газовых средах диполь-дипольное взаимодействие между одинаковыми атомами, один из которых находится в основном, а другой в возбужденном состояниях, приводит к значительному увеличению спектральной ширины резонансного атомного перехода [1, 2]. В слабо возбужденной среде величина диполь-дипольного уширения Γ пропорциональна плотности и может быть выражена как

$$\Gamma = KN = \frac{2\alpha d^2 N}{\hbar}, \qquad (1)$$

где d – дипольный момент перехода, N – концентрация атомов, α – коэффициент порядка 1. В плотных газовых средах, исследованию которых посвящена настоящая работа, величина диполь-дипольного уширения существенно превышает допплеровское уширение.

При воздействии достаточно интенсивного излучения на газ резонансных атомов нельзя пренебрегать заселенностью возбужденного состояния. При уменьшении заселенности основного состояния диполь-дипольное уширение, вообще говоря, должно уменьшаться. Впервые это контринтуитивное явление сужения спектральной линии в плотной резонансной газовой среде с ростом интенсивности излучения экспериментально наблюдалось в работе [3]. Для исследования резонансного взаимодействия была использована техника селективного отражения, позволяющая исследовать спектр плотной сильно поглощающей среды. В [3] для создания существенной заселенности возбужденного состояния использовалось мощное лазерное излучение накачки, далеко отстроенное от резонанса, а спектр селективного отражения получался с помощью слабого пробного поля, сканируемого вблизи резонанса. Для газа двухуровневых атомов с существенным заселением возбужденного состояния диполь-дипольное уширение можно оценить по следующей формуле [4]: $\Gamma = K(g_g/g_e)^{1/2}N_g$, где N_g – концентрация атомов в основном состоянии, g_g и g_e – статвеса основного и возбужденного состояний соответственно. Отметим, что сужение резонанса селективного отражения наблюдалось только для плотных сред [5].

Интересным является вопрос о спектре селективного отражения одного лазерного луча, который одновременно насыщает среду и формирует сигнал отражения. В этом случае, при большой интенсивности излучения, уменьшение диполь-дипольного ушире-

[1)]e-mail: abobrov@inbox.ru

ния должно конкурировать с ростом полевого уширения. В настоящее время отсутствуют работы, в которых бы исследовалось селективное отражение мощного излучения от границы диэлектрика и плотной газовой среды. Ранее исследовалось или отражение насыщающего излучения от разреженного газа [6, 7], или отражение излучения малой интенсивности от плотного газа [8–10]. Настоящая работа призвана заполнить этот пробел.

Ранее мы провели исследование селективного отражения при умеренной интенсивности лазерного излучения до значений интенсивности порядка интенсивности насыщения [11]. При малых интенсивностях в [11] наблюдалось линейное уменьшение ширины спектра, как и в [3], однако при максимальных исследованных значениях интенсивности зависимость ширины начинала отличаться от линейной. В настоящей работе мы продолжили исследование спектра селективного отражения в области сильного насыщения.

Экспериментальная методика подробно описана в [11], здесь мы приведем краткое описание эксперимента. На окно кюветы с газом естественной смеси изотопов Rb почти нормально падал пучок лазерного излучения с длиной волны $\lambda = 780$ нм. Частота излучения сканировалась вблизи резонансной частоты перехода $5S_{1/2}(F = 3) - 5P_{3/2}(F' = 4)$ в ^{85}Rb, скорость спонтанного распада которого $2\pi \times 6$ МГц.

Плотность газа в кювете составляла $8 \cdot 10^{16}$ см$^{-3}$ (при температуре 350 °C). В соответствии с [12, 13] коэффициент в (1) для указанного перехода можно оценить как $K/2\pi = (1.1 \pm 0.17) \cdot 10^{-7}$ Гц · см^3, что соответствует ширине $\Gamma/2\pi = (8.8 \pm 1.5)$ ГГц. При этом допплеровское уширение можно оценить как $\Delta\omega_D \approx 0.1\Gamma$. Отметим, что при такой температуре концентрация молекул Rb_2 незначительна [14], кроме того, атомные и молекулярные спектры Rb и Rb_2 не пересекаются [15, 16].

На рисунке 1 представлены полученные частотные зависимости коэффициента селективного отражения падающего излучения от внутренней поверхности окна кюветы для различных значений интенсивности I лазерного пучка. На рисунке 1 представлен относительный коэффициент отражения $(R - R_0)/R_0$, где $R_0 = 8.5\,\%$ – коэффициент отражения материала окна. Из-за большого значения диполь-дипольного уширения сверхтонкие компоненты не разрешались в спектре отражения. Нуль по оси частоты на рис. 1 соответствует переходу $5S_{1/2}(F = 3) - 5P_{3/2}(F' = 4)$ в ^{85}Rb.

Ширина спектра селективного отражения $\Delta\omega_{\rm SR}$ определялась как разница частот, соответствующих минимальному и максимальному значениям коэффициента отражения. На рисунке 2 представлена зависимость спектральной ширины от интенсивности излучения.

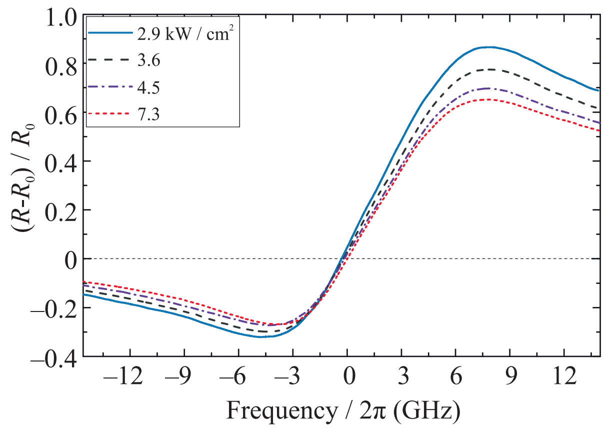

Рис. 1. (Цветной онлайн) Относительный коэффициент селективного отражения для значений интенсивности $I = 2.9$, 3.6, 4.5, 7.3 кВт/см^2 в зависимости от частоты падающего излучения

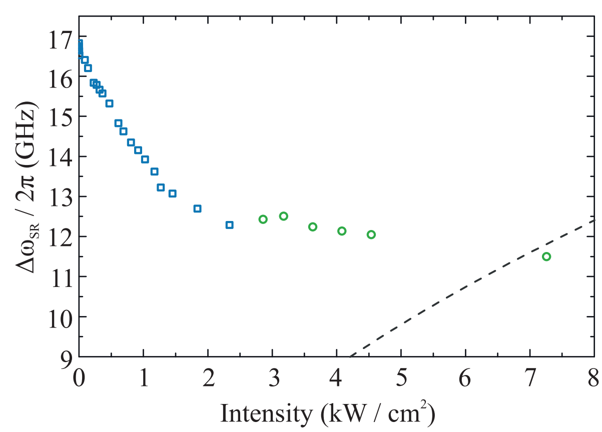

Рис. 2. (Цветной онлайн) Ширина спектра селективного отражения в зависимости от интенсивности излучения $\lambda = 780$ нм. Точки – экспериментальные данные: квадраты – результаты из работы [11], кружки – результаты настоящей работы. Линия – частота Раби для перехода $5S_{1/2} - 5P_{3/2}$ в ^{85}Rb

В области малых значений интенсивности ширина спектра линейно уменьшается с ростом интенсивности вследствие уменьшения диполь-дипольного уширения, как наблюдалось в более ранних работах. Затем из-за насыщения перехода ширина выходит на плато. Ожидалось, что при интенсивностях, много больше интенсивности насыщения перехода, ширина спектра селективного отражения будет определяться полевым уширением, однако в эксперименте полевое уширение не наблюдалось. Для сравнения на рис. 2 приведена зависимость от интенсивности частоты Раби Ω для перехода $5S_{1/2} - 5P_{3/2}$ в ^{85}Rb ($\Omega = dE/\hbar$, где E – амплитуда поля). Видно, что зарегистрированная спектральная ширина меньше частоты Раби наиболее сильного перехода при максимальной исследовавшейся интенсивности.

В настоящее время отсутствуют теоретические работы, которые позволили бы объяснить наблюдаемый эффект. Имеющиеся в настоящее время теоретические подходы [6, 7] к селективному отражению сильного поля получены для случая разреженного газа. В [9] развита самосогласованная теория для селективного отражения от плотной среды, но рассмотрен случай слабого поля. Для случая сильного поля и плотной среды имеются лишь численные расчеты [17]. Обсуждение возможности построения законченной и самосогласованной теории селективного отражения сильного поля от границы диэлектрика и плотного газа выходит за рамки настоящего краткого сообщения, однако наблюдаемый эффект насыщения в спектре отражения можно объяснить из следующих качественных соображений.

Для простоты, рассмотрим селективное отражение интенсивного излучения от границы диэлектрика и плотного газа двухуровневых атомов. Как известно [6, 7], сигнал селективного отражения формируется наведенным дипольным моментом в тонком слое газа вблизи границы раздела. При этом атомы, движущиеся в сторону границы и от границы вглубь газа, вносят существенно различный вклад в формирование наблюдаемого сигнала отражения.

Атомы, движущиеся к границе, находятся под действием поля излучения в течение времени, намного превышающего время жизни возбужденного состояния. В случае сильного поля оптический переход в этих атомах насыщен, а значит вклад в наведенный дипольный момент от атомов, движущихся в сторону границы, должен исчезать при интенсивности излучения, много большей интенсивности насыщения перехода.

Атомы, движущиеся от границы, напротив, сразу после столкновения с границей находятся в основном состоянии и вносят определяющий вклад в наведенный дипольный момент, а значит, и в формирование сигнала отражения. При этом, с одной стороны, так как для этих атомов из-за столкновения со стенкой переход будет не насыщен, то спектр не будет содержать полевого уширения. С другой стороны, в диполь-дипольное уширение сигнала отражения, в силу его квазистатичности [18], дают одинаковый вклад все атомы, независимо от направления скорости. Так как переход в атомах, движущихся в сторону границы насыщен, то это насыщение должно влиять на вклад этих атомов в диполь-дипольное уширение перехода. Отметим, что мы рассматриваем случай большой плотности газа, такой, что доплеровским уширением можно пренебречь. Результатом движения атомов в нашей модели являются только столкновения атомов с границей раздела.

В соответствии со сделанными выше предположениями, для качественного описания экспериментальных результатов, представим ширину спектра отражения в виде суммы диполь-дипольного уширения и уширения, не зависящего от интенсивности (в применении к обсуждаемым экспериментам, в это уширение основной вклад вносит не разрешаемая сверхтонкая структура):

$$\Delta\omega_{\mathrm{SR}} = \Gamma + \Gamma_0. \qquad (2)$$

Зависимость диполь-дипольного уширения от интенсивности найдем, учтя заселенность основного состояния в рамках двухуровневой модели [19]:

$$\Gamma = KN\left(1 - \frac{1}{2}\frac{\Omega^2}{\gamma_2\left(\gamma_{12} + \frac{\Omega^2}{\gamma_2}\right)}\right), \qquad (3)$$

где γ_{12} и γ_2 – поперечная и продольная скорости релаксации.

На рисунке 3 ширина спектра селективного отражения построена по формуле (2) с использованием

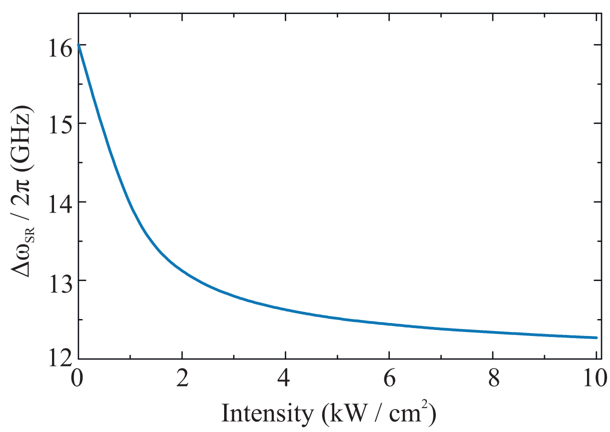

Рис. 3. (Цветной онлайн) Ширина спектра селективного отражения, рассчитанная по формулам (2) и (3)

зависимости диполь-дипольного уширения (3) для $N = 8 \cdot 10^{16}$ см$^{-3}$, $K/2\pi = (1.1 \pm 0.17) \cdot 10^{-7}$ Гц $\cdot$ см^3, $\gamma_2 = 2\pi \times 2$ ГГц, $\gamma_{12} = 2\pi \times 8$ ГГц, $\Gamma_0 = 2\pi \times 8$ ГГц, при расчете частоты Раби Ω подставлялся дипольный момент для перехода $5S_{1/2}-5P_{3/2}$ в ^{85}Rb. Видно, что ширина, рассчитанная по (2) и (3), качественно повторяет ход экспериментальной зависимости, показанной на рис. 2.

В заключение отметим, что в работе впервые исследовано диполь-дипольное уширение при селективном отражении насыщающего излучения от границы диэлектрика и резонансного газа. Обнаружено, что спектр отражения свободен от полевого уширения даже при очень высоких интенсивностях. Предложено качественное объяснение этого эффекта на основе предположения о гашении возбуждения атомов при столкновении с поверхностью раздела. Для количественного описания результатов эксперимента необходимо построение теории селективного отражения, которая должна включать в себя как квантовый учет насыщения перехода, так и самосогласованный учет затухания поля в плотной среде, т.е. пространственную дисперсию и, кроме того, учитывать сверхтонкое расщепление. Влияние на пространственное распределение возбужденных атомов, а значит и на наблюдаемый спектр отражения также могут оказывать явления пленения излучения и нерадиационного переноса возбуждения в плотной среде [20]. Отметим также, что при интенсивности излучения порядка и больше интенсивности насыщения газовая среда обладает нелинейностью и граница диэлектрик-газ может рассматриваться как нелинейный светоделитель, при этом может оказаться существенным квантовое рассмотрение поля излучения [21, 22].

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ (соглашение с ОИВТ РАН # 075-15-2020-785 от 23 сентября 2020 г.).

1. E. L. Lewis, Phys. Rep. **58**, 1 (1980).
2. А. А. Заболотский, ЖЭТФ **158**, 594 (2020).
3. V. A. Sautenkov, H. van Kampen, E. R. Eliel, and J. P. Woerdman, Phys. Rev. Lett. **77**, 3327 (1996).
4. H. van Kampen, V. A. Sautenkov, C. J. C. Smeets, E. R. Eliel, and J. P. Woerdman, Phys. Rev. A **59**, 271 (1999).
5. V. A. Sautenkov, Laser Phys. Lett. **8**, 771 (2011).
6. G. Nienhuis, F. Schuller, and M. Ducloy, Phys. Rev. A **38**, 5197 (1988).
7. Т. А. Вартанян, ЖЭТФ **88**, 1147 (1985).
8. P. Wang, A. Gallagher, and J. Cooper, Phys. Rev. A **56**, 1598 (1997).
9. A. Badalyan, V. Chaltykyan, G. Grigoryan, A. Papoyan, S. Shmavonyan, and M. Movsessian, Eur. Phys. J. D **37**, 157 (2006).
10. A. S. Kuraptsev, I. M. Sokolov, and Ya. A. Fofanov, Int. J. Mod. Phys. Conf. Ser. **41**, 1660141 (2016).
11. V. A. Sautenkov, S. A. Saakyan, and B. B. Zelener, J. Russ. Laser Res. **42**, 405 (2021).
12. C. B. Alcock, V. P. Itkin, and M. K. Horrigan, Can. Metall. Q **23**, 309 (1984).
13. R. Kondo, S. Tojo, T. Fujimoto, and M. Hasuo, Phys. Rev. A **73**, 062504 (2006).
14. M. Rakic and G. Pichler, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf. **208**, 39 (2018).
15. H. Chen, V. A. Sautenkov, P. S. Hsu, G. R. Welch, Y. V. Rostovtsev, and M. O. Scully, J. Mod. Opt. **52**, 2373 (2005).
16. V. A. Sautenkov, S. A. Saakyan, A. M. Akulshin, M. A. Gubin, V. N. Kuliasov, and B. B. Zelener, J. Russ. Laser Res. **34**, 375 (2013).
17. J. Guo, J. Cooper, A. Gallagher, and M. Lewenstein, Opt. Commun. **110**, 732 (1994).
18. J. A. Leegwater and S. Mukamel, Phys. Rev. A **49**, 146 (1994).
19. S. Stenholm, *Foundations of Laser Spectroscopy*, Wiley, N.Y. (1984).
20. Y. A. Fofanov, I. M. Sokolov, R. Kaiser, and W. Guerin, Phys. Rev. A **104**, 023705 (2021).
21. А. В. Белинский, М. Х. Шульман, УФН **184**, 1135 (2014).
22. Ya. Fofanov, EPJ Web of Conferences **220**, 01004 (2019).