

ЭФФЕКТЫ ВЫРОЖДЕНИЯ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ УРОВНЕЙ В КООПЕРАТИВНОМ КОМБИНАЦИОННОМ РАССЕЙАНИИ СВЕТА

С.Г.Раутиан, В.П.Сафонов, Б.М.Черноброд

Обнаружено существенное различие формы импульса вращательного кооперативного комбинационного рассеяния света на орто- и параводороде, обусловленное различием степени вырождения энергетических уровней.

В последние годы кооперативные процессы в испускании и рассеянии света привлекли внимание многих авторов (см. обзор¹). Несмотря на то, что большинство экспериментальных исследований выполнены в молекулярных и атомных системах с вырожденными энергетическими уровнями, эффекты вырождения явно не исследовались.

В настоящей работе для выявления эффектов вырождения исследуется вращательное кооперативное комбинационное рассеяние (ККР) на пара- и ортоводороде. Поскольку враща-

тельному рассеянию отвечает анизотропная часть тензора поляризуемости², вырождение энергетических уровней молекул водорода по проекции полного момента имеет принципиальное значение для процесса рассеяния¹⁾. Переход $J_1 = 0 \rightarrow J_2 = 2$ (см. рис. 1) в параводороде выступает в качестве модельной, чисто двухуровневой системы, так как при возбуждении циркулярной поляризации в ККР дает вклад единственный переход $M_1 = 0 \rightarrow M_2 = 2$. В отличие от этого при рассеянии на переходе $J_1 = 1 \rightarrow J_2 = 3$ в ортоводороде вклад вносят три перехода $M_1 = 1, 0, -1 \rightarrow M_2 = 3, 2, 1$.

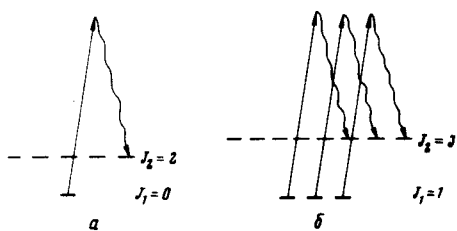


Рис. 1

Рис.1. Схемы переходов между магнитными подуровнями при ККР в пара- и ортоводороде (а и б соответственно)

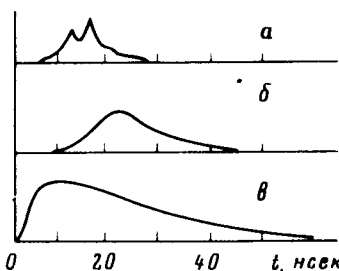


Рис. 2

Рис.2. Осциллограммы импульсов ККР в параводороде (а), ортоводороде (б) и возбуждающего излучения (в)

В экспериментах использовался одночастотный одномодовый лазер на неодимовом стекле ($\lambda = 1,056$ мкм). С помощью внешнего электрооптического затвора передний фронт лазерного импульса укорачивался до 3 – 4 нсек. Поляризация лазерного излучения преобразовывалась из линейной в круговую, затем оно усиливалось и фокусировалось линзой $F = 61$ см в кювету с водородом длиной 90 см. Энергия лазерного импульса была 0,26 Дж. Площадь пятна по уровню e^{-1} в шейке сфокусированного пучка была $3 \cdot 10^{-4}$ см², средняя интенсивность в этом пятне $I \approx 10^{10}$ Вт/см². Окна кюветы были отклонены под углом 5° . Рассеянное излучение выделялось монохроматором, его импульс регистрировался на осциллографе И2-7. Одновременно на другом осциллографе регистрировался импульс возбуждающего излучения.

Обычный водород представляет собой смесь 25% параводорода и 75% ортоводорода. В такой смеси при комнатной температуре наблюдается рассеяние на ортоводороде ($\Delta\omega = 587$ см⁻¹). Для получения ККР на параводороде ($\Delta\omega = 354$ см⁻¹) его содержание увеличивалось более чем до 90% по методу, описанному в⁵. В каждом из этих случаев рассеяние происходило только в направлении распространения лазерного импульса, спектр ККР состоял из первой стоксовой компоненты, а поляризация была встречной круговой. Рассеянное излучение было сконцентрировано в одной дифракционной моде активного объема, его мощность в описанных ниже условиях была менее 10% от мощности лазера.

На рис.2 представлены осциллограммы лазерного и рассеянных импульсов. Налицо значительная задержка между фронтом возбуждения и импульсом рассеяния. Импульс рассеяния в параводороде имеет временные пульсации, характерные для ККР в протяженной среде^{3,6}. На рис.2, а приведена осциллограмма, полученная при давлении $p = 1,1$ атм и комнатной температуре. В этих условиях измеренное время задержки первого максимума ККР от середины переднего фронта возбуждения составляет $t_0 = 10 \pm 3$ нсек, а период пульсаций $\tau_0 = 4,5 \pm 1,5$ нсек. Импульсы ККР с большим периодом пульсаций имели и большую задержку.

1) Отметим, что чисто колебательные ККР в водороде, о котором сообщалось в работе³, обусловлено анизотропной частью поляризуемости^{2,4}, поэтому вырождение по проекции полного момента в этом случае не существенно.

Оценим времена t_0 и τ_0 для параводорода по формулам из работы⁶. В наших условиях длина волны стоксова рассеяния $\lambda_c = 1,097$ мкм, длина активного объема $z = 10$ см, разность населенностей начального и конечного состояний $n_0 \approx 10^{19}$ см⁻³, анизотропная поляризуемость $\gamma_0 = 0,31 \cdot 10^{-24}$ см³. В итоге получаем $t_0 = 10$ нсек, $\tau_0 = 2$ нсек, что находится в удовлетворительном согласии с измерениями. Используя результаты работы⁷, можно найти, что в этих условиях время дефазировки поляризации $T_2 = 3$ нсек.

На рис.2, б показана осциллограмма ККР в ортоводороде для $p = 0,7$ атм. В отличие от рассеяния в параводороде, импульс ККР в ортоводороде имеет гладкую огибающую без пульсаций, в то же время значения параметров $n_0 \approx 10^{19}$ см³ и $T_2 = 4$ нсек⁷, близки к значениям в параводороде.

Как следует из схемы переходов рис.1, существенное отличие рассеяния в орто- и параводороде заключается в том, что в случае параводорода вклад в рассеяние дает один переход между магнитными подуровнями начального и конечного состояний, а в случае ортоводорода – три. В случае ортоводорода взаимодействие разных переходов с возбуждающим и рассеянным полями определяется различными матричными элементами тензора рассеяния. Поэтому характерные времена, с которыми происходит лавинообразный переход молекул с начального подуровня на конечный, для каждой пары подуровней отличаются. Времена задержки $t_0(J_1M_1; J_2M_2)$ и длительности лавин $\tau_0(J_1M_1; J_2M_2)$ для разных переходов $J_1M_1 \rightarrow J_2M_2$, оцененные аналогично тому, как это сделано в работе⁶, приведены в таблице.

Переход $J_1M_1 \rightarrow J_2M_2$	$\tau_0(J_1M_1; J_2M_2)$, нсек	$t_0(J_1M_1; J_2M_2)$, нсек
1 - 1 3 1	3,1	16,3
1 0 3 2	2,9	15,1
1 1 3 3	2,8	14,3

Времена задержек, приведенные в таблице, находятся в согласии с измеренным значением $t_0 = 19 \pm 5$ нсек. Согласно таблице, различие длительности лавин $\delta\tau_0$ незначительны, а различие времен задержек δt_0 соизмеримы с длительностями лавин: $\delta t_0 \lesssim \tau_0$. Поскольку лавинообразный переход молекул сопровождается испусканием импульса поля рассеяния, такое соотношение между временами переходов означает, что импульсы рассеяния, отвечающие лавинам между различными парами подуровней, следуют один за другим с интервалом несколько меньшим своей длительности. Вследствие этого временные пульсации интенсивности рассеяния, характерные для ККР в невырожденных системах, в данном случае могут замываться. Поэтому наблюдаемые различия в форме импульса ККР в пара- и ортоводороде на наш взгляд обусловлены проявлением вырождения уровней.

Литература

1. Андреев А.В., Емельянов В.И., Ильинский Ю.А. УФН, 1980, 131, 653.
2. Берестецкий В.Б., Лифшиц Е.М., Питаевский Л.П. Релятивистская квантовая теория, ч.1. М.: Наука, 1968, гл.6.
3. Пивцов В.С., Раутман С.Г., Сафонов В.П., Фолин К.Г., Черноброд Б.М. Письма в ЖЭТФ, 1979, 30, 342; ЖЭТФ, 1981, 81, 468.
4. Kolos W., Wolniewicz L. J. Chem. Phys., 1967, 46, 1426.
5. Фаркас А. Ортоводород, параводород и тяжелый водород. М., Л.: ОНТИ, 1936.
6. Черноброд Б.М. Оптика и спектроскопия, 1980, 49, 692.
7. Cooper V.G., May A.D., Hara E.H., Knapp H.F.P. Can. J. Phys., 1968, 46, 2019.