Письма в ЖЭТФ, том 25, вып. 5, стр. 251 – 254 5 марта 1977 г.

КИНЕТИКА НАСЫЩЕНИЯ ДОППЛЕРОВСКОГО СПЕКТРА

А.И.Бурштейн, А.Г.Кофман

Измерение кинетики насыщения монохроматическим светом резонансного перехода, уширенного за счет эффекта Допплера, позволяет экспериментально решить вопрос о том, насколько сильно столкновения изменяют скорость и каково их эффективное сечение.

1. Природа упругих столкновений, изменяющих скорость, почти не сказывается на спектрах люминесценции или нелинейного поглощения [1]. Поэтому в последние годы были предприняты попытки изучать такие столкновения методами нелинейной спектроскопии [2 – 5].

В настоящей работе показано, что кинетика насыщения монохроматическим полем двухуровневой системы, неоднородно уширенной вследствие эффекта Допплера, несет в себе информацию о типе и частоте столкновений, изменяющих скорость. Мерой насыщения населенностей может служить интегральная интенсивность люминесценции (или) поглощения (усиления) слабого поля на переходе смежном с тем, на котором действует насыщающее поле.

В силу простоты метода насыщения, не требующего в отличие от методов, которые обсуждались в [2 – 5], измерения спектральных характеристик, он широко используется для изучения миграции в спектрах магнитного резонанса [6] и твердотельных лазерных материалов [7]. Его применение однако сдерживается трудностями теоретической интерпретации эксперимента. Так, до сих пор влияние спектральной миграции на кинетику насыщения удалось корректно учесть только в рамках модели некоррелированного марковского процесса [6, 8], которой в терминах столкновений, изменяющих скорость, соответствует модель сильных столкновений [1]. Но, как указано в [2], последняя вообще говоря, плохо описывает реальные столкновения. Ниже приводятся результаты расчета кинетики насыщения в случае гаусс-марковской частотной миграции (модель слабых столкновений [1]).

2. Поступая так же, как и раньше [9], введем в рассмотрение функцию $m(t)$ согласно равенству

$$n(t) = n(0)\,m(t)\exp\left(-\frac{t}{T}\right) + \frac{n_0}{T}\int_0^t m(t')\exp\left(-\frac{t'}{T}\right)dt' , \quad (1)$$

где T – время продольной релаксации, $n(t) = \rho_{11}(t) - \rho_{22}(t)$ – текущая разность населенностей уровней 1 и 2 насыщаемого перехода ($t = 0$ – момент включения поля). Если уровень 1 – основной, то n_0 представляет собой равновесную разность населенностей. Если же оба уровня возбужденные, то n_0/T имеет смысл скорости накачки на уровень 1.

В изменение m со временем дает вклад только светоиндуцированная релаксация, модулированная миграцией частоты по допплеровскому контуру. При выполнении условий $\Gamma >> (k^2 d\nu)^{1/3}$, $2V$, T^{-1}, t^{-1} этот процесс описывается балансным уравнением, которое в модели слабых столкновений [1] имеет вид [9]

$$\frac{\partial m(v, t)}{\partial t} = \left[- 2w(v) + \nu\left(1 + v\frac{\partial}{\partial v} + d\frac{\partial^2}{\partial v^2}\right)\right] m(v, t) \tag{2}$$

с начальным условием

$$m(v, 0) = \phi(v) = \frac{1}{\sqrt{2\pi d}} \exp\left(- \frac{v^2}{2d}\right).$$

Здесь Γ – однородная ширина перехода 1 – 2, ν – частота столкновений, изменяющих скорость, $< 1 | \hat{F} | 2 > = DEe^{i\omega t}$ – матричный элемент взаимодействия атома с насыщающим полем, D – соответствующий элемент дипольного момента, E – комплексная амплитуда поля, $V = |DE|/\hbar$,

$$w(v) = \frac{2V^2\Gamma}{(kv)^2 + \Gamma^2} \tag{3}$$

– вероятность перехода 1 – 2, $k = \omega_{21}/c$, ω_{21} – частота этого перехода, c – скорость света, $\phi(v)$ – максвелловское распределение по скоростям v с дисперсией d. Предполагается, что столкновения, изменяющие скорость и сбивающие фазу, статистически независимы, а также, что $\omega = \omega_{21}$ и $\Gamma << k\sqrt{d}$. Функция $m(t)$ определяется исходя из решения уравнения (2) согласно равенству

$$m(t) = \int_{-\infty}^{\infty} m(v, t)\, dv.$$

3. Можно показать, что при условии $2\bar{w} >> \nu$, где

$$\bar{w} = \int_{-\infty}^{\infty} w(v)\, \phi(v)\, dv \approx \sqrt{\frac{2\pi}{d}}\, \frac{V^2}{k},$$

насыщающее поле спустя некоторое время t_Γ после включения успевает насытить только центральную компоненту спектра, так что $m(0, t_\Gamma) \approx 0$, хотя все еще $m(t_\Gamma) \approx m(0) = 1$. Это позволяет при $t > t_\Gamma$ пренебречь слагаемым Γ^2 в знаменателе выражения (3). Решая упрощенное таким образом уравнение методом разделения переменных (собственные функции и собственные значения этого уравнения найдены в [10]), получим

$$m(t) = \frac{[\Gamma(s+1)]^2}{\sqrt{\pi}\,\Gamma\left(2s+\frac{3}{2}\right)} \exp[-(2s+1)\nu t] F\left(s+\frac{1}{2},\ s+\frac{1}{2};\ 2s+\frac{3}{2};\ e^{-2\nu t}\right), \tag{4}$$

где $s = \frac{1}{4}\left\{\left[\left(\frac{4V}{k}\right)^2 \frac{\Gamma}{\nu d} + 1\right]^{1/2} - 1\right\}$, $\Gamma(z)$ – гамма-функция Эйлера, $F(a, b; c; z)$ – гипергеометрическая функция.

При условии $2w(\sqrt{d}) >> \nu$ (т. е. $s \approx \frac{V}{k}\sqrt{\frac{\Gamma}{\nu d}} \sim \sqrt{\frac{2\bar{w}\Gamma}{k\sqrt{d}\,\nu}} >> 1$) почти вся кинетика $m(t)$ описывается формулой $m(t) = \exp\left(-\frac{2V}{k}\sqrt{\frac{2\Gamma t}{d}}\right)$, получающейся из (2) при $\nu = 0$. В этом случае мощность поля настолько велика, что оно успевает насытить весь спектр еще до того, как столкновения атомов начинают влиять на процесс.

При промежуточных мощностях, $\nu << 2\bar{w} << k\sqrt{d}\nu/\Gamma$, в (4) можно положить $s = 0$, откуда

$$m(t) = \frac{2}{\pi}\arcsin e^{-\nu t} \approx \begin{cases} 1 - \dfrac{2\sqrt{2\nu t}}{\pi}, & \nu t << 1 \\[2ex] \dfrac{2}{\pi}e^{-\nu t}, & e^{2\nu t} >> 1 \end{cases}. \tag{5}$$

Наличие явной зависимости этого выражения от ν, так же, как и его корневая зависимость от времени на начальном этапе, обусловлены тем обстоятельством, что в этом случае насыщение атомов контролируется их диффузией (с коэффициентом, равным νd, ср. (2)) в пространстве скоростей к окрестности точки $v = 0$, где взаимодействие с полем наиболее велико.

Наконец, при $2\bar{w} << \nu$ спектральная миграция происходит настолько быстро, что скорости насыщения всех атомов становятся равными средней вероятности перехода $\bar{w}$, вследствие чего $m(t) = \exp(-2\bar{w}t)$.

Особый интерес представляет кинетика насыщения в промежуточной области мощностей, потому что она радикально отличается от аналогичного результата [11], полученного в модели сильных столкновений: $m(t) \approx \exp\left(-V\sqrt{\frac{2\pi\Gamma\nu}{k^2 d}}\,t\right)$. В отличие от него в (5) не обнаруживается зависимости от поля, и релаксация целиком определяется частотой столкновений, изменяющих скорость. По этим признакам можно экспериментально установить, слабыми или сильными являются столкновения, изменяющие скорость, и какова их частота.

Институт химической
кинетики и горения
Академии наук СССР
Сибирское отделение

Поступила в редакцию
29 января 1977 г.

Литература

[1] С.Г.Раутиан, И.И.Собельман. УФН, 90, 209, 1966.

[2] А.П.Кольченко, А.А.Пухов, С.Г.Раутиан, А.М.Шалагин. ЖЭТФ, 63, 1173, 1972.

[3] В.А.Алексеев, Т.Л.Андреева, И.И.Собельман. ЖЭТФ, 64, 813, 1973.

[4] С.Н.Багаев, Е.В.Бакланов, В.П.Чеботаев. Препринт №22, ИФП СО АН СССР, Новосибирск, 1972.

[5] А.И.Бурштейн, А.Г.Кофман. Квантовая электроника, 2, 482, 1975.

[6] E.Wolf. Phys. Rev., 142, 555, 1966.

[7] В.В.Григорьянц. Автореферат докт. дисс., М., 1972.

[8] А.И.Бурштейн. ЖЭТФ, 54, 1120, 1968.

[9] А.И.Бурштейн, А.Г.Кофман. ЖЭТФ, 70, 840, 1976.

[10] Л.Д.Ландау, Е.М.Лифшиц. Квантовая механика, М., изд. Наука, 1974, стр. 158.

[11] А.И.Бурштейн. ЖЭТФ, 62, 1695, 1972.