

УДК 535.2+535.416.5

СИГНАЛЫ ЗАТУХАНИЯ СВОБОДНОЙ ПОЛЯРИЗАЦИИ В ГАЗЕ $^{13}\text{CH}_3\text{F}$

Д.В. Ледовских, Н.Н. Рубцова, Е.Б. Хворостов

Аннотация

Исследованы сигналы затухания свободной поляризации на фоне нестационарных оптических нутаций, сформированные в газе $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ методом штарковского переключения уровней. Поляризация излучения CO_2 -лазера на линии 9P(32) параллельна штарковскому полю. Из-за линейного эффекта Штарка на переходе $0-1 \nu_3 \text{R}(4,3)$ $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ возникает эквидистантный спектр расщепления, и наблюдаются биения сигналов затухания свободной поляризации, соответствующих переходам с разными магнитными числами ($M = -4, \dots, 0, \dots, 4$). Сигналы имеют вид пиков, период появления которых обратно пропорционален напряженности штарковского поля. Из этой зависимости получена оценка взвешенной разности постоянных дипольных моментов $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ в основном и колебательно-возбужденном состояниях.

Ключевые слова: затухание свободной поляризации, нестационарная оптическая нутация, биения, штарковское переключение, когерентные переходные процессы.

Введение

В газах низкого давления оптически разрешенные спектральные переходы имеют доплеровское уширение. Однородное уширение линии обычно значительно меньше характерной доплеровской ширины. В частности, для использованного в нашей работе колебательно-вращательного перехода однородное уширение составляет 30 кГц/мТор, что при использованном в данном эксперименте давлении газа (1 мТор) дает величину 0.03 МГц; оценка доплеровской ширины дает величину 39 МГц. Таким образом, однородная ширина линии в 1000 раз меньше неоднородного уширения.

Доплеровское уширение препятствует получению информации о тонкой и сверхтонкой структуре переходов в разреженных газах. К настоящему времени известен ряд методов бездоплеровской спектроскопии [1, 2]. Например, лазерная спектроскопия насыщенного поглощения позволяет работать внутри доплеровского контура. Недостатком этого метода является присущее ему полевое уширение резонансов насыщенного поглощения. Поэтому эксперименты приходится проводить в условиях слабого насыщения, что приводит к резкому падению регистрируемого сигнала. Альтернативой спектроскопии насыщенного поглощения может служить когерентная спектроскопия, использующая когерентные переходные процессы (КПП) типа фотонного эха (ФЭ) [1, 2].

Одним из КПП является процесс затухания свободной поляризации (ЗСП). Процесс представляет собой спонтанное излучение. Для его надежной регистрации нужно возбудить среду коротким импульсом резонансного излучения. Если спектральная линия уширена однородно, то наблюдение ЗСП не представляет труда. ЗСП происходит на частоте перехода с характерным временем, определяемым однородной шириной спектральной линии.

Такого сорта эксперименты известны в микроволновой области спектра, где доплеровское уширение мало. В оптической области спектра спектральная линия разреженного газа уширена неоднородно за счет эффекта Доплера. Если спектр возбуждающего импульса широк, шире доплеровского контура, то сигналы ЗСП от разных частей доплеровского контура с разными несущими частотами типа $\omega_0 + kv$ погашают друг друга. В этом случае время затухания сигнала определяется шириной доплеровского контура. Если спектр импульса имеет спектральную ширину $\Delta\omega_{\text{ex}}$, то возбуждается лишь часть доплеровского контура и характерное время затухания сигнала определится шириной $\Delta\omega_{\text{ex}}$.

В данной работе использован метод штарковского переключения уровней, предложенный впервые в работе [3]. Эта техника позволяет автоматически осуществлять гетеродинный прием слабых сигналов КПП (ЗСП, ФЭ), поскольку на приемник попадают излучения непрерывного лазера и смещенные по частоте (штарковским полем) сигналы КПП. Этот метод особенно выигрышен для полярных молекул с большим эффектом Штарка.

1. Природа сигналов затухания свободной поляризации

Молекулы газа $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ возбуждаются резонансным непрерывным излучением CO_2 -лазера. В таком состоянии на газ воздействует импульс штарковского поля, параллельного электрической компоненте лазерного излучения. В результате воздействия штарковского поля вырожденные энергетические уровни колебательно-вращательного перехода $0-1 \text{ R}(4,3)$ моды ν_3 расщепляются на эквидистантно расположенные магнитные подуровни с $M = -4, -3, \dots, 3, 4$. Таким образом, линейный эффект Штарка уводит из резонанса молекулы, которые до включения штарковского поля были в резонансе с излучением CO_2 -лазера, и вводит в резонанс другие молекулы. Молекулы первой группы, выйдя из резонанса, излучают на 9 несущих частотах, расположенных эквидистантно по спектру. Нестационарная интерференция этих частот приводит к биениям, которые наблюдаются в наших экспериментах в виде пиков ЗСП со знаком, соответствующим излучению газа. Молекулы второй группы испытывают нестационарную оптическую нутацию [4], в наших экспериментах это длинный пологий импульс, знак которого соответствует увеличению поглощения.

$^{13}\text{CH}_3\text{F}$ – полярная молекула, симметричный волчок. Дипольный момент в основном состоянии равен 1.85793 Д, в возбужденном составляет 1.90388 Д. Задействованные в эксперименте энергетические уровни молекулы вырождены по магнитному квантовому числу, степень вырождения равна $2J_i + 1$.

Из-за разных дипольных моментов штарковское поле смещает уровни основного и возбужденного состояний на разные величины [5]:

$$\Delta W_i = -d_i E_{\text{st}} \frac{MK_i}{J_i(J_i + 1)},$$

где M – магнитное квантовое число; J_i, K_i – квантовые числа вращательного перехода соответствующего состояния; d_i – дипольный момент; E_{st} – напряженность штарковского поля.

В нашем случае поляризация возбуждающего излучения параллельна штарковскому полю ($\Delta M = 0$), и эффект Штарка в этой молекуле – линейный. Поэтому излучение расщепленных переходов имеет эквидистантный спектр из 9 полос. Таким образом, штарковское поле изменяет частоту перехода резонансных с излучением лазера молекул на величину $\Delta\omega_M$, различную для каждого магнитного

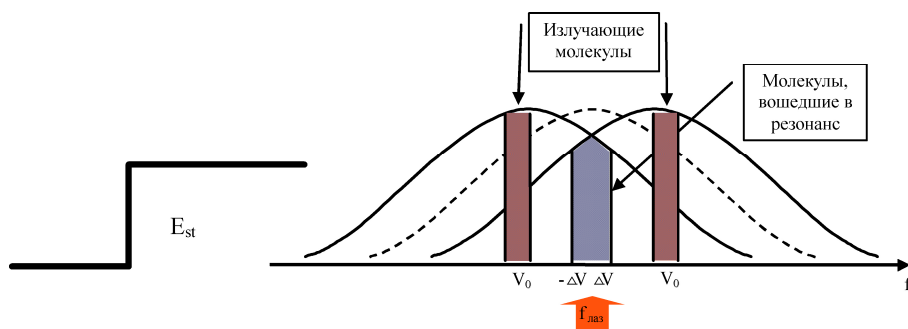


Рис. 1. Доплеровский контур. Группы излучающих и резонансных молекул в штарковском поле

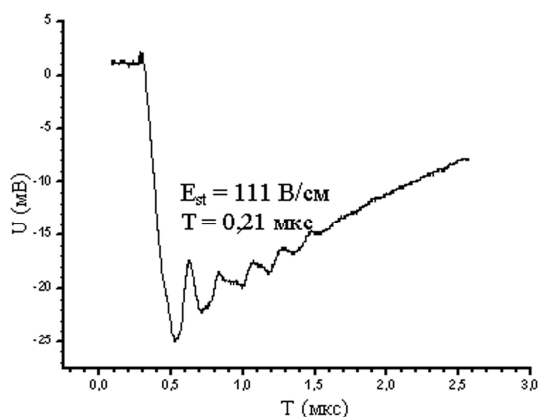


Рис. 2. Сигнал ЗСП при штарковском поле 111 В/см

подуровня ($M = -4, -3, \dots, 3, 4$):

$$\Delta\omega_M = \frac{1}{\hbar} \left(\frac{d_0 K}{J_0(J_0 + 1)} - \frac{d_1 K}{J_1(J_1 + 1)} \right) M E_{st},$$

где J_0, K_0, J_1, K_1 – квантовые числа вращательного перехода основного и возбужденного состояний; d_0, d_1 – дипольные моменты основного и возбужденного состояний.

Эти молекулы выходят из резонанса (рис. 1) и излучают новые частоты переходов $\omega_M = \omega_0 + \Delta\omega_M$, интерференция которых и есть биения в сигнале ЗСП (пики в сигнале ЗСП) (рис. 2).

Другая часть молекул с определенными скоростями относительно луча лазера после включения штарковского поля входит в резонанс с излучением лазера (рис. 1). Это наблюдается как нестационарная оптическая нутация – длинный плавный импульс, знак которого соответствует увеличению поглощения (рис. 2).

В нашем эксперименте были также получены биения ЗСП после выключения штарковского поля. Этот процесс аналогичен первому. Молекулы, испускавшие сигналы ЗСП после включения штарковского импульса (рис. 1), после ступенчатого выключения штарковского поля возвращаются в резонанс с лазером и участвуют в образовании нестационарной оптической нутации (рис. 2). Молекулы, находившиеся в резонансе во время действия штарковского поля (рис. 1 и 3, а), выходят из

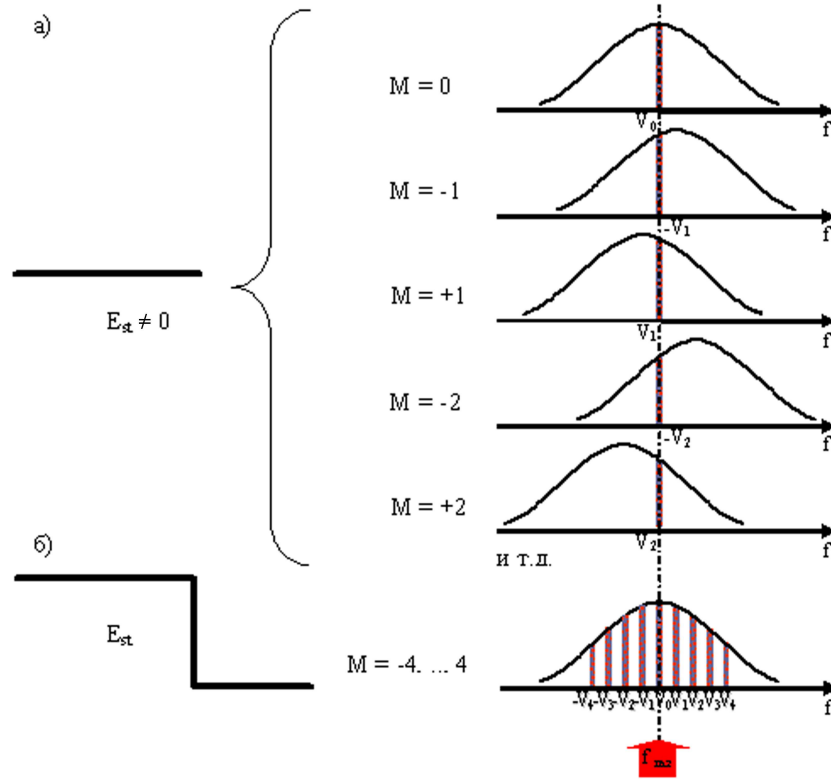


Рис. 3. Доплеровский контур. Группы резонансных молекул с разными скоростями и $M = -4, \dots, 4$: а) в штарковском поле; б) при его выключении

него и излучают спектр эквидистантно расположенных частот (рис. 3, б), которые образуют биения (рис. 2), как было описано выше.

2. Оценка сигнала затухания свободной поляризации

Приближенную оценку сигнала ЗСП можно выполнить, рассматривая поле лазерного излучения и поле сигнала ЗСП:

$$E_{\text{Л}} = E_0 \cos(\omega_0 t), \quad E_{\text{ЗСП}} = Q \cos[(\omega_0 + \delta M E_{\text{ст}})t],$$

$$E_{\Sigma}^2 = (E_{\text{Л}} + E_{\text{ЗСП}})^2 = E_{\text{Л}}^2 + E_{\text{ЗСП}}^2 + 2E_{\text{Л}}E_{\text{ЗСП}} \cos(\delta M E_{\text{ст}} t), \quad (1)$$

где $E_{\text{Л}}$ – лазерное поле; $E_{\text{ЗСП}}$ – поле сигнала ЗСП; $E_{\text{ст}}$ – напряженность штарковского поля; E_0 – амплитуда поля; ω_0 – частота перехода; M – магнитное квантовое число;

$$\delta = \frac{1}{\hbar} \left(\frac{d_0 K}{J_0(J_0 + 1)} - \frac{d_1 K}{J_1(J_1 + 1)} \right).$$

Мы считаем, что Q одинаково для всех M (это справедливо с точностью 10% по мощности сигнала).

Для полного поля на детекторе (сумма всех излучающих расщепленных переходов) имеем [5]:

$$E^2 = \frac{1}{2} \sum_{M=-4}^{+4} E_0 Q_M(t) \exp(-i\Delta\omega_M t) + c.c. = \sum_{M=-4}^{+4} E_0 Q_M(t) \cos \Delta\omega_M t$$

где $\Delta\omega_M$ – штарковское смещение подуровня с магнитным квантовым числом M .

Если предположить, что мощности всех излучателей равны, то получаем [5], что

$$E^2 = E_0 Q \sum_{M=-4}^{+4} \cos(\delta M E_{st} t) = E_0 Q \frac{\sin(9\delta E_{st} t/2)}{\sin(\delta E_{st} t/2)}.$$

Спектральное распределение излучаемых частот зависит от магнитного квантового числа и напряженности штарковского поля, поэтому частота биений изменяется штарковским напряжением [5]:

$$\omega_M = \omega_0 + \Delta\omega_M,$$

$$\Delta\omega_M = \frac{1}{\hbar} \left(\frac{d_0 K}{J_0(J_0 + 1)} - \frac{d_1 K}{J_1(J_1 + 1)} \right) M E_{st}.$$

Функция (1) представляет собой регулярные пики с шириной ΔT и периодом T .

Как период, так и ширина пиков обратно пропорциональны напряженности штарковского поля E_{st} . Период и ширина пиков ЗСП определяются выражениями:

$$T = 2\pi/\delta E_{st},$$

$$\Delta T = 2\pi/9\delta E_{st}.$$

3. Эксперимент

Газ $^{13}\text{CH}_3\text{F}$, находящийся в ячейке (длина ячейки равна 20 см) со штарковскими электродами (расстояние между электродами равно 3 см), под давлением 1 мТорр облучался непрерывным излучением CO_2 -лазера, настроенным на центр линии (интенсивность излучения составляет 0.035 Вт/см^2 , диаметр луча равен 3 см). Под действием излучения возбуждался вращательный переход $R(4,3)$ колебательной полосы 0–1 моды ν_3 , и происходила поляризация среды.

Табл. 1

Оценка величины δ

| Теория | Эксперимент |
|-----------------------------------|------------------------------------------|
| $\delta = 0.15d_0 - 0.1d_1$ | $\delta = 2\pi/E_{st}T$ |
| $d_0 = 1.85794D$ $d_1 = 1.90388D$ | |
| $\delta = 8.8303 \cdot 10^{-2}D$ | $\delta = (7.27 \pm 0.8) \cdot 10^{-2}D$ |

Так как эксперимент проводился при комнатной температуре, полуширина доплеровского контура составляла 39 МГц, поэтому с излучением взаимодействовала только часть молекул. Естественная ширина линии при таких условиях равна 30 кГц. Ступенчатое включение штарковского поля, параллельного поляризации излучения CO_2 -лазера, приводило к сигналу ЗСП, который регистрировался гетеродинным приемом с излучением лазера.

Эксперимент повторялся для разных напряженностей штарковского поля (от 38 до 144 В/см). В качестве примера на рис. 4 представлен сигнал ЗСП при штарковском поле 111 В/см.

Оценка сигнала ЗСП показывает, что регистрация сигналов как функции E_{st} (рис. 4) позволяет определить значение величины δ , являющейся взвешенной разностью дипольных моментов: $\delta = 0.15d_0 - 0.1d_1$ (см. табл. 1).

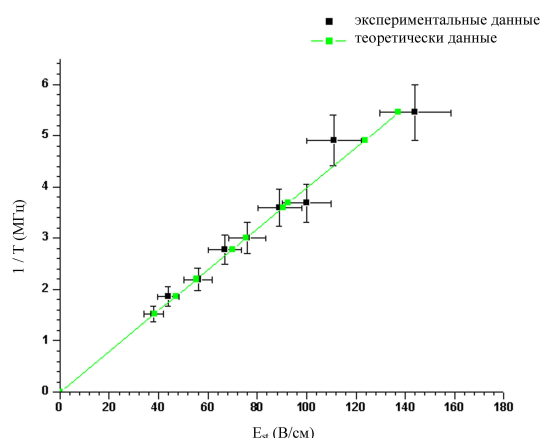


Рис. 4. Зависимость частоты импульсов ЗСП от напряженности штарковского поля (эксперимент и теория)

Заключение

Сигналы ЗСП получены методом ступенчатого штарковского переключения уровней на переходе R(4,3) 0–1 моды ν_3 молекулы $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ в присутствии непрерывного излучения CO_2 -лазера на линии 9P(32) мощностью менее 1 Вт и линейной поляризацией, параллельной штарковскому полю. В ЗСП наблюдалась интерференция сигналов, образованных парами переходов, отличающихся магнитным квантовым числом, в соответствии с теоретическими оценками для системы независимых двухуровневых систем. Изучена зависимость частоты биений сигналов ЗСП от напряженности штарковского поля. Частота появления интерференционных пиков ЗСП линейно зависит от напряжения штарковского поля и позволяет оценить величину взвешенной разности дипольных моментов: $0.15d_0 - 0.1d_1 = 0.07 \text{ D}$, что согласуется с литературными данными.

Summary

D.V. Ledovskikh, N.N. Rubtsova, E.B. Khvorostov. Signals of Free Polarization Decay in Gas $^{13}\text{CH}_3\text{F}$.

Signals of free polarization decay on a background of transient nutations generated by the method of levels Stark switching in $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ gas are investigated. Polarization of 9P(32) CO_2 -laser radiation is parallel to a Stark field. Equidistant spectrum arises because of the linear Stark effect on 0–1 ν_3 R(4,3) $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ transition, and the beats of free polarization decay signals corresponding to the transitions with different magnetic numbers ($M = -4, \dots, 0, \dots, 4$) are observed. These signals look like peaks with a period inversely proportional to the intensity of a Stark field. From this dependence the estimate is made for the weighed difference of $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ permanent dipole moments in the ground and vibrational excited states.

Key words: free polarization decay, transient nutations, beating, Stark switching, coherent transients.

Литература

1. Летохов В.С., Чеботаяев В.П. Принципы нелинейной лазерной спектроскопии. – М.: Наука, 1975. – 250 с.

2. *Летохов В.С., Чеботаев В.П.* Нелинейная лазерная спектроскопия сверхвысокого разрешения. – М.: Наука, Физматлит, 1990. – 520 с.
3. *Brewer R.G., Shoemaker R.L.* Photon echo and optical induction in molecules // *Phys. Rev. Lett.* – 1971. – V. 27. – P. 631–634.
4. *Аллен Л., Эберли Дж.* Оптический резонанс и двухуровневые атомы. – М.: Мир, 1978. – 224 с.
5. *Foster K.L., Stenholm S., Brewer R.G.* Interference pulses in optical free induction decay // *Phys. Rev. A.* – 1974. – V. 10, No 6. – P. 2318–2324.

Поступила в редакцию
19.02.08

Ледовских Дмитрий Васильевич – аспирант, инженер Института физики полупроводников СО РАН, г. Новосибирск.

E-mail: *D.Ledovskih@mail.ru*

Рубцова Наталия Николаевна – доктор физико-математических наук, старший научный сотрудник, заведующий лабораторией Института физики полупроводников СО РАН, г. Новосибирск.

E-mail: *rubtsova@isp.nsc.ru*

Хворостов Евгений Борисович – кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник Института физики полупроводников СО РАН, г. Новосибирск.

E-mail: *eugeny@isp.nsc.ru*