

ОБРАБОТКА ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ДАННЫХ

УДК 535.34 : 539.18

С. Н. АТУТОВ, С. Г. РАУТИАН, Г. Д. РОДИОНОВ,
Э. Г. САПРЫКИН, А. М. ШАЛАГИН

(Новосибирск)

МЕТОДЫ ПОЛЯРИЗАЦИОННОЙ СПЕКТРОСКОПИИ В ИССЛЕДОВАНИИ РЕЛАКСАЦИОННЫХ ХАРАКТЕРИСТИК СИСТЕМЫ ВЫРОЖДЕННЫХ СОСТОЯНИЙ

1. Введение. Традиционный метод нелинейной спектроскопии основан на исследовании спектров поглощения или усиления пробного поля при одновременном воздействии на среду сильного лазерного излучения. В работах [1—5] было показано, что форма нелинейных резонансов в спектре поглощения (усиления) пробного поля чрезвычайно чувствительна к состояниям поляризации сильного и пробного полей. Связано это с тем, что нелинейный резонанс составлен из нескольких спектральных компонентов, имеющих различные ширины, и в разных поляризационных условиях указанные компоненты представлены с разными весами.

Специфический круг поляризационных явлений возникает при анализе процесса распространения пробной волны, т. е., по существу, нелинейно-оптических явлений. Дело в том, что поляризованное сильное поле индуцирует анизотропию среды: среда становится одноосной (при линейной поляризации сильного поля) или гиротропной (при круговой поляризации) и ей присущи такие характерные для анизотропных сред явления, как дихроизм и двулучепреломление.

Как известно, в анизотропных средах без изменения поляризации распространяются волны, обладающие вполне определенным состоянием поляризации,— так называемые нормальные волны. В случае анизотропии, индуцированной сильным внешним полем, нормальными волнами являются волны пробного поля, поляризованные либо так же, как сильное поле, либо ортогонально. Именно для нормальных волн можно говорить о таких характеристиках, как коэффициенты преломления и поглощения (усиления).

Если пробная волна поляризована иначе, чем нормальная, то в процессе распространения состояние ее поляризации меняется. Например, при круговой поляризации сильного поля линейно-поляризованная пробная волна становится эллиптически поляризованной, причем одновременно происходит поворот осей эллипса. На этом явлении основан, в частности, метод «скрещенного поляроида» [6], предполагающий регистрацию интенсивности пробного поля, прошедшего поляроид, ось которого ориентирована ортогонально плоскости поляризации пробного поля до его взаимодействия со средой.

В общем случае изменение амплитуды, фазы и поляризации пробной волны может быть описано с помощью показателя поглощения и

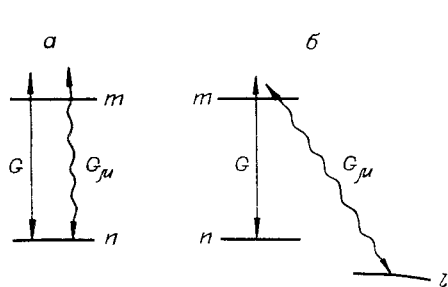


Рис. 1. Схема переходов:
а — двухуровневая, б — трехуровневая системы.

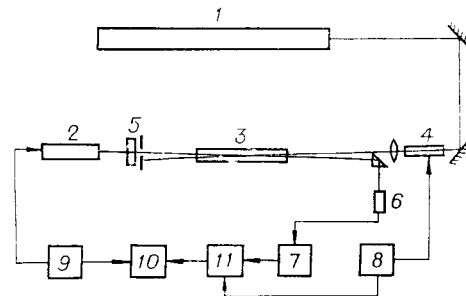


Рис. 2. Схема установки.

преломления нормальных волн. Следовательно, измеряя те или иные параметры пробной волны, прошедшей среду, можно определить коэффициенты поглощения и преломления нормальных волн.

Коэффициенты поглощения и преломления нормальных волн в конечном счете выражаются через микроскопические характеристики среды (сечения уширения, деориентации, дифференциальные сечения рассеяния), число которых довольно велико в силу сложности релаксационных процессов, протекающих в системе подуровней вырожденных атомных состояний. Существенно, однако, что как сами коэффициенты поглощения (преломления), так и их комбинации чувствительны не ко всему набору указанных характеристик, а к отдельным их совокупностям, порой не пересекающимся.

Последнее обстоятельство может служить основой для исследования процессов релаксации вырожденных состояний. Таким образом, на основе поляризационных явлений сложную картину релаксации, присущую вырожденным состояниям, можно упростить и исследовать экспериментально отдельные релаксационные процессы.

2. Поляризационная структура наведенного дипольного момента.

Рассмотрим изменение параметров пробной волны при ее прохождении через газовую среду атомов (молекул), находящуюся под действием сильного поля. Сильное поле частоты ω считаем резонансным одному из переходов ($m-n$) атома. Пробное поле частоты ω_μ резонансно либо тому же переходу (двухуровневая система, рис. 1, а), либо смежному (трехуровневая система, рис. 1, б).

Для элементов матрицы плотности ρ удобно использовать так называемое представление «поляризационных моментов» (или κq -представление) [7, 8], переход в которое дается следующим соотношением:

$$\rho_{ij}(\kappa q) = \sum_{MM'} (-1)^{J_j - M'} \langle J_i M J_j - M' | \kappa q \rangle \rho_{ij}(M | M'). \quad (1)$$

Здесь $\langle \dots | \dots \rangle$ — коэффициент векторного сложения. Величина $\rho_{jj}(00)$ характеризует полную заселенность уровня j , величина $\rho_{jj}(1q)$ называется «вектором ориентации», величина $\rho_{jj}(2q)$ — тензором выстраивания уровня j . Представление поляризационных моментов удобно в том отношении, что при изотропном возмущении элементы $\rho_{ij}(\kappa q)$ с различными значениями q (но с фиксированным κ) характеризуются одним законом релаксации [7, 8].

Распространение пробной волны полностью описывается вектором среднего дипольного момента \mathbf{d} , наведенного на ее частоте ω_μ . В приближении первых нелинейных поправок по интенсивности сильной вол-

ны выражение для круговых компонент d_α имеет вид [9]:

$$d_\alpha \approx iN_{mn} \left\{ aG_\alpha^\mu - 9 \sum_{\kappa\alpha_1} (-1)^{1-\alpha_1} \langle 1\alpha_1 - \alpha_1 | \kappa q \rangle [G_{\alpha_1} J(\kappa q) \beta^{(\kappa)} + G_{\alpha_1}^\mu I(\kappa q) B^{(\kappa)}] \right\}; \quad \kappa = 0, 1, 2; \quad \alpha = -1, 0, 1; \quad (2)$$

$$I(\kappa q) = \sum_{\alpha\alpha'} (-1)^{1-\alpha'} \langle 1\alpha_1 - \alpha' | \kappa q \rangle G_\alpha G_{\alpha'}^*, \quad G_\alpha = E_\alpha d / 2\hbar;$$

$$J(\kappa q) = \sum_{\alpha\alpha'} (-1)^{1-\alpha'} \langle 1\alpha_1 - \alpha' | \kappa q \rangle G_\alpha^\mu G_{\alpha'}^*, \quad G_\alpha^\mu = E_\alpha^\mu d_\mu / 2\hbar.$$

Здесь $I(\kappa q)$ — тензор поляризации сильного поля в κq -представлении [8]; $J(\kappa q)$ — перекрестный тензор поляризации [9]; N_{mn} — не возмущенная полем разность заселенностей уровней m, n . Члены, пропорциональные $B^{(\kappa)}$, связаны с изменением распределения по скоростям и магнитным подуровням уровней m, n под действием сильного поля, члены $\beta^{(\kappa)}$ обусловлены нелинейным интерференционным эффектом. Если доплеровское уширение значительно превышает ударное, то при встречном распространении пробной и сильной волн интерференционные члены исчезают*.

Формула (2) в равной мере относится как к двухуровневой, так и к трехуровневой системе. Эти два случая отличаются только явным видом величин $a, \beta^{(\kappa)}, B^{(\kappa)}$. Спектральная структура величин $\beta^{(\kappa)}, B^{(\kappa)}$ определяется релаксационными характеристиками поляризационных моментов порядка κ .

Выражения для $\beta^{(\kappa)}, B^{(\kappa)}$ при достаточно общих предположениях о характере релаксации даны в работе [9]. Здесь мы приведем соответствующие результаты для относительно простой модели, в которой изменение скорости описывается моделью сильных по скоростям столкновений с одновременным равномерным перемешиванием по подуровням [4]. Кроме того, предполагаются процессы с изменением проекции момента также и при столкновениях без изменения скорости. Считаем, что столкновения с изменением скорости сопровождаются потерей «фазовой памяти» на переходах $m-n, m-l, n-l$.

В случае двухуровневой системы выражения для величин $a, \beta^{(\kappa)}, B^{(\kappa)}$ имеют вид:

$$a = \frac{\sqrt{\pi}}{k\bar{v}} e^{-\left(\frac{\Omega_\mu - \Delta_{mn}}{k\bar{v}}\right)^2} \left[1 + \Phi\left(i \frac{\Omega_\mu - \Delta_{mn}}{k\bar{v}}\right) \right];$$

$$B^{(\kappa)} = \frac{2\sqrt{\pi}}{k\bar{v}} e^{-\left(\frac{\Omega_\mu - \Delta_{mn}}{k\bar{v}}\right)^2} \left\{ \frac{1}{2\Gamma_{mn} - i\varepsilon_\pm} \left(\frac{[c_{mnm}^{(\kappa)}]^2}{\Gamma_m^{(\kappa)}} + \frac{[c_{nmm}^{(\kappa)}]^2}{\Gamma_n^{(\kappa)}} \right) + \right.$$

$$\left. + \frac{\sqrt{\pi}}{k\bar{v}} e^{-\left(\frac{\Omega - \Delta_{mn}}{k\bar{v}}\right)^2} \left[1 + \Phi\left(i \frac{\Omega_\mu - \Delta_{mn}}{k\bar{v}}\right) \right] (\tau_m [c_{mnm}^{(\kappa)}]^2 + \tau_n [c_{nmm}^{(\kappa)}]^2) \delta_{\kappa 0} \right\}; \quad (3)$$

$$\beta^{(\kappa)} = \frac{2\sqrt{\pi}}{k\bar{v}} e^{-\left(\frac{\Omega_\mu - \Delta_{mn}}{k\bar{v}}\right)^2} \left\{ \frac{1}{2\Gamma_{mn} - i\varepsilon_+} \left(\frac{[c_{mnm}^{(\kappa)}]^2}{\Gamma_m^{(\kappa)} - i\varepsilon_+} + \frac{[c_{nmm}^{(\kappa)}]^2}{\Gamma_n^{(\kappa)} - i\varepsilon_+} \right) + \right.$$

$$\left. + \frac{\sqrt{\pi}}{k\bar{v}} e^{-\left(\frac{\Omega - \Delta_{mn}}{k\bar{v}}\right)^2} \left[1 + \Phi\left(i \frac{\Omega - \Delta_{mn}}{k\bar{v}}\right) \right] (\tau_m(\varepsilon_+) [c_{mnm}^{(\kappa)}]^2 + \tau_n(\varepsilon_+) [c_{nmm}^{(\kappa)}]^2) \delta_{\kappa 0} \right\},$$

* В случае двухквантового поглощения и двухквантовой люминесценции интерференционные члены исчезают при однонаправленном распространении волн [10].

где

$$\begin{aligned}\tau_j(\varepsilon) &= \frac{\tilde{\nu}_j}{(\Gamma_j^{(0)} - i\varepsilon)(\Gamma_j^{(0)} - \tilde{\nu}_j - i\varepsilon)}; \quad \tau_j = \tau_j(0); \\ c_{jkl}^{(\kappa)} &= (-1)^{J_k} \begin{Bmatrix} 1 & \kappa & 1 \\ J_j & J_k & J_l \end{Bmatrix}; \\ \varepsilon_+ &= \Omega_\mu - \Omega; \quad \varepsilon_- = \Omega_\mu + \Omega - 2\Delta_{mn}; \quad \Omega_\mu = \omega_\mu - \omega_{mn}; \quad \Omega = \omega - \omega_{mn}.\end{aligned}$$

Для трехуровневой системы имеем:

$$\begin{aligned}a &= \frac{\sqrt{\pi}}{k\bar{v}} e^{-\left(\frac{\Omega_\mu - \Delta_{ml}}{k\bar{v}}\right)^2} \left[1 + \Phi\left(i \frac{\Omega_\mu - \Delta_{ml}}{k\bar{v}}\right) \right] \frac{N_{ml}}{N_{mn}}; \\ B^{(\kappa)} &= \frac{2\sqrt{\pi}}{k\bar{v}} e^{-\left(\frac{\Omega_\mu - \Delta_{ml}}{k\bar{v}}\right)^2} \left\{ \frac{1}{\Gamma_{mn} + \Gamma_{ml} - i\varepsilon_\pm} \frac{1}{\Gamma_m^{(\kappa)}} + \frac{\sqrt{\pi}}{k\bar{v}} e^{-\left(\frac{\Omega - \Delta_{mn}}{k\bar{v}}\right)^2} \times \right. \\ &\quad \left. \times \left[1 + \Phi\left(i \frac{\Omega_\mu - \Delta_{ml}}{k\bar{v}}\right) \right] \tau_m \delta_{\kappa 0} \right\} c_{mlm}^{(\kappa)} c_{mnm}^{(\kappa)}; \quad (4) \\ \beta^{(\kappa)} &= \frac{2\sqrt{\pi}}{k\bar{v}} e^{-\left(\frac{\Omega_\mu - \Delta_{ml}}{k\bar{v}}\right)^2} \frac{1}{\Gamma_{mn} + \Gamma_{ml} - i\varepsilon_+} \frac{1}{\Gamma_{nl}^{(\kappa)} - i(\varepsilon_+ + \Delta_{ml} - \Delta_{mn} - \Delta_{nl}^{(\kappa)})} [c_{lmn}^{(\kappa)}]^2,\end{aligned}$$

где $\varepsilon_\pm = \Omega_\mu \mp \Omega - \Delta_{ml} \pm \Delta_{mn}$; $\Omega_\mu = \omega_\mu - \omega_{mi}$; $\Omega = \omega - \omega_{mn}$; $|\mathbf{k}_\mu - \mathbf{k}| \bar{v} \ll \Gamma_{nl}$; $\Phi(iz)$ — интеграл вероятности от мнимого аргумента; \mathbf{k}_μ , \mathbf{k} — волновые векторы пробной и сильной волн; $\Gamma_j^{(\kappa)}$, $\Gamma_{nl}^{(\kappa)}$ — константы релаксации поляризационных моментов уровней $j = m, n$ и перехода $n-l$; $\tilde{\nu}_j$, $\tilde{\nu}_{nl}$ — частоты упругих столкновений с сильным изменением скорости; Γ_{mn} , Γ_{ml} — однородные полуширины линий переходов $m-n$, $m-l$; Δ_{ij} — ударные сдвиги линий. Знаки «+» и «-» в величине ε_\pm соответствуют встречному и однонаправленному распространению волн.

Компоненты дипольного момента d_α , наведенного на частоте пробного поля (см. (2)), содержат линейную (пропорциональную величине a) и нелинейную (содержащую члены $B^{(\kappa)}$, $\beta^{(\kappa)}$) части. Нелинейная часть зависит от направления распространения пробной волны относительно сильной, от поляризаций обеих волн и от частоты Ω_μ пробного поля. Зависимость нелинейной части от Ω_μ , как видно из формул (2)–(4), сосредоточена в членах $B^{(\kappa)}$, $\beta^{(\kappa)}$. В используемой модели столкновений нелинейная часть d_α представляет собой суперпозицию широкого контура, характеризуемого доплеровской шириной $k\bar{v}$, содержащегося в члене $B^{(0)}$ (Ω_μ), и узких контуров с характерными полуширинами $2\Gamma_{mn}$, $\Gamma_n^{(\kappa)}$, $\Gamma_m^{(\kappa)}$ (в случае двухуровневой системы) и полуширинами $\Gamma_{mn} + \Gamma_{ml}$, $\Gamma_{nl}^{(\kappa)}$ (в случае трехуровневой системы).

Ширина и форма каждого из членов $B^{(\kappa)}$ (Ω_μ), $\beta^{(\kappa)}$ (Ω_μ) как функции Ω_μ обуславливаются релаксационными характеристиками поляризационного момента ранга κ . В модели сильных столкновений этими характеристиками являются константы релаксации $\Gamma_j^{(\kappa)}$, $\Gamma_{nl}^{(\kappa)}$, а также частоты столкновений $\tilde{\nu}_j$, $\tilde{\nu}_{nl}$, отличные от нуля, для моментов нулевого ранга. С другой стороны, в зависимости от поляризационных условий и взаимной ориентации волновых векторов члены $B^{(\kappa)}$, $\beta^{(\kappa)}$ входят в нелинейную часть d_α с разными весами и последняя может зависеть, следовательно, от разного набора релаксационных характеристик.

3. Постановка поляризационных экспериментов. Пробное поле представим в виде суперпозиции нормальных волн, распространяющихся

ся вдоль оси z , коллинеарной волновому вектору \mathbf{k} сильного поля. Нормальная волна, таким образом, имеет вид

$$E_{\sigma}^{\mu}(t, z) = \mathcal{E}_{\sigma}^{\mu} \exp[-i\omega_{\mu}(t - z/c) + i\Delta k_{\sigma}^{\mu} z]. \quad (5)$$

Здесь $\mathcal{E}_{\sigma}^{\mu}$ — амплитуда электрического поля, σ — индекс нормальной волны. Нормальными волнами при линейной поляризации сильного поля являются $E_{\parallel}^{\mu}, E_{\perp}^{\mu}$ ($\sigma = \parallel, \perp$), при круговой поляризации — E_{+}^{μ}, E_{-}^{μ} ($\sigma = +, -$), причем компоненты $E_{\parallel}^{\mu}, E_{+}^{\mu}$ поляризованы так же, как и сильное поле, компоненты $E_{\perp}^{\mu}, E_{-}^{\mu}$ — ортогонально. Величина Δk_{σ}^{μ} — комплексная добавка к волновому вектору и обусловлена взаимодействием поля со средой. Дипольный момент d_{σ} , наведенный на частоте пробного поля, и величина Δk_{σ}^{μ} пропорциональны друг другу:

$$d_{\sigma} \propto G_{\sigma}^{\mu} \Delta k_{\sigma}^{\mu} = iG_{\sigma}^{\mu} (\Lambda + \lambda_{\sigma}), \quad (6)$$

где выделено слагаемое Λ , ответственное за взаимодействие нормальной волны со средой в отсутствие сильного поля и потому не связанное с анизотропией. Величина λ_{σ} , содержащая индекс нормальной волны, пропорциональна нелинейной части дипольного момента.

Будем полагать величину λ_{σ} малой:

$$|\lambda_{\sigma}| l \ll 1, \quad (7)$$

где l — длина, на которой происходит поглощение. На выходе из среды протяженностью l электрическое поле нормальной волны, ее интенсивность $I_{\sigma}^{\mu}(l)$ и набег фазы $\varphi_{\sigma}(l)$ равны соответственно:

$$E_{\sigma}^{\mu}(t, l) = \mathcal{E}_{\sigma}^{\mu} e^{-i(\omega_{\mu} t - k_{\mu} l) - \Lambda l} [1 - \lambda_{\sigma} l]; \quad (8)$$

$$I_{\sigma}^{\mu}(l) = |\mathcal{E}_{\sigma}^{\mu}|^2 e^{-2\Lambda l} [1 - 2l\lambda_{\sigma}']; \quad (9)$$

$$\varphi_{\sigma}(l) = -(\Lambda'' + \lambda_{\sigma}'') l. \quad (10)$$

Величины $\lambda_{\parallel}, \lambda_{\perp}, \lambda_{+}, \lambda_{-}$, их вещественные и мнимые части, а также комбинации типа сумм и разностей $\lambda_{\sigma}', \lambda_{\sigma}''$ с различными значениями σ могут быть найдены с помощью, например, следующих измерений: сигнала нелинейной части поглощения пробной волны; разности поглощений нормальных волн; разности сигналов, прошедших поляроида, ориентированные под разными углами; угла поворота эллипса поляризации пробной волны; отношения осей эллипса; сигнала за скрещенным поляроидом. В табл. 1 приведена связь регистрируемых в указанных измерениях сигналов с величинами λ_{σ} .

Ко всем остальным выражениям в табл. 1, кроме выражений для отношения осей и угла поворота эллипса, следует добавить множитель $I_0^{\mu} \exp[-2\Lambda' l]$, где I_0^{μ} — значение интенсивности пробного поля на входе в среду. Этот множитель характеризует линейное поглощение. Величина $I_{\mu}(\theta)$, фигурирующая в третьем столбце, означает интенсивность пробного поля, прошедшего среду и затем поляроид, ось которого ориентирована под углом θ к одному из следующих направлений: в случае линейной поляризации пробного поля — к его плоскости поляризации (вторая и последняя строки), при круговой поляризации пробного поля — к плоскости поляризации сильного поля (четвертая строка).

Из приведенных результатов (см. табл. 1) видно, что могут быть раздельно зарегистрированы мнимые и вещественные части комбинаций

Таблица 1

Поляризация		Сигнал нелинейного поглощения	Разность интенсивностей нормальных волн	$I_{\mu}(\theta) - I_{\mu}(-\theta)$	Угол поворота эллипса	Отношение осей эллипса	Сигнал за скрещенным полярOIDом
G	G _μ						
↑	↑	$\lambda'_{\parallel} l$					
↑	↗	$(\lambda'_{\parallel} + \lambda'_{\perp}) l$	$(\lambda'_{\parallel} - \lambda'_{\perp}) l$	$(\lambda'_{\parallel} - \lambda'_{\perp}) l \sin 2\theta$	$\frac{1}{2}(\lambda'_{\parallel} - \lambda'_{\perp}) l$	$\frac{1}{4}(\lambda'_{\parallel} - \lambda'_{\perp})^2 l^2$	$ \lambda'_{\parallel} - \lambda'_{\perp} ^2 l^2$
↑	→	$\lambda'_{\perp} l$					
↑	+	$(\lambda'_{\parallel} + \lambda'_{\perp}) l$	$(\lambda'_{\parallel} - \lambda'_{\perp}) l$	$(\lambda'_{\parallel} - \lambda'_{\perp}) l \sin 2\theta$	$\frac{\lambda'_{\parallel} - \lambda'_{\perp}}{\lambda'_{\parallel} + \lambda'_{\perp}}$		
+	+	$\lambda'_{+} l$					
+	-	$\lambda'_{-} l$					
+	↑	$(\lambda'_{+} + \lambda'_{-}) l$	$(\lambda'_{+} - \lambda'_{-}) l$	$(\lambda'_{+} - \lambda'_{-}) l \sin 2\theta$	$\frac{1}{2}(\lambda'_{+} - \lambda'_{-}) l$	$\frac{1}{4}(\lambda'_{+} - \lambda'_{-})^2 l^2$	$ \lambda'_{+} - \lambda'_{-} ^2 l^2$
-	↑	$(\lambda'_{+} + \lambda'_{-}) l$	$(\lambda'_{-} - \lambda'_{+}) l$	$(\lambda'_{-} - \lambda'_{+}) l \sin 2\theta$	$\frac{1}{2}(\lambda'_{-} - \lambda'_{+}) l$	$\frac{1}{4}(\lambda'_{-} - \lambda'_{+})^2 l^2$	$ \lambda'_{-} - \lambda'_{+} ^2 l^2$

величин λ_{\perp} , λ_{\parallel} , λ_{+} , λ_{-} . Это значит, что можно исследовать спектральные свойства как коэффициента поглощения (λ'_{σ}), так и дисперсии (λ''_{σ}). Если пробное поле поляризовано так же, как и сильное, то спектр нелинейного поглощения будет определяться либо величиной λ'_{\parallel} (в случае линейной поляризации), либо величиной λ'_{+} (в случае круговой поляризации). Если пробное поле поляризовано ортогонально по отношению к сильному, то спектр нелинейного поглощения определяется величинами λ'_{\perp} , λ'_{-} .

В случае, когда линейные поляризации сильного и слабого полей ориентированы под углом 45° , сигнал нелинейного поглощения пропорционален сумме $\lambda'_{\parallel} + \lambda'_{\perp}$, а разность интенсивностей нормальных волн — разности $\lambda'_{\parallel} - \lambda'_{\perp}$. Во всех перечисленных случаях сигналы обусловлены наведенным дихроизмом.

Возможна постановка экспериментов, когда регистрируемый сигнал определяется наведенным двулучепреломлением и форма спектра становится типа дисперсионной. Например, если сильное поле поляризовано по кругу, а слабое — линейно, то разность сигналов, прошедших поляриды, ориентированные под углом θ и $-\theta$ к плоскости поляризации слабого поля, пропорциональна мнимой части разности $\lambda_{+} - \lambda_{-}$. Аналогичный сигнал будет зарегистрирован и за одним поляридом, ориентированным под углом θ к плоскости поляризации пробной волны, если периодически менять направление поляризации сильного поля. В других случаях, например при регистрации излучения, прошедшего скрещенный поляриод, сигнал обусловлен как дихроизмом, так и двулучепреломлением.

Необходимо заметить, что некоторые из измеряемых величин λ'_{σ} , λ''_{σ} дублируются при различных постановках эксперимента, поэтому есть свобода выбора той или иной методики опыта из соображений чувствительности и простоты реализации. С другой стороны, появляется возможность постановки контрольных экспериментов.

Связь величин λ_{\parallel} , λ_{\perp} , λ_{+} , λ_{-} и их характерных комбинаций с микроскопическими характеристиками среды, выражающимися величинами $B^{(*)}$, $\beta^{(*)}$, устанавливается с помощью формул (2) для дипольного момента; результаты отражены в табл. 2. Из приведенных результатов видно, что в разных поляризационных условиях экспериментально могут быть выделены совершенно разные наборы величин $B^{(*)}$, $\beta^{(*)}$. Выражения в табл. 2 приведены для случаев однонаправленного ($\mathbf{k}_{\mu} \uparrow \uparrow \mathbf{k}$) и встречного ($\mathbf{k}_{\mu} \uparrow \downarrow \mathbf{k}$) распространения волн. Примечательно то обстоятельство, что в экспериментах, где регистрируются разности $\lambda_{+} - \lambda_{-}$ и $\lambda_{\parallel} - \lambda_{\perp}$, в случае встречных волн происходит выделение членов $B^{(1)}$ и $B^{(2)}$ по отдельности.

Аналогично можно осуществить выделение одного члена $B^{(0)}$. Для этого достаточно поступить следующим образом. Пусть сильное и пробное поля поляризованы линейно и плоскости поляризации образуют между собой угол θ . Согласно (9), интенсивность $I^{\mu}(l)$ пробной волны на выходе из среды

$$I^{\mu}(l) = |\mathcal{E}^{\mu}|^2 e^{-2\Lambda^{\mu} l} [1 - 2l(\lambda'_{\parallel} \cos^2 \theta + \lambda'_{\perp} \sin^2 \theta)]. \quad (11)$$

Если угол θ выбрать таким, что $\operatorname{tg}^2 \theta = 2$, то сигнал нелинейного поглощения при $\mathbf{k}_{\mu} \uparrow \downarrow \mathbf{k}$ пропорционален величине

$$\frac{1}{3} [\lambda'_{\parallel} + 2\lambda'_{\perp}] \propto B^{(0)}, \quad (12)$$

т. е. содержит только один член $B^{(0)}$.

Экспериментальное выделение отдельных величин $B^{(*)}$ означает

Таблица 2

Поляризация сильного поля	Макроскопическая характеристика	$k_{\mu} \uparrow \downarrow k$	$k_{\mu} \uparrow \uparrow k$
↑	λ_{\parallel}	$B^{(0)} + 2B^{(2)}$	$B^{(0)} + 2B^{(2)} + \beta^{(0)} + 2\beta^{(2)}$
	λ_{\perp}	$B^{(0)} - B^{(2)}$	$B^{(0)} - B^{(2)} + \frac{3}{2}\beta^{(1)} + \frac{3}{2}\beta^{(2)}$
	$\lambda_{\parallel} - \lambda_{\perp}$	$3B^{(2)}$	$3B^{(2)} + \beta^{(0)} - \frac{3}{2}\beta^{(1)} + \frac{1}{2}\beta^{(2)}$
	$\lambda_{\parallel} + \lambda_{\perp}$	$2B^{(0)} + B^{(2)}$	$2B^{(0)} + B^{(2)} + \beta^{(0)} + \frac{3}{2}\beta^{(1)} + \frac{7}{2}\beta^{(2)}$
+	λ_{+}	$B^{(0)} + \frac{3}{2}B^{(1)} + \frac{1}{2}B^{(2)}$	$B^{(0)} + \frac{3}{2}B^{(1)} + \frac{1}{2}B^{(2)} + \beta^{(0)} + \frac{3}{2}\beta^{(1)} + \frac{1}{2}\beta^{(2)}$
	λ_{-}	$B^{(0)} - \frac{3}{2}B^{(1)} + \frac{1}{2}B^{(2)}$	$B^{(0)} - \frac{3}{2}B^{(1)} + \frac{1}{2}B^{(2)} - 3\beta^{(2)}$
	$\lambda_{+} - \lambda_{-}$	$3B^{(1)}$	$3B^{(1)} + \beta^{(0)} + \frac{3}{2}\beta^{(1)} - \frac{5}{2}\beta^{(2)}$
	$\lambda_{+} + \lambda_{-}$	$2B^{(0)} + B^{(2)}$	$2B^{(0)} + B^{(2)} + \beta^{(0)} + \frac{3}{2}\beta^{(1)} + \frac{7}{2}\beta^{(2)}$

возможность исследования релаксации поляризационных моментов ранга k по отдельности.

При однонаправленном распространении волн ($k_{\mu} \uparrow \uparrow k$) величины λ_{σ} , помимо $B^{(k)}$, содержат интерференционные члены $\beta^{(k)}$. В использованной модели релаксации (см. (3), (4)) эти члены обуславливают нелинейные резонансы с полуширинами, равными константам релаксации поляризационных моментов ранга k . С точки зрения обработки и интерпретации экспериментальных спектральных зависимостей интерес представляют такие ситуации, когда в спектре присутствует минимальное число указанных резонансов. Этому требованию удовлетворяет, например, эксперимент с регистрацией величины λ_{-} (случай ортогональных круговых поляризаций сильного и пробного полей). Как видно из табл. 2 (6-я строка), в величину λ_{-} из всего набора $\beta^{(k)}$ входит только член $\beta^{(2)}$.

При определенном выборе поляризационных условий можно добиться также, чтобы в регистрируемом сигнале из всех интерференционных членов $\beta^{(k)}$ присутствовали бы только $\beta^{(0)}$ или $\beta^{(1)}$. Из табл. 2 видно, что таким свойством обладают комбинации

$$3\lambda_{\parallel} - 2\lambda_{-} \propto B^{(0)} + 3B^{(1)} + 5B^{(2)} + 3\beta^{(0)}; \quad (13)$$

$$2\lambda_{\perp} - \lambda_{-} \propto B^{(0)} + \frac{3}{2}B^{(1)} + \frac{5}{2}B^{(2)} + 3\beta^{(1)}. \quad (14)$$

Величины типа (13), (14) можно зарегистрировать, измеряя, например, разность сигналов нелинейного поглощения, взятых с определенными весами, при соответствующих поляризационных условиях. Вычитание сигналов удобно проводить непосредственно в ходе эксперимента методом модуляции поляризаций и интенсивности полей с последующим синхронным детектированием. В этом случае не происходит накопления ошибок, связанных с низкочастотными флуктуациями.

4. Поляризационное контрастирование нелинейных резонансов. Обратим внимание на тот факт, что в выражениях (3), (4) для $B^{(k)}$

члены, ответственные за «доплеровскую полосу» однородного насыщения, содержат множителем символ Кронекера δ_{ω} , т. е. в членах $V^{(1)}$, $V^{(2)}$ полоса отсутствует. Этот результат — следствие использованной модели, в которой предполагается, что сильное изменение скорости сопровождается полной деориентацией частиц. С другой стороны, в соответствии с полученными выше результатами возможны постановки эксперимента, где регистрируются $V^{(1)}$ и $V^{(2)}$ по отдельности, т. е. возможна регистрация нелинейного спектра, в котором отсутствует полоса однородного насыщения. В этих экспериментах регистрируются разности поглощений и дисперсий нормальных волн и отсутствие полосы легко интерпретируется. Действительно, коль скоро мы приняли, что при сильных по скоростям столкновениях происходит полная деориентация частиц, то соответствующий член в нелинейной восприимчивости (полоса) изотропен и, следовательно, одинаков для обеих нормальных волн.

Отмеченное явление открывает широкие возможности для спектроскопии систем с долгоживущими состояниями (молекулы, атомные метастабилы). Для этих систем исключительно велико однородное насыщение, обусловленное поступательной релаксацией, которая вполне успевает произойти за времена жизни в возбужденных состояниях. В обычных спектрах нелинейного поглощения доплеровская полоса однородного насыщения оказывает заметное маскирующее влияние при наблюдении нелинейных резонансов. Исключение полосы из регистрируемого спектра должно привести к существенному повышению чувствительности спектральных измерений.

С долгоживущими системами связана и такая важная проблема, как создание высокостабилизированных по частоте лазеров. Поляризационный метод, предполагающий регистрацию разностных характеристик (поглощения, дисперсии) нормальных волн, и в данном случае обещает быть перспективным. А именно в лазере с внешней нелинейной поглощающей ячейкой сигнал, по которому осуществляется привязка частоты генерации к частоте квантового перехода, представляет собой контур с однородной шириной, записанный на «нулевом уровне». Это обстоятельство должно существенно улучшить точность привязки.

В основе обсуждаемого метода поляризационного контрастирования нелинейных резонансов лежит, как отмечалось выше, предположение о полной деориентации при сильном изменении скорости. В отношении процессов пленения излучения и резонансного обмена возбуждением это предположение выполняется с высокой степенью точности [11—13]. Что же касается лобовых столкновений с сильным изменением скорости и неупругих процессов типа вращательной релаксации, то предположение о сильной деориентации в этих процессах представляется вполне очевидным, однако эксперименты по этому поводу отсутствуют. В этом отношении поляризационные опыты с выделением $V^{(1)}$, $V^{(2)}$ также весьма полезны. Остаточная полоса в $V^{(1)}$, $V^{(2)}$ свидетельствовала бы о том, в какой мере деориентация неполная, т. е. на основе этих экспериментов можно уточнить модель релаксации в системе подуровней при лобовых столкновениях.

Проверка метода поляризационного контрастирования была осуществлена нами экспериментально [14] на хорошо изученном переходе $3s_2 \rightarrow 2p_4$ неона ($\lambda = 0,63$ мкм). При этом использовалась схема с переключением поляризации пробного поля. Поляризационная анизотропия оптического тракта (окна кюветы, поворотные зеркала) приводила к появлению паразитных сигналов, не зависящих от интенсивности мощного лазера, что сильно понижало чувствительность системы. Более естественна и свободна от этого недостатка схема с переключением поляризации излучения мощного лазера при неизменной круговой поляризации пробного поля. Однако использованный в работе [14] модулятор из ниобата лития не был рассчитан на мощность ≈ 10 мВт силь-

ной волны, и для устранения вышеуказанных недостатков использовалась схема с двойной модуляцией сигнала.

В настоящей работе мы сообщаем о поляризационных экспериментах на том же переходе $3s_2-2p_4$ в неоне, но с использованием схемы с переключением сильного поля. Для этой цели был использован электрооптический кристалл KDP, выдерживающий более высокую мощность, нежели ниобат лития.

Схема эксперимента показана на рис. 2. В качестве источника сильного поля использовался мощный (до 20 мВт) стабилизированный по частоте гелий-неоновый лазер 1. Линейно-поляризованное излучение этого лазера ($\lambda=0,63$ мкм) пропусклось через электрооптический кристалл 4 и направлялось в газоразрядную поглощающую ячейку 3 с неоном. Источником пробного поля служил перестраиваемый по частоте (с помощью системы сканирования 9) лазер 2, работающий на той же длине волны ($\lambda=0,63$ мкм). Пробное поле пропусклось через четвертьволновую пластинку 5 и, поляризованное по кругу, направлялось в поглощающую ячейку навстречу сильному. После прохождения ячейки пробное поле регистрировалось фотоприемником 6, сигнал с которого поступал на узкополосный усилитель 7 и далее — на синхронный детектор 11. При периодическом (с частотой 650 Гц) изменении напряжения на кристалле 4 с соответствующим образом подобранной амплитудой поляризация сильного поля периодически переключалась с левого на правый круг. Усилитель 7 и детектор 11 выделяли сигнал на частоте модуляции поляризации. Таким образом, не самописец 10 поступал сигнал, пропорциональный разности коэффициентов поглощения нормальных волн круговых поляризаций, т. е. величина

$$I_0^{\mu} e^{-2\Lambda' l} (\lambda'_+ - \lambda'_-) \propto I_0^{\mu} e^{-2\Lambda' l} \operatorname{Re} B^{(1)}. \quad (15)$$

Измерения проводились при давлении неона 1,5 мм рт. ст. и токе разряда 80 мА. Диаметр поглощающей ячейки составлял 4 мм. Результат зависимости регистрируемого сигнала от частоты пробного поля показан на рис. 3, а.

В тех же условиях с помощью обычного метода модуляции интенсивности сильного поля (см., например, [15]) зарегистрирована нелинейная часть спектра поглощения пробного поля для случая ортогональных круговых поляризаций полей (см. рис. 3, б). Регистрируемый сигнал при этом пропорционален величине

$$I_0^{\mu} e^{-2\Lambda' l} \lambda'_- l \propto I_0^{\mu} e^{-2\Lambda' l} \operatorname{Re} \left[B^{(0)} - \frac{3}{2} B^{(1)} + \frac{1}{2} B^{(2)} \right]. \quad (16)$$

На рис. 3, б присутствует явно выраженная полоса однородного насыщения, которая в случае неона обусловлена главным образом пленением резонансного излучения. На рис. 3, а полоса практически полностью отсутствует в полном соответствии с развитыми выше представлениями.

5. Заключение. Проведенный анализ показал широкие возможности поляризационных методов при исследовании процессов релаксации систем с вырожденными состояниями.

Величины, регистрируемые в нелинейно-спектроскопических экспериментах, можно описать суперпозицией элементов $B^{(k)}$, $\beta^{(k)}$, спектральная форма каждого из которых обусловлена релаксационными характеристиками поляризационного момента ранга k . При этом оказывается, что в определенных поляризационных условиях возможна селективная регистрация каждой из величин $B^{(k)}$, $\beta^{(k)}$. Это обстоятельство можно положить в основу систематического исследования процессов релаксации в системе подуровней вырожденных атомных и молекулярных состояний.

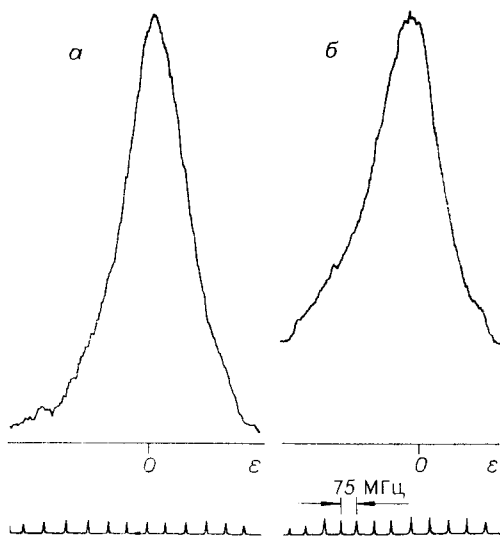


Рис. 3. Экспериментальные спектрограммы:

a — спектр разности интенсивностей нормальных волн; *b* — спектр нелинейной части поглощения для ортогональных круговых поляризаций.

Как частный случай предложен и экспериментально осуществлен способ исследования деориентации в процессах, приводящих к сильному изменению скорости. Показана возможность существенного исключения полосы однородного насыщения в нелинейных спектрах. Последнее явление может быть использовано как способ существенного повышения контраста нелинейных резонансов, что важно для многих приложений.

Отметим, наконец, что эксперименты, эквивалентные описанным выше, проводились также в работе [16]. Наши результаты вполне согласуются с результатами этой работы. В частности, в [16] обнаружен эффект исключения полосы однородного насыщения в поляризационных экспериментах, однако не обсуждаются перспективы поляризационного контрастирования нелинейных резонансов.

ЛИТЕРАТУРА

1. Dienes A. Theory of nonlinear effects in a gas laser amplifier.— "Phys. Rev.", 1968, vol. 174, p. 400.
2. Им Тхек-де, Раутиан С. Г., Сапрыкин Э. Г., Смирнов Г. И., Шалагин А. М. Влияние поляризации лазерных полей на нелинейные интерференционные эффекты.— ЖЭТФ, 1972, т. 62, с. 1661.
3. Вдовин Ю. А., Ермаченко В. М., Попов А. И., Проценко Е. Д. Наблюдение точкой структуры в пределах однородной ширины линии.— «Письма ЖЭТФ», 1972, т. 15, с. 401.
4. Раутиан С. Г., Смирнов Г. И., Шалагин А. М. Поляризационные явления и нелинейные интерференционные эффекты при учете столкновений.— ЖЭТФ, 1972, т. 62, с. 2097.
5. Бурштейн А. И., Сапрыкин Э. Г., Смирнов Г. И. К теории поляризационных явлений в спектроскопии двухквантовых переходов.— ЖЭТФ, 1974, т. 66, с. 1570.
6. Wieman C., Hänsch T. W. Doppler-free laser polarization spectroscopy.— "Phys. Rev. Lett.", 1976, vol. 36, p. 1170.
7. Дьяконов М. И., Перель В. И. Релаксация когерентности возбужденных атомов при столкновениях.— ЖЭТФ, 1965, т. 48, с. 345.
8. Чайка М. П. Интерференция вырожденных состояний. Л., изд. ЛГУ, 1975.
9. Шалагин А. М. Определение релаксационных характеристик поляризационным методом в нелинейной спектроскопии.— ЖЭТФ, 1977, т. 73, с. 99.
10. Попова Т. Я., Попов А. К., Раутиан С. Г., Соколовский Р. И. Нелинейные интерференционные эффекты в спектрах испускания, поглощения и генерации.— ЖЭТФ, 1969, т. 57, с. 850.
11. Дьяконов М. И., Перель В. И. Релаксация когерентности при диффузии резонансного излучения.— ЖЭТФ, 1964, т. 57, т. 1483.
12. Казанцев А. П. Кинетическое уравнение для газа возбужденных атомов.— ЖЭТФ, 1966, т. 51, с. 1751.
13. Вдовин Ю. А., Галицкий В. М. Диэлектрическая проницаемость газа резонансных атомов.— ЖЭТФ, 1967, т. 52, с. 1345.
14. Атутов С. Н., Раутиан С. Г., Родионов Г. Д., Сапрыкин Э. Г., Шалагин А. М. Поляризационное контрастирование нелинейных резонансов.— «Письма ЖЭТФ», 1977, т. 3, с. 1335.
15. Им Тхек-де, Кочанов В. П., Раутиан С. Г., Сапрыкин Э. Г., Шалагин А. М. Влияние столкновений на спектр нелинейного поглощения для перехода $3s_2-2p_4$ неона.— «Квант. электроника», 1976, т. 3, с. 530.
16. Colomb I., Dumont M. Zeeman coherence in saturated absorption.— "Opt. Commun.", 1977, vol. 21, p. 143.

Поступила в редакцию 27 июня 1978 г.