Ширина и форма резонансов насыщения поглощения (продолжение)**.**

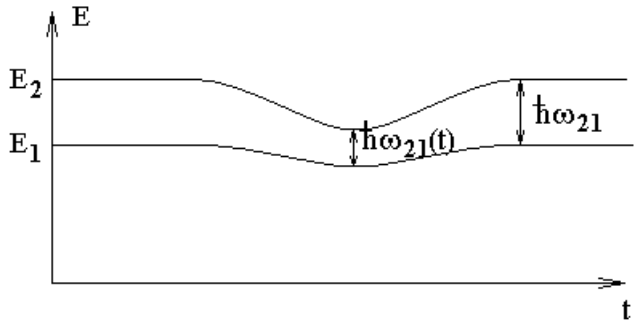
3). Уширение резонансов насыщения поглощения дефазирующими столкновениями молекул.

Молекула, взаимодействующая со световым полем, представляет собой осциллирующий на частоте поля диполь. Во время столкновения двух молекул фаза осциллирующего диполя может скачкообразно сдвинуться, что называют дефазировкой диполей.

Световое поле раскачивает электрические диполи молекул с оптической частотой. Все диполи совершают колебания синфазно. Сбой фазы диполя уменьшает поляризацию среды, так как уменьшает среднее значение дипольного момента молекул. Уменьшение среднего значения особенно ясно видно, если после сбоя фазы диполь совершает колебания в противофазе по отношению к остальным диполям, которые раскачены световым полем.

Дефазировка диполей разрушает поляризацию среды, но не изменяет заселенности уровней энергии. Следовательно, дефазирующие столкновения дают вклад в скорость затухания поляризации Γ, но не дают вклад в скорость затухания уровней γ_1 и γ_2. В результате дефазирующие столкновения молекул нарушают соотношение $\Gamma = \dfrac{\gamma_1 + \gamma_2}{2}$.

Механизм дефазировки при столкновении молекул становится ясным из анализа зависимости изменения двух связанных переходом уровней энергии молекулы во время столкновения.



Верхний уровень энергии E_2 во время столкновения обычно сдвигается сильнее, чем нижний уровень E_1. В результате на время столкновения изменяется частота оптического перехода ω_{21}.

Энергии уровней E_1 и E_2 зависят от расстояния между молекулами r. Тогда и частота перехода зависит от расстояния между молекулами в процессе столкновения:

$$\omega_{21}(r) = \frac{E_2(r) - E_1(r)}{\hbar}, \text{ где } r = \sqrt{b^2 + (vt)^2}\ .$$

Сбой фазы во время столкновения — равен опережению фазы в результате столкновения для реального диполя относительно фазы диполя, частота которого неизменна.

Фаза — это частота, умноженная на время. Тогда разность фаз — это интеграл по времени от разности частот:

$$\eta(b,\mathcal{V}) = \int_{-\infty}^{+\infty} \left(\omega_{21}\left(r(b,\mathcal{V},t)\right) - \omega_{21}\right) dt .$$

Через сбой фазы η при столкновении выражают сечение дефазирующих столкновений σ:

$$\sigma(\mathcal{V}) = \int_{0}^{\infty} \left(1 - \cos\left(\eta(b,\mathcal{V})\right)\right) \cdot 2\pi b \cdot db .$$

Обсудим, почему зависимость сечения σ от сбоя фазы η именно такая.

Строгих оснований для такой формулы нет. Эта формула приблизительно правдоподобна.

И действительно. Если сбой фазы очень мал по сравнению с единицей $\eta << 1$, то подынтегральная величина очень мала, так как $\left(1 - \cos(\eta)\right) \approx 0$ при условии $\eta << 1$. Величина $2\pi b \cdot db$ — это площадь кольца. Если при рассматриваемом значении прицельного параметра b сомножитель $\left(1 - \cos(\eta)\right) \approx 0$ очень мал, то такой прицельный параметр не дает вклад в сечение дефазировки.

Если же сбой фазы η, наоборот, слишком велик, то $\cos(\eta)$ — случайная величина с нулевым средним значением. Тогда сомножитель $\left(1 - \cos(\eta)\right)$ в среднем равен единице, и это означает, что площадь соответствующего кольца $2\pi b \cdot db$ входит в сечение дефазировки с единичным весом.

Этими аргументами и определяется выражение для сечения дефазировки $\sigma(\mathcal{V}) = \int_{0}^{\infty} \left(1 - \cos\left(\eta(b,\mathcal{V})\right)\right) \cdot 2\pi b \cdot db$. Это так называемое сечение уширения.

Кроме уширения спектральной линии дефазирующие столкновения приводят еще и к сдвигу линии. В качестве сечения сдвига $\sigma_{сдв}$ принимают следующее выражение:

$$\sigma_{сдв}(\mathcal{V}) = \int_{0}^{\infty} \sin\left(\eta(b,\mathcal{V})\right) \cdot 2\pi b \cdot db .$$

Сдвиг может быть положительным и отрицательным, следовательно, подынтегральная функция должна быть нечетной функцией сбоя фазы η. Кроме того, сбой фазы на 2π ничего не изменяет и не должен давать вклад в сечение уширения, следовательно, подынтегральный множитель должен быть периодической функцией сбоя фазы η с периодом 2π. Простейшей такой функцией является синус. Этим и определяется вид формулы для сечения сдвига.

С сечением уширения σ связана частота дефазирующих столкновений $\Gamma_{деф}$:

$$\Gamma_{деф}(\mathcal{V}) = N\left\langle \sigma\left(\left|\vec{\mathcal{V}}'-\vec{\mathcal{V}}\right|\right)\cdot\left|\vec{\mathcal{V}}'-\vec{\mathcal{V}}\right|\right\rangle_{\vec{\mathcal{V}}'} = \int \sigma\left(\left|\vec{\mathcal{V}}'-\vec{\mathcal{V}}\right|\right)\cdot\left|\vec{\mathcal{V}}'-\vec{\mathcal{V}}\right|\cdot N_{\vec{\mathcal{V}}'}\cdot d\vec{\mathcal{V}}'.$$

Здесь $\sigma\left(\left|\vec{\mathcal{V}}'-\vec{\mathcal{V}}\right|\right)\cdot\left|\vec{\mathcal{V}}'-\vec{\mathcal{V}}\right|$ — объем, который налетает на молекулу в единицу времени; $N_{\vec{\mathcal{V}}'}\cdot d\vec{\mathcal{V}}'$ концентрация налетающих молекул со скоростями в объеме $d\vec{\mathcal{V}}'$ в пространстве скоростей налетающих молекул; $\sigma\left(\left|\vec{\mathcal{V}}'-\vec{\mathcal{V}}\right|\right)\cdot\left|\vec{\mathcal{V}}'-\vec{\mathcal{V}}\right|\cdot N_{\vec{\mathcal{V}}'}\cdot d\vec{\mathcal{V}}'$ — частота столкновений рассматриваемой нами молекулы с молекулами в объеме $d\vec{\mathcal{V}}'$ пространства скоростей.

В формировании резонанса насыщения поглощения участвуют молекулы с одинаковым значением лучевой скорости $\mathcal{V}_z$, поэтому частоту дефазирующих столкновений $\Gamma_{деф}(\mathcal{V})$ рассматриваемой молекулы надо усреднить по молекулам с разными модулями скорости $\mathcal{V}$ и фиксированной проекцией скорости $\mathcal{V}_z$ на луч:

$$\Gamma_{деф_{эфф}}(\mathcal{V}_z) = \int_0^{+\infty} \Gamma_{деф}\left(\sqrt{\mathcal{V}_z^2+\mathcal{V}_\perp^2}\right)\cdot\frac{m}{2\pi k_Б T}\cdot e^{-\frac{m\mathcal{V}_\perp^2}{2k_Б T}}\cdot 2\pi\mathcal{V}_\perp d\mathcal{V}_\perp.$$

Эффективная скорость затухания недиагонального элемента матрицы плотности для молекул с фиксированным значением лучевой скорости складывается из скорости спонтанных переходов скорости тушения и скорости дефазировки:

$$\Gamma_{эфф}(\mathcal{V}_z) = \Gamma_0 + \Gamma_{туш_{эфф}}(\mathcal{V}_z) + \Gamma_{деф_{эфф}}(\mathcal{V}_z).$$

Ширина резонанса насыщения поглощения вдвое больше этой скорости затухания:

$$\Delta\omega = 2\Gamma_{эфф}(\mathcal{V}_z).$$

4). Уширение резонансов насыщения поглощения деориентирующими столкновениями молекул.

Деориентация — поворот линии колебаний диполя молекулы при столкновении молекул.

Учет изменения ориентации молекулы при столкновении достаточно сложен, и мы не будем его подробно рассматривать. Ограничимся тем, что такие столкновения можно учесть в виде слагаемого в скорости затухания поляризации среды аналогичного слагаемым тушения и дефазировки:

$$\Gamma_{эфф}(\mathcal{V}_z) = \Gamma_0 + \Gamma_{туш_{эфф}}(\mathcal{V}_z) + \Gamma_{деф_{эфф}}(\mathcal{V}_z) + \Gamma_{деориент_{эфф}}(\mathcal{V}_z).$$

Ширина резонанса насыщения поглощения вдвое больше этой скорости:

$$\Delta\omega = 2\Gamma_{эфф}(\mathcal{V}_z).$$

5). Влияние столкновений с изменением скорости молекул на ширину и форму резонансов насыщения поглощения.

Рассмотрение столкновений с изменением скорости удобнее проводить в лабораторной системе отсчета, а не в системе отсчета молекулы. В этом случае удобно считать, что элементы матрицы плотности имеют дополнительный сомножитель $N_{\vec{V}}$ — распределение концентрации молекул по вектору

скорости. Величина $N_{\vec{V}} \cdot d\vec{V}$ равна концентрации молекул, вектор скорости которых заканчивается в объеме $d\vec{V}$ пространства скоростей. В таком случае $\rho_{11\vec{V}}$ — распределение заселенности первого уровня по вектору скорости. Аналогичный смысл имеют $\rho_{22\vec{V}}$ и $\rho_{21\vec{V}}$.

Каждое уравнения для матрицы плотности нужно дополнить двумя слагаемыми. Это два интегральных слагаемых в приведенной ниже системе. Кроме того, элементы матрицы плотности, являясь распределениями по вектору скорости $\vec{V}$, будут зависеть от вектора скорости.

$$\begin{cases} \dot{\rho}_{11\vec{V}} + \gamma_1 \rho_{11\vec{V}} = \gamma_1 \rho^0_{11\vec{V}} - i\dfrac{pE(t)}{\hbar}\left(\rho_{12\vec{V}} - \rho_{21\vec{V}}\right) + \\ \qquad + \int A_{11}\left(\vec{V}', \vec{V}\right)\rho_{11\vec{V}'} d\vec{V}' - \rho_{11\vec{V}} \int A_{11}\left(\vec{V}, \vec{V}'\right) d\vec{V}' \\ \dot{\rho}_{22\vec{V}} + \gamma_2 \rho_{22\vec{V}} = \gamma_2 \rho^0_{22\vec{V}} + i\dfrac{pE(t)}{\hbar}\left(\rho_{12\vec{V}} - \rho_{21\vec{V}}\right) + \\ \qquad + \int A_{22}\left(\vec{V}', \vec{V}\right)\rho_{22\vec{V}'} d\vec{V}' - \rho_{22\vec{V}} \int A_{22}\left(\vec{V}, \vec{V}'\right) d\vec{V}' \\ \dot{\rho}_{21\vec{V}} + i\omega_{21}\rho_{21\vec{V}} + \Gamma \rho_{21\vec{V}} = i\dfrac{pE(t)}{\hbar}\left(\rho_{11\vec{V}} - \rho_{22\vec{V}}\right) + \\ \qquad + \int A_{21}\left(\vec{V}', \vec{V}\right)\rho_{21\vec{V}'} d\vec{V}' - \rho_{21\vec{V}} \int A_{21}\left(\vec{V}, \vec{V}'\right) d\vec{V}' \end{cases}.$$

Проанализируем новые слагаемые системы на примере первого уравнения:

$$\dot{\rho}_{11\vec{V}} + \gamma_1 \rho_{11\vec{V}} = \gamma_1 \rho^0_{11\vec{V}} - i\frac{pE(t)}{\hbar}\left(\rho_{12\vec{V}} - \rho_{21\vec{V}}\right) + \\ + \int A_{11}\left(\vec{V}', \vec{V}\right)\rho_{11\vec{V}'} d\vec{V}' - \rho_{11\vec{V}} \int A_{11}\left(\vec{V}, \vec{V}'\right) d\vec{V}'.$$

Подынтегральное выражение во втором интеграле $A_{11}\left(\vec{V}, \vec{V}'\right)d\vec{V}'$ — это вероятность ухода молекулы в единицу времени в объем $d\vec{V}'$ в пространстве скоростей, если молекула находится на 1-м уровне энергии и имеет скорость $\vec{V}$.

Здесь первый интегральный член $\int A_{11}\left(\vec{V}', \vec{V}\right)\rho_{11\vec{V}'} d\vec{V}'$ представляет собой частоту прихода в единичный объем в пространстве скоростей и в единичном объеме в обычном пространстве на уровне 1 за счет столкновений с изменением скорости молекул.

Величина $A_{km}\left(\vec{V}', \vec{V}\right)$ называется ядром интеграла столкновений.

Теоретически не удается предсказать вид ядра интеграла столкновений $A_{km}\left(\vec{V}', \vec{V}\right)$. Поэтому в расчетах поведения элементов матрицы плотности используют так называемые модельные ядра интеграла столкновений. Чаще всего используется модельное ядро Кельсона — Сторера. Нас интересуют зависимости рассматриваемых величин только от лучевой скорости. В таком случае ядро Кельсона — Сторера имеет следующий вид:

$$A\left(V_z, V_z^{'}\right) = \frac{A_0}{\sqrt{\pi}\Delta U} \cdot e^{-\frac{\left(V_z^{'} - \alpha V_z\right)^2}{(\Delta U)^2}}.$$

Это ядро описывает столкновения с изменением лучевой скорости $V_z \to V_z^{'}$. Здесь A_0 — частота столкновений с изменением скорости для одной молекулы, $\begin{cases}\alpha < 1 \\ 1-\alpha << 1\end{cases}$, $\Delta U = \sqrt{1-\alpha^2}U$, где $U = \sqrt{\frac{2k_B T}{m}}$ — наиболее вероятная скорость молекул, $A_0 = \int\limits_{-\infty}^{+\infty} A\left(V_z, V_z^{'}\right) dV_z^{'}$.

Другой смысл ядра интеграла столкновений состоит в следующем. Пусть распределение рассматриваемых молекул по лучевой скорости представляет собой дельта функцию Дирака: $\delta\left(V_z - V_{0_z}\right)$. Тогда после одного столкновения молекул распределение примет следующий вид: $\frac{A\left(V_{0_z}, V_z\right)}{A_0}$.

При этом для ядра Кельсона-Сторера ΔU — ширина распределения после одного столкновения молекул, $(1-\alpha)U$ — характерный сдвиг центра тяжести распределения после одного столкновения.

Расчет на основе дифференциальных уравнений для матрицы плотности с учетом интегралов столкновений приводит к результатам, которые мы рассмотрим качественно.

При низком давлении газа каждое столкновение достаточно сильно изменяется лучевую скорость, чтобы молекула вышла из набора молекул формирующих резонанс. В этом случае упругое рассеяние с изменением скорости эквивалентно тушащим столкновениям. Соответственно ширина резонанса насыщения поглощения при низком давлении газа определяется следующей формулой:

$$\Delta\omega = 2\left(\Gamma_0 + \nu + \tilde{\nu}\right),$$

где Γ_0 — частота спонтанных переходов для одной молекулы; ν — частота тушения, дефазировки и деориентации; $\tilde{\nu}$ — частота упругих столкновений с изменением скорости.

При относительно высоком давлении газа учет столкновений с изменением скорости более сложен. В этом случае столкновение молекул несколько изменяет лучевую скорость молекул, но изменяет ее не настолько, чтобы молекула вышла из набора формирующего резонанс.

Введем обозначение:

$n \equiv \dfrac{\tilde{\nu}}{\Gamma_0 + \nu}$ — число столкновений с изменением скорости за время $\dfrac{1}{\Gamma_0 + \nu}$ затухания поляризации по другим причинам.

С этим числом n связана величина уширения резонансов насыщения поглощения.

Пусть ΔU — полуширина по лучевой скорости для столкновительного ядра или среднеквадратичное изменение лучевой скорости за одно столкновение с изменением скорости.

Тогда $\sqrt{n} \cdot \Delta U$ — среднеквадратичное изменение лучевой скорости за n столкновений молекул. Квадратный корень связан с тем, что если человек равновероятно делает шаг влево или вправо, то среднеквадратичный уход от начального положения за n шагов равен $\sqrt{n}$. Величина $2\sqrt{n} \cdot \Delta U$ равна уширению провала Беннетта в распределении разности заселенностей уровней по лучевой скорости.

Тогда $\Delta\omega = 2k \cdot \sqrt{n} \cdot \Delta U$ — уширение провала Беннетта в шкале частот.

С учетом этого уширения новый провал Беннетта — это результат свертки старого провала Беннетта или Лоренца с шириной $2\left(\Gamma_0 + \nu\right)$ и колоколообразной функции с шириной $2k \cdot \sqrt{n} \cdot \Delta U$.

Напомним, что по определению, сверткой функций f и φ является следующая величина:

$$\left(f \circ \varphi\right)\left(y\right) = \int_{-\infty}^{+\infty} f\left(y + x\right) \cdot \varphi\left(x\right) \cdot dx .$$

Ширина свертки двух колоколообразных функций f и φ зависит от скорости спадания их крыльев.

Если хотя бы у одной из двух функций крылья спадают быстрее, чем $\dfrac{1}{x^2}$, то ширина свертки $\Delta\left(f \circ \varphi\right)$ приблизительно равна корню квадратному из суммы квадратов ширин Δf и $\Delta\varphi$ двух сворачиваемых функций:

$$\Delta\left(f \circ \varphi\right) = \sqrt{\left(\Delta f\right)^2 + \left(\Delta\varphi\right)^2} .$$

Если крылья обеих функций f и φ спадают, как $\dfrac{1}{x^2}$ или медленнее, то:

$$\Delta\left(f \circ \varphi\right) = \Delta f + \Delta\varphi .$$

Крылья самой свертки ведут себя, как крылья более медленно спадающей функции из двух сворачиваемых функций.

В результате формула для ширины резонанса насыщения поглощения отличается в двух случаях.

Первый случай —когда крылья ядра интеграла столкновений спадают быстро, быстрее чем $\frac{1}{\left|V_z - V_z'\right|^2}$. Тогда ширина резонанса при одновременном изменении частот встречных волн находится по следующей формуле:

$$\Delta\omega = \frac{1}{2}\left\{2\left(\Gamma_0 + \nu\right) + \sqrt{\left(2\left(\Gamma_0 + \nu\right)\right)^2 + \left(2k\sqrt{n}\Delta U\right)^2}\right\}.$$

Здесь ширина нового провала Беннетта с учетом столкновений с изменением скорости молекул равна $\sqrt{\left(2\left(\Gamma_0 + \nu\right)\right)^2 + \left(2k\sqrt{n}\Delta U\right)^2}$, где $2\left(\Gamma_0 + \nu\right)$ — ширина старого провала Беннетта без учета столкновений с изменением скорости $2k\sqrt{n}\Delta U$ — уширение провала Беннетта столкновениями с изменением скорости. Быстроспадающие крылья ядра интеграла столкновений определяют то, что ширина нового провала Беннетта складывается, как корень квадратный из суммы квадратов. Крылья нового провала Беннетта спадают медленно, как и крылья старого провала Беннетта. Поэтому ширина свертки Лоренца сечения поглощения с шириной $2\left(\Gamma_0 + \nu\right)$ и нового провала Беннетта с шириной $\sqrt{\left(2\left(\Gamma_0 + \nu\right)\right)^2 + \left(2k\sqrt{n}\Delta U\right)^2}$ равна сумме их ширин. Коэффициент $\frac{1}{2}$ связан с тем, что при одинаковых частотах встречных волн сворачиваемые контуры двигаются навстречу друг другу по оси лучевой скорости при изменении частоты генерации лазера.

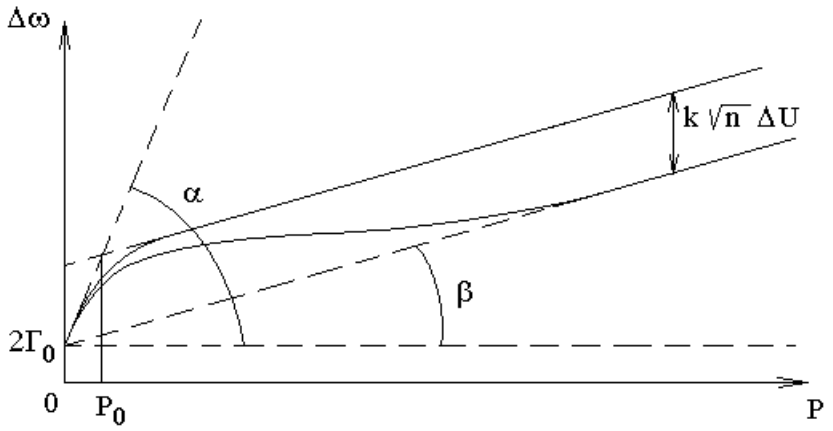
Второй случай — крылья ядра интеграла столкновений спадают медленно, как $\frac{1}{\left|V_z - V_z'\right|^2}$ или еще медленнее. Тогда ширина резонанса насыщения поглощения находится по формуле:

$$\Delta\omega = \frac{1}{2}\left\{2\left(\Gamma_0 + \nu\right) + 2\left(\Gamma_0 + \nu\right) + 2k\sqrt{n}\Delta U\right\}.$$

Здесь ширина нового провала Беннетта с учетом столкновений с изменением скорости молекул равна сумме двух правых слагаемых: $2\left(\Gamma_0 + \nu\right) + 2k\sqrt{n}\Delta U$. Ширина свертки равна сумме ширин, так как оба сворачиваемых контура имеют медленно спадающие крылья. Затем новый провал Беннетта сворачивается с сечением поглощения, ширина которого — это первое слагаемое вида $2\left(\Gamma_0 + \nu\right)$, и ширина снова равна сумме ширин.

Упругие столкновения с малым изменением скорости молекул проявляются в нелинейной зависимости ширины резонанса насыщения поглощения $\Delta\omega$ от давления газа P в кювете. И наоборот, нелинейная зависимость ширины резонанса указывает на наличие упругого углового рассеяния молекул друг на друге.

Возможный ход зависимости ширины резонанса от давления газа с учетом влияния столкновений с изменением скорости представлен на следующем рисунке:



Здесь верхняя кривая соответствует медленно спадающим крыльям ядра интеграла столкновений, а нижняя кривая соответствует быстро спадающим крыльям.

При низких давлениях любое столкновение с изменением скорости выводит молекулу из резонанса, поэтому обе кривые быстро возрастают с ростом давления, что соответствует зависимости $\Delta\omega = 2\left(\Gamma_0 + \nu + \tilde{\nu}\right)$. Соответственно тангенс угла наклона зависимости равен $tg\left(\alpha\right) = \dfrac{2\left(\nu + \tilde{\nu}\right)}{P}$.

При больших давлениях уширение столкновениями с изменением скорости перестает возрастать с ростом давления. Соответственно, тангенс угла наклона зависимости в этом диапазоне давлений равен $tg\left(\beta\right) = \dfrac{2\nu}{P}$.

Переход от одной линейной зависимости к другой происходит по-разному в зависимости от скорости спадания крыльев ядра интеграла столкновений.

Если крылья ядра интеграла столкновений спадают медленно, то при больших давлениях $\Delta\omega = \dfrac{1}{2}\left\{2\left(\Gamma_0 + \nu\right) + 2\left(\Gamma_0 + \nu\right) + 2k\sqrt{n}\Delta U\right\}$ и столкновения с изменением скорости дают постоянную независящую от давления добавку $2k \cdot \sqrt{n} \cdot \Delta U$, что соответствует верхней зависимости на рисунке.

Если крылья ядра интеграла столкновений спадают быстро, то $\Delta\omega = \dfrac{1}{2}\left\{2\left(\Gamma_0 + \nu\right) + \sqrt{\left(2\left(\Gamma_0 + \nu\right)\right)^2 + \left(2k\sqrt{n}\Delta U\right)^2}\right\}$ и при высоком давлении вклад столкновений с изменением скорости пропадает, так как $\sqrt{\left(2\left(\Gamma_0 + \nu\right)\right)^2 + \left(2k\sqrt{n}\Delta U\right)^2} \approx 2\left(\Gamma_0 + \nu\right)$. Корень квадратный из суммы квадратов примерно равен большему из двух слагаемых без квадрата.

Из экспериментального графика, кроме скорости спадания крыльев ядра интеграла столкновений, можно найти величины $2\Gamma_0$, $tg(\alpha)$, $tg(\beta)$, P_0, $k\sqrt{n}\,\Delta U$, как это сделано на рисунке приведенном выше.

Из следующих трех уравнений, используя измеренные по графику величины $2\Gamma_0$, $tg(\alpha)$, $tg(\beta)$, P_0, $k\sqrt{n}\,\Delta U$, можно найти такие параметры, как: $\frac{\nu}{P}$, $\frac{\tilde{\nu}}{P}$, ΔU.

$$\begin{cases} tg(\alpha) = \dfrac{2(\nu+\tilde{\nu})}{P} \\ tg(\beta) = \dfrac{2\nu}{P} \\ 2\Gamma_0 + P_0 \cdot tg(\alpha) = 2\Gamma_0 + k \cdot \sqrt{n} \cdot \Delta U + P_0 \cdot tg(\beta) \end{cases},$$

где $n \equiv \dfrac{\tilde{\nu}}{\Gamma_0 + \nu}$.

В области давлений, где зависимость ширины резонанса от давления нелинейная, форма резонанса заметно отличается от лоренцевской кривой.

Нестолкновительные причины уширения резонансов насыщения поглощения.

Эти уширения обычно рассматриваются, как паразитные, мешающие изучению молекулярных столкновений.

1). Уширение мощностью лазерного луча.

$\Delta\omega = \Gamma\left(1+\sqrt{1+G}\right)$ — ширина резонанса при одновременном изменении частот встречных волн. Здесь $G = \left(\dfrac{1}{\gamma_1}+\dfrac{1}{\gamma_2}\right)\cdot\dfrac{R^2}{2\Gamma}$ — фактор насыщения или безразмерная мощность сильной световой волны, $R = \dfrac{p\mathcal{E}_0}{\hbar}$ — частота Раби.

При одинаковой мощности встречных волн

$\Delta\omega \approx 2\Gamma\sqrt{1+G}$.

2). Пролетное уширение.

Любая молекула имеет составляющую скорости $V_\perp$ перпендикулярно пучку лучей. По этой причине молекула примерно за время $\tau \approx \dfrac{D}{V_\perp}$ пролетает через пучок, где D — диаметр пучка лучей. С точки зрения молекулы световое поле включается только на время τ пролета через луч, следовательно, световое поле в системе отсчета молекулы не монохроматично и имеет спектральную ширину $\Delta\omega_{пр} \approx \dfrac{1}{\tau} \approx \dfrac{V_\perp}{D}$. Ширина резонанса не может быть меньше

спектральной ширины излучения $\Delta\omega_{пр}$. Величину $\Delta\omega_{пр}$ называют пролетным уширением резонансов.

Пролетное уширение принципиально по-разному проявляется в двух предельных случаях, когда остальные уширения резонанса велики по сравнению с пролетным уширением и когда остальные уширения малы по сравнению с пролетным уширением. Второй случай называют пролетными условиями регистрации резонанса.

В первом случае, когда пролетное уширение мало, резонанс насыщения поглощения с учетом пролетного уширения представляет собой свертку двух контуров. Один из контуров — это резонанс без учета пролетных эффектов, второй — это спектральный контур линии излучения лазера уширенный конечным временем взаимодействия усредненной молекулы с лучом. Крылья спектрального контура могут спадать быстро или медленно, что определяется зависимостью интенсивности лазерного пучка лучей от координаты поперек луча. Соответственно ширина свертки (новая ширина резонанса) может быть получена из старой ширины $\Delta\omega$ по одной из двух формул $\sqrt{(\Delta\omega)^2 + (\Delta\omega_{пр})^2}$ или $\Delta\omega + \Delta\omega_{пр}$. Здесь $\Delta\omega_{пр} \approx \frac{U}{D}$ — усредненное по разным скоростям молекул пролетное уширение, $U = \sqrt{\frac{2k_Б T}{m}}$ — наиболее вероятная скорость молекул.

Во втором случае (в случае пролетных условий), когда пролетное уширение резонанса велико по сравнению с остальными уширениями, форма резонанса сильно отличается от лоренцевской. Резонанс представляет собой сумму контуров формируемых молекулами с разными значениями скорости поперек луча. Время пролета молекулы через луч обратно пропорционально этой поперечной скорости, а спектральная ширина резонанса прямо пропорциональна поперечной скорости. Следовательно, резонанс оказывается сформированным из контуров разной ширины. Причем узкие контуры имеют не просто бóльшую амплитуду, но даже бóльшую площадь. В результате ширина резонанса на половине его высоты в значительной мере определяется шириной резонанса для медленных молекул.

Вес узких резонансов можно дополнительно увеличить путем регистрации второй производной зависимости мощности света на приемнике от частоты генерации лазера. Сигнал такой формы получается при синхронном детектировании напряжения с приемника на удвоенной частоте модуляции частоты генерации лазера. Именно так регистрируются рекордно узкие резонансы насыщения поглощения.

Наиболее узкие резонансы, полученные экспериментально, имеют ширину десятки Герц.

На следующих рисунках приведена расчетная форма резонанса насыщения поглощения и вторая производная этой формы в случае, когда пролетным уширением можно пренебречь.

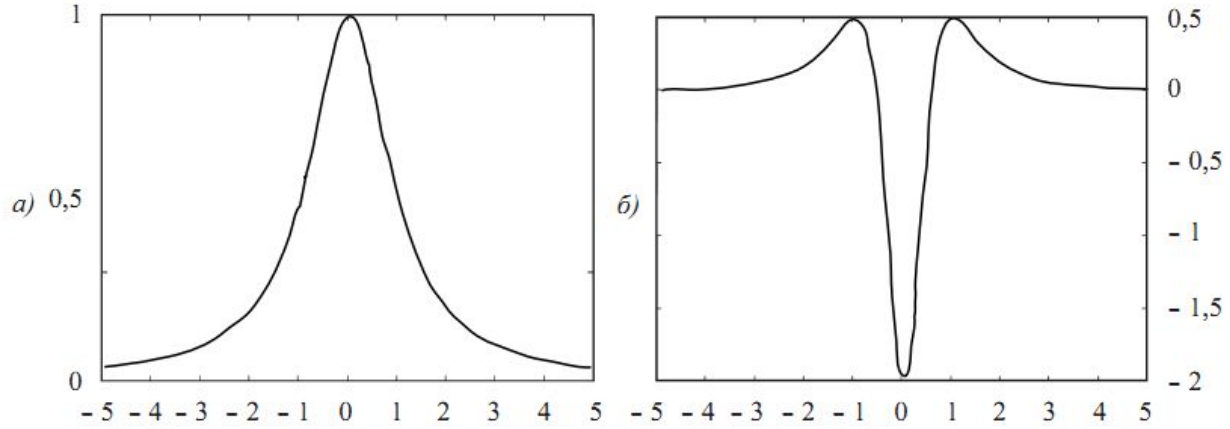
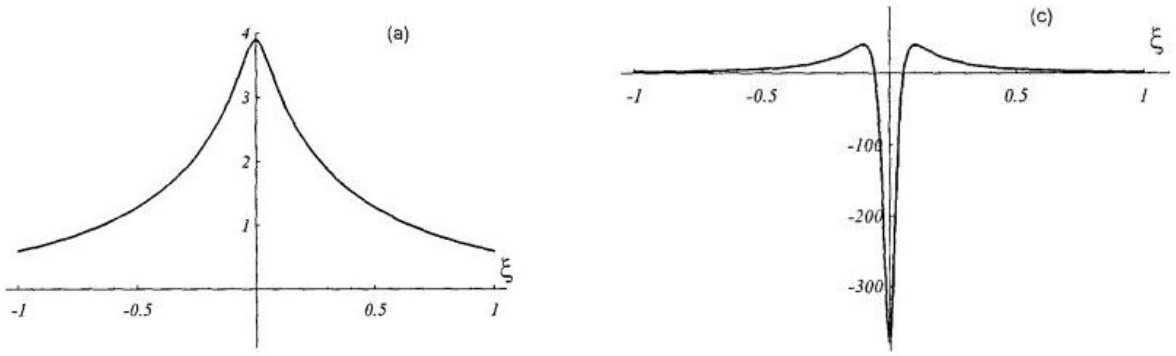


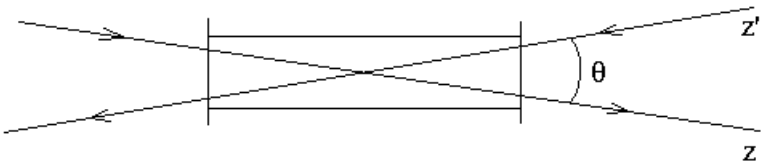
Рис. 5. Вид лоренцевского контура (*а*) и его второй производной (*б*)

Для сравнения приведем расчетную форму резонанса и его второй производной в пролетных условиях, рассчитанную в работе:

Chardonnet Ch., Guernet F., Charton G., Borde Ch.G. Ultrahigh-resolution saturation spectroscopy using slow molecules in an external cell. // Appl. Phys. B. 1994. V. 59. N. 3. P. 333-343.

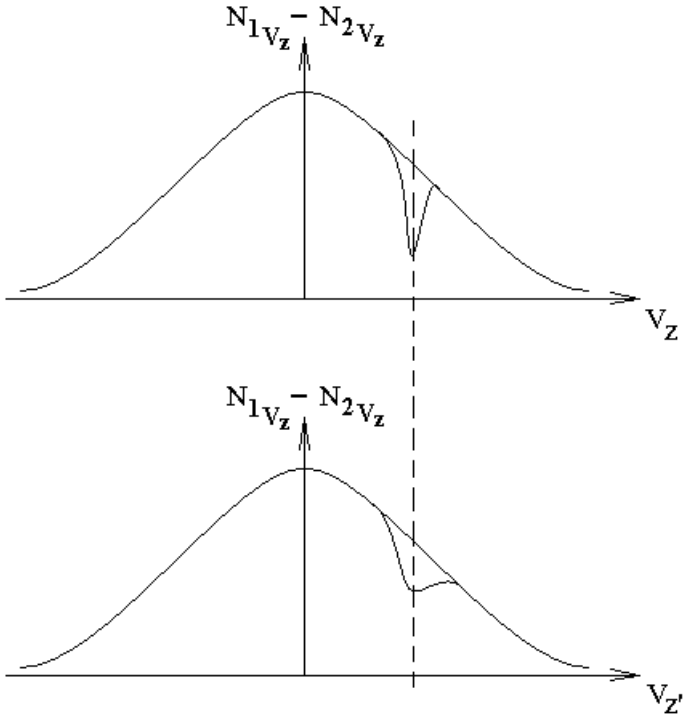


3). <u>Уширение резонансов углом между встречными волнами.</u>



Пусть встречные световые волны проходят кювету с исследуемым газом под углом θ друг к другу. Направим ось z вдоль сильной насыщающей поглощение световой волны, а ось z' навстречу пробной встречной световой волне.

Сильная световая волна выжигает провал Беннетта в распределении разности заселенностей уровней, как функции проекции скорости на ось z.



Если по оси z провал очень узкий, то по оси z' провал будет шире. Уширение вызвано тем, что на ось z' проектируется распределение молекул по скоростям в плоскости перпендикулярной оси z.

Это уширение углом имеет величину

$\Delta\omega_{\angle} = \Delta\omega_{Д} \cdot \sin(\theta) \approx 2kU \cdot \theta$, где $\Delta\omega_{Д}$ — доплеровская ширина спектральной линии, $k = \dfrac{2\pi}{\lambda}$ — волновое число, U — наиболее вероятная скорость молекул, θ — угол между встречными волнами.

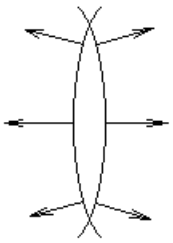
Крылья доплеровского контура и, следовательно, крылья его проекции спадают быстро, поэтому ширина нового провала Беннетта равна корню квадратному из старой ширины и уширения углом $\sqrt{(\Delta\omega_{Б})^2 + (\Delta\omega_{\angle})^2}$, а ширина резонанса:

$\Delta\omega = \dfrac{1}{2}\left\{\Delta\omega_{\sigma} + \sqrt{(\Delta\omega_{Б})^2 + (\Delta\omega_{\angle})^2}\right\}$, где $\Delta\omega_{\sigma}$ — ширина сечения поглощения, $\Delta\omega_{Б}$ — ширина старого провала Беннетта.

4). Уширение сферичностью встречных волн.

Есть две причины уширения сферичностью встречных световых волн.

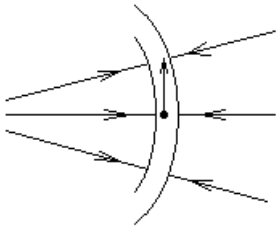
Первая причина проявляется, если встречная волна формируется в результате отражения света от плоского зеркала. В этом случае выпуклости фронтов встречных волн направлены навстречу друг другу:



,

что приводит к тому, что угол между встречными волнами изменяется при перемещении поперек пучка лучей. Отличный от нуля средний угол между встречными волнами приводит к соответствующему уширению резонансов углом между встречными волнами.

Вторая причина уширения резонансов проявляется даже в том случае, если угол между встречными волнами нулевой во всех точках пучка лучей:



.

В этом случае, если молекула сначала движется перпендикулярно встречным световым волнам, как и нужно для формирования резонанса, то по мере прямолинейного движения скорость молекулы перестает быть перпендикулярной свету. Уширение резонанса в этом случае является комбинацией пролетного уширения и уширения углом между встречными волнами.

5). Квадратичный эффект Доплера.

Если устранены все другие аппаратные причины уширения резонансов насыщения поглощения, то последняя неустранимая причина — это квадратичный эффект Доплера.

Пусть встречные световые волны имеют одинаковую частоту ω в лабораторной системе отсчета, тогда в приближении линейного эффекта Доплера их частоты в системе отсчета молекулы будут равны:

$$\begin{cases} \omega_1' = \omega - kV_z = \omega\left(1 - \dfrac{V_z}{c}\right) \\ \omega_2' = \omega + kV_z = \omega\left(1 + \dfrac{V_z}{c}\right) \end{cases}.$$

Если учитывать эффект Доплера без ограничения на линейное приближение, то формулы для частот встречных волн в системе отсчета молекулы примут следующий вид:

$$\begin{cases} \omega_1' = \omega \dfrac{1 - \dfrac{V_z}{c}}{\sqrt{1 - \dfrac{V^2}{c^2}}} \\ \omega_2' = \omega \dfrac{1 + \dfrac{V_z}{c}}{\sqrt{1 - \dfrac{V^2}{c^2}}} \end{cases}.$$

В условиях резонанса просветления среды обе частоты встречных волн в системе отсчета молекулы равны частоте перехода ω_{21}:

$$\begin{cases} \omega \dfrac{1 - \dfrac{V_z}{c}}{\sqrt{1 - \dfrac{V^2}{c^2}}} = \omega_{21} \\ \omega \dfrac{1 + \dfrac{V_z}{c}}{\sqrt{1 - \dfrac{V^2}{c^2}}} = \omega_{21} \end{cases}.$$

Оба равенства одновременно могут быть выполнены только при условии $V_z = 0$. Тогда

$$\omega = \omega_{21}\sqrt{1 - \frac{V^2}{c^2}} = \omega_{21}\sqrt{1 - \frac{V_\perp^2}{c^2}}.$$

Для каждого значения величины составляющей скорости молекулы в плоскости перпендикулярной лучу $V_\perp$ резонанс наступает на своей частоте $\omega = \omega_{21}\sqrt{1 - \dfrac{V_\perp^2}{c^2}}$ лазерного излучения.

Это приводит к уширению резонанса с относительной величиной:

$\dfrac{\delta\omega_{кв}}{\omega} \approx \dfrac{U^2}{c^2}$, где $U \approx 300\dfrac{м}{с}$ — наиболее вероятная скорость молекул при комнатной температуре, $c = 3*10^8\,\dfrac{м}{с}$ — скорость света в пустоте. Тогда

$$\frac{\delta\omega_{кв}}{\omega} \approx 10^{-12}.$$

Для видимого света $\lambda \approx 0.5 мкм$ => $\nu = \dfrac{c}{\lambda} = 6*10^{14}\,Гц$ =>

$\delta\nu_{кв} \approx 600\,Гц$.

Интересно отметить, что в пролетных условиях, когда основной вклад в резонанс вносят молекулы, движущиеся с малыми скоростями перпендикулярно лучу, оказывается подавлен и квадратичный эффект Доплера.

Резонансы с шириной в десятки Герц экспериментально наблюдаются только в инфракрасной области спектра, а в ближней инфракрасной области — только при охлаждении газа.

Уменьшение уширения резонансов, вызванного квадратичным эффектом Доплера возможно только путем охлаждения исследуемого газа.

В ниже следующей работе приведен расчет формы второй производной резонанса в пролетных условиях с учетом квадратичного эффекта Доплера и экспериментальная зависимость.

Bagayev S.N., Chebotayev V.P., Dmitriyev A.K., Om A.E., Nekrasov Yu. V., Skvortsov B.N. Second-order Doppler-free spectroscopy. // Appl. Phys. B. 1991. V. 52. N. 1. P. 63-66.

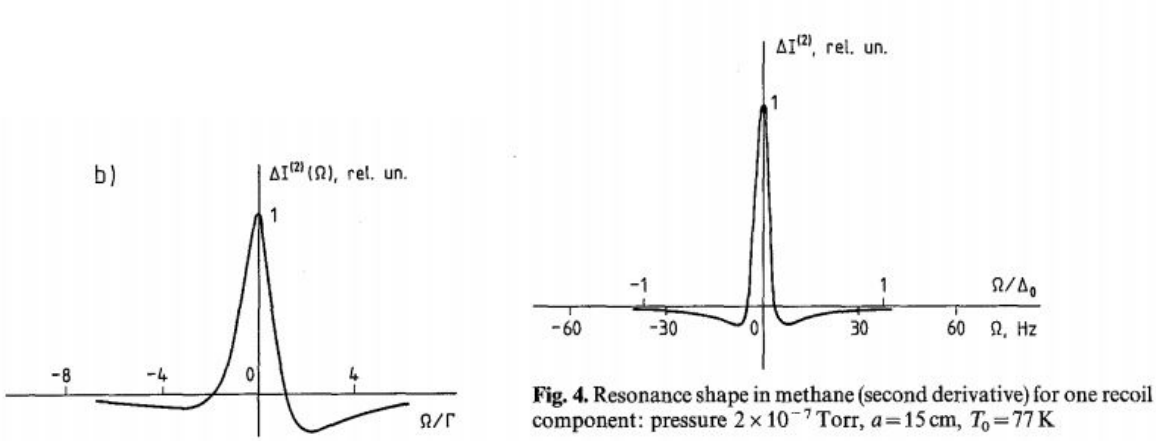
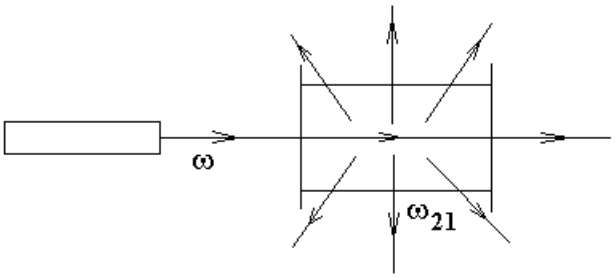


Fig. 4. Resonance shape in methane (second derivative) for one recoil component: pressure 2×10^{-7} Torr, $a = 15$ cm, $T_0 = 77$ K

Лазерное охлаждение.

Радиационное давление (доплеровское охлаждение).

Рассмотрим оптическую схему опыта.



Пусть частота излучения лазера ω меньше центральной частоты линии поглощения ω_{21}, но их разница не превышает доплеровскую ширину спектральной линии. Поглощенный средой свет частично переизлучается вдоль луча, и частично излучается спонтанно равновероятно во все стороны. Нас будет интересовать только спонтанное излучение во все стороны.

Для атомов резонансно поглощающих свет:

$$\begin{cases} \omega < \omega_{21} \\ \omega - kV_z = \omega_{21} \end{cases} \quad => \quad V_z = \frac{\omega - \omega_{21}}{k} < 0.$$

То есть свет поглощают атомы, летящие навстречу лучу.

В этом случае происходит лазерное охлаждение газа.

Явление охлаждения можно объяснить двумя способами.

1). Объяснение лазерного охлаждения через рассмотрение импульса.

Свет поглощается атомами, летящими навстречу лучу. При поглощении света атомы испытывают отдачу и замедляются. То есть импульс фотона складывается с лучевой проекцией импульса атома, и в результате лучевая проекция импульса уменьшается по модулю. Проекции импульса атома перпендикулярные лучу не изменяются, поэтому модуль импульса атома тоже уменьшается.

При излучении света атомы газа снова испытывают отдачу, но спонтанное излучение равновероятно по направлениям. Поэтому импульс атома при излучении фотона почти равновероятно уменьшается и увеличивается.

В результате двух актов, поглощения фотона и спонтанного излучения фотона, модуль импульса атома в среднем уменьшается. Уменьшение импульса — это уменьшение кинетической энергии атомов, а средняя кинетическая энергия связана с температурой соотношением $\langle E_{кин} \rangle = \frac{3}{2} k_Б T$. Уменьшение кинетической энергии атомов — это охлаждение газа.

2). Объяснение лазерного охлаждения через рассмотрение энергии.

Частота генерации лазера по условию эксперимента меньше частоты перехода $\omega < \omega_{21}$. Следовательно, $\hbar\omega < \hbar\omega_{21}$, где $\hbar\omega$ — энергия поглощенного фотона, а $\hbar\omega_{21}$ — средняя энергия излученного фотона, которая имеет одинаковую величину в системе отсчета атома и в лабораторной системе отсчета.

И действительно. В системе отсчета атома поглощается и излучается одна и та же энергия $\hbar\omega_{21}$, но при переходе в лабораторную систему отсчета поглощаемый и излучаемый свет испытывают разный доплеровский сдвиг. Излучаемый атомом свет произвольным образом ориентирован относительно скорости атома, поэтому доплеровский сдвиг частоты излучения при переходе в лабораторную систему отсчета почти равновероятен в сторону уменьшения и в сторону увеличения частоты. Частота излучения, при этом, в системе отсчета атома равна ω_{21}, а в лабораторной системе отсчета частота излучения в среднем равна ω_{21}.

Поглощается свет лазера с частотой $\omega < \omega_{21}$, так как другой частоты в излучении лазера нет по условию. В результате на каждой паре процессов поглощения и излучения света атом в лабораторной системе отсчета получает

энергию $\hbar\omega$ меньше, чем в среднем излучает $\hbar\omega_{21}$. Атом в среднем теряет энергию, и газ охлаждается.

Назовем радиационным давлением ситуацию, когда свет поглощается атомом из одного направления, а излучается во всех направлениях равновероятно.

Этим методом удалось охладить атомы до температуры $T = 5 \cdot 10^{-4} K$. Вероятно, предел охлаждения определяется тем, что доплеровское охлаждение происходит слишком медленно. Кроме того, однородная (лоренцевская) ширина спектральной линии $\Delta\nu$ ограничивает охлаждение $h\Delta\nu = k_Б T$ величиной примерно $T = 10^{-4} K$.

Рассмотрим теоретический предел доплеровского охлаждения.

Качественно предел охлаждения связан с тем, что при низкой температуре при поглощении фотона атом может совсем остановиться за счет отдачи. Тогда при излучении фотона атом снова приобретет прежний импульс, и температура газа не уменьшится.

В этом случае импульс фотона $\frac{h\nu}{c}$ равен импульсу атома p. Через средний импульс атома можно выразить кинетическую энергию атома $\frac{p^2}{2m}$, которая связана с температурой газа:

$$\frac{p^2}{2m} = \frac{3}{2} k_Б T .$$

Подставим сюда импульс фотона $p = \frac{h\nu}{c}$ и получим $T = \frac{h^2\nu^2}{3k_Б mc^2}$.

Подставим численные значения:

$mc^2 \approx A \cdot 10^9 \, эВ \approx A \cdot 1.6 \cdot 10^{-10} \, Дж$, где A — вес атома в атомных единицах. Например, для атома водорода $A = 1$.

$h\nu \approx 6.6 \cdot 10^{-34} \cdot 6 \cdot 10^{14} \approx 4 \cdot 10^{-19} \, Дж$,

$k_Б \approx 1.38 \cdot 10^{-23} \frac{Дж}{K}$, тогда

$$T_{\min} \approx \frac{1}{3} \cdot \frac{1.6 \cdot 10^{-38}}{A \cdot 1.6 \cdot 10^{-10} \cdot 1.38 \cdot 10^{-23}} \approx \frac{1}{40000 A} (K).$$

Найдем, какая скорость атомов соответствует этой температуре:

$$U = \sqrt{\frac{2k_Б T}{m}} \approx \frac{0.6}{\sqrt{A}} \left(\frac{м}{с} \right).$$

Еще одна идея охлаждения.

Дальнейшее охлаждение газа возможно по принципу охлаждения открытого стакана с водой. С поверхности воды вылетают преимущественно молекулы, которые случайно получили бóльшую энергию, чем средняя энергия молекул воды. В таком случае средняя энергия оставшихся молекул уменьшается, и температура воды в стакане оказывается меньше температуры окружающего воздуха.

Роль стакана при лазерном охлаждении играет потенциальная яма. Объемная решетка из таких потенциальных ям создается в пространстве шестью лазерами, которые парами светят навстречу друг другу, формируя три взаимно ортогональных стоячих волны. Атомы втягиваются в пучности светового поля, так как энергия наведенного диполя в электрическом поле равна $W=-\frac{1}{2}\left(\vec{p},\vec{E}\right)$. Наведенный световым полем диполь пропорционален полю $\vec{p}=\alpha\vec{E}$. Тогда энергия наведенного диполя в световом поле $W=-\frac{1}{2}\alpha p^2$. Сила равна минус градиенту потенциальной энергии $\vec{F}=-\vec{\nabla}W=\frac{1}{2}\alpha\cdot\vec{\nabla}\left(E^2\right)$. Градиент E^2 направлен в сторону увеличения электрического поля, то есть атом втягивается в поле световой волны.

Таким образом, шесть лазеров формируют систему потенциальных ям, в которых скапливаются атомы охлажденного лазером газа.

Как оказалось если встречные волны сфокусировать, то в шейке каустики может получиться более эффективная потенциальная яма за счет штарковского сдвига уровней энергии в световом поле.

Излучение лазеров при этом далеко отстоит по частоте от линии поглощения газа. То есть обсуждаемое выше лазерное охлаждение газа прекращено.

В каждой пучности светового поля собирается много атомов газа. Атомы, находясь в потенциальной яме, толкают друг друга. Получая случайным образом в результате столкновений достаточную энергию, атом вылетает из потенциальной ямы, унося с собой энергию выше среднего уровня энергии атома в яме.

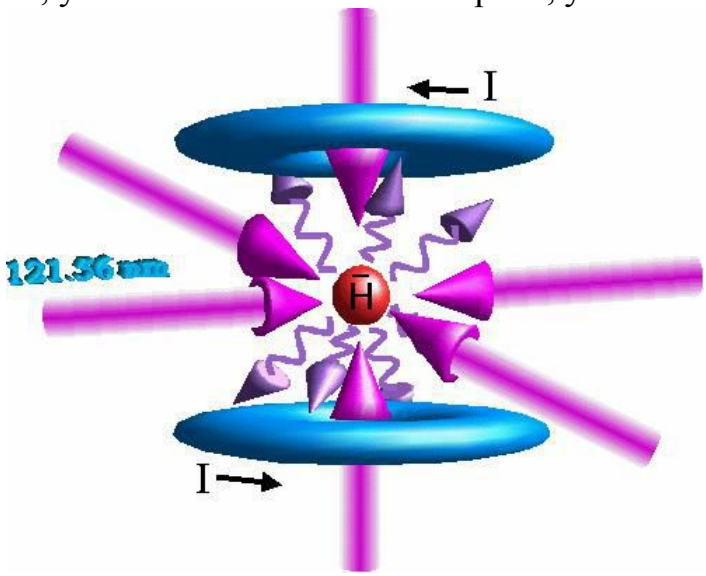
Тогда у атомов, оставшихся в потенциальной яме, уменьшается средняя энергия, и газ в этой потенциальной яме испытывает дальнейшее охлаждение. Лишние атомы откачиваются насосом.

Оптическая патока.

Другой метод охлаждения основан на использовании встречных световых волн одинаковой частоты и амплитуды. Пусть, как и раньше, выполняется неравенство $\omega<\omega_{21}$. В этом случае разность частот можно сравнивать не только с доплеровской шириной спектральной линии, но и с лоренцевской (однородной) шириной спектральной линии одиночного атома. Если атом покоится, то встречные волны оказывают одинаковое радиационное давление, и давление можно не учитывать. Если атом движется, то встречные волны имеют

разный по знаку доплеровский сдвиг при переходе в систему отсчета атома. Встречная световая волна оказывается ближе по частоте к частоте перехода ω_{21}, и оказывает большее радиационное давление. То есть для атома возникает сила, направленная против скорости и пропорциональная скорости — это сила вязкого трения.

Три пары лазеров во взаимно ортогональных направлениях создают вязкое трение при движении атома в любом направлении. Атомы тормозятся, их скорость убывает, убывает кинетическая энергия, убывает температура газа.



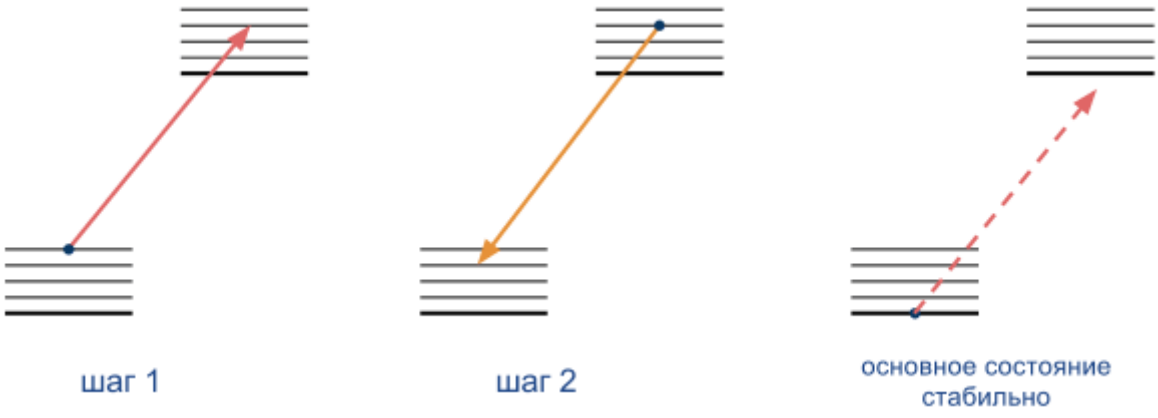
Доплеровскому трению, как и любому вязкому трению, неизбежно сопутствуют флуктуации, в нашем случае — флуктуации излучения атома. Эти флуктуации определяют предел охлаждения $h\Delta\nu = k_B T$ примерно $T = 10^{-4} K$, где $\Delta\nu$ — однородная (лоренцевская) ширина спектральной линии.

Можно сфокусировать встречные нерезонансные волны. Атом будет втягиваться в сильное поле. Это будет лазерная ловушка.

Метод боковой полосы.

Атом в ловушке имеет колебательные уровни энергии.

На рисунке колебательные подуровни нижнего и верхнего состояний. Пусть лазерное излучение в резонансе с переходом, в котором колебательное квантовое число уменьшается на 1.



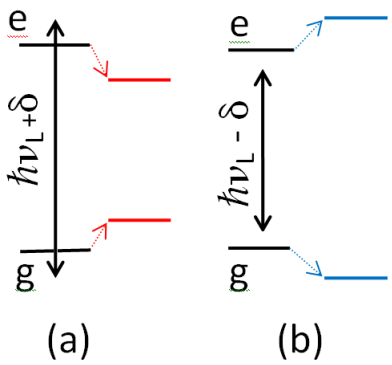
В излучении наиболее вероятен переход без изменения колебательного квантового числа. В результате происходит оптическая накачка состояния с нулевым колебательным квантовым числом, в котором кинетическая энергия минимальна — охлаждение.

Метод боковой полосы позволяет достигать температур примерно $T = 10^{-5} K$.

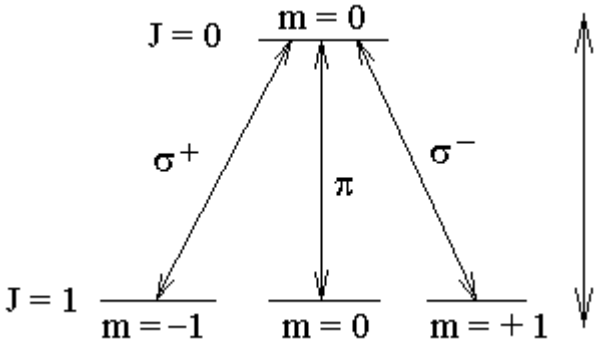
Сизифово охлаждение.

Рассмотрим две встречные световые волны с ортогональными линейными поляризациями. При их сложении в разных точках вдоль луча где-то возникает σ^+ компонента света, где-то — σ^-, а где-то линейная компонента.

Компоненты σ^+ и σ^- в разной мере сдвигают один и тот же магнитный подуровень за счет динамического эффекта Штарка (эффект Штарка в световом поле).

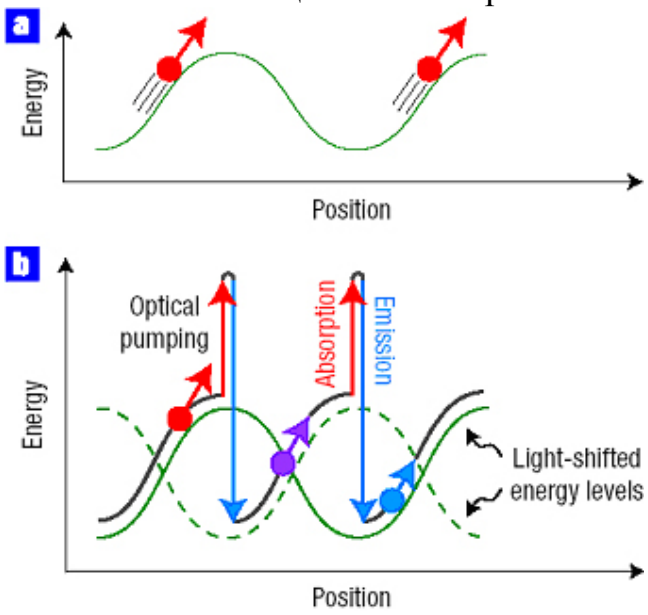


Пусть нижний уровень имеет квантовое число момента импульса $J = 1$, а верхний — $J = 0$.



Тогда σ^+ компонента поглощается только с подуровня m = -1 нижнего уровня энергии, а σ^- — с подуровня m = +1. При движении атома

интенсивность σ^+ компоненты света изменяется гармонически, интенсивность σ^- компоненты тоже изменяется гармонически, но со сдвигом фазы π. За счет динамического эффекта Штарка каждый подуровень энергии тоже сдвигается гармонически, и подуровни сдвигаются в противофазе. Атом, находясь на одном подуровне, двигается по потенциальным горкам.



При перемещении вдоль луча интенсивность сигма компонент изменяется в противофазе. Соответственно, нижние подуровни m = ±1, с которых идет поглощение разных сигма компонент, сдвигаются динамическим эффектом Штарка в противофазе.

Пусть произведение частоты света на постоянную Планка, несколько больше частоты перехода между несдвинутых светом уровней энергии. Тогда динамический эффект Штарка сдвигает нижний уровень поглощающего свет перехода вверх, а верхний — вниз. Максимальное поглощение соответствует максимальной интенсивности света нужной компоненты и происходит из верхней части траектории нижнего подуровня. А излучение может быть и на другой подуровень, который в этом месте пространства будет ниже.

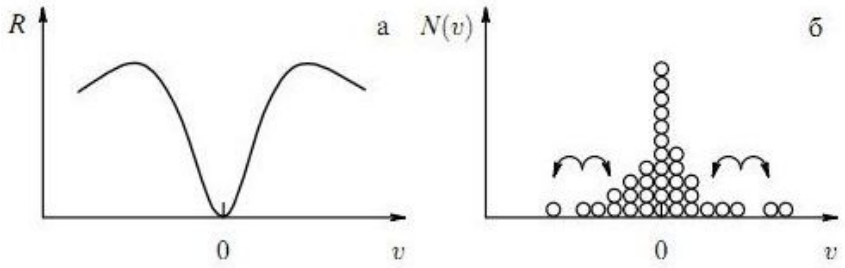
Это соответствует рисунку *b*. Атом постоянно двигается в потенциальную горку. Это его тормозит. Уменьшается скорость атома, это охлаждение.

Если рассмотреть систему уровней с нижним уровнем $J=\frac{1}{2}$ и верхним $J=\frac{3}{2}$, то с учетом вероятностей различных переходов можно показать, что охлаждение будет и при условии, что частота облучающего света чуть меньше частоты перехода.

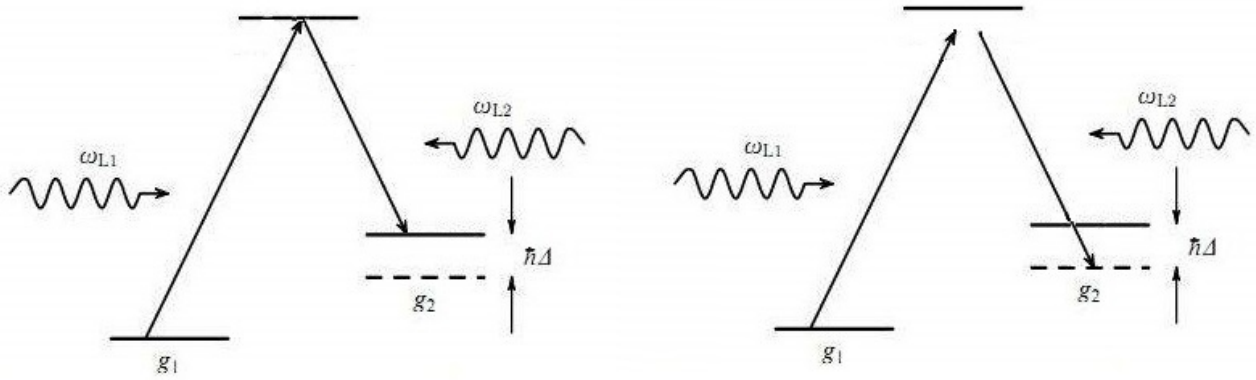
Сизифово охлаждение реализует гораздо более низкие температуры $T=10^{-5}K$, чем оптическая патока $T=10^{-4}K$.

Селективное по скоростям когерентное пленение населенностей.

Если в трубе с песком создать стоячую звуковую волну, то песчинки собираются в узлы этой волны.



Аналогично с атомами в световом поле. Если создать условия такие, что при нулевой скорости атомов не будет взаимодействия со световым полем, то атомы, случайно попадая в это состояние, будут в нем накапливаться. Пусть при нулевой скорости атомов реализуется ситуация, когда обе встречные волны в резонансе с двумя переходами.



Если встречные волны имеют разную частоту, то и доплеровские сдвиги при движении атома тоже будут разными. В результате для движущегося атома поглощение одного фотона и излучение другого приведет к разбалансу энергий. Этот разбаланс может быть передан в кинетическую энергию атома при столкновении атомов. В результате поле толкает движущиеся атомы и не взаимодействует с неподвижными атомами. То есть атомы с нулевой скоростью не взаимодействуют с полем.

Результаты экспериментов: $T = 10^{-8} K$.