

ЭФФЕКТ ШТАРКА В ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ ПРИ ВОЗБУЖДЕНИИ КОРОТКИМ СВЕТОВЫМ ИМПУЛЬСОМ

Б. Б. Авербух и Р. И. Соколовский

Изучается эффект Штарка в люминесценции в поле короткого светового импульса в газе. В предположении равенства групповых скоростей взаимодействующих волн найдены спектр и форма импульса люминесценции. Обсуждается влияние модуляции показателя преломления газа импульсом накачки на спектральные характеристики люминесценции.

Одной из задач нелинейной оптики является исследование взаимодействия световых потоков, резонансных смежным переходам в атомных системах. На этом пути было получено много интересных экспериментальных и теоретических результатов [1-5]. К настоящему времени довольно подробно изучено взаимодействие монохроматических волн, а в направлении изучения взаимодействия нестационарных световых потоков сделаны лишь первые шаги [4, 6]. Последний класс задач интересен еще и тем, что характеристики люминесценции на смежном переходе определяются не только поведением отдельных атомов и молекул в сильном поле, а еще и особенностями распространения в среде коротких световых импульсов. Спектр люминесценции становится зависимым не только от штарковских сдвигов атомных уровней, а еще и от характеристик импульса люминесценции и изменения показателя преломления, вызванного сильным электромагнитным полем (фазовая модуляция). При определенных условиях вклад этих явлений в изменение спектра становится преобладающим и перекрывает штарковские сдвиги.

В настоящей работе изучаются характеристики люминесценции на переходе $m-l$ (рис. 1), возбуждаемой коротким световым импульсом, резонансным переходу $m-n$. Исследуется совместное влияние на спектр люминесценции эффекта Штарка и явления сокращения длительности импульса и показывается, что эффект Штарка может быть использован для дальнейшего сжатия импульса люминесценции.

Пусть возбуждающий импульс

$$E(t, z) = \varepsilon(t, z) e^{i(\omega t - kz)} + \text{к. с.} \quad (1)$$

с центральной частотой ω и волновым вектором k распространяется вдоль оси z и резонансен атомному переходу $m-n$ между основным и первым возбужденным уровнями (рис. 1). Поле, резонансное переходу $m-l$, также представим в виде

$$E_p(t, z) = \varepsilon_p(t, z) e^{i(\omega_p t - k_p z)} + \text{к. с.}, \quad (2)$$

где ω_p — центральная частота, k_p — соответствующий волновой вектор. Импульс (2) считаем слабым и в расчетах учитываем только первый порядок теории возмущений по полю (2) (приближение заданного поля [7, 8]).

Предположим, что длительность импульса (1) много меньше времени релаксации уровня m , а его мощность достаточна для появления нелинейных явлений. Будем также считать, что расстройка $\Omega = \omega - \omega_{mn}$ частоты импульса накачки от линии поглощения настолько велика, что импульс медленно меняется на временах порядка $1/\Omega$. В этом случае для разности населенностей $\Delta = \rho_{mm} - \rho_m$ и амплитуды импульса (1) получаются выражения [9]

$$\Delta = \Delta_0 \left(1 + \frac{4 |D^{mn} \mathcal{E}|^2}{\hbar \Omega^2} \right)^{-1/2},$$

$$\mathcal{E}(t, z) = \mathcal{E}_0 [t - (z/u)] e^{i\varphi}, \quad \varphi = \frac{-2\pi\omega |D^{mn}|^2 N \Delta z}{\hbar c \Omega}, \quad (3)$$

где N — число атомов в единице объема, Δ_0 — начальное значение разности населенностей, D^{mn} — матричный элемент перехода $m-n$, u — групповая скорость поля (1).

Физический смысл решения (3) весьма прозрачен. Далеко от резонанса поглощения энергии не происходит, поэтому огибающая формы импульса не меняется. Показатель же преломления зависит от поля, что приводит к явлению фазовой самомодуляции.

Рассмотрим теперь поле E_μ на смежном переходе. Положим расстройку $\Omega_\mu = \omega_\mu - \omega_{ml}$ его частоты от частоты перехода ω_{ml} равной Ω и будем считать, что амплитуда $\mathcal{E}_\mu(t, z)$ медленно меняется на отрезках времени порядка $(\Gamma^2 + \Omega^2)^{1/2}$. Считая, что $|\Omega| \gg \Gamma$ и насыщение достаточно мало ($\Delta \simeq -1$), получим следующую систему уравнений, описывающую изменение $\mathcal{E}_\mu(t, z)$:

$$\frac{\partial \mathcal{E}_\mu}{\partial z} + \frac{1}{u_\mu} \frac{\partial \mathcal{E}_\mu}{\partial t} + i\delta [t - (z/u)] \mathcal{E}_\mu = i \frac{2\pi\omega_\mu N D^{ml} D^{mn}}{\hbar c \Omega} \mathcal{E} \rho_k, \quad (4)$$

$$\frac{\partial \rho_k}{\partial t} + \left\{ \Gamma - i \frac{|D^{mn} \mathcal{E}|^2}{\hbar^2 \Omega} \right\} \rho_k = -i \frac{D^{lm} D^{mn}}{\hbar^2 \Omega} \mathcal{E}^* \mathcal{E}_\mu, \quad (5)$$

$$\delta [t - (z/u)] = 2\pi\omega_\mu |D^{ml}|^2 N z / \hbar c \Omega,$$

где $\Gamma = \Gamma_{ml}$ — константа релаксации, u_μ — групповая скорость поля (2), D^{ml} — матричный элемент перехода $m-l$, ρ_k пропорционально элементу матрицы плотности для запрещенного перехода

$$\rho_{ln} = \rho_k e^{i[(\omega_\mu - \omega) t - (k_\mu - k) z]} = \rho_k e^{-i(k_\mu - k) z},$$

$\chi = |D^{mn} \mathcal{E}|^2 / \hbar^2 \Omega^2$ — параметр насыщения. Член $i\delta [t - (z/u)] \mathcal{E}_\mu$ в уравнении (4) описывает фазовый сдвиг, связанный с изменением показателя преломления под влиянием поля накачки, а слагаемое $-i |D^{mn} \mathcal{E}|^2 \rho_k / \hbar^2 \Omega$ в уравнении (5) — штарковский сдвиг виртуального уровня в поле накачки. При $\Omega \approx 10^{13}$ сек.⁻¹ и полях накачки меньше 10 Мвт/см² насыщение χ остается малым ($\chi \ll 1$), хотя штарковский сдвиг может быть на порядок больше ширины линии ($\chi \Omega \geq \Gamma$) и его необходимо учитывать. Экспериментально такие условия реализуются в парах металлов ($N \sim 10^{16}$) в поле рубинового лазера [10]. Для $\chi \leq 10^{-2}$ членом $i\delta [t - (z/u)] \mathcal{E}_\mu$ в уравнении (4) можно пренебречь на расстояниях $z \ll 300$ см, так как набег фазы на таких длинах много меньше π . В этих предположениях и в условиях группового синхронизма ($u = u_\mu$) система уравнений (4), (5) легко интегрируется. Для амплитуды поля $\mathcal{E}_\mu(t, z)$ получается выражение

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_\mu(\xi, z) = & \mathcal{E}_\mu(\xi, 0) + \beta z \mathcal{E}(\xi) \int_{-\infty}^{\xi} \frac{I_1 \left(2 \sqrt{\beta z \int_{\xi'}^{\xi} \mathcal{E}_0^2(\xi'') d\xi''} \right)}{\sqrt{\beta z \int_{\xi'}^{\xi} \mathcal{E}_0^2(\xi'') d\xi''}} \times \\ & \times \frac{\mathcal{E}_\mu(\xi', 0)}{\mathcal{E}_\mu(\xi', 0)} |\mathcal{E}(\xi')|^2 \exp \left\{ -\Gamma(\xi - \xi') + i \frac{|D^{mn}|^2}{\hbar^2 \Omega} \int_{\xi'}^{\xi} \mathcal{E}_0^2(\xi'') d\xi'' \right\} d\xi'. \end{aligned} \quad (6)$$

где $I_1(x)$ — функция Бесселя первого порядка от мнимого аргумента, $\xi = t - (z/u)$,

$$\beta = 2\pi\omega_{\mu} N |D^{lm}|^2 |D^{mn}|^2 / \hbar^3 c \Omega^2,$$

Если $\beta z \bar{\epsilon}^2 \tau \gg 1$ и $\beta z \bar{\epsilon}^2 > \Gamma$ ($\bar{\epsilon}$ — среднее значение поля импульса накачки), подынтегральная функция в формуле (6) резко возрастает в зависимости от энергии импульса накачки, протекшей к данному моменту

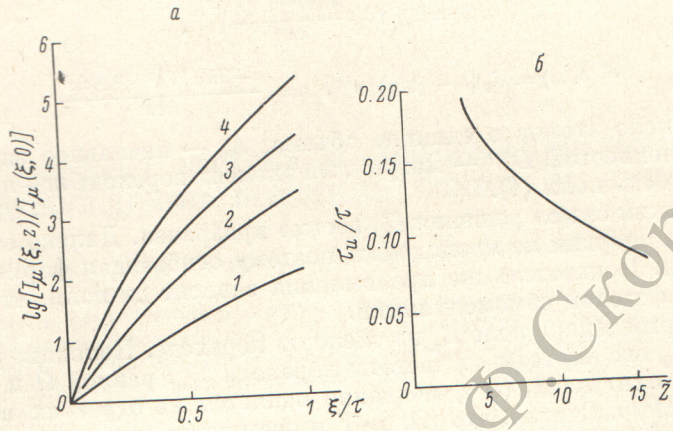


Рис. 2.

a — 1 — $\bar{z}=4$, 2 — 8, 3 — 12, 4 — 16.

времени через сечение пучка с координатой z . Следовательно, импульс люминесценции должен сжиматься. Спектр же его сдвигается на величину $\Delta\omega \approx |D^{mn}\bar{\epsilon}|^2 / \hbar^2 \Omega$. Для иллюстрации выберем накачку в форме прямоугольного импульса. время нарастания фронтов которого должно быть много меньше $\tau \leq 10^{-10}$ сек., но много больше $1/\Omega \approx 10^{-13}$ сек., и рассмотрим некоторые частные случаи.

При слабом насыщении ($\Omega \approx 10^{14}$ сек. $^{-1}$, $\chi \approx 10^{-5} \div 10^{-6}$, $\tau \approx 10^{-10}$ сек., $N \approx 10^{-16}$, что соответствует накачке $0.1 \div 1$ Мвт/см 2) можно пренебречь штарковским сдвигом ($\chi\Omega \ll \Gamma$). Полагая, что $\mathcal{E}_{\mu}(\xi, 0)$ слабо меняется за время τ , получим следующее выражение для коэффициента усиления:

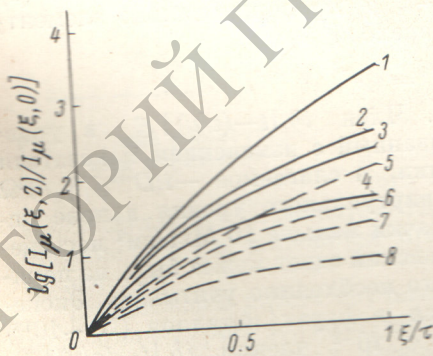


Рис. 3.

1 — $\bar{z}=8$, $\Gamma\tau=0$; 2 — $\bar{z}=8$, $\Gamma\tau=1.6$; 3 — $\bar{z}=8$, $\Gamma\tau=2$; 4 — $\bar{z}=8$, $\Gamma\tau=4$; 5 — $\bar{z}=4$, $\Gamma\tau=0$; 6 — $\bar{z}=4$, $\Gamma\tau=0.8$; 7 — $\bar{z}=4$, $\Gamma\tau=2$; 8 — $\bar{z}=4$, $\Gamma\tau=4$.

$$\frac{I_{\mu}(\xi, z)}{I_{\mu}(\xi, 0)} = \left[1 + \beta z |\bar{\epsilon}|^2 \int_0^{\xi} \times \frac{I_1(2\sqrt{\beta z |\bar{\epsilon}|^2 (\xi - \xi')})}{\sqrt{\beta z |\bar{\epsilon}|^2 (\xi - \xi')}} e^{-\Gamma(\xi - \xi')} d\xi' \right]^2. \quad (7)$$

Графики логарифма от функции (7) для различных значений $\bar{z} = \beta z |\bar{\epsilon}|^2 \tau$ и $\Gamma = 0$ приведены на рис. 2, а. Их анализ показывает, что импульс люминесценции быстро сжимается с ростом \bar{z} . На рис. 2, б дана зависимость длительности импульса по полуширине, как функция \bar{z} при $\Gamma = 0$. Влияние параметра $\Gamma\tau$ на форму импульса показано на рис. 3. С ростом Γ импульс становится пологим, ширина его растет. Процесс сжатия импульса замедляется.

Импульс люминесценции обычно формируется из шума, который может меняться достаточно быстро в течение импульса накачки. Пусть, на-

пример, случайное поле представляет собой последовательность статистически независимых прямоугольных импульсов длительностью $\tau_0 \ll \tau$ и равной амплитуды. В этом случае для получения интенсивности усиленного поля $\mathcal{E}_\mu(\xi, z)$ надо просто сложить интенсивности отдельных усиленных импульсов. При этом форма импульса люминесценции от прямоугольного импульса, центр которого приходится на момент времени ξ' , дается формулой ($\Gamma=0$, $\beta z |\mathcal{E}|^2 \tau \gg 1$)

$$\frac{I_\mu(\xi, z)}{I_\mu(\xi, 0)} = \left[1 + \beta z |\mathcal{E}|^2 \tau_0 \frac{I_1(2\sqrt{\beta z |\mathcal{E}|^2 (\xi - \xi')})}{\sqrt{\beta z |\mathcal{E}|^2 (\xi - \xi')}} \right]^2. \quad (8)$$

Графики функции (8) для двух импульсов с $\xi'/\tau=0.1, 0.5$ (кривые 1, 2 соответственно) приведены на рис. 4. На этом же рисунке изображен импульс (кривая 3), полученный усилением последовательности статистически независимых прямоугольных импульсов длительностью $\tau_0=0.1 \tau$ с интервалом следования 0.1τ . Как видно из рис. 4, в среде в этом случае формируется очень короткий импульс с формой, близкой к треугольной.

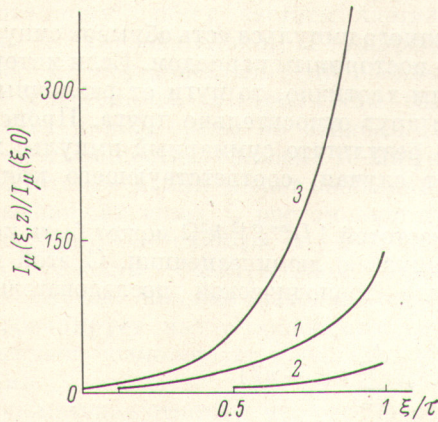


Рис. 4.

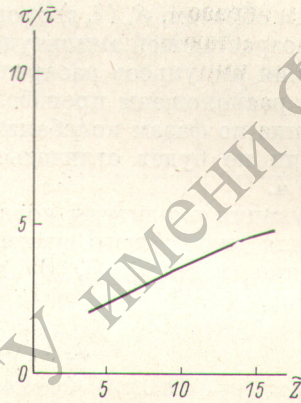


Рис. 5.

С уменьшением расстройки Ω от резонанса или с увеличением интенсивности поля накачки начинает играть роль эффект Штарка [см. формулу (6)]. При $\Omega \approx 10^{13}$ сек.⁻¹, $\chi \approx 10^{-2}$ штарковский сдвиг уровня на порядок превышает ширину линии и ею можно пренебречь. В предположении о прямоугольном импульсе накачки и для поля $\mathcal{E}_\mu(\xi, 0)$, медленно меняющегося за время τ , спектр слабого поля

$$\frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega\xi'} \mathcal{E}_\mu(\xi', z) d\xi' = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega\xi'} \mathcal{E}_\mu(\xi', 0) d\xi' + i \frac{\beta z |\mathcal{E}|^2}{2\pi\omega} \int_0^\tau \frac{I_1(2\sqrt{\beta z |\mathcal{E}|^2 x})}{\sqrt{\beta z |\mathcal{E}|^2 x}} e^{i(\omega + |D^{mn} \mathcal{E}|^2 / \hbar^2 \Omega)x} \mathcal{E}_\mu(x, 0) dx. \quad (9)$$

Первый член в правой части (9) описывает начальный спектр слабого поля, а второй — спектральную добавку, обусловленную усилением. Центральная частота ее сдвинута на $\Delta\omega = |D^{mn} \mathcal{E}|^2 / \hbar^2 \Omega$ относительно центра начального спектра. Ширина спектра импульса люминесценции по порядку величины совпадает с $1/\bar{\tau}$, где $\bar{\tau}$ — ширина функции $\Theta(x)$ ($\Theta(x) = I_1(2\sqrt{\beta z |\mathcal{E}|^2 x}) / \sqrt{\beta z |\mathcal{E}|^2 x}$, измеренная по полувысоте. $\Theta(x)$ — функция, равная единице при $x > 0$ и нулю при $x < 0$). На рис. 5 изображена зависимость $1/\bar{\tau}$ от параметра $\bar{Z} = \beta z |\mathcal{E}|^2 \tau$.

С ростом длины среды, плотности атомов или энергии накачки ширина спектра импульса растет и при некотором значении может стать сравнимой с $\Delta\omega$.

Штарковский сдвиг спектральной линии можно экспериментально наблюдать, когда $\Delta\omega \gg 1/\tau$. При $\Delta\omega \leq 1/\tau$ невозможно разрешить линии на частотах ω и $\omega + \Delta\omega$, и, следовательно, ни дальнейшее увеличение поля накачки, ни увеличение длины среды или плотности атомов не дают возможности наблюдать штарковских сдвигов. Таким образом, сжатие импульса люминесценции с определенного момента начинает препятствовать наблюдению штарковских сдвигов. По-видимому, такое явление уже наблюдалось экспериментально в работе [10].

Пусть теперь $\beta z |\mathcal{E}|^2 \tau \gg 1$, а поле $\mathcal{E}_\mu(\xi, 0)$ представляет собой последовательность статистически независимых прямоугольных импульсов длительностью $\tau_0 \ll \tau$ и равной амплитуды. При этих условиях можно пренебречь первым членом в правой части выражения (9). Поле импульса люминесценции от одиночного прямоугольного импульса, центр которого приходится на момент времени ξ' , дается формулой

$$\mathcal{E}_\mu(\xi, z) = \mathcal{E}_\mu(\xi, 0) \beta z |\mathcal{E}|^2 \tau_0 \frac{I_1(2\sqrt{\beta z |\mathcal{E}|^2}(\xi - \xi'))}{\sqrt{\beta z |\mathcal{E}|^2}(\xi - \xi')} \exp\left\{i \frac{|D^{mn} \mathcal{E}|^2}{\hbar^2 \Omega} (\xi - \xi')\right\}. \quad (10)$$

Таким образом, $\mathcal{E}_\mu(\xi, z)$ от одиночного импульса есть обрывок синусоиды (цуг) с возрастающей амплитудой и постоянным периодом. Если интервалы следования импульсов распределены хаотично, то цуги от различных импульсов расположены произвольно друг относительно друга. Происходит усреднение по фазам колебаний. В результате суммарный импульс люминесценции не будет отличаться от случая, соответствующего кривой 3 на рис. 4.

Модуляция амплитуды поля с частотой $|D^{mn} \mathcal{E}|^2 / \hbar^2 \Omega$ может быть использована для дальнейшего сжатия импульса люминесценции. С этой целью необходимо взять $\mathcal{E}_\mu(\xi, 0)$ в виде периодической последовательности импульсов

$$\mathcal{E}_\mu(\xi, 0) = \tau_0 \mathcal{E}_{\mu 0} \sum_{n=0}^{N_1} \delta(\xi - nT) \quad (11)$$

с периодом следования $T = 2\pi \hbar^2 \Omega / |D^{mn} \mathcal{E}|^2$. В этом случае цуги, порожденные отдельными импульсами, будут в фазе и сложатся когерентно

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_\mu(\xi, z) = \mathcal{E}_{\mu 0} \beta z |\mathcal{E}|^2 \tau_0 \sum_{n=0}^{N_2} \frac{I_1(2\sqrt{\beta z |\mathcal{E}|^2}(\xi - nT))}{\sqrt{\beta z |\mathcal{E}|^2}(\xi - nT)} \times \\ \times \delta(\xi - nT) \exp\left\{i \frac{|D^{mn} \mathcal{E}|^2}{\hbar^2 \Omega} (\xi - nT)\right\}. \end{aligned} \quad (12)$$

Здесь $N_2 = \tau/T$ — число импульсов (11), укладывающихся на длительности импульса накачки. При $N_2 \gg 1$ суммирование в формуле (12) можно заменить интегрированием и для интенсивности люминесценции получается следующее выражение:

$$I_\mu(\xi, z) = I_{\mu 0} (\tau_0/T)^2 [I_0(2\sqrt{\beta z |\mathcal{E}|^2} \xi) - 1]^2, \quad 0 \leq \xi \leq \tau. \quad (13)$$

Форма импульса люминесценции определяется выражением в квадратных скобках формулы (13). Графики логарифма этой функции при различных значениях параметра $Z = \beta z |\mathcal{E}|^2 \tau$ изображены на рис. 6. Как видно из рис. 6, импульс быстро сжимается с ростом Z .

С возрастанием интенсивности накачки, длины среды, плотности атомов или при уменьшении расстройки Ω от резонанса членом $i\delta[t - (z/u)] \mathcal{E}_\mu$ в уравнении (4) пренебрегать уже нельзя. В игру вступает явление фазовой модуляции, характеризующееся широким спектром.

Для иллюстрации ограничимся случаем, когда импульс накачки медленно меняется за времена порядка $1/\Gamma$, а время корреляции слабого поля много больше $1/\Gamma$. В этом случае в уравнении (5) можно пренебречь производной от поляризации. Полагая $\mathcal{E}_\mu = \mathcal{E}_\mu^0 e^{i\tau_\mu}$ с помощью (4) найдем урав-

нения, которым удовлетворяют огибающая и фаза импульса. Решение этих уравнений находится без труда

$$\varepsilon_{\mu 0}^0(t, z) = \varepsilon_{\mu 0} |t - (z/u)| \exp \left\{ \int_0^z \alpha [t - (z/u_{\mu}) + \nu z'] dz' \right\}, \quad (14)$$

$$\varphi_{\mu}(t, z) = - \int_0^z \delta [t - (z/u_{\mu}) + \nu z'] dz', \quad (15)$$

где $\alpha [t - (z/u)] = 2\pi \omega_{\mu} N |D^{m1}|^2 |D^{m2}|^2 \varepsilon_0^2 / \hbar^3 c \Omega^2 \Gamma$, $\varepsilon_{\mu 0}$ — амплитуда поля, когда нет накачки, $\nu = 1/u_{\mu} - 1/u$ — расстройка групповых скоростей.

Из (14) следует, что при $\nu=0$ амплитуда импульса люминесценции экспоненциально растет с расстоянием z , и импульс сжимается. Фаза усиленного слабого поля [см. (15)] при $\nu=0$ линейно растет с z .

Зависимость фазы от времени приводит к мгновенному сдвигу частоты люминесценции и, следовательно, к уширению спектра пропорционально пройденному светом расстоянию. Штарковский сдвиг уровня от длины среды не зависит. При $z \sim 10^2$ см и мощностях, больших 10 Мвт/см², в парах атомов калия может наблюдаться любопытная ситуация. С ростом поля происходит уширение спектра без изменения центра тяжести спектральной линии. В этом случае явление фазовой модуляции превалирует над штарковским сдвигом и не дает возможности наблюдать его обычными спектроскопическими методами.

В заключение отметим, что рассмотренные особенности эффекта Штарка в поле короткого светового импульса получены в предположении равенства групповых скоростей взаимодействующих волн. Подобным требованиям можно удовлетворить, вводя в пары щелочных металлов инертные газы [11]. В стандартных экспериментальных условиях [12] наряду с расстройкой групповых скоростей большую роль играют пространственно-частотные характеристики возбуждающего излучения. Наблюдаемые здесь экспериментально особенности люминесценции можно объяснить, лишь существенно модифицировав изложенную теорию с учетом упомянутых выше физических явлений.

Литература

- [1] А. М. Бонч-Бруевич, Н. Н. Костин, В. А. Ходовой, В. В. Хромов. ЖЭТФ, 56, 144, 1969.
- [2] И. М. Бетеров, Р. И. Соколовский. Усп. физ. наук, 110, 169, 1973.
- [3] Г. Е. Ноткин, С. Г. Раутман, А. А. Феоктистов. ЖЭТФ, 52, 1673, 1967.
- [4] П. А. Апанасевич. Ж. прикл. спектр., 12, 231, 1970.
- [5] M. S. Feld, A. Javan. Phys. Rev., 177, 450, 1969.
- [6] С. Г. Пржибельский, В. А. Ходовой. Сб. «Нелинейные процессы в оптике». Изд. «Наука», Новосибирск, 1972.
- [7] С. А. Ахманов, Р. В. Хохлов. Проблемы нелинейной оптики. Изд. АН СССР, М., 1964.
- [8] Н. Бломбергс. Нелинейная оптика. Изд. «Мир», М., 1966.
- [9] В. М. Арутюнян, Н. Н. Бадалян, В. А. Ирадян, М. Е. Мовсесян. ЖЭТФ, 58, 37, 1970.
- [10] Ю. М. Кирич, Д. П. Ковалев, С. Г. Раутман, Р. И. Соколовский. Письма в ЖЭТФ, 9, 7, 1969.
- [11] S. E. Harris, R. V. Miles. Appl. Phys. Lett., 19, 385, 1971.
- [12] Ю. М. Кирич, С. Г. Раутман, В. П. Сафонов, Б. М. Черноброд. Сб. «Нелинейные процессы в оптике», вып. 2. Изд. «Наука», Новосибирск, 1972.

Поступило в Редакцию 19 сентября 1973 г.

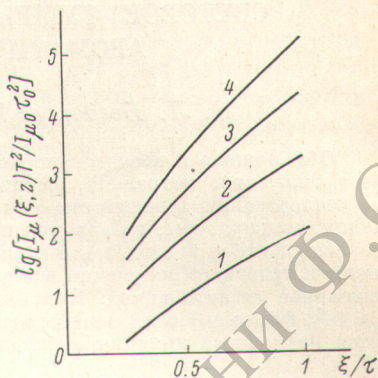


Рис. 6.

1 — $z=4$, 2 — 8, 3 — 12, 4 — 16.