

ИЗ ТЕКУЩЕЙ ЛИТЕРАТУРЫ

539.184.2

СПЕКТРОСКОПИЯ СВЕРХВЫСОКОГО РАЗРЕШЕНИЯ
НА ОСНОВЕ ИНТЕРФЕРЕНЦИИ СОСТОЯНИЙ

Е. В. Александров, Н. И. Калитеевский, М. П. Чайка

СОДЕРЖАНИЕ

1. Интерференция атомных состояний	155
2. Явления и методы квантовых биений	156
3. Пересечение уровней	159
4. Сопоставление методов интерференции состояний и нелинейной лазерной спектроскопии	162
Цитированная литература	164

В 60-х годах происходило интенсивное развитие и внедрение в атомную спектроскопию идей и методов интерференции состояний, позволяющих исследовать структуру энергетических уровней с разрешением, не ограниченным доплеровским уширением спектральных линий. Расцвет работ по интерференции состояний совпал по времени с появлением нового вида спектроскопии — лазерной нелинейной спектроскопии сверхвысокого разрешения. В последние годы наблюдается интенсивный технический прогресс в области перестраиваемых лазеров, обещающий превратить лазерную спектроскопию в универсальный всеобъемлющий метод. В связи с этим встает вопрос о конкурентоспособности прежних методов и о разумной области их применения. В настоящем обзоре будут кратко суммированы основные сведения об интерференционных методах спектроскопии и их развитии в лазерный период; обсуждаемые методы будут сопоставлены с задачами и достижениями лазерной спектроскопии.

1. ИНТЕРФЕРЕНЦИЯ АТОМНЫХ СОСТОЯНИЙ

В основе интерференционных явлений лежит квантовомеханический принцип сложения амплитуд вероятностей перехода системы из начального состояния в конечное через набор промежуточных состояний, если конкретный путь перехода в эксперименте не фиксируется¹.

Пусть имеется атом в начальном состоянии Ψ_0 , подверженный возмущению, способному перевести его в любое из двух (для простоты) промежуточных состояний Ψ_1 и Ψ_2 . В этом случае реализуется суперпозиционное состояние Ψ , описываемое суммой: $\Psi = C_1\Psi_1e^{-i\omega_1t} + C_2\Psi_2e^{-i\omega_2t}$. Здесь выделены временные фазовые множители, соответствующие различным в общем случае энергиям E_1 и E_2 состояний Ψ_1 и Ψ_2 . Переход из состояния Ψ в конечное состояние Ψ_3 под действием возмущения V приводит к интерференции амплитуд вероятностей, а именно, вероятность перехода в состояние Ψ_3 , пропорциональная $|\langle\Psi_3|\hat{V}|\Psi\rangle|^2$ содержит три слагаемых:

$$P(t) = |C_1|^2 |\langle\Psi_3|\hat{V}|\Psi_1\rangle|^2 + |C_2|^2 |\langle\Psi_3|\hat{V}|\Psi_2\rangle|^2 + 2 \operatorname{Re} C_1 C_2^* \langle\Psi_3|\hat{V}|\Psi_1\rangle \langle\Psi_3|\hat{V}|\Psi_2\rangle^* e^{-i(\omega_1 - \omega_2)t}. \quad (1)$$

Из них первые два соответствуют независимым переходам из состояний Ψ_1 и Ψ_2 в Ψ_3 , а третье отражает интерференцию состояний Ψ_1 и Ψ_2 .

Перепишем выражение (1) для зависимости от времени вероятности перехода из суперпозиции Ψ в состояние Ψ_3 в компактном виде, учтя дополнительно затухание состояний Ψ_1 и Ψ_2 , причем константу затухания Γ положим для обоих состояний одинаковой:

$$P(t) = e^{-\Gamma t} [A + B \cos(\omega_{12}t + \varphi)],$$

$$\omega_{12} = \omega_1 - \omega_2 = \frac{E_1 - E_2}{\hbar}. \quad (2)$$

Вероятность перехода испытывает во времени биения с частотой перехода между интерферирующими состояниями. Появление биений при спонтанном распаде суперпозиционного состояния классически трактуется как результат интерференции гармоник поля с частотами ω_1 и ω_2 , излучаемых одним атомом.

Интерференционная составляющая замечательна своей зависимостью от разности энергий интерферирующих состояний, что в принципе позволяет ее измерить. Именно такой подход используется в различных модификациях метода квантовых биений. Второй подход основан на интегральных во времени наблюдениях интенсивности поглощения или люминесценции из суперпозиционного состояния. При интегральном наблюдении интерференционная составляющая вероятности перехода усредняется до нуля, за единственным исключением — случая равенства энергий интерферирующих состояний, т. е. их вырождения, и тогда она определяется разностью фаз ϕ , зависящей от поляризации света. Интерференция вырожденных состояний лежит в основе метода пересечения уровней²⁵.

2. ЯВЛЕНИЯ И МЕТОДЫ КВАНТОВЫХ БИЕНИЙ

Выражение (2) описывает биения вероятности элементарного процесса. Для перехода к наблюдаемым величинам — к интенсивности излучения или поглощения — нужно провести усреднение по множеству излучающих или поглощающих частиц.

Это усреднение без принятия специальных мер приводит к исчезновению биений, для сохранения которых нужно добиться их синфазности².

Для ансамбля идентичных атомов частота биений одна и та же. Поскольку она определяется разностью энергий подуровней данной частицы, то одновременное смещение частот ω_1 и ω_2 за счет эффекта Допплера почти не меняет их разность ω_{12} , так что частота биений практически не подвержена доплеровскому уширению. Начальная фаза ϕ биений зависит от характера возбуждения и условий наблюдения. Если интерферируют состояния, отличающиеся угловыми характеристиками (моментом и его проекцией), то необходимым условием определенности начальной фазы биений является анизотропность возбуждения и наблюдения. Окончательно синфазность достигается преодолением фазового разброса, связанного с разбросом моментов возбуждения. Наиболее очевидным образом биения возникают при импульсном возбуждении за время более короткое,

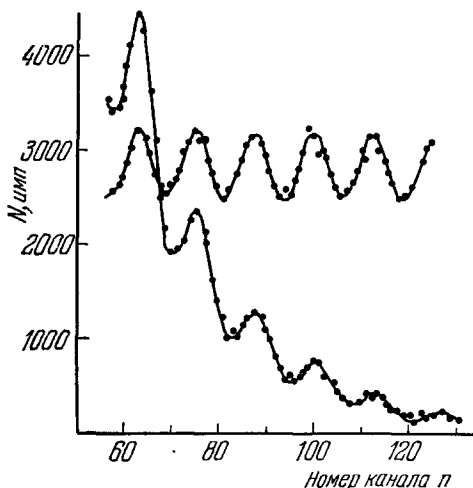


Рис. 1. Биения излучения в гелии на переходе $2^1P_1 - 4^1D_2$ ($\lambda = 492,2$ нм)⁷.

чем период биений. Это наиболее простое проявление биений, которое часто используется в последнее время в спектроскопических целях.

Впервые наличие биений в спонтанном излучении при импульсном возбуждении было продемонстрировано в работах³, в которых биения возникали в результате интерференции подуровней магнитного расщепления состояния 3P_1 кадмия и ртути. Демонстрация биений была сопряжена с преодолением значительных трудностей по обеспечению достаточно короткого и мощного импульса оптического возбуждения.

Свободные биения представляют значительный интерес как средство исследования структуры и времени жизни возбужденных состояний. Наиболее существенным является то, что исследуемое состояние не подвергается никакому возмущению — биения наблюдаются после окончания импульса возбуждения, на мощность которого при этом не накладывается ограничений. Однако технические трудности возбуждения свободных биений в «лазерный» период ограничили применение этого метода в спектроскопии исследованиями двух типов. Первым является исследование биений при импульсном возбуждении атомов электронным ударом. После первых демонстрационных работ⁴⁻⁶, показавших возможность когерентного электронного возбуждения, импульсное возбуждение электронами использовалось в спектроскопических целях в работе⁷, в которой оценена возможность точного измерения факторов Ланде на примере возбужденных состояний гелия. Пример биений в излучении гелия на переходе $2^1P_1 - 4^1D_2$ ($\lambda = 492,2$ нм) представлен на рис. 1. Возбуждение осуществлялось электронным пучком, направленным перпендикулярно к магнитному полю. Распределение во времени фотонов спонтанного излучения получено с помощью техники сче-

та фотонов с преобразованием времени задержки фотоэлектронного импульса в амплитуду с последующим многоканальным анализом.

Второй тип исследований со свободными биениями без использования лазеров, получивший большое распространение, связан с экспериментами по перезарядке быстрых ионных пучков на тонких угольных пленках (техника «beam-foil»⁸). Пучок ионов со скоростью $\sim 10^8$ см/с пронизывает тонкую угольную пленку толщиной порядка 10^{-5} см. В результате перезарядки за пленкой образуется пучок атомов, возбужденных в широкий набор состояний. При этом реализуются суперпозиции состояний,

относящихся к компонентам сверхтонкой (СТС) и тонкой структуры, а для водорода и водородоподобных ионов также и состояний, разделенных лэмбовским сдвигом. Быстрое движение частиц после чрезвычайно короткого возбуждения образует естественную развертку во времени, допускающую разрешение, превышающее 10^{-10} с. Таким методом измерялись как расщепления, вызванные внутриатомными взаимодействиями (тонкие и сверхтонкие расщепления), так и расщепления, вызванные внешними магнитными и электрическими полями.

Интенсивное применение в спектроскопии метод свободных биений получил в последние годы в сочетании с лазерным возбуждением, что связано с прогрессом в области перестраиваемых лазеров. Чаще всего с этой

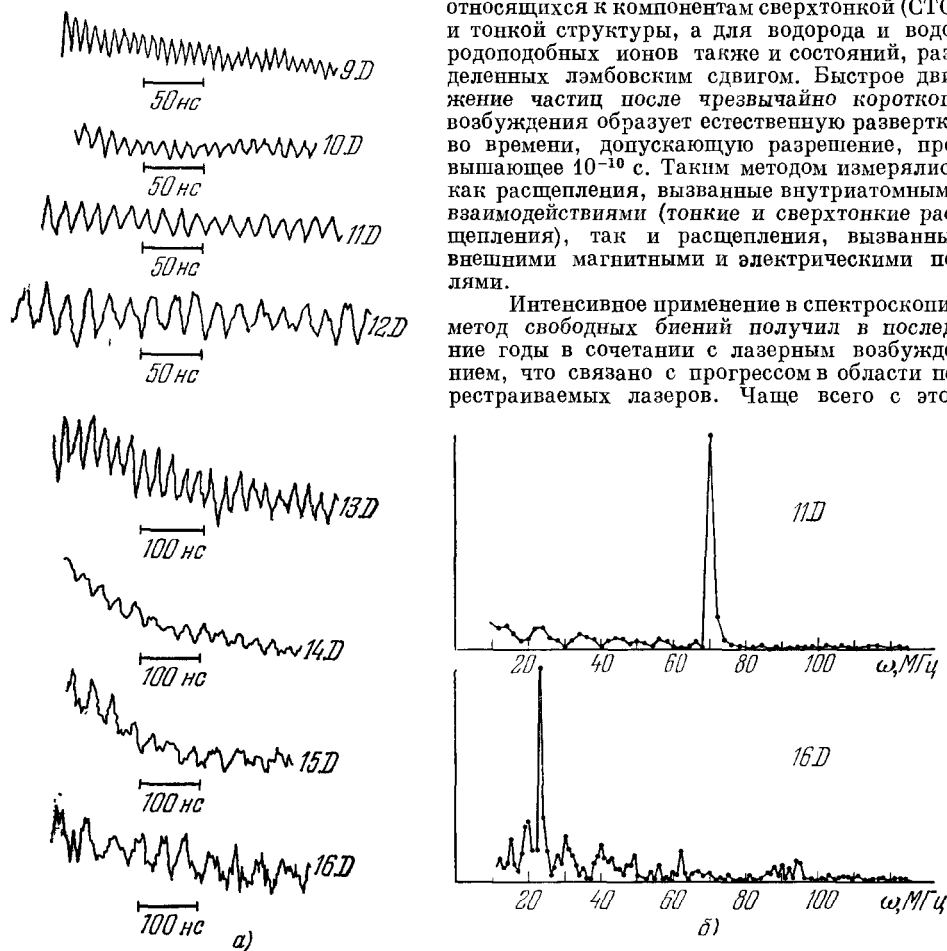


Рис. 2. а) Биения в излучении $nD_{3/2, 5/2} - 3P$ -переходов натрия 23 ; б) фурье-спектр предыдущих сигналов.

целью употребляются лазеры на красителях с накачкой от импульсного азотного ультрафиолетового лазера. Таким образом легко формируются мощные импульсы с длительностью порядка наносекунды. Впервые лазерное возбуждение биений было продемонстрировано в работе⁹, где наблюдались биения в магнитной структуре состояния $6s6p^3P_1$ иттербия. Такие же биения наблюдались в состоянии 6^1P_1 бария и кальция⁴⁶. Аналогично, прямым лазерным возбуждением осуществлялись биения в сверхтонкой структуре $7^2P_{3/2}$ цезия. Спонтанное излучение на линии 4555 Å с переходом в основное состояние $6^2S_{1/2}$ обнаружило целый спектр биений на частотах от 66,5 МГц до 149,4 МГц, соответствующий интерференции сверхтонких подуровней, отличающихся полным моментом на 1 и 2^{10} .

С использованием двухступенчатого импульсного лазерного возбуждения в работах^{11, 12} наблюдались биения, вызванные интерференцией компонент тонкой структуры серии $nD_{3/2, 5/2}$ натрия для n от 9 до 16. Первый лазерный импульс возбуждал состояние $3P$, из которого вторым импульсом возбуждалась суперпозиция уровней $nD_{3/2}$ и $nD_{5/2}$. Биения наблюдались в спонтанном излучении на уровень $3P$. На рис. 2, а

показан вид возникающих сигналов биений, снятых методом накопления за большое число импульсов возбуждения. На рис. 2, б показаны спектры Фурье некоторых из этих сигналов, позволяющих точно определить частоты биений. В этих экспериментах временное разрешение ограничивалось быстродействием ФЭУ и соответствовало граничной частоте 150 МГц. Потенциально много большее разрешение обеспечивала техника регистрации биений в поглощении, продемонстрированная в работе ¹³, где наблюдалась интерференция подуровней СТС состояния $3P_{1/2}$ натрия. Суперпозиция состояний создавалась лазерным возбуждающим импульсом, а биения регистрировались за счет второго лазерного импульса, произвольно сдвигающегося по времени относительно

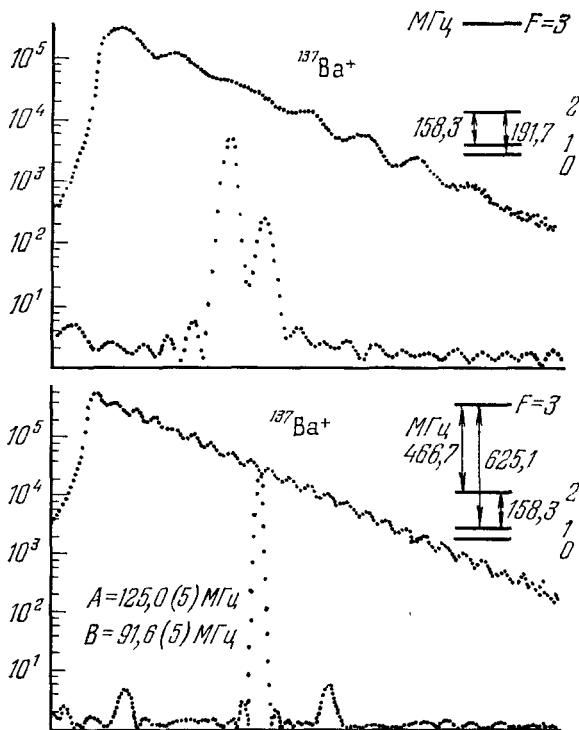


Рис. 3. Биения и фурье-спектры излучения ионов бария на переходе $6^2S_{1/2} - 6^2P_{3/2}$.

счет перезарядки, а лазерным излучением. Высокая скорость пучка позволяет в достаточно широких пределах осуществлять перестройку эффективной частоты лазера за счет эффекта Доплера изменением угла встречи пучка частиц и светового пучка. Анализ биений производится, как и в технике «beam-foil», по свечению пучка частиц в зависимости от расстояния от точки возбуждения. На рис. 3 показана картина биений и фурье-спектры, заимствованные из работы ⁸, относящиеся к лазерному возбуждению пучка ионов бария на переходе $6^2S_{1/2} - 6^2P_{3/2}$.

При импульсном возбуждении биения выступают в качестве переходной характеристики системы. Возможны другие ситуации, где биения проявляются в виде стационарных процессов, образуя так называемые резонансы биений. Самым очевидным является амплитудный резонанс, возникающий при гармонической модуляции интенсивности возбуждения. Явление состоит в резонансном нарастании глубины модуляции спонтанного излучения, когда частота модуляции возбуждения приближается к частоте свободных биений. Ширина резонанса определяется шириной интерферирующих уровней. Явление носит нетривиальный характер: частота резонанса может сколь угодно превышать обратное время жизни спонтанного излучения, которое из-за своей инерционности вне резонанса полностью демодулировано. Возникновение резонанса можно понять из рассмотрения группировки во времени элементарных актов излучения с учетом переменной интенсивности возбуждения, однако полезно указать другой, спектральный подход к пояснению образования резонанса. Атом с расщепленным верхним уровнем моделируется спаренным осциллятором с фиксированной равностью частот. При воздействии на него излучения с широким спектром оба осциллятора

первого и возбуждавшего атомы из состояния $3P_{1/2}$ в состояние $20^2S_{1/2}$, возникновение которых регистрировалось по ионизации атомов во внешнем электрическом поле. Вероятность возбуждения атомов вторым импульсом испытывала биения с частотой сверхтонкого расщепления 192 МГц, что и обнаруживалось при варьировании задержки второго импульса. Временное разрешение в этом случае определялось длительностью лазерных импульсов.

Квантовые биения в сигналах светового эха и нутаций при лазерном возбуждении молекул наблюдались в работе ¹⁴. Эти биения уже нельзя назвать свободными, поскольку в этом случае имеется взаимное влияние отдельных излучателей, как и в работе ¹⁵, где биения наблюдались в парах цезия в сверхлюминесценции. Однако достоинством наблюдения биений в когерентных излучательных процессах является высокая интенсивность испускания, что методически существенно в области больших длин волн.

Для полноты укажем на лазерную модификацию спектроскопии биений в пучках атомов и ионов ¹⁶. В этих экспериментах возбуждение быстрого пучка осуществлялось не за

возбуждаются со случайными относительными фазами, и суммирование по их ансамблю не приводит к коллективным эффектам. В свете, модулированном по амплитуде, каждая гармоника спектра приобретает когерентную ей пару, хотя суммарно излучение остается спектрально «белым». Если интервал между когерентными гармониками совпадает с частотным расщеплением спаренного осциллятора, обе его составляющие возбуждаются когерентно, т. е. с одной и той же разностью фаз для всех осцилляторов. Таким образом, варьируя частоту модуляции света, можно проходить резонанс. Можно говорить о том, что белый свет после гармонической модуляции приобрел когерентные свойства. Степень этой когерентности определяется близкой к нулю шириной спектра радиочастотного генератора, управляющего модуляцией света. Ширина именно этого спектра определяет аппаратную ширину метода амплитудного резонанса биений, который практически имеет неограниченное разрешение.

Амплитудный резонанс в люминесценции был впервые обнаружен в работах ^{17,18}. В дальнейшем этот метод неоднократно применялся в спектроскопических исследованиях, заменяя двойной радиооптический резонанс. Перед последним резонанс биений обладает важным преимуществом — отсутствием дополнительного возмущения, вносимого в исследуемую систему радиочастотным полем, вызывающим магнитный резонанс. Помимо существенного осложнения расшифровки результатов в методе двойного резонанса возникают затруднения в связи с необходимостью обеспечения достаточной мощности дополнительного поля, особенно когда требуется использовать значительные расщепления уровней с большими ширинами. Кроме того, интерферировать, давая биения, могут состояния, переходы между которыми в однофотонном дипольном приближении вообще запрещены.

Появление лазеров расширило возможности амплитудного резонанса биений, облегчив основную методическую трудность метода — необходимость высокочастотной модуляции возбуждения. Наиболее естественным способом реализации высокочастотной модуляции лазерного излучения является использование межмодовых биений. Резонанс биений с помощью лазера с синхронизованными модами наблюдался на переходе $3s_2 - 2p_4$ неона в работе ²⁰. Узкие пучки лазеров легко подвергаются модуляции с помощью электрооптических и электроакустических модуляторов, а также с помощью специфических методов. Примером «классического» применения резонанса биений в сочетании с лазерным возбуждением может служить работа ¹⁹ по определению g -факторов термов молекулярного селена.

Использование лазеров позволяет осуществить важную модификацию метода амплитудного резонанса, названную методом пересечения мод ^{21,22}. Его отличие от резонанса биений состоит только в том, что регистрируется не модуляция спонтанного излучения с интерферирующих уровней, а суммарное поглощение возбуждающей линии. Учет нелинейности взаимодействия интенсивного лазерного излучения со средой показывает, что при совпадении частоты биений мод с частотой искомого расщепления уровень меняется суммарное поглощение среды.

Другие стационарные проявления биений (параметрический и фазовый резонансы биений ^{23,24} и недавно обнаруженный релаксационный резонанс ^{25,26} в спектроскопической практике распространения не получили. Параметрический резонанс биений нашел специальное применение в технике измерения магнитных полей ^{27,28}.

В астрофизической литературе обсуждается возможность наблюдения квантовых биений в космических средах на примере использования возбуждения запрещенных линий ионов кислорода в волокнах Крабовидной туманности излучением пульсара NP 0531 ⁴⁵.

3. ПЕРЕСЕЧЕНИЕ УРОВНЕЙ

Интерференция состояний с одинаковой энергией является важным частным случаем биений с нулевой частотой, не усредняющихся при интегральном по времени наблюдении. Этот тип интерференционных явлений обнаруживается в виде появления особенностей в интенсивности излучения или поглощения света системой, подверженной внешнему полемому воздействию, в окрестности вырождения каких-либо ее энергетических уровней. В наиболее простом случае, связанном с выстраиванием, она имеет вид

$$I = I_0 + \frac{I_0^2}{1 + (\omega_{12}^2/\Gamma^2)}, \quad (3)$$

и получается интегрированием (2) по времени при $\varphi = 0$. Область образования особенностей определяется шириной уровней Γ . Разумеется, не всякое пересечение уровней приводит к интерференции — для этого они должны когерентно возбуждаться из общего начального состояния *).

*) Для возникновения интерференции возбуждение атомных состояний не обязательно должно быть одновременным. В работе ⁵⁰ рассмотрены гипотетические эксперименты с раздельным во времени возбуждением различных состояний атома.

Эффекту пересечения уровней посвящена обширная литература (см., например, монографию²⁹, обзоры^{30,31}). Остановимся кратко лишь на сопоставлении методов биений и пересечения уровней и на последних модификациях экспериментов по пересечению уровней.

Методы биений допускают исследование энергетической структуры исследуемой системы в отсутствие внешних возмущений. Пересечение уровней, наоборот, вызывается внешним регламентированным возмущением — чаще всего магнитным полем, иногда электрическим или обоими вместе. Поэтому интерпретация сигналов пересечения уровней требует наличия исходной информации о системе, на базе которой должны проводиться расчеты эволюции энергии и вероятностей переходов во внешних полях.

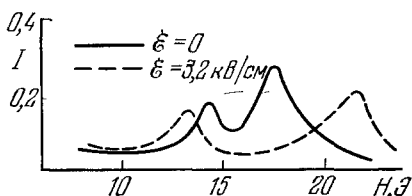


Рис. 4. Сигналы пересечения подуровней $6^2P_{3/2}$ ^{85}Rb в магнитном поле (сплошная кривая) и деформация сигнала наложенным электрическим полем $\mathcal{E} = 3,2$ кВ/см (штриховая кривая)³⁰.

Сопоставление расчетных данных с экспериментальными позволяет извлечь сведения об искоемых параметрах невозмущенной системы — обычно речь идет о константах тонкого и сверхтонкого взаимодействия, константах штарковского и зеемановского расщеплений и о ширинах уровней. Таким образом, пересечение уровней в принципиальном отношении менее информативно, чем биения, однако методически существенно проще, так как метод пересечения уровней не нуждается ни в технике импульсного возбуждения, ни в скоростных методах регистрации излучения. Что же касается необходимости в априорной информации (угловые моменты, тип связи и пр.), то она в подавляющем большинстве случаев имеется. Например, для простейшего случая вырождения магнитных подуровней в нулевом магнитном поле (эффект Ханле — частный случай пересечения уровней) экспериментальный сигнал позволяет определить произведение g -фактора на время жизни состояния, которое обычно и является предметом исследования, в то время как g -фактор определяется из независимых экспериментов, не требующих сверхвысокого спектрального разрешения.

В качестве произвольно выбранных примеров сигналов пересечения уровней в более общем случае на рис. 4 показаны сигналы пересечения подуровней состояния $6^2P_{3/2}$ рубидия-87 в магнитном поле; пунктиром представлена эволюция сигнала при дополнительном наложении электрического поля, которая позволяет определять константы Штарка³⁰.

В отдельных случаях исследование методом пересечения уровней преследует не расшифровку их структуры, а решение обратной задачи измерения интенсивности внешнего возмущения, например с целью измерения сверхслабых магнитных полей^{27,28}. В работе²⁸ таким методом реализована чувствительность порядка 10^{-10} э.

Подавляющая часть исследований методом пересечения уровней в период 60—70-х годов была проведена с резонансными линиями атомных спектров. При попытках распространить методы интерференции состояний на энергетические уровни, не связанные с основными или метастабильными оптическими переходами, возникают трудности их возбуждения. В некоторых работах используется резонансное облучение для заселения более высокого по энергиям уровня, чем исследуемый, и перенос когерентности на него при спонтанном распаде первоначально возбужденного состояния⁵³. При возбуждении электронным пучком легко удается получить населенность и когерентность высокоэнергетических состояний, однако зависимость параметров возбуждающего пучка от магнитного поля и когерентное излучение большого числа состояний ограничивают применение этого метода.

Значительным шагом вперед в отношении распространения метода пересечения уровней на высоковозбужденные состояния явилось открытие когерентного заселения магнитных подуровней возбужденных атомных состояний непосредственно в газовом разряде. Речь идет о так называемом выстраивании и скрытом выстраивании атомов в разряде³². Как выяснилось, необходимая для создания когерентности анизотропия возбуждения имеет место в любом газоразрядном сосуде конечного объема, она связана в основном с анизотропией световых потоков внутри источника света. Выделив в наблюдении отдельные участки сосуда, удалось при наложении магнитного поля регистрировать сигналы Ханле в положительном столбе разряда во всех инертных газах^{51,52}, в разряде постоянного тока в парах ртути и кадмия⁴⁹, в разряде с полым катодом в неоне и гелии⁴⁸.

Эффект Ханле, возникающий при пленении излучения, открывает новые возможности измерения магнитных полей на Солнце, и последние годы астрофизики усиленно изучают выстраивание. В солнечной коре и в протуберанцах условия освещения анизотропны, что и приводит к выстраиванию поглощающих атомов. Магнитное поле, с одной стороны, уменьшает степень поляризации излучения, а с другой стороны,

меняет ее направление. Измерение этих двух величин и является источником информации о величине и направлении магнитного поля ⁴⁷.

Почти макроскопического выстраивания атомов в выделенных объемах газового разряда существует и другой процесс возникновения угловой упорядоченности атомных состояний, не связанный с направленными потоками излучения и имеющими место, в частности, и при строго изотропном облучении. Такой процесс возникает при не слишком высокой оптической толщине среды, т. е. когда спектральные линии разряда не слишком уширены по сравнению с доплеровской шириной. Качественно этот процесс легко понять, перейдя в систему координат произвольно движущегося в тепловом движении атома. Освещаемый со всех сторон излучением других атомов, движущийся атом воспринимает его по-разному вследствие доплеровского смещения частоты. Излучение, распространяющееся навстречу атому, смещено в его системе координат по спектру в коротковолновую сторону, так что вероятность возбуждения им атома снижена по сравнению с излучением, освещающим атом в плоскости, нормальной к его движению, поскольку это излучение находится в резонансе с атомной частотой. Точно так же снижена эффективность возбуждения светом, нагоняющим движущийся атом сзади. Таким образом, атом возбуждается анизотропно с осью симметрии по

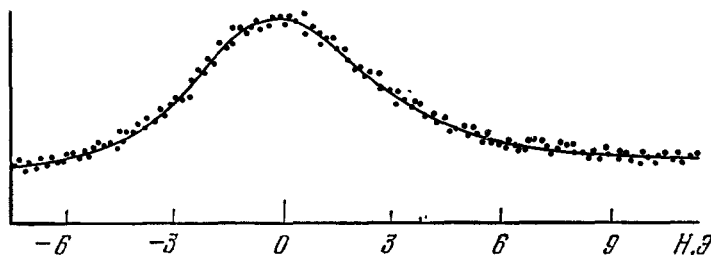


Рис. 5. Сигнал (зависимость интенсивности от магнитного поля) скрытого выстраивания состояния 3P_1 неона, наблюдавшийся на линии 607,4 нм.

направлению движения. Это приводит к тому, что ансамбль движущихся атомов, оставаясь изотропным в среднем, приобретает скрытую анизотропию относительно вектора мгновенной скорости каждого атома. При учете пленения излучения можно показать, что благодаря этой анизотропии возникает зависимость населенности состояния и связанной с ней интенсивности излучения ансамбля от напряженности внешнего магнитного поля ³² *). По сравнению с обычными сигналами Ханле сигналы скрытого выстраивания имеют более сложную форму:

$$I = I_0 + I' \left[\frac{1}{1 + (\omega_{\text{лар}}^2 / \Gamma^2)} + \frac{1}{1 + (4\omega_{\text{лар}}^2 / \Gamma^2)} \right], \quad (4)$$

где $\omega_{\text{лар}}$ — ларморовская частота. Эта зависимость позволяет определить ширины состояний при известных гиромангнитных отношениях ⁵¹. На рис. 5 приведен сигнал скрытого выстраивания на линии 607,4 нм неона, исходное состояние которой сферически-симметрично ($\gamma = 0$).

Применение лазеров как источников возбуждения также позволило существенно расширить круг объектов, доступных методу пересечения уровней. При этом может применяться ступенчатое возбуждение, оказывающееся при высоких лазерных интенсивностях достаточно эффективным, или возбуждение исследуемого состояния с уровня, заселенного в газовом разряде. Впервые эффект Ханле на лазерных переходах наблюдался в неоне в работе ³⁵. Существенным вкладом в расширение применения лазеров было предложение использовать импульсное лазерное возбуждение с интегральным по времени наблюдением ³⁶. Этой техникой был исследован ряд состояний кадмия ³⁷. Перспективы исследований такого рода весьма широки ввиду большого и непрерывно растущего списка лазерных линий, генерируемых в импульсном режиме. Применение лазеров, однако, привело к осложнениям, связанным с появлением возмущения системы мощным световым полем и с насыщением исследуемых переходов. В частности, сигналы пересечения приобретали дополнительную структуру, связанную с привнесением в сигнал параметров исходного состояния наряду с исследуемым ³⁸

*) Изменение населенности состояния со скрытым выстраиванием в разряде влечет изменение населенностей и других уровней. Поэтому в излучении некоторых спектральных линий появляется сигнал выстраивания состояния, непосредственно в этом дипольном переходе не участвующего.

(рис. 6). С другой стороны, эффект Ханле на лазерных уровнях представляет интерес как средство исследования инверсной среды и используется в качестве одного из способов управления типами колебаний лазеров³⁹.

В заключение этого раздела укажем, что сигналы пересечения уровней часто составляют проценты и десятки доли процентов от регистрируемой интенсивности, которая сама по себе может быть незначительна. Для эффективного анализа слабых сигналов в современном эксперименте применяются балансные схемы фоторегистрации, синхронное детектирование, переход от аналоговой формы сигнала к дискретной, допускающей цифровые методы накопления с неограниченным временем. Полученные сигналы обрабатываются с помощью ЭВМ с целью подбора параметров, обеспечивающих оптимальное соответствие экспериментальных данных расчетным кривым.

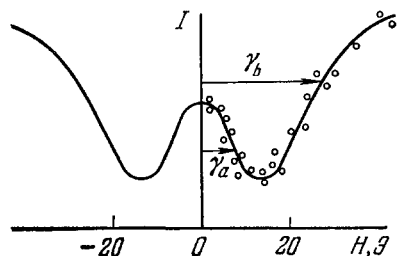


Рис. 6. Искажение сигнала пересечения уровней нелинейными взаимодействиями с лазерным излучением³⁸.

4. СОПОСТАВЛЕНИЕ МЕТОДОВ ИНТЕРФЕРЕНЦИИ СОСТОЯНИЙ И НЕЛИНЕЙНОЙ ЛАЗЕРНОЙ СПЕКТРОСКОПИИ

Современные методы нелинейной лазерной спектроскопии⁴⁰ позволяют измерять частоты оптических переходов без ограничений, накладываемых доплеровским уширением спектральных линий. Зная структуру и ширину перехода, можно при наличии дополнительной информации получить структуру отдельного состояния и его ширину, как, например, в случае переходов в исследуемое возбужденное состояние из основного, шириной которого можно пренебречь. Таким образом, методы лазерной спектроскопии являются универсальными и при благоприятных условиях позволяют решать как задачи, доступные интерференционным методам, так и более широкие — абсолютное измерение частот переходов независимых квантовых систем (например, анализ изотопного состава). Однако в области перекрытия задач интерференционных и лазерных методов, т. е. при исследовании со сверхвысоким разрешением структуры и ширин состояний, интерференционные методы могут оказаться предпочтительными.

а) Методы интерференционной спектроскопии дают непосредственно информацию, относящуюся к состоянию. Чтобы расшифровать структуру состояния по данным лазерной спектроскопии, нужны, как правило *), сведения о структуре второго состояния, входящего в переход.

б) Нелинейные методы лазерной спектроскопии нуждаются в дополнительном учете возмущения, вносимого лазером в исследуемую систему, которое может быть значительным. Интерференционные методы в своей основе линейны. Их лазерные модификации могут осложняться световым возмущением, но по крайней мере метод импульсных биений полностью свободен от привносимых возмущений. Заметим, что исследование светового возмущения может представлять самостоятельный интерес. Для такого рода исследований также могут привлекаться интерференционные методы.

Нелинейность методов лазерной спектроскопии, помимо осложнений, связанных с расшифровкой результатов, может быть причиной ошибок при анализе слабого перехода вблизи сильного. В такой ситуации интерференционные методы предпочтительнее. Этот вопрос рассмотрен в работе¹⁴, где с помощью биений определена частота сверхтонкого расщепления возбужденного состояния молекулы CH_3D , не обнаруженная ранее методом насыщенного поглощения. Матричные элементы d_{i0} перехода из расщепленного состояния $|i\rangle$ в основное состояние $|0\rangle$ отличаются примерно в пять раз, а отношение параметров насыщения двух переходов, пропорциональное $(d_{i0}/d_{i'0})^4$, составило в рассматриваемом примере величину около 500. Поэтому при мощности, необходимой для насыщения слабой линии, уширение сильной линии было бы настолько велико, что она скрыла бы искомую структуру. В то же время сигнал биений пропорционален произведению $d_{i0} \cdot d_{i'0}$, так что сильный переход «помогает» обнаружению слабого.

в) Методически интерференционные измерения обычно много проще. Естественно сопоставить при этом наиболее близкие по методике эксперименты — лазерную

*) В некоторых специальных постановках эксперимента, в которых существенную роль играют опять-таки интерференционные эффекты, удается получить сигналы, обусловленные характеристиками одного состояния.

спектроскопию и биения при лазерном возбуждении. Как упоминалось в работах ^{11,12}, методами биений измерялось тонкое расщепление уровней цезия в серии $nD_{3/2,5/2}$ для $n = 9-16$. Для $n = 3-8$ аналогичное исследование проводилось методом двухфотонной спектроскопии ^{41,42}. Оба метода предъявляют совершенно различные требования к спектру и стабильности излучения лазеров. Для двухфотонной спектроскопии ширина спектра лазера определяет разрешение метода и в работах ^{41,42} была доведена до 10 МГц, что в сочетании с требованием стабильности и возможности перестройки частоты в пределах нескольких гигагерц является сложной технической проблемой. Для лазерного возбуждения биений единственным требованием является перекрытие спектра лазерного импульса с линией поглощения цезия. Спектр лазера имел ширину около гигагерца, причем сканирование частоты не требовалось. Отсутствие необходимости в высокой монохроматичности и стабильности спектра позволяет использовать весь парк импульсных лазеров и в первую очередь наиболее универсальные лазеры на красителях с возбуждением азотным лазером. Эти лазеры особенно хорошо сочетаются с методом импульсных биений, требующим мощного кратковременного возбуждения.

г) Предельное спектральное разрешение, достигаемое в лазерной спектроскопии, лимитируется шириной спектра лазера, играющей роль аппаратной ширины метода. В уникальных лазерных спектрографах, базирующихся на газовом лазере, перестраиваемых по частоте в узких пределах ширины рабочей линии, удается снизить ширину спектра вплоть до десятка герц ⁵⁷. Но практически для перестраиваемых в широком диапазоне лазеров на красителях, составляющих современную основу лазерной спектроскопии, спектр трудно сделать уже 1 МГц.

Обращаясь к разрешению интерференционных методов, следует отдельно говорить о методах вырожденных и невырожденных состояний. Для первых, т. е. для методов пересечения и антипересечения уровней, единственное ограничение на разрешение накладывают системы создания и контроля внешних полей. Например, неоднородность поля приводит к уширению сигнала. Такого рода ограничения зависят от напряженности полей и, тем самым, от измеряемого энергетического интервала. Практически трудно обеспечить относительную однородность поля в рабочем объеме лучше $10^{-4} - 10^{-5}$ (труднее в области больших напряженностей), что и дает оценку относительной разрешающей способности.

Для методов биений ограничения разрешающей способности устанавливает доплеровское уширение частоты измеряемого интервала, имеющее относительную величину v/c , где v — средняя скорость теплового движения частиц, т. е. величину порядка 10^{-6} от измеряемой частоты *).

Таким образом, в отличие от методов лазерной спектроскопии, разрешение интерференционных методов зависит от величины измеряемого энергетического интервала. Для малых интервалов разрешение оказывается очень большим. Так, в цитированных выше измерениях сверхмалых магнитных полей расщепление уровней основного состояния рубидия фиксировалось с точностью порядка 10^{-4} Гц.

Сказанное относится к сравнению предельно достижимых точностей. Если задача их реализации не ставится (например, исследуются достаточно широкие возбужденные состояния), то сопоставление точностей, достигнутых разными методами в конкретных экспериментах (см. ^{43,44}) не являются особенно показательными, поскольку эти точности прежде всего зависят от вложений в экспериментальную технику. В этом отношении можно сравнить уже цитированные работы ^{11,12} и ^{41,42}. При сопоставимом общем уровне техники экспериментов точность измерений методом биений была в 10 раз выше, чем методом двухфотонной спектроскопии.

Таким образом, есть все основания утверждать, что задачи измерения структуры состояния предпочтительнее вести методами интерференции состояний. Особенно уместны эти методы в области малых расщеплений ($0 - 10^8$ Гц), не предъявляющей особо жестких требований к быстродействию аппаратуры (в методе биений) или к величинам и однородности внешних полей (в методе пересечения уровней). Существуют и специфические задачи, решаемые только интерференционными методами. Это задачи измерения констант столкновительной релаксации ориентации, выстраивания и т. д. состояния, обладающего угловым моментом. В то же время, как уже указывалось, существует широкий класс задач, которые могут быть решены только методами нелинейной лазерной спектроскопии.

Как видно, оба направления спектроскопии сверхвысокого разрешения — нелинейная лазерная и интерференционная — не столько конкурируют, сколько дополняют друг друга. Укажем также, что в последние годы в нелинейной спектроскопии

*) Ограничения точности измерения радиочастот для промышленной аппаратуры лежат в области много меньших величин, $\sim 10^{-10}$, а потому могут не приниматься во внимание.

все большую роль играют интерференционные эффекты⁵⁴⁻⁵⁶, а в методах, связанных с интерференцией состояний в связи с применениями лазеров, все чаще приходится учитывать роль нелинейных процессов^{35,38}.

Ленинградский государственный университет
им. А. А. Жданова

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. Фейнман Р., Лейтон Р., Сэндс М. Фейнмановские лекции по физике. Т. 8 (1).— М.: Мир, 1966—С. 19.
2. История вопроса и полная библиография до 1972 г. имеется в обзоре: Александров Е. Б.—УФН, 1972, т. 107, с. 595.—См. также Haroche S.—In: Topics in Applied Physics. V. 13: High-resolution Spectroscopy/Ed. K. Shimoda.—Berlin, Heidelberg, New York: Springer-Verlag, 1976.—P. 254.
3. Александров Е. Б.—Опт. и спектр., 1964, т. 17, с. 957; Dodd J. N., Warrington D. M., Kaul R. D.—Proc. Phys. Soc., 1964, v. 84, p. 176.
4. Александров Е. Б.—Опт. и спектр., 1964, т. 16, с. 377.
5. Nedelec O. et al.—C. R. Ac. Sci., 1963, t. 257, p. 3130.
6. Hadeishi T., Nierengberg W.—Phys. Rev. Lett., 1965, v. 14, p. 891.
7. Багаев С. А., Смирнов В. Б., Чайка М. П.—Опт. и спектр., 1976, т. 41, с. 166.
8. См. библиографию в обзоре: Andrä J. H.—In: Atomic Phys., V. 4.—New York: London; Plenum Press, 1975.—P. 635.
9. Gornik W., Kaiser D., Lange W., Luther J., Schulz H. H.—Opt. Comm., 1972, v. 6, p. 327.
10. Haroche S., Paisner J. A., Schawlow A. L.—Phys. Rev. Lett., 1973, v. 30, p. 948.
11. Haroche S., Gross M., Silverman M. P.—Ibid., 1974, v. 33, p. 1063.
12. Fabre C., Gross M., Haroche S.—Opt. Comm., 1975, v. 13, p. 393.
13. Ducas T. W., Littman M. G., Zimmerman M. L.—Phys. Rev. Lett., 1975, v. 35, p. 1752.
14. Scoemaker R. L., Hopf F. A., —Ibid., 1974, v. 33, p. 1527.
15. Chu S., Comins E. D., Conti R.—Phys. Lett., Ser. A, 1976, v. 60, p. 96.
16. Andrä H. J., Gaupp A., Wittmann W.—Phys. Rev. Lett., 1973, v. 31, p. 501.
17. Александров Е. Б.—Опт. и спектр., 1963, т. 14, p. 436.
18. Corney A., Series G. W.—Proc. Phys. Soc., 1964, v. 83, p. 213.
19. Gouedard G., Lehmann J. C.—C. R. Ac. Sci. Ser. B, 1975, t. 280, p. 471.
20. Иванов Э. И., Чайка М. П.—Опт. и спектр., 1970, т. 29, с. 124.
21. Schlossberg A. R., Javan A.—Phys. Rev., 1966, v. 150, p. 267.
22. Schlossberg H. R., Javan A.—Phys. Rev. Lett., 1966, v. 17, p. 1242.
23. Александров Е. Б., Константинов Ю. В., Перель В. И., Ходовой В. А.—ЖЭТФ, 1963, т. 45, с. 504.
24. Александров Е. Б.—Опт. и спектр., 1965, т. 19, с. 452.
25. Окунович А. И.—ЖЭТФ, 1974, т. 66, с. 1578.
26. Новиков Л. Н., Малышев Л. Г.—Письма ЖЭТФ, 1974, т. 20, с. 177.
27. Александров Е. Б., Бонч-Бруевич А. М., Ходовой В. А.—Опт. и спектр., 1967, т. 23, с. 282.
28. Du Pont Roc J., Haroche S., Cohen-Tannoudji C.—Phys. Lett., Ser. A, 1969, v. 28, p. 638.
29. Чайка М. П. Интерференция вырожденных атомных состояний.—Л.: Изд-во Ленингр. ун-та, 1975.
30. Kalitejewski N., Tschaika M.—Цитир. в⁸ сб.—Р. 19.
31. Показанов Е. Г., Скроцкий Г. В.—УФН, 1970, т. 107, с. 623. Новиков Л. Н., Скроцкий Г. В., Соломако Г. И.—УФН, 1974, т. 113, с. 597.
32. Каллас Х., Чайка М.—Опт. и спектр., 1969, т. 27, с. 694. Чайка М. П.—Ibid., 1971, т. 30, с. 822.
33. Казанцев С., Кислинг А., Чайка М.—Ibid., 1974, т. 36, с. 1030.
34. Казанцев С., Марков В., Чайка М.—Ibid., 1973, т. 34, с. 854.
35. Крупенникова Т., Чайка М.—Ibid., 1966, т. 20, с. 1088.
36. Чайка М. П.—Ibid., 1973, т. 34, с. 194.
37. Котликов Е.—Ibid., „ 203.
38. Боярский К., Котликов Е.—Квант. электрон., 1975, т. 2, с. 23.
39. Войтович А. П.—ДАН БССР, 1975, т. 19, с. 988.
40. Летохов В. С., Чеботаев В. П.—Принципы нелинейной лазерной спектроскопии—М.: Наука, 1975.

41. Biraben F., Cagnac B., Grinberg G.— Phys. Lett. Ser. A, 1974, v. 48, p. 469.
42. Salour M. M.— Opt. Comm., 1976, v. 18, p. 377.
43. Калитеевский Н. И., Чайка М. П.— Квант. электрон., 1976, т. 3, с. 709.
44. Григорьева В. Н., Иванов Э. И., Калитеевский Н. И.— УФН, 1976, т. 119, с. 149.
45. Рузмайкин А. А.— Астрон. ж., 1975, т. 52, с. 1173.
46. Schenck P., Hilborn R. C., Metcals H.— Phys. Rev. Lett., 1973, v. 31, p. 189.
47. Sahal-Brechot S., Bommier V., Lerooy J. L.— Astron. and Astrophys., 1977, v. 59, p. 223.
48. Жечев Д. З., Чайка М. П.— Опт. спектр, 1977, т. 43, с. 590.
49. Алиппева Э. А., Котликов Е. Н.— Ibid., с. 1000.
50. Хвостенко Г., Чайка М.— Ibid., 1968, т. 25, с. 330; 1969, т. 26, с. 351.
51. Казанцев С., Чайка М.— Ibid., 1971, т. 31, с. 510.
52. См. библиографию в статье: Казанцев С. А., Рысь А. Г.— Ibid., 1977, т. 43, с. 575.
53. Gupta R., Harper W., Lam L. K., Svanberg S.— Phys. Rev. Ser. A, 1973, v. 8, p. 2792.
54. Chebotaev V. P.— Цитир. в ² сб.— С. 207.
55. Ноткин Г. Е., Раутиан С. Г., Феоктистов А. А.— ЖЭТФ, 1967, т. 52, с. 1673.
56. DeVoe R. G., Brewer R. G.— Phys. Rev. Lett., 1978, v. 40, p. 862.
57. Чеботаев В. П.— Квант. электрон., 1978, т. 5, с. 2004.