

## SUBDOPPLER NONLINEAR LASER SPECTROSCOPY

A. K. POPOV

*Nonlinear laser spectroscopy is one of the most important achievements in modern atomic, molecular and optical physics. By making use of the unique properties of laser radiation it allows to obtain the information on the physical processes at the atomic and molecular level, which, as a rule, was not available with the traditional methods of spectroscopy. The paper is aimed at consideration of one of such method.*

**Нелинейная лазерная спектроскопия представляет собой новый принципиально важный этап в развитии атомной, молекулярной и оптической физики. Используя уникальные свойства лазерного излучения, она позволяет получить информацию о физических процессах на атомно-молекулярном уровне, которая была недоступна для традиционной спектроскопии. В статье рассматривается один из таких новых, нетрадиционных методов спектроскопии.**

## СУБДОПЛЕРОВСКАЯ НЕЛИНЕЙНАЯ ЛАЗЕРНАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ

А. К. ПОПОВ

Красноярский государственный университет  
Красноярский государственный технический университет

### ВВЕДЕНИЕ

В оптических процессах проявляется взаимодействие с веществом лишь электрической компоненты электромагнитного излучения. Последняя характеризуется амплитудой, ориентацией вектора электрического поля (поляризацией), частотой (либо длиной волны) излучения и направлением его распространения (волновым вектором). До создания лазеров в оптике не наблюдались физические явления, которые бы качественно зависели от амплитуды (интенсивности) излучения. Предметом оптики были изучение и использование закономерностей, связанных с зависимостями оптических процессов лишь от остальных параметров излучения.

Оптические процессы в веществе определяются вынужденными колебаниями связанных зарядов, входящих в состав атомов и молекул. Классическая оптика (до создания лазеров) имела дело со слабыми электромагнитными излучениями. При этом амплитуды упомянутых колебаний практически всегда оставались пропорциональными напряженности электрической компоненты излучения, то есть зависели от нее линейно. Этим объясняется отсутствие качественных зависимостей эффектов классической (линейной) оптики от интенсивности излучения.

Лазеры позволяют получать электромагнитное излучение, которое существенно возмущает атомы и молекулы. При этом амплитуды вынужденных колебаний связанных зарядов вещества начинают нелинейно зависеть от напряженности излучения. В результате возникают качественно новые *нелинейные оптические эффекты*, зависящие от интенсивности излучения, а практически все выводы классической оптики для таких излучений перестают быть справедливыми (более подробно о нелинейных оптических эффектах см. [1–3]).

Для нерезонансного излучения, частота которого отличается от собственных частот атомов и молекул на величину порядка этой частоты, нелинейные оптические эффекты становятся заметными по мере приближения величины напряженности электрической компоненты поля к внутриатомной. Последняя по порядку величины составляет  $10^9$  В/см.

Такой напряженности соответствуют интенсивности излучений порядка  $10^{16}$  Вт/см<sup>2</sup>. Нерезонансные оптические явления обычно наблюдаются в полях сфокусированных излучений импульсных лазеров.

*Спектроскопия* – раздел оптики, изучающий резонансное взаимодействие света с веществом [4]. При резонансе даже слабая вынуждающая сила может вызвать сильное возмущение колебательной системы и как следствие нелинейные колебания. Поэтому в условиях, характерных для спектроскопии, нелинейные зависимости внутриатомных осцилляций зарядов от напряженности и необычные оптические процессы наблюдаются уже в полях излучений относительно маломощных лазеров непрерывного действия с интенсивностью порядка долей Вт/см<sup>2</sup> (подробнее см., например, [5, 6]). При этом для проявления резонансности взаимодействия необходимо, чтобы спектральная ширина излучения не превышала ширины резонанса.

Теория резонансных нелинейно-оптических процессов на квантовых переходах атомов и молекул, входящих в состав различных веществ, легла в основу принципиально нового направления в спектроскопии – *нелинейной спектроскопии*, методы которой основаны на использовании резонансных нелинейных оптических явлений. Это привело к ускоренному развитию оптической физики в целом, резко продвинуло физику атомов и молекул, привело к созданию качественно новых технологий.

Оптическая спектроскопия играет чрезвычайно важную роль в получении информации о структуре атомов и молекул, составе вещества и физико-химических процессах, протекающих на атомно-молекулярном уровне. Лазеры произвели революцию в классической (линейной) спектроскопии (подробнее см. [4–6]). Дальнейший прогресс связан с устранением ограничений на чувствительность и разрешающую способность и со стороны доплеровского уширения переходов. Это удалось осуществить с помощью методов нелинейной лазерной спектроскопии.

Статья посвящена рассмотрению основных принципов одного из таких методов лазерной спектроскопии сверхвысокого разрешения – нелинейной лазерной спектроскопии внутри доплеровской ширины спектральной линии.

### УЗКИЕ НЕЛИНЕЙНЫЕ РЕЗОНАНСЫ НА ДОПЛЕРОВСКОМ КОНТУРЕ СПЕКТРАЛЬНОЙ ЛИНИИ: СПЕКТРОСКОПИЯ НАСЫЩЕНИЯ

Положение и форма резонансов поглощения и испускания света атомами и молекулами при квантовых переходах являются основными источниками информации об их структуре и взаимодействии с окружающими частицами. В газах при низком давлении атомы и молекулы испускают и поглощают свет на частотах, сдвинутых относительно собст-

венных частот неподвижных частиц из-за эффекта Доплера. Спектры поглощения и излучения ансамбля атомов, совершающих хаотическое тепловое движение, состоят из множества близких линий, которые соответствуют отдельным частицам с определенной скоростью, и сливаются в широкий резонанс (спектральную линию) (рис. 1). Такое неоднородное уширение называется *доплеровским*. Оно маскирует характеристики значительно более узких резонансов, соответствующих квантовым переходам отдельных частиц. Спектральные линии могут состоять из нескольких близко расположенных компонент. Если расстояние между ними меньше доплеровской ширины, то указанная структура не проявляется в обычных спектрах испускания и поглощения. Тем самым теряется принципиально важная для многих разделов физики и химии информация о тонкой и сверхтонкой структуре энергетических уровней, а также о взаимодействиях частиц, приводящих к незначительным уширениям и сдвигам индивидуальных резонансов. В линейной спектроскопии устранение доплеровского уширения и *субдоплеровское* разрешение возможны лишь для монокинетических атомов, то есть пучка атомов, имеющих одинаковые скорости и направление движения, либо для пучка атомов, который пересекается светом перпендикулярно (см. рис. 1). Это не всегда возможно либо сопряжено с другими ограничениями. Методы нелинейной спектроскопии позволяют устранить эти ограничения.

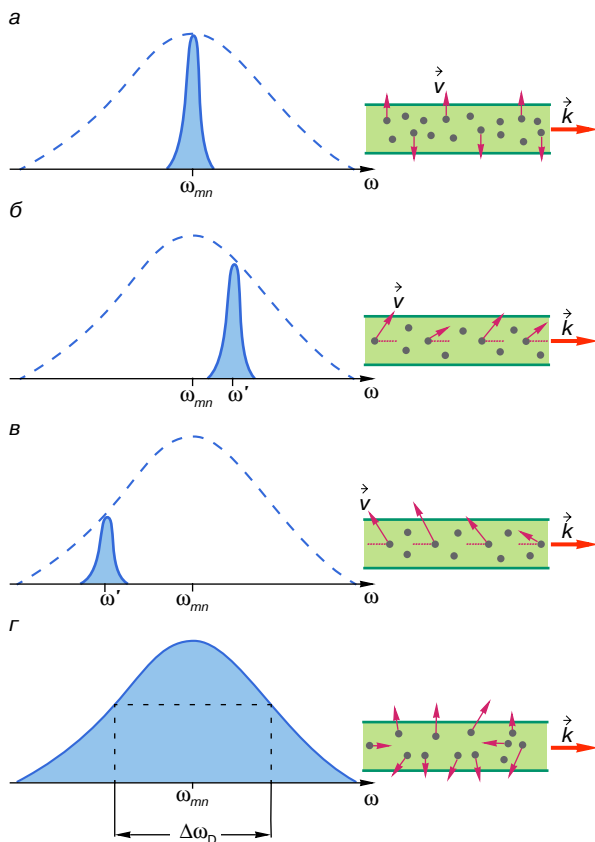
Рассмотрим простейший вариант проявления нелинейной зависимости в спектрах поглощения и усиления излучения ансамблем атомов в газе. Представим себе, что излучение бегущей вдоль оси  $z$  электромагнитной волны на частоте  $\omega$  взаимодействует с атомами, имеющими квантовый переход на близкой частоте  $\omega_{mn}$  и максвелловское распределение по проекции  $v$  на это направление (ось  $z$ ) их скоростей движения:

$$W(v) = (\sqrt{\pi}u)^{-1} \exp[-(v/u)^2], \quad (1)$$

где  $u$  имеет смысл наиболее вероятной скорости. Движущиеся атомы воспринимают частоту излучения как доплеровски сдвинутую  $\omega - kv$ , где  $k = \omega/c$  – направленный вдоль оси  $z$  волновой вектор излучения,  $c$  – скорость света. Таким образом, излучение будет преимущественно взаимодействовать с “резонансными” атомами, имеющими проекцию скорости  $v_r$ , для которой выполняется условие  $\omega - kv_r = \omega_{mn}$ . Предположим, что форма атомного резонанса описывается функцией Лоренца с полушириной  $\Gamma$ :

$$f(\Omega') = \frac{\Gamma^2}{[\Gamma^2 + \Omega'^2]},$$

где  $\Omega' = \omega - \omega_{mn} - kv = \Omega - kv$  – отстройка излучения от резонанса с учетом доплеровского сдвига. Тогда лишь атомы, имеющие проекцию скорости на



**Рис. 1.** Влияние движения атомов на спектры испускания и поглощения излучения вблизи собственной частоты перехода  $\omega_{mn}$ :  
 а – спектр испускания и поглощения для атомов, движущихся ортогонально направлению распространения бегущей волны излучения. Форма спектральной линии лоренцева и такая же, как и для покоящегося атома;  
 б – то же, для атомов с фиксированным значением проекции скорости  $\vec{v}$  вдоль направления распространения излучения  $\vec{k}$ ,  $k = \omega/c$ . Спектральная линия испытывает доплеровский сдвиг на величину  $\omega' - \omega_{mn} = kv$ ;  
 в – то же, для атомов с определенным значением проекции скорости  $-v$  против направления распространения излучения,  $\omega' - \omega_{mn} = -kv$ ;  
 г – форма спектральной линии поглощения и испускания для ансамбля атомов с максвелловским распределением по скоростям.  
 Штриховые кривые на рис. а–в и огибающая спектра на рис. г описывают максвелловское распределение атомов на соответствующих энергетических уровнях по доплеровским сдвигам частоты  $kv$ , которое справедливо при тепловом равновесии

направление распространения волны вблизи значения  $v_r = \Omega/k$ , будут совершать квантовые переходы между энергетическими уровнями  $m$  и  $n$ . Поскольку вероятности вынужденных переходов с испусканием и поглощением фотонов между обоими уровнями приблизительно одинаковы, а число переходов в

единицу времени пропорционально заселенностям, излучение стремится их выравнять, но лишь для резонансных атомов. Таким образом, в распределении по скоростям атомов на одном из энергетических уровней появится провал лоренцевой формы, а на другом – пик (рис. 2, а). В соответствующем распределении для разности заселенностей энергетических уровней возникает провал. С увеличением интенсивности излучения провалы углубляются, пока заселенности не сравняются. Эту замедляющуюся зависимость заселенностей уровней от интенсивности резонансного излучения называют *эф-эффектом насыщения*.

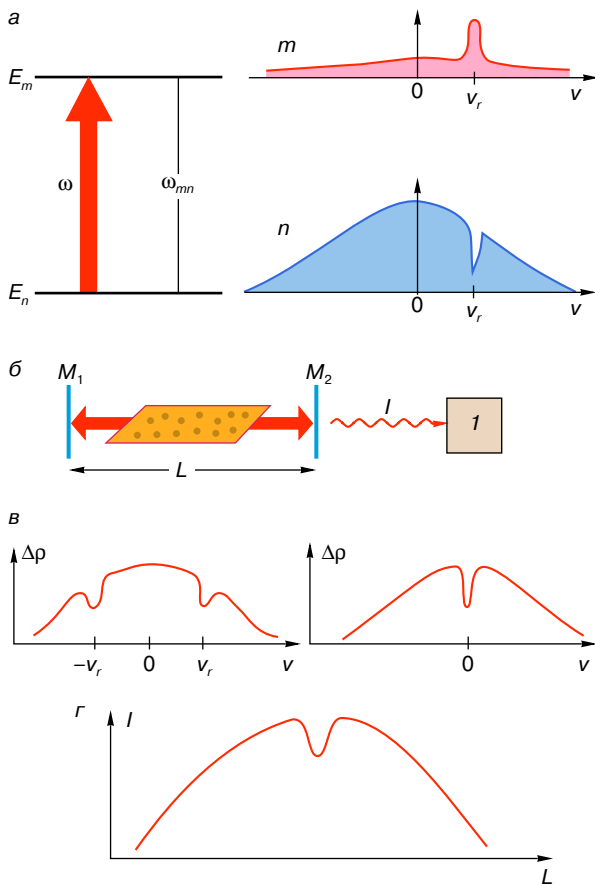
Поляризация газа на частоте  $\omega$  пропорциональна произведению напряженности электрического поля и разности заселенностей. Поскольку в сильных полях разность заселенностей начинает зависеть от интенсивности излучения, зависимость поляризации от напряженности поля также приобретает нелинейный характер. Возникновение неравновесного (отличного от максвелловского) распределения атомов по скоростям для отдельных уровней и для разности заселенностей приводит к интереснейшим проявлениям этих резонансных нелинейных эффектов. Ниже будут рассматриваться их проявления в спектроскопии (об эффекте светоиндуцированного дрейфа, обусловленного этой неравновесностью, см. [7]).

В достаточно слабых полях, когда вероятности вынужденных переходов значительно меньше спонтанных и изменением заселенностей уровней можно пренебречь, вероятность обнаружить атомные осцилляторы с различными сдвигами частоты определяется функцией Гаусса (1). Соответственно в условиях линейной спектроскопии при  $ku \gg \Gamma$  резонанс поглощения или усиления для ансамбля атомов оказывается уширенным по закону

$$f_u(\Omega) = \sqrt{\pi} \Gamma (ku)^{-1} \exp[-(\Omega/ku)^2].$$

Как уже отмечалось, такое уширение называется доплеровским, а ширина соответствующей спектральной линии на полувысоте зависит лишь от частоты перехода, температуры  $T$  и атомной массы  $M$ :  $\Delta\omega_D = 2(\ln 2)^{1/2} ku = 2(\omega_{mn}/c)(2\ln 2 k_B T/M)^{1/2}$  ( $k_B$  – постоянная Больцмана). В зависимости от конкретных экспериментальных условий и квантовых переходов *доплеровская ширина*  $\Delta\omega_D$  лежит в интервале величин порядка  $(10^8 - 10^{10}) \text{ c}^{-1}$  и, как правило, значительно больше *естественной ширины*  $2\Gamma \sim (10^3 - 10^8) \text{ c}^{-1}$  ( $\Delta\omega_D/\Gamma \sim 10^2 - 10^5$ ). Как уже отмечалось, это приводит к маскировке спектральных линий отдельных атомов.

Недостаток или избыток атомов на энергетических уровнях в некоторых интервалах скоростей приводит к возникновению в соответствующих интервалах частот суперпозиции узких нелинейных резонансов в спонтанном испускании, а также в усилении или поглощении другого пробного



**Рис. 2.** Неравновесное распределение заселенностей уровней по скоростям в поле монохроматического излучения и нелинейный резонанс в спектре поглощения, усиления и генерации стоячей волны:

*а* – лазерно-индуцированное неравновесное распределение по скоростям на верхнем и нижнем уровнях поглощающего перехода в поле бегущей волны.  $\nu_r = (\omega - \omega_{mn})/k$ ,  $\omega > \omega_{mn}$ ;

*б* – схема эксперимента по наблюдению узкого резонанса на доплеровском контуре генерации газового лазера:  $M_1, M_2$  – зеркала, образующие лазерный резонатор и формирующие две встречные волны (частота генерации  $\omega$  перестраивается за счет изменения длины резонатора  $L$ ),  $1$  – фотоприемник;

*в* – неравновесное распределение по скоростям разности заселенностей на генерирующем переходе в поле стоячей волны внутри резонатора при  $\omega \neq \omega_{mn}$  (левая кривая) и  $\omega = \omega_{mn}$  (правая кривая);

*г* – узкий резонанс в центре кривой зависимости мощности генерации газового лазера от частоты (длины резонатора), обусловленный взаимодействием встречных бегущих волн с одной и той же группой атомов (перекрытием провалов на рис. 2, в)

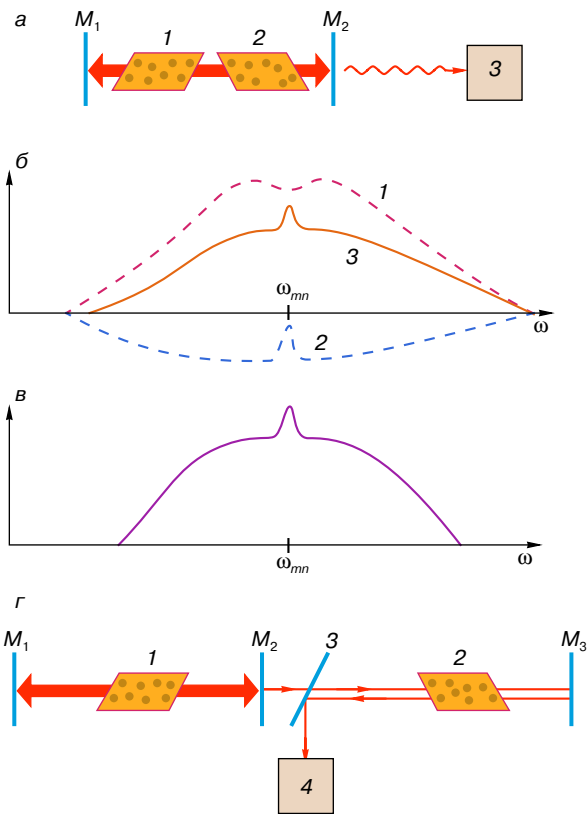
излучения при сканировании его частоты вблизи частоты  $\omega_{mn}$ . Ширина резонансов соизмерима с шириной энергетических уровней в единицах частоты  $\Gamma_m$  и  $\Gamma_n$ . При их значительном различии результирующий резонанс может быть даже уже спектральных

линий отдельных атомов, естественная ширина которых равна  $2\Gamma = \Gamma_m + \Gamma_n$ . Нелинейные резонансы возникают на частотах, соответствующих взаимодействию пробного излучения с “неравновесными” атомами. Иными словами, они возникают на таких частотах, когда сильное и пробное поля взаимодействуют с одними и теми же атомами.

Например, для пробной волны с той же частотой  $\omega$ , но распространяющейся во встречном направлении условие резонанса имеет вид  $\omega + k\nu = \omega_{mn}$ . Отсюда следует, что сильная и пробная волны могут совместно взаимодействовать лишь с атомами, имеющими равные нулю проекции скорости на направление распространения излучений. Этим атомам соответствует нулевой доплеровский сдвиг частоты. Поэтому узкий нелинейный резонанс возникает в центре доплеровской спектральной линии.

Подобная ситуация типична для активной среды газового лазера, взаимодействующей внутри резонатора со стоячей электромагнитной волной (рис. 2, б). Провалы в распределении разности населенностей на переходе  $mn$  по проекции скорости на ось резонатора, вызванные действием каждой из бегущих волн, перекрываются при  $\omega = \omega_{mn}$  (рис. 2, в). В результате конкуренции в центре доплеровской кривой зависимости мощности генерации газового лазера от частоты для каждой из бегущих волн возникает узкий провал с шириной порядка естественной ширины линии для отдельных атомов (рис. 2, г). Таким образом, сам лазер явился первым нелинейно-оптическим прибором, а газовый лазер был использован как первый нелинейный спектрометр высокого разрешения для квантовых переходов атомов и молекул, на которых осуществляется генерация. Это, а также состав газовой смеси и диапазон давлений, при которых работает лазер, ограничивают область применимости такого спектрометра.

Если внутрь лазерного резонатора поместить резонансно поглощающую ячейку (рис. 3, а), то при определенных условиях из-за более значительного уменьшения поглощения в центре спектральной линии генерируемой стоячей волны по сравнению с уменьшением усиления (рис. 3, б) на кривой зависимости мощности генерации от частоты для такого лазера может наблюдаться вместо провала пик (рис. 3, в). Давление и состав смеси в поглощающей ячейке можно изменять в более широких пределах. Еще больше возможностей для варьирования условий эксперимента представляет использование внешней поглощающей ячейки и перестраиваемого лазера, у которого в области резонанса поглощения мощность генерации не зависит от частоты (как, например, у лазера на красителях). При этом стоячая волна формируется с помощью дополнительно зеркала (рис. 3, г). Разработка описанных выше методов, благодаря которым получена чрезвычайно важная спектроскопическая информация, явилась принципиальным этапом развития субдоплеровской



**Рис. 3.** Узкие резонансы насыщенного поглощения в поле стоячей волны:  
 а – лазер с внутрирезонаторным поглощением:  $M_1, M_2$  – зеркала, образующие лазерный резонатор; 1 – ячейка с усиливающим газом, 2 – ячейка с поглощающим газом, 3 – фотоприемник;  
 б – кривая 1 – насыщенное усиление в ячейке 1, 2 – насыщенное поглощение в ячейке 2, 3 – разность между показателями усиления и поглощения;  
 в – зависимость мощности генерации от частоты в лазере с внутрирезонаторным поглощением;  
 г – схема эксперимента по наблюдению узкого резонанса на доплеровском контуре линии поглощения в поле стоячей волны во внешней ячейке:  $M_1, M_2$  – зеркала, образующие лазерный резонатор; 1 – ячейка с усиливающим газом, 2 – ячейка с поглощающим газом,  $M_3$  – дополнительное зеркало, 3 – полупрозрачное разделительное зеркало, 4 – фотоприемник

нелинейной лазерной спектроскопии. Следующий этап связан с трехуровневой нелинейной спектроскопией.

### УЗКИЕ НЕЛИНЕЙНЫЕ РЕЗОНАНСЫ НА ДОПЛЕРОВСКОМ КОНТУРЕ СПЕКТРАЛЬНОЙ ЛИНИИ: НЕЛИНЕЙНАЯ ТРЕХУРОВНЕВАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ

Форма нелинейного резонанса и его интерпретация усложняются, если уровни энергии имеют сверхтонкую или тонкую структуру. Рассмотрим об-

щий случай многоуровневой системы. Будем считать, что бегущая волна сильного излучения с частотой  $\omega$  резонансна переходу  $mn$  в пределах его доплеровской ширины. Бегущая в том же или противоположном направлении волна пробного излучения близка к частоте одного из смежных переходов, изображенных на рис. 4, а. Для определенности рассмотрим спектр поглощения (усиления) на переходе  $ml$ . Частоту пробного излучения будем обозначать  $\omega_\mu$ . В рассматриваемом случае фотоны  $\hbar\omega_\mu$  могут испускаться или поглощаться в результате как переходов между уровнями  $m$  и  $l$ , так и переходов между уровнями  $n$  и  $l$ , при которых фотоны  $\hbar\omega_\mu$  и  $\hbar\omega$  испускаются и поглощаются коррелированно. В первом случае характеристики нелинейного резонанса должны определяться свойствами последовательных переходов  $nm$  и  $ml$ , во втором – определяться характеристиками двухфотонного резонанса с переходом  $nl$  (более подробно о многофотонных процессах см. [2]).

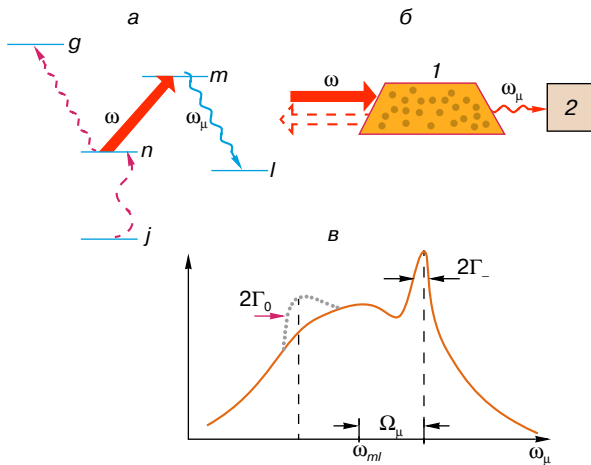
Следует отметить, что в резонансных условиях и сильных полях основные признаки, по которым были введены ступенчатые и двухфотонные процессы, претерпевают значительные изменения [5]. Кроме того, существенным становится интерференция указанных процессов. Изучение нелинейных интерференционных процессов на квантовых переходах представляет значительный интерес как с фундаментальной, так и с практической точки зрения. Однако более детальное обсуждение этого вопроса выходит за рамки статьи.

Для бегущих в одном направлении сильной и пробной волн (рис. 4, б) из условия совпадения резонансных скоростей получаем условие нелинейного резонанса на переходе  $mn$  (рис. 4, в):

$$\frac{\Omega_\mu}{k_\mu} = v_r = \frac{\Omega}{k}, \quad \Omega_\mu = \omega_\mu - \omega_{ml}, \quad k_\mu = \frac{\omega_\mu}{c}.$$

Для встречных волн (штриховые линии на рис. 4, б и в) нелинейный резонанс возникает на другой стороне доплеровского контура перехода  $ml$  симметрично относительно центра спектральной линии. Это также следует из условия совпадения резонансных скоростей, которое получаем заменой  $k$  на  $-k$  в предыдущих выражениях:  $\Omega_\mu/k_\mu = v_r = -\Omega/k$ .

Доплеровские полуширины однофотонных переходов  $\sqrt{\ln 2} k u$  и  $\sqrt{\ln 2} k_\mu u$  не зависят от направления наблюдения. Из условия двухфотонного резонанса соответственно для одинаково и противоположно направленных волн  $(\omega_\mu \mp k_\mu v) - (\omega - kv) = \omega_{ml}$  получаем, что доплеровские сдвиги для двухфотонного резонанса анизотропны, то есть зависят от относительного направления распространения взаимодействующих волн. Соответственно анизотропна и доплеровская ширина этого перехода  $2(\ln 2)^{1/2} (k_\mu \mp k) u$ . В итоге не только положение, но и форма нелинейных резонансов на доплеровской



**Рис. 4.** Нелинейная трехуровневая спектроскопия: *а* – схема переходов для наблюдения узких резонансов, обусловленных неравновесным распределением заселенностей по скоростям и интерференцией квантовых переходов. Бегущая волна сильного излучения с частотой  $|\omega - \omega_{mn}| \leq kv$  возмущает атомную систему (на рисунке рассмотрен пример  $\omega > \omega_{mn}$ ). Нелинейные резонансы наблюдаются на доплеровски уширенном контуре спектральной линии поглощения или усиления бегущей волны слабого излучения с частотой  $\omega_\mu$ , перестраиваемой в окрестности частоты одного из смежных переходов; *б* – схема эксперимента для наблюдения резонансов: 1 – исследуемый газ, 2 – фотодетектор пробного излучения на частоте  $\omega_\mu$ . Возможны два варианта, когда бегущая волна сильного излучения на частоте  $\omega$  распространяется в том же либо в противоположном направлении; *в* – характерная форма нелинейного резонанса на доплеровской кривой поглощения (либо усиления) пробного излучения в окрестности частоты перехода  $ml$ . Сплошная кривая – для случая однонаправленных волн. Пунктиром обозначен нелинейный резонанс для случая встречных волн сильного и пробного излучений.  $\Omega_\mu = (k_\mu/k)(\omega - \omega_{mn})$

“подкладке” оказываются анизотропными и зависящими от соотношения длин волн связанных переходов. Так, если тестируемый переход более коротковолновый, то в параллельных волнах нелинейный резонанс имеет полуширину [5, 6]

$$\Gamma_- = \Gamma_{nl} + \left(\frac{k_\mu}{k} - 1\right)\Gamma_{mn}, \quad k_\mu > k.$$

Здесь и далее  $\Gamma_{ij}$  – полуширины соответствующих атомных переходов. Если переход  $ml$  более длинноволновый по сравнению с  $mn$ , то нелинейный резонанс может иметь более сложную по сравнению с лоренцевой форму и характерную полуширину

$$\Gamma_- = \frac{k_\mu}{k}\Gamma_{nl} + \left(1 - \frac{k_\mu}{k}\right)\Gamma_{mn}, \quad k_\mu < k.$$

В антипараллельных волнах полуширина нелинейного резонанса оказывается равной  $\Gamma_0 = \Gamma_{ml} + (k_\mu/k)\Gamma_{mn}$  и, как правило, больше, чем для параллельных волн. Отметим, что ширина  $2\Gamma_-$  может быть меньше естественных ширин для каждого из переходов  $ml$  и  $mn$ .

Таким образом, методы нелинейной трехуровневой спектроскопии позволяют получать на доплеровском контуре резонансы, которые могут быть существенно уже не только доплеровских, но и естественных ширин разрешенных переходов. Совокупность обсуждаемых измерений позволяет получать с субдоплеровским разрешением информацию не только о разрешенных, но и о запрещенных в однофотонном приближении переходах, что расширяет возможности спектроскопии сверхвысокого разрешения.

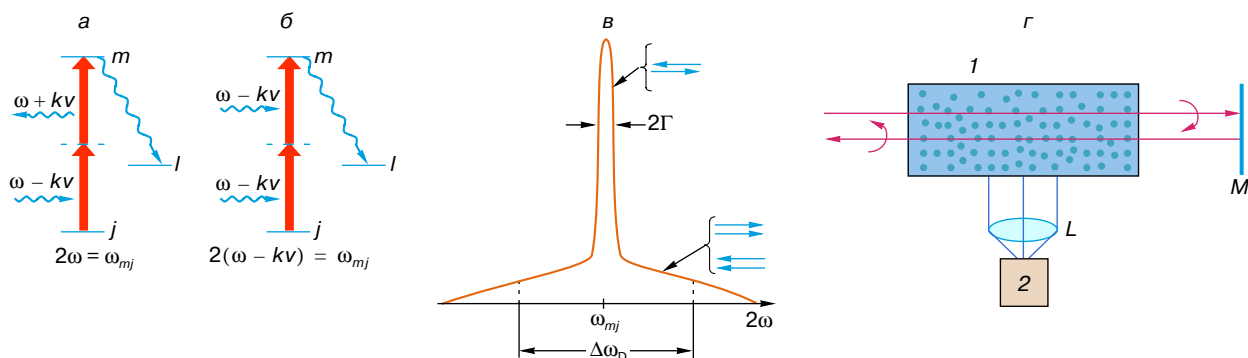
### ДВУХФОТОННАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ, СВОБОДНАЯ ОТ ДОПЛЕРОВСКОГО УШИРЕНИЯ

Рассмотрим схему эксперимента, когда излучения на частотах  $\omega_\mu$  и  $\omega$  находятся в двухфотонном резонансе с переходом  $jm$  движущегося атома (рис. 5). Это условие для встречных и однонаправленных волн соответственно имеет вид

$$(\omega_\mu \pm k_\mu v) + (\omega - kv) = \omega_{jm}. \quad (2)$$

Если каждая из рассматриваемых частот отличается от частот однофотонных переходов на величину, существенно превышающую доплеровские ширины этих переходов, то каждое из излучений может поглощаться только в результате двухфотонных процессов. И хотя при этом вероятности вынужденных переходов существенно уменьшаются и требуются значительно большие интенсивности излучений по сравнению с ранее рассмотренными методами, появляется возможность полного устранения доплеровского уширения двухфотонного перехода.

Действительно, при  $\omega_\mu = \omega$ ,  $k_\mu = k$  для встречных волн (верхний знак в формуле (2)) в системе координат, связанной с атомом, доплеровский сдвиг частоты одной из волн полностью компенсируется равным по величине и противоположным по знаку доплеровским сдвигом для другой волны. Все атомы независимо от их скорости оказываются в резонансе поглощения по одному фотону из встречных волн на частоте  $\omega_\mu = \omega = \omega_{mj}/2$  (рис. 5, а). Контур спектральной линии поглощения приобретает вид узкого пика, ширина которого определяется шириной двухфотонного резонанса неподвижного атома. Атомы также способны поглощать по два фотона из каждой бегущей волны (нижний знак в формуле (2)). При этом доплеровские сдвиги суммируются. Как следствие и доплеровская ширина двухфотонного перехода приблизительно удваивается по сравнению с таковыми для комбинирующих однофотонных переходов (рис. 5, б). Лишь малая доля атомов (приблизительно равная  $\Gamma_{jm}/(k_\mu + k)v$ )



**Рис. 5.** Спектроскопия двухфотонного поглощения, свободная от доплеровского уширения:  
 а – компенсация доплеровских сдвигов при одновременном поглощении фотонов из встречных волн при условии равенства их частот;  
 б – удвоенный сдвиг при поглощении двух фотонов из одной и той же бегущей волны;  
 в – спектр двухфотонного поглощения стоячей волны;  
 г – схема эксперимента: 1 – поглощающая ячейка, М – зеркало, L – линза, 2 – детектор флуоресценции на переходе  $mI$ . Зависимость интенсивности флуоресценции от частоты  $\omega$  повторяет кривую в. Для устранения широкого пьедестала используется циркулярно поляризованное излучение на частоте  $\omega$

оказывается в двухфотонном резонансе и дает вклад в поглощение на каждой из частот в пределах доплеровского контура. В результате в спектре двухфотонного поглощения появляется небольшая по высоте широкая подкладка, в центре которой расположен значительно больший по амплитуде узкий пик, обусловленный поглощением по одному фотону из встречных волн (рис. 5, в).

Существуют приемы, позволяющие полностью устранить эту подкладку (рис. 5, г). Такое возможно, например, для циркулярно поляризованного излучения и двухфотонных переходов между квантовыми состояниями, характеризуемыми одинаковым моментом количества движения. В этом случае закон сохранения разрешает поглощение только такой пары фотонов, сумма моментов которых равна нулю. Для стоячей волны циркулярно поляризованного излучения последнее возможно лишь при поглощении по одному фотону из встречных волн, поскольку их фотоны имеют равные по величине, но противоположные по знаку моменты. В итоге широкий пьедестал исчезает и форма линии поглощения имеет вид узкого резонанса с шириной, на несколько порядков уже характерных доплеровских ширин оптических переходов.

Двухфотонное поглощение сопровождается появлением атомов на уровне  $m$ . Поэтому спектральные характеристики поглощения можно регистрировать по зависимости интегральной по частоте интенсивности спонтанного излучения с этого уровня на одном из смежных переходов от частоты излучения возбуждающего лазера (рис. 5, а, г). Поскольку для выделения спонтанного излучения на каком-либо переходе от других достаточно простых диспергирующих приборов, появляется возможность осуществлять спектроскопию сверх-

высокого разрешения без использования уникальных приборов.

Как уже отмечалось, теоретически предельное разрешение перечисленных выше субдоплеровских методов определяется естественными ширинами энергетических уровней. В зависимости от природы уровней соответствующие величины лежат в интервале  $\Delta\nu \sim 10^2 - 10^7$  Гц, что при характерных значениях частоты оптического излучения  $\nu \sim 10^{13} - 10^{14}$  Гц соответствует разрешению  $\nu/\Delta\nu \sim 10^7 - 10^{12}$ . В качестве примера экспериментальной реализации методов можно привести спектроскопию колебательных переходов молекулы метана с помощью газового лазера непрерывного действия, работающего на смеси атомов неона и гелия в диапазоне длин волны 3,39 мкм. Достигнутое разрешение составляет величину порядка 1 кГц ( $\nu/\Delta\nu \sim 10^{10}$ ).

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Нелинейная лазерная спектроскопия является одной из ярких иллюстраций революции в атомной, молекулярной и оптической физике благодаря открытию лазеров. В статье в упрощенной форме описаны физические основы лишь некоторых методов нелинейной спектроскопии внутри доплеровской ширины спектральной линии. Для желающих подробнее познакомиться с ее теоретическими основами можно порекомендовать, например, книги [5, 6]. В свою очередь, субдоплеровская спектроскопия не исчерпывает всего богатства методов нелинейной спектроскопии. В ходе исследований ставятся все новые проблемы, связанные с дальнейшей разработкой и использованием ее методов. Для того чтобы читатель составил представление о круге таких приложений, перечислим некоторые из них: изучение изотопической структуры и изомерных сдвигов,

а также влияния слабых электрических и магнитных полей на энергетические уровни конкретных атомов и молекул, исследование релаксационных процессов для различных вращательных, колебательных и электронных состояний, а также зависимости сечений различных упругих и неупругих столкновений атомов и молекул от этих состояний, использование сверхузких резонансов для создания стабилизированных лазеров и различных типов прецизионных измерительных приборов, включая единый стандарт длины и времени. С помощью сверхузких нелинейных резонансов проводятся исследования по повышению точности измерения таких фундаментальных физических констант, как скорость света, постоянная Ридберга и частота переходов атома водорода, частота переходов в атоме позитрония, по проверке постоянства фундаментальных констант, регистрации гравитационных волн и проверке законов специальной и общей теории относительности, изучение двойных гамма-оптических резонансов и ядерной спектроскопии [6]. Полученные результаты, в свою очередь, стимулируют дальнейшее развитие широкого круга естественных и технических наук.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Делоне Н.Б. Нелинейная оптика // Соросовский Образовательный Журнал. 1997. № 3. С. 94–99.

2. Делоне Н.Б. Многофотонные процессы // Соросовский Образовательный Журнал. 1996. № 3. С. 75–81.

3. Слабко В.В. Рентгеновский лазер: возможности реализации // Соросовский Образовательный Журнал. 1997. № 1. С. 79–86.

4. Попов А.К. Лазерная спектроскопия, ограниченная доплеровским уширением // Соросовский Образовательный Журнал. 1998. № 3. С. 105–111.

5. Попов А.К. Введение в нелинейную спектроскопию. Новосибирск: Наука, 1983. 274 с.

6. Летохов В.С., Чеботаев В.П. Принципы нелинейной лазерной спектроскопии. М.: Наука, 1975, 279 с.

7. Шалагин А.М. Эффект светоиндуцированного дрейфа газов // Соросовский Образовательный Журнал. 1996. № 6. С. 108–114.

\* \* \*

Александр Кузьмич Попов, доктор физико-математических наук, профессор Красноярского государственного университета и Красноярского государственного технического университета, зав. лабораторией Института физики СО РАН, член-корреспондент Сибирского отделения Международной академии наук высшей школы. Область научных интересов: резонансная нелинейная оптика, нелинейная спектроскопия, лазерная физика. Автор более 150 научных работ и трех монографий.