

ОСОБЕННОСТИ РАДИООПТИЧЕСКОГО РЕЗОНАНСА В ЯЧЕЙКАХ С ПОКРЫТИЕМ

Б. Д. Агапьев, М. Б. Горный, Б. Г. Матисов

Исследуется роль радиоиндуцированного переноса квантовых состояний в поле бегущей радиоволны в формировании линии радиооптического резонанса.

Анализируется влияние защитных покрытий стенок кюветы на характеристики резонанса. Впервые в рамках квантово-кинетического подхода исследован эффект Дикке, обусловленный стенками кюветы, и предсказана возможность провала в центре линии.

Введение

В недавней экспериментальной работе [1] Робинсона и Джонсона отмечено характерное сужение линии двойного радиооптического резонанса (РОР) в откачанных ячейках с парафиновым покрытием. Причиной этого сужения является эффект Дикке, обусловленный ограничением длины свободного пробега размером ячейки L .

Неясным, однако, остается следующее обстоятельство, отмеченное в работе Фрухольца и Волка [2]. Для проявления эффекта Дикке, согласно общепринятой корреляционной теории формы линии, требуется выполнение условия $kL \ll 1$ (k — волновой вектор резонансного радиоизлучения), но оно как раз и не выполняется в экспериментах Робинсона и Джонсона.

Попытка объяснения этого обстоятельства в рамках корреляционной теории формы линии содержится в работе [2]. Ее обсуждение не входит в наши намерения. Отметим лишь, что, поскольку в корреляционной теории формы линии взаимодействие излучающего осциллятора с резервуаром описывается с помощью случайных функций времени, а не с помощью некоммутирующих операторов, в этой теории не выполняется правильное соотношение между вероятностями прямых и обратных переходов [3]. Обсуждение затронутого вопроса можно найти в книге Абрагама [4].

В дальнейшем нами будет использован для анализа особенностей формы линии РОР в ячейках с покрытием подход, свободный от указанного недостатка и основанный на описании явления в языке квантовых кинетических уравнений для матрицы плотности активных атомов. Одним из достоинств такого подхода является последовательный учет всех существенных черт взаимодействия активного атома с окружением и электромагнитными полями, позволяющий обходиться без феноменологических констант релаксации, используя микроскопические выражения для них.

Такое единое кинетическое описание использовалось авторами в серии работ [5-8], где описано новое физическое явление — радиоиндуцированный перенос (РИП) чистых и смешанных квантовых состояний, играющий, как показано ниже, важную роль в формировании линии РОР в кюветах с покрытием.

Физической причиной возникновения РИП является обусловленная эффектом Доплера селективность (по скоростям) взаимодействия радиочастотного поля с активными атомами. Она приводит к появлению беннетовских провалов и пиков в распределении по скоростям атомов в энергетических состоя-

ниях, образующийся переход, взаимодействующий с радиополем. Возникающая асимметрия распределений по скоростям ведет к появлению встречных макроскопических потоков атомов в этих состояниях вдоль луча бегущей радиоволны [5, 8]. В этих условиях можно говорить о потоке инверсии населенностей состояний или эквивалентно о переносе продольной намагниченности.

В случае резонанса радиоволны с переходом между рассматриваемыми состояниями беннетовские провалы (пики) располагаются в центре распределения по скоростям, и взаимодействие с радиочастотным полем не приводит к переносу продольной намагниченности. Однако поперечная намагниченность (радиочастотная когерентность) переносится даже в резонансе, поскольку распределение по скоростям компоненты удельной намагниченности в направлении вращающегося вектора магнитного поля радиоволны приобретает вследствие эффекта Доплера дисперсионную форму. Это свидетельствует о том, что преимущественное выстраивание атомных моментов вдоль магнитного поля бегущей волны больше для тех атомов, которые движутся в направлении распространения волны и обладают поэтому большим временем когерентного взаимодействия с полем радиоволны [6, 7].

В кюветах ограниченного размера радиоиндуцированный перенос продольной намагниченности (инверсии) приводит к пространственному разделению рассматриваемых квантовых состояний, а следовательно, к пространственной неоднородности сигнала радиооптического резонанса. Кроме того, имеет место деформация контура спектральной линии РОР, обусловленная эффектом Доплера в потоке квантовых состояний.

Аналогичным образом радиоиндуцированный перенос поперечной намагниченности (радиочастотной когерентности) в ограниченном объеме имеет следствием пространственное разделение первоначально некогерентной смеси квантовых состояний на две когерентные компоненты, находящиеся в противофазе по отношению друг к другу и занимающие объемы, прилегающие к противоположным стенкам кюветы. Установившееся пространственное распределение квантовых состояний проявляется в изменении сигнала парамагнитного резонанса вдоль оси кюветы, совпадающей с направлением распространения радиоволны.

Оценки [5, 8] показывают, что описываемая пространственная селекция квантовых состояний (СКС) может приводить к тому, что в достаточно типичных ситуациях величина сигнала РОР у противоположных стенок кюветы будет различаться на порядок и более. Это говорит о том, что эффекты СКС являются весьма важными со спектроскопической точки зрения, а в некоторых ситуациях, возможно, и определяющими.

Задачей настоящей работы является исследование влияния радиоиндуцированного переноса и пространственной СКС на форму линии РОР. Для анализа проблемы мы воспользуемся квантовыми кинетическими уравнениями РОР, записанными для элементов матрицы плотности активных атомов [5, 8]. Поскольку эти уравнения являются дифференциальными по пространственным переменным, следует сказать о граничных условиях. Мы будем различать следующие типы взаимодействия активного атома со стенкой и соответствующие им граничные условия.

1. Каждое столкновение активного атома со стенкой приводит к полной дезориентации спина. Такая ситуация реализуется для стеклянных кювет с парами щелочных элементов и обусловлена весьма существенной дисперсией магнитного поля, достигающей в пирексе величины 5 Гс [9] в связи со значительным содержанием в нем магнетита (0.1 %), образующего ферромагнитные микродомены.

Этому типу взаимодействия со стенкой отвечают граничные условия полного гашения: отсутствие инверсии f и когерентности f^{12} в потоке атомов, летящих от стенки

$$f(\mathbf{r}, \mathbf{v}) \Big|_{\substack{\mathbf{r} \in S \\ v_n > 0}} = 0, \quad (1)$$

$$f^{12}(\mathbf{r}, \mathbf{v}) \Big|_{\substack{\mathbf{r} \in S \\ v_n > 0}} = 0, \quad (2)$$

где v_n — компонента скорости атома вдоль нормали к поверхности S , направленной внутрь объема кюветы.

2. Для устранения деполяризующего действия стенок кюветы часто используются различного рода покрытия. Некоторые из них, такие как длинноцепочные парафины, весьма слабо адсорбируют активные атомы и приводят к малой дисперсии фазы волновой функции при столкновении со стенкой [10]. Поэтому для полной релаксации момента требуется очень большое число столкновений активных атомов со стенкой. Идеализацией такой ситуации являются граничные условия зеркально-когерентного отражения

$$f(\mathbf{r}, \mathbf{v}) \Big|_{\substack{\mathbf{r} \in S \\ v_n > 0}} = f(\mathbf{r}, \mathbf{v}) \Big|_{\substack{\mathbf{r} \in S \\ v_n < 0}}, \quad (3)$$

$$f^{12}(\mathbf{r}, \mathbf{v}) \Big|_{\substack{\mathbf{r} \in S \\ v_n > 0}} = f^{12}(\mathbf{r}, \mathbf{v}) \Big|_{\substack{\mathbf{r} \in S \\ v_n < 0}}. \quad (4)$$

3. Промежуточная ситуация, по-видимому, реализуется в случае силиконовых покрытий, не приводящих к заметной адсорбции, но дающих значительную дисперсию фазового сдвига [10]. В этом случае, пренебрегая слабой продольной релаксацией на стенке, используем граничные условия зеркально-некогерентного отражения (2)–(3). В принципе возможны также ситуации, промежуточные между (1) и (3), (2) и (4), отвечающие неполной релаксации инверсии и когерентности на стенке.

4. Граничные условия следующего типа соответствуют ситуации, когда время высвечивания велико по сравнению с временем адсорбции, которое в свою очередь велико по сравнению со средним временем пребывания адсорбированного атома на определенном узле решетки. В этом случае за время адсорбции атомы успевают прийти в состояние теплового равновесия с поверхностью в результате многократных перескоков с узла на узел [11]. Если предположить при этом отсутствие деполяризации атомов на стенке, то такой ситуации отвечают граничные условия диффузного типа, описывающие столкновения со стенкой, не меняющие числа атомов в квантовых состояниях, но производящие лишь максвеллизацию их распределений по скоростям.

Кинетические уравнения для матрицы плотности активных атомов и их решение приводятся в следующем разделе, где мы обсуждаем также влияние СКС на форму линии РОР.

Кинетические уравнения РОР

Рассмотрим газовую кювету, заполненную парами активного элемента и буферным газом (последнее, впрочем, не обязательно). Будем считать активные атомы трехуровневыми, причем уровни 1 и 2 пусть будут уровнями СТ — структуры основного состояния, а переход 1–3 — оптический. Положим, что некогерентная оптическая накачка производится с 1 уровня, а РЧ поле приложено к переходу 1–2. Воспользуемся далее системой квантовых кинетических уравнений для матрицы плотности активных атомов [5–8], учитывающей все основные взаимодействия активного атома

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \mathbf{v} \nabla f = -(w + \gamma) f + \hat{S} f - 4 \operatorname{Re}(i u f^{12}) + w M(\mathbf{v}), \quad (5)$$

$$\frac{\partial f^{12}}{\partial t} + \mathbf{v} \nabla f^{12} = -(w + \Gamma + i \Delta) f^{12} + \hat{S} f^{12} - i u^* f, \quad (6)$$

где f — инверсия населенностей СТ подуровней основного состояния, f^{12} — радиочастотная когерентность, $2|u|$ — частота Раби взаимодействия РЧ поля с активным атомом, $2w$ — скорость оптической накачки, γ и Γ — скорости продольной и поперечной релаксаций соответственно, $\Delta = \Omega - \mathbf{k} \cdot \mathbf{v}$, Ω и \mathbf{k} — расстройка и волновой вектор РЧ поля бегущей волны, $M(\mathbf{v})$ — максвеллиан, \hat{S} — столкновительный оператор.

Стационарное решение кинетических уравнений (5)–(6) в случае ограниченной кюветы длиной L с граничными условиями зеркально-некогерентного отражения (2)–(3) в отсутствие буферного заполнения получено в [8]. Усред-

ненная по длине кюветы интегральная инверсия населенностей выражается через него ¹ соотношением

$$\rho(\Omega) = L^{-1} \int_{-L/2}^{L/2} dz \rho(z, \Omega) = \rho_0 [1 - S(\Omega)], \quad (7)$$

$$\rho(z, \Omega) = \int_{-\infty}^{\infty} dr_z f(r_z, z, \Omega) = \rho_0 |1 - S(z, \Omega)|, \quad (8)$$

где $S(\Omega)$ — имеет смысл сигнала радиооптического резонанса, т. е. обусловленного взаимодействием с радиополем изменения поглощаемой на переходе $1-1$

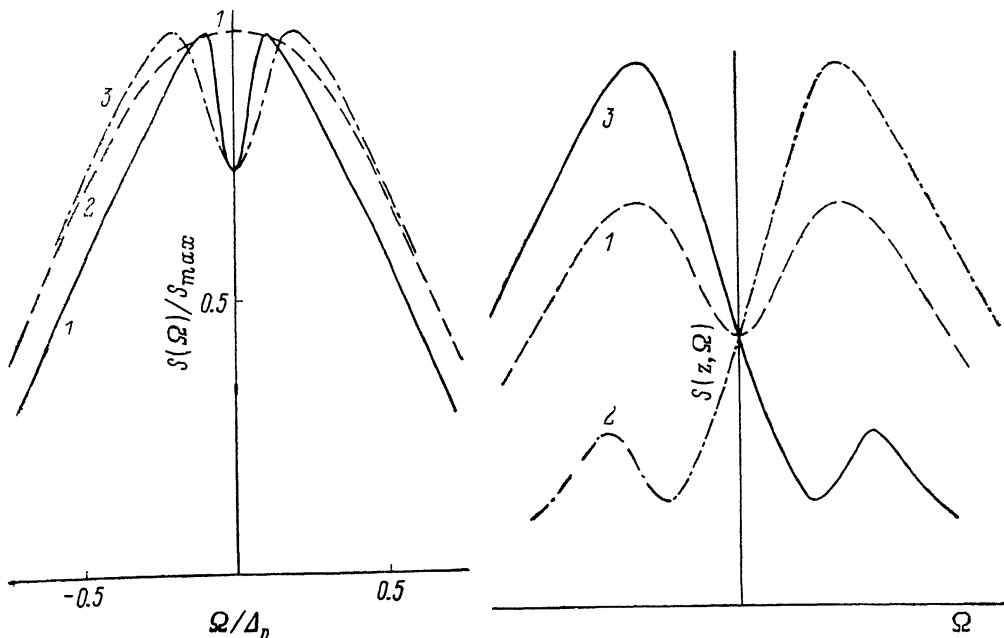


Рис. 1. Форма линии POP при зеркально-некогерентном отражении от стенок.

$L = \lambda$, $w = 2 |u| = 100 \gamma$ (1); $L = 2 \lambda$, $w = 2 |u| = 2 \cdot 10^3 \gamma$ (2); $L = 8 \lambda$, $w = 2 |u| = 20 \gamma$ (3).

Рис. 2. Частотная зависимость локального сигнала POP при зеркально-некогерентном отражении. $w = |u| = 50 \gamma$.

z : 1 — 0, 2 — $L/2$, 3 — $-L/2$.

З оптической мощности в единицах $n \hbar \omega_{31} w \rho_0$, n — концентрация активных атомов, $\rho_0 = w / (w + \gamma)$, $S(z, \Omega)$ — локальный сигнал в заданном сечении z кюветы.

Сложность аналитических выражений $S(\Omega)$ и $S(z, \Omega)$ затрудняет их качественный анализ, поэтому воспользуемся результатами численного счета по формулам (7) и (8). На рис. 1, 2 представлены полученные результаты.

На рис. 1 приведены графики $S(\Omega)$ при различных значениях параметров u , w , L . Характерной особенностью некоторых графиков является наличие провала в центре линии. Для объяснения этого провала на рис. 2 приведены графики локального сигнала $S(z, \Omega)$ при разных значениях z .

В соответствии с выводами работ [5-8] при ненулевых РЧ расстройках имеет место радиоиндуцированный перенос инверсии. Так, при отрицательных расстройках ($\Omega < 0$) возникает макроскопический поток инверсии в направлении волнового вектора радиополя. Это приводит к тому, что инверсия максимальна у торца ячейки $z = L/2$. И наоборот, при положительных расстройках ($\Omega > 0$) поток инверсии направлен в противоположную сторону и инверсия максимальна

¹ Явное аналитическое выражение для $\rho(z, \Omega)$ приведено в [8], формула (9).

у другого торца ячейки $z = -L/2$. Максимуму инверсии соответствует минимум $S(z, \Omega)$, что и подтверждает рис. 2. Интегральный сигнал $S(\Omega)$, являющийся суммой локальных сигналов, также имеет провал в районе резонанса.

Ширина провала в $S(\Omega)$ существенно меньше доплеровской ширины линии и зависит от u, w, L (рис. 1). С ростом частоты Раби $2|u|$ наступает насыщение СТ перехода, потоки инверсии уменьшаются, провал сглаживается. При уменьшении $|u|$ до нуля исчезает как провал, так и сам сигнал РОР. Таким образом, для наблюдения провала имеется оптимальное значение частоты Раби ($|u| \sim \Gamma$). Имеются также оптимальные значения длины ячейки L ($L \sim 2\lambda$) и скорости оптической накачки ($w \sim \Gamma$), при которых провал наблюдается наиболее четко.

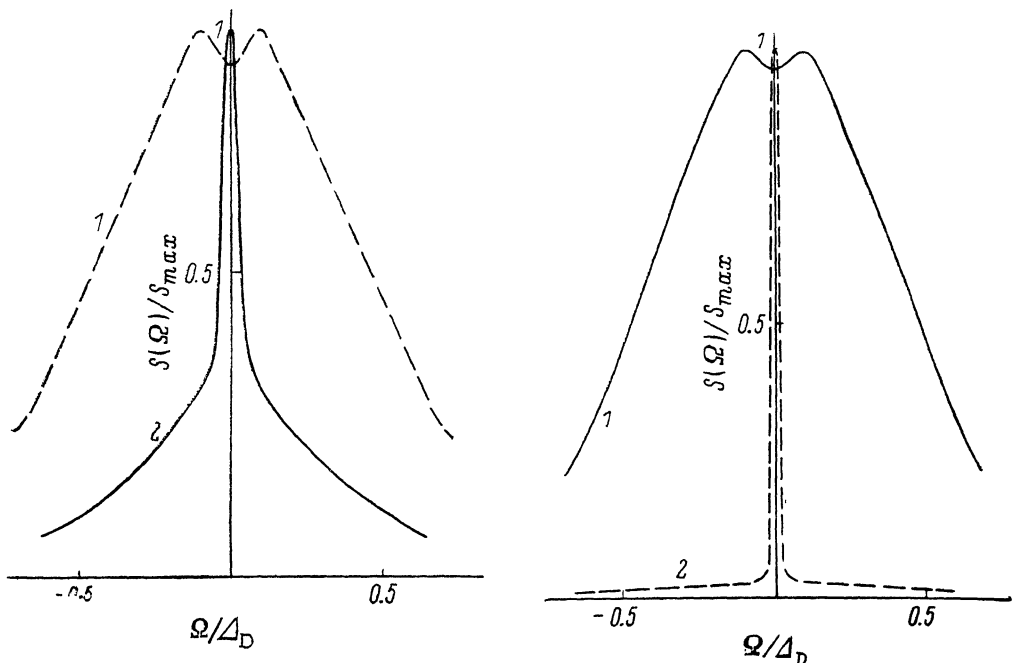


Рис. 3. Проявление эффекта Дикке при зеркально-некогерентном отражении. $w=4$ $|u|=5\gamma$.
1 — $L=\lambda$, 2 — $\lambda/2$.

Рис. 4. Эффект Дикке при зеркально-когерентном отражении. $w=4$ $|u|=5\gamma$.
1, 2 — то же, что и на рис. 3.

Следует отметить, что наличие боковых стенок ячейки, как и использование частотной модуляции сигнала, приводит к гашению радиоиндуцированного переноса и, следовательно, затрудняет наблюдение провала в центре линии РОР.

При уменьшении длины кюветы естественно ожидать проявления эффекта Дикке — сужения линии радиооптического резонанса за счет ограничения длины свободного пробега и соответствующего увеличения времени когерентного взаимодействия атома с РЧ полем.

Такое сужение экспериментально наблюдалось в [1]. Наши расчеты подтверждают этот результат (рис. 3—4). Очевидно, что именно в кюветах малых размеров начнут существенно сказываться граничные условия (ГУ). При больших размерах кювет ($L \geq 2\lambda$) форма сигнала и его амплитуда практически одинаковы как при ГУ зеркально-некогерентного типа (2—3), так и при зеркально-когерентных ГУ (3—4). Аналитическое решение кинетических уравнений (5)—(6) в случае ГУ (3—4) получено в [12] и здесь не приводится ввиду его громоздкости. Из его вида следует, что при уменьшении длины кюветы до размера порядка длины волны провал в центре линии сменяется пиком. Ширина этого пика определяется эффектом Дикке и в случае зеркально-когерентного

отражения составляет менее 2 % от доплеровской ширины линии (для значе- ний параметров, приведенных на рис. 5). Из рис. 3—4 видно также влияние вида граничных условий (типа защитного покрытия стенок ячейки) на ампли- туду и ширину пика Дикке. В ячейках с зеркально-некогерентным покрытием эффект Дикке сильно ослаблен: амплитуда пика примерно в 70 раз меньше, а ширина в 10 раз больше, чем в ячейках с зеркально-когерентным покрытием. Из рис. 5 следует еще одна важная особенность формы линии в ячейках с зер- кально-когерентным покрытием. Пик Дикке отчетливо виден вплоть до разме- ров ячейки $L \sim \lambda$, в то время как традиционная теория предсказывает наличие эффекта Дикке лишь при $L \ll \lambda/2$. При $L \geq \lambda$ происходит пере- ход пика Дикке в провал, обусловлен- ный радиоиндуцированным переносом.

Сравним полученные здесь резуль- таты с экспериментальными наблюде- ниями, проведенными в работе [1]. Ис- пользованные в [1] парафиновые покры- тия отвечают скорее граничным условиям зеркально-когерентного отражения, не- жели условиям (2)—(3), поскольку обе- спечивают весьма слабую продольную и поперечную релаксацию на стенке. На это также указывает близость формы пьедестала линии, представленной на рис. 5, к форме пьедестала линии РОР, наблюдавшейся Робинсоном и Джон- соном.

Следует, по-видимому, обсудить так- же то обстоятельство, что наши вычис- ления проводились для простой одномер- ной модели «плоского слоя», в то время как эксперимент [1] проводился для сферической ячейки. Как могут измениться результаты при учете трехмерности реального движения активного атома? Соответствующий анализ был проведен в [2]. Мы приведем его результаты. В одномерной модели длина свободного пробега атома равна длине ячейки L , а частота соударений со стенками $\nu = |v_x|/L$. Это означает частотную модуля- цию РЧ излучения с частотой ν , приводящую к возникновению в дополнение к центральной частоте ν_{21} двух боковых $\nu_{21} \pm \nu$. Усреднение по ансамблю ато- мов даст поэтому, кроме узкого центрального пика, еще и широкий пьедестал в соответствии с результатами рис. 3, 4. В трехмерной же кювете радиуса L длина пробега уже не фиксирована и пробегает значения от нуля до L . Ча- стота модуляции изменяется от ν до ∞ , так что вместо двух боковых частот имеем боковые полосы. Это меняет форму пьедестала, но по-прежнему будет иметь место узкий центральный пик.

Таким образом, полученные нами результаты сохраняют смысл и для трех- мерных кювет.

Заключение

В настоящей работе на основе квантово-кинетического подхода исследовано формирование линии радиооптического резонанса в парах щелочных метал- лов, находящихся в кюветах с защитным покрытием стенок. Такой подход поз- воляет последовательным образом учесть как все взаимодействия, испытывае- мые активными атомами, так и пространственную селекцию их состояний, обус- ловливаемую эффектом радиоиндуцированного переноса, что невозможно осу- ществить в рамках стандартной корреляционной теории формы линии. В ре-

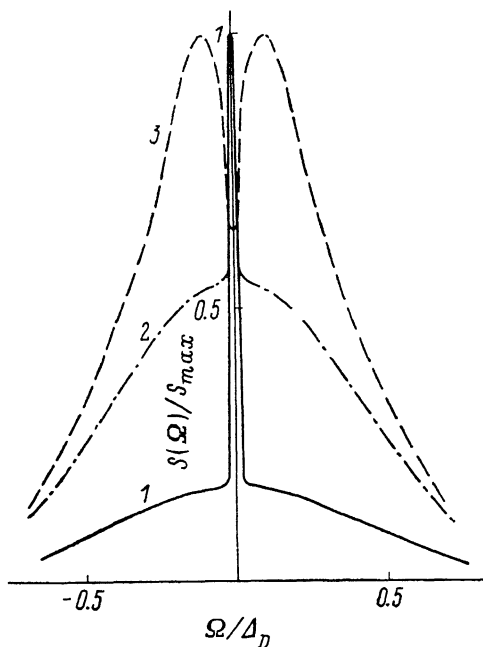


Рис. 5. Переход от эффекта Дикке к РИП — провалу при увеличении длины кюветы. $w = |u| = 10\gamma$.

1 — $L = 0.5 \lambda$, 2 — 0.95λ , 3 — λ .

зультате нами предсказывается новое явление — возникновение провала в центре линии РОР для кювет с покрытием при $L > \lambda$.

Впервые в рамках кинетической теории формы линии исследован эффект Дикке, обусловленный стенками кюветы. Показано, что теория позволяет наблюдать данный эффект при размерах кювет порядка длины волны. Этот вывод объясняет экспериментальные результаты, полученные в работе [1].

Авторы выражают благодарность Р. А. Житникову за полезные обсуждения данной работы.

Литература

- [1] *Robinson H. G., Johnson C. E.* Appl. Phys. Lett., 1982, v. 40, N 9, p. 771—773.
- [2] *Frieholz R. P., Volk C. H.* Proc. of the 38th Annual Frequency Control Symp. IEEE, New York, 1984, p. 401—407.
- [3] *Блум К.* Теория матрицы плотности и ее приложения. М.: Мир, 1983, с. 193—198.
- [4] *Абрагам А.* Ядерный магнетизм. М.: ИЛ, 1963. 551 с.
- [5] *Агапьев Б. Д., Матисов Б. Г.* Письма в ЖТФ, 1986, т. 12, № 2, с. 123—125.
- [6] *Агапьев Б. Д., Матисов Б. Г.* Письма в ЖТФ, 1986, т. 12, № 8, с. 461—465.
- [7] *Агапьев Б. Д., Матисов Б. Г.* Письма в ЖЭТФ, 1986, т. 44, № 2, с. 66—68.
- [8] *Агапьев Б. Д., Горный М. Б., Матисов Б. Г.* ЖЭТФ, 1987, т. 92, № 6, с. 1995—2004.
- [9] *Лалоз Ф., Ледюк М., Наше П.-Ж.* и др. УФН, 1985, т. 147, № 3, с. 433—458.
- [10] *Goldenberg H. M., Kleppner D., Ramsey N. F.* Phys. Rev., 1961, v. 123, N 2, p. 530—537.
- [11] *Happer W.* Rev. Mod. Phys., 1972, v. 44, N 2, p. 169—249.
- [12] *Агапьев Б. Д.* Канд. дис. Л., 1987. 186 с.

Ленинградский политехнический институт им. М. И. Калинина

Поступило в Редакцию
20 ноября 1987 г.