

УСИЛЕНИЕ ВАКУУМНОГО УЛЬТРАФИОЛЕТОВОГО ИЗЛУЧЕНИЯ АТОМАРНОГО АЗОТА В ГЕЛИИ, АРГОНЕ, КРИПТОНЕ И КСЕНОНЕ

© 2012 г. Г. Н. Герасимов*, доктор физ.-мат. наук; Б. Е. Крылов*, канд. физ.-мат. наук; R. Hallin**, профессор; A. Arnesen**, профессор; Д. И. Стаселько*, доктор физ.-мат. наук; И. В. Алексеев*, канд. физ.-мат. наук

* НПК “Государственный оптический институт им. С.И. Вавилова”, Санкт-Петербург

** Department of Physics and Matherial Science, Uppsala University, Uppsala, Sweden

E-mail: gngerasim@yandex.ru

Изучены спектральные особенности усиления узкополосного излучения атомарного азота в эксимерных средах инертных газов, включая гелий, аргон, криптон и ксенон. Обнаружены заметные коротковолновые сдвиги (до 0,026 нм) спектров усиленного излучения относительно атомных эмиссионных линий азота, инициировавших это излучение. Наблюдаемые сдвиги превосходили аппаратное разрешение использованного спектрометра, определялись составом усиливающей среды и в условиях эксперимента не зависели от параметров ее возбуждения. Предложено объяснение наблюдаемого эффекта.

Ключевые слова: эксимерные молекулы, вынужденное излучение, принцип Франка-Кондона, принцип неопределенности Гейзенберга, время квантового перехода.

Коды OCIS: 260.0260, 270.0270, 330.0330

Поступила в редакцию 10.01.2012

Введение

Продвижение эффективных источников стимулированного коротковолнового излучения в вакуумный ультрафиолетовый (ВУФ) диапазон приобретает растущую актуальность в связи с решением фундаментальных задач физики взаимодействия света с веществом и развитием современных технологий. Генерация стимулированного излучения лазерами на свободных электронах частично решает эту проблему, однако, такой метод получения лазерного излучения не может быть использован в широком круге приложений из-за его громоздкости и дороговизны [1, 2]. Идея получения более дешевого, “лабораторного” лазерного ВУФ излучения с использованием усиливающих сред на основе эксимерных переходов впервые была предложена в работе Ф. Хоутерманса [3] и реализована на ксеноне в работах Н.Г.Басова с соавторами [4]. В работе [3] было показано, что величина коэффициента усиления в режиме свободной генерации равна $\kappa = A\Delta N\lambda^2/8\pi\Delta\nu(*)$,

где A – вероятность перехода, ΔN – инверсия населенности усиливающей среды, λ – длина волны перехода, $\Delta\nu$ – ширина полосы усиляемого излучения.

Развитие этого направления привело к созданию импульсных эксимерных лазеров на инертных газах и их галогенидах, обладающих высокими параметрами. Однако детальный анализ процессов, протекающих в активной среде, показал, что получение непрерывного во времени лазерного излучения в режиме свободной генерации представляет собой серьезную проблему [5] из-за большой ширины спектрального контура усиливаемого излучения. Дальнейшие исследования позволили сформулировать условия получения непрерывного во времени стимулированного ВУФ излучения и реализовать его экспериментально [6–8]. Важную роль в достижении поставленной цели сыграл подход, основанный на введении в усиливающую лазерную систему узкополосного управляющего излучения (инжекционного иницирующего сигнала). В литературе

этот подход получил название “метод внешнего (инжекционного) управления” параметрами генерации лазерной системы – “injection seeding (locking) method” [9–12].

В данной публикации на примере ряда инертных газов систематически исследованы спектральные особенности узкополосного стимулированного излучения, возникающего при просвечивании активной эксимерной среды узкополосным управляющим излучением, лежащем в области длинноволнового края ее спектрального контура. В работе [9] показано, что эффективная “перекачка” энергии в стимулированное узкополосное излучение возможна при смещении частоты просвечивающего излучения в пределах широкого контура активной среды, в том числе и в его длинноволновую сторону. В качестве внешнего управляющего узкополосного излучения в настоящей работе использовали атомарное ВУФ излучение азота. Обнаружены коротковолновые сдвиги спектров усиленного излучения относительно спектров излучения возбужденных атомов азота, инициировавших это излучение. Объяснение наблюдаемого сдвига дано на основе представления о физической картине стимулированного испускания световых квантов как взаимосогласованного процесса их рождения и одновременной перестройки электронно-ядерной конфигурации излучающих молекул.

Предложена основанная на классических представлениях простая механическая модель спектроскопического перехода из возбужденного связанного электронно-колебательного состояния в основное расталкивающее, позволяющая дать оценку динамики движения ядер двухатомных молекул во время рассматриваемого перехода, а также его длительности, исходя из измеренной величины наблюдаемого сдвига и известных молекулярных данных, характеризующих этот переход.

Экспериментальная установка и результаты

В настоящей работе активной средой была плазма капиллярного разряда постоянного тока в гелии, аргоне, криптоне и ксеноне при давлениях рабочего газа на уровне нескольких сотен Торр (до 1000 Торр) и силе тока 20–30 мА. При этом эффективно возбуждались эмиссионные континуумы гомоядерных димеров инертных газов в ВУФ области спектра, лежащие в диапазоне длин волн 115–200 нм.

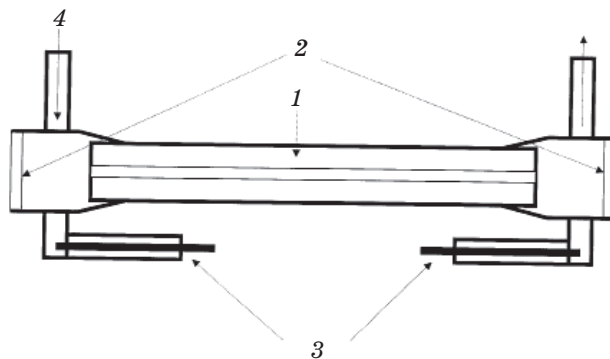


Рис. 1. Конструкция капиллярной разрядной трубки. 1 – толстостенный капилляр, 2 – окна из фтористого магния, 3 – электроды, 4 – откачка и напуск рабочего газа.

Разрядные трубки длиной от 10 до 100 см с внутренним диаметром 1,5 мм и внешним – 9 мм были изготовлены из плавленного кварца (рис. 1). Принципиально важным был выбор внутреннего и внешнего диаметров капилляра, выполненный с таким расчетом, чтобы обеспечить эффективный отвод тепловой энергии, вкладываемой электрическим разрядом в разогрев рабочего газа и необходимый для поддержания разряда в тлеющем режиме в исследуемом диапазоне давлений. Для предотвращения катафореза при работе с разрядами в газовых смесях и для предупреждения чрезмерного перегрева рабочего газа в разрядном капилляре использовалась прокачка рабочего газа. При этом газовая температура не превосходила 400–450 К, в то время как электронная составляла величину, превышающую 10^4 К.

Вакуумная система позволяла откачивать разрядный объем до остаточного давления 10^{-7} Торр. Входная щель спектрометра находилась на расстоянии 50 см от излучающего капилляра. Вакуумный спектрометр нормального падения позволял регистрировать спектр в диапазоне длин волн 115–250 нм. Обратная линейная дисперсия спектрометра составляла 0,82 нм/мм, ширина аппаратной функции спектрометра была равна 0,015 нм. В экспериментах использовалась входная щель размером $1 \times 0,01$ мм. ВУФ спектр регистрировали работающим в режиме счета фотонов фотоэлектронным умножителем с окном из фтористого магния. Для вывода оптического излучения исследуемого разряда из трубки использовали окна, изготовленные из фтористого

магния и расположенные перпендикулярно к оси трубки на расстоянии 5–7 мм от концов разрядного канала. Удельная электрическая мощность, вкладываемая в разряд, не превосходила 50 Вт/см³.

Изучались особенности узкополосного стимулированного излучения, генерируемого активными средами на основе гомоядерных димеров гелия, аргона, криптона и ксенона в области длинноволнового края их ВУФ континуумов. Отличительной чертой эксперимента являлось размещение источника усиляемого узкополосного излучения непосредственно внутри усиливающей эксимерной среды. Для этого использовалась малая примесь молекулярного азота ($\leq 0,03\%$ от концентрации исследуемых эксимеров), которая добавлялась в разрядный объем с инертным газом и не оказывала заметного влияния на кинетику процессов заселения излучающих димеров инертного газа. Вместе с тем, образующиеся в результате диссоциации и последующего возбуждения в разряде свободные атомы азота излучали атомные линии 174,525 и 174,272 нм [13], служившие источником усиляемого излучения. В используемом капиллярном разряде постоянного тока спектральная плотность этих линий превышала на несколько порядков спектральную плотность исследуемого ВУФ континуума.

Длины волн усиляемого узкополосного излучения были выбраны с таким расчетом, чтобы они перекрывались с длинноволновыми краями ВУФ континуумов инертных газов. Излучение в этой области спектра аргона, криптона и ксенона было обусловлено спектроскопическими переходами димеров из возбужденных состояний O_u^+ на крутые участки основных состояний O_g^+ . Принадлежность континуума димера гелия на длине волны 175 нм каким-то определенным термам в литературе однозначно не установлена.

Усиляемое узкополосное излучение примесных атомов азота регистрировалось из разных областей усиливающей среды, отличающихся концентрацией возбужденных молекул и, следовательно, обладающих разными усилительными свойствами. В эксперименте использовалась хорошо известная особенность неравновесного капиллярного разряда концентрировать активную среду из возбужденных димеров инертного газа в узкой области, симметричной оси разряда и отстоящей от нее на некотором расстоянии. Такое свойство капил-

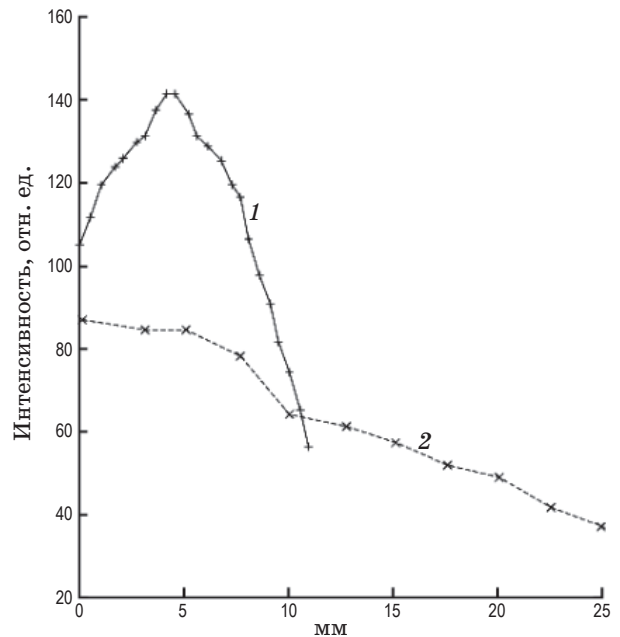


Рис. 2. Радиальное распределение интенсивности излучения капиллярного разряда в смеси криптона и ксенона. 1 – вынужденное излучение на длине волны 147 нм, 2 – спонтанное излучение вне длины волны 147 нм.

лярного разряда обусловлено наличием градиента температуры и концентрации рабочего газа по радиусу капилляра. Описываемое явление характерно для эксимеров инертных газов, возбуждаемых в низкотемпературной газоразрядной плазме. Оно было промоделировано в теоретических расчетах и подтверждено экспериментально на примере капиллярного разряда в аргоне, криптоне и ксеноне [6, 8, 14] (рис. 2). Только световой поток, создаваемый пространственно ориентированным стимулированным излучением, может формировать характерную кольцевую структуру освещенности на экране, удаленном от выходного окна капиллярного разряда (в нашем случае в плоскости входной щели ВУФ спектрометра, отстоящего от выходного окна капилляра на расстоянии 50 см). Детальный расчет хода лучей показал, что при отсутствии усиления кольцевая структура полностью исчезает, контрастность ее изображения в плоскости входной щели спектрометра зависит от соотношения между стимулированным и спонтанным излучением. На рис. 3 представлен фрагмент спектра излучения капиллярного разряда в аргоне с малой примесью азота. Спектр записывался последовательно при двух ориентациях разря-

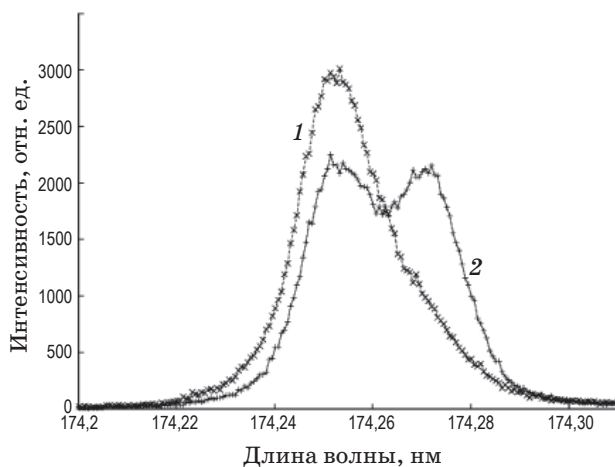


Рис. 3. Фрагмент спектра излучения капиллярного разряда в смеси аргона и азота в области 175 нм. Спектр записывался при различных ориентациях разряда относительно оптической оси спектрометра (1) и (2). Длинноволновое “плечо” спектра, соответствующее спонтанному излучению атомной линии азота (2), монотонно спадает при смещении оси разряда относительно оси спектрометра, в то время как коротковолновый максимум, соответствующий стимулированному излучению (1), изменяется немонотонно, достигая максимума при определенном смещении.

да относительно оптической оси спектрометра: в случае (1) ось разряда была смещена относительно оси спектрометра на угол $\approx 10^{-2}$ рад (что соответствовало максимуму интенсивности стимулированного излучения, попадающего на входную щель спектрометра), а в случае (2) оси разряда и спектрометра совпадали. Спектр имел вид “двойной” линии или дублета. Длинноволновый компонент этого дублета, который повторяет спектр спонтанного излучения атомов азота ($\lambda = 174,272$ нм), в дальнейшем для краткости будем именовать “спонтанным”, а его новый коротковолновый компонент – “стимулированным”. Из рис. 3 видно, что поведение исходного (спонтанного) и нового (стимулированного) компонентов исследуемого спектра при смещении оси разряда относительно щели спектрометра отличалось коренным образом. Спонтанный компонент спадал при сканировании изображения по плоскости щели спектрометра от центра капилляра к его периферии. Стимулированный компонент достигал максимума в областях сканирования, соответствующих максимальному усилению эксимерной активной среды вне оси разряд-

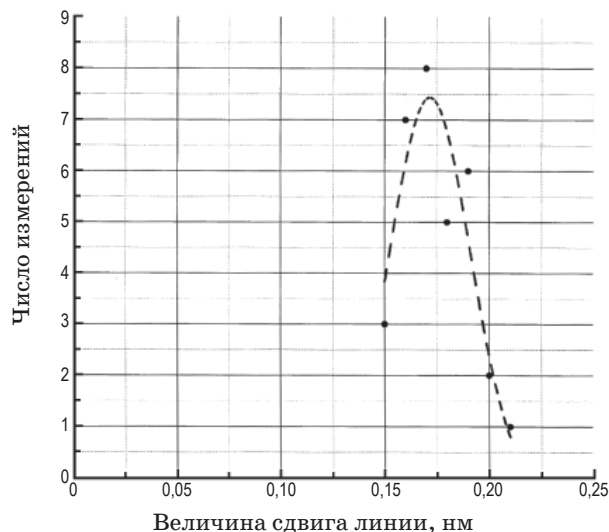


Рис. 4. Статистический разброс результатов измерений частотного сдвига усиленного излучения.

ного канала, что служило подтверждением стимулированной природы излучения данного компонента. Многочисленные эксперименты с разрядами разной длины и с разной концентрацией азота подтвердили данное наблюдение.

Величины расщеплений и сдвигов для каждого из исследованных газов являются характерной, постоянной величиной, независимой от параметров усиливающей среды (общего газового давления, процента примеси азота, величины тока и длины разряда, коэффициента усиливающей среды и т. д.). Рис. 4 на примере аргоновой усиливающей среды демонстрирует разброс величины расщеплений в 32 экспериментах, выполненных для разных параметров усиливающей среды. Величина расщепления спектра стимулированного излучения в аргоновой плазме равна $(0,017 \pm 0,003)$ нм. Эксперименты с другими инертными газами показали, что эта величина закономерно уменьшается с ростом атомного веса рабочего газа, составляя для гелия и аргона 0,026 нм и 0,017 нм, соответственно, и снижаясь в криптоне до значений, близких к порогу разрешения ВУФ спектрометра и оцениваемых как 0,004–0,006 нм. На рис. 5 представлены фрагменты спектров излучения для гелиевой, аргоновой и криптоновой усиливающей среды, на которых видна отмеченная особенность спектров стимулированного излучения. В случае ксеноновой плазмы расщепление

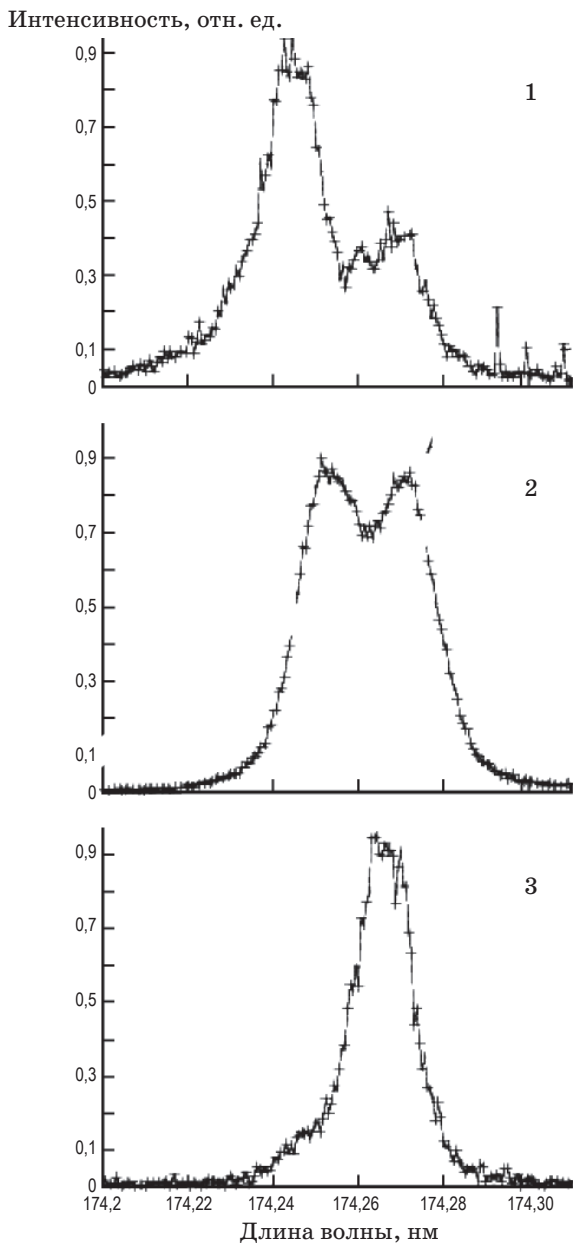


Рис. 5. Результат эксперимента с гелиевой (1), аргоновой (2) и криптоновой (3) плазмой в смеси с азотом. Коротковолновое “плечо” (стимулированное излучение) смещается больше в коротковолновую сторону для гелиевой эксимерной усиливающей среды, чем в случае аргоновой и, тем более, криптоновой.

спектров усиленного излучения, как показали оценки, были ниже указанного порога и экспериментально не были зафиксированы.

Обсуждение экспериментальных результатов

Результаты экспериментальных исследований узкополосного стимулированного излуче-

ния, выполненные методом внешнего управления на основе активной среды эксимерных молекул инертных газов и представленные выше, указывают на высокую эффективность этого механизма по сравнению с режимом свободной генерации. Эта особенность метода обсуждалась ранее в ряде публикаций [6–12]. Впервые экспериментально это явление было продемонстрировано в работе [9]. Впечатляющий результат был получен в работе [15], где величина коэффициента усиления аргоновой плазмы в узкой спектральной полосе на длине волны 126 нм достигала нескольких единиц см^{-1} . Однако в работах [9, 15], а также в работах других авторов, комментирующих эти результаты, по мнению авторов данной публикации, не было дано убедительного объяснения наблюдаемому эффекту. Широко известно, что многочисленные эксперименты с узкополосным просвечиванием разных широкополосных однородно уширенных активных сред, исключая усиливающие среды с эксимерными переходами, не приводили к увеличению коэффициента усиления по сравнению с режимом свободной генерации. В работах [6–8] мы наблюдали высокие коэффициенты усиления при экспериментальном исследовании неравновесной газоразрядной плазмы с эксимерными переходами. Там же был предложен механизм, объясняющий причины наблюдаемого явления. Не останавливаясь на выводах работ [6–8], обратим внимание на не упоминавшееся ранее существенное различие в механизме формирования однородно уширенных контуров эксимерных усиливающих сред в сравнении с другими широкополосными однородно уширенными активными средами и имеющими прямое отношение к механизму возникновения стимулированного излучения в режиме внешнего управления.

Известно, что широкий класс однородно уширенных широкополосных усиливающих сред формируется суммированием спектроскопических переходов с возбужденных групп близко расположенных подуровней, обмен энергии между которыми происходит быстрее их радиационного распада (за время порядка 10^{-12} с). При обеднении какой-либо части ансамбля этой группы подуровней за счет спонтанного или стимулированного излучения начальное распределение заселенностей между подуровнями восстанавливается быстрее его радиационного распада. Рождение узкополосного стимулированного излучения в пределах

такой однородно уширенной полосы усиления приводит к падению интенсивности спонтанного излучения в пределах всей полосы. При оценке коэффициента усиления из соотношения $\kappa = \Delta N \lambda^2 / 8\pi \Delta \nu (*)$ необходимо принимать во внимание, что время рождения стимулированного фотона в каждом излучающем осцилляторе подчиняется соотношению неопределенностей Гейзенберга [16, 17]. Для спектроскопических переходов в области 175 нм это время оценивается величиной 10^{-16} с. Поэтому наряду с малым значением полосы усиливаемого излучения $\Delta \nu$ в знаменателе выражения (1), в его числитель следует подставлять величину инверсии ΔN , соответствующую заселенности группы подуровней, “ответственных” за рождение стимулированного излучения в узкой полосе. Сужение спектральной полосы усиливаемого излучения в данном случае приводит к уменьшению числа подуровней, “участвующих” в генерации стимулированного излучения, а следовательно, к уменьшению величины инверсии. То есть, сужение полосы усиливаемого излучения не приводит к увеличению коэффициента усиления.

Обращаясь к механизму усиления эксимерами инертных газов, важно подчеркнуть, что формирование широкого спектрального контура усиливающей среды имеет иную природу. Широкополосный спектр здесь возникает при переходе с каждого колебательного уровня возбужденного состояния на крутую, расталкивающую часть основного состояния. Для определения величины коэффициента усиления в режиме внешнего управления с помощью выражения (1) в данном случае необходимо учитывать заселенность всего уровня, формирующего широкий контур. Вероятность стимулированного излучения на каждой частоте в пределах контура усиливающей среды будет распределяться пропорционально спектральной плотности излучения, проходящего сквозь усиливающую среду. Поэтому число молекул, ответственных за формирование стимулированного узкополосного излучения N_{stim}^* будет определяться отношением: $N_{\text{stim}}^* = N_0^* (\int \rho_k d\nu) / (\int \rho_k d\nu + \int \rho_0 d\nu)$, где N_0^* – полная инверсная заселенность уровня, ρ_k и ρ_0 – спектральная плотность просвечивающего и собственного излучения усиливающей среды, соответственно. Исходя из приведенного соотношения, в режиме внешнего управления можно достичь условий, когда подавляющая доля возбужденных молекул ($N_{\text{stim}}^* \leq N_0^*$) будет генерировать узко-

полосное излучение, что объясняет рост коэффициента усиления в режиме внешнего управления по сравнению с режимом свободной генерации [6].

Переходя к анализу причин, приводящих к наблюдаемому смещению спектров узкополосного стимулированного излучения, заметим, что для их объяснения не удастся использовать хорошо известные в физике газового разряда процессы, такие как эффекты Доплера и Штарка, перезарядку и т. д. Действительно, доплер-эффект приводит к симметричному уширению линии, значительно меньшему по сравнению с наблюдаемыми величинами расщеплений и сдвигов линий. В условиях проведенных экспериментов оценка доплеровского уширения для гелия, аргона, криптона и ксенона согласно известным выражениям [18] дает величины 1×10^{-3} , 4×10^{-4} , $2,5 \times 10^{-4}$ и 2×10^{-4} нм, соответственно. Уширение, вызванное давлением, также не превышает 10^{-4} нм. Предположение о наличии направленного движения возбужденных атомов, приводящего к появлению сдвига спектральных линий, также не имеет оснований из-за относительно высоких давлений, использовавшихся в экспериментах. Сдвиг спектральных линий, обусловленный столкновениями с нейтральными атомами, не может быть признан причиной наблюдаемого явления, поскольку величина сдвига в эксперименте не зависела от давления. Она определялась только видом основного газа, а амплитуда коротковолновой компоненты зависела лишь от усилительных свойств активной среды. Продольные электрические поля в капиллярном разряде, по нашим оценкам, составляли $10^{-1} - 10^{-3}$ В/(см·Торр), а концентрация электронов не превышала 10^{14} см $^{-3}$. Штарковское уширение и сдвиг спектральных линий для таких параметров не выходят за пределы приведенных выше оценок доплеровского уширения даже при комнатных температурах рабочего газа. Появление спектров, смещенных относительно атомных линий, могло быть обусловлено образованием квазимолекул. Однако величина смещения спектра много меньше возможного колебательного кванта для соответствующей молекулы. В смеси аргона с азотом величина смещения составляет менее 6 см $^{-1}$, что по оценке меньше колебательного кванта предполагаемой молекулы ArN.

Трудность объяснения наблюдаемых коротковолновых сдвигов традиционными причинами с помощью известных механизмов

уширения и смещения спектральных линий в газах побудила нас к построению внутренне непротиворечивой физической картины стимулированного испускания световых квантов, приводящей к выводам, находящимся в согласии с экспериментом. В ней принимается во внимание то, что в процессе рождения квантов узкополосного стимулированного излучения происходит движение ядер молекулы в ходе перестройки электронно-ядерной конфигурации возбужденных молекул, которая является неотъемлемой частью каждого из актов испускания фотонов. Действительно, под действием поля вынуждающего излучения возбужденная молекула приходит в состояние фотостимулированного внутреннего движения. Это движение представляет собой переход от начальной возбужденной связывающей конфигурации к конечной расталкивающей, которая соответствует двум атомам, перешедшим в основное невозбужденное состояние.

В ходе этой перестройки в системе “излучающая молекула-испускаемый квант” при сохранении полной энергии системы происходит формирование кванта вынужденного излучения. Важно иметь в виду, что энергия кванта излучения, стимулирующего начало этого процесса, должна соответствовать энергии вертикального франк-кондоновского перехода молекулы в нижнее состояние с исходной ядерной конфигурацией, тогда как фактический переход в течение его длительности происходит в основное состояние с ядерной конфигурацией, изменившейся за время перехода. Причиной такого изменения являются нескомпенсированные силы отталкивания атомов, возникающие внутри молекулы одновременно с началом переходного процесса из-за развивающегося возмущения электронной оболочки димера и влияющие на формирование кванта вынужденного излучения вплоть до завершения перехода.

Кроме того, в условиях эксперимента стимулированные переходы согласно нашим оценкам (рис. 6) осуществляются вблизи левых поворотных точек колебательного движения ядер, благодаря чему ядра молекулы в верхнем излучающем состоянии могут считаться неподвижными, поскольку период их молекулярного колебания на несколько порядков превосходит рассматриваемое время, а сама скорость движения вблизи поворотных точек оказывается минимальной. В нижнем же состоянии они способны двигаться со значительной ско-

ростью благодаря возникающим силам отталкивания.

Тогда в течение конечного времени перехода из возбужденного связывающего состояния в основное расталкивающее становится возможным заметное изменение энергии электронного перехода, способное объяснить обнаруженные коротковолновые спектральные сдвиги. Действительно, величина этого изменения должна соответствовать разности потенциальных энергий, соответствующих вертикальному франк-кондоновскому переходу и переходу в нижележащую точку расталкивающей потенциальной кривой, в которую данная молекула успевает “опуститься” благодаря указанному внутреннему электронно-ядерному движению. Отсюда следует, что анализируемый частотный сдвиг стимулированного излучения должен быть направлен в согласии с экспериментом в коротковолновую сторону и будет зависеть как от градиента нижней кривой на частоте изучаемого перехода, так и от масс разлетающихся атомов. Суммируя все сказанное выше, воспользуемся простейшей механической моделью рассматриваемого весьма сложного квантово-механиче-

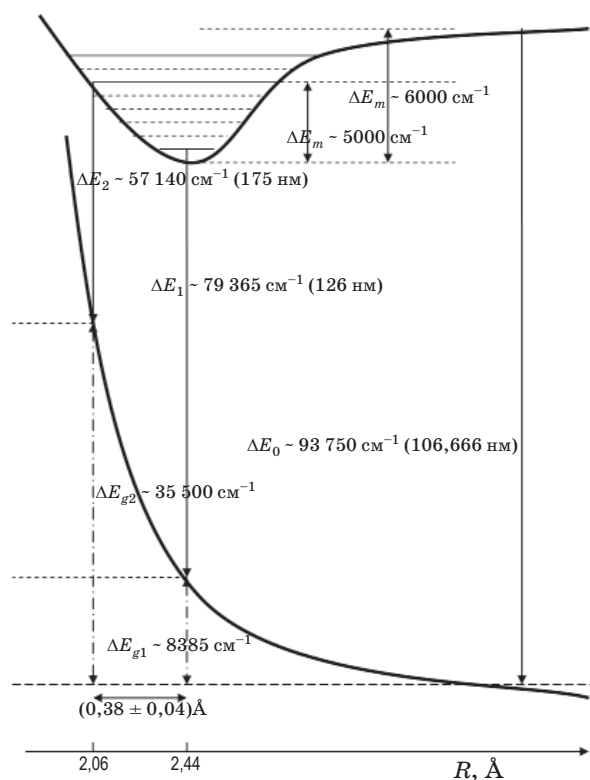


Рис. 6. Схематическое изображение термов димера и атома аргона, используемых в расчете времени квантовых переходов.

ского процесса, с помощью которой найдем выражение для оценки времени излучательного перехода, а затем попытаемся сделать эту оценку, исходя из полученных в экспериментах спектральных сдвигов.

Сила отталкивания F , действующая на атомы эксимерной молекулы, находящейся в основном состоянии 0_g^+ , определяется градиентом потенциальной энергии dE/dr на межъядерном расстоянии r , что соответствует левой поворотной точке колебательного ядерного движения. Для силы расталкивания ядер получим выражение

$$|F| = dE/dr = \mu a, \quad (1)$$

где μ – приведенная масса молекулы.

Ускорение ядер молекулы a , возникающее под действием этой силы, равно

$$a = (dE/dr)/\mu. \quad (2)$$

Тогда увеличение межъядерного расстояния Δr в результате равноускоренного движения ядер в течение длительности перехода Δt составит

$$\Delta r = a(\Delta t)^2/2. \quad (3)$$

Зная величину градиента потенциальной энергии dE_i/dr нижнего расталкивающего состояния 0_g^+ , и экспериментально измеренного коротковолнового спектрального сдвига энергии квантов усиленного излучения ΔE_i нетрудно найти смещение ядер молекулы в основном состоянии Δr за рассматриваемое время

$$\Delta r = \Delta E_i/(dE/dr). \quad (4)$$

Таким образом, время перехода Δt в принятых предположениях может быть определено как

$$\Delta t = (2\Delta r/a)^{1/2} = (2\Delta E_i\mu)^{1/2}/(dE/dr). \quad (5)$$

Итак, для оценки времени излучательного перехода согласно предлагаемому подходу помимо измеренного экспериментально значения спектрального сдвига линии усиленного из-

лучения ΔE_i достаточно знать величину градиента потенциальной энергии dE/dr и приведенную массу молекулы μ .

Для оценки времени квантового перехода по формуле (5) воспользуемся данными, взятыми из работы [19]. В табл. 1 приведены символические обозначения димеров, величины крутизны потенциала dE/dr основного состояния, коротковолновые сдвиги стимулированного излучения, экспериментально измеренные значения спектральных сдвигов $\Delta\lambda$, равновесные расстояния возбужденного состояния молекул $R_{\text{воз.с.}}$, межъядерные расстояния, соответствующие исследуемым переходам ($R_{\text{кв.пер.}}$), энергии соответствующих атомных уровней $E_{\text{ат}}$, энергии диссоциации возбужденных молекул $E_{\text{дис.воз.}}$ массы ядер молекул M , потенциалы ионизации димеров $E_{\text{ион}}$. Величины крутизны потенциала основного расталкивающего состояния dE/dr на межъядерных расстояниях, соответствующих спектроскопическому переходу в области 175 нм, вычислялись с помощью зависимостей, приведенных в работах [20–23].

Рассмотрим неточности описания реальных процессов и экспериментальные погрешности, возникающие при оценке времени квантовых переходов согласно предлагаемому подходу. Во-первых, неадекватными являются классическая постановка задачи и принятое постоянство силы расталкивания в течение времени перехода. Во-вторых, существует определенный произвол при оценке градиента потенциальной энергии dE/dr , связанный с тем, что абсолютная величина и крутизна потенциала основного состояния, а также межъядерное расстояние в области, соответствующей рождению стимулированного излучения, выбирается как результат аппроксимации потенциала в область, где нет точных экспериментальных и расчетных данных. Процедура аппроксимации зависит от используемого вида функциональной зависимости потенциала нижнего состояния от межъядерного расстояния. При проведении

Таблица 1. Основные параметры димеров аргона, криптона и ксенона [19], используемые для вычислений по формуле (5)

Молекула	E/dr , см ⁻¹ /нм. Оценки авторов	$\Delta\lambda$, нм. Измерено в данной работе	M , а.е.м.	$R_{\text{воз.с.}}$, ($R_{\text{кв.пер.}}$), нм	$E_{\text{ат}}$, см ⁻¹	$E_{\text{дис.воз.с.}}$, см ⁻¹	$E_{\text{ион}}$, эВ
Ar ₂	1 920 000	0,017	40	0,244 (0,206)	93 808	5 786	14,4
Kr ₂	730 000	0,004–0,006	84	0,28 (0,245)	80 906	5 807	12,9
Xe ₂	320 000	<0,002	130	0,32 (0,31)	68 073	4 174	11,85

оценок использовали экспоненциальные зависимости отталкивающего потенциала от межъядерного расстояния, приведенные в работах [20–23]. Вычисленные согласно (5) времена квантового перехода Δt для аргона, криптона и ксенона приведены в табл. 2 наряду с оценками средних скоростей взаимного движения ядер молекулы V , а также смещения ядер Δr в процессе соответствующих спектроскопических переходов.

Из табл. 2 следует, что величины времени квантового перехода, найденные из экспериментов с аргоновой, криптоновой и ксеноновой плазмой, оказываются существенно меньшими по сравнению с периодом колебаний светового поля, вызывающего рассматриваемый переход. Они практически совпадают для случаев усиления света димерами аргона и криптона. Более того, указанные значения в пределах погрешностей измерения согласуются с оценкой, полученной из соотношения Гейзенберга $\Delta E \Delta t \geq h/2\pi$. Действительно, для частоты перехода, соответствующей излучению усиливаемой линии атомов азота ($\lambda = 175$ нм), значение Δt согласно этому соотношению составляет $0,93 \times 10^{-16}$ с. Верхняя оценка для времени перехода в ксеноне, полученная на основании предположения, что смещение спектров меньше минимально разрешаемого спектрального интервала спектрометра, дает величину $< 1,8 \times 10^{-16}$ с, что не противоречит величинам, полученным для аргона и криптона.

В целом, наличие соответствия между оценками времен излучательных переходов, следующих из предлагаемой в данной работе модели и соотношения Гейзенберга, является, по нашему мнению, немаловажным аргументом в пользу предлагаемой интерпретации представленных экспериментальных данных.

В табл. 2 приведены также величины смещений и усредненные по времени скорости

Таблица 2. Результаты обработки экспериментальных данных: время квантового перехода Δt , средняя скорость взаимного движения ядер молекулы в процессе спектроскопического перехода V , величина смещения ядер Δr в процессе спектроскопического перехода

Молекула	Δt , с	V , м/с	Δr , см
Ar ₂	$1,1 \times 10^{-16}$	40	$4,5 \times 10^{-13}$
Kr ₂	$1,05 \times 10^{-16}$	10	$1,14 \times 10^{-13}$
Xe ₂	$< 1,8 \times 10^{-16}$	~5,5	$< 1 \times 10^{-13}$

движения ядер молекул инертных газов, оцененные по сдвигу спектров стимулированного излучения. Смещения ядер составляют десятые доли пикометров и сравнимы с размерами самих ядер, а скорости движения оцениваются величинами 5–40 м/с, что значительно отличается в меньшую сторону от средней тепловой скорости атомов инертных газов при комнатной температуре. Например, для аргона согласно известному соотношению $V_T = (2kT/m)^{1/2}$ тепловая скорость составляет около 300 м/с.

Влияние движения ядер димеров гелия на длину волны спектроскопических переходов наблюдали в работе [24], где было установлено, что эмиссионные спектры электронно-колебательных переходов и соответствующие им спектры поглощения, как и спектры поглощения при разных температурах поглощающего газа, значительно различаются (особенно при криогенных температурах). Сделать численную оценку на основании приведенной в цитируемой работе модели и числовых данных не удастся из-за необходимости учитывать движение ядер в верхнем и нижнем состояниях.

Отметим, что предлагаемый в нашей работе подход к описанию квантовых переходов как актов рождения (и поглощения) фотонов, сопровождаемых перестройкой электронно-ядерных конфигураций излучающих молекул и трансформацией во времени описывающих их волновых функций, согласуется как с анализом динамики таких переходов, данной В. Гейзенбергом и изложенной в известной монографии Дж. Макомбера [25], так и с трактовкой соотношения Гейзенберга, содержащейся в работах В.А. Фока и Н.С. Крылова [16, 26]. Согласно В. Гейзенбергу квантовая система, описываемая волновой функцией стационарного состояния ψ_1 с энергией E_1 , при переходе в другое стационарное состояние ψ_2 , характеризуемое энергией E_2 , находится в течение переходного периода времени Δt в суперпозиционном состоянии с волновой функцией $\psi_s(t) = C(t)\psi_1 + D(t)\psi_2$, которая является решением нестационарного уравнения Шредингера с зависящими от времени параметрами $C(t)$ и $D(t)$. В то же время В.А. Фок и Н.С. Крылов рассматривали соотношение неопределенностей $\Delta t \Delta(E' - E) \geq h/2\pi$ как связь неопределенности значения энергии системы в процессе ее перехода из одного стационарного состояния с энергией E' в другое стационарное состояние, характеризуемое энергией E , с неопределенно-

стью временного интервала Δt , за которое этот переход происходит.

Заключение

Полученные результаты открывают новые возможности изучения физических явлений, лежащих в основе внутримолекулярных электронно-ядерных переходов и связанных с ними актов генерации фотонов. При использовании лазеров с перестройкой частоты в широком спектральном интервале и увеличении точности измерений коротковолновых спектральных сдвигов выражения (1–5) позволяют перейти к непосредственным измерениям формы потенциалов основных расталкивающих состояний вплоть до наиболее малых межъядерных расстояний применительно к весьма важным классам эксимерных и фотодиссоциирующих молекул.

Еще более важным может оказаться последовательное использование развитого в работе подхода к оценке времен квантовых переходов с целью изучения взаимосвязи процесса рождения в них фотонов и одновременной перестройки электронно-ядерных конфигураций излучающих молекул.

Указанный подход может в известной степени явиться альтернативой методам интенсивно развиваемой метрологии аттосекундных временных интервалов, успехи которой до сих пор были связаны с использованием все более сложной и дорогостоящей техники генерации импульсов аттосекундной длительности. Возбуждение молекул с расталкивающими основными состояниями и стимулирование их к испусканию квантов света при помощи синхронизированных во времени цугов импульсов фемтосекундной длительности в заданных фазах когерентно возбуждаемых молекулярных

колебаний открывает перспективы детального изучения пространственно-временных характеристик волновых функций колебательных связанных состояний, а также фазовых соотношений, возникающих в процессе взаимосвязанных внутримолекулярных электронно-ядерных переходов и актов генерации фотонов, определяющих динамику спектроскопических переходов.

Следует отметить, что разность частот между компонентами исследуемого дублета попадает в терагерцовый диапазон, что может быть использовано для получения излучения в этой области спектра.

Предложенный механизм может быть использован для получения стимулированного ВУФ излучения с применением слабо усиливающих сред инертных газов и узкополосного излучения атомных резонансных линий, спектрально перекрывающихся с континуумами инертных газов. В процессе усиления “перестройка” стимулированного излучения в коротковолновую область спектра относительно атомного резонансного перехода позволит снизить эффект поглощения усиливаемого узкополосного излучения нейтральными атомами.

Общенаучный интерес представляет установленное в данной работе количественное соответствие временных оценок процессов стимулированных излучательных квантовых переходов в исследованных возбужденных димерных молекулах и обобщенной верхней оценки времени квантовых переходов, следующей из частотно-временного соотношения неопределенностей Гейзенберга.

Авторы благодарны физическому факультету университета г. Уппсала (Швеция), предоставившему необходимое оборудование для выполнения экспериментальной части работы.

* * * * *

ЛИТЕРАТУРА

1. Deacon *et al* First operation of a Free-Electron Laser // *Phys. Rev. Lett.* 1977. V. 38. № 16. P. 892–894.
2. Макаров Г.Н. Спектроскопия кластеров интенсивными импульсами вакуумного ультрафиолетового излучения лазеров на свободных электронах // *УФН.* 2009. Т. 179. С. 487–516.
3. Houterman F.G. Uber Massen-Wirkung im optischen Spektralgebiet und die Moglichkeit absolut negativ Absorption fur einige Falle von Molekulspektren (Licht-Lawine) // *Helv. Phys. Acta.* 1960. V. 33. P. 933.
4. Басов Н.Г., Данилычев В.А., Попов Ю.М., Ходкевич Д.Д. Квантовый генератор в вакуумной области спектра при возбуждении жидкого ксенона электронным пучком // *Письма в ЖЭТФ.* 1970. Т. 12. С. 473–474.

5. Князев И.Н., Летохов В.С. Газовые лазеры в УФ- и ВУФ-областях спектра: Справочник по лазерам. Т. 1. Изд. "Советское радио", 1978. С. 197–220.
6. Gerasimov G. Excimer media gain // Spectroscopy letters. 2001. V. 34. № 2. P. 191–197.
7. Герасимов Г.Н., Крылов Б.Е., Hallin R., Морозов А.О., Arnesen A., Heijkenskjold F. Стимулированное излучение смеси инертных газов в ВУФ диапазоне // Опт. и спектр. 2002. Т. 92. № 2. С. 327–334.
8. Герасимов Г.Н., Крылов Б.Е., Hallin R., Arnesen A. Параметры излучения в вакуумной УФ области капиллярного разряда постоянного тока в смеси криптона с ксеноном // Опт. и спектр. 2006. Т. 106. № 6. С. 825–828.
9. Bigio I.J., Slathine M. Attainment of the theoretical minimum input power for injection locking of an unstable-resonator Kr-F laser // Opt. Lett. 1981. № 7(6). P. 336–338.
10. Barnes N.P. et al Injection Seeding 1: Theory // IEEE JQE. 1993. V. 29. № 10. P. 2670–2683.
11. Rafailov E.U. et al Nonresonant Self-Injection Seeding of a Gain-Switched Diode Laser // IEEE Journal on selected topics in quantum electronics. 2001. V. 7. № 2. P. 287–299.
12. Magnitskii S.A., Malachova V.I., Tarasevich A.P., Tunkin V.G., Yakubovich S.D. Generation of bandwidth-limited tunable picosecond pulses by injection-locked optical parametric oscillators // Opt. Lett. 1986. V. 11. № 1. P. 18–20.
13. Стриганов А.Р., Свентицкий Н.С. Таблицы спектральных линий нейтральных и ионизованных атомов. М.: Атомиздат, 1966. 900 с.
14. Зеерева Г.Н. Исследование и оптимизация источников вакуумного ультрафиолетового излучения на основе плазмы инертных газов // Автореферат диссертации на соискание ученой степени доктора физико-математических наук. Санкт-Петербург, изд. ООО "Издательство "ЛЕМА", 2010. 30 с.
15. Eftimiopoulos T., Stoicheff B.P., Thompson R.I. Efficient population inversion in excimer states by supersonic expansion of discharge plasmas // Opt. Lett. 1989. V. 14(12). P. 624–626.
16. Крылов Н.С., Фок В.А. О двух основных толкованиях соотношения неопределенности для энергии и времени // ЖЭТФ. 1947. Т. 17. С. 93–107.
17. Svelto O. Principles of Lasers // 3rd ed. Plenum Press New York and London. 1995. 494 p.
18. Фриш С.Э. Оптические спектры атомов. М.–Л.: Физ.-мат. гиз, 1963. 640 с.
19. Смирнов Б.М., Яценко А.С. Димеры. Новосибирск: "Наука", Сибирская издательская компания РАН. 1997. 148 с.
20. Siska P.E., Parson J.M., Schafer T.P., Lee Y.T. Intermolecular Potentials from Crossed Beam Differential Elastic Scattering Measurements. III. He+He and Ne+Ne // J. Chem. Phys. 1971. V. 55. № 12. P. 5762–5770.
21. Guberman S.L., Goddard W.A. Nature of excited states of He₂ // Phys Rev. A. 1975. V. 12. № 4. P. 1203–1212.
22. Parson J.M., Siska P.E., Lee Y.T. Intermolecular Potentials from Crosser-Beam Differential Elastic Scattering Measurements. IV. Ar+Ar // J. Chem. Phys. 1972. V. 56. № 4. P. 1511–1516.
23. Docken K.K., Schafer T.P. Spectroscopic Information on Ground-States Ar₂, Kr₂, and Xe₂ From Interatomic Potentials / J. Mol. Spectr. 1973. V. 16. P. 454–459.
24. Tanaka Y., Yoshino K. Absorption Spectrum of the He₂ Molecule in the 510–611 Å Range // J. Chem. Phys. 1969. V. 50. № 7. P. 3087–3098.
25. Макомбер Дж. Динамика спектроскопических переходов. М.: Мир, 1979. 354 с.
26. Фок В.А. Начала квантовой механики. М.: Наука, 1976. 376 с.