

## ВНУТРИДОПЛЕРОВСКАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ ВОЗБУЖДЕННЫХ АТОМОВ В МНОГОСЛОЙНОЙ ГАЗОВОЙ ЯЧЕЙКЕ

А. Ч. Измаилов

УДК 543.42

Институт физики НАН Азербайджана,  
AZ-1143, Баку, просп. Джавида, 33, Азербайджан; e-mail: azizm57@rambler.ru

(Поступила 3 января 2019)

*Теоретически исследованы возможности спектроскопии в многослойной ячейке с разреженной газовой средой, когда эта ячейка может быть использована в качестве компактного аналога большого числа плоскопараллельных пучков атомов (или молекул), находящихся на оптически возбужденном квантовом уровне. Такая ситуация реализуется, в частности, для метастабильных, а также высоковозбужденных долгоживущих ридберговских состояний атомов и молекул. Установлена эффективность скоростной селекции атомов (молекул) на подобном квантовом уровне, возбужденном широкополосной оптической накачкой, вследствие их характерной пролетной и столкновительной релаксации в рассматриваемой ячейке. В результате такой селекции в поглощении пробного монохроматического светового пучка возникают узкие внутридоплеровские резонансы на частотах оптических переходов с данного уровня.*

**Ключевые слова:** внутридоплеровская спектроскопия, многослойная газовая ячейка, оптическая накачка, пучки атомов и молекул.

*The possibilities of spectroscopy in a multilayer cell with a rarefied gas medium are theoretically investigated, when this cell can be used as a compact analogue of a large number of plane-parallel beams of atoms (or molecules) on the optically excited quantum level. Such a situation is realized, in particular, for metastable and also highly excited long-lived Rydberg states of atoms and molecules. The efficiency of the velocity selection of atoms (molecules) on a similar quantum level excited by broadband optical pumping, due to their characteristic transit and collisional relaxation in the cell under consideration, is established. As a result of this selection, narrow sub-Doppler resonances arise at the frequencies of optical transitions from a given level in the absorption of a probe monochromatic light beam.*

**Keywords:** sub-Doppler spectroscopy, multilayer gas cell, optical pumping, atomic and molecular beams.

**Введение.** Для спектроскопии высокого разрешения, а также для создания и оптимизации оптических стандартов частоты очень важна разработка эффективных методов и установок, которые позволяют анализировать структуру спектральных линий, скрытую доплеровским уширением вследствие движения атомов или молекул газовой среды [1, 2]. На основе обзора достижений и возможностей хорошо апробированной внутридоплеровской спектроскопии в тонких газовых ячейках в [3] предложена более перспективная ячейка с серией плоскопараллельных тонких газовых слоев. Такая ячейка с разреженным газом (рис. 1) содержит селектор скоростей 2 для оптически “накачанных” атомов. Достаточно слабый пробный световой пучок распространяется (вдоль оси  $z$ ) через отверстие 3. В то же время пространственно отделенный пучок накачки (который может быть даже широкополосным) облучает область газовой ячейки 1 вне селектора 2. Материал селектора не должен быть химически активным к атомам газовой среды и может быть непрозрачным для падающих излучений. При данных условиях атомы с оптически возбужденным основным квантовым термом могут свободно пролетать по прямолинейным траекториям (без столкновительной релаксации) из области накачки

---

### SUB-DOPPLER SPECTROSCOPY OF EXCITED ATOMS IN THE MULTILAYER GAS CELL

A. Ch. Izmailov (Institute of Physics, National Academy of Sciences of Azerbaijan, 33 Prosp. Dzhavida, AZ-1143, Baku, Azerbaijan; e-mail: azizm57@rambler.ru)

$l$  в область пробного излучения  $3$  только через достаточно тонкие щели, которые должны быть вырезаны в материале селектора  $2$  в плоскостях, ортогональных оси  $z$ . Таким образом, в области пробного излучения  $3$  можно получить значительное количество плоскопараллельных тонких слоев оптически возбужденных атомов (с малыми значениями скоростной проекции  $|v_z|$ ) в пределах одной газовой ячейки. Сужение доплеровского уширения детектируемых спектральных линий на квантовых переходах подобных накачанных атомов в такой ячейке определяется большим отношением характерной протяженности щели  $0.5(D_1 - D_2)$  к ее малой толщине  $\Delta l$  (рис. 1, *a*). Например, можно вырезать достаточно много параллельных щелей  $N \gg 1$  толщиной  $\Delta l \sim 0.1$  мм в материале скоростного селектора для достаточно компактной газовой ячейки диаметром  $D$  и длиной  $L \sim 1$  см. В отличие от спектроскопии насыщенного поглощения в стандартных (полых) газовых ячейках [1] в рассматриваемых многослойных ячейках не возникают перекрестные резонансы на промежуточных частотах между центрами оптических переходов. Кроме того, соответствующие системы стабилизации частоты гораздо меньше подвержены влиянию частотных флуктуаций излучения накачки (которая может быть даже широкополосной), так как скоростная селекция оптически возбужденных атомов определяется главным образом геометрией этой ячейки (рис. 1). Фактически такая многослойная ячейка является компактным аналогом большого количества ( $N \gg 1$ ) плоскопараллельных атомных пучков и может быть использована не только в спектроскопии сверхвысокого разрешения, но и как основа для новых компактных высокоточных стандартов частоты.

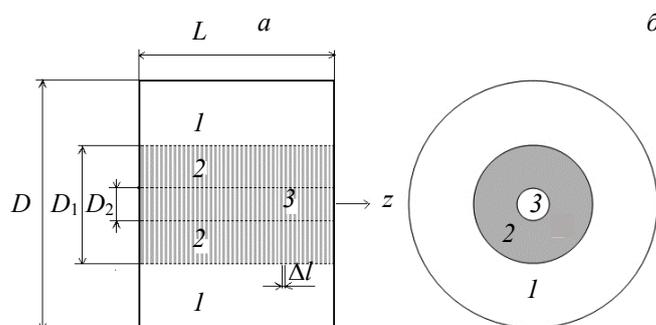


Рис. 1. Схема многослойной цилиндрической газовой ячейки (диаметром  $D$  и длиной  $L$ ) в двух ортогональных проекциях (*a*, *b*), которая содержит селектор  $2$  для скоростей оптически возбужденных атомов с прозрачным отверстием  $3$  и серией плоскопараллельных щелей (толщиной  $\Delta l$ ) между областью накачки  $1$  и пространственно отделенной областью зондирования  $3$

В [4] рассматривались пространственно разделенные насыщающий и пробный монохроматические лазерные пучки (с одинаковой частотой), распространяющиеся в одинаковом или встречном направлениях в подобной газовой ячейке. Установлено, что в такой многослойной ячейке эффективная ширина внутридоплеровского резонанса поглощения может быть меньше (в  $\sim 1.5$  раза) предельно малой характерной ширины известного “лэмбовского провала” [1] в спектроскопии насыщенного поглощения в стандартной газовой ячейке. В [3, 4] рассматривалась сравнительно низкая интенсивность оптической накачки на резонансном квантовом переходе  $a \rightarrow b$  в области  $l$  данной ячейки, когда заселенность возбужденного уровня  $b$  пренебрежимо мала по сравнению с населенностью основного состояния  $a$  (рис. 2). Поэтому результаты [3, 4] могут быть использованы для анализа внутридоплеровских резонансов в поглощении пробного светового пучка на прямых квантовых переходах только из подуровней основного квантового терма  $a$ . Вместе с тем рассматриваемая многослойная газовая ячейка может быть аналогом большого количества плоскопараллельных пучков атомов (или молекул) также в достаточно долгоживущем оптически возбужденном состоянии  $b$  (рис. 2). Тогда становится возможным анализ внутридоплеровских резонансов в поглощении пробного монохроматического светового пучка на прямых квантовых переходах типа  $b \leftrightarrow c_1$  и  $b \leftrightarrow c_2$  непосредственно из этого состояния  $b$  на другие возбужденные уровни  $c_1$  и  $c_2$  (рис. 2).

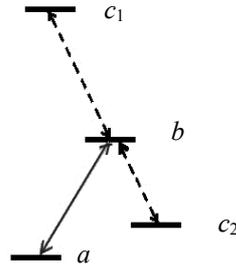


Рис. 2. Схема рассматриваемых квантовых уровней и переходов:  $a \rightarrow b$  — переход из основного термина  $a$ , на котором осуществляется оптическое возбуждение атомов на уровень  $b$  широкополосным излучением;  $b \rightarrow c_1$  и  $b \rightarrow c_2$  — переходы на другие возбужденные уровни  $c_1$  и  $c_2$ , зондируемые пробным световым пучком

В настоящей работе исследовано скоростное распределение оптически возбужденных атомов в области пробного излучения под влиянием широкополосного излучения накачки произвольной интенсивности в пространственно отдаленной области цилиндрической многослойной газовой ячейки (рис. 1). Проанализирована разрешающая способность внутридоплеровской спектроскопии на квантовых переходах из возбужденного состояния  $b$  в зависимости от интенсивности оптической накачки, геометрических параметров ячейки и времени радиационного распада возбужденного квантового уровня.

**Основные соотношения.** Рассмотрим оптическую накачку газовой среды однородным широкополосным излучением в коаксиальной области  $l$  многослойной ячейки, соответствующей интервалу радиуса  $0.5D_1 \leq r \leq 0.5D$ . Это оптическое излучение возбуждает атомы (или молекулы) из подуровня  $a$  основного атомного термина в состояние  $b$  на резонансном квантовом переходе  $a \rightarrow b$  (рис. 2). Предполагается, что в данной достаточно разреженной газовой среде можно пренебречь межатомным взаимодействием. Также не принимаем во внимание эффекты светового давления на атомные частицы. При рассматриваемых условиях на основе известных балансных соотношений [1] получаем систему уравнений для населенностей  $\rho_a(\mathbf{R}, \mathbf{v})$  и  $\rho_b(\mathbf{R}, \mathbf{v})$  атомов на уровнях  $a$  и  $b$  со скоростью  $\mathbf{v}$  и координатным вектором  $\mathbf{R}$ :

$$\mathbf{v} \partial \rho_a / \partial \mathbf{R} = \xi_{ab} \eta(0.5D - r) \eta(r - 0.5D_1) (\rho_b - \rho_a) + A_{ba} \rho_b, \quad (1)$$

$$\mathbf{v} \partial \rho_b / \partial \mathbf{R} = \xi_{ab} \eta(0.5D - r) \eta(r - 0.5D_1) (\rho_a - \rho_b) - \rho_b / \tau_b, \quad (2)$$

где  $\xi_{ab}$  — вероятность светоиндуцированного перехода  $a \rightarrow b$ ;  $\tau_b$  — время радиационного распада уровня  $b$ ;  $A_{ba}$  — вероятность радиационного распада по каналу  $b \rightarrow a$  ( $A_{ba} \tau_b \leq 1$ );  $\eta(x)$  — ступенчатая функция ( $\eta(x) = 1$  при  $x \geq 0$  и  $\eta(x) = 0$  при  $x < 0$ ). Отметим, что в [3] уравнения (1) и (2) решались в приближении достаточно низкой интенсивности оптической накачки, когда  $\xi_{ab} \tau_b \ll 1$ . При этом заселенность возбужденного уровня  $b$  пренебрежимо мала по сравнению с населенностью основного состояния  $a$  (рис. 2). Уравнения (1), (2) должны быть дополнены граничными условиями, которые зависят от особенностей атомных столкновений со стенками ячейки и ее селектором скоростей. Как и в [3, 4], полагаем, что в результате таких столкновений устанавливается равновесное распределение как по скоростям атомов, так и по населенностям их квантовых уровней. Тогда из системы уравнений (1), (2) получаем выражение для населенности  $\rho_b(\mathbf{R}, \mathbf{v})$  возбужденного уровня  $b$  атомов, которые, двигаясь радиально от цилиндрической поверхности ячейки к ее центральной оси  $z$ , достигают внешней границы селектора атомных скоростей 2 после пролета через область оптической накачки  $l$ :

$$\rho_b(v_z, v_r) = n_a F_l(v_z) F_r(v_r) \frac{(\xi_{ab} + \lambda_1)(\xi_{ab} + \lambda_2)}{(\xi_{ab} + A_{ba})(\lambda_1 - \lambda_2)} \left\{ \exp \left[ \frac{\lambda_2}{2v_r} (D - D_1) \right] - \exp \left[ \frac{\lambda_1}{2v_r} (D - D_1) \right] \right\}, \quad (3)$$

где

$$\lambda_{1,2} = -\xi_{ab} - 0.5\tau_b^{-1} \pm [0.25\tau_b^{-2} + \xi_{ab}(\xi_{ab} + A_{ba})]^{1/2},$$

$n_a$  — равновесная плотность атомов на основном уровне  $a$  (рис. 2) с распределениями Максвелла  $F_l(v_z)$  и  $F_r(v_r)$  по продольной  $v_z$  и радиальной  $v_r$  компонентам атомной скорости  $\mathbf{v}$ :

$$F_l(v_z) = \pi^{-1/2} u^{-1} \exp(-v_z^2 u^{-2}), F_r(v_r) = 2v_r u^{-2} \exp(-v_r^2 u^{-2}), \quad (4)$$

с наиболее вероятной скоростью  $u$  атомов в газе. Дальнейший свободный пролет атомов в радиальном направлении через щели скоростного селектора 2 до оси  $z$  ячейки (рис. 1) происходит в отсутствие оптической накачки. Поэтому в течение данного пролета населенность возбужденных атомов уменьшается на  $\exp[-0.5D_1/(v_r\tau_b)]$  из-за радиационного распада уровня  $b$ .

Рассмотрим многослойную газовую ячейку с большим количеством ( $N \gg 1$ ) одинаковых эквидистантных щелей толщиной  $\Delta l$  в материале цилиндрического скоростного селектора (рис. 1). При данных условиях из соотношений (1)—(4) получаем выражение для населенности  $\rho_b^{(n)}$  оптически возбужденных атомов на уровне  $b$ , которые свободно достигают центральной оси  $z$  цилиндрической ячейки без столкновительной релаксации через тонкую щель с номером  $n$  ( $1 \leq n \leq N$ ) и соответствующими координатами  $z_n$  и  $(z_n + \Delta l)$  вдоль оси  $z$ :

$$\rho_b^{(n)}(v_z, v_r, z) = \rho_b(v_z, v_r) \exp(-0.5D_1/v_r\tau_b) (\eta(z_n + \Delta l - z + D_2v_z/2v_r) \eta(z - z_n - D_1v_z/2v_r) \eta(v_z) + \eta(z_n + \Delta l - z + D_1v_z/2v_r) \eta(z - z_n - D_2v_z/2v_r) \eta(-v_z)), \quad (5)$$

где  $\rho_b(v_z, v_r)$  определяется формулой (3). Усредненную населенность  $\Pi_b(v_z, v_r)$  атомов на уровне  $b$  по всей центральной оси ячейки  $z$  найдем из соотношения (5):

$$\Pi_b(v_z, v_r) = L^{-1} \sum_{n=1}^N \int_0^L \rho_b^{(n)}(v_z, v_r, z) dz. \quad (6)$$

Полагаем выполненным соотношение  $\Delta l \ll [1 - (D_2/D_1)]L$  для геометрических параметров ячейки и ее скоростного селектора (рис. 1). Тогда из формул (3)—(5) получаем функцию  $\Pi_b(v_z, v_r)$  (6), которая примерно является суммой равных вкладов от всех эквидистантных  $N \gg 1$  щелей:

$$\Pi_b(v_z, v_r) = (N\Delta l/L) \rho_b(v_z, v_r) \exp(-0.5D_1/v_r\tau_b) [1 - (D_1 - D_2)|v_z|/2\Delta l v_r] \eta[1 - (D_1 - D_2)|v_z|/2\Delta l v_r]. \quad (7)$$

Определим эффективную населенность  $P_b(v_z)$  оптически возбужденных атомов на уровне  $b$ , достигших центральной оси  $z$  ячейки, в зависимости от продольной компоненты атомной скорости  $v_z$ :

$$P_b(v_z) = \int_0^\infty \Pi_b(v_z, v_r) dv_r. \quad (8)$$

Представим населенность  $P_b(v_z)$  (8) в единицах  $S$ :

$$S = 0.5n_a N \Delta l / \pi^{1/2} u L. \quad (9)$$

**Результаты и их обсуждение.** Предполагается, что диаметр пробного монохроматического светового пучка, распространяющегося вдоль центральной оси  $z$ , гораздо меньше диаметра  $D_2$  соответствующего отверстия в рассматриваемой ячейке. Тогда спектр поглощения этого пробного излучения при сканировании его частоты в области резонансных переходов из возбужденного состояния  $b$  (рис. 2) определяется скоростной зависимостью эффективной населенности  $P_b(v_z)$  (8). На рис. 3 представлены рассчитанные по (8) распределения  $P_b(v_z)$  оптически возбужденных атомов по проекции скорости  $v_z$  при различных временах радиационного распада  $\tau_b$ , интенсивности оптической накачки и геометрического фактора  $(D_1 - D_2)/\Delta l$  для щелей в скоростном селекторе ячейки. Видно, что зависимость  $P_b(v_z)$  имеет максимум в точке  $v_z = 0$ , причем эффективная ширина  $\Delta v_z$  на полувысоте этой зависимости гораздо меньше, чем наиболее вероятная скорость атомов  $u$ . Амплитуда  $B_0 = P_b(v_z = 0)$  данного пика уменьшается с понижением интенсивности оптической накачки, а также с сокращением времени радиационного распада  $\tau_b$  (по отношению к  $D/u$ ). Из сравнения кривых 1 и 2 видно, что ширина  $\Delta v_z$  уменьшается с ростом геометрического фактора  $(D_1 - D_2)/\Delta l$ . Действительно, согласно (7), могут достичь без столкновительной релаксации центральной оси ячейки  $z$  (рис. 1) только такие оптически возбужденные атомы, у которых компоненты скорости  $v_z$  и  $v_r$  удовлетворяют условию  $|v_z| \leq [2\Delta l / (D_1 - D_2)] v_r$ .

На рис. 4 представлены зависимости амплитуды  $B_0 = P_b(v_z = 0)$  и характерной ширины  $\Delta v_z$  скоростного распределения  $P_b(v_z)$  (8) от интенсивности оптической накачки. Из сравнения кривых 1 и 2 видно, что с ростом геометрического фактора  $(D_1 - D_2)/\Delta l$  происходит сужение рассматриваемого распределения  $P_b(v_z)$  без изменения его амплитуды. С повышением интенсивности оптической накачки возрастает как амплитуда  $B_0$ , так и ширина  $\Delta v_z$  этого распределения, которые асимптотически

приближаются к постоянным значениям, когда  $\xi_{ab}\tau_b \gg 1$  (рис. 4). В частности, при сравнительно большом времени радиационного распада  $\tau_b \gg D/u$  из соотношений (7), (8) получаем аналитическое выражение для подобного “насыщенного” скоростного распределения при условии  $\xi_{ab}\tau_b \gg 1$ :

$$P_b^{(S)}(v_z) = (0.5n_a N \Delta l / L) F_l(v_z) \left\{ \exp \left[ - \left( \frac{(D_1 - D_2)v_z}{2u\Delta l} \right)^2 \right] + \frac{\sqrt{\pi}(D_1 - D_2)|v_z|}{2u\Delta l} \left[ \operatorname{erf} \left( \frac{(D_1 - D_2)|v_z|}{2u\Delta l} \right) - 1 \right] \right\}, \quad (10)$$

где  $\operatorname{erf}(x) = 2\pi^{-1/2} \int_0^x \exp(-y^2) dy$ .

Видно, что распределение  $P_b^{(S)}(v_z)$  (10) не зависит не только от интенсивности оптической накачки, но и от времени радиационного распада  $\tau_b$ . Отметим, что величина  $S$  (9), по которой нормировано распределение  $P_b(v_z)$  на рис. 3 и 4, *a*, равна  $P_b^{(S)}(v_z = 0)$  из (10). Уменьшение времени радиационного распада  $\tau_b$  по сравнению с  $D/u$  приводит не только к снижению количества оптически возбужденных атомов, достигающих центральной оси ячейки  $z$  (рис. 1), но и к уширению соответствующего скоростного распределения  $P_b(v_z)$  (рис. 4, кривые 1, 3 и 4). Из сравнения кривых 1, 3 и 4 (рис. 4, *a*) видно, что уменьшение амплитуды  $B_0$  распределения  $P_b(v_z)$  особенно существенно, когда время  $\tau_b$  меньше характерного времени  $0.5D/u$  пролета атомов от цилиндрической поверхности ячейки до ее оси  $z$ . При  $\tau_b \ll D/u$  оптически возбужденные атомы практически не достигают области пробного излучения в данной ячейке.

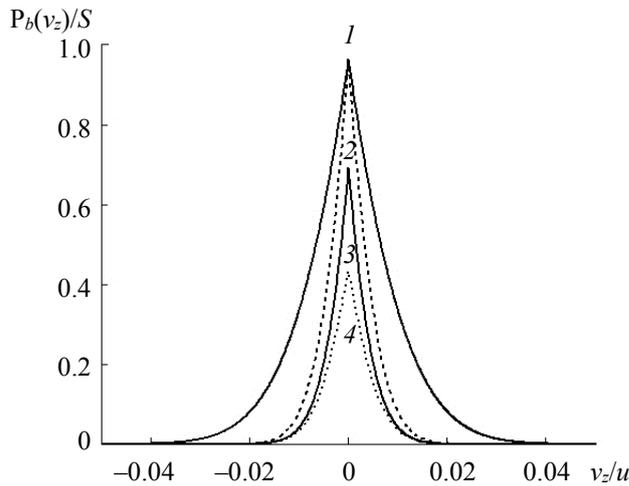


Рис. 3. Распределение  $P_b(v_z)$  оптически возбужденных атомов на центральной оси  $z$  многослойной ячейки в зависимости от их продольной компоненты скорости  $v_z$  при  $A_{ba}\tau_b = 0.4$ ,  $D_1 = 0.5D$ ,  $\xi_{ab}(D/u) = 8$  (1, 2) и 2 (3, 4),  $0.5(D_1 - D_2)/\Delta l = 50$  (1) и 100 (2—4),  $\tau_b(u/D) = 25$  (1—3) и 1.25 (4)

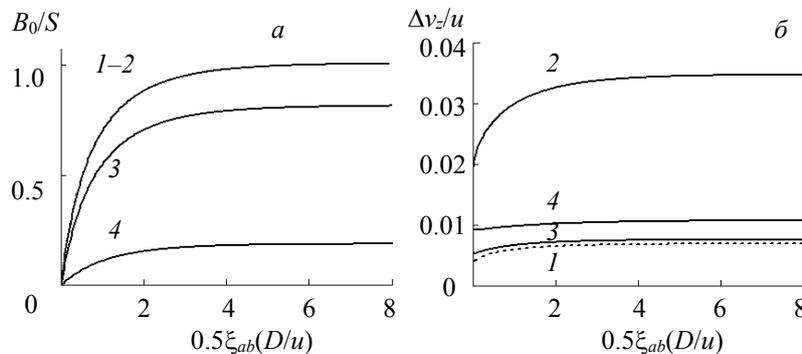


Рис. 4. Зависимости амплитуды  $B_0$  (*a*) и ширины  $\Delta v_z$  (*б*) скоростного распределения  $P_b(v_z)$  оптически возбужденных атомов от скорости накачки  $\xi_{ab}$  при  $A_{ba}\tau_b = 0.8$ ,  $D_1 = 0.5D$ ,  $0.5(D_1 - D_2)/\Delta l = 100$  (1, 3, 4) и 20 (2);  $\tau_b(u/D) = 25$  (1, 2), 2.5 (3) и 0.25 (4)

Представленные многослойные ячейки могут быть использованы в качестве компактного аналога большого количества плоскопараллельных пучков атомов (молекул) на каком-либо оптически возбужденном уровне  $b$ , если время его радиационного распада  $\tau_b \geq 0.5D/u$ . Например, для характерных значений  $D \sim 1$  см и  $u \sim 10^2$  м/с данное условие выполняется при  $\tau_b > 10^{-4}$  с. Это возможно, в частности, для метастабильных, а также высоковозбужденных долгоживущих ридберговских квантовых состояний атомов и молекул [5, 6]. Рассмотрена коаксиальная оптическая накачка широкополосным излучением для цилиндрической геометрии многослойной газовой ячейки. Вместе с тем полученные результаты также применимы для различных форм газовой ячейки с пространственно разделенными областями для накачки и зондирования, которые соединены плоскопараллельными тонкими щелями для скоростной селекции оптически возбужденных атомов. В качестве пробного светового пучка в подобных ячейках могут быть использованы также монохроматические компоненты излучения комб-генератора оптических частот, работающего в широком спектральном диапазоне [7]. Это позволяет существенно расширить количество анализируемых атомных (молекулярных) квантовых переходов в таких ячейках.

**Заключение.** Рассматриваемая газовая ячейка может быть использована как основа для высокоточных компактных стандартов частоты на переходах из сравнительно долгоживущих оптически возбужденных квантовых состояний. При этом становится возможным создание новых не только пассивных, но и активных стандартов частоты. Действительно, в центральной области подобной многослойной ячейки (рис. 1) можно реализовать инверсию населенностей уровней  $b$  и  $c_2$  на переходе типа  $b \leftrightarrow c_2$  (рис. 2) для возбужденных атомов (молекул) с весьма узким распределением  $P_b(v_z)$  по проекции скорости  $v_z$  вдоль оси  $z$ . Таким образом, вдоль этой оси  $z$  возможны усиление и (при наличии соответствующего резонатора) генерация излучения на частоте перехода  $b \leftrightarrow c_2$ , у которого доплеровское уширение спектральной линии многократно уменьшено по сравнению с обычной (полой) газовой ячейкой.

- [1] **W. Demtroder.** Laser Spectroscopy: Basic Concepts and Instrumentation, Berlin, Springer (2003)
- [2] **F. Riehle.** Frequency Standards-Basics and Applications, Berlin, Wiley-VCH (2004)
- [3] **А. Ч. Измайлов.** Опт. и спектр., **115**, № 4 (2013) 531—538 [A. Ch. Izmailov. Opt. Spectrosc., **115**, N 4 (2013) 463—468]
- [4] **А. Ч. Измайлов.** Опт. и спектр., **117**, № 1 (2014) 145—150 [A. Ch. Izmailov. Opt. Spectrosc., **117**, N 1 (2014) 139—144]
- [5] **A. A. Radzig, B. M. Smirnov.** Reference Data on Atoms, Molecules and Ions, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg (1985)
- [6] Rydberg States of Atoms and Molecules, Eds. R. F. Stebbings, F. B. Dunning, Cambridge University Press (1983)
- [7] **M. C. Stowe, M. J. Thorpe, A. Pe'er, Jun Ye, J. E. Stalnaker, V. Gerginov, S. A. Diddams.** Adv. At., Mol. Opt. Phys., **55** (2008) 1—60