ВНУТРИДОПЛЕРОВСКАЯ ФЛУОРЕСЦЕНТНАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ В ТОНКИХ ГАЗОВЫХ ЯЧЕЙКАХ ПРИ НАКАЧКЕ ШИРОКОПОЛОСНЫМ ИЗЛУЧЕНИЕМ

А. С. Гасанова, Ч. О. Каджар, А. Ч. Измайлов*

УДК 535.37

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

(Поступила 9 ноября 2020)

Теоретически исследовано возбуждение атомов (молекул) разреженного газа стационарным широкополосным оптическим излучением в тонкой ячейке, внутренняя толщина которой во много раз меньше ее поперечного размера. Особенности оптической накачки и пролетной релаксации атомных частиц в таких ячейках открывают новые возможности для спектроскопии сверхвысокого разрешения. Проанализированы условия, при которых возникают узкие высококонтрастные внутридоплеровские резонансы флуоресценции на центральных частотах спонтанных переходов из оптически возбужденных атомных (молекулярных) квантовых уровней.

Ключевые слова: *внутридоплеровские резонансы флуоресценции, тонкая газовая ячейка, широкополосное излучение, оптическая накачка.*

The excitation of atoms (molecules) of a rarefied gas by stationary broadband optical radiation in a thin cell, the inner thickness of which is many times smaller than its transverse size, is studied theoretically. The features of optical pumping and transit-time relaxation of atomic particles in such cells open new possibilities for ultra-high resolution spectroscopy. The conditions are analyzed under which narrow high-contrast sub-Doppler fluorescence resonances arise at the central frequencies of spontaneous transitions from optically excited atomic (molecular) quantum levels.

Keywords: *sub-Doppler fluorescence resonances, thin gas cell, broadband radiation, optical pumping.*

Введение. Для спектроскопии высокого разрешения важна разработка эффективных методов, которые позволяют анализировать структуру спектральных линий, скрытую доплеровским уширением вследствие движения атомов или молекул газовой среды [1]. В работах [2—5] теоретически предложены новые методы внутридоплеровской лазерной спектроскопии, которые основаны на стационарной оптической накачке основного атомного терма в течение пролета атомов достаточно разреженного газа между стенками тонкой газовой ячейки, характерный поперечный размер D которой во много раз больше ее внутренней толщины L. Впоследствии данные методы были успешно реализованы в экспериментах прецизионного спектрального анализа атомов [6—11] на основе серии тонких ячеек (с внутренней толщиной от 10 мкм до 10 мм), содержащих пары цезия [6—10] или рубидия [11]. В отличие от широко используемой спектроскопии насыщенного поглощения в обычных "макроскопических" ячейках ($L > D$) [1] в спектроскопии тонких газовых ячеек не возникают перекрестные резонансы (на промежуточных частотах между центрами оптических переходов). Фактически совокупность оптически накачанных атомов в тонкой ячейке является компактным аналогом атомного пучка. Расходимость такого пучка определяется малым отношением $L/D << 1$. В работе [12] представлен обзор методов, достижений и возможностей внутридоплеровской спектроскопии в тонких газовых ячейках. Ранее детектирование внутридоплеровских резонансов в спектрах поглощения, дис-

---

SUB-DOPPLER FLUORESCENCE SPECTROSCOPY IN THIN GAS CELLS PUMPED WITH BROADBAND RADIATION

A. S. Gasanova, Ch. O. Qajar, A. Ch. Izmailov* (*Institute of Physics of the National Academy of Sciences of Azerbaijan, AZ-1143, Baku, Azerbaijan; e-mail: azizm57@rambler.ru*)

персии и флуоресценции в рассматриваемых газовых ячейках проводилось посредством сканируемого по частоте монохроматического лазерного излучения [12].

В настоящей работе на основе теоретических расчетов показано, что узкие внутридоплеровские резонансы могут быть зарегистрированы также во флуоресценции атомов (молекул) в тонких газовых ячейках даже при их облучении широкополосным излучением. При этом детектирование данных резонансов возможно разработанным ранее методом для коллимированных атомных (молекулярных) пучков с использованием аппаратуры с достаточно высокой спектральной разрешающей способностью [1].

Основные соотношения. Рассмотрим разреженную газовую среду в ячейке из прозрачного материала в форме прямоугольного параллелепипеда (рис. 1). Внутренняя толщина L ячейки (вдоль оси z) во много раз меньше ее характерного поперечного размера D (вдоль осей x и y). Газовая среда полагается настолько разреженной, что взаимодействием между атомами (молекулами) в ней можно пренебречь. Считается, что однородное по ячейке стационарное широкополосное оптическое излучение возбуждает атомы (или молекулы) газа из подуровня a основного терма в состояние b на резонансном квантовом переходе $a \to b$ (рис. 2). Помимо спонтанного перехода $b \to a$ возбужденные атомы могут радиационно распадаться на другие нижние уровни c_1, c_2, …, c_n (рис. 2). 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 $\mathbf{r}$:

$$\mathbf{v}\frac{\partial \rho_a}{\partial \mathbf{r}} = \xi_{ab}\left(\rho_b - \rho_a\right) + A_{ba}\rho_b \ , \tag{1}$$

$$\mathbf{v}\frac{\partial \rho_b}{\partial \mathbf{r}} = \xi_{ab}\left(\rho_a - \rho_b\right) - \gamma_b\rho_b \ , \tag{2}$$

где ξ_{ab} — скорость оптического возбуждения на переходе $a \to b$ (рис. 2); γ_b — константа радиационного распада уровня b; A_{ba} — вероятность радиационного распада по каналу $b \to a$ ($A_{ba} \le \gamma_b$). Уравнения (1) и (2) должны быть дополнены граничными условиями, которые зависят от особенностей атомных столкновений со стенками ячейки. Как и в расчетах [2—12], выполненных для тонких газовых ячеек, полагаем, что в результате таких столкновений устанавливается равновесное распределение как по скоростям атомов, так и по населенностям их квантовых уровней. Тогда из уравнений (1) и (2) получаем решение для населенности $\rho_b(\mathbf{r},\mathbf{v})$ частиц на возбужденном уровне b в рассматриваемой газовой ячейке, ограниченной шестью стенками с координатами $z = \pm 0.5L$, $x = \pm 0.5D$, $y = \pm 0.5D$:

$$\rho_b\left(\mathbf{r},\mathbf{v}\right) = n_a F\left(v_x\right) F\left(v_y\right) F\left(v_z\right) \eta\left(0.5L - |z|\right) \eta\left(0.5D - |x|\right) \eta\left(0.5D - |y|\right) \times$$

$$\times \sum_{\alpha=\pm1}\sum_{\beta=\pm1}\sum_{\sigma=\pm1} \eta(\alpha v_x)\eta(\beta v_y)\eta(\sigma v_z)\left\{ p\left(\frac{0.5D+\alpha x}{|v_x|}\right)\eta\left[\frac{0.5D+\beta y}{|v_y|} - \frac{0.5D+\alpha x}{|v_x|}\right]\eta\left[\frac{0.5L+\sigma z}{|v_z|} - \frac{0.5D+\alpha x}{|v_x|}\right] + \right.$$

$$+ p\left(\frac{0.5D+\beta y}{|v_y|}\right)\eta\left[\frac{0.5D+\alpha x}{|v_x|} - \frac{0.5D+\beta y}{|v_y|}\right]\eta\left[\frac{0.5L+\sigma z}{|v_z|} - \frac{0.5D+\beta y}{|v_y|}\right] + p\left(\frac{0.5L+\sigma z}{|v_z|}\right)\eta\left[\frac{0.5D+\alpha x}{|v_x|} - \tag{3}$$

$$\left. - \frac{0.5L+\sigma z}{|v_z|}\right]\eta\left[\frac{0.5D+\beta y}{|v_y|} - \frac{0.5L+\sigma z}{|v_z|}\right]\right\},$$

где $p(t) = \dfrac{\left(\xi_{ab}+\lambda_1\right)\left(\xi_{ab}+\lambda_2\right)}{\left(\xi_{ab}+A_{ba}\right)\left(\lambda_1-\lambda_2\right)}\left[\exp\left(\lambda_2 t\right) - \exp\left(\lambda_1 t\right)\right]$, $\lambda_{1,2} = -\xi_{ab} - 0.5\gamma_b \pm \left[0.25{\gamma_b}^2 + \xi_{ab}\left(\xi_{ab} + A_{ba}\right)\right]^{0.5}$,

$\eta(x)$ — ступенчатая функция ($\eta(s) = 1$ при $s \ge 0$ и $\eta(s) = 0$ при $s < 0$); n_a — равновесная плотность атомов на уровне a; $F(v_j)$ — распределение Максвелла по проекции скорости v_j:

$$F\left(v_j\right) = \pi^{-0.5}u^{-1}\exp\left(-v_j^2/u^2\right), \ j = x, y, z \ , \tag{4}$$

с наиболее вероятной скоростью u атомов в газе.

Из (3) получаем распределение $N_b(v_z)$ возбужденных атомов по проекции скорости v_z во всем объеме V рассматриваемой ячейки:

$$N_b\left(v_z\right) = \iint_{-\infty}^{+\infty}\left[\int \rho_b\left(\mathbf{r},\mathbf{v}\right) d^3\mathbf{r}\right] dv_x dv_y \ . \tag{5}$$

Скоростное распределение $N_b(v_z)$ (5) определяет доплеровскую структуру спектральных линий во флуоресценции из уровня b атомов (молекул) газовой среды в направлении оси z тонкой ячейки (рис. 1).

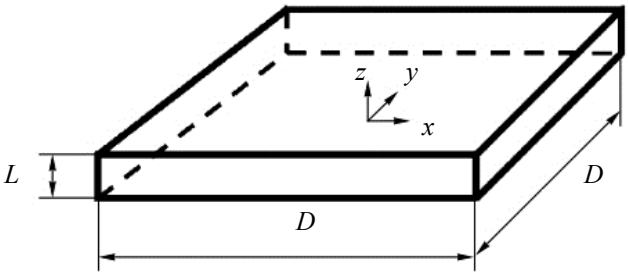


Рис. 1. Тонкая газовая ячейка в форме прямоугольного параллелепипеда

Результаты и их обсуждение. На рис. 3, *а* представлены рассчитанные зависимости $N_b(v_z)$ (5) при различных интенсивностях широкополосной накачки, отношениях L/D размеров ячейки, а также параметра $A_{ba}/\gamma_b < 1$, который характеризует вероятность радиационного распада из возбужденного состояния b обратно на исходный уровень a (рис. 2). Видно, что в распределении $N_b(v_z)$ на фоне сравнительно широкого скоростного распределения с характерной шириной, определяемой наиболее вероятной скоростью атомов u, возникает узкий симметричный провал с центром в точке $v_z = 0$ и эффективной шириной $w << u$, обусловленный спецификой оптической накачки и пролетной релаксации атомов в рассматриваемой ячейке. Действительно, подавляющее большинство атомов газового слоя пролетает между плоскопараллельными стенками такой ячейки с координатами $z = \pm 0.5L$. Таким образом, процесс оптического возбуждения атомов на переходе $a \to b$ и последующего радиационного распада уровня b на нижние квантовые состояния (рис. 2) определяется временем пролета $L/|v_z|$ таких атомов с проекцией скорости v_z. В связи с этим при $v_z \to 0$ резко уменьшается населенность исходного уровня a, что приводит к появлению узкого провала с центром в точке $v_z = 0$ в скоростном распределении $N_b(v_z)$ атомов, возбужденных на переходе $a \to b$ (рис. 3, *а*). Отметим, что в обычной газовой ячейке с характерными размерами $L \geq D$ такой провал не возникает при рассматриваемой широкополосной оптической накачке.

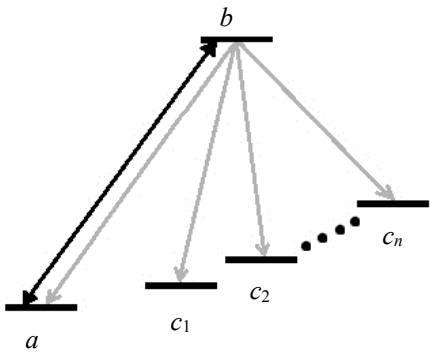


Рис. 2. Схема квантовых уровней и переходов атомов (или молекул): $a \to b$ — переход, на котором осуществляется оптическое возбуждение из подуровня a основного терма на уровень b широкополосным излучением; $b \to a$, $b \to c_1$, $b \to c_2$, $b \to c_n$ — спонтанные переходы из возбужденного состояния b на нижние уровни a, c_1, c_2, … c_n соответственно

Для детального анализа характеристик исследуемого провала рассмотрим функцию $\Delta N_b(v_z)$ в пределах проекции скорости v_z проявления этого провала:

$$\Delta N_b(v_z) = N_{\max}^{(b)} - N_b\left(v_z\right), \tag{6}$$

где $N_{\max}^{(b)}$ — максимальное значение функции $N_b(v_z)$ (точка M на рис. 3, *а*). На рис. 3, *б* представлены зависимости $\Delta N_b(v_z)$ (6), которые соответствуют провалам на рис. 3, *а*. Видно, что данный провал увеличивается с усилением оптической накачки, которое имеет место при повышении интенсивности широкополосного излучения, росте отношения D/L размеров ячейки, а также уменьшении параметра $A_{ba}/\gamma_b < 1$. Наряду с амплитудой $A = \Delta N_b(v_z = 0)$ этого провала и его шириной w на полувысоте зависимости $\Delta N_b(v_z)$ проанализируем контрастность C провала в скоростном распределении $N_b(v_z)$ (рис. 3, *а*):

$$C = \frac{A}{N_{\max}^{(b)}} = \frac{\left[N_{\max}^{(b)} - N_b(v_z = 0)\right]}{N_{\max}^{(b)}}. \tag{7}$$

На рис. 4 представлены зависимости характеристик A, C и w рассматриваемого провала от скорости оптического возбуждения ξ_{ab} при различных отношениях D/L размеров ячейки. С повышением интенсивности излучения величины A, C и w возрастают вследствие усиления оптической перекачки населенности с исходного уровня a на другие нижние квантовые состояния $c_1, c_2, \ldots c_n$ (рис. 2).

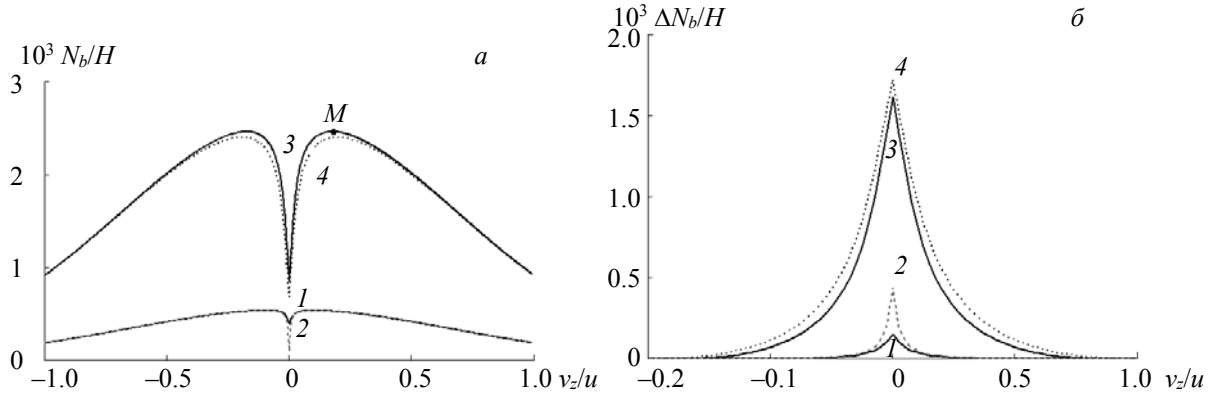


Рис. 3. Зависимости $N_b(v_z)$ (*а*) и $\Delta N_b(v_z) = [N_{\max}^{(b)} - N_b(v_z)]$ (*б*) от проекции скорости v_z (в единицах u) для оптически возбужденных атомов при $\gamma_b = 10u/L$, $\xi_{ab}/\gamma_b = 10^{-3}$ (*1*, *2*) и $5 \cdot 10^{-2}$ (*3*, *4*); $D/L = 10^2$ (*1*, *3*, *4*) и 10^3 (*2*); $A_{ba}/\gamma_b = 0.4$ (*1*—*3*) и 0.2 (*4*); функции $N_b(v_z)$ и $\Delta N_b(v_z)$ нормированы на $H = n_a L D^2/u$; M — максимум $N_{\max}^{(b)}$ для кривой *3* на рис. 3, *а*

Происхождение исследуемого скоростного провала особенно наглядно показано в модели плоской одномерной ячейки, которая соответствует предельному отношению $D/L \to \infty$ ее размеров. Тогда существенное опустошение оптической накачкой исходного уровня a (рис. 2) происходит при следующем условии для времени пролета атомов $L/|v_z|$ между плоскопараллельными стенками ячейки:

$$\xi_{ab}\left[1 - \frac{A_{ba}}{\gamma_b}\right]\frac{L}{|v_z|} \geq 1. \tag{8}$$

Согласно (8), по мере уменьшения проекции скорости атомов $|v_z|$ усиливается этот процесс опустошения и эффективная ширина скоростного провала в модели одномерной ячейки определяется произведением ее внутренней толщины L и скорости оптического возбуждения ξ_{ab} на переходе $a \to b$, а также коэффициента $\left[1 - \left(A_{ba}/\gamma_b\right)\right]$, который характеризует степень "незамкнутости" данного перехода $a \to b$. Для эффективной оптической накачки атомов в ячейке с реальным поперечным размером D наряду с (8) должны выполняться условия, связанные с временами пролета этих атомов $D/|v_x|$ и $D/|v_x|$ между стенками рассматриваемой ячейки ортогонально оси z с проекциями скорости v_x и v_y:

$$\xi_{ab}\left[1 - \frac{A_{ba}}{\gamma_b}\right]\frac{D}{|v_x|} \geq 1, \ \xi_{ab}\left[1 - \frac{A_{ba}}{\gamma_b}\right]\frac{D}{|v_y|} \geq 1. \tag{9}$$

Согласно (9), с ростом поперечного размера ячейки D (при ее фиксированной внутренней толщине L) увеличивается доля атомов с проекциями скорости v_x и v_y, которые формируют узкий провал с центром в точке $v_z = 0$ в распределении $N_b(v_z)$ (рис. 3, *а*). Поэтому с ростом отношения D/L увеличивается амплитуда A и контрастность C данного провала, но уменьшается его ширина w (рис. 3, 4). С повышением интенсивности оптической накачки также возрастает доля атомов газового слоя, для которых выполняются условия (9). При этом уменьшаются различия между контрастностью C и шириной w провалов при различных отношениях D/L (рис. 4, *б*, *в*). В частности, при достаточно высоких интенсивностях накачки условия (9) выполняются фактически для всех атомов с проекциями скорости $|v_x| \le u$ и $|v_y| \le u$. Такая ситуация характерна для модели одномерной ячейки с расстоянием L между плоскопараллельными стенками. Тогда при $v_z = 0$ происходит практически полное опустошение оптической накачкой исходного уровня a (рис. 2) у соответствующих атомов. Поэтому с ростом интенсивности накачки контрастность провала C асимптотически приближается к единице (рис. 4, *б*). В противоположном пределе $\xi_{ab}/\gamma_b \to 0$ амплитуда провала A и его контрастность C стремятся к нулю, а ширина w приближается к значению порядка $(L/D)u$ (рис. 4).

Согласно рис. 3, *а*, регистрируемый в направлении оси z тонкой ячейки спектр флуоресценции атомов (молекул) газового слоя должен иметь на фоне доплеровски уширенного контура сравнительно узкие резонансные провалы с центрами на частотах каждого спонтанного перехода из возбужденного уровня b (рис. 2). Контрастность и ширина такого внутридоплеровского резонанса определяется соответствующими характеристиками центрального провала в скоростном распределении $\Delta N_b(v_z)$ (5). Согласно полученным результатам для тонкой газовой ячейки с достаточно малым отношением размеров $L/D << 1$ и при сравнительно низкой интенсивности широкополосной накачки, ширина спектрального резонанса может достигать минимального значения, определяемого константой радиационного распада γ_b уровня b (рис. 2).

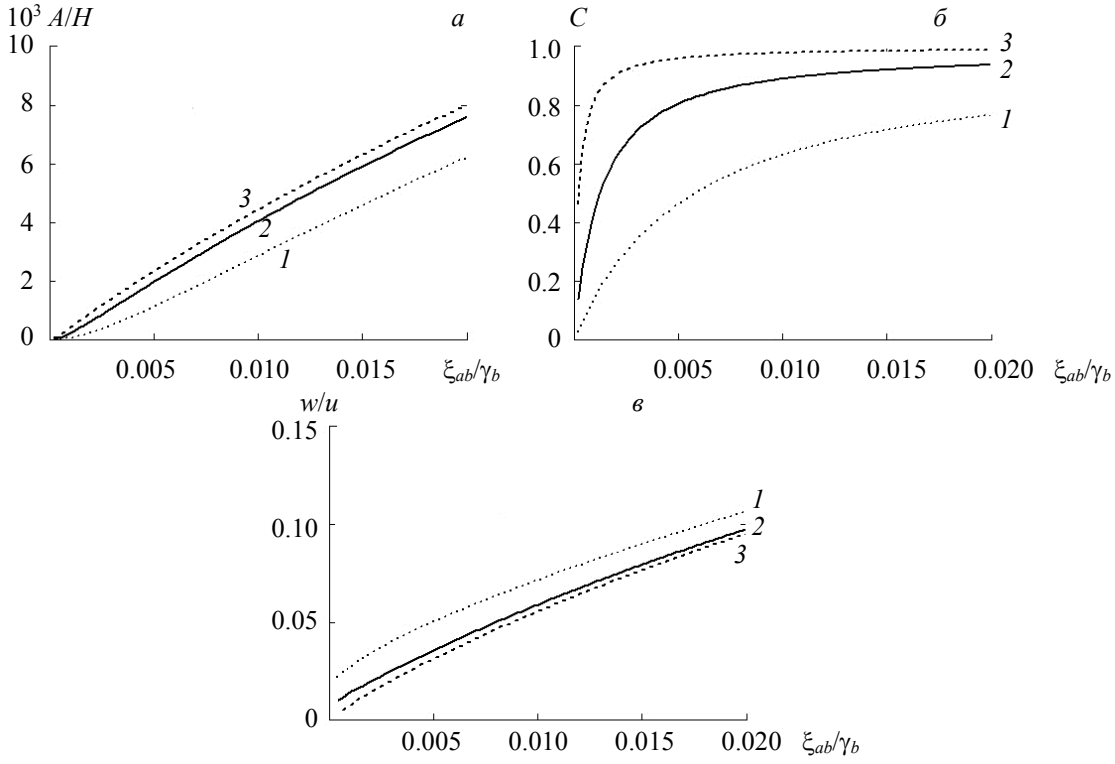


Рис. 4. Зависимости амплитуды A (*а*), контрастности C (*б*) и ширины w (*в*) центрального провала в скоростном распределении $N_b(v_z)$ (рис. 3) от интенсивности возбуждающего широкополосного излучения (в безразмерных единицах ξ_{ab}/γ_b) при $\gamma_b = 10u/L$, $A_{ba}/\gamma_b = 0.4$, $D/L = 50$ (*1*), 200 (*2*) и 1000 (*3*); амплитуда A нормирована на $H = n_a LD^2/u$

Совокупность оптически накачанных атомов (молекул) в тонкой ячейке, формирующих узкий провал в распределении $N_b(v_z)$, является компактным аналогом атомного (молекулярного) пучка с расходимостью w/u, которая может быть порядка $L/D << 1$. Поэтому для регистрации в эксперименте внутридоплеровских резонансов в спектре флуоресценции атомов (молекул) в рассматриваемом случае возможно применение разработанного ранее метода для коллимированных атомных (молекулярных) пучков [1] с использованием флуоресцентного спектрометра с достаточно высокой разрешающей способностью. При этом сигнал флуоресценции атомов (молекул) должен регистрироваться строго в направлении оси z ячейки, а излучение широкополосной накачки целесообразно направить поперек данной оси z, чтобы свести к минимуму его влияние на детектируемый сигнал.

Заключение. Рассмотрена газовая ячейка в форме прямоугольного параллелепипеда, поскольку при такой геометрии существенно упрощаются теоретические расчеты. Полученные качественные результаты могут быть обобщены также для тонких ячеек другой формы, в частности для цилиндрической ячейки с диаметром D и внутренней толщиной $L << D$. В настоящее время изготавливаются и используются в спектроскопии ультратонкие газовые ячейки с характерными размерами $L \sim 10$ нм и $D \sim 1$ см [13] с малым отношением $L/D \sim 10^{-6}$. Рассматриваемый сигнал флуоресценции оптически возбужденных атомов (молекул) может быть усилен при использовании серии последовательно расположенных тонких газовых ячеек.

[1] **W. Demtroder.** Laser Spectroscopy: Basic Concepts and Instrumentation. Berlin, Springer (2003)
[2] **A. Ch. Izmailov.** Laser Phys., **2**, N 5 (1992) 762—763
[3] **A. Ch. Izmailov.** Laser Phys., **3**, N 2 (1993) 507—508
[4] **А. Ч. Измайлов.** Опт. и спектр., **74**, № 1 (1993) 41—48 [**A. Ch. Izmailov.** Opt. Spectr., **74**, N 1 (1993) 25—29]
[5] **А. Ч. Измайлов.** Опт. и спектр., **75**, № 3 (1993) 664—669 [**A. Ch. Izmailov.** Opt. Spectr., **75**, N 3 (1993) 395–398]
[6] **S. Briaudeau, D. Bloch, M. Ducloy.** Europhys. Lett., **35**, N 5 (1996) 337—342
[7] **S. Briaudeau, D. Bloch, M. Ducloy.** Phys. Rev. A, **59**, N 5 (1999) 3723—3735
[8] **M. Tachikawa, K. Fukuda, S. Hayashi, T. Kawamura.** Jpn. J. Appl. Phys., **37**, N 12B (1998) L1556—L1559
[9] **M. Otake, K. Fukuda, M. Tachikawa.** Appl. Phys. B, **74**, N 6 (2002) 503—508
[10] **A. Ch. Izmailov, K. Fukuda, M. Kinoshita, M. Tachikawa.** Laser Phys., **14**, N 1 (2004) 30—38
[11] **S. Imanishi, U. Tanaka, S. Urabe.** Jpn. J. Appl. Phys., **44**, N 9A (2005) 6767—6771
[12] **A. Ch. Izmailov.** Azerb. J. Phys. Fizika. Sec. EN, **17**, N 1 (2011) 3—28, www.physics.gov.az/index1.html
[13] **T. Peyrot, Y. R. P. Sortais, J.-J. Greffet, A. Browaeys, A. Sargsyan, J. Keaveney, I. G. Hughes, C. S. Adams.** Phys. Rev. Lett., **122**, N 11 (2019) 113401