

## ФЛУОРЕСЦЕНТНАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ СВЕРХВЫСОКОГО РАЗРЕШЕНИЯ ПРИ ВОЗБУЖДЕНИИ АТОМОВ ИМПУЛЬСНЫМ ИЗЛУЧЕНИЕМ В ТОНКИХ ГАЗОВЫХ ЯЧЕЙКАХ

А. С. Гасанова, А. Ч. Измаилов\*

УДК 535.372

<https://doi.org/10.47612/0514-7506-2022-89-1-12-16>

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

(Поступила 5 октября 2021)

*Предложен метод внутридоплеровской флуоресцентной спектроскопии, основанный на особенностях сужения с течением времени скоростного распределения оптически возбужденных атомов (молекул) разреженной газовой среды в тонкой ячейке после воздействия достаточно короткого светового импульса. Проанализированы изменения установленных внутридоплеровских резонансов со временем, а также существенная зависимость этих резонансов от размеров газовой ячейки.*

**Ключевые слова:** внутридоплеровские резонансы флуоресценции, тонкая газовая ячейка, короткий световой импульс, спонтанные переходы.

*The method of sub-Doppler fluorescence spectroscopy is proposed, which is based on the features of the narrowing with time of the velocity distribution of optically excited atoms (molecules) of a rarefied gas medium in a thin cell after exposure to a sufficiently short light pulse. Changes in the established sub-Doppler resonances with time as well as the essential dependence of these resonances on dimensions of the gas cell are analyzed.*

**Keywords:** sub-Doppler fluorescence resonances, thin gas cell, short light pulse, spontaneous transitions.

**Введение.** Для спектроскопии сверхвысокого разрешения атомов и молекул важна разработка эффективных методов, которые позволяют анализировать структуру спектральных линий, скрытую доплеровским уширением [1]. В обзоре [2] описаны достижения и возможности хорошо апробированной внутридоплеровской спектроскопии, основанной на особенностях пролетной релаксации и оптической накачке атомов в тонких газовых ячейках, внутренняя толщина которых во много раз меньше их характерных поперечных размеров. При этом детектирование внутридоплеровских резонансов в спектрах поглощения в рассматриваемых газовых ячейках проводилось посредством сканируемого по частоте монохроматического лазерного излучения. В работе [3] на основе теоретических расчетов установлены и проанализированы новые узкие внутридоплеровские резонансы непосредственно во флуоресценции атомов (молекул) в тонких газовых ячейках при их облучении стационарным широкополосным излучением. В настоящей работе показано, что использование импульсного излучения для накачки атомов (молекул) в таких ячейках открывает новые возможности для флуоресцентной спектроскопии сверхвысокого разрешения. Установлены и проанализированы узкие внутридоплеровские резонансы, которые могут быть зарегистрированы во флуоресценции тонкого газового слоя после воздействия достаточно короткого возбуждающего импульса.

**Основные соотношения.** Рассмотрим разреженную газовую среду в ячейке, изготовленной 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  $y$ ).

---

## ULTRA-HIGH-RESOLUTION FLUORESCENCE SPECTROSCOPY AT EXCITATION OF ATOMS BY PULSED RADIATION IN THIN GAS CELLS

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

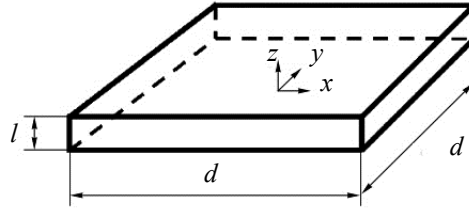


Рис. 1. Тонкая газовая ячейка в форме прямоугольного параллелепипеда

Газовая среда в ячейке полагается настолько разреженной, что взаимодействием атомов газа в ней можно пренебречь. Данная среда в интервале  $-T \leq t \leq 0$  облучается достаточно коротким импульсом широкополосной накачки, которая переводит атомы из основного уровня  $a$  в возбужденное состояние  $b$ . После воздействия такого импульса населенность возбужденного уровня  $b$  уменьшается со временем не только вследствие его радиационного распада (с характерным временем  $\tau_b$ ), но и в результате столкновений атомов со стенками ячейки. Таким образом, спустя время  $t > 0$  в рассматриваемой ячейке могут остаться только такие возбужденные атомы, чьи проекции скоростей  $v_x$ ,  $v_y$  и  $v_z$  на оси  $x$ ,  $y$  и  $z$  удовлетворяют условиям:

$$|v_x|t \leq d, \quad |v_y|t \leq d, \quad |v_z|t \leq l. \quad (1)$$

Длительность  $T$  импульса полагаем настолько короткой, что выполняются соотношения  $T \ll \tau_b$  и  $T \ll l/u$ , где  $u$  — наиболее вероятная скорость атомов в газе. Тогда в течение этого импульса можно пренебречь как радиационной релаксацией возбужденных частиц, так и относительным количеством таких частиц, которые, согласно (1), успевают столкнуться со стенками ячейки. При рассматриваемых условиях имеет место система уравнений для относительных населенностей  $\rho_a$  и  $\rho_b$  уровней  $a$  и  $b$  в течение короткого импульса широкополосной накачки на переходе  $a \rightarrow b$  [1]:

$$\begin{aligned} \rho_a + \rho_b &= 1, \\ \frac{d\rho_a}{dt} &= \theta(t)(\rho_b - \rho_a), \\ \frac{d\rho_b}{dt} &= \theta(t)(\rho_a - \rho_b), \end{aligned} \quad (2)$$

где  $\theta(t)$  — скорость оптического возбуждения, которое полагается однородным по всему объему ячейки. До облучения газовой среды в равновесном состоянии относительные населенности уровней  $a$  и  $b$  атомов  $\rho_a = 1$  и  $\rho_b = 0$ . Тогда из системы уравнений (2) для населенности возбужденного уровня  $b$  к моменту окончания импульса накачки  $t = 0$  получаем:

$$\rho_b^{(0)} = 0.5 \left\{ 1 - \exp \left[ -2 \int_0^T \theta(t_1) dt_1 \right] \right\}. \quad (3)$$

Изменение населенности  $\rho_b$  данного уровня  $b$  в течение времени  $t > 0$  описывается уравнением для атомов со скоростью  $\mathbf{v}$  и координатным вектором  $\mathbf{r}$  [1]:

$$\frac{\partial \rho_b}{\partial t} + \mathbf{v} \frac{\partial \rho_b}{\partial \mathbf{r}} + \frac{\rho_b}{\tau_b} = 0. \quad (4)$$

Наряду с начальным условием  $\rho_b(t=0) = \rho_b^{(0)}$  уравнение (4) должно быть дополнено граничными условиями, которые зависят от особенностей столкновений атомов (молекул) со стенками ячейки. Как и в [2, 3], для тонких газовых ячеек считаем, что в результате таких столкновений устанавливается равновесное распределение как по скоростям атомов, так и по населенностям их квантовых уровней. Тогда возбужденные на уровень  $b$  атомы релаксируют в основное квантовое состояние  $a$  при любом столкновении с внутренней поверхностью ячейки. При рассматриваемых условиях из уравнения (4) получаем относительную населенность  $\rho_b(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)$  возбужденных атомов в случае газовой ячейки, ограниченной шестью стенками с координатами  $z = \pm 0.5l$ ,  $x = \pm 0.5d$  и  $y = \pm 0.5d$ :

$$\rho_b(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) = \rho_b^{(0)} \exp(-t / \tau_b) \eta(0.5l - |z|) \eta(0.5d - |x|) \eta(0.5d - |y|) \times \\ \times \sum_{\alpha=\pm 1} \sum_{\beta=\pm 1} \sum_{\sigma=\pm 1} \left\{ \eta(\alpha v_x) \eta(\beta v_y) \eta(\sigma v_z) \eta[0.5d + \alpha(x - v_x t)] \eta[0.5d + \beta(y - v_y t)] \times \eta[0.5l + \sigma(z - v_z t)] \right\}, \quad (5)$$

где  $\eta(p)$  — ступенчатая функция ( $\eta(p) = 1$  при  $p \geq 0$  и  $\eta(p) = 0$  при  $p < 0$ ). Рассмотрим динамику изменения распределения  $N_b(v_z, t)$  возбужденных атомов по проекции атомной скорости  $v_z$  в объеме  $V$  рассматриваемой ячейки:

$$N_b(v_z, t) = n_a F(v_z) \iint_{-\infty}^{+\infty} \left[ \int \rho_b(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) d^3 \mathbf{r} \right] F(v_x) F(v_y) dv_x dv_y, \quad (6)$$

где  $n_a$  — равновесная плотность атомов в основном состоянии  $a$ ;  $F(v_j)$  — распределение Максвелла по проекции скорости  $v_j$ :

$$F(v_j) = \pi^{-0.5} u^{-1} \exp(-v_j^2 / u^2), \quad j = x, y, z, \quad (7)$$

с наиболее вероятной скоростью  $u$  атомов в газе. Подставляя (5) в (6), получаем

$$N_b(v_z, t) = N_0 \rho_b^{(0)} F(v_z) \exp(-t / \tau_b) s(t) (1 - |v_z| t l^{-1}) \eta(1 - |v_z| t l^{-1}), \quad (8)$$

где  $N_0 = n_a V$  — количество атомов в объеме ячейки  $V = l d^2$ . Функция

$$s(t) = 4 \left[ \int_0^{d/t} F(v) (1 - v t d^{-1}) dv \right]^2, \quad t \geq 0, \quad (9)$$

с зависимостью  $F(v)$  (7) и описывает уменьшение количества возбужденных атомов со временем  $t \geq 0$  вследствие их столкновений с боковыми стенками ячейки с координатами  $x = \pm 0.5d$  и  $y = \pm 0.5d$ .

Функция (9) монотонно убывает, начиная с  $s(0) = 1$ , причем  $s(t) \approx \pi^{-1} d^2 u^{-2} t^{-2}$ , когда  $t > 2d/u$ .

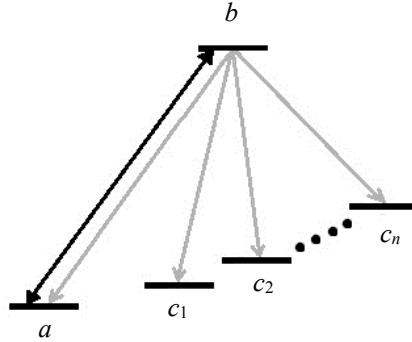


Рис. 2. Схема квантовых уровней и переходов атомов (молекул):  $a \rightarrow b$  — переход, на котором осуществляется возбуждение из основного терма  $a$  на уровень  $b$  импульсным излучением;  $b \rightarrow a$ ,  $b \rightarrow c_1$ ,  $b \rightarrow c_2$ , ...  $b \rightarrow c_n$  — спонтанные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

Множитель  $\exp(-t/\tau_b)$  в (5) и (8) описывает уменьшение количества возбужденных частиц вследствие их радиационного распада с уровня  $b$  на квантовые состояния  $a$ ,  $c_1$ ,  $c_2$ , ...,  $c_n$  (рис. 2) с более низкими энергиями после воздействия короткого светового импульса. Соответствующий сигнал флуоресценции газовой среды в ячейке может быть зарегистрирован экспериментально, начиная с некоторого момента времени  $t > 0$ . Поэтому проанализируем суммарное число  $N_b^{(f)}(v_z, t)$  атомных частиц на уровне  $b$ , в которых радиационный распад происходит до их столкновений со стенками ячейки с момента  $t > 0$ :

$$N_b^{(f)}(v_z, t) = \frac{1}{\tau_b} \int_t^\infty N_b(v_z, t_1) dt_1, \quad (10)$$

где функция  $N_b(v_z, t)$  описывается формулой (8). Скоростное распределение  $N_b^{(f)}(v_z, t)$  определяет доплеровскую структуру спектральных линий флуоресценции из возбужденного уровня  $b$  атомов газовой среды в направлении оси  $z$  тонкой ячейки.

**Результаты и их обсуждение.** На рис. 3 представлены рассчитанные зависимости количества возбужденных атомов  $N_b(v_z, t)$  (8) возбужденных атомов, не столкнувшихся со стенками тонкой ячейки к моменту времени  $t > 0$  после воздействия светового импульса, а также части этих атомов  $N_b^{(f)}(v_z, t)$  (10), которые дают вклад в регистрируемую флуоресценцию газового слоя, начиная с данного момента  $t$ , от проекции атомной скорости  $v_z$ . Согласно (8), характерная ширина  $w(t)$  скоростного распределения  $N_b(v_z, t)$  на его полувысоте имеет вид:

$$w(t) = 2l/t. \quad (11)$$

Уменьшение амплитуды  $A(t) = N_b(v_z = 0, t)$  распределения  $N_b(v_z, t)$  (8) со временем  $t$  описывается выражением при  $t > 2d/u$ :

$$A(t) \approx \pi^{-1.5} N_0 \rho_b^{(0)} \exp(-t/\tau_b) d^2 u^{-3} t^{-2}. \quad (12)$$

Вероятность радиационного распада возбужденного атомного уровня  $b$  увеличивается со временем. Поэтому с течением времени возрастает относительная доля оставшихся в ячейке возбужденных атомов, которые впоследствии радиационно распадаются до столкновения со стенками ячейки.

На рис. 4 представлены зависимости для амплитуды  $A_f(t)$  и ширины  $w_f(t)$  скоростного распределения  $N_b^{(f)}(v_z, t)$  (10) флуоресцирующих атомов от времени  $t > 0$  для различных отношений  $d/l \gg 1$  поперечного размера ячейки  $d$  к ее фиксированной внутренней толщине  $l$ . Для эффективной флуоресценции атомов, которые остаются в ячейке в возбужденном состоянии  $b$  к моменту времени  $t > 0$ , наряду с условием (1) выполняются соотношения:

$$|v_x| \tau_b \leq d, \quad |v_y| \tau_b \leq d, \quad |v_z| \tau_b \leq l. \quad (13)$$

Согласно (13), уменьшение поперечного размера ячейки  $d$  при ее заданной внутренней толщине  $l$  приводит к сокращению доли флуоресцирующих атомов газового слоя. Поэтому с уменьшением отношения  $d/l$  уменьшается амплитуда и уширяется скоростное распределение  $N_b^{(f)}(v_z, t)$  (10) таких атомов (рис. 4). Различие ширины  $w_f(t)$ , полученных при разных отношениях  $d/l \gg 1$ , асимптотически исчезает с ростом  $t$  (рис. 4, б), и зависимость  $w_f(t)$  при  $t > \tau_b$  хорошо описывается выражением:

$$w_f(t) \approx l \left( t^{-1} + \tau_b^{-1} - \sqrt{t^{-2} + \tau_b^{-2}} \right). \quad (14)$$

Формально ширина  $w_f(t)$  может достигать сколь угодно малой величины при  $t > 0$ . Однако амплитуда  $A_f(t)$  скоростного распределения  $N_b^{(f)}(v_z, t)$  (10) флуоресцирующих атомов уменьшается быстрее ее ширины  $w_f(t)$ , когда  $t > \tau_b$  и  $t > 2d/u$ .

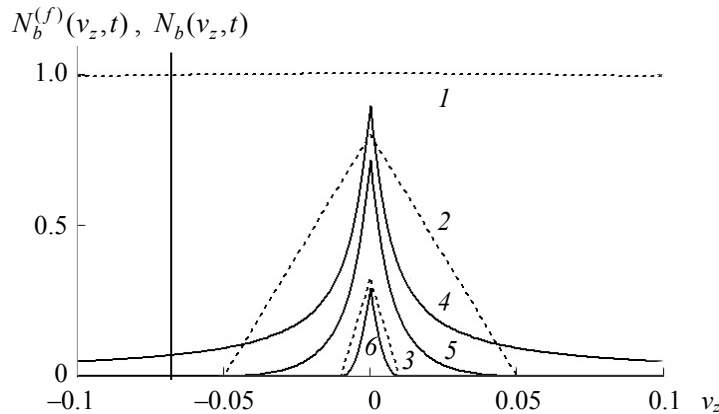


Рис. 3. Зависимости количества возбужденных атомов  $N_b(v_z, t)$  (1—3), а также их флуоресцирующей части  $N_b^{(f)}(v_z, t)$  (4—6) от проекции атомной скорости  $v_z$  (в единицах  $u$ ) для моментов времени  $t = 0$  (1, 4),  $0.2\tau_b$  (2, 5) и  $\tau_b$  (3, 6) при  $\tau_b = 100l/u$  и  $d/l = 1000$ ; функции  $N_b(v_z, t)$  и  $N_b^{(f)}(v_z, t)$  нормированы на  $A_0 = N_b(v_z = 0, t = 0)$

Согласно рис. 3, регистрируемый в направлении оси  $z$  тонкой ячейки спектр флуоресценции атомов газового слоя представлен сравнительно узкими внутридоплеровскими резонансами с центрами на частотах каждого спонтанного перехода из возбужденного уровня  $b$  (см. рис. 2). Амплитуда

и ширина таких резонансов определяются соответствующими характеристиками скоростного распределения  $N_b^{(f)}(v_z, t)$  (10) флуоресцирующих атомов, которые существенно зависят от времени  $t$  начала регистрации и размеров тонкой ячейки (рис. 4). С течением времени доплеровское уширение подобных резонансов флуоресценции асимптотически исчезает (рис. 4, б), однако быстрее уменьшается амплитуда сигнала (рис. 4, а).

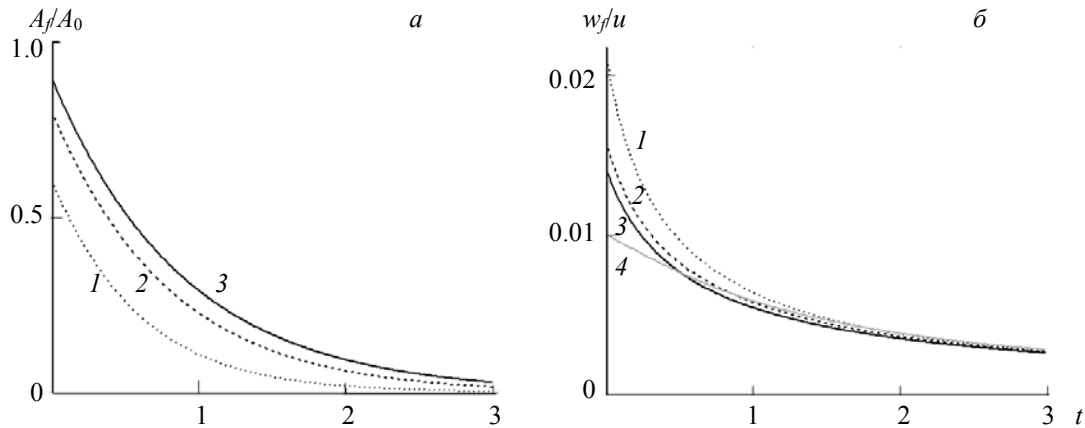


Рис. 4. Зависимости амплитуды  $A_f$  (а) и ширины  $w_f$  (б) скоростного распределения  $N_b^{(f)}(v_z, t)$  флуоресцирующих атомов от времени  $t$  (в единицах  $\tau_b$ ) при  $\tau_b = 100/l$  и  $d/l = 200$  (1), 500 (2) и 1000 (3); 4 — приближенная зависимость  $w_f(t)$ , описываемая (14)

В отличие от внутридоплеровских резонансов флуоресценции при стационарной оптической накачке в тонких газовых ячейках [3] в рассматриваемом случае сигнал флуоресценции регистрируется в отсутствие возбуждающего излучения, что позволяет повысить точность экспериментальных измерений. Такие измерения должны быть основаны на хорошо разработанной технике спектроскопии с высоким временным и спектральным разрешением [1]. Необходимые для подобных экспериментов достаточно короткие управляемые световые импульсы (с длительностью до фемтосекунд) могут быть получены с помощью широко используемых в спектроскопии лазеров.

**Заключение.** Рассмотрена газовая ячейка в форме прямоугольного параллелепипеда, геометрия которой существенно упрощает теоретические расчеты. Полученные качественные результаты могут быть обобщены для тонких ячеек другой формы, в частности для цилиндрической ячейки диаметром  $d$  и внутренней толщиной  $l \ll d$ . В настоящее время изготавливаются и используются в спектроскопии ультратонкие газовые ячейки с характерными размерами  $l \sim 10$  нм и  $d \sim 1$  см с малым отношением  $l/d \sim 10^{-6}$  [4]. Рассматриваемый сигнал флуоресценции оптически возбужденных атомов 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.** Azerb. J. Phys., Fizika, Sec. En, **17**, N 1 (2011) 3—28, physics.gov.az/index1.html
- [3] **A. С. Гасанова, Ч. О. Каджар, А. Ч. Измаилов.** Журн. прикл. спектр., **88**, № 2 (2021) 249—254 [A. S. Gasanova, Ch. O. Qajar, A. Ch. Izmailov. J. Appl. Spectr., **88**, N 2 (2021) 311—316]
- [4] **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