

01

Резонансное вынужденное комбинационное рассеяние на запрещенном переходе 2^3S-1^1S атома гелия

© Е.В. Бакланов^{1,2}, П.В. Покасов¹, А.В. Тайченачев^{1,2}

¹ Институт лазерной физики Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия

² Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия

e-mail: baklanov.ev@gmail.com

Поступила в редакцию 15.01.2021 г.

В окончательной редакции 05.03.2021 г.

Принята к публикации 20.04.2021 г.

Рассмотрено резонансное вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР) на запрещенном переходе 2^3S-1^1S атома гелия (62.6 нм) через промежуточный уровень 2^3P_1 . Метастабильное состояние 2^3S имеет наименьшую энергию в триплетной части спектра (He*), а состояние 1^1S является основным. Для матрицы плотности выведены укороченные кинетические уравнения, которые используются для анализа ВКР-резонанса. Получены выражения для полевого уширения и сдвига резонанса, учтено доплеровское уширение, выполнены численные оценки.

Ключевые слова: стандарт частоты, вынужденное комбинационное рассеяние, гребенка частот, вакуумный ультрафиолет.

DOI: 10.21883/OS.2021.08.51190.1802-21

Введение

Рассмотрено резонансное вынужденное комбинационное рассеяние на переходе 2^3S-1^1S атома гелия (62.6 нм) через промежуточный уровень 2^3P_1 (рисунок). Частота поля накачки близка к частоте перехода $2^3P_1-2^3S$ (1083 нм), а частота вынужденного рассеяния — к частоте перехода $2^3P_1-1^1S$ (59.1 нм). Переход 2^3S-1^1S имеет малую радиационную ширину, которая определяется временем жизни состояния 2^3S (7900 с). В работах [1,2] были выполнены исследования, связанные с этим переходом — рассмотрена возможность прецизионного измерения его частоты с помощью резонансного ВКР [1], показана возможность создания стандарта частоты в области вакуумного ультрафиолета [2]. Репером для стандарта является резонанс в форме линии вынужденного рассеяния (ВКР-резонанс). В настоящей работе для анализа ВКР-резонанса используются кинетические уравнения для матрицы плотности. Для матричных элементов получены укороченные уравнения, которые имеют достаточно простой вид и могут быть использованы для вычисления различных факторов, влияющих на стабильность и точность предложенного стандарта частоты. Получены выражения для полевого уширения и сдвига ВКР-резонанса, учтено доплеровское уширение, даны численные оценки. Для оценок будем ориентироваться на работы [3,4]. В работе [3] была получена генерация гребенки частот экстремального ультрафиолета на длине волны 60 нм. Мощность одной гармоники в гребенке равнялась двум милливаттам, что соответствует интенсивности, полученной на синхро-

тронных источниках. В работе [4] в магнитооптической ловушке было захвачено 10^6 атомов гелия в состоянии 2^3P_1 при температуре 1 мК.

Кинетические уравнения

Уровни 2^3S , 2^3P_1 , 1^1S атома гелия будем нумеровать индексами 0, 1, 2 (рисунок). Рассматриваем ВКР линейно поляризованного поля:

$$E(t) = E \exp(-i\omega t) + E' \exp(-i\omega' t) + \text{с.с.},$$

при котором атом с уровня 0 переходит на уровень 2 через промежуточный уровень 1. Здесь E и E' — комплексные амплитуды полей накачки и вынужденного рассеяния соответственно, частота ω близка к частоте перехода ω_{10} , а частота ω' — к частоте перехода ω_{12} .

Уравнения для элементов матрицы плотности атома имеют следующий вид:

$$\dot{\rho}_{mn} + (\Gamma_{mn} + i\omega_{mn})\rho_{mn} = \sum_{k=0}^2 (Q_{mk}\rho_{kn} - \rho_{mk}Q_{kn}). \quad (1)$$

Здесь $\rho_{mn} = \rho_{nm}^*$, $m, n = 0, 1, 2$; $\Gamma_{mn} = (\gamma_m + \gamma_n)/2$ — радиационная ширина перехода; γ_m — вероятность распада уровня m . Так как $\gamma_0 = 1.3 \cdot 10^{-4}$, $\gamma_1 = 10^7 \text{ s}^{-1}$, $\gamma_2 = 0$, то можно записать $\Gamma_{10} = \Gamma$, $\Gamma_{12} = \Gamma$, $\Gamma = \gamma_1/2$. Ширину запрещенного перехода Γ_{02} обозначим как G . Величины Q_{mk} являются матричными элементами оператора взаимодействия атома с полем. В резонансном приближении они равны

$$Q_{10} = U \exp(-i\omega t), \quad Q_{01} = -U^* \exp(i\omega t),$$

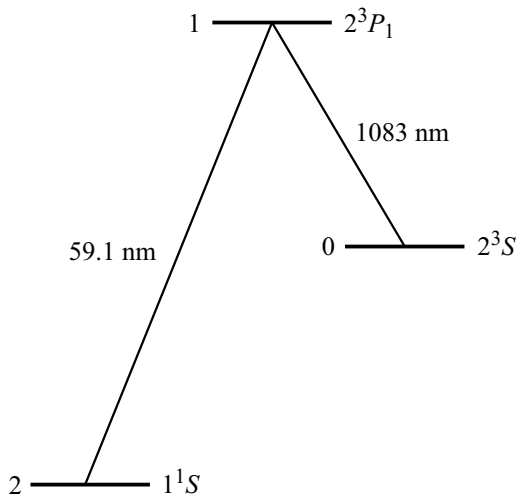


Схема ВКР с уровня 0 в основное состояние 2 через промежуточный уровень 1.

$$Q_{12} = V \exp(-i\omega't), \quad Q_{21} = -V^* \exp(i\omega't),$$

$$U = d_{10}E/i\hbar, \quad V = d_{12}E'/i\hbar, \quad (2)$$

где d_{10} и d_{12} — матричные элементы оператора проекции дипольного момента на направление поля. Система уравнений (1) имеет следующий вид:

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{00} &= Q_{01}\rho_{10} - \rho_{01}Q_{10}, \\ \dot{\rho}_{22} &= Q_{21}\rho_{12} - \rho_{21}Q_{12}, \\ \dot{\rho}_{11} + \gamma_1\rho_{11} &= Q_{10}\rho_{01} - Q_{10}\rho_{01} + Q_{12}\rho_{21} - Q_{12}\rho_{21}, \\ \dot{\rho}_{10} + (\Gamma + i\omega_{10})\rho_{10} &= Q_{10}(\rho_{00} - \rho_{11}) + Q_{12}\rho_{20}, \\ \dot{\rho}_{12} + (\Gamma + i\omega_{12})\rho_{12} &= Q_{12}(\rho_{22} - \rho_{11}) + Q_{10}\rho_{02}, \\ \dot{\rho}_{02} + (G + i\omega_{02})\rho_{02} &= Q_{01}\rho_{12} - \rho_{01}Q_{12}. \end{aligned} \quad (3)$$

Учитывая условие нормировки $\rho_{00} + \rho_{11} + \rho_{22} = 1$, можно опустить первое уравнение и исключить из системы переменную ρ_{00} , положив $\rho_{00} = 1 - \rho_{11} - \rho_{22}$. Очевидно, что величина $\dot{\rho}_{22}$ есть вероятность перехода с уровня 0 на уровень 2 под действием двух полей. Обозначив $\dot{\rho}_{22}$ через $W(0 \rightarrow 2)$, будем использовать второе уравнение системы (3) для нахождения этой вероятности:

$$W(0 \rightarrow 2) = Q_{21}\rho_{12} - \rho_{21}Q_{12}.$$

При решении оставшихся четырех уравнений в системе (3) поля будем считать слабыми, удовлетворяющими соотношениям

$$|U|/\Gamma \ll 1, \quad |V|/\Gamma \ll 1. \quad (4)$$

Перейдем к укороченным уравнениям. Будем использовать переменные $\rho_{11}, r_{10}, r_{12}, r_{02}$, где

$$\begin{aligned} \rho_{10} &= r_{10} \exp(-i\omega t), \\ \rho_{12} &= r_{12} \exp(-i\omega't), \end{aligned}$$

$$\rho_{02} = r_{02} \exp(-i\omega't + i\omega t).$$

При условиях (4) величины $\rho_{11}, r_{10}, r_{12}, r_{02}$ можно считать не зависящими от времени, а вероятность ρ_{22} в системе (3) положить равной нулю. В результате имеем

$$W(0 \rightarrow 2) = -2\text{Re}(V^*r_{12}), \quad (5)$$

где r_{12} находится из системы алгебраических уравнений:

$$\begin{aligned} \Gamma\rho_{11} &= \text{Re}(U^*r_{10}) + \text{Re}(V^*r_{12}), \\ (\Gamma - i\Omega_{10})r_{10} &= U - 2U\rho_{11} + Vr_{02}, \\ (\Gamma - i\Omega_{12})r_{12} &= -V\rho_{11} + Ur_{02}, \\ (G - i\Omega)r_{02} &= -Vr_{10}^* - U^*r_{12}. \end{aligned} \quad (6)$$

Здесь $\Omega_{10} = \omega - \omega_{10}, \Omega_{12} = \omega' - \omega_{12}, \Omega = \omega' - \omega - \omega_{02}$.

Резонанс в форме линии ВКР

При решении системы (6) будем использовать малость параметров (4). Подставим r_{12} из третьего уравнения в выражение (5), а затем найдем r_{02} и ρ_{11} , пренебрегая членами низшего порядка по полю:

$$\begin{aligned} W(0 \rightarrow 2) &= 2\text{Re} \left\{ \frac{|V|^2\rho_{11}}{\Gamma - i\Omega_{12}} \right\} - 2\text{Re} \left\{ \frac{V^*U r_{02}^*}{\Gamma - i\Omega_{12}} \right\}, \\ r_{02} &= -\frac{VU^*}{(\Gamma + i\Omega_{10})(G - i\Omega)}, \\ \rho_{11} &= \frac{|U|^2}{\Gamma^2 + \Omega_{10}^2}. \end{aligned}$$

В результате для вероятности перехода атома из состояния 1 в состояние 2 под действием поля двух частот получим выражение

$$\begin{aligned} W(0 \rightarrow 2) &= W \frac{\Gamma^4}{(\Gamma^2 + \Omega_{10}^2)(\Gamma^2 + \Omega_{12}^2)} \\ &+ W\text{Re} \left\{ \frac{\Gamma^3}{(\Gamma - i\Omega_{12})(\Gamma + i\Omega_{10})(G - i\Omega)} \right\}, \quad (7) \\ W &= \gamma_1 a_{10} a_{12}, \end{aligned}$$

где величины

$$a_{10} = |U|^2/\Gamma^2, \quad a_{12} = |V|^2/\Gamma^2 \quad (8)$$

являются безразмерными параметрами насыщения на переходах $1 \rightarrow 0$ и $1 \rightarrow 2$ соответственно. Согласно (4), они считаются малыми. Вероятность двухфотонного перехода состоит из двух членов, которые имеют разную физическую природу. Первый член состоит из двух ступенчатых переходов — поглощение фотона с созданием заселенности на верхнем уровне 1, а затем однофотонное излучение. Второй член — ВКР (когерентное поглощение и испускание фотонов), в форме линии которого имеется резонанс с однофотонной шириной запрещенного

перехода. Нас будет интересовать только этот член. При отстройках частот $|\Omega_{10}| \ll \Gamma$ и $|\Omega_{12}| \ll \Gamma$ имеем

$$W(0 \rightarrow 2) = W \frac{\Gamma G}{\Omega^2 + G^2}. \quad (9)$$

Таким образом, имеется резонанс в форме линии ВКР при $\Omega = 0$, т.е. когда разность частот $\omega' - \omega$ равняется частоте перехода ω_{02} .

Доплеровское уширение

Радиационная ширина ВКР-резонанса G имеет очень малую величину ($2 \cdot 10^{-5}$ Hz), а поэтому резонанс всегда будет уширен за счет движения атомов. Газ атомов в ловушке при температуре T будем описывать функцией распределения Максвелла:

$$f(v) = \frac{1}{\sqrt{\pi}v_D} \exp(-v^2/v_D^2),$$

где v — проекция скорости атома на направление распространения волн, $v_D = \sqrt{2k_B T/M}$ — тепловая скорость ($M = 6.7 \cdot 10^{-24}$ g — масса атома гелия, $k_B = 1.4 \cdot 10^{-16}$ erg/K — постоянная Больцмана). Учет эффекта Доплера для движущегося атома приводит к замене $\Omega \rightarrow \Omega - kv$, где $k = (\omega' - \omega)/c$. Среднее значение резонанса (9) по скоростям равно

$$\langle W(0 \rightarrow 2) \rangle = \frac{W\Gamma}{\sqrt{\pi}v_D} \int_{-\infty}^{\infty} dv \frac{G}{(\Omega - kv)^2 + G^2} \times \exp(-v^2/v_D^2).$$

Сделав замену $x = kv$, получим

$$\langle W(0 \rightarrow 2) \rangle = A \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dx \frac{G}{(\Omega - x)^2 + G^2} \exp(-x^2/\omega_D^2),$$

$$A = \frac{\sqrt{\pi}a_{10}a_{12}\Gamma}{\omega_D} \gamma_1, \quad (10)$$

где $\omega_D = kv_D$ — доплеровская ширина. Так как $\omega_D \gg G$, то функция $\exp(-x^2/\omega_D^2)$ более плавная, чем $1/(\Omega - x)^2 + G^2$, и ее можно вынести за знак интеграла в точке $x = \Omega$. Выполнив интегрирование, получим

$$\langle W(0 \rightarrow 2) \rangle = A \exp(-\Omega^2/\omega_D^2).$$

Так как ω' и ω близки к частотам соответствующих переходов, то $\omega' - \omega = \omega_{02}$. Поэтому $\omega_D = \omega_{02}v_D/c$.

Численные оценки

Точность, с которой можно осуществить настройку на центр резонанса, является стабильностью стандарта. Эта настройка в экспериментах обычно производится с погрешностью $10^{-2}-10^{-3}$ от ширины резонанса.

В нашем случае ВКР-резонанс имеет доплеровскую ширину 1 MHz. Настройка на его центр с погрешностью 10^{-2} дает 10 kHz. Эту величину мы будем считать стабильностью стандарта. Сдвиги резонанса из-за влияния различных факторов не должны ее превышать.

Амплитуда резонанса (10) определяется параметрами насыщения a_{10} и a_{12} . Параметр насыщения a_{10} пропорционален интенсивности поля I , а поэтому можно записать

$$a_{10} = I/I_{10}, \quad (11)$$

где I_{10} — интенсивность насыщения на переходе $1 \rightarrow 0$. Отметим, что в литературе по охлаждению атомов гелия в состоянии 2^3S параметр насыщения обычно равен $2a_{10}$. Соответственно интенсивность насыщения оказывается в два раза меньше, чем I_{10} . В работе [4] она равна $167 \mu\text{W}/\text{cm}^2$, а поэтому мы примем $I_{10} = 334 \mu\text{W}/\text{cm}^2$. В нашем случае параметр a_{10} ограничен только условием (4), а поэтому для оценок мы возьмем $a_{10} = 0.5$.

На параметре a_{12} остановимся более подробно. Согласно (2), (10) имеем

$$a_{12} = \frac{d_{12}^2 E'^2}{\Gamma^2 \hbar^2}.$$

В нашем случае уровни 1 и 2 являются состояниями P и S . Радиационная вероятность перехода $1 \rightarrow 2$ дается известной формулой:

$$\gamma_{12} = \frac{4\omega_{12}^3 d_{12}^2}{3\hbar c^3}, \quad \omega_{12} = 2\pi c/\lambda_{12}.$$

Отсюда имеем

$$d_{12}^2 = \frac{3\hbar\lambda_{12}^3 \gamma_{12}}{4(2\pi)^3}.$$

Учитывая, что $E'^2 = 2\pi I'/c$ (I' — интенсивность поля E'), получим

$$a_{12} = I'/I_{12}, \quad (12)$$

$$I_{12} = \frac{4\pi^2 \hbar c \gamma_{10}^2}{3\lambda_{12}^3 \gamma_{12}},$$

где I_{12} — интенсивность насыщения на переходе $1 \rightarrow 2$. Напомним, что $\hbar = 10^{-27}$ erg/s, $c = 3 \cdot 10^{10}$ cm/s, $1 \text{ erg/s} = 10^{-7} \text{ W}$. Подставив $\lambda_{12} = 59.1 \cdot 10^{-7}$ cm, $\gamma_{12} = 177 \text{ s}^{-1}$, $\gamma_{10} = 10^7 \text{ s}^{-1}$, получим

$$I_{12} = 1.15 \cdot 10^8 \text{ mW}/\text{cm}^2.$$

Параметр a_{12} (12) пропорционален интенсивности излучения I' на длине волны 59.1 nm. Согласно экспериментам [3], возьмем $I' = 2 \text{ mW}/\text{cm}^2$, а поэтому $a_{12} = 2 \cdot 10^{-8}$. Подставив эти данные в (10), получим $A = 0.14 \text{ s}^{-1}$.

Дадим грубую оценку точности регистрации резонанса. Количество атомов, которые за время измерения t окажутся в основном состоянии 2, равно $N_2 = tAN_0$, где N_0 — число атомов в начальном состоянии 0. Мы положим $t = 0.1 \text{ s}$. За это время атомы в состоянии 2

пролетают расстояние $v_D t = 0.65$ см и при размере детектирующей системы порядка 1 см будут зарегистрированы. При $N_0 = 10^6$ получим $N_2 = 10^4$. Флуктуацию атомов при детектировании оценим как $\sqrt{N_2}$, а отношение сигнал/шум — как $N_2/\sqrt{N_2} = 10^2$. Это позволяет при ширине резонанса 1 МГц зафиксировать его центр на фоне флуктуаций с погрешностью 10 кГц.

Полевое уширение и сдвиг

Влияние интенсивности полей на сдвиг ВКР-резонанса является основным фактором, определяющим точность стандарта частоты на запрещенном переходе $0 \rightarrow 2$. Чтобы найти величину этого сдвига, необходимо решать уравнения (6) с более высокой точностью, чем при вычислении ВКР-резонанса (7). При этом можно не учитывать однофотонные процессы, связанные с созданием заселенности на уровне 1 и положить заселенность ρ_{11} равной нулю:

$$(\Gamma + i\Omega_{10})r_{10}^* = U^* + V^*r_{02},$$

$$(\Gamma - i\Omega_{12})r_{12} = Ur_{02},$$

$$(G - i\Omega)r_{02} = -Vr_{10}^* - U^*r_{12}.$$

Подставим r_{10}^* и r_{12} в третье уравнение и учтем, что в нашем случае $|V|^2 \ll |U|^2$. При $\Omega_{12} \ll \Gamma$ имеем

$$(G + \Delta G - i(\Omega - \Delta\Omega))r_{02} = -VU^*/\Gamma.$$

Здесь $\Delta G = a_{10}\Gamma$ — полевое уширение ВКР-резонанса, $\Delta\Omega = a_{10}\Omega_{12}$ — полевой сдвиг. Напомним, что $\Omega_{12} = \omega' - \omega_{12}$ — отстройка частоты ω' от частоты перехода $2^2P_1 - 1^1S$. При $\Omega_{12} = 10^{-2}$ и $a_{10} = 0.5$ получим $\Delta\Omega = 4$ кГц.

Заключение

Мотивация этой работы связана с возможностями реализации стандарта частоты в области частот вакуумного ультрафиолетового излучения, которые открылись с созданием достаточно мощных источников с высокой пространственной и временной когерентностью. Трудно сказать, каким будет такой стандарт. Однако его необходимость актуальна уже сейчас. С помощью синхротронного излучения в этой области частот широко ведутся исследования в химии и биохимии. Вычисления этой работы связаны с возможностью создания такого стандарта [2]. Кинетические уравнения, описывающие ВКР-резонанс на переходе $2^3S - 1^1S$ атома гелия (62.6 нм), приведены к достаточно простому виду. Они могут быть расширены для анализа различных физических и технических факторов в конкретных экспериментальных схемах, для учета конечного размера и кривизны светового пучка, модуляции частоты, влияния магнитного поля и других.

Приложение. Спектроскопические данные

Частоты переходов:

$$\omega_{10} = 2\pi \cdot 277 \text{ THz (1083 nm)},$$

$$\omega_{12} = 2\pi \cdot 5069 \text{ THz (59.1 nm)},$$

$$\omega_{02} = 2\pi \cdot 4792 \text{ THz (62.6 nm)}.$$

Радиационные вероятности переходов (коэффициенты Эйнштейна):

$$\gamma_{10} = 10^7 \text{ s}^{-1},$$

$$\gamma_{12} = 177 \text{ s}^{-1}.$$

Радиационные ширины переходов Γ_{10} и Γ_{12} равны $\Gamma = \gamma_{10}/2$:

$$\Gamma = 2\pi \cdot 0.8 \text{ MHz}.$$

При $T = 1 \mu\text{K}$ тепловая скорость $v_D = 6.5$ см/с, а доплеровская ширина

$$\omega_D = 2\pi \cdot 1.1 \text{ MHz}.$$

Финансирование работы

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 20-02-00068.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] Бакланов Е.В., Тайченачев А.В. // Опт. и спектр. 2018. Т. 124. С. 291.
- [2] Бакланов Е.В., Тайченачев А.В. // Опт. и спектр. 2020. Т. 128. С. 1592.
- [3] Porat G., Hey C.M., Schoun S.B., Benko C., Dörre N., Corwin K.L., Ye J. // Nature Photonics. 2018. V. 12. P. 387.
- [4] Pereira Dos Santos F., Léonard J., Wang J., Barrelet C.J., Perales F., Rasel E., Umikrishnan C.S., Leduc M., Cohen-Tannoudji C. // Eur. Phys. J. D. 2002. V. 19. P. 103.