

Спектроскопия интеркомбинационного перехода $^1S_0 - ^3P_1$ магния в люминесцентной ячейке с комнатной температурой стенок

В.И.Барауля, А.Э.Бонерт, А.Н.Гончаров, А.М.Шилов

Представлены результаты экспериментальных исследований регистрации поглощения на интеркомбинационном переходе $^1S_0 - ^3P_1$ атомов магния. Пространственное пленение возбужденных атомов магния в зоне регистрации и временное разнесение возбуждения и регистрации люминесценции позволили впервые зарегистрировать резонанс насыщенного поглощения тепловых атомов магния в компактной поглощающей ячейке низкого давления с комнатной температурой стенок.

Ключевые слова: интеркомбинационный переход магния, спектроскопия сверхвысокого разрешения, оптический стандарт частоты.

1. Введение

Тепловые поглощающие ячейки широко применяются в спектроскопии для получения линий поглощения химических элементов и соединений в газообразном состоянии; кроме того, при использовании методов внутридоплеровской лазерной спектроскопии, они позволяют достигать высокого спектрального разрешения, ограниченного столкновительным и пролетным уширениями. Работы по стандартам частоты оптического диапазона на интеркомбинационных переходах атомов щелочноземельных элементов Mg [1, 2] и Ca [3, 4] стимулировали исследования по созданию тепловых ячеек данных атомов.

Принципиальными особенностями разрабатываемых оптических стандартов частоты нового поколения на основе захваченных в магнитооптические и оптические ловушки холодных атомов являются малая ширина ($\Delta\nu \sim 1 - 100$ Гц) «часового» перехода, по которому проводится стабилизация частоты лазерного излучения, и дискретность процесса регистрации, связанная с чередованием циклов захвата, охлаждения и измерения. При этом частота цикла измерения составляет примерно десятки герц. Поэтому стабильность частоты за короткие (менее 0.1–1 с) времена усреднения должна обеспечиваться предварительной стабилизацией частоты лазерного излучения, например с использованием высокодобротных интерферометров Фабри–Перо. Такая предварительная стабилизация частоты по полюсу пропускания высокодобротного, изолированного от внешних акустических и вибрационных возмущений интерферометра может обеспечивать узкую линию излучения вплоть до долей герца, однако из-за неконтролируемого изменения температуры и старения материала базы интерферомет-

ра трудно обеспечить дрейф частоты излучения менее 1–10 Гц/с. Для уменьшения этого дрейфа частоты и для проведения спектроскопических исследований холодных атомов, захваченных в ловушки, представляет интерес дополнительная предварительная стабилизация частоты излучения с использованием естественного репера частоты – резонансов насыщенного поглощения на «часовом» переходе во внешней поглощающей ячейке. Такая стабилизация также представляет интерес для создания возимых вторичных стандартов частоты на основе интеркомбинационных переходов атомов магния и кальция.

Принцип действия известных к настоящему времени магниевых и кальциевых ячеек для интеркомбинационного перехода основан на регистрации резонансного поглощения мощности проходящего пучка. С учетом параметров интеркомбинационных переходов и физико-химических свойств паров щелочно-земельных элементов такой подход приводит к тому, что существующие ячейки имеют большие размеры, требуют высокотемпературного нагрева, непрерывной вакуумной откачки и сложной защиты окон.

В данной работе исследована возможность люминесцентной регистрации резонансов насыщенного поглощения на слабом двухуровневом переходе при малых оптических плотностях с целью создания компактной оптической ячейки для репера частоты перехода $^1S_0 - ^3P_1$ магния.

2. Особенности поглощающих ячеек на интеркомбинационном переходе

Для получения в ячейке оптической плотности порядка единицы на слабых интеркомбинационных переходах Mg и Ca при длине ячейки 1–2 м требуется давление паров 10–30 мТор. Для магния такое давление паров реализуется при температуре 400–500 °С, поэтому стенки и окна ячейки необходимо нагревать до более высокой температуры. Однако пары атомов магния даже при умеренной температуре, начиная с ~250 °С, активно взаимодействуют с материалом вакуумных окон, изготовленных из оксидов (стекло, кварц, сапфир), что при-

В.И.Барауля, А.Э.Бонерт, А.Н.Гончаров, А.М.Шилов. Институт лазерной физики СО РАН, Россия, 630090 Новосибирск, просп. акад. Лаврентьева, 13; e-mail: bonert@laser.nsc.ru

Поступила в редакцию 25 декабря 2006 г., после доработки – 26 июня 2007 г.

водит к резкому уменьшению их прозрачности. Применение окон из фторидов (MgF_2 , CaF_2 , BaF_2) также затруднено, так как технологии спая таких окон с металлами ограничивают их использование при температурах выше $200 - 250^\circ\text{C}$. Защита окон ячеек от деградации может осуществляться с помощью буферного газа [5], однако для этого его давление должно находиться в диапазоне $1 - 10$ Тор, что приводит к существенному уширению резонансов насыщенного поглощения. Таким образом, применение традиционных конструкций тепловых ячеек щелочно-земельных элементов для регистрации резонансов насыщенного поглощения на слабом интеркомбинационном переходе затруднено.

В работах [6–8] предложены и экспериментально реализованы конструкции откачных ячеек для атомов кальция и магния с использованием двойных окон и внутренних зеркал. К сожалению, эти ячейки громоздки и требуют откачки; как следствие, их использование в компактных лазерных системах затруднено.

В наших предыдущих исследованиях было установлено, что при комнатной температуре не наблюдается взаимодействия атомов магния с материалом окон, приводящего к деградации последних. Более того, коэффициент прилипания атомов магния к окнам при давлении пара $10^{-5} - 10^{-6}$ Тор оказывается настолько малым, что прозрачность окон не ухудшается в течение сотен часов работы. Это позволило создать компактную отпаянную поглощающую магниевую ячейку для резонансного перехода магния $^1\text{S}_0 - ^1\text{P}_1$ с внутренним источником атомов магния и комнатной температурой стенок [2]. Однако непосредственное использование данной ячейки на переходе $^1\text{S}_0 - ^3\text{P}_1$ не представляется возможным из-за малости коэффициента поглощения $\alpha = \sigma nL \approx 10^{-6}$, где $\sigma = 1.8 \times 10^{-17} \text{ см}^2$ – эффективное сечение поглощения для перехода $^1\text{S}_0 - ^3\text{P}_1$; $n \approx 10^{10} \text{ см}^{-3}$ – концентрация атомов магния в ячейке; $L = 10 \text{ см}$ – длина ячейки.

При прямом детектировании резонансов насыщенного поглощения в мощности пробной встречной волны минимальное обнаружимое поглощение, ограниченное дробовым шумом, $\alpha_{\min} = \sqrt{2e\Delta f/SP}$, где e – заряд электрона; Δf – ширина полосы регистрации; S – чувствительность приемника; P – мощность излучения пробной волны. На длине волны $\lambda = 457 \text{ нм}$ интеркомбинационного перехода магния $^1\text{S}_0 - ^3\text{P}_1$ при максимально возможном значении $S = 0.37 \text{ А/Вт}$ (квантовый выход фотоприемника $\eta = 1$), при $P = 1 \text{ мВт}$, $\Delta f = 1 \text{ Гц}$ и при отношении сигнал/шум, равном единице, минимально регистрируемое поглощение $\alpha_{\min} = 3 \times 10^{-8}$. Контраст резонансов насыщенного поглощения при параметре насыщения и оптической плотности ячейки, равных примерно единице, составляет ~ 0.1 . Таким образом, возможность прямой регистрации нелинейных резонансов находится на пределе чувствительности прямого детектирования даже в идеальном случае дробовых шумов.

3. Возможность реализации магниевой люминесцентной ячейки

Отношение сигнал/шум может быть существенно увеличено при регистрации поглощения по сигналу люминесценции, так как в этом случае учитывается только сигнал, пропорциональный поглощенной в ячейке мощности, без существенной добавки сигнала от непоглощенной. По сравнению с методом прямой регистрации уве-

личение отношения сигнал/шум в случае дробового шума составит $(K_r/\alpha)^{1/2}$, где K_r – коэффициент регистрации, равный отношению числа зарегистрированных фотонов к числу возбужденных атомов. Для резонансных переходов с малым временем жизни верхнего уровня $\tau (\tau \leq \tau_n)$, где τ_n – время пролета атомов через лазерный пучок) диаметр D области люминесценции порядка размера пробного лазерного пучка, и в этом случае $K_r \approx \Omega \eta$ (где Ω – телесный угол). Для перехода $^1\text{S}_0 - ^3\text{P}_1$ магния диаметр области люминесценции в ячейке низкого давления много больше диаметра области возбуждения, поскольку $\tau = 5 \text{ мс}$ и $D = 2\langle v \rangle \tau = 8 \text{ м}$, где $\langle v \rangle = 800 \text{ м/с}$ – среднетепловая скорость атомов магния. С учетом того что в центре линии поглощения возбуждаются атомы, которые пересекают лазерный пучок под углом $\theta \sim 90^\circ$, область люминесценции имеет цилиндрическую форму с диаметром D , а основной вклад в сигнал дает внутренняя область с диаметром, примерно равным расстоянию от фотоприемника до лазерного пучка. Тогда $K_r \approx (d/D)^2 \times \eta$, где d – диаметр фотокатода. Для типичных значений $d = 5 \text{ см}$, $\eta = 0.1$ значение $K_r \approx 10^{-6} \approx \alpha$. Таким образом, непосредственно улучшить отношение сигнал/шум в магниевой люминесцентной ячейке в сравнении с поглощающей не представляется возможным.

Существенным фактором, также ограничивающим чувствительность регистрации люминесценции, является то, что возбуждение и люминесценция в нашем случае происходят по двухуровневой схеме, то есть на одной и той же длине волны. Поэтому светофильтры не позволяют убрать паразитное излучение, попадающее на фотоприемник в результате рассеяния пробного лазерного пучка на окнах ячейки. В работе [9] отмечается, что рассеяние на окнах является наиболее серьезным ограничением для чувствительности люминесцентной спектроскопии на запрещенном двухуровневом переходе. Уровень паразитного сигнала определяется коэффициентом рассеяния на окнах, степенью черноты экранов и геометрическим фактором. Оценки и эксперимент показали, что в нашем случае при ограниченном размере ячейки достаточно трудно добиться отношения полезного сигнала к паразитному на уровне 10^{-3} .

Для существенного изменения соотношения полезного и паразитного сигналов в настоящей работе предлагается разнести во времени процессы возбуждения и регистрации люминесценции и ограничить скорость разлета возбужденных атомов в области сбора люминесценции столкновениями с атомами инертного газа. Такие столкновения, как показано в работе [10], не оказывают существенного влияния на время излучательной релаксации уровня $^3\text{P}_1$. При достаточной плотности атомов инертного газа возбужденные атомы магния могут быть локализованы в области сбора люминесценции на время жизни уровня $^3\text{P}_1$. Коэффициент диффузии атомов магния в состоянии $^3\text{P}_1$ в аргоне нам неизвестен, поэтому примем его равным коэффициенту диффузии D_{dif} атомов аргона в аргоне. Из данных [11] при комнатной температуре $D_{\text{dif}} \approx 10^2/p \text{ см}^2/\text{с}$, где p – давление аргона в торрах. Диффузионная длина $(D_{\text{dif}}\tau)^{1/2}$ при давлении $p \sim 10^{-2}$ Тор составит 7 см , что сравнимо с размером области сбора люминесценции в компактной ячейке размером $L \sim 10 \text{ см}$.

Нежелательное уширение перехода аргоном, конечно, будет иметь место. Однако оно не должно существенно ограничить практическую ценность люминесцентной

ячейки. По данным работы [6] уширение собственным давлением магния составляет 12 МГц/Тор, поэтому уширение в предлагаемой ячейке при давлении аргона 10^{-2} Тор составит, вероятно, около 100 кГц.

4. Схема эксперимента

Схема эксперимента показана на рис.1. В качестве источника лазерного излучения на $\lambda = 457$ нм использовалась лазерная $Ti:Al_2O_3/KNbO_3$ -система [12] с максимальной выходной мощностью 200 мВт и шириной линии менее 10 кГц. Люминесцентная магниевая ячейка представляла собой вакуумную камеру из нержавеющей стали диаметром 120 мм с просветленными на $\lambda = 457$ нм кварцевыми окнами. В качестве фотоприемника использовался фотоумножитель ФЭУ-97, установленный в одном корпусе с согласующим преусилителем. Постоянная времени фотоприемника для малого светового сигнала составляла ~ 100 нс. Для уменьшения паразитного светового потока, попадающего на фотоприемник из-за рассеяния лазерного пучка на окнах и стенках камеры, внутри вакуумной камеры устанавливались конические диафрагмы. Паразитный сигнал вызывал насыщение фотоприемника, но не оказывал необратимых последствий; время восстановления чувствительности детектора после перекрытия лазерного пучка τ_{rel} не превышало 30 мкс.

Для создания облака атомов магния использовалась прямонакальная тонкостенная капсула из нержавеющей стали с отверстием ~ 0.3 мм, наполненная металлическим магнием. Вакуумная камера откачивалась до давления менее 10^{-5} Тор, буферный газ аргон подавался при непрерывной откачке. Усредненная по длине ячейки плотность атомов магния в камере измерялась по поглощению лазерного излучения на резонансной линии 285 нм и поддерживалась на уровне $\sim 4 \times 10^{10}$ см $^{-3}$ во всем диапазоне давлений аргона ($1 \times 10^{-4} - 5 \times 10^{-2}$ Тор).

Детектирование сигнала люминесценции осуществлялось в режиме временной селекции; соответствующая диаграмма показана на рис.2. Цифрой 1 обозначен меандр пробных лазерных импульсов, полученных с помощью дискового прерывателя, который был установлен в перетяжке образованного двумя линзами телескопа (см. рис.1). Длительность фронтов лазерных импульсов при частоте прерывания 2 кГц была равна 2 мкс. Генератор

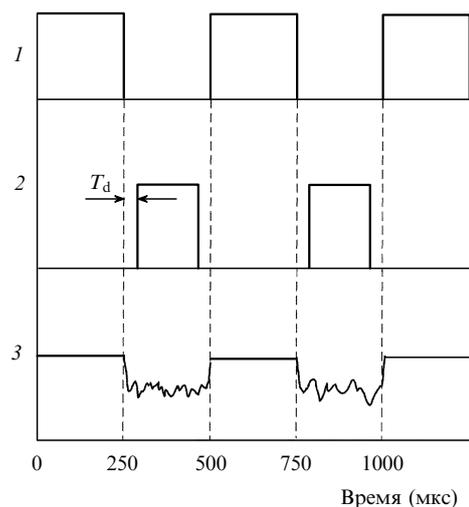


Рис.2. Временная диаграмма селекции сигнала люминесценции (см. рис.1).

ром задержанных импульсов формировались импульсы строба 2. Задержка T_d выбиралась из условия $T_d > \tau_{rel}$ ($\tau_{rel} \approx 30$ мкс). Сигнал 3 с фотоприемника подавался на схему выборки и хранения, управляемую сигналом строба 2. Со схемы выборки и хранения сигнал подавался далее на АЦП (при регистрации линейного поглощения) или на синхронный детектор (при записи резонансов насыщенного поглощения). Для контроля длины волны лазерного излучения использовался λ -метр, что позволяло предварительно устанавливать частоту лазерной системы на центр доплеровски уширенной линии поглощения с точностью порядка 50 МГц.

Возможность выделения установкой сигнала люминесценции в центре линии поглощения продемонстрирована на рис.3, на котором показана временная зависимость сигнала на выходе схемы выборки и хранения при включении магниевого источника и последующем напуске аргона. В начале записи на фотоприемник попадает только рассеянное на окнах камеры лазерное излучение, но вследствие временной выборки оно не вносит заметного вклада в выходной сигнал. Момент времени t_1 соответствует подаче напряжения на магниевый источник, после чего наблюдается увеличение сигнала, связанное с тепловым излучением источника. Момент времени t_2

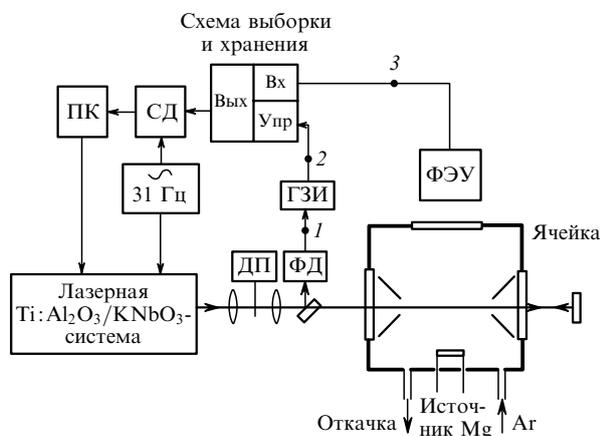


Рис.1. Схема эксперимента:

ДП – дисковый прерыватель; ФД – фотодиод; ГЗИ – генератор задержанных импульсов; СД – синхронный детектор; ФЭУ – фотоумножитель с согласующим преусилителем; ПК – персональный компьютер; 1 – выход ФД; 2 – выход ГЗИ; 3 – выход ФЭУ.

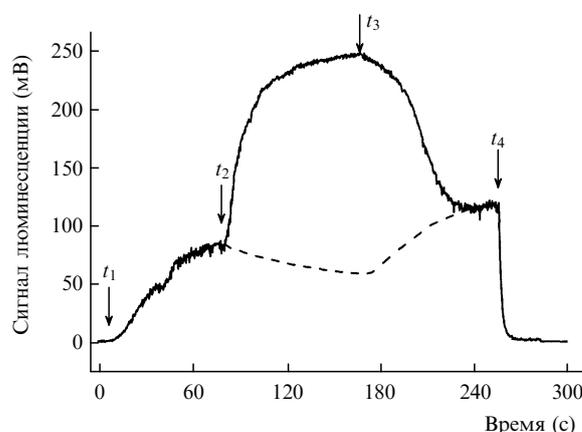


Рис.3. Временная зависимость сигнала люминесценции в центре линии поглощения. Стрелками обозначены моменты включения (t_1) и выключения (t_4) магниевого источника, а также начала (t_2) и окончания (t_3) напуска аргона; штриховой линией показан сигнал свечения магниевого источника.

соответствует началу напуска аргона в камеру, при этом давление аргона плавно нарастает до 5×10^{-2} Тор к моменту времени t_3 и наблюдается рост сигнала люминесценции с последующим его насыщением. В момент t_3 натекатель закрывается, и с уменьшением давления аргона наблюдается уменьшение сигнала. В момент t_4 выключается магниевый источник. Максимальный уровень сигнала люминесценции составлял примерно 10^{-3} от сигнала, вызываемого рассеянным лазерным излучением на окнах камеры. В контрольном эксперименте, при отстройке частоты на 10 ГГц от центра линии поглощения, при напуске аргона наблюдалось только уменьшение свечения магниевых источников, связанное с его охлаждением аргоном (на рис.3 изображено штриховой линией). После установки перед фотоприемником светофильтра СЗС-22 сигнал от теплового свечения магниевых источников полностью подавлялся, а сигнал люминесценции незначительно уменьшался (примерно на 10 %).

Уровень люминесценции в начале интервалов времени, соответствующих закрытому лазерному пучку, оставался неизменным при понижении частоты прерывания и уменьшался со временем в пределах этих интервалов. Время спада оказалось близким к времени жизни τ уровня 3P_1 , что свидетельствует о диффузионном характере движения возбужденных атомов магния и отсутствии заметного столкновительного тушения. Таким образом, увеличение сигнала люминесценции можно оценить, пользуясь соотношением $(\langle v \rangle \tau / R)^2 \approx 10^4$, где $R \approx L/2 = 5$ см – радиус зоны регистрации.

Регистрация резонанса насыщенного поглощения проводилась в схеме модулированных по частоте встречных волн с синхронным детектированием сигнала люминесценции. Мощность лазерного пучка составляла ~ 40 мВт при радиусе пучка $w_0 \sim 0.45$ мм. Частота модуляции (31 Гц) была меньше как частоты прерывания лазерного пучка, так и величины, обратной времени спада сигнала люминесценции. Специальных мер для разрешения зеемановских компонент перехода $^1S_0 - ^3P_1$ не предпринималось.

Запись резонанса насыщенного поглощения, сделанная при амплитуде модуляции 2.9 МГц, показана на рис. 4. Для аппроксимации формы резонанса с учетом его уширения пробной модуляцией использовались результаты [13] (показаны на рис.4 жирной линией), которые позволяют сделать вывод, что однородная ширина резонанса равна 1.3 МГц. Это заметно больше времяпролетной ширины $(\langle v \rangle / 2w_0 = 0.67$ МГц). По-видимому, резонанс является результатом наложения неразрешенных по частоте центральной π -компоненты и боковых σ^\pm -компонент Зеемана. Для перехода $^1S_0 - ^3P_1$ частота π -компоненты не зависит от величины магнитного поля, а сдвиг частот σ^\pm -компонент равен 2.1 МГц/Гс, что с учетом магнитного поля на установке, составляющего порядка 0.5 Гс, может объяснить отмеченное выше расхождение. Для устранения влияния магнитной структуры на ширину резонанса предполагается наложением постоянного магнитного поля напряженностью ~ 10 Гс разности σ^\pm -компоненты на величину, много большую ширины резонанса, и регистрировать только π -компоненту. Остаточное уширение резонанса будет определяться в основном пролетным и столкновительными эффектами, вклад которых можно оценить по зависимости уширения резонанса от давления аргона.

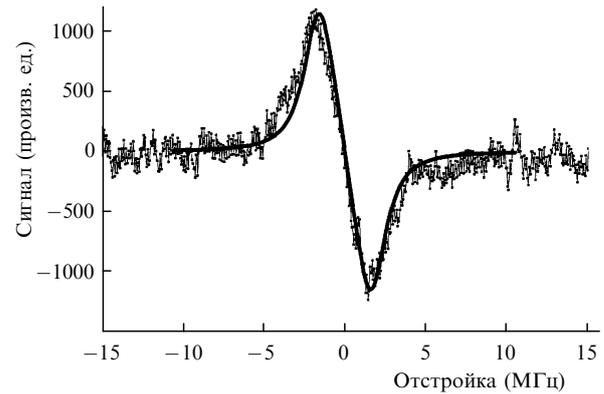


Рис.4. Форма линии резонанса насыщенного поглощения при постоянной интеграции синхронного детектора $\tau = 0.1$ с; жирной линией показана первая производная лоренцевского контура шириной 1.3 МГц при амплитуде модуляции 2.9 МГц.

5. Заключение

В работе продемонстрирована возможность регистрации резонансов насыщенного поглощения на переходе $^1S_0 - ^3P_1$ магния в компактной люминесцентной ячейке с комнатной температурой стенок. Паразитный сигнал рассеяния пробного лазерного пучка на окнах ячейки полностью исключен благодаря применению метода временной выборки. Добавка аргона увеличивает сигнал люминесценции в 10^4 раз за счет пространственной локализации возбужденных атомов магния в зоне регистрации в течение времени жизни уровня 3P_1 . Оценки и эксперимент показали, что достижимое спектральное разрешение в предложенной ячейке не хуже, чем в известных ранее. Планируется использование полученных результатов для стабилизации частоты лазерной системы на $\lambda = 457$ нм при проведении экспериментов по прецизионной спектроскопии холодных атомов магния в магнитооптической ловушке. Результаты работы могут быть использованы для экспериментального исследования эффекта столкновительно-индуцированного излучения атомов магния в состоянии 3P_1 в инертных газах.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (гранты № 05-02-16597, 05-02-19645) и Президиума СО РАН.

1. Keupp J., Douillet A., Mehlstaubler T.E., Rehbein N., Rasel E.M., Ertmer W. *Eur. Phys. J. D*, **36**, 289 (2005).
2. Bagayev S.N., Baraulia V.I., Bonert A.E., Goncharov A.N., Seidaliev M.R., Tychkov A.S. *Laser Phys.*, **11**, 1178 (2001).
3. Wilpers G., Oates C.W., Hollberg L. *Appl. Phys. B*, **85**, 31 (2006).
4. Degenhardt C., Stoehr H., Lisdat C., Wilpers C., Schnatz H., Lipphardt B., Nazarova T., Pottier P.-E., Sterr U., Helmcke J., Riehle F. *Phys. Rev. A*, **72**, 062111 (2005).
5. Beverini N., Maccioni E., Sorrentino F., Baraulia V., Coca M. *Eur. Phys. J. D*, **23**, 223 (2003).
6. Bagayev S.N., Baraulia V.I., Bonert A.E., Goncharov A.N., Seidaliev M.R. *Opt. Commun.*, **196**, 201 (2001).
7. Huang M.-S., Mao-Hong Lu M.-H., Jow-Tsong Shy J.-T. *Rev. Sci. Instrum.*, **73**, 3747 (2002).
8. Erickson C.J., Neyenhuis B., Durfee D.S. *Rev. Sci. Instrum.*, **76**, 123110 (2005).
9. Ye J., Ma L.-S., Hall J.L. *J. Opt. Soc. Am. B*, **15**, 6 (1998).
10. Furcinitti P.S., Wright J.J., Balling L.C. *Phys. Rev. A*, **12**, 1123 (1974).
11. Григорьев И.С., Мейлихов Е.З. (ред.) *Физические величины (Справочник)* (М.: Энергоатомиздат, 1991).
12. Багаев С.Н., Барауля В.И., Бонерт А.Э., Гончаров А.Н., Сейдалиев М.Р., Фарносов С.А. *Квантовая электроника*, **31**, 495 (2001).
13. Axner O., Kluczynski P., Lindberg A.M. *J. Quant. Spectr. Rad. Transfer*, **68**, 299 (2001).