

# Абсолютное измерение частот эмиссионных переходов молекулярного иода в области 982–985 нм

Ю.А.Матюгин, С.М.Игнатович, С.А.Кузнецов, М.И.Нестеренко, М.В.Охапкин, В.С.Пивцов, М.Н.Скворцов, С.Н.Багаев

*Сообщаются результаты высокоточных измерений частот отдельных компонент сверхтонкой структуры (СТС) эмиссионных переходов системы В–Х молекул  $^{127}\text{I}_2$  в области 982–985 нм. Для разрешения СТС эмиссионных линий использовался метод трехуровневой лазерной спектроскопии. Возбуждающим излучением служила вторая гармоника непрерывного Nd:YAG-лазера, а зондирующее излучение в диапазоне 968–998 нм генерировалось диодным лазером с внешним резонатором. Частота излучения Nd:YAG-лазера привязывалась к компоненте СТС абсорбционного перехода, а излучение зондирующего лазера – к компоненте эмиссионного перехода. При условии привязки обеих частот к компонентам СТС, имеющим общий верхний уровень, частота излучения диодного лазера точно равна частоте эмиссионного перехода. Частота излучения стабилизированного таким образом диодного лазера измерялась с помощью фемтосекундного синтезатора оптических частот на базе титан-сапфирового лазера. Представлены результаты абсолютных измерений частот 20 компонент СТС, принадлежащих шести колебательно-вращательным переходам В–Х-системы иода ( $R56(32-48)_a$ ,  $P58(32-48)_a$ ,  $P85(33-48)_a$ ,  $R87(33-48)_a$ ,  $R88(33-48)_a$ ) и всех 15 компонент линии  $R86(33-48)$ . Относительная погрешность измерений составляет  $7 \times 10^{-10}$  и определяется нестабильностью частоты излучения диодного лазера.*

**Ключевые слова:** спектроскопия иода, трехуровневая лазерная спектроскопия, Nd:YAG-лазер, диодный лазер с внешним резонатором, фемтосекундный синтезатор оптических частот, измерение оптических частот.

## 1. Введение

Хорошо известно, что компоненты сверхтонкой структуры (СТС) линий поглощения молекулярного иода, свободные от доплеровского уширения, являются прекрасными реперами для стабилизации частоты излучения лазеров в диапазоне 500–650 нм. При нагревании паров иода до температуры 600–700 °С диапазон может быть расширен до 900 нм [1, 2]. В диапазоне 500–900 нм можно получить  $\sim 10^6$  частотных реперов, имеющих ширину не более 1 МГц и обеспечивающих относительную нестабильность частоты до  $10^{-14}$  и воспроизводимостью не хуже  $10^{-12}$ .

В 1983 г. были выполнены первые абсолютные измерения частот двух переходов иода с длинами волн 576 нм ( $^{127}\text{I}_2$  17–1 P(62)) и 633 нм ( $^{127}\text{I}_2$  11–5 R(127g)) [3, 4]. Точность измерений составляла  $\sim 10^{-10}$ . В дальнейшем высокоточные измерения частот переходов иода проводились систематически. Измерялись как абсолютные значения частот переходов отдельных компонент СТС, так и частотные интервалы между ними. Опубликовано большое число работ с результатами таких измерений. Детальная библиография по данной теме (до 2007 г.) приведена в [5–7].

Целью проводимых исследований было повышение точности определения спектроскопических параметров

молекулярного иода для полосы В–Х. В свою очередь уточненные параметры позволяют вычислять с высокой точностью частоты любых переходов этой полосы. В результате спектр поглощения иода может выполнять функцию частотной шкалы, с помощью которой можно калибровать частоту лазеров с точностью не хуже  $10^{-9}$ . Высокоточные экспериментальные данные представляют большой интерес и для изучения различных тонких физических процессов внутримолекулярных взаимодействий как в молекуле иода, так и в других двухатомных молекулах.

В работах [5, 6] была сделана первая попытка систематизировать результаты всех измерений, выполненных к тому времени, и на их основе рассчитать уточненные спектроскопические параметры молекулы иода хотя бы для ограниченной области спектра. Для определения спектроскопических параметров использовались две разные модели. Одна модель позволяла получать параметры, обеспечивающие высокую точность определения частоты перехода, но лишь в ограниченной области, для которой имеется достаточное количество высокоточных экспериментальных данных. Так, для диапазона 775–815 нм, в котором измерено большое число частот переходов с погрешностью, значительно меньшей 80 кГц, найденные параметры обеспечивали вычисление частоты переходов с погрешностью не более 200 кГц. Во второй модели использовалась вся совокупность имеющихся экспериментальных данных. На их основе были построены уточненные потенциальные кривые для X- и В- состояний и определены спектроскопические параметры, позволяющие вычислять энергии колебательно-вращательных уровней для этих состояний. Данная модель позволяет находить частоты переходов хотя и с меньшей точностью, но зато в значительно более широком диапазоне. Было показано,

Ю.А.Матюгин, С.М.Игнатович, С.А.Кузнецов, М.И.Нестеренко, М.В.Охапкин, В.С.Пивцов, М.Н.Скворцов, С.Н.Багаев. Институт лазерной физики СО РАН, Россия, 630090 Новосибирск, просп. Акад. Лаврентьева, 13/3; e-mail: matyugin@laser.nsc.ru, kuznet@laser.nsc.ru, багаев@iph.nsk.su

Поступила в редакцию 28 ноября 2011 г.

что полученные параметры обеспечивают точность определения частоты на уровне  $\pm 3$  МГц для диапазона 526–667 нм. Результаты измерений, проведенных в последующие годы, послужили основой для дальнейшего совершенствования используемых моделей и получения более точных спектроскопических параметров [8–10].

Из сказанного выше следует, что для того чтобы весь спектр поглощения иода можно было использоваться в качестве частотной шкалы, необходимо выполнить высокоточные измерения для оставшихся участков спектра. Мы считаем, что такие же высокоточные измерения необходимо осуществлять и для эмиссионных переходов иода в полосе В–Х. Дело в том, что при измерении частот только абсорбционных переходов можно получить точные значения энергий колебательно-вращательных уровней главным образом для В-состояния, т. к. в формировании абсорбционного спектра участвуют только переходы, начинающиеся на самых нижних термически заселенных колебательных уровнях Х-состояния. Анализ всего массива результатов высокоточных измерений, проведенный в работе [6], показал, что в исследуемых переходах участвуют колебательные уровни В-состояния с квантовыми числами  $v' > 43$  и колебательные уровни Х-состояния с  $0 \leq v'' \leq 7$  и  $12 \leq v'' \leq 17$ . Видно, что высокоточных экспериментальных данных, необходимых для построения уточненной потенциальной кривой, для Х-состояния значительно меньше, чем для В-состояния. В основном эта потенциальная кривая построена на основании данных, полученных в цикле работ, упомянутых в [11]. Спектр люминесценции молекул иода, возбуждаемых излучением лазера, изучался в этих работах с помощью фурье-спектрометра. Регистрировались доплеровские линии люминесценции с неразрешенной сверхтонкой структурой. Точность определения частоты линий люминесценции составляла  $5 \times 10^{-8}$ . Насколько нам известно, на сегодняшний день высокоточных измерений частот отдельных компонент СТС эмиссионных переходов не проводилось.

В нашей работе [7] была показана возможность высокоточного измерения частот отдельных компонент сверхтонкой структуры эмиссионных переходов иода. Для получения свободных от доплеровского уширения эмиссионных компонент СТС использовался метод [12], основанный на резонансном взаимодействии двух лазерных полей с двумя смежными переходами, имеющими общий верхний уровень. При этом излучение одного лазера, настроенное на линию поглощения иода, переводит молекулы из основного Х-состояния в электронно-возбужденное В-состояние. Если используется одночастотное излучение, то на верхний уровень возбуждаются молекулы в очень узком интервале проекций скоростей, и возникает узкий, порядка однородной ширины линии, пик усиления. С возбужденного уровня возможны переходы на любой из 108 колебательных уровней Х-состояния. Излучение зондирующего лазера, настроенное на частоту одного из таких переходов и пространственно совмещенное с излучением возбуждающего лазера, взаимодействует с возбужденными этим лазером молекулами. В результате зондирующий лазер при перестройке регистрирует узкий пик усиления. В работе [7] продемонстрирована возможность использования такого пика в качестве частотного репера. Если частота возбуждающего поля будет настроена точно на центр доплеровского контура отдельной компоненты СТС линии поглощения, то пик на смежном

переходе также будет соответствовать центру доплеровского контура соответствующей компоненты СТС эмиссионного перехода, и, следовательно, измерив частоту лазера, стабилизированного по этой компоненте, мы измерим частоту данного перехода

В настоящей работе сообщаются результаты абсолютных измерений частот компонент СТС эмиссионных линий молекулы  $^{127}\text{I}_2$ , соответствующих полосам (32–48) и (33–48) системы В–Х. Для привязки частоты излучения лазера к компоненте СТС использовалась разработанная ранее установка, описанная в [7]. Частота излучения измерялась с помощью фемтосекундного синтезатора оптических частот.

## 2. Экспериментальная установка

Экспериментальная установка включает в себя лазерный спектрометр, обеспечивающий привязку частоты излучения диодного лазера к эмиссионному переходу молекулы  $\text{I}_2$  системы В–Х, и измерительный комплекс, обеспечивающий абсолютное измерение частоты диодного лазера. Детальное описание спектрометра приведено в работе [7]. Спектрометр (рис. 1) представляет собой комбинацию двух лазерных спектрометров – спектрометра насыщенного поглощения и трехуровневого лазерного спектрометра, в котором оптические резонансы на смежном переходе могут быть созданы в любом месте доплеровского контура. Их положение зависит от отстройки частоты излучения накачки от центральной частоты контура. Поэтому, чтобы резонансы на эмиссионном переходе были в центре доплеровского контура одной из компонент СТС, накачка должна осуществляться точно в центре доплеровского контура смежной абсорбционной компоненты СТС.

Для привязки частоты излучения накачки к центру доплеровского контура служит спектрометр насыщенного поглощения, построенный по традиционной схеме. Через ячейку с иодом проходят два встречных лазерных луча – насыщающий и пробный. Для получения сигнала ошибки используется фазовая модуляция насыщающего пучка.

Трехуровневый лазерный спектрометр в нашей схеме совмещен со спектрометром насыщенного поглощения. В ячейку с иодом, которая используется в спектрометре насыщенного поглощения, навстречу насыщающему пучку вводится второй пробный пучок на частоте зондирующего лазера. В результате взаимодействия с молекулами, возбужденными модулированным пучком накачки, частоты обоих пробных пучков оказываются промодулированными. Сигналы ошибки, получаемые после детектирования каждого из пробных пучков, используются для стабилизации частот излучения обоих лазеров – накачки и зондирующего.

Возбуждающим излучением в спектрометре служит вторая гармоника непрерывного Nd:YAG-лазера с диодной накачкой с внутривибрационным преобразованием частоты [13]. Лазер может перестраиваться в диапазоне длин волн 1064.0–1065.3 нм, при этом вторая гармоника перестраивается в диапазоне 18775–18797  $\text{см}^{-1}$ . Перестройка частоты излучения лазера в широком диапазоне осуществляется за счет изменения температуры кристалла КТР, который выполняет две функции – удвоителя частоты и фазового элемента фильтра Лيو. Температура кристалла и всего резонатора регулируется элементом Пельтье и стабилизируется с точностью 5 мК. Точная

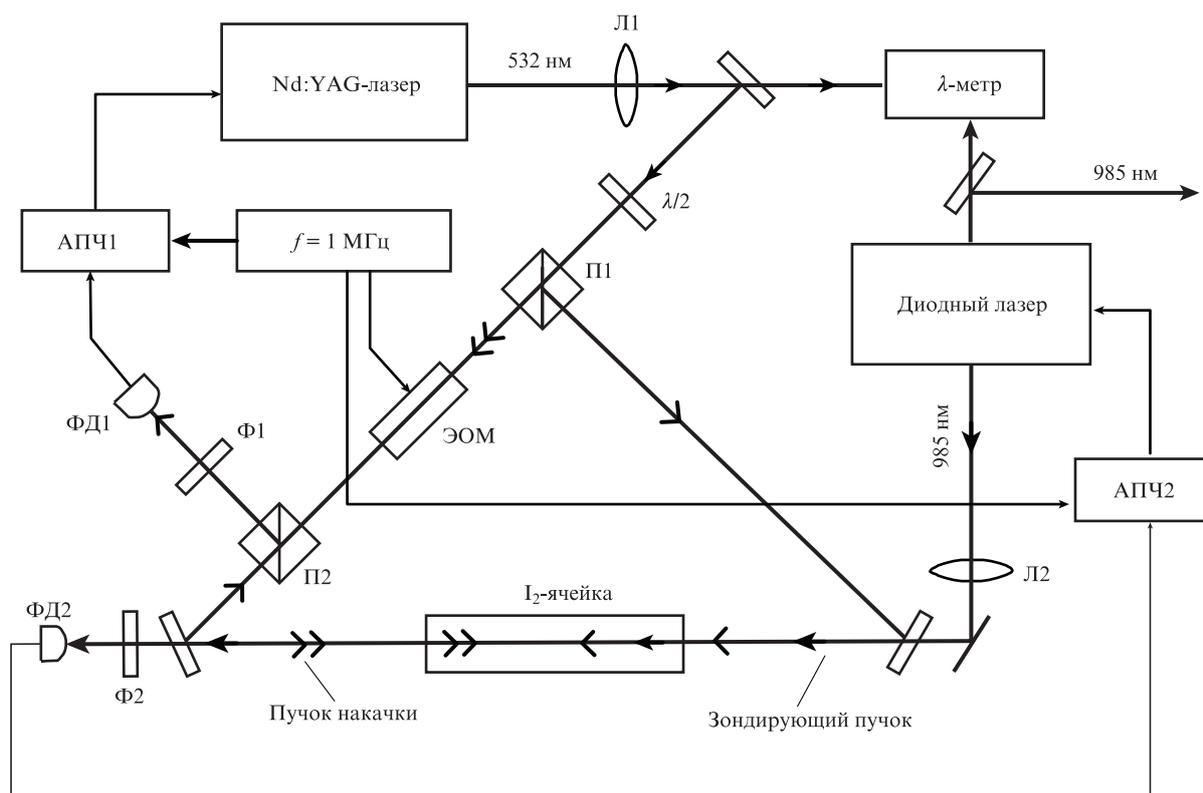


Рис.1. Схема лазерного спектрометра:

АПЧ1, АПЧ2 – системы автоматической подстройки частоты; ЭОМ – электрооптический модулятор; ФД1, ФД2 – фотодетекторы; Ф1, Ф2 – оптические фильтры; П1, П2 – поляризаторы; L1, L2 – линзы.

подстройка частоты осуществляется с помощью пьезоэлемента, на котором крепится одно из зеркал резонатора. Диапазон непрерывной (без перескоков) перестройки частоты составляет  $\sim 5$  ГГц. Резонатор лазера имеет очень жесткую конструкцию, что обеспечивает высокую кратковременную стабильность частоты генерации ( $\sim 10$  кГц).

Зондирующее излучение в диапазоне 968–998 нм генерируется диодным лазером с внешним резонатором. Детальное описание лазера приведено в работе [7]. Здесь мы рассмотрим лишь те его особенности, от которых в большей степени зависят процедура измерений и их точность. В работе использовались одномодовые лазерные диоды, изготовленные НПО «Полус» (Москва). Типичные значения порогового тока и максимальной выходной мощности составляли 40 мА и 50 мВт соответственно. Поскольку выходная грань просветлена лишь частично (отражение  $\sim 20\%$ ), влияние собственного резонатора диода весьма значительно, что существенно осложняет настройку лазера на заданную частоту. Для настройки использовались четыре регулировочных параметра. С помощью дифракционной решетки частота лазера перестраивалась в пределах всей линии усиления лазерного диода. Такая перестройка происходит ступенчато, с интервалом около 60 ГГц. Эта частота соответствует межмодовому интервалу собственного резонатора лазерного диода. Границы перескоков частоты можно сдвигать в ту или иную сторону путем изменения температуры лазерного диода в пределах  $1\text{--}3^\circ\text{C}$ . Точная настройка лазера на заданную частоту производилась изменением напряжения, подаваемого на пьезоэлемент, на котором крепилась дифракционная решетка. При этом диапазон непрерывной перестройки без перескоков частоты составляет около 2.5 ГГц. Границы этих перескоков можно сдвигать незначи-

тельным (в пределах 2 мА) изменением тока возбуждения.

Все элементы резонатора крепились на латунном блоке, температура которого регулировалась элементом Пельтье и стабилизировалась с точностью 5 мК. Соответственно стабилизировались температура лазерного диода и длина внешнего резонатора, закрытого герметичным кожухом из оргстекла. Стабилизация температурного режима после включения лазера достигалась приблизительно в течение получаса. Для защиты лазера от акустических и вибрационных возмущений его корпус был установлен на мраморном блоке, лежащем на массивной чугунной плите, которая служила основанием для всей экспериментальной установки. Мраморный блок отделен от чугунной плиты звукопоглощающей прокладкой.

Выходной пучок излучения диодного лазера мощностью  $\sim 5$  мВт делился на два: один направлялся в ячейку с иодом, второй – на измерительный комплекс. Мощность пучка в ячейке была равна  $\sim 0.8$  мВт и он имел приблизительно круглое сечение диаметром 0.8 мм в перетяжке. Мощности пучка накачки и пробного пучка на длине волны 0.532 нм, проходящих через ячейку, составляли соответственно 5–8 мВт и 0.8–1 мВт, площади сечений этих пучков в ячейке были равны  $\sim 0.9$  мм<sup>2</sup>. Настройка длин волн излучений Nd:YAG-лазера и диодного лазера на требуемую длину волны осуществлялась с помощью  $\lambda$ -метра («Ангстрем»), обеспечивающего измерение с погрешностью не более  $10^{-7}$ .

Изготовленная нами стеклянная ячейка с парами иода имела длину 30 см, температура стенок ячейки не стабилизировалась и была равна комнатной температуре. Давление паров в ячейке регулировалось путем изменения температуры охлаждаемого отрезка. Для охлажде-

ния использовался элемент Пельтье. Температура отростка стабилизировалась с точностью 10 мК электронной системой регулирования. При измерении частоты излучения она поддерживалась равной 8°C, что соответствует давлению паров иода в ячейке ~9 Па.

Фазовая модуляция излучения накачки осуществлялась с помощью электрооптического модулятора (ЭОМ). Частота модуляции составляла 1 МГц при индексе модуляции 0.5. Частота излучения диодного лазера могла сканироваться путем подачи на пьезоэлемент напряжения с частотой 50 Гц. При сканировании частоты излучения диодного лазера в пределах доплеровской ширины линии люминесценции и в отсутствие модуляции частоты излучения накачки сигнал с фотоприемника ФД2 регистрировался на осциллографе в виде серии пиков усиления, соответствующих отдельным компонентам СТС эмиссионного перехода. При фазовой модуляции частоты излучения накачки и регистрации осциллографом сигнала с фазового детектора АПЧ2 вместо пиков наблюдались резонансы дисперсионной формы, которые использовались в качестве сигнала ошибки для стабилизации частоты излучения диодного лазера. При измерении частот компонент СТС эмиссионных переходов частота излучения Nd:YAG-лазера настраивалась на частоту выбранной компоненты СТС абсорбционного перехода и привязывалась к ней. Частота излучения диодного лазера настраивалась на эту же компоненту эмиссионного перехода и стабилизировалась.

Система автоматической подстройки частоты излучения диодного лазера имеет два кольца управления – быстрое и медленное. Быстрое кольцо обеспечивает обработку высокочастотных возмущений частоты, которая подстраивается при этом путем управления током возбуждения диодного лазера. Медленное кольцо обрабатывает низкочастотные возмущения, а также медленные изменения частоты, возникающие под действием изменения температуры и давления окружающей среды. Управление частотой излучения в этом кольце осуществляется с помощью пьезоэлемента, который управляет длиной внешнего резонатора.

Частотно-измерительный комплекс для абсолютного измерения частоты [14] представлен на рис.2. Он создан на базе фемтосекундного титан-сапфирового лазера (модернизированный Giga Jet 20C) с частотой следования импульсов ~495 МГц. Для накачки используется коммерческий лазер Verdi-8. Для генерации суперконтинуума излучение лазера пропускается через микроструктурированное оптическое волокно (Femtowhite800), в результате чего спектр расширяется более чем на октаву (0.5–1.1 мкм). Частота произвольной компоненты суперконтинуума  $f_n$

Частотно-измерительный комплекс для абсолютного измерения частоты [14] представлен на рис.2. Он создан на базе фемтосекундного титан-сапфирового лазера (модернизированный Giga Jet 20C) с частотой следования импульсов ~495 МГц. Для накачки используется коммерческий лазер Verdi-8. Для генерации суперконтинуума излучение лазера пропускается через микроструктурированное оптическое волокно (Femtowhite800), в результате чего спектр расширяется более чем на октаву (0.5–1.1 мкм). Частота произвольной компоненты суперконтинуума  $f_n$

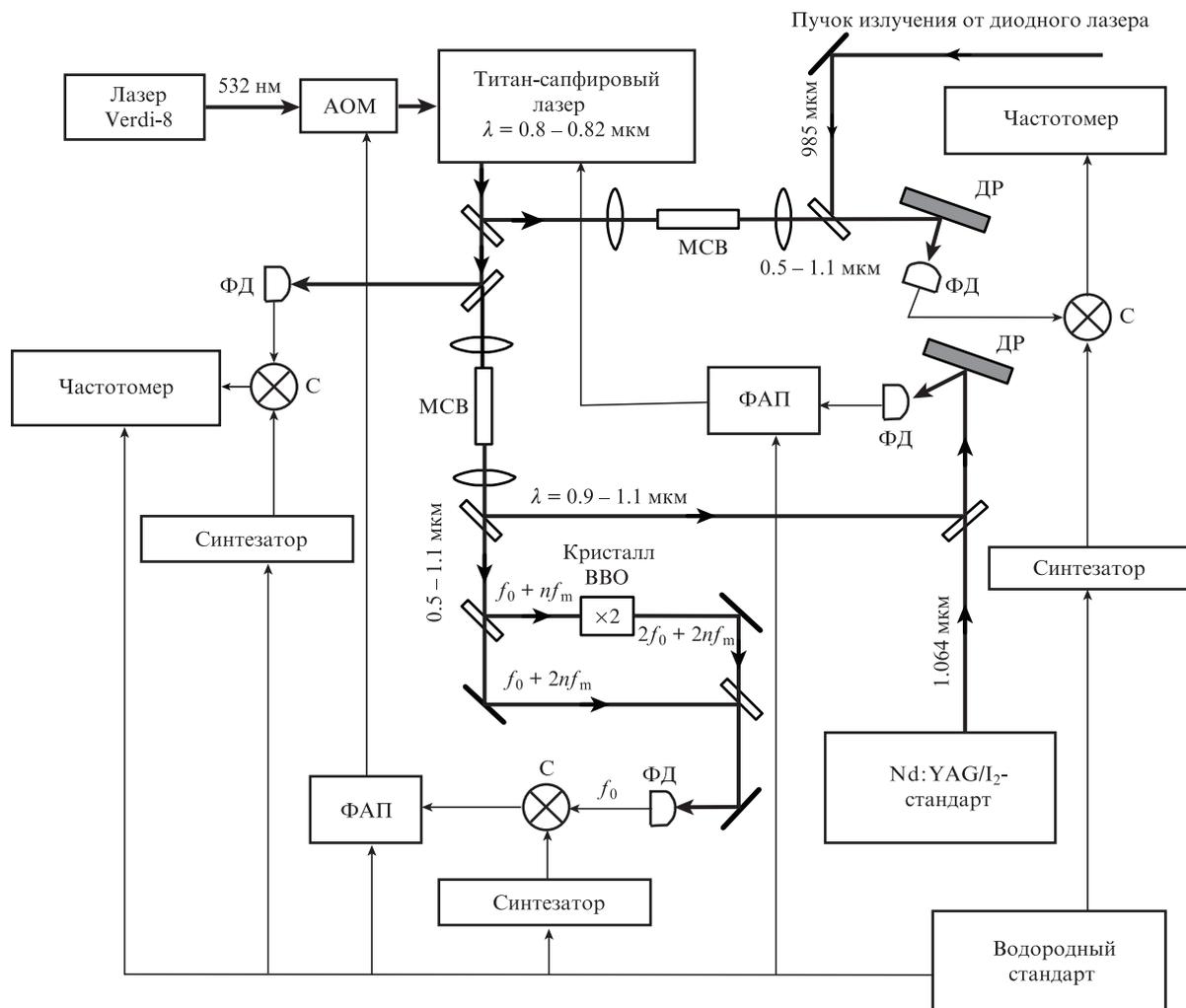


Рис.2. Схема фемтосекундного синтезатора оптических частот:

АОМ – акустооптический модулятор; МСВ – микроструктурированное волокно; ФАП – система фазовой автоподстройки частоты; ФД – фотодетектор; С – смеситель; ДР – дифракционная решетка.

может быть записана следующим образом:  $f_n = f_0 + nf_m$ , где  $f_m$  – частота следования импульсов, или межмодовая частота;  $n$  – целое число и  $f_0$  – частота сдвига, общая для всех компонент суперконтинуума. Из данного соотношения следует, что для стабилизации суперконтинуума необходимо заставить два параметра – частоту сдвига и межмодовую частоту. Если эти частоты измерить с высокой точностью, то будут определены значения всех остальных частот суперконтинуума. В результате получим шкалу стандартных частот, и для измерения произвольной частоты излучения лазера, попадающей в спектральный диапазон синтезатора, достаточно измерить частоту биений между измеряемой частотой и ближайшей к ней стандартной частотой.

В нашем синтезаторе стабилизация суперконтинуума осуществляется путем фазовой привязки одной из частотных компонент суперконтинуума к частоте Nd:YAG/I<sub>2</sub>-стандарта и фазовой привязки частоты сдвига  $f_0$  к частоте, синтезированной из частоты радиочастотного стандарта. В результате такой привязки стабилизируется межмодовая частота, а ее точное значение может быть вычислено по известному значению частоты Nd:YAG/I<sub>2</sub>-стандарта и измеренному значению  $f_0$ . Для определения номера моды  $n$ , который необходимо знать для вычисления, достаточно измерить межмодовую частоту с погрешностью не хуже  $10^{-8}$ . Найденное таким образом значение межмодовой частоты позволяет в свою очередь вычислить частоту любой компоненты суперконтинуума.

Сигнал биений между частотной компонентой суперконтинуума и частотой Nd:YAG/I<sub>2</sub>-стандарта получается при смешении излучения Nd:YAG-лазера с длинноволновой частью излучения, прошедшего через микроструктурированное волокно. Сигнал биений с фотодетектора подается на систему фазовой автоподстройки (ФАП), которая вырабатывает сигнал ошибки, используемый для подстройки резонатора титан-сапфирового лазера. Управление частотой осуществляется путем изменения длины резонатора с помощью двух пьезоэлементов, на которых крепятся зеркала резонатора. Один пьезоэлемент обеспечивает отработку возмущений в полосе до 5 кГц, второй – в полосе до 30 кГц. Частота Nd:YAG/I<sub>2</sub>-стандарта сдвинута на 100 МГц относительно частоты перехода иода, по которому он стабилизируется, поэтому фазовая привязка частотной компоненты к стандарту осуществляется с точно таким же сдвигом по величине и знаку. В результате компонента имеет частоту, точно равную половине частоты перехода иода, поскольку частота стандарта привязывается к переходу по второй гармонике.

Для выделения частоты сдвига используется так называемый  $f:2f$ -интерферометр. Излучение, выходящее из микроструктурированного волокна, разделяется дихроичным зеркалом на коротковолновую и длинноволновую части. Частота длинноволновой части удваивается нелинейным кристаллом, после чего излучение с удвоенной частотой смешивается с коротковолновой частью излучения и детектируется. При таком смешении на детектор попадает излучение, спектр которого представляет собой две гребенки частот с интервалом  $f_m$ , сдвинутые относительно друг друга на частоту  $f_0$ . В результате получаемый при детектировании сигнал биений содержит большой набор частот. В полосу нашего детектора ( $\sim 1$  ГГц) попадают частоты  $f_0$ ,  $f_m$ ,  $f_m - f_0$ ,  $f_m + f_0$ ,  $2f_m - f_0$ . Обычно фильтрами выделяется наиболее низкая частота. Это может быть частота как  $f_0$ , так и  $f_m - f_0$ , в зависимости от

того, какая из них меньше. Затем частота отфильтрованного сигнала смешивается с частотой гетеродина, которая синтезируется из частоты стандарта. Полученный в результате сигнал на промежуточной частоте подается на систему фазовой подстройки частоты, осуществляющую фазовую привязку  $f_0$  к промежуточной частоте. Управление частотой сдвига производится изменением мощности накачки титан-сапфирового лазера с помощью акустооптического модулятора, на который подается сигнал ошибки с системы ФАП.

В синтезаторе предусмотрено высокоточное измерение межмодовой частоты с помощью водородного стандарта. Для этого на выходе титан-сапфирового лазера небольшая часть мощности отщепляется и подается на фотодетектор, регистрирующий сигнал межмодовых биений на частоте  $\sim 495$  МГц. Затем эта частота смешивается с частотой 500 МГц, синтезированной из частоты водородного стандарта, и полученная разностная частота  $\sim 5$  МГц измеряется частотомером. Поскольку частотомер тоже синхронизован по водородному стандарту, точность измерения определяется точностью стандарта. Значение измеренной частоты отображается двенадцатизначным числом. Обычно мы использовали оба метода определения межмодовой частоты – прямым измерением по водородному стандарту и вычислением по известным значениям частоты Nd:YAG/I<sub>2</sub>-стандарта и частоты сдвига, как было описано выше. Сравнение двух значений частоты, полученных разными методами, позволяло контролировать точность измерений. Обычно различие между ними не превышало  $\pm 500$  Гц.

Для получения сигнала биений между измеряемой частотой и частотной компонентой суперконтинуума предполагалось отвести часть излучения, вышедшего из микроструктурированного волокна, и смешать с ним излучение диодного лазера. Однако оказалось, что в спектре суперконтинуума в области 980–985 нм имеется провал – интенсивность частотных компонент слишком мала, чтобы получить сигнал биений, достаточной для измерения. При попытке модифицировать спектр путем изменения мощности титан-сапфирового лазера выяснилось, что провал можно сдвинуть, но при этом падает интенсивность компонент в области генерации Nd:YAG-лазера. Поэтому пришлось использовать еще одно микроструктурированное волокно и отделить для него часть мощности выходного излучения титан-сапфирового лазера.

Излучение диодного лазера направлялось на частотно-измерительный комплекс с помощью зеркал. Расстояние от выхода диодного лазера до точки смешения его излучения с излучением титан-сапфирового лазера составляло около 10 м, параметры пучков излучения этих лазеров были согласованы. Совмещенные пучки направлялись на фокусирующую дифракционную решетку, которая выделяла узкий участок спектра вблизи измеряемой частоты и фокусировала пучок на чувствительную площадку быстродействующего фотодетектора. Сигнал биений затем смешивался с частотой гетеродина, которая синтезировалась из частоты водородного стандарта и подбиралась такой, чтобы разностная частота была вблизи 10 МГц. Полученный сигнал фильтровался, усиливался и подавался на частотомер. Отношение сигнал/шум было обычно на уровне 30 дБ. Результаты измерения, усредненные за 1 с, поступали на компьютер, где накапливались и обрабатывались. Время одного измерения составляло от 10 до 40 мин. На экране монитора графически отобража-

лось изменение частоты во времени, а также результаты обработки полученных данных – средняя частота, среднее отклонение частоты, среднеквадратичное отклонение.

Частота перехода, равная частоте излучения диодного лазера  $f_d$ , определялась из соотношения  $f_d = nf_m \pm f_0 \pm f_{bd}$ , где  $f_{bd}$  – частота биений частоты излучения диодного лазера с частотной компонентой суперконтинуума. Для нахождения  $f_d$  необходимо измерить межмодовую частоту  $f_m$ , определить номер ближайшей к частоте излучения диодного лазера компоненты суперконтинуума  $n$ , измерить частоту сдвига  $f_0$  и частоту биений  $f_{bd}$ . После выполнения фазовой привязки частоты сдвига и частотной компоненты суперконтинуума измерялись межмодовая частота и частота сдвига. При измерении последней необходимо определить, какой частоте соответствуют регистрируемые биения  $-f_0$  или  $f_m - f_0$ . Это важно, т. к. в первом случае при вычислении значения измеряемой частоты  $f_n$  частота  $f_0$  берется со знаком плюс, а во втором – со знаком минус. Мы определяли знак следующим образом. При условии привязки одной из компонент суперконтинуума к частоте Nd:YAG/I<sub>2</sub>-стандарта межмодовая частота измерялась при двух разных частотах сдвига. Если с увеличением частоты сдвига межмодовая частота уменьшается, то знак биений должен быть положительным, а если увеличивается – отрицательным. Номер компоненты определялся на основании измеренных значений межмодовой частоты, частоты сдвига и приближительного значения частоты излучения диодного лазера, измеренного с помощью  $\lambda$ -метра. Для определения знака  $f_{bd}$  в небольших пределах перестраивалась частота излучения диодного лазера и при этом регистрировался характер изменения частоты биений. Если с увеличением частоты излучения лазера частота биений увеличивается, то знак биений положительный, если уменьшается – отрицательный.

Точность нашей измерительной системы определяется точностью используемых стандартов частоты – водородного и Nd:YAG/I<sub>2</sub>-стандарта. Перед началом измерений водородный стандарт был аттестован в Новосибирском метрологическом центре. В настоящее время налажена поверка с использованием GPS. Воспроизводимость частоты используемого нами стандарта составляет  $10^{-13}$ . Воспроизводимость частоты Nd:YAG/I<sub>2</sub>-стандарта контролировалась ее сравнением с частотой второго аналогичного стандарта. Кроме того, абсолютная частота Nd:YAG/I<sub>2</sub>-стандарта измерялась с помощью нашего синтезатора путем определения частоты сдвига и межмодовой частоты с помощью водородного стандарта. Полученные значения сравнивались с известными из литературы данными; воспроизводимость Nd:YAG/I<sub>2</sub>-стандарта оказалась не хуже 1 кГц.

### 3. Результаты экспериментов

На рис.3 представлена одна из записей изменения измеряемой частоты во времени. За период измерения  $\sim 100$  с среднеквадратичное отклонение составляло  $\sim 2$  кГц. При больших промежутках времени наблюдались значительно большие отклонения, которые происходили циклически, с периодом 15–30 мин. Максимальное за период измерения отклонение частоты от среднего значения достигало 30 кГц. На основе подобных записей, сделанных при измерении частоты, были получены характеристики стабильности частоты излучения диодного лазера, стабилизированного по компоненте сверхтонкой структуры

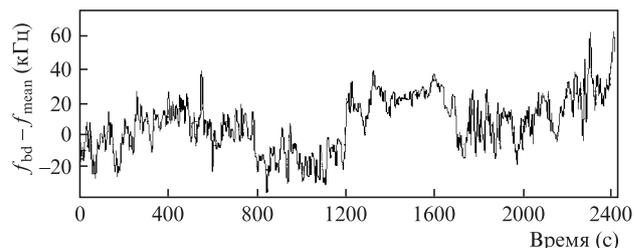


Рис.3. Запись частоты биений между частотой излучения диодного лазера, стабилизированного по компоненте сверхтонкой структуры a1 эмиссионного перехода иода R86(33–48), и частотой излучения фемтосекундного синтезатора оптических частот.

эмиссионного перехода иода (рис.4). Стабильность частоты за времена усреднения 1–100 с составляет  $(1–3) \times 10^{-11}$ . При увеличении времени усреднения показатели стабильности ухудшаются. Это означает, что имеет место медленный, но значительный дрейф частоты. Причину такого поведения лазера мы пока не исследовали. Возможно, неоптимально подобраны параметры медленного кольца системы автоподстройки.

Были измерены частоты 20 переходов молекулы I<sub>2</sub> – R56(32–48) a1, P58(32–48) a1, P85(33–48) a1, R87(33–48) a1, R88(33–48) a10 и всех 15 компонент линии R86(33–48). Поскольку перестройка частоты излучения лазеров с одной линии на другую связана с изменением температуры, требовалось дополнительное время для установления стационарного температурного режима. Поэтому в течение одного дня удавалось измерить несколько раз частоту только одного колебательно-вращательного перехода. Через несколько дней измерения повторялись. При измерении частот отдельных компонент сверхтонкой структуры в пределах одной линии перестраивать частоту излучения лазеров можно было без изменения температуры, поэтому за один день удавалось измерить несколько частот. Результаты измерений представлены в табл.1. Среднеквадратичное отклонение частоты по результатам нескольких измерений в течение одного дня для разных линий составляло от 11 до 22 кГц. Разброс результатов измерений, сделанных в разные дни, достигал 40 кГц. Частоты отдельных компонент линии R86(33–48) измерялись дважды (с интервалом в несколько дней). В качестве результирующего принято среднее значение двух измерений, поэтому точность измерения частот этих пере-

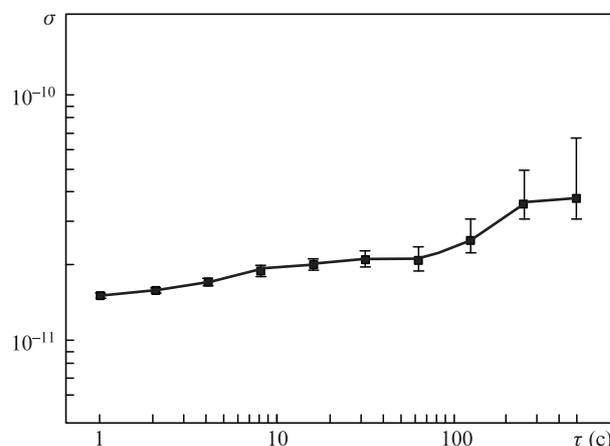


Рис.4. Стабильность частоты диодного лазера. Функция Алана  $\sigma$  вычислена на основе данных, представленных на рис.3.

Табл.1. Результаты измерений частот переходов иода.

Линия	Компонента	Частота перехода (кГц)
P58 (32–48)	a1	304 360 509 340(14)
R56(32–48)	a1	304 569 862 427(19)
R87 (33–48)	a1	305 158 831 718(13)
P85 (33–48)	a1	305 473 035 236(11)
P88 (33–48)	a10	305 112 914 648(15)
R86 (33–48)	a1	305 430 191 096(22)
R86 (33–48)	a2	305 430 419 457 (65)
R86 (33–48)	a3	305 430 450 726 (5)
R86 (33–48)	a4	305 430 460 143 (48)
R86 (33–48)	a5	305 430 490 794 (10)
R86 (33–48)	a6	305 430 556 161 (63)
R86 (33–48)	a7	305 430 570 683 (3)
R86 (33–48)	a8	305 430 604 295 (53)
R86 (33–48)	a9	305 430 618 684 (36)
R86 (33–48)	a10	305 430 719 880 (30)
R86 (33–48)	a11	305 430 832 083 (28)
R86 (33–48)	a12	305 430 839 995 (27)
R86 (33–48)	a13	305 430 864 083 (33)
R86 (33–48)	a14	305 430 872 845 (36)
R86 (32–48)	a15	305 430 984 743 (31)

ходов ниже. Поскольку точность нашей измерительной системы по оценкам составляет 1 кГц, то наблюдаемый разброс результатов измерений определяется главным образом нестабильностью частоты излучения диодного лазера.

Что касается систематических ошибок измерения, то наибольший вклад здесь дает, на наш взгляд, неучтенный сдвиг частоты, определяемый давлением паров иода в ячейке. Мы этот сдвиг не исследовали. Однако в литературе имеются данные, полученные другими авторами, в основном для абсорбционных переходов. Согласно работе [15], для линий поглощения иода в ИК диапазоне этот сдвиг составляет  $-5$  кГц/Па. Наши измерения были сделаны при температуре охлаждаемого отростка иодной ячейки  $8^\circ\text{C}$ . Этой температуре соответствует давление паров иода 9 Па. Если допустить, что сдвиг частоты линии происходит в основном из-за сдвига верхнего уровня, то на эмиссионном переходе сдвиг должен быть таким же, как и на абсорбционном переходе. В нашем случае это  $-45$  кГц. Имеется еще ряд неучтенных факторов, которые могут приводить к сдвигу частот излучения обоих лазеров и таким образом влиять на точность измерений. К ним относятся взаимное влияние полей излучения обоих лазеров на сдвиг частоты каждого из них, влияние неконтролируемых загрязняющих газов в ячейке, паразитная амплитудная модуляция, обратные рассеяния излучения лазеров и др. Для исследования влияния указанных факторов в настоящее время создается вторая аналогичная лазерная система, которая позволит с большей достоверностью определить точность наших измерений. Вместе с тем мы считаем целесообразным публикацию уже полученных результатов в качестве предварительных, полагая, что погрешность измерений не выходит за пределы 200 кГц.

#### 4. Заключение

Впервые выполнены высокоточные измерения частот отдельных компонент СТС эмиссионных линий  $^{127}\text{I}_2$ , соответствующих системе В–Х. С помощью фемтосекундного синтезатора оптических частот измерены частоты 20 компонент СТС для шести эмиссионных линий, соот-

ветствующим полосам (32 – 48) и (33 – 48). Точность измерений составила  $\sim 7 \times 10^{-10}$ , что на два порядка превышает точность имеющихся на сегодняшний день экспериментальных данных для этих переходов [11]. Систематические измерения с использованием предложенной методики позволяют получить новые, более точные экспериментальные данные, на основе которых могут быть определены более точные значения энергий любых колебательных уровней Х-состояния и в конечном счете – более точные спектроскопические параметры для расчета частот эмиссионных переходов. Это позволит сделать эмиссионный спектр, наряду с абсорбционным, пригодным для калибровки частот излучения лазеров и расширить тем самым частотную шкалу почти до 1.4 мкм.

В работе продемонстрирована возможность использования компонент СТС эмиссионных переходов иода в качестве частотных реперов для стабилизации частоты излучения лазеров. Осуществлена привязка частоты излучения диодного лазера, генерирующего в диапазоне 968–998 нм, к компонентам СТС эмиссионных линий в области 982–985 нм. Получена стабильность частоты на уровне  $(1-3) \times 10^{-11}$  за времена усреднения 1–100 с. Использование частотных реперов, соответствующих эмиссионному спектру В–Х-системы иода, который занимает диапазон 0.5–1.34 мкм, существенно расширяет возможности стабилизации частоты излучения лазеров. Это особенно важно для диапазона 0.9–1.34 мкм, где подходящих для стабилизации частоты реперов очень мало. В то же время имеется ряд эффективных перестраиваемых лазеров, излучающих в этом диапазоне и используемых для целей спектроскопии, коммуникации и метрологии, а следовательно, есть потребность в стабилизации их частоты.

Частотные реперы эмиссионного спектра, на наш взгляд, могут с успехом использоваться и в тех спектральных областях, в которых в настоящее время используются абсорбционные реперы, в частности в диапазоне 700–900 нм. Для достижения заметного поглощения в этом диапазоне требуется повышенное давление паров иода, т. е. нагрев ячейки до температуры 500–600 °С. Из-за повышенного газоотделения из стенок ячейки при высокой температуре возрастает вероятность неконтролируемого сдвига частот реперов под влиянием загрязняющих газов, а повышенное давление приводит к уширению линии и дополнительному сдвигу частоты. В результате ухудшается точность привязки частоты к центру перехода, а следовательно, воспроизводимость частоты излучения лазера. Так, в видимом диапазоне, когда используется более низкое давление в ячейке и нет необходимости в нагреве ее стенок, лучшие результаты по воспроизводимости частоты находятся на уровне  $2.7 \times 10^{-12}$  [16]. Лучшее значение в диапазоне 700–900 нм более чем на порядок хуже и составляет  $6.7 \times 10^{-11}$  [17].

В отдельных случаях эмиссионные реперы могут оказаться полезными и в видимом диапазоне. Например, если в абсорбционном спектре отсутствует репер с требуемой частотой, есть вероятность найти такой репер в эмиссионном спектре.

Следует обратить внимание на одно важное обстоятельство, которое позволяет получать узкие эмиссионные линии в пределах спектрального диапазона 0.55–1.35 мкм. Известно, что однородная ширина линий переходов иода при низких давлениях определяется в основном скоростью распада верхнего электронно-возбужденного уровня, обусловленного радиационным затуханием и предис-

социацией молекулы [18]. При этом преддиссоционная ширина может превышать радиационную более чем на порядок. Преддиссоционному уширению наиболее подвержены линии переходов, включающих в себя колебательные уровни В-состояния, которые расположены в нижней и средней частях потенциальной кривой. В результате естественная ширина линий поглощения в длинноволновой и средней частях абсорбционного спектра существенно больше, чем в коротковолновой. Наиболее узкие линии находятся в диапазоне 500–523 нм и имеют ширину 30–150 кГц [19, 20]. Если для возбуждения молекул иода использовать излучение в данном диапазоне, то на верхний уровень будут возбуждаться молекулы, скорости которых лежат в очень узком интервале значений. Соответственно все компоненты СТС эмиссионных переходов, начинающихся с этого уровня и оканчивающихся на любом из колебательно-вращательных уровней основного состояния, будут иметь малую ширину. Следовательно, узкие частотные реперы можно получить практически в любом участке эмиссионного спектра в диапазоне 0.55–1.34 мкм. Наиболее перспективным источником излучения для возбуждения молекул иода в интересующем нас диапазоне на сегодняшний день является твердотельный лазер с диодной накачкой и удвоением частоты на базе кристаллов, легированных ионами  $\text{Yb}^{3+}$  [21, 22]. Этот лазер может генерировать излучение в диапазоне 1000–1040 нм, а диапазон длин волн излучения второй гармоники составит 500–520 нм.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 09-02-00608-а).

- Gerstenkorn S., Luc P. *Atlas du Spectre d'Absorption de la Molécule d'Iode 14800–20000  $\text{cm}^{-1}$*  (Laboratoire Aimé Cotton CNRS II, 1978).
- Gerstenkorn S., Verges J., Chevillard J. *Atlas du Spectre d'Absorption de la Molécule d'Iode 11.000–14.000  $\text{cm}^{-1}$*  (Laboratoire Aimé Cotton CNRS II, 1982).
- Pollock C.R., Jennings D.A., Petersen F.R., Wells J.S., Drullinger R.E., Beaty E.C., Evenson K.M. *Opt. Lett.*, **8**, 133 (1983).
- Jennings D.A., Pollock C.R., Petersen F.R., Drullinger R.E., Evenson K.M., Wells J.S., Hall J.L., Layer H.P. *Opt. Lett.*, **8**, 136 (1983).
- Bodermann B., Knöckel H., Tiemann E. *Eur. Phys. J. D*, **19**, 31 (2002).
- Knöckel H., Bodermann B., Tiemann E. *Eur. Phys. J. D*, **28**, 199 (2004).
- Матюгин Ю.А., Охалкин М.В., Скворцов М.Н., Игнатович С.М., Багаев С.Н. *Квантовая электроника*, **38**, 755 (2008).
- Salumbides E.J., Eikema K.S.E., Ubachs1 W., Hollenstein U., Knöckel H., Tiemann E. *Mol. Phys.*, **104**, 2641 (2006).
- Salumbides E.J., Eikema K.S.E., Ubachs1 W., Hollenstein U., Knöckel H., Tiemann E. *Eur. Phys. J. D*, **47**, 171 (2008).
- Liao C.-C., Wu K.-Y., Lien Y.-H., Knöckel H., Chui H.-C., Tiemann E., Shy J.-T. *J. Opt. Soc. Am. B*, **27**, 1208 (2010).
- Martin F., Bacis R., Churassy S., Verges J. *J. Mol. Spectrosc.*, **116**, 71 (1986).
- Beterov I.M., Chebotayev V.P. *Progress in Quantum Electronics* (New York: Pergamon Press, 1974, Vol. 3, Pt 1, p. 1).
- Okhapkin M.V., Skvortsov M.N., Belkin A.M., Kvashnin N.L., Bagayev S.N. *Opt. Commun.*, **203**, 359 (2002).
- Ignatovich S.M., Kvashnin N.L., Kuznetsov S.A., Lugovoy A.A., Okhapkin M.V., Pivtsov V.S., Skvortsov M.N., Sutyryn D.V., Farnosov S.A. *Techn. Dig. ICONO/LAT-2010* (Kazan, Russia, 2010).
- Reinhardt S., Bernhardt B., Geppert C., Holzwarth R., Huber G., Karpuk S., Miski-Oglu N., Nörterhäuser W., Novotny C., Udem Th. *Opt. Commun.*, **274**, 354 (2007).
- Nevsky A.Yu., Holzwarth R., Reichert J., Udem Th., Hansch T.W., von Zanthier J., Walther H., Schnatz H., Riehle F., Pokasov P.V., Skvortsov M.N., Bagayev S.N. *Opt. Commun.*, **192**, 263 (2001).
- Bodermann B., Klug M., Winkelhoff U., Knöckel H., Tiemann E. *Eur. Phys. J. D*, **11**, 213 (2000).
- Vigué J., Broyer M., Lehmann J.-C. *Physique*, **42**, 949 (1981).
- Cheng W.-Y., Chen L., Yoon T.H., Hall J.L., Ye J. *Opt. Lett.*, **27**, 571 (2002).
- du Burck F., Daussy C., Amy-Klein A., Goncharov A.N., Lopez O., Chardonnet C., Wallerand J.-P. *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, **54**, 754 (2005).
- Jacquemet M., Balembois F., Chénais S., Druon F., Georges P., Gaumé R., Ferrand B. *Appl. Phys. B*, **78**, 13 (2004).
- Okhapkin M.V., Skvortsov M.N., Kvashnin N.L., Bagayev S.N. *Opt. Commun.*, **256**, 147 (2005).