PACS 32.80.Xx; 32.10.Fn; 42.62.Fi

# Роль переходных процессов в спектроскопии резонансных линий атомов цезия в ячейках с антирелаксационным покрытием

Д.И.Севостьянов, В.П.Яковлев, А.Н.Козлов, В.В.Васильев, С.А.Зибров, В.Л.Величанский

Исследуются особенности спектров поглощения в  $D_{1,2}$ -линиях Cs, вызванные оптической накачкой, в ячейках с антирелаксационным покрытием. В таких ячейках внутреннее состояние атома, возникшее при оптической накачке монохроматическим лазерным полем, с большой вероятностью сохраняется при столкновении атома со стенкой. В результате действие оптической накачки распространяется и на весь объем ячейки, и на все скорости атомов. Это приводит к зависящим от скорости сканирования искажениям контура линии поглощения. Обнаруженные особенности необходимо учитывать при работе с квантовыми магнитометрами с лазерной накачкой, в которых используются ячейки с антирелаксационным покрытием.

Ключевые слова: антирелаксационное покрытие, оптическая накачка, релаксация, внутридоплеровская спектроскопия.

### 1. Введение

Переходы между сверхтонкими и магнитными подуровнями основного состояния атомов щелочных металлов уже более 50 лет широко используются в стандартах частоты и квантовой магнитометрии [1-3]. За последние десятилетия в этих областях достигнуты новые успехи [4-7]. Метрологическая ценность радиочастотных и СВЧ резонансов обусловлена, прежде всего, малостью их ширин. Последние определяются скоростями релаксаци при столкновениях атомов со стенками ячейки и между собой [3,8]. Для сужения линий используются два способа. Один из них – добавление в ячейку буферных газов, которые увеличивают время между столкновениями со стенкой, поскольку быстрый баллистический пролет атомов сменяется медленной диффузией. Возможности этого способа ограничены уширением линии при столкновениях атомов щелочного металла с атомами буферного газа [7]. Второй способ заключается в нанесении на внутренние стенки ячейки антирелаксационного покрытия, при столкновениях с которым вероятность релаксации внутреннего со-

Д.И.Севостьянов, В.П.Яковлев. Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Россия, 115409 Москва, Каширское ш., 31; e-mail: demetrius37@yandex.ru, yakovlev@theor.mephi.ru А.Н.Козлов. Институт земного магнетизма, ионосферы и распространения радиоволн им. Н.В.Пушкова РАН, Россия, 142190 Москва, Троицк, Калужское ш., 4, ООО «Энергоцентр», Россия, 119602 Москва, ул. Академика Анохина, 38; e-mail: kozlov@izmiran.ru В.В.Васильев, С.А.Зибров. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; стояния атомов мала [3,8]. Ячейки с покрытием широко применяются в квантовых магнитометрах с оптической накачкой [4,5,8]. По сравнению с ячейками с буферным газом они обеспечивают большее отношение сигнал/шум, а также уменьшают влияние градиента магнитного поля, т. е. позволяют измерять среднее по объему ячейки поле.

В серийных квантовых магнитометрах применяются резонансные лампы на щелочных металлах. В последнее время все активнее ведется работа по замене резонансных ламп диодными лазерами, использование которых открывает новые возможности метода двойного радиооптического резонанса [9]. В частности диодные лазеры могут одновременно накачивать большое количество ячеек в магнитокардиографе [10, 11], а также снижать энергопотребление и вес портативных магнитометров.

В настоящей работе использовались ячейки с антирелаксационным покрытием, заполненные парами цезия, и контрольная ячейка без покрытия. Ширина линии генерации (~1 МГц) применявшихся лазеров с внешним резонатором меньше естественной ширины резонансных линий (~5 МГц), которая, в свою очередь, почти на два порядка меньше доплеровской ширины (~380 МГц) линии <sup>133</sup>Сs при комнатной температуре. Поэтому лазерное излучение фиксированной частоты эффективно взаимодействует с малой по сравнению со всем ансамблем группой атомов. Однако неравновесное распределение атомов по подуровням основного состояния, вызванное оптической накачкой, при столкновениях с антирелаксационным покрытием стенок ячейки не только сохраняется, но и распространяется на все другие скоростные группы, в том числе и на группу атомов, резонансно взаимодействующих с лазерным полем. В работе исследуется влияние этого эффекта на спектры резонансного поглощения бегущей пробной волны и на формирование внутридоплеровской структуры при наличии встречной насыщающей волны в случае различных скоростей сканирования частоты лазера.

В разд.2 описана экспериментальная установка и полученные на ней результаты. В разд.3 дано качественное объяснение большинства особенностей спектров, полу-

e-mail: vvv@okb.lpi.troitsk.ru, szibrov@yandex.ru

В.Л.Величанский. Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Россия, 115409 Москва, Каширское ш., 31, ООО «Энергоцентр», Россия, 119602 Москва, ул. Академика Анохина, 38, Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53, Российский квантовый центр, Россия, Московская обл., 143025 Сколково, ул. Новая, 100; e-mail: vlvlab@okb.lpi.troitsk.ru

Поступила в редакцию 14 марта 2013 г., после доработки – 12 апреля 2013 г.

ченных при использовании ячейки с покрытием. Теоретическая модель, описывающая влияние антирелаксационного покрытия, представлена в разд.4.

### 2. Эксперимент

### 2.1. Установка

Для регистрации спектров использовались перестраиваемые диодные лазеры с внешним резонатором [12], настроенные на  $D_1$ - или  $D_2$ -линию. При регистрации  $D_1$ линии применялась цилиндрическая ячейка с антирелаксационным покрытием длиной 72 мм и диаметром 50 мм, заполненная парами цезия. Характеристики  $D_2$ -линии регистрировались при использовании более короткой ячейки с покрытием длиной 51 мм и диаметром 36 мм. Для демонстрации влияния покрытия записывались контрольные спектры паров цезия в ячейке, не имевшей покрытия.

Сканирование частоты генерации лазеров осуществлялось за счет подачи пилообразного напряжения на пьезокерамику, перемещающую решетку [12]. Частота модуляции менялась на три порядка (от 0.1 до 100 Гц), а перестройка частоты – в интервале 1-5 ГГц. Это позволяло прописывать доплеровский контур линий за времена от десятков секунд до миллисекунд как при увеличении частоты, так и при ее уменьшении. Лазерное излучение проходило через оптический изолятор, полуволновую пластинку и поляризатор (на схеме не приведены), позволявшие варьировать его мощность. Линейно поляризованное излучение, прошедшее через полупрозрачное зеркало 31, попадало в оптическую систему, предназначенную для внутридоплеровской спектроскопии (рис.1). В позиции 1 наблюдались внутридоплеровские резонансы на фоне доплеровского контура, а отношение интенсивностей накачивающего и пробного пучков составляло 3:1. В позиции 2 регистрировалось поглощение излучения бегущей волны.

#### 2.2. Результаты для D<sub>1</sub>-линии

В спектре D<sub>1</sub>-линии Cs можно исследовать уединенные сверхтонкие переходы, поскольку линии всех четырех переходов, 6S<sub>1/2</sub>,  $F_g = 3$ , 4  $\rightarrow$  6P<sub>1/2</sub>,  $F_e = 3$ , 4, разрешаются: при доплеровском уширении линии ~0.38 ГГц интер-



Рис.1. Схема экспериментальной установки:

ИЛВР – инжекционный лазер с внешним резонатором; ОИ – оптический изолятор; 31, 32, 35 – полупрозрачные зеркала; 33, 34, 36 – глухие зеркала; ФД1, ФД2 – фотоприемники.



Рис.2. Схема уровней и разрешенных переходов для  $D_1$ - и  $D_2$ -линий атома Cs. На вставке – зависимости коэффициентов пропускания ячейки на центральной частоте перехода  $F_g = 3 \rightarrow F_e = 4$  от времени после включения лазерного поля при различных мощностях излучения (площадь сечения пучка ~2 × 3 мм).

вал между сверхтонкими подуровнями основного состояния составляет 9.2 ГГц, а возбужденного – 1.2 ГГц (рис.2). В эксперименте выбран переход  $F_g = 3 \rightarrow F_e = 4$ , в котором доминирует нелинейность, обусловленная накачкой на другой сверхтонкий подуровень,  $F_g = 4$ , а перераспределение по магнитным подуровням проявляется слабо.

На вставке рис.2 показаны переходные характеристики пропускания цезиевой ячейки при ступенчатом включении лазерного излучения различной интенсивности и фиксированной частоты, соответствующей центру перехода  $6S_{1/2}$ ,  $F_g = 3 \rightarrow 6P_{1/2}$ ,  $F_e = 4$ . Периодическое включение лазерного поля осуществлялось механическим прерывателем. Фронт импульса излучения не превышал 0.1 мс, длительность промежутка между импульсами была достаточной для полной релаксации атомов в ячейке. Постоянная времени фотоприемника была меньше 10 мкс. Из рис.2 видно, что время выхода на стационарное пропускание превышает 10 мс и увеличивается с уменьшением мощности лазерного излучения. Оно много больше времени пролета атомов через пучок, равного ~2 × 10<sup>-5</sup> с.

На рис.3 сопоставлены коэффициенты пропускания излучений пробной волны для ячейки с покрытием в по-



Рис.3. Временные зависимости коэффициентов пропускания на переходе  $F_g = 3 \rightarrow F_e = 4$  атома Cs для ячейки с покрытием в позиции 1 (верхняя кривая) и ячейки без покрытия в позиции 2 (нижняя кривая).



Рис.4. Коэффициент пропускания на переходе  $F_g = 3 \rightarrow F_e = 4 D_1$ линии атома Cs для ячейки с покрытием в позиции 1 в случае увеличения и уменьшения частоты пробного поля. Интенсивность накачивающего излучения ~1 мВт/см<sup>2</sup>.

зиции 1 и бегущей волны для ячейки без покрытия в позиции 2. Видно, что для ячейки с покрытием: 1) минимум коэффициента пропускания пробной волны наблюдается раньше, чем для ячейки без покрытия, 2) регистрируется внутридоплеровский резонанс с высоким контрастом, несмотря на то что селективность накачки по продольной скорости атомов теряется при их столкновениях со стенкой и 3) положение внутридоплеровского резонанса соответствует минимуму фонового контура коэффициента пропускания для ячейки без покрытия.

На рис.4 представлены временные зависимости коэффициентов пропускания ячейки с покрытием в позиции 1, записанные при увеличении и уменьшении частоты пробного поля. Скорость сканирования составляет 30 МГц/мс. Смена знака изменения частоты происходит вблизи вертикальной штриховой линии. В обоих случаях отчетливо видны смещение минимума фонового пропускания относительно внутридоплеровского резонанса и нарушение симметрии контура. Характер искажения зависит от времени, но не от направления изменения частоты. По положению внутридоплеровского резонанса можно определить момент времени, когда частота излучения лазера соответствует максимуму максвелловского распределения атомов по продольной скорости. Заметим, что насыщающее поле не только приводит к формированию внутридоплеровского резонанса, но и существенным образом проявляется в искажении фонового контура, т.к. имеет гораздо большую интенсивность, чем пробная волна.

Смещение внутридоплеровского резонанса относительно минимума доплеровски уширенного контура пропускания наблюдается в широком диапазоне скоростей перестройки частоты (от ~1 ГГц/мс до ~1 МГц/мс). На краях этого диапазона смещение становится малозаметным (рис.5). Максимальной величины оно достигает при скорости сканирования ~50 МГц/мс.

### 2.3. Результаты для D<sub>2</sub>-линии

Шесть сверхтонких компонент  $D_2$ -линии цезия,  $6S_{1/2}$ ,  $F_g = 3, 4 \rightarrow 6P_{3/2}$ ,  $F_e = 2, 3, 4, 5$  (см. рис.2), из-за доплеровского уширения сливаются в две линии, каждая из которых соответствует трем сверхтонким переходам, причем два из них являются циклическими по квантовому числу *F*. Особенности спектров пропускания, обусловленные антирелаксационным покрытием, более наглядно проявляются для длинноволновой группы переходов  $F_g = 4 \rightarrow$  $F_e = 3, 4, 5$  (рис.6). Если искажения для  $D_1$ -линии зависели от скорости сканирования, но не от направления измене-



Рис.5. Коэффициент пропускания на переходе  $F_g = 3 \rightarrow F_e = 4 D_1$ линии атома Cs для ячейки с покрытием в позиции 1 при быстром (~300 МГц/мс) сканировании частоты. Интенсивность накачивающего излучения ~1 мВт/см<sup>2</sup>.



Рис.6. Спектр пропускания для длинноволновой компоненты D<sub>2</sub>линии (переходы  $F_g = 4 \rightarrow F_e = 3, 4, 5$ ) при использовании ячейки с покрытием в позиции 1 при увеличении и уменьшении частоты пробного излучения. Интенсивность накачивающего излучения ~1 мBт/см<sup>2</sup>.

ния частоты, то для  $D_2$ -линии ситуация оказывается иной. Величина максимального поглощения (минимального пропускания на рис.6) в суммарном контуре заметно различна для разных направлений перестройки частоты. При ее уменьшении, когда сначала включается поглощение на циклическом переходе, максимальное достигаемое поглощение больше. Отметим, что все внутридоплеровские резонансы (три собственных и три перекрестных) разрешены.

## 3. Обсуждение и качественное объяснение результатов

В атомах с ненулевым спином ядра и сверхтонкой (СТ) структурой основного состояния нелинейность взаимодействия излучения лазера с атомным ансамблем может возникать не только при заметном заселении возбужденного состояния с временем жизни  $\sim 3 \times 10^{-8}$  с, но и при переводе значительной доли атомов на непоглощающие сверхтонкие или магнитные подуровни. Время релаксации возмущения во втором случае не меньше времени пролета атома через лазерный пучок ( $\tau_0 \approx 10^{-5}$  с), и нелинейность проявляется при интенсивностях на два-три порядка меньших, чем в случае двухуровневых систем. В магнитометрах или атомных часах, чтобы избежать полевого уширения метрологических резонансов, используется излучение малой интенсивности. В настоящей работе интенсивности не превышали 1 мВт/см<sup>2</sup>.

Для ячеек с покрытием при ударе атома о стенку его внутреннее состояние сохраняется с высокой вероятностью, а проекция скорости на направление распространения оптического излучения меняется. Тем самым эффект оптической накачки распространяется на все максвелловское распределение по скоростям. В результате нелинейность взаимодействия атомов с лазерным излучением формируется по двум каналам: один из них обусловлен накачкой в непоглощающее состояние за время пролета атомов через лазерный пучок, второй связан с возвратом таких атомов после одного или нескольких столкновений со стенкой в лазерный пучок, т.е. в зону взаимодействия, за характерное время  $\tau_{v}$ . Вероятность возврата после первого столкновения была пропорциональна отношению естественной ширины линии к доплеровской, а также отношению площади сечения пучка к площади основания цилиндрической ячейки, и в экперименте не превышала 10<sup>-2</sup>.

Характерным для второго канала эффектом является накопление атомов в непоглощающем состоянии, что приводит к возрастанию степени нелинейности в течение времени нахождения частоты лазера в пределах доплеровски уширенного контура линии. Если это время больше времени выхода на стационарный режим всего ансамбля атомов  $T = \tau_{\rm g}/(1 + P \tau_{\rm g})$  (где  $\tau_{\rm g}$  – время релаксации населенностей на сверхтонких подуровнях основного состояния, Р-скорость перекачки атомов в непоглощающее состояние), то поглощение перестает меняться. Приведенная простая оценка справедлива для не слишком больших интенсивностей излучения и скоростей накачки, поскольку Т не может быть меньше времени пролета атомов через лазерный пучок. Детальный анализ динамики накачки приведен в следующем разделе. Выход на стационарный уровень означает, что распределение населенностей установилось по всему ансамблю атомов и по объему, и по скоростям. Именно поэтому в переходных характеристиках, снятых при фиксированной частоте пробного излучения и приведенных на вставке рис.2, время установления постоянного пропускания ячейки (~0.01 с) много больше времени пролета атомов через лазерный пучок  $(2 \times 10^{-5} \text{ c})$ , определяющего время установления стационарного поглощения для ячеек без покрытия.

В режиме сканирования частоты поглощение в каждой точке доплеровского контура (в каждой скоростной группе) определяется воздействием поля на другие скоростные группы атомов в предшествующие моменты времени. При определенных скоростях перестройки частоты (см. ниже) поглощение вследствие задержки воздействия накачки по второму каналу зависит от процессов взаимодействия в предыдущие моменты времени, что приводит к искажениям наблюдаемого контура линии. Заметим, что изменение частоты может быть не только линейным (при регистрации спектра) или гармоническим (при формировании сигнала ошибки для стабилизации частоты лазера), но и флуктуационным.

При сканировании частоты лазера в пределах доплеровского контура со скоростью ~100 МГц/мс накопление атомов в непоглощающем состоянии происходит в течение всего времени прохождения доплеровски уширенной линии. На стадии, когда частота лазерного поля перемещается от крыла линии к ее центру, возрастающая функция распределения атомов по резонансной продольной скорости умножается на убывающую функцию, обусловленную тотальным накоплением непоглощающих атомов. Из-за этого минимум пропускания достигается прежде, чем частота лазерного поля сравняется с центральной частотой максвелловского распределения (см. рис.3). Для уединенных и поэтому симметричных сверхтонких компонент  $D_1$ -линии эффект не зависит от направления изменения частоты, что и подтверждает рис.4.

При большой скорости сканирования (рис.5), когда время прохождения линии много меньше *T*, влияние второго канала (степени накачки всего ансамбля атомов) оказывается малым даже в конце этого прохождения, так что смещение экстремума фонового пропускания относительно невозмущенной атомной частоты исчезает. То же происходит и при очень медленной перестройке частоты ( $\sim \gamma/T = 5 \text{ М}\Gamma \mu/10 \text{ мс} = 0.5 \Gamma\Gamma \mu/c$ , где  $\gamma$  – радиационная ширина линии), поскольку ансамбль атомов успевает приблизиться к стационарному состоянию при каждом значении частоты. Ясно, что существует скорость перестройки, при которой смещение минимума контура пропускания относительно центра максвелловского распределения достигает максимума. Такому случаю соответствует зависимость, показанная на рис.3.

Обратимся теперь к особенностям D2-линии пропускания, для которой все шесть СТ компонент сливаются в две группы по три СТ компоненты в каждой. Искажения контура, обусловленные антирелаксационным покрытием, более наглядно проявляются в длинноволновой группе ( $F_g = 4 \rightarrow F_e = 3, 4, 5$ ), для которой и приведены экспериментальные кривые на рис.6. Как уже говорилось, характер искажения для D2-линии существенно отличается от случая D<sub>1</sub>-линии. Максимальное поглощение в суммарном контуре зависит от знака перестройки частоты. Когда частота излучения лазера приближается к частоте перехода  $F_g = 4 \rightarrow F_e = 3, 4, 5$  с длинноволновой стороны, первыми в резонансе с полем оказываются открытые переходы. В результате перекачка атомов на «темный» СТ подуровень  $F_g = 3$  успевает значительно опустошить уровень  $F_{\rm g}$  = 4 к тому моменту, когда частота излучения лазера приближается к центру самой интенсивной в этой тройке СТ компоненты  $F_g = 4 \rightarrow F_e = 5$ . Поэтому максимальное поглощение в этом случае заметно меньше, чем при прохождении линии с коротковолновой стороны, когда в резонансе сначала оказывается циклический переход  $F_g = 4 \rightarrow F_e = 5$ , не приводящий к оптической накачке и к тому же самый сильный. Отметим, что в результате комбинации открытых и циклических переходов возникают характерные особенности и в других эффектах. Так, в ранней работе [13] было отмечено, что именно такая комбинация вызывает доминирование перекрестных резонансов во внутридоплеровском спектре длинноволновой компоненты D<sub>2</sub>-линии цезия, а в [14] та же комбинация приводит к максимальной амплитуде магнитооптических резонансов.

Важным вопросом является возможность наблюдения внутридоплеровских резонансов, обусловленных нелинейностью из-за вызываемого лазерным излучением перераспределения населенностей (поляризации) атомов на подуровнях основного состояния в ячейках с покрытием. Действительно, для появления внутридоплеровского резонанса необходимо, чтобы нелинейность, обусловленная действием накачивающей волны, была селективна по скорости атомов. Между тем при столкновении со стенками ячейки атомы, сохраняя наведенную поляризацию, изменяют скорости, что нарушает селективность по продольной скорости и может влиять на амплитуду внутридоплеровского резонанса.

Амплитуда внутридоплеровского резонанса определяется разностью коэффициентов поглощения на резонансной частоте и в ее окрестности (при отстройке на несколько у). В условиях резонанса оба канала накачки приводят к насыщению и уменьшению поглощения, а при отстройке - только второй, обусловленный возвратом атомов, переведенных в непоглощающее состояние, после столкновений со стенками ячейки. Ясно, однако, что степень насыщения, определяемая вторым каналом, по крайней мере в  $\omega_D/\gamma$  раз меньше, поскольку результат накачки за время пролета через пучок в резонансной группе атомов после столкновений со стенками распределяется на весь ансамбль атомов, имеющих доплеровскую ширину линии ω<sub>D</sub>. Таким образом, внутридоплеровские резонансы должны наблюдаться и в ячейках с покрытием, а их контраст должен быть сравним с контрастом для ячейки без покрытия, что подтвердил эксперимент.

Заметим, что в разрабатываемых для геологоразведки магнитометрах используются лазеры с шириной линии генерации в рабочем режиме 50–100 МГц. Кроме того, в магнитометре регистрируется бегущая волна, а обратная волна может возникать только в результате паразитного отражения от выходного окна ячейки. Однако и в этом случае возможно наблюдение внутридоплеровского резонанса, причем с более сложной структурой [15]. Появление узкой структуры в контуре поглощения может приводить к избыточным шумам из-за преобразования фазовых шумов в амплитудные.

### 4. Теоретическая модель

Для анализа результатов экспериментов используем трехуровневую схему атомных уровней, представленную на рис.7. Оптическое излучение с частотой  $\omega = \omega_{31} + \Delta$ , где  $\omega_{31}$  – частота перехода между уровнями 3 и 1,  $\Delta$  – отстройка частоты лазера от резонанасной частоты атома, взаимодействует с атомом на рабочем переходе  $|1\rangle \Leftrightarrow |3\rangle$ и представляет собой либо только бегущую (вдоль оси *z*) волну накачки, либо еще и слабую (пробную) встречную волну. Отвечающие этим волнам частоты Раби вынужденных переходов удовлетворяют условиям слабого насыщения,  $|\Omega_2| \ll |\Omega_1| \ll \gamma$ , где полная ширина  $\gamma = \gamma_1 + \gamma_2$ верхнего рабочего уровня есть сумма парциальных констант спонтанного распада по каналам  $|3\rangle \rightarrow |1\rangle, |2\rangle.$ 

В задаче есть несколько характерных времен. Для простоты можно отвлечься от геометрических факторов и считать, что взаимодействие атомов с лазерным полем



Рис.7. Схема уровней и переходов в теоретической модели.

происходит в течение эффективного времени  $\tau_0$  пролета частицы через поперечное сечение лазерного пучка. После такого пролета атомы сталкиваются со стенками ячейки, так что распределения по скоростям для каждого из состояний |1> и |2> релаксируют за время  $\tau_v$  к равновесным. Взаимодействие с лазерным полем существенно зависит от продольной (вдоль оси пучка) скорости  $v_z \equiv v$ , для которой равновесная функция распределения имеет вид

$$f(v) = \frac{1}{\sqrt{\pi}v_T} \exp\left(-\frac{v^2}{v_T^2}\right),$$

где  $v_T$  – тепловая скорость. По порядку величины  $\tau_v$  совпадает со средним временем пролета атома до стенок ячейки, а также характеризует время возвращения атома в лазерный пучок.

Без ограничения общности можно считать, что  $\tau_v$  в несколько раз больше, чем  $\tau_0$ . Столкновения со стенками приводят и к выравниванию населенностей состояний  $|1\rangle$ и  $|2\rangle$ , т.е. к релаксации внутренних состояний атома с характерным временем  $\tau_g$ .

В ячейках без покрытия  $\tau_g \sim \tau_v$ , и можно считать, что при временах, бо́льших  $\tau_v$ , все входящие в область взаимодействия атомы имеют равновесное распределение по скоростям и равные населенности состояний  $|1\rangle$  и  $|2\rangle$ . Заметим, что энергетический интервал между сверхтонкими подуровнями основного состояния много меньше тепловой энергии, и их населенности пропорциональны их статвесам. Небольшое различие статвесов для  $F_g = 3$ и  $F_g = 4$  (7/16 и 9/16) в модели не учитывается.

В ячейках с антирелаксационным покрытием изменение внутреннего состояния происходит в результате большого числа их столкновений со стенками, так что  $\tau_g \gg \tau_v > \tau_0$ . Поэтому при временах *t* в интервале  $\tau_v$ ,  $\tau_0 < t \leq \tau_g$  входящие в лазерный пучок атомы имеют равновесное скоростное распределение. Однако интегральные по скоростям населенности  $n_{1,2}(t)$  состояний  $|1\rangle$  и  $|2\rangle$  релаксируют, как мы увидим ниже, к результирующему стационарному состоянию медленнее, с эффективной константой 1/T, которая зависит как от взаимодействия с волной накачки, так и от времен  $\tau_0$  и  $\tau_v$ .

### 4.1. Релаксация населенностей в ячейках с покрытием

При взаимодействии с волной накачки в интервале времени  $t_0 \le t \le t_0 + \tau_0$  эволюция населенностей  $\rho_{11}(v,t)$  и  $\rho_{22}(v,t)$  нижних состояний атома, имеющего продольную скорость v, подчиняется уравнениям

$$\dot{\rho}_{11} = -\dot{\rho}_{22} = -\Gamma(\Delta - kv)\rho_{11}.$$
(1)

Входящая сюда величина

$$\Gamma(\Delta - kv) = \gamma_2 \frac{|\Omega_1|^2}{(\Delta - kv)^2 + \gamma^2/4},$$
(2)

где  $\Delta$  – отстройка от резонанса для атома, имеющего нулевую продольную скорость, а kv – доплеровский сдвиг частоты, есть скорость переходов из состояния |1⟩ в непоглощающее состояние |2⟩ через промежуточное состояние |3⟩ в условиях слабого насыщения. Как говорилось выше, на входе в световое поле при  $t = t_0$  диагональные элементы матрицы плотности имеют следующий вид:  $\rho_{11}(v, t_0) =$  $n_1(t_0)f(v)$  и  $\rho_{22}(v, t_0) = n_2(t_0)f(v)$ . Заметим, что полные нормированные населенности  $n_1$  и  $n_2 = 1 - n_1$  можно считать постоянными в течение времени взаимодействия  $\tau_0$ . Проинтегрировав (1) по времени пролета  $\tau_0$ , получим выражения

$$\delta \rho_{11} = -\delta \rho_{22} = -n_1(t_0) f(v) \{1 - \exp[-\Gamma(\Delta - kv)\tau_0]\}, \quad (3)$$

описывающие изменения  $\delta \rho_{11,22} = \rho_{11,22}(v,t_0 + \tau_0) - \rho_{11,22}(v,t_0)$ функций распределений по скоростям в состояниях |1⟩ и |2⟩. Эти изменения, очевидно, имеют противоположные знаки. Фактор в фигурной скобке в (3) описывает локальную по продольной скорости модификацию равновесного распределения f(v). Стоящая в показателе экспоненты величина  $N(\Delta - kv) = \Gamma(\Delta - kv)\tau_0$  есть число переходов из состояния |1⟩ в непоглощающее состояние |2⟩ за время пролета атома через лазерное поле. Если  $N(\Delta - kv) \sim 1$ , то и относительное изменение функции распределения для таких скоростей оказывается порядка единицы.

На следующем, более медленном этапе эволюции локально (по  $v_z \equiv v$ ) деформированные в соответствии с (3) скоростные распределения после столкновений атомов со стенками релаксируют за времена порядка  $\tau_v$  к равновесному распределению, изменяя тем самым полные населенности  $n_1$  и  $n_2 = 1 - n_1$ . Напомним, что в ячейке с покрытием внутренние состояния атома сохраняются в течение большого времени  $\tau_g$ . Поскольку указанные выше изменения населенностей малы и происходят в течение малого по сравнению с  $\tau_g$  интервала времени  $\tau_v \ll \tau_g$ , то

$$\frac{\partial n_{\rm l}}{\partial t} = \frac{1}{\tau_{\rm v}} \int \delta \rho_{\rm l1} dv = -\frac{n_{\rm l}}{T}.$$
(4)

Здесь

$$\frac{1}{T} = \frac{1}{\tau_{\rm v}} \langle 1 - \exp[-\Gamma(\Delta - kv)\tau_0] \rangle, \tag{5}$$

а угловыми скобками обозначено интегрирование по скоростям с равновесным распределением,  $\langle .... \rangle \equiv \int dv f(v) ....$ 

Поскольку основной вклад в этот интеграл дает малая окрестность резонансной скорости  $v_{\rm res} = \Delta/k$ , то при  $|\Delta| \ll kv_T \equiv \omega_{\rm D}$  функцию распределения можно считать постоянной,

$$f(v) \cong \frac{1}{\sqrt{\pi}v_T}.$$

Тогда (5) принимает вид

$$\frac{\tau_{\rm v}}{T} = \frac{\gamma}{\omega_{\rm D}} F(N/2),\tag{6}$$

где функция

$$F(z) = \sqrt{\pi} z e^{-z} [J_0(iz) - iJ_1(iz)]$$
(7)

выражается через функции Бесселя мнимого аргумента, а величина  $z = N/2 = \Gamma(0)\tau_0/2 = 2\gamma_2\tau_0(|\Omega_1|/\gamma)^2$  определяется оптической накачкой в непоглощающее состояние за время пролета атома через поле. С ростом *z*, например при увеличении интенсивности лазерного излучения, функция F(z) монотонно возрастает:  $F(z) \sim z$  при  $z \ll 1$  и  $F(z) \sim \sqrt{z}$  при  $z \gg 1$ . Это означает, что время *T* убывает с ростом интенсивности поля  $I \sim |\Omega_1|^2$  сначала как 1/I, а потом как  $1/\sqrt{I}$ .

Если за время пролета оптическая накачка примерно равна единице, то

$$T \sim \tau_{\rm v} \omega_{\rm D} / \gamma \gg \tau_{\rm v},\tag{8}$$

т.е. время *T* релаксации полной населенности превышает  $\tau_v \ B \ \omega_D / \gamma \gg 1$  раз. Появление такого параметра обусловлено тем, что накачка деформирует скоростные распределения в состояниях  $|1\rangle$  и  $|2\rangle$  только в небольшом ( $\delta v \sim \gamma/k$ ) интервале скоростей. Будучи распределенными за время  $\tau_v$  на интервал скоростей порядка  $v_T$ , эти деформации приводят лишь к незначительному изменению полной населенности:  $\delta n_1/n_1 \sim \delta v/v_T \sim \gamma/\omega_D \ll 1$ . Заметное изменение населенности происходит за больший в  $\omega_D/\gamma$  раз промежуток времени.

Чтобы описать эволюцию населенности  $n_1(t)$  в интервале времени вплоть до  $t \sim \tau_g$ , в правую часть уравнения (4) надо добавить член  $(n_2 - n_1)/\tau_g$ , который отвечает за медленный процесс выравнивания населенностей  $n_1$  и  $n_2 = 1 - n_1$  с характерным временем  $\tau_g$ . Решение получившегося уравнения с начальным условием  $n_1(0) = 1/2$  имеет следующий вид:

$$n_{1}(t) = \frac{1}{2 + \tau_{g}/T} + \frac{1}{2(1 + 2T/\tau_{g})} \exp\left[-\left(\frac{1}{T} + \frac{2}{\tau_{g}}\right)t\right].$$
 (9)

Для ячейки с покрытием справедливо  $\tau_g \gg T$ . Тогда при  $t \gg T$  населенность выходит на стационарное значение  $n_1 \sim T/\tau_g \ll 1$ .

Рассмотренные свойства параметра *T* существенным образом проявляются в различных оптических характеристиках резонансных газов в ячейках с антирелаксационным покрытием.

### 4.2. Переходная характеристика коэффициента поглощения для бегущей волны

На вставке рис.2 показана экспериментальная переходная характеристика для коэффициента поглощения ячейки при импульсном включении излучения фиксированной частоты. Коэффициент поглощения  $\kappa$  волны накачки пропорционален населенности верхнего состояния |3⟩, усредненной по времени пролета  $\tau_0$  атома через поле. В условиях слабого насыщения элемент  $\rho_{33}$  атомной матрицы плотности связан с  $\rho_{11}$  соотношением  $\rho_{33} = (1/\gamma_2) \times$  $\Gamma(\Delta - kv)\rho_{11}$ . Усредняя  $\rho_{11}$  по времени пролета с помощью уравнения (1) и интегрируя по продольной скорости, получаем

$$\kappa(t) \sim \frac{1}{\gamma_2} \frac{n_{\rm l}(t)}{\tau_0} \langle 1 - \exp[-\Gamma(\Delta - kv)\tau_0] \rangle = \frac{1}{\gamma_2} \frac{\tau_{\rm v}}{\tau_0} \frac{n_{\rm l}(t)}{T}.$$
 (10)

На последнем шаге преобразований использовано выражение (5). Долговременная эволюция коэффициента поглощения определяется функцией  $n_1(t)$ , которая описывается формулой (9). Коэффициент поглощения выходит на стационарное значение за время *T*, которое можно оценить с помощью формулы (8). Если положить  $\tau_v \sim d/v_T$ , где *d* – поперечный размер ячейки, то

$$T \sim \frac{\tau_{\rm v}\omega_{\rm D}}{\gamma} \sim \frac{dk}{\gamma}.$$
 (11)

Подставив сюда d = 5 см и параметры D<sub>1,2</sub>-линий  $k \approx 7 \times 10^4$  см<sup>-1</sup> и  $\gamma \approx 3 \times 10^7$  с<sup>-1</sup>, получим  $T \sim 10$  мс. Само стационарное значение коэффициента поглощения, как следует из (9) и (10),

$$\kappa(t \gg T) \sim \frac{\tau_{\rm v}}{\gamma_2 \tau_0 \tau_{\rm g}} \tag{12}$$

пропорционально простой комбинации трех характерных времен –  $\tau_0$ ,  $\tau_v$  и  $\tau_g$ .

Полученные результаты – уменьшение времени T с ростом интенсивности излучения, соотношение (6), оценка (11) его характерного значения при  $N \sim 1$  и независимость величины стационарного поглощения от интенсивности – согласуются с экспериментальными результатами (см. вставку на рис.2).

### 4.3. Поглощение пробной волны при сканировании частоты лазерного излучения

Пробная волна, распространяющаяся навстречу волне накачки, имеет такую же частоту, которая меняется со временем по линейному закону

$$\Delta(t) = \frac{\Delta_0}{\tau_0} t, \tag{13}$$

где  $\Delta_0$  – изменение частоты (для определенности – положительное) за время  $\tau_0$  пролета атома через лазерный пучок. Тогда при  $\Delta_0 \sim \gamma$  внутридоплеровский резонанс регистрируется за время  $\tau_0$ . Время, за которое «прописывается» весь доплеровский контур, определяется из условия  $|\Delta(t)| = \omega_D$ , т. е.  $|t| = t_D \equiv \omega_D \tau_0 / \Delta_0$ . При  $\Delta_0 \sim \gamma$  получаем  $t_D \sim (\tau_0 / \tau_v) T < T$ , т. е. за полное время сканирования система не выходит на режим насыщения в результате взаимодействия с волной накачки. Далее полагаем  $\Delta_0 = \gamma$ , т. к. это значительно упрощает явный вид приводимых аналитических выражений и по порядку величины соответствует скорости изменения частоты в эксперименте, за исключением, очевидно, предельных случаев медленного и приведенного на рис.5 быстрого сканирования.

При изменении частоты поля зависимость *T* от времени определяется выражением

$$\frac{\tau_{\rm v}}{T(t)} = \left\langle 1 - \exp\left\{-\frac{N}{2}\arctan\left[\frac{\Delta(t) - kv}{\gamma}\right]^2\right\} \right\rangle,\tag{14}$$

из которого следует, что 1/T(t) является монотонно убывающей функцией |t|. В области  $|t| \ll t_D$  она остается практически постоянной, а при  $|t| > t_D$  убывает экспоненциально. Если  $N \sim 1$ , то в области  $|t| \leq t_D$  характерное значение  $T \sim \tau_v \omega_D / \gamma$  совпадает с оценкой (8). Можно также отметить, что при  $|t| \ll t_D$  и  $N \ll 1$  формула (14) совпадает с результатом (6), (7).

Использовав (4), получим, что эволюция  $n_1(t)$  с учетом зависимости T(t) имеет следующий вид:

$$n_{\rm l}(t) = \frac{1}{2} \exp\left[-\int_0^\infty \frac{\mathrm{d}\tau}{T(t-\tau)}\right].$$
(15)

Здесь для простоты считалось, что  $t \leq T \ll \tau_g$ . В течение времени сканирования частоты населенность  $n_1(t)$  монотонно убывает от  $n_1(-\infty) = 1/2$  до

$$n_{\rm l}(\infty) = \frac{1}{2} \exp\left[-\int_0^\infty \frac{\mathrm{d}t}{T(t)}\right],$$

где интеграл в показателе экспоненты по порядку величины есть  $t_{\rm D}/T \sim \tau_0/\tau_{\rm v} < 1$ , и сильного опустошения нижнего рабочего уровня не происходит.

Коэффициент поглощения слабой пробной волны, рассчитанный по теории возмущений, пропорционален

$$\kappa_2(t) \sim n_1(t) \Big\langle \frac{1}{\tau_0} \int_{-\tau_0/2}^{\tau_0/2} \frac{\mathrm{d}\tau \, |\Omega_2|^2}{[\Delta(t+\tau) + kv]^2 + \gamma^2/4} \times$$

$$\times \exp\left\{-\int_{-\tau_0/2}^{\tau} \frac{\mathrm{d}\tau'\gamma_2 |\Omega_1|^2}{[\Delta(t+\tau')-kv]^2+\gamma^2/4}\right\}\right\rangle.$$
 (16)

Здесь интеграл по  $\tau$  представляет собой усреднение по времени пролета произведения двух факторов, связанных с воздействием пробного поля ( $\Omega_2$ ) и с накапливающимся во времени эффектом от взаимодействия с волной накачки ( $\Omega_1$ ) атомов с продольной скоростью v. Населенность  $n_1(t)$  слабо изменяется на протяжении времени пролета и поэтому вынесена из-под операции усреднения по  $\tau$ . Выражение (16) описывает эволюцию коэффициента поглощения во всем интервале сканирования частоты. Для анализа экспериментально наблюдаемых особенностей достаточно рассмотреть предельные случаи больших и малых отстроек  $|\Delta(t)|$ .

В области $|\Delta(t)| \gg \gamma$ , т.е. вдали от внутридоплеровского резонанса, формула (16) принимает вид

$$\kappa_2(t) \sim 2\sqrt{\pi} \frac{|\Omega_2|^2}{\gamma \omega_{\rm D}} n_{\rm I}(t) \exp\left[-\frac{\Delta^2(t)}{\omega_{\rm D}^2}\right].$$
(17)

Подчеркнем, что функция  $n_1(t)$  в этом выражении связана с воздействием волны накачки и существенно меняется на временах порядка времени сканирования частоты. Дифференцируя (17) по t, получаем

$$\frac{\mathrm{d}\kappa_2}{\mathrm{d}t} \sim n_\mathrm{I} \exp\left[-\frac{\Delta^2(t)}{\omega_\mathrm{D}^2}\right] \left\{-\frac{1}{T(t)} - \frac{1}{\omega_\mathrm{D}^2} \frac{\mathrm{d}\Delta^2}{\mathrm{d}t}\right\}.$$
(18)

Выражение в фигурной скобке обращается в ноль в точке  $t_0$ , удовлетворяющей условию

$$t_0 T(t_0) = -\frac{1}{2} \left( \frac{\tau_0 \omega_{\rm D}}{\gamma} \right)^2 < 0,$$
(19)

т.е. максимум поглощения реализуется по времени раньше внутридоплеровского резонанса, которому отвечает точка t = 0. Этот результат, очевидно, не зависит от знака изменения частоты. Если  $T \sim \tau_v \omega_D / \gamma$ , то  $|t_0| \sim (\tau_0 / \tau_v) t_D$ , т. е. максимум поглощения реализуется в пределах времени сканирования, а  $|\Delta(t_0)| \sim \tau_0 \omega_D / \tau_v \gg \gamma$ . Из (17) видно, что сдвиг максимума поглощения обусловлен конкуренцией двух факторов - убывания населенности рабочего уровня |1> из-за оптической накачки и увеличения вероятности поглощения из-за приближения к центру линии. Эти результаты согласуются с результатами эксперимента, представленными на рис.3 (верхняя кривая) и на рис.4. Заметим, что с увеличением скорости сканирования  $\Delta_0/\tau_0$ , которую мы полагали равной  $\gamma/\tau_0$ , сдвиг  $|t_0|$  уменьшается пропорционально  $(\tau_0/\Delta_0)^2$ . Поэтому при достаточно большой скорости сканирования, когда время прохождения линии становится много меньше Т, смещение максимума поглощения относительно невозмущенной атомной частоты практически исчезает, что согласуется с экспериментальной кривой на рис.5.

Для описания внутридоплеровского резонанса рассмотрим коэффициент поглощения (17) вблизи t = 0, когда  $|\Delta(t)| \ll \gamma$ . Пусть, кроме того,  $N \ll 1$ . Тогда для  $\kappa_2(t)$ получим

$$\kappa_2(t) \sim 2\sqrt{\pi} \frac{|\Omega_2|^2}{\gamma \omega_{\rm D}} n_{\rm l}(0) \left[ 1 + \frac{N\Delta^2(t)}{\gamma^2} \right],\tag{20}$$

откуда следует, что коэффициент поглощения имеет локальный минимум в центре линии, т.е. в точке t = 0, где отстройка  $\Delta = 0$ . Локальный минимум в центре линии поглощения и означает появление внутридоплеровского резонанса. Таким образом, в этом разделе теория достаточно хорошо описывает экспериментально наблюдаемые особенности переходных и спектральных характеристик поглощения в ячейках с покрытием при сканировании частоты лазерного поля.

### 5. Заключение

Исследованы характерные особенности поглощения лазерного излучения на резонансных линиях атомов Cs в ячейках с антирелаксационным покрытием. Установлено, что, несмотря на потерю селективности оптической накачки по продольной скорости при соударениях со стенкой, в таких ячейках возможно формирование высококонтрастных внутридоплеровских резонансов. В приближении трехуровневой теоретической модели дано объяснение большинства наблюдавшихся эффектов, дополненное качественной интерпретацией. За рамками данной статьи остался ряд эффектов, связанных с оптической накачкой на непоглощающие зеемановские подуровни, с влиянием циркулярной поляризации, ориентации магнитного поля и фазовых шумов лазерного излучения. Перечисленные важные эффекты исследуются в связи с разработкой лазерного энергоэффективного магнитометра и будут описаны в следующей публикации. Работа выполнена при финансовой поддержке Минобрнауки РФ (госконтракт 12.527.12.5007 от 14.06.2012г.).

- 1. Demtreder W. Laser Spectroscopy (New York: Springer, 2003).
- Pappas P.G., Burns M.M., Hinshelwood D.D., Feld M.S. *Phys. Rev. A*, 21, 1955 (1980).
- Померанцев Н.М., Рыжов В.М., Скроцкий Г.В. Физические основы квантовой магнитометрии (М.: Наука, 1972).
- 4. Budker D., Romalis M. Nature Phys., 3, 227 (2007).
- 5. Александров Е.Б., Вершовский А.К. УФН, 179, 605 (2009).
- Kominis, I.K., Kornack, T.W., Allred J.C., Romalis M.V. *Nature*, 422, 596 (2003).
- 7. Vanier J., Audoin C. *The Quantum Physics of Atomic Frequency Standards* (Bristol Philadelphia: Adam Hilger, 1989).
- Budker D., Hollberg L., Kimball D.F., Kitching J., Pustelny S., Yashchuk V.V. *Phys. Rev. A*, **71**, 012903-1-9 (2005).
- 9. Groeger S., Pazgalev A.S., Weis A. Appl. Phys. B, 80, 645 (2005).
- Холодов Ю.А., Козлов А.Н., Горбач А.М. Магнитные поля биологических объектов (М.: Наука, 1987).
- 11. Bison G. et al. *Intern. Congress Ser.*, **1300**, 561 (2007).
- Vasiliev V., Zibrov S.A., Velichansky V.L. Rev. Sci. Instrum., 77, 013102 (2006).
- Быковский Ю.А., Величанский В.Л., Маслов В.А., Егоров В.К. Письма в ЖЭТФ, 19, 665 (1974).
- 14. Зибров С.А., Дудин Я.О., Раднаев А.Г., Васильев В.В., Величанский В.Л., Бражников Д.В., Тайченачев А.В., Юдин В.И. Письма в ЖЭТФ, 85, 515 (2007).
- Васильев В.В., Величанский В.Л., Зибров С.А., Сивак А.В., Бражников Д.В., Тайченачев А.В., Юдин В.И. ЖЭТФ, 139, 883 (2011).