# Измерение абсолютных частот эмиссионных переходов молекулярного иода в области 1053–1068 нм

М.И.Нестеренко, С.М.Игнатович, С.А.Кузнецов, Ю.А.Матюгин, М.Н.Скворцов

Приведены результаты высокоточных измерений частот отдельных компонент сверхтонкой структуры  $^{127}I_2$ , соответствующих эмиссионным переходам полосы B-X в области 1053-1068 нм. Измерение частот осуществлялось с помощью фемтосекундного синтезатора оптических частот на базе титан-сапфирового лазера. Для разрешения сверхтонкой структуры эмиссионных линий использовался метод трехуровневой лазерной спектроскопии. Возбуждающим излучением служила вторая гармоника непрерывного Nd:YAG-лазера, а зондирующее излучение в диапазоне 1050-1070 нм генерировалось диодным лазером с внешним резонатором. Частоты обоих лазеров одновременно привязывались к частотам двух смежных компонент сверхтонкой структуры линий иода, имеющих общий верхний уровень. Соответственно частота Nd:YAG-лазера привязывалась к частоте компоненты абсорбционного перехода, а частота диодного лазера – к частоте компоненты эмиссионного перехода. Измерялась частота излучения «привязанного» таким образом диодного лазера. Были измерены частоты 18 компонент сверхтонкой структуры для шести эмиссионных линий, соответствующих полосам (32-54) и (32-53). Относительная погрешность измерения составила  $8 \times 10^{-10}$ .

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

## 1. Введение

В настоящее время с высокой точностью измерены частоты нескольких сотен переходов молекулы иода. Все измерения выполнены для абсорбционного спектра системы В-Х, в основном для диапазонов 526-667 нм и 750-815 нм. Детальная библиография по данной теме (до 2010 г.) приведена в работах [1-7]. Анализ всего массива результатов высокоточных измерений, проведенный в работе [2], показал, что исследуемые переходы включают в себя колебательные уровни В-состояния с квантовыми числами v' ≤ 43 и колебательные уровни Х-состояния с квантовыми числами v'' в диапазонах  $0 \le v'' \le 7$  и  $12 \le 12$ *v* ′′ ≤ 17. Результаты этих измерений позволили уточнить энергии указанных колебательных уровней и форму потенциальной кривой В-состояния и, в конечном счете, получить уточненные значения спектроскопических параметров иода для полосы В-Х. Эти параметры, в свою очередь, дают возможность вычислять с высокой точностью частоты любых абсорбционных переходов полосы В-Х. Благодаря данному обстоятельству спектр поглощения иода может выполнять функцию частотной шкалы для калибровки частоты лазеров с точностью не хуже 10<sup>-9</sup>. За последние годы были выполнены высокоточные измерения частот ещё ряда абсорбционных переходов иода в диапазоне 548-671 нм [8-12].

Для построения более точной потенциальной кривой основного электронного X-состояния полученных дан-

Поступила в редакцию 30 октября 2018 г.

ных недостаточно, при этом дополнительные данные невозможно получить на основе измерения частот абсорбционных переходов, т. к. в формировании спектра поглощения участвуют лишь несколько самых нижних термически заселенных колебательно-вращательных уровней Х-состояния. Необходимые данные для основного электронного состояния можно получить только на основе измерений частот эмиссионных переходов, поскольку эмиссионный спектр формируется за счет переходов с возбужденного электронного уровня В-состояния на любой из уровней Х-состояния.

На сегодняшний день для построения потенциальной кривой Х-состояния используются данные, полученные на основе измерения частот доплеровски уширенных эмиссионных линий с неразрешенной сверхтонкой структурой [13]. Точность таких измерений, выполненных с помощью фурье-спектрометра, составляет 2×10<sup>-7</sup>.

Возможность высокоточных измерений частот эмиссионных переходов была продемонстрирована нами в 2008 и 2012 гг. в работах [5, 7]. Для получения узких оптических резонансов, соответствующих компонентам сверхтонкой структуры (СТС) эмиссионных линий, использовался метод трехуровневой лазерной спектроскопии [14]. Чтобы получить эмиссионные резонансы с частотой, точно равной частоте эмиссионного перехода, был использован метод, основанный на одновременной привязке частот излучения двух лазеров к частотам двух смежных переходов с общим верхним уровнем. При этом один из переходов абсорбционный, а второй - эмиссионный. Для абсорбционного перехода получение оптического резонанса осуществляется методом насыщенного поглощения, а для эмиссионного - методом трехуровневой лазерной спектроскопии. Лазер, частота излучения которого привязана к частоте абсорбционного резонанса, выполняет функцию лазера накачки в методе трехуровневой

М.И.Нестеренко, С.М.Игнатович, С.А.Кузнецов, Ю.А.Матюгин, М.Н.Скворцов. Институт лазерной физики СО РАН, Россия, 630090 Новосибирск, просп. Акад. Лаврентьева, 15Б; e-mail: maxnest@gmail.com

спектроскопии. Одночастотное излучение этого лазера возбуждает на верхний электронный уровень только те молекулы, проекции скоростей которых на ось лазерного пучка близки к нулю. В результате в спектре эмиссионного перехода возникает узкий оптический резонанс, центр которого точно соответствует частоте перехода. Такой резонанс может использоваться в качестве частотного репера для стабилизации частоты лазеров и, соответственно, для измерения частоты излучения эмиссионного перехода.

Используя предложенную методику и фемтосекундный синтезатор оптических частот, мы впервые измерили с относительной погрешностью  $7 \times 10^{-10}$  частоты 20 эмиссионных компонент СТС в диапазоне 982–985 нм [7]. Проведение подобных высокоточных измерений во всем диапазоне эмиссионного спектра иода создаст базу данных для построения более точной потенциальной кривой основного электронного состояния молекулы иода и получения более точных спектроскопических параметров, используемых для расчета частот эмиссионных переходов. В результате эмиссионный спектр сможет выполнять функцию частотной шкалы для высокоточной калибровки частоты излучения лазеров в диапазоне 500–1340 нм.

В настоящей работе представлены результаты высокоточных измерений компонент СТС эмиссионных линий молекулы  $^{127}I_2$  в области 1053–1068 нм, соответствующих полосам (32–53) и (32–54) системы B–X.

#### 2. Экспериментальная установка

Экспериментальная установка включает в себя лазерный спектрометр, обеспечивающий привязку частоты излучения диодного лазера к частоте эмиссионного перехода иода и измерительный комплекс на базе фемтосекундного синтезатора оптических частот. Измерительный комплекс обеспечивает абсолютное измерение частоты излучения диодного лазера и исследование его частотных характеристик.

Лазерный спектрометр представляет собой комбинацию двух спектрометров: спектрометра насыщенного поглощения и трехуровневого спектрометра. Первый обеспечивает привязку частоты излучения лазера накачки к частоте абсорбционного перехода, а второй - частоты излучения зондирующего лазера к частоте эмиссионного перехода. Детальное описание установки приведено в работах [5, 7]. В процессе настоящей работы в установку были внесены лишь несущественные изменения. Принципиальная схема спектрометра показана на рис.1. В качестве возбуждающего излучения в спектрометре используется вторая гармоника непрерывного Nd: YAG-лазера. Зондирование эмиссионного перехода осуществляется излучением диодного лазера с внешним резонатором. Пучки излучения обоих лазеров совмещаются в ячейке с парами иода.

В работе используется Nd:YAG-лазер с диодной накачкой и внутрирезонаторным преобразованием частоты, разработанный в Институте лазерной физики CO PAH (Новосибирск) [15]. Лазер имеет кольцевой непланарный резонатор, обеспечивающий одночастотный режим генерации с однонаправленной бегущей волной. Резонатор термостабилизирован и имеет жесткую конструкцию, что обеспечивает узкую (не более 10 кГц) линию излучения лазера в свободном режиме. Диапазон пе-



Рис.1. Схема лазерного спектрометра для трехуровневой спектроскопии молекулярного иода:

АПЧ1, АПЧ2 – системы автоматической подстройки частоты; ЭОМ – электрооптический модулятор; ФД1 – фотодетектор для длины волны 532 нм, ФД 2 – фотодетектор для длин волн 1050–1070 нм; П1, П2 – поляризаторы; Л1–Л3 – линзы; З2 – полупропускающее зеркало; З1, З3, З4 – дихроичные зеркала.

рестройки частоты излучения лазера составляет 300 ГГц (1064.0–1065.3 нм), при этом вторая гармоника излучения перестраивается в диапазоне 532.6–532.0 нм. Ее мощность на выходе лазера составляет ~7 мВт в центре диапазона перестройки и уменьшается вдвое на его краях.

Источником зондирующего излучения служит перестраиваемый диодный лазер с внешним резонатором, построенным по автоколлимационной схеме и имеющим V-образную конфигурацию, подобную использованной ранее в работе [16]. Сколлимированный микрообъективом пучок попадает на полупрозрачное зеркало, которое направляет его под требуемым углом дифракции на решетку (1800 штрих./мм), укрепленную неподвижно на пьезокерамике.

Грубая подстройка частоты в пределах линии усиления лазерного диода осуществлялась поворотом выходного зеркала. Более точная настройка достигалась изменением в небольших пределах температуры и тока возбуждения лазерного диода. При этом добивались такого режима работы лазера, при котором требуемая частота зондирующего излучения попадает в середину диапазона непрерывной перестройки частоты. Точная настройка на заданную частоту производилась изменением напряжения, подаваемого на пьезоэлемент, на котором крепилась дифракционная решетка. Диапазон непрерывной перестройки без перескоков частоты составлял ~2.5 ГГц. Границы перескоков можно было сдвигать изменением тока возбуждения в пределах 2 мА.

В настоящей работе использовался лазерный диод с просветленной выходной гранью серии QLD-1060-50S-AR (QPHOTONICS). Лазер обеспечивал перестройку длины волны в диапазоне 1050–1070 нм. Выходная мощность составляла 5–7 мВт. С помощью пары аморфотных призм эллиптическое сечение выходного пучка преобразовывалось в круглое. Часть излучения (2–3 мВт) направлялась в ячейку с иодом, а оставшаяся часть – в высокоточный измеритель длин волн HighFinesse WS7.

Стеклянная ячейка с парами иода имела длину 30 см. Давление паров в ячейке регулировалось за счет изменения температуры отростка, охлаждаемого элементом Пельтье. Температура отростка стабилизировалась с точностью 10 мК электронной системой регулирования.

В ячейке с иодом пространственно совмещались три лазерных пучка: пучок насыщающего излучения высокой интенсивности на частоте второй гармоники Nd:YAG-лазера, пучок малоинтенсивного пробного излучения на той же частоте и зондирующий пучок диодного лазера. Последние два пучка направлялись навстречу насыщающему пучку. С помощью линз формировались такие конфигурации пучков, чтобы все перетяжки располагались в центре ячейки. При этом диаметр перетяжек пучков Nd:YAG-лазера был равен 0.5 мм, а перетяжки зондирующего пучка диодного лазера – 0.4 мм.

Насыщающий пучок изменяет населенность верхнего и нижнего уровней в узком интервале проекций скоростей молекул на ось пучка. В результате в доплеровском контуре поглощения возникает узкий провал, а в контуре смежного эмиссионного перехода – узкий пик. Поскольку насыщающий пучок взаимодействует одновременно с несколькими компонентами СТС линии поглощения иода, доплеровские контуры которых перекрываются, то провалы и пики возникают в контурах всех компонент. На абсорбционном переходе регистрируется провал только для той компоненты, для которой взаимодействие происходит в центре доплеровского контура, где атомы имеют нулевую проекцию скорости на ось насыщающего пучка и, соответственно, нулевой доплеровский сдвиг. Благодаря этому оба пучка, насыщающий и зондирующий, взаимодействуют с одними и теми же атомами. Таким образом, в случае привязки частоты излучения лазера к частоте провала контура поглощения она будет точно равна частоте перехода.

На смежном эмиссионном переходе при перестройке частоты излучения зондирующего лазера регистрируются пики для всех компонент, с которыми взаимодействует насыщающее излучение. В нашем эксперименте частота излучения зондирующего лазера привязывалась к частоте пика, образованного возбужденными атомами с нулевыми проекциями скоростей. Только в этом случае частота излучения лазера точно равна частоте эмиссионного перехода. Указанное выше условие автоматически выполняется при одновременной привязке частот излучения возбуждающего и зондирующего лазеров к частотам компонент СТС линий иода, соответствующих переходам с общим верхним уровнем. Практически реализовать данное условие не сложно, т.к. сверхтонкие структуры абсорбционной и эмиссионной линий примерно одинаковы.

Для регистрации оптических резонансов использовалась модуляция частоты насыщающего излучения электрооптическим модулятором (ЭОМ) [17]. Частота модуляции составляла 1 МГц при индексе модуляции 0.5. Частотная модуляция насыщающего излучения приводит к модуляции коэффициента поглощения на абсорбционном переходе, коэффициента усиления на эмиссионном и, соответственно, коэффициентов преломления на частотах этих переходов. В результате пробное и зондирующее излучения после прохождения через ячейку с иодом оказываются промодулированными по амплитуде и фазе. Пробное излучение после ячейки регистрируется кремниевым фотодиодом ФД 265, а зондирующее – InGaAs-pinфотодиодом ДФД2000ТО. Сигналы с фотодиодов подаются на фазовые детекторы. Резонансы, полученные в результате детектирования, имеют дисперсионную форму и используются в качестве сигнала ошибки для стабилизации частот излучения обоих лазеров с помощью систем автоматической подстройки частоты (АПЧ).

Системы АПЧ обоих лазеров имеют по два кольца управления – быстрое и медленное. Быстрое кольцо обеспечивает отработку высокочастотных возмущений частоты, медленное кольцо – низкочастотных возмущений, а также медленных изменений частоты, возникающих под действием изменения температуры и давления окружающей среды. В диодном лазере быстрое управление частотой излучения осуществляется изменением тока инжекции, а медленное – с помощью пьезоэлемента, на котором установлена дифракционная решётка. Подстройка частоты излучения Nd: YAG-лазера осуществляется 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.

Излучение диодного лазера, привязанное по частоте к выбранной компоненте СТС иода, направляется на частотно-измерительный комплекс с помощью оптоволоконного кабеля длиной 20 м. В трехуровневом спектрометре стабильность частоты излучения и абсолютное значение частоты зондирующего лазера, привязанной к частоте эмиссионного резонанса, зависят от частоты излучения лазера накачки. В нашей установке была предусмотрена возможность контролировать частоту излучения накачки и измерять её абсолютное значение. Для этого длинноволновая составляющая выходного излучения Nd:YAGлазера накачки выделялась с помощью дихроичного зеркала 31 и совмещалась на зеркале 32 с излучением диодного лазера; суммарное излучение подавалось на оптоволоконный кабель.

Детальное описание частотно-измерительного комплекса для абсолютного измерения частоты приведено в работе [7]. Основу комплекса составляет синтезатор эквидистантных оптических частот, созданный на базе фемтосекундного Ті: сапфирового лазера с частотой следования импульсов ~495 МГц. Генерируемый лазером частотный суперконтинуум затем расширяется с помощью микроструктурированного оптического волокна (Femtowhite800), в результате чего генерируется суперконтинуум, занимающий спектральный интервал 500–1100 нм. В настоящей работе, в отличие от работы [7], не было необходимости использовать дополнительное микроструктурированное волокно, т. к. в генерируемом суперконтинууме в диапазоне 1053–1068 нм интенсивность частотных компонент была достаточной для проведения измерений.

В синтезаторе стабилизация межмодовой частоты излучения Ті: сапфирового лазера осуществляется за счет 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 по известным значениям частоты Nd: YAG/I<sub>2</sub>-стандарта и частоты сдвига может быть вычислено точное значение межмодовой частоты. Предусмотрено также высокоточное измерение межмодовой частоты с помощью водородного стандарта.

Точность используемой системы определяется точностью используемых стандартов частоты – Nd:YAG/I<sub>2</sub>стандарта и водородного стандарта. Перед началом измерений водородный стандарт был аттестован в Новосибирском метрологическом центре. В дальнейшем была налажена его поверка с использованием GPS. Воспроизводимость частоты водородного стандарта составляет 10<sup>-13</sup>. В качестве Nd:YAG/I<sub>2</sub>-стандарта использовалась последняя модификация стандарта (ILP 1064/532– 30/50–2А), разработанного в Институте лазерной физики СО РАН. Детальное описание стандарта приведено в работах [15, 18, 19]. Стандарт обладает высокой частотной стабильностью – дисперсия на стандартное отклонение за 1 с равна ~10<sup>-13</sup>, за 6×10<sup>4</sup> с – около 10<sup>-15</sup>. Воспроизводимость частоты стандарта  $\Delta v/v \approx 3 \times 10^{-13}$  [18].

Для более ранней модификации Nd:YAG/I<sub>2</sub>-стандарта, созданного в Институте лазерной физики, были проведены исследования воспроизводимости частоты в Институте квантовой оптики (Германия) путем сравнения его с Nd:YAG/I<sub>2</sub>-стандартом частоты, изготовленным в PTB (Германия) [20]. Комбинированная воспроизводимость частот двух лазерных систем оказалась не хуже 1.5 кГц. Там же были выполнены абсолютные измерения частот ряда переходов І2 в области 532 нм, в том числе перехода R56 (32-0) a1 [21]. К частоте этого перехода была привязана частота используемого в данной работе стандарта. Измеренное значение частоты перехода (563259651965.5 кГц) использовалось в качестве опорного при вычислении межмодовой частоты синтезатора. Оно отличается от рекомендованного СІМР [22] значения частоты R56(32-0)a<sub>1</sub>, равного 563259651971 ± 9.2 кГц. Как показано в работе [20], это различие можно объяснить разной температурой охлаждаемого отростка в иодной ячейке используемого в работе стандарта ( $T = -5 \,^{\circ}\text{C}$ ) и в установке, на которой получены результаты измерений, рекомендованные СІМР (T = -15°C). Данному различию температур соответствует разность давлений 12 мТор, а измеренный сдвиг от давления для данного диапазона  $\Delta v / \Delta p = \pm 555$  Гц/мТор [18].

В процессе работы воспроизводимость частоты Nd:YAG/I<sub>2</sub>-стандарта периодически контролировалась сравнением его частоты с частотой второго аналогичного стандарта. Кроме того, с помощью синтезатора измерялось абсолютное значение частоты стандарта. Для этого использовались значения межмодовой частоты синтезатора, измеренные с помощью водородного стандарта. Кроме того, в процессе каждого измерения при вычислении измеряемой частоты использовались оба значения межмодовой частоты, полученные двумя разными методами. Сравнение двух значений частоты перехода, полученных таким способом, позволяло контролировать точность измерений, которая обычно не выходила за пределы  $\pm 1$  кГц.

### 3. Эксперимент

Выбор эмиссионных переходов, частоты которых могут быть измерены с помощью нашей установки, определяется диапазонами перестройки обоих лазеров. В диапазон перестройки второй гармоники Nd: YAG-лазера попадают линии поглощения, принадлежащие полосам v' - v'' =(32 - 0), (33 - 0), (34 - 0), (35 - 0). Наибольшую интенсивность имеют линии полос (32 – 0) и (33 – 0). Из эмиссионных переходов, начинающихся с уровней v'' = 32 и 33, в диапазон перестройки диодного лазера попадают полосы v' - v'' = (32 - 53), (32 - 54), (33 - 54). Однако эмиссионные переходы для полосы (33 – 54) значительно слабее, чем для первых двух полос, в результате амплитуда резонансов на этих переходах была недостаточна для устойчивой привязки частоты излучения диодного лазера. Таким образом, для проведения измерений были выбраны полосы (32-53) и (32-54). В каждой из полос были отобраны по три линии с разными вращательными числами, а в каждой линии - по три компоненты сверхтонкой структуры. В табл.1 представлены отобранные линии поглоще-

Табл.1. Линии поглощения и эмиссионные переходы, использованные для измерений.

Линии накачки Полоса (32-0)			Эмиссионные линии					
			Полоса (32-53)			Полоса (32-54)		
	<i>v</i> (см <sup>-1</sup> )	λ (нм)		v (см <sup>-1</sup> )	λ (нм)		v (см <sup>-1</sup> )	λ (нм)
P54	18786.7726	532.29	P54	9487.543	1054.01	P54	9360.580	1068.31
R56	18788.3427	532.24	R56	9490.884	1053.64	R56	9363.981	1067.92
R60	18781.4413	532.44	R60	9487.722	1053.99	<b>R</b> 60	9360.926	1068.27

ния, используемые для накачки, и эмиссионные линии, соответствующие которым переходы имеют общий колебательно-вращательный уровень с переходом, ответственным за соответствующую линию накачки. Коэффициенты поглощения излучения накачки в ячейке для всех выбранных линий накачки были одинаковы.

Излучение диодного лазера, поступающее на частотно-измерительный комплекс с оптоволоконного кабеля, смешивалось со спектрально уширенным излучением Ті:сапфирового лазера и подавалось на быстродействующий фотодетектор, который регистрировал биения частоты излучения диодного лазера с частотными компонентами суперконтинуума. С помощью радиочастотного полосового фильтра выделялся наиболее низкочастотный сигнал, затем он гетеродинировался, усиливался и подавался на частотомер.

Исследование частотных характеристик лазера накачки осуществлялось путем прямого сравнения частоты его излучения с частотой Nd: YAG/I<sub>2</sub>-стандарта, входящего в состав частотно-измерительного комплекса. Поскольку частота излучения лазера накачки стабилизировалась по резонансу насыщенного поглощения на том же переходе, что и частота Nd: YAG/I<sub>2</sub>-стандарта, то, чтобы уйти от проблемы измерения нулевых биений, измерялась частота биений частот излучения лазера накачки и второго Nd: YAG-лазера, входящего в состав Nd: YAG/I<sub>2</sub>-стандарта. Частота излучения этого лазера привязывалась к частоте стандарта посредством фазовой автоподстройки со сдвигом частоты на 40 МГц. Полученный таким образом сигнал биений подавался на частотомер.

Измерение частоты проводилось с интервалом 1 с в течение от 10 до 40–50 мин. По результатам измерения определялись среднее значение частоты и среднеквадратичное отклонение. При этом за один сеанс измерения среднеквадратичное отклонение находилось в пределах 2-8 кГц. Полученные данные использовались для построения функций Аллана. На рис.2 представлены функции Аллана для излучений диодного лазера и лазера накачки. Лазер накачки стабилизировался по резонансу насыщенного поглощения на переходе  $R56(32-0)a_1$ , а диодный лазер – по эмиссионному резонансу, соответствующему переходу  $R56(32-54)a_1$ . Приведенные функции Аллана, характеризующие нестабильность частоты биений, обусловлены, в основном, нестабильностью частот

 $10^{-11}$ 

Рис.2. Функции Аллана для частот излучений диодного лазера (1) и лазера накачки (2).

излучения только диодного лазера и лазера накачки, т. к. нестабильность частот излучения Ti:сапфирового лазера и Nd:YAG/I<sub>2</sub>-стандарта меньше нестабильности частоты биений более чем на порядок [18].

По результатам измерения частоты биений между частотами излучения лазера накачки и Nd: YAG/I2-стандарта было определено абсолютное значение частоты излучения лазера накачки. Ее сдвиг относительно опорной частоты составил 24.1 ± 1.1 кГц. Необходимо учесть, что существует еще сдвиг частоты, обусловленный разностью давлений паров иода в ячейке нашей установки и в ячейке стандарта частоты. Температура холодного отростка ячейки, при которой проводились измерения, поддерживалась равной 8 ± 0.1 °C. Этой температуре соответствует давление паров иода 68 мТор, в стандарте же давление в ячейке соответствует температуре -5°С и равно 18 мТор. Чтобы определить сдвиг частоты из-за различия давлений, было проведено измерение сдвига частоты излучения лазера накачки в зависимости от давления паров иода. В диапазоне 40-87 мТор измеренный коэффициент сдвига составил  $-375 \pm 40$  Гц/мТор.

На рис.3 приведена полученная зависимость и ее линейная аппроксимация. Видно, что из-за разности давлений в ячейках должен наблюдаться отрицательный сдвиг частоты излучения лазера накачки на 19 ± 2 кГц относительно опорной частоты стандарта, т. е. реальный сдвиг частоты на эту величину больше измеренного сдвига и равен 43  $\pm$  2 кГц. Был также измерен сдвиг, обусловленный влиянием зондирующего излучения диодного лазера, настроенного на смежный переход. Для этого осуществлялась запись частоты биений при наличии и в отсутствие зондирующего излучения. Наличие зондирующего излучения в ячейке приводило к заметному отрицательному скачку частоты. Биения в каждом состоянии усреднялись за время ~300 с. Величина сдвига, усредненная по четырем таким измерениям, составила 4 ± 0.92 кГц.

Чтобы судить о воспроизводимости результатов проведенных измерений, была многократно измерена каждая из частот. На протяжении четырех месяцев было проведено 16 серий измерений. При этом каждая из частот измерялась не менее четырех раз, а для отдельных переходов с большим разбросом результатов измерения повторялись многократно (до 8–10 раз). На рис.4 при-



Рис.3. Зависимость сдвига частоты излучения лазера накачки от давления паров иода в ячейке.



Рис.4. Разброс результатов измерений частоты компоненты R 56(32-53) a<sub>1</sub> в сериях измерений.

ведены результаты пяти серий измерений компоненты R56(32 – 53)a<sub>1</sub>, проведенных за несколько дней. Каждая серия измерений на рисунке – это результат усреднения около 1500 точек значений частоты биений, каждое из которых получено путем измерения частотомером со временем счета 1 с.

Все измерения проводились при температуре холодного отростка в ячейке 8 °С. Мощность излучения накачки на входе в ячейку находилась в пределах 1-3 мВт, мощность излучения диодного лазера на входе в ячейку составляла 0.5-1 мВт.

Для каждого перехода иода результирующая частота была определена как среднее значение результатов ее отдельных измерений. Полученные таким образом данные представлены в табл.2. Цифры в скобках – среднеквадратичные отклонения результатов измерений, которые более чем на порядок превышают среднеквадратичные отклонения результатов, полученных в пределах одной серии измерений. Данное обстоятельство свидетельствует о существовании трудно контролируемых факторов, влияющих на точность привязки частоты излучения лазера к

Табл.2. Результаты измерений частот эмиссионных переходов иода.

Полоса	Линия	Компоненты	Частота перехода (кГц)
		a <sub>1</sub>	284 429 077 823 (53)
	P54	a <sub>10</sub>	284 429 591 515 (90)
		a <sub>15</sub>	284 429 849 150 (58)
		a <sub>1</sub>	284 529 234 167 (40)
(32-53)	R56	a <sub>10</sub>	284 529 747 885 (42)
		a <sub>15</sub>	284 530 005 268 (50)
		a <sub>1</sub>	284 434 462 269 (2)
	R60	a <sub>10</sub>	284 434 975 997 (50)
		a <sub>15</sub>	284 435 233 244 (41)
		$a_1$	280 623 120 447 (158)
	P54	a <sub>10</sub>	280 623 630 250 (14)
		a <sub>15</sub>	280 623 885 830 (28)
		$a_1$	280 724 800 547 (154)
(32-54)	R56	a <sub>10</sub>	280 725 310 791(146)
		a <sub>15</sub>	280 725 566 005 (120)
		a <sub>1</sub>	280 633 244 603 (235)
	R60	a <sub>10</sub>	280 633 754 285 (37)
		a <sub>15</sub>	280 634 009 710 (10)

частоте исследуемого перехода. Если принять, что точность наших измерений определяется наихудшим результатом, то относительная погрешность полученных частот должна составлять  $8 \times 10^{-10}$ . Сравнивать измеренные значения частот с расчетными значениями, полученными на основании спектроскопических параметров, не корректно, т. к. измеренные значения соответствуют отдельным линиям переходов между компонентами СТС иода, а расчетные – центру линии, которая представляет собой совокупность доплеровских контуров линий всех преходов между компонентами СТС.

В настоящей работе была использована созданная ранее экспериментальная установка, предназначенная, в основном, для демонстрации принципиальных возможностей предлагаемого метода, позволяющего проводить абсолютное измерение частот эмиссионных переходов иода. Планировалась ее модернизация с целью повышения воспроизводимости результатов измерений, однако в рамках настоящего проекта все предполагаемые усовершенствования реализовать не удалось. Было решено все же опубликовать уже полученные результаты в надежде, что они будут представлять несомненный интерес, т. к. точность полученных в работе данных значительно (на два порядка) превышает точность имеющихся на сегодняшний день экспериментальных данных для рассмотренных выше переходов [13].

#### 4. Обсуждение результатов

Погрешность измерения частоты эмиссионного перехода в выполненных экспериментах может быть связана с неточностью привязки частоты излучения диодного лазера к центру эмиссионного резонанса, а также с неточностью привязки частоты излучения лазера накачки к частоте абсорбционного перехода. В трехуровневом спектрометре зависимость частоты эмиссионного резонанса от частоты излучения накачки определяется следующим соотношением [5]:

$$\omega^{\pm} = \omega_{\rm em} \pm (\omega_{\rm p} - \omega_{\rm a})\omega_{\rm em}/\omega_{\rm a}.$$
 (1)

Здесь  $\omega^+$  и  $\omega^-$  – центральные частоты эмиссионных резонансов для однонаправленного и встречного распространения пучка накачки и зондирующего пучка соответственно;  $\omega_{\rm em}$  и  $\omega_{\rm a}$  – частоты эмиссионного и абсорбционного переходов;  $\omega_{\rm p}$  – частота излучения накачки. Из приведенных соотношений получаем

$$\Delta \omega^{+} = \Delta \omega_{\rm p} \omega_{\rm em} / \omega_{\rm a} \quad \text{i} \quad \Delta \omega^{-} = -\Delta \omega_{\rm p} \omega_{\rm em} / \omega_{\rm a}, \tag{2}$$

где  $\Delta \omega^+ = \omega^+ - \omega_{\rm em}$  и  $\Delta \omega^- = \omega^- - \omega_{\rm em}$  – сдвиги частот эмиссионных резонансов от центра эмиссионного перехода;  $\Delta \omega_{\rm p} = \omega_{\rm p} - \omega_{\rm a}$  – сдвиг частоты излучения накачки от центра абсорбционного перехода. Из соотношения (2) видно, что в условиях настоящего эксперимента сдвиг частоты эмиссионного резонанса составляет примерно половину сдвига частоты излучения накачки. При этом для случая однонаправленного распространения пучков направления сдвигов совпадают, а для встречных пучков они противоположны.

Факторы, влияющие на воспроизводимость частоты излучения Nd: YAG-лазера, стабилизированного по резонансу насыщенного поглощения, в настоящее время хорошо изучены, и предложены методы, позволяющие минимизировать их влияние [23-25]. При использовании фазовой модуляции для получения сигнала ошибки наибольший вклад в ухудшение точности привязки частоты вносит паразитная амплитудная модуляция мощности пробного излучения. Она влечет за собой появление сигнала на частоте модуляции, величина которого практически не меняется при перестройке частоты излучения лазера, что приводит к появлению при фазовом детектировании постоянной составляющей сигнала. Полезный сигнал, используемый в качестве сигнала ошибки, имеет форму дисперсионной кривой, нулевая точка которой соответствует частоте перехода. При стабилизации частота излучения лазера привязывается к точке, соответствующей нулевому сигналу. При отсутствии в сигнале постоянной составляющей такой точкой является частота перехода. Наличие постоянной составляющей смещает эту точку и, соответственно, частоту привязки, в результате чего возникает сдвиг частоты привязки лазера относительно частоты перехода.

Амплитудная модуляция мощности излучения накачки также приводит к модуляции интенсивности эмиссионного резонанса. В результате после фазового детектирования в сигнале ошибки, используемом для привязки частоты излучения диодного лазера к частоте резонанса, появляется постоянная составляющая и, следовательно, сдвиг частоты лазера относительно центра резонанса.

Величина сдвига из-за амплитудной модуляции зависит от крутизны дискриминационной кривой и величины постоянной составляющей сигнала. В свою очередь крутизна зависит от ширины и амплитуды резонанса. Данным обстоятельством можно объяснить заметно худшую воспроизводимость частоты для полосы (32–54), чем для полосы (32–53). Для полосы (32–53) коэффициент Франка–Кондона в 6 раз больше, чем для полосы (32–54), соответственно больше и амплитуда резонанса. При стабилизации частоты отношение сигнала ошибки к уровню шума в первом случае было равно 30–50, а во втором составляло 12–15.

Ещё одной причиной возникновения амплитудной модуляции в проведенном эксперименте является поглощение излучения накачки на соседних компонентах СТС. Влиянием этого фактора можно объяснить более низкую воспроизводимость частоты компоненты а<sub>1</sub>. Область воздействия излучения накачки для этой компоненты приходится на наиболее крутую часть склона суммарного доплеровского контура поглощения. В результате модуляция амплитуды для а<sub>1</sub> наибольшая при меньшей амплитуде резонанса. Амплитудная модуляция может происходить также одновременно с фазовой модуляцией в электрооптическом модуляторе.

Величиной паразитной модуляции сложно управлять, т.к. она зависит от ряда трудно контролируемых факторов [26]. Для подавления вредного влияния амплитудной модуляции в настоящее время чаще всего используется метод двойной модуляции. С высокой частотой  $(1-10 \text{ M}\Gamma \text{u})$  модулируется частота пробного излучения, а на низкой частоте  $(10-50 \text{ к}\Gamma \text{u})$  прерывателем модулируется мощность излучения накачки. Фазовое детектирование на высокой частоте выделяет дискриминационный сигнал, а синхронное детектирование этого сигнала на низкой частоте подавляет сигнал от амплитудной модуляции. Кроме того, синхронное детектирование обеспечивает увеличение отношения сигнала ошибки к уровню шума.

Таким образом, экспериментальная установка с двойной модуляцией должна включать в себя модулятор мощности излучения накачки и в каждом из спектрометров электрооптический модулятор, фазовый и синхронный детекторы и систему автоматической подстройки частоты. В работах по стабилизации частоты излучения Nd: YAG-лазера для модуляции мощности излучения накачки обычно используется акустооптический модулятор. Такой способ модуляции мощности накачки не пригоден для нашего эксперимента, т.к. акустооптический модулятор сдвигает частоту излучения лазера накачки, и привязка к абсорбционному переходу осуществляется со сдвигом, равным половине частотного сдвига излучения лазера. В результате эмиссионные резонансы будут возбуждаться не на частоте эмиссионного перехода, а со сдвигом, величина которого неопределенна, т.к. зависит от частоты эмиссионного перехода.

Нами был экспериментально проверен способ получения оптических резонансов на абсорбционном и эмиссионном переходах с использованием фазовой модуляции частоты пробных излучений. Излучение накачки при этом не модулировалось. Интенсивность резонансов и, соответственно, отношение сигнал/шум увеличились при этом в несколько раз. Дополнительное увеличение отношения сигнал/шум может быть достигнуто за счет сужения ширины спектра излучения диодного лазера путем стабилизации его частоты по интерферометру Фабри– Перо. Реализация рассмотренных выше методов, по нашим оценкам, позволит более чем на порядок повысить точность и воспроизводимость результатов измерений.

#### 5. Заключение

В работе продемонстрирована возможность использования частот эмиссионных переходов между компонентами СТС иода в качестве частотных реперов для стабилизации частоты излучения лазеров. Осуществлена привязка частоты излучения диодного лазера, генерирующего в диапазоне 1050-1070 нм, к компонентам СТС эмиссионных линий. Получена стабильность частоты на уровне 10<sup>-11</sup> за время усреднения 1 с. Впервые выполнены высокоточные измерения частот отдельных компонент СТС эмиссионных линий <sup>127</sup>I<sub>2</sub> в области 1053-1068 нм, соответствующих системе В-Х. С помощью фемтосекундного синтезатора оптических частот измерены частоты 18 компонент СТС для шести эмиссионных линий, соответствующих полосам (32-54) и (32-53). Точность измерений составила 8×10<sup>-10</sup>, что на два порядка превышает точность имеющихся на сегодняшний день экспериментальных данных для этих переходов [13]. Проанализированы главные факторы, снижающие точность измерений, и рассмотрены способы минимизации их влияния за счет совершенствования экспериментальной установки. Оценки показывают, что возможно повышение точности измерений более чем на порядок.

Проведение систематических измерений с использованием предложенной методики позволит получить новые, более точные экспериментальные данные, на основе которых могут быть определены точные значения энергий любых колебательных уровней Х-состояния иода. В конечном счете это позволит получить более точные спектроскопические параметры для расчета частот эмиссионных переходов и сделать эмиссионный спектр наряду с абсорбционным пригодным для калибровки длин волн излучения лазеров, расширив тем самым шкалу реперов длин волн почти до 1.4 мкм. Соответственно расширится диапазон частотных реперов, пригодных для стабилизации частоты излучения лазеров. Особенно это важно для спектрального диапазона 0.9–1.4 мкм, где подходящих для стабилизации частоты реперов очень мало.

- 1. 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).
- Salumbides E.J., Eikema K.S.E., Ubachs W., Hollenstein U., Knöckel H., Tiemann E. Mol. Phys., 104, 2641 (2006).
- Salumbides E.J., Eikema K.S.E., Ubachs W., Hollenstein U., Knöckel H., Tiemann E. Eur. Phys. J. D, 47, 171 (2008).
- Матюгин Ю.А., Охапкин М.В., Скворцов М.Н., Игнатович С.М., Багаев С.Н. Квантовая электроника, 38, 755 (2008) [Quantum Electron., 38, 755 (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).
- Матюгин Ю.А., Игнатович С.М., Кузнецов С.А., Нестеренко М. И., Охапкин М.В., Пивцов В.С., Скворцов М.Н., Багаев С.Н. Квантовая электроника, 42, 250 (2012) [Quantum Electron., 42, 250 (2012)].
- Yang T., Meng F., Zhao Y., Peng Y., Li Y., Cao J., Gao C., Fang Z., Zang E. *Appl. Phys. B*, **106**, 613 (2012).
- Hsiao Y.-C., Kao C.-Y., Chen H.-C., Chen S.-E., Peng J.-L., Wang L.-B. J. Opt. Soc. Am. B, 30, 328 (2013).
- Huang Y.-C., Chen H.-C., Chen S.-E., Shy J.-T., Wang L.-B. *Appl. Opt.*, **52**, 1448 (2013).
- Kobayashi T., Akamatsu D., Hosaka K., Inaba H., Okubo S., Tanabe T., Yasuda M., Onae A., Hong F.-L. J. Opt. Soc. Am. B, 33, 725 (2016).

- Huang Y.-C., Guan Y.-C., Suen T.-H., Shy J.-T., Wang L.-B. arXiv1710.09533v1 [physics.atom-ph] 26 Oct 2017.
- Martin F., Bacis R., Churassy S., Verges J. J. Mol. Spectrosc., 116, 71 (1986).
- Beterov I.M., Chebotaev 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).
- Пермякова О.И., Яковлев А.В., Чаповский П.Л. Квантовая электроника, 35, 449 (2005) [Quantum Electron., 35, 449 (2005)].
- 17. Shirley J.H. Opt. Lett., 7, 537 (1982).
- Скворцов М.Н., Охапкин М.В., Невский А. Ю., Багаев С.Н. Квантовая электроника, 34, 1101 (2004) [Quantum Electron., 34, 1101 (2004)].
- Денисов В.И., Игнатович С.М., Квашнин С.М., Скворцов М.Н., Фарносов С.А. Квантовая электроника, 46, 464 (2016) [Quantum Electron., 46, 464 (2016)].
- Nevsky A.Yu., Holzwarth R., Reichert J., Udem Th., Hänsch 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).
- Holzwarth R., Nevsky A.Yu., Zimmermann M., Udem Th., Hänsch T.W., von Zanthier J., Walther H., Knight J.C., Wadsworth W.J., Russel P.St.R., Skvortsov M.N., Bagayev S.N. *Appl. Phys. B*, 73, 269 (2001).
- 22. Quinn T.J. Metrologia, 40, 103 (2003).
- 23. Arie A., Byer R.L. J. Opt. Soc. Amer. B, 10, 1990 (1993).
- 24. Eickhoff M.L., Hall J.L. *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, 44, 155 (1995).
- Hall J.L., Ma L.-S., Taubman M., Tiemann B., Hong F.-L., Pfister O., Ye J. *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, 48, 583 (1999).
- 26. Wong N.C., Hall J.L. J. Opt. Soc. Amer. B, 2, 1527 (1985).