УДК 535.21

МЕТОД ОПРЕДЕЛЕНИЯ КАЧЕСТВА АНТИРЕЛАКСИРУЮЩЕГО ПОКРЫТИЯ В ОПТИЧЕСКИХ ЯЧЕЙКАХ

К. А. Насыров

Институт автоматики и электрометрии СО РАН, 630090, г. Новосибирск, просп. Академика Коптюга, 1 E-mail: nasyrov@iae.nsk.su

Предложен простой метод определения качества антирелаксирующего покрытия стенок вакуумных оптических ячеек, содержащих пары щелочных металлов. Метод состоит в регистрации временной зависимости интенсивности флуоресценции шелочных атомов при облучении ячейки импульсами резонансного излучения. Теория предсказывает, что для определения качества покрытия достаточно знать скорость затухания флуоресценции и отношение интенсивностей флуоресценции в начале и в конце лазерного импульса.

Ключевые слова: магнитооптический резонанс, поляризация излучения, оптические уравнения Блоха.

DOI: 10.15372/AUT20160111

Введение. Оптические ячейки с антирелаксирующим покрытием стенок применяются для наблюдения разнообразных физических явлений, таких как светоиндуцированный дрейф атомов и молекул [1], оптические и магнитооптические резонансы в магнитометрах высокого разрешения [2] и т. д. Некоторые антирелаксирующие покрытия, например PMDS ((poly)dimethylsiloxane), обладают способностью адсорбировать атомы щелочных металлов и накапливать их в большом количестве внутри себя. При облучении таких ячеек светом происходит десорбция атомов из покрытия обратно в объём ячейки (эффект светоиндуцированной десорбции) [3]. Особое значение ячейки с антирелаксирующим покрытием имеют при создании миниатюрных магнитометров для медицинских целей. В оптических магнитометрах на стенки ячейки наносят антирелаксирующее покрытие [4] для того, чтобы сохранялся спин атома при столкновении со стенкой, что повышает разрешение магнитометра.

Современные антирелаксирующие покрытия сохраняют спин атома при очень большом числе столкновений со стенкой. Так, парафиновые покрытия сохраняют спин до 10⁴ столкновений [5]. В настоящее время появились покрытия [6], допускающие 10⁶ соударений без релаксации спина атома.

Качество покрытия можно характеризовать величиной ε — вероятностью термализации спина атома при одном соударении с покрытием. Соответственно $1/\varepsilon$ — число столкновений без изменения спина атома. Знать качество покрытия ячейки необходимо для интерпретации тех или иных экспериментальных результатов.

Задача данной работы — предложить простой метод для определения качества покрытия. Он состоит в регистрации временно́го изменения интенсивности флуоресценции при облучении ячейки импульсами лазерного излучения (рис. 1). Для этого достаточно измерить скорость затухания флуоресценции и отношение интенсивностей флуоресценции в начале и конце лазерного импульса. Даётся теоретическое обоснование метода, которое подкрепляется сравнением с численным моделированием эксперимента.

Теория. При расчётах динамики взаимодействия атомов с излучением в вакуумных ячейках типична постановка задачи, когда предполагается равновесное заселение всех



Puc. 1. Последовательность лазерных импульсов (вверху) и зависимость от времени интенсивности флуоресценции (внизу)

уровней основного состояния атома, влетающего в лазерный пучок. Такое предположение основано на допущении, что при каждом столкновении атома со стенкой вакуумной ячейки происходит полная релаксация по всем уровням основного состояния. Пролетевший сквозь пучок поляризованного излучения атом приобретает анизотропию по ориентации углового момента и испытывает оптическую накачку по сверхтонким компонентам, но после столкновения со стенкой вакуумной ячейки приходит к одинаковому заселению всех *M*подуровней основного состояния и в таком виде снова попадает в лазерный пучок.

В ячейке с антирелаксирующим покрытием стенок атомы, пролетевшие через лазерный пучок, после столкновения со стенкой ячейки возвращаются обратно в лазерный пучок без разрушения внутреннего состояния. Таким образом, приобретя в лазерном пучке анизотропию по угловому моменту и оптическую накачку в компоненту сверхтонкой структуры, которая не взаимодействует с излучением, атомы имеют возможность вернуться в лазерный пучок в неравновесном состоянии по заселённостям. Фактически начальные условия для влетающих в лазерный пучок атомов оказываются связанными с состояниями атомов, прошедших через пучок. Математически эту связь можно сформулировать в виде интегродифференциального уравнения [7], решение которого находилось методом итераций. Количество итераций для удовлетворительной сходимости решения было пропорционально числу соударений атома со стенкой ячейки без изменения спина $1/\varepsilon$. Таким образом, для высокого качества антирелаксирующего покрытия требуются расчёты, длительность которых выходит за пределы разумного. В частности, в [7] не удалось продвинуться дальше в расчётах для ячеек с качеством покрытия лучше $\varepsilon = 0,1$.

Здесь же мы будем применять другой подход, основанный на некоторых допущениях, позволяющих продвинуться в вычислениях до очень малых ε .

Итак, рассмотрим цилиндрическую ячейку длиной больше её радиуса. Это позволяет пренебречь столкновениями атома с торцевыми окнами ячейки и при центральном расположении лазерного пучка использовать цилиндрическую симметрию (рис. 2). Пусть $\rho(u, r)$ — матрица плотности по внутренним состояниям атома (u — функция его радиальной скорости, r — расстояние от центра ячейки). Формально эта матрица плотности удовлетворяет уравнению Лиувилля [8]

$$\frac{\partial}{\partial t}\rho(u,r) + \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}ru\rho(u,r) + (\hat{L}_0 + \hat{L}_E)\rho(u,r) = 0,$$
(1)

где оператор \hat{L}_0 описывает динамику атома по внутренним состояниям, в том числе и релаксацию из-за спонтанного излучения; оператор \hat{L}_E описывает взаимодействие атома с электрическим полем излучения.

Проинтегрируем уравнение (1) по площади сечения ячейки вне лазерного пучка (см. рис. 2) и в результате получим

$$\frac{d}{dt}\bar{\rho} + \frac{2\pi R_c}{S} \left(J_{\text{out}} - J_{\text{in}} \right) + \frac{2\pi R_b}{S} \left(j_{\text{out}} - j_{\text{in}} \right) = 0.$$
(2)



Puc. 2. Поперечное сечение оптической ячейки: центральный круг — сечение лазерного пучка; штриховые линии — возможный путь атома после выхода из лазерного пучка до следующего попадания в него

Здесь $\bar{\rho}$ — среднее по скоростям и по сечению ячейки вне лазерного пучка матрицы плотности атома. Поскольку вне пучка атом находится на нижнем состоянии, где отсутствует релаксация между сверхтонкими уровнями, действие оператора \hat{L}_0 обращается в нуль. Величины R_c и R_b — радиусы ячейки и лазерного пучка соответственно; $S = \pi (R_c^2 - R_b^2)$ — площадь сечения ячейки без области, занятой лазерным пучком. Из рис. 2 понятно, что $J_{\rm out}$ — это поток атомов, падающий на стенку ячейки; $J_{\rm in}$ — обратный поток атомов, возвращающихся со стенки внутрь ячейки; $j_{\rm out}$ — поток атомов, попадающих в центральную часть ячейки, занятой лазерным пучком; $j_{\rm in}$ — поток атомов, выходящих из лазерного пучка. Существенное значение для дальнейших рассуждений имеет условие $R_c \gg R_b$. Оно означает, что атом, вылетевший из лазерного пучка, возвращается обратно, испытав множество соударений со стенкой: $(\pi/2)(R_c/R_b) \gg 1$.

Считается, что при каждом соударении скорость атома термализуется. Кроме того, распределение по внутренним состояниям атома приближается к среднему значению по ячейке, если он проводит достаточно большое время вне пучка. Это даёт основание полагать, что вне лазерного пучка матрица плотности

$$\rho = \frac{\mathrm{e}^{-(v^2/v_{\mathrm{T}}^2)}}{\sqrt{\pi}v_{\mathrm{T}}^3}\bar{\rho},\tag{3}$$

а значит,

$$J_{\rm out} = j_{\rm out} = v_{\rm T}\bar{\rho},\tag{4}$$

где $v_{\rm T}$ — тепловая скорость атома. При каждом столкновении со стенкой ячейки с антирелаксирующим покрытием с вероятностью ε происходит термализация по внутренним состояниям атома, и для потока отлетающих от стенки атомов можно записать

$$J_{\rm in} = (1 - \varepsilon) v_{\rm T} \bar{\rho} + \varepsilon v_{\rm T} \rho_0, \tag{5}$$

где ρ_0 — равновесная матрица плотности атома (все магнитные подуровни основного состояния одинаково заселены).



Puc. 3. Трёхуровневая схема оптических переходов

Теперь важно определить изменение матрицы плотности атома после прохождения лазерного пучка. Рассмотрим трёхуровневую Λ -схему атома (рис. 3). Два нижних уровня схемы соответствуют сверхтонкому расщеплению основного состояния щелочного атома, а верхний уровень — резонансному состоянию, которое тоже расщеплено на несколько уровней вследствие сверхтонкого взаимодействия. Это расщепление мало и может не разрешаться на фоне доплеровского уширения, а в нашей постановке задачи может восприниматься как один уровень возбуждённого состояния атома. Для такой схемы атома запишем следующие кинетические уравнения для заселённостей уровней:

$$\frac{d}{dt}\rho_{1} = -\alpha_{1}(\rho_{1} - \rho^{*}) + \gamma_{1}\rho^{*};$$

$$\frac{d}{dt}\rho_{2} = -\alpha_{2}(\rho_{2} - \rho^{*}) + \gamma_{2}\rho^{*};$$

$$\frac{d}{dt}\rho^{*} = -(\gamma_{1} + \gamma_{2} + \alpha_{1} + \alpha_{2})\rho^{*} + \alpha_{1}\rho_{1} + \alpha_{2}\rho_{2}.$$
(6)

Здесь ρ_1 , ρ_2 и ρ^* — заселённости двух нижних и одного верхнего уровней атома; α_1 и α_2 — скорости возбуждения с нижних уровней 1 и 2 на верхний уровень; γ_1 и γ_2 — скорости спонтанного распада возбуждённого состояния атома на уровни 1 и 2 соответственно. Будем считать интенсивность излучения слабой, так что скорость возбуждения намного меньше скорости распада возбуждённого состояния: $\alpha_1, \alpha_2 \ll \gamma_1 + \gamma_2$. Это условие также позволяет использовать стационарное решение для заселённости возбуждённого состояния, которое оказывается намного меньше заселённостей нижних уровней:

$$\rho^* = \frac{\alpha_1 \rho_1 + \alpha_2 \rho_2}{\gamma_1 + \gamma_2}.\tag{7}$$

Подставив (7) в систему (6), с указанной точностью можно получить уравнение для заселённости одного из нижних уровней, например уровня 1:

$$\frac{d}{dt}\rho_1 + \alpha\rho_1 = \frac{\gamma_1\alpha_2}{\gamma_1 + \gamma_2} n,\tag{8}$$

где $n = \rho_1 + \rho_2$ — концентрация резонансных атомов и

$$\alpha = \frac{\gamma_2 \alpha_1 + \gamma_1 \alpha_2}{\gamma_1 + \gamma_2}.$$

Далее будем предполагать, что интенсивность излучения однородна внутри лазерного пучка и, значит, α_1 и α_2 постоянны. В этих условиях решение уравнения (8) есть

$$\rho_1 = e^{-\alpha \tau_b} \bar{\rho}_1 + \frac{\gamma_1 \alpha_2}{\gamma_1 + \gamma_2} \left(1 - e^{-\alpha \tau_b}\right) n.$$
(9)

Здесь τ_b — время пролёта атома сквозь лазерный пучок. В качестве начальных условий для влетающего в пучок атома естественно взять равновесную вне пучка заселённость $\bar{\rho}_1$ уровня 1. Наконец, рассмотрим случай, когда излучение находится в резонансе с оптическим переходом, стартующим с уровня 1, а переходами с уровня 2 из-за большой оптической отстройки можно пренебречь, т. е. в (9) положить α_2 . Таким приближением можно пользоваться для покрытий стенок ячейки умеренного качества ($\varepsilon \geq 10^{-3}$). При высоком качестве покрытия ($\varepsilon \sim 10^{-6}$) оптическая накачка настолько обедняет уровень 1, что число оптических переходов с него становится сопоставимым с возбуждением атома с уровня 2 несмотря на большую отстройку.

Итак, при указанном предположении для потока атомов, вылетающих из лазерного пучка, справедливо

$$j_{\text{out}} = e^{-\alpha \tau_b} v_{\text{T}} \bar{\rho}_1, \tag{10}$$

а уравнение (2), записанное для заселённости уровня 1, примет вид

$$\frac{d}{dt}\bar{\rho}_1 + \frac{1}{\tau_c} \Big(\varepsilon + \frac{R_b}{R_c} \left(1 - e^{-\alpha \tau_b}\right)\Big)\bar{\rho}_1 = \frac{\varepsilon}{\tau_c} n_1.$$
(11)

Здесь n_1 — равновесная концентрация атомов на уровне 1 в отсутствие излучения, а $\tau_c = R_c/(2v_{\rm T})$ — характерное время жизни атома в ячейке между двумя соударениями со стенкой ячейки.

На переднем фронте лазерного импульса $\bar{\rho}_1 = n_1$, что является начальным условием для уравнения (11). В конце импульса, когда решение выходит на стационарный уровень, заселённость становится

$$\bar{\rho}_1 = \frac{\varepsilon}{\beta \tau_c} n_1,\tag{12}$$

где

$$\beta = \frac{1}{\tau_c} \left(\varepsilon + \frac{R_b}{R_c} (1 - e^{-\alpha \tau_b}) \right)$$

— скорость экспоненциального уменьшения заселённости уровня 1 во время лазерного импульса. Интенсивность флуоресценции пропорциональна заселённости $\bar{\rho}_1$. Поэтому, измеряя в эксперименте интенсивность флуоресценции в начале лазерного импульса I_i и в конце I_f , а также скорость экспоненциального уменьшения интенсивности β , можно согласно уравнению (12) найти величину ε , характеризующую качество антирелаксирующего покрытия:

$$\varepsilon = \beta \tau_c (I_f / I_i). \tag{13}$$

Следует заметить, что в уравнение (13) не входят явным образом параметры лазерного пучка, такие как интенсивность и радиус.

При очень высоком качестве покрытия становятся существенными оптические переходы с уровня 2, и тогда для вылетающих из лазерного пучка атомов необходимо использовать матрицу плотности (9).



Puc. 4. Временная зависимость интенсивности флуоресценции при облучении оптической ячейки прямоугольным лазерным импульсом

Расчёты. На рис. 4 показана расчётная зависимость от времени интенсивности флуоресценции при облучении ячейки, содержащей пары Rb^{87} , с антирелаксирующим покрытием стенок. Расчёты проводились на основе численной модели взаимодействия атома с резонансным излучением, изложенной в работах [8–10]. В данном примере предполагалось, что излучение настроено на резонанс с D_1 -линией Rb^{87} , радиус пучка 0,25 см, интенсивность излучения 0,128 мВт, радиус ячейки 1,1 см и параметр качества покрытия $\varepsilon = 10^{-3}$.

На рис. 5 показан график в логарифмической шкале для интенсивности флуоресценции за вычетом её конечного значения. В таких координатах график имеет вид прямой линии, по наклону которой можно найти скорость релаксации флуоресценции: $\beta = 350 \text{ c}^{-1}$. Для тепловой скорости Rb⁸⁷ $v_{\rm T} = 240 \text{ м/c}$ имеем характерное время между соударениями атома со стенками ячейки $\tau_c = 2,3 \cdot 10^{-5}$ с. Принимая $I_f/I_i \approx 0,1$, из (13) получим оценку для $\varepsilon = 0,8 \cdot 10^{-3}$, что близко к значению, взятому для численного моделирования.



Puc. 5. Зависимость интенсивности излучения флуоресценции от времени за вычетом её конечного значения при условиях, как на рис. 4

Заключение. В данной работе предложен простой метод определения качества антирелакирующих покрытий в вакуумных оптических ячейках, содержащих пары щелочных металлов. Такие покрытия могут быть использованы при создании малоразмерных оптических магнитометров для повышения контрастности магнитооптических резонансов и, следовательно, повышения точности измерения магнитного поля. Согласно предлагаемому методу для определения качества покрытия в эксперименте достаточно измерить отношение интенсивностей флуоресценции в начале и в конце лазерного импульса и скорость экспоненциального уменьшения интенсивности флуоресценции в течение лазерного импульса.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Гельмуханов Ф. Х., Шалагин А. М. Светоиндуцированная диффузия газов // Письма в ЖЭТФ. 1979. **29**, № 12. С. 773–779.
- 2. Александров Е. Б. Абсолютные измерения малых магнитных полей // Вестн. АН СССР. 1978. № 11. С. 14–34.
- Atutov S. N., Biancalana V., Bicchi P. et al. Light induced diffusion and desorption of alkali metals in a siloxane film: Theory and experiment // Phys. Rev. A. 1999. 60, N 6. P. 4693–4707.
- Alexandrov E. B., Balabas M. V., Budker D. et al. Light-induced desorption of alkali-atoms from paraffin coating // Phys. Rev. A. 2002. 66, N 4. 042903.
- Bouchiat M. A., Brossel J. Relaxation of optically pumped Rb atoms on paraffin-coated wall // Phys. Rev. 1966. 147, N 1. P. 41–54.
- 6. Balabas M. V., Karaulanov T., Ledbetter M. P., Budker D. Polarized alkali-metal vapor with minute-long transverse spin-relaxation time // Phys. Rev. Lett. 2010. 105, N 7. 070801.
- 7. Насыров К. А. Особенности магнитооптических резонансов в ячейках с антирелаксирующим покрытием при эллиптической поляризации излучения // Автометрия. 2013. 49, № 1. С. 103–110.
- 8. Насыров К. А. О методах моделирования взаимодействия атомов с поляризованным излучением // Автометрия. 2010. 46, № 3. С. 54–63.
- Nasyrov K., Cartaleva S., Petrov N. et al. Coherent population trapping resonances in Cs atoms excited by elliptically polarized light // Phys. Rev. A. 2006. 74, N 1. 013811.
- Насыров К. А., Карталева С. Магнитооптические резонансы в ячейках с остаточным содержанием буферного газа при эллиптической поляризации излучения // Автометрия. 2012. 48, № 4. С. 79–87.

Поступила в редакцию 23 июня 2014 г.