

Относительно высокой чувствительности заселенности колебательных уровней в лазерно-охлаждаемых молекулах к интенсивности излучения

Т. А. Исаев¹⁾

Национальный исследовательский центр “Курчатовский Институт” —
Петербургский институт ядерной физики им. Б. П. Константинова, 188300 Гатчина, Россия

Поступила в редакцию 22 августа 2021 г.

После переработки 6 сентября 2021 г.

Принята к публикации 9 сентября 2021 г.

Особенности электронной структуры лазерно-охлаждаемых молекул могут использоваться для достижения высокой чувствительности к интенсивности излучения путем измерения заселенности колебательных уровней в таких молекулах. В настоящей статье мы указываем на перспективы измерения интенсивности излучения с высокой точностью с использованием лазерно-охлаждаемых молекул.

DOI: 10.31857/S1234567821190083

Точное измерение интенсивности излучения является актуальной проблемой в современной оптической спектроскопии. Частоту (и, следовательно, временной интервал) можно измерить со сверхвысокой точностью, до 10^{-18} [1], но точные измерения интенсивности излучения по-прежнему представляют проблему. Неопределенность в измерениях интенсивности излучения/оптической мощности от различных источников сильно зависит от типа источника, диапазона частот, типа детектора и т.д. В недавнем обзоре [2] приведен список детекторов оптической мощности, доступных в Национальном институте стандартов США (NIST) с соответствующими погрешностями измерений. Наиболее точным детектором, доступным в NIST, является лазерный криогенный радиометр (LOCR) с относительной погрешностью измерения оптической мощности 0.02–0.05 %. Что касается однофотонных детекторов (которые могут быть наиболее эффективно использованы для интенсивности излучения, обсуждаемой далее), то наименьшая погрешность достигается при измерениях с однофотонным лавинным фотодиодом (SPAD) и составляет 1.53 %.

В настоящей работе мы исследуем физическую систему, имеющую некоторое свойство, сильно зависящее от интенсивности падающего излучения, а именно, изменение заселенности молекулярных колебательных уровней после перерасеяния ряда фотонов. Молекулы, пригодные для прямого лазерного охлаждения, могут перерасеивать от сотен до тысяч

фотонов [3–5], и поэтому являются естественными объектами для детектирования вариаций потока фотонов. Конкретная техническая реализация соответствующей установки является предметом отдельного исследования, в настоящей статье мы только обсуждаем некоторые особенности лазерно-охлаждаемых молекул, делающими их перспективными объектами для применения в измерениях интенсивности излучения.

Принципы лазерного охлаждения изложены в многочисленных учебниках и обзорах, например, в [6, 7], и здесь мы просто напомним самые основные принципы метода на примере доплеровского лазерного охлаждения. Рассмотрим обычный атомный случай, когда некоторый атом движется в поле лазерного излучения, частота которого немного сдвинута в “красную сторону” от частоты резонансного перехода между атомными уровнями (для простоты мы предполагаем, что атом – это двухуровневая система). Понятно, что вероятность поглощения фотона резко возрастает, когда атом движется к источнику лазерного излучения из-за эффекта Доплера. Если атом движется в другом направлении, вероятность поглощения либо уменьшается, либо остается неизменной. Если шесть “красно-отстроенных” лазерных лучей пересекаются в определенной точке, то когда атом пересекает эту область в любом направлении, он подвергается действию силы давления света, являющейся диссипативной. Обычно атом должен перерасеять более тысячи фотонов, чтобы охладиться от нескольких кельвинов (эта температура может быть достигнута с помощью традиционного

¹⁾e-mail: isaev_ta@pnpi.nrcki.ru

метода молекулярных пучков) до субкельвиновских температур (до так называемого доплеровского предела [8]), и далее может быть захвачен, например, в магнитооптическую ловушку. В случае двухуровневой системы заселенность рабочих уровней периодически меняется в течение процесса перерассеивания, но сумма заселенностей уровней остается прежней, так как в двухуровневой схеме нет дополнительных каналов утечки заселенности. В реальных системах всегда есть каналы утечки, когда система (атом или молекула) может перейти в состояние, не взаимодействующее с лазерным излучением. Такие состояния называются “темными состояниями”, и обычно требуются отдельные усилия для перевода охлаждаемых атомов/молекул обратно в “светлые состояния”, например, смешивание зеемановских подуровней в магнитном поле и т. д. Если “темные состояния” достаточно долгоживущие, то в эти состояния происходит перекачка заселенности, и эта проблема известна как проблема оптической накачки. В молекулах проблема оптической накачки имеет особенное значение из-за возможности спонтанного перехода на колебательные уровни, при этом для вероятности такого перехода в общем случае не существует никаких правил отбора (см., например, [5]).

Рассмотрим электронно-колебательный уровень для некоторой модельной двухатомной молекулы (см. рис. 1), где мы выбирали переход $0' \rightarrow 0$ в качестве охлаждающего перехода. Матричный элемент электрического дипольного перехода между колебательно-вращательными уровнями возбужденного электронного состояния и основного электронного состояния дается в рамках приближения Борна-Оппенгеймера как (см., например, гл. 6 в [9]):

$$\mu = \langle Y_{J,M} | \cos(\theta) | Y_{J',M'} \rangle \times \quad (1a)$$

$$\left[\int_{R_N} \Psi_\nu^*(R_N) \Psi_{\nu'}(R_N) dR_N \right] \times \quad (1b)$$

$$\langle \Psi_e(r_e, R_N(E)) | \sum_i \mathbf{d}_i^e | \Psi'_e(r_e, R_N(E)) \rangle, \quad (1c)$$

где $Y_{J,M}$ – вращательная ядерная волновая функция, θ – угол между вектором напряженности электрического поля и межъядерной осью, $\Psi_\nu(R_N)$ – колебательная волновая функция ядер с колебательным квантовым числом ν , $\Psi_e(r_e, R_N(E))$ – электронная волновая функция при равновесном межъядерном расстоянии $R_N(E)$, \mathbf{d}_i^e – оператор электрического дипольного момента для i -го электрона. В выражении (1) мы сделали дополнительное приближение, а именно, пренебрегли зависимостью матричного элемента электрического дипольного момента

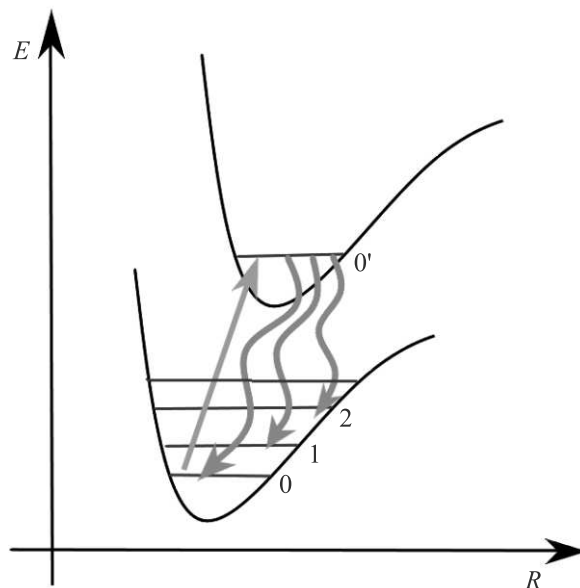


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема колебательных уровней для некоторой модельной двухатомной молекулы. Межъядерное расстояние (R) и энергия (E) даны в произвольных единицах. Цифры (0, 1, 2 ...) нумеруют колебательные уровни, штрих означает, что колебательный уровень принадлежит возбужденному электронному состоянию

(1c) от R_N . Самая существенная разница, которая отличает выражение (1) от аналогичного для атомов – отсутствие правил отбора для вибронных переходов между уровнями с разными ν из-за интеграла (1b), который является хорошо известным интегралом Франка–Кондона (квадрат которого дает фактор Франка–Кондона). Соответственно, матрица, составленная из ФК-факторов с индексами ν, ν' , называется ФК-матрицей. Возвращаясь к экспериментальной схеме, представленной на рис. 1, совершенно очевидно, что после нескольких циклов возбуждения и последующего спонтанного излучения произойдет оптическая накачка возбужденных колебательных уровней 1, 2, ... и выпадение молекулы из цикла оптической циркуляции. Особенности электронной структуры лазерно-охлаждаемых молекул приводят к подобию (“параллельности”) кривых потенциальной энергии основного и возбужденного электронных состояний и, следовательно, к (квази)диагональности ФК-матрицы [5, 10, 11].

Можно оценить, насколько замкнутым должен быть цикл охлаждения, чтобы сохранить заметную заселенность основного колебательного состояния после перерассеивания нескольких тысяч фотонов. Рассматривая каждый акт поглощения/испускания

фотона как независимое событие, можно увидеть, что после перерасеяния N фотонов вероятность того, что молекула останется, например, в колебательном состоянии 0 ($FC_{0'0}$) N , где $FC_{0'0}$ – вероятность спонтанного перехода из колебательного состояния $0'$ в колебательное состояние 0 . На практике цикл охлаждения включает в себя не только пару колебательных уровней, но для простоты мы далее предположим, что 0 может относиться также к множеству состояний, включенных в цикл охлаждения. Теперь легко вычислить, как изменяется заселенность состояния (состояний) 0 после перерасеяния N фотонов в зависимости от $FC_{0'0}$, см. табл. 1.

Таблица 1. Вероятность молекулы остаться в колебательном состоянии 0 ($FC_{0'0}$) после перерасеяния N фотонов в переходе $0 \rightarrow 0'$

$FC_{0'0} \backslash N$	1 000	10 000	100 000
0.90000	0.0000000	0.0000000	0.0000000
0.99000	0.0000431	0.0000000	0.0000000
0.99900	0.3676950	0.0000451	0.0000000

Из данной таблицы можно видеть что при, например, $FC_{0'0} = 0.999$, когда число перерасеянных фотонов изменяется на порядок (с 1000 до 10000), заселенность состояния 0 изменяется на почти четыре порядка величины.

Теперь мы можем рассмотреть принципиальную экспериментальную схему для измерения вариации потока фотонов, см. рис. 2. Предположим, у нас есть молекулярный пучок (не обязательно нейтральных молекул, можно рассматривать также молекулярные ионы), последовательно проходящий три области, которые мы обозначили как Preparation, Probing и Detection. На первом этапе (Preparation) молекулы приготавливаются в некотором (обычно основном) колебательном состоянии. Ансамбль колебательно-холодных молекул. можно получить, например, методом лазерного молекулярного охлаждения, подобному использованному для CS_2 в [12], или методами охлаждения в газовой ячейке и т.д. На следующем этапе (Probing) молекулы взаимодействуют с измеряемым потоком фотонов (предположим, что за время взаимодействия перерасеиваются N фотонов), причем частота фотонов соответствует переходу $0 \rightarrow 0'$. В результате прохождения области Probing происходит перераспределение заселенностей молекул в пучке по колебательным уровням $0, 1, 2, \dots$ И в третьей области (Detection) выполняется анализ распределения заселенностей по колебательным уровням. Нас интересует величина относительного изменения ко-

личества молекул в данном колебательном состоянии $\delta A(N)/A(N)$ в зависимости от относительного изменения потока фотонов $\delta N/N$.

Рассмотрим изменение заселенности колебательного уровня 0 после перерасеивания N фотонов на переходе $0 \rightarrow 0'$. Если начальное число молекул в состоянии 0 составляет A_i , после перерасеяния N фотонов мы имеем:

$$A(N) = A_i(FC_{0'0})^N \quad (2)$$

молекул в состоянии 0 . Мы хотим представить $\delta A(N)/A(N)$ как функцию $\delta N/N$. Поскольку

$$\delta A(N) = A_i \ln(FC_{0'0})(FC_{0'0})^N \delta N, \quad (3)$$

после простых преобразований мы имеем:

$$\frac{\delta A(N)}{A(N)} = N \ln(FC_{0'0}) \frac{\delta N}{N} = \kappa \frac{\delta N}{N}, \quad (4)$$

где мы ввели фактор усиления $\kappa = N \ln(FC_{0'0})$. Таким образом максимальная чувствительность заселенности колебательного уровня к изменению интенсивности излучения достигается при $N \rightarrow \infty$ и $FC_{0'0} \rightarrow 0$. Разумеется, данные требования являются противоречивыми, поскольку $A(N) \rightarrow 0$, когда $N \rightarrow \infty$, поскольку $FC_{0'0} < 1$. Мы можем оценить значение $FC_{0'0}$, при, например, $N \sim 1000$. Записав выражение (2) в следующем виде:

$$\ln(FC_{0'0}) = \frac{1}{N} \ln \frac{A(N)}{A_i}, \quad (5)$$

мы получим, что даже если предположить $\frac{A(N)}{A_i} \sim 10^{-5}$, то $\ln(FC_{0'0}) \sim -0.01$, а значит, $FC_{0'0}$ должно быть ~ 0.989 (при этом $\kappa = -11.5$). Как уже упоминалось, такая степень закрытости цикла оптического охлаждения может быть достигнута только в лазерно-охлаждаемых молекулах.

Теперь мы можем оценить точность измерения интенсивности излучения по предложенной выше схеме. В предлагаемой схеме точность измерения вариации потока фотонов напрямую связана с точностью определения распределения заселенности по колебательным уровням, которая в свою очередь, как мы предполагаем, должна быть близка к точности определения соответствующих ФК-факторов. Типичная погрешность измерения ФК-фактора в лазерно-охлаждаемых молекулах составляет около 1% (см., например, [13] для измерений на молекуле монофторида радия), и для измерения с погрешностью $\delta A(N)/A(N) \sim 1\%$ и $\kappa \sim 10$ (см. оценки выше) из уравнения (4) получаем чувствительность

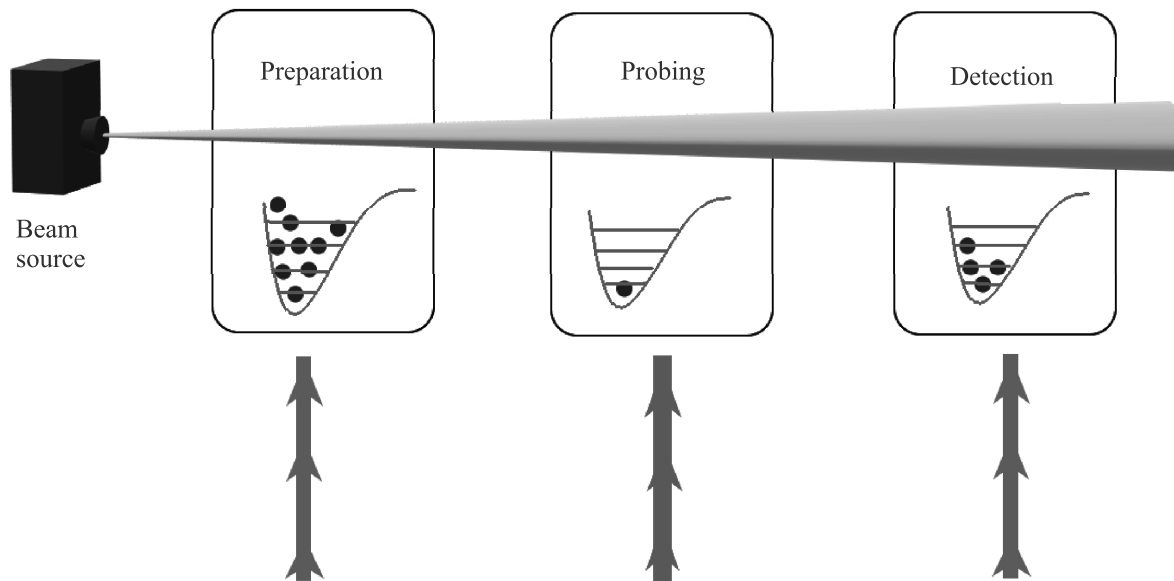


Рис. 2. (Цветной онлайн) Принципиальная схема эксперимента по измерению интенсивности потока фотонов на лазерно-охлаждаемых молекулах/молекулярных ионах

к потоку фотонов $\delta N/N \sim 0.1\%$. Для высокоточных измерений ФК-факторов, как в [14, 15], погрешности могут составлять всего 0.1%, и, таким образом, чувствительность $\delta N/N$ в принципе может достигать $\sim 0.01\%$. Как уже отмечалось, для потоков фотонов порядка $N \sim 10^3 - 10^6$ фотонов/с существуют развитые экспериментальные методы на основе однофотонных счетчиков для измерения оптической мощности, наподобие счетчиков на основе SPAD с погрешностью измерения потока фотонов 1.53%. В предложенной схеме погрешность измерения потока фотонов в принципе может быть сопоставима с погрешностями наиболее точных измерителей интенсивности излучения, таких как LOCR, и почти на порядок ниже, чем для основанных на SPAD однофотонных счетчиков.

Автор глубоко благодарен профессору Марбургского Университета Роберту Бергеру за плодотворные обсуждения особенностей электронной структуры лазерно-охлаждаемых молекул, а также профессору Д. Дойлю, И. Козыреву и участникам семинара в ИСАН за их интерес к данной работе.

Работа выполнена при финансовой поддержке гранта RSF-DFG # 21-42-04411.

1. Н. Leopardi, К. Belay, Т. Bothwell et al. (Collaboration), Metrologia,

https://tsapps.nist.gov/publication/get_pdf.cfm?pub_id=931072 (2021).

2. P. A. Williams, M. T. Spidell, J. A. Hadler, Th. Gerrits, A. Koepke, D. Livigni, M. S. Stephens, N. A. Tomlin, G. A. Shaw, J. D. Splett, I. Vayshenker, M. G. White, Ch. Yung, and J. H. Lehman, <https://arxiv.org/abs/1908.06139> (2019).
3. Т. А. Исаев and R. Berger, Phys. Rev. Lett. **116**, 063006 (2016).
4. Т. А. Исаев and R. Berger, Chimia Int. J. for Chemistry **72**, 375 (2018).
5. Т. А. Исаев, Phys.-Uspekhi **190**, 313 (2020).
6. H. Metcalf and P. van der Straten, *Laser cooling and trapping*, Springer-Verlag, N.Y. (1999).
7. В. Г. Миногин, В. С. Летохов, *Давление лазерного излучения на атомы*, Современные проблемы физики, Наука, М. (1986).
8. V. Letokhov, V. Minogin, and B. Pavlik, JETP **45**, 698, (1977).
9. J. M. Brown and A. Carrington, *Rotational Spectroscopy of Diatomic Molecules*, Cambridge University Press, Boston (2003).
10. Т. А. Исаев, S. Hoekstra, and R. Berger, Phys. Rev. A **82**, 052521 (2010).
11. Т. А. Исаев and R. Berger, ArXiv e-prints physics.chem-ph:1302.5682 (2013), 1302.5682.
12. D. Sofikitis, A. Fioretti, S. Weber, R. Horchani, M. Pichler, X. Li, M. Allegrini, B. Chatel, D. Comparat, and P. Pillet, New J. Phys. **11**, 055037 (2009).

13. R. F. Garcia Ruiz, R. Berger, J. Billowes et al. (Collaboration), *Nature* **581**, 396 (2020); <https://doi.org/10.1038/s41586-020-2299-4>.
14. L. Baum, N. B. Vilas, Ch. Hallas, B. L. Augenbraun, Sh. Rava, D. Mitra, and J. M. Doyle, *Phys. Rev. A* **103**, 043111 (2021); <https://arxiv.org/abs/2006.01769>.
15. Ch. Zhang, B. L. Augenbraun, Z. D. Lasner, N. B. Vilas, J. M. Doyle, and L. Cheng, ArXiv e-print: 2105.10760 (2021).