ФОРМА СПЕКТРА И СВЕТОВОЙ СДВИГ РЕЗОНАНСА КОГЕРЕНТНОГО ПЛЕНЕНИЯ НАСЕЛЕННОСТЕЙ В ЯЧЕЙКАХ С АНТИРЕЛАКСАЦИОННЫМ ПОКРЫТИЕМ СТЕНОК В МОДЕЛЯХ ЗЕРКАЛЬНОГО И ДИФФУЗНОГО ОТРАЖЕНИЯ

К. А. Баранцев, Г. В. Волошин, А. С. Курапцев, А. Н. Литвинов*, И. М. Соколов**

Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого 195251, Санкт-Петербург, Россия

> Поступила в редакцию 4 июля 2022 г., после переработки 4 июля 2022 г. Принята к публикации 1 сентября 2022 г.

Рассмотрено влияние движения атомов в ячейке без буферного газа с антирелаксационным покрытием стенок на форму и сдвиг резонанса когерентного пленения населенностей. Проведено сравнение двух типов отражения атомов от покрытия — упругого (зеркального) и диффузного, когда скорость атома после отражения определяется температурой стенки, — а также от качества антирелаксационного покрытия стенок. Показано, что для обоих типов отражения наблюдается немонотонная зависимость сдвига резонанса когерентного пленения населенности от размеров ячейки. При диффузном отражении сдвиг может менять знак, а в определенной области длин ячеек имеет место сложная двугорбая структура резонанса когерентного пленения населенностей. Проанализирована зависимость обнаруженных эффектов от ширины спектра лазерного излучения.

DOI: 10.31857/S0044451023020037 **EDN:** OPVINF

1. ВВЕДЕНИЕ

Явление когерентного пленения населенностей (КПН) [1-4] (и родственного с ним эффекта электромагнитно-индуцированной прозрачности (ЭИП) [5, 6]) представляет собой возникновение такого квантового суперпозиционного состояния, в которое переходит атомная система в результате взаимодействия с бихроматическим лазерным излучением, в котором это лазерное излучение перестает поглощаться. Характерной особенностью эффекта КПН является его резонансный характер, причем ширина резонанса может быть на несколько порядков меньше, чем естественная ширина линии оптического перехода. Это позволяет эффективно использовать явление КПН в таких областях, как оптическая магнитометрия [7–9], лазерная генерация без инверсии [10], квантовая информатика [11–13], стандартизация частоты [14–20].

При реализации эффекта КПН в ансамблях, находящихся в газовых ячейках, необходимо учитывать, что атомы при столкновении со стенками ячейки деполяризуются, что приводит к уменьшению времени когерентного взаимодействия атомов с излучением. Одним из способов, позволяющим увеличить это время, является нанесение антирелаксационного покрытия на стенки ячейки [21]. Благодаря такому покрытию удается значительно повысить амплитуду КПН-резонанса и одновременно уменьшить его ширину. Это приводит к увеличению параметра качества резонанса КПН, что очень важно, например, для повышения точности квантовых стандартов частоты, основанных на явлении КПН.

В последнее время усилился интерес к использованию новых, ранее не исследованных типов покрытия. Так, например, в работе [22] сообщается об успешном использовании в качестве антирелаксационного покрытия такого вещества, как октадецилтрихлорсилан. Соединения алкинов также проявили себя хорошими кандидатами на роль антирелаксационного покрытия [23,24]. С другой стороны, традиционно используемый парафин по-прежнему активно продолжает использоваться в качестве покрытия [25]. Достоинством парафинового покрытия, несомненно, является его доступность, технологическая простота изготовления, а также высокая

^{*} E-mail: andrey.litvinov@mail.ru

^{**} E-mail: ims@is12093.spb.edu

степень подавления деполяризации (1 акт деполяризации приблизительно на 10000 соударений) атомов при столкновении со стенкой ячейки [26]. Такие покрытия также характеризуются очень медленным «старением» [27], что очень важно при их длительном практическом использовании.

Явление КПН в ячейках с покрытием теоретически впервые исследовалось в работе [28]. Авторами использовалась модель зеркально-когерентного отражения атомов от стенок ячейки для трехуровневой Л-схемы. В рамках этой же модели авторам работы [29] удалось теоретически предсказать сужение линии КПН-резонанса при зонной накачке. Этот эффект нашел экспериментальное подтверждение в работах [30, 31]. Подход, использовавший предположение о зеркально-когерентном отражении, был обобщен на случай многоуровневой атомной системы в работе [32] и позволил исследовать форму темных резонансов в атомарных парах ¹³³Cs. С другой стороны, в противоположность зеркальнокогерентному отражению, существует модель полной термализации атомов при столкновении со стенками ячейки. Эта модель использована в работах [33,34] при изучении эффекта КПН в атомарных парах щелочных металлов. Помимо теоретических работ, явление КПН, а также ЭИП в ячейках с покрытием, активно изучается в экспериментах. Для ячеек с покрытием были экспериментально исследованы [35,36] резонансы ЭИП. Нелинейные магнитооптические резонансы в парах рубидия в ячейках с антирелаксационным стеночным покрытием рассматривались в работе [37].

Совместное влияние движения атомов и сверхтонкого расшепления на форму резонанса КПН в разреженном газе может приводить к новым физическим эффектам. Так, установлено [38], что в определенном диапазоне значений сверхтонкого расщепления возбужденного уровня возникает дополнительный пик, соответствующий КПН-резонансу на втором «нерезонансном» сверхтонком уровне. В работе [39] совместное влияние движения атомов и сверхтонкого расщепления было рассмотрено в ячейках конечного размера в модели зеркального отражения и для идеального покрытия. В рамках этого подхода авторами обнаружен целый ряд новых физических эффектов — сложная форма резонанса, появление дополнительных пиков, нетривиальная зависимость сдвига от размеров.

Целью настоящей работы является анализ влияния характера отражения атомов от антирелаксационного покрытия на сдвиг резонанса КПН и его форму. Мы проведем детальное сравнение предсказаний двух моделей отражения атомов от покрытия: упругого (зеркального) и диффузного, когда атом адсорбируется на поверхности на достаточно длительное время и его скорость после «отражения» не зависит от начальной и определяется температурой стенки. Мы проанализируем также, как в каждом из этих предельных случаев на сдвиг влияет качество антирелаксационного покрытия стенок, т. е. вероятность релаксации внутреннего состояния атома при взаимодействии с ним. Наконец, мы исследуем зависимость сдвига от ширины спектра лазерного излучения, возбуждающего КПН-резонанс, что, по нашему мнению, представляет несомненный интерес при практическом использовании рассматриваемого эффекта.

2. МАТЕМАТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ

Пусть на ансамбль щелочных атомов падает плоская электромагнитная волна с двумя несущими частотами, ω_1 и ω_2 . Будем полагать, что волновые векторы обеих спектральных компонент направлены вдоль оси z. Тогда напряженность электромагнитной волны может быть записана следующим образом:

$$\mathbf{E}(z,t) = \mathbf{e}_1 E_1 \exp\{-i(\omega_1 t - k_1 z)\} + \\ + \mathbf{e}_2 E_2 \exp\{-i(\omega_2 t - k_2 z)\} + \text{c.c.}$$
(1)

Здесь E_j , \mathbf{e}_j и k_j — в общем случае комплексная амплитуда напряженности электрического поля, единичный вектор вдоль направления поляризации электрического поля и волновое число соответственно (j = 1, 2).



Рис. 1. Схема энергетических уровней активных атомов и возбуждаемые переходы

Анализ проведем в рамках четырехуровневой модели (рис. 1) атома, имеющего два основных ($|1\rangle$ и $|2\rangle$) и два возбужденных ($|3\rangle$ и $|4\rangle$) уровня. Частоты поля ω_1 и ω_2 близки к частотам переходов соответственно $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ и $|2\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ и отличаются от них на величину отстройки соответственно Δ_1 и Δ_2 ; λ_{hfs} и ω_{hfs} — длина волны и частота сверхтонкого перехода между уровнями основного состояния $|1\rangle$ и $|2\rangle$ (λ_{hfs} — длина волны, соответствующая ω_{hfs}), ω_{34} — частота перехода между уровнями возбужденного состояния $|3\rangle$ и $|4\rangle$.

Будем полагать, что атомный ансамбль разреженный и оптически тонкий и, следовательно, коллективные эффекты не оказывают существенного влияния на рассматриваемые в данной работе явления [40,41]. Состояние ансамбля будем описывать с помощью одноатомной матрицы плотности $\hat{\rho}(\mathbf{p}, \mathbf{r}, t)$, которая в представлении Вигнера по поступательным степеням свободы атома удовлетворяет следующему квантовому кинетическому уравнению:

$$\begin{pmatrix} \frac{\partial}{\partial t} + \frac{\mathbf{p}}{m} \nabla \end{pmatrix} \hat{\rho}(\mathbf{p}, \mathbf{r}, t) = = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}, \hat{\rho}(\mathbf{p}, \mathbf{r}, t)] + \hat{\hat{R}} \{ \hat{\rho}(\mathbf{p}, \mathbf{r}, t) \},$$
(2)

где $\mathbf{p} = m\mathbf{v}$ — импульс атома, m и \mathbf{v} — масса и скорость атома, \hat{H} — гамильтониан атома, учитывающий взаимодействие с внешним полем, $\hat{\hat{R}}$ — оператор релаксации.

Гамильтониан представим в виде $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V},$ где 4

$$\hat{H}_{0} = \sum_{n=1}^{4} \epsilon_{n} \left| n \right\rangle \left\langle n \right| \tag{3}$$

— гамильтониан системы в отсутствие поля, а \hat{V} — оператор взаимодействия атомов с полем, который в дипольном приближении имеет следующий вид:

$$\hat{V} = -\hat{\mathbf{d}} \cdot \mathbf{E} = \hbar\Omega_1 \exp\{-i(\omega_1 t - k_1 z)\} |3\rangle \langle 1| + \\ + \hbar\Omega_2 \exp\{-i(\omega_2 t - k_2 z)\} |3\rangle \langle 2| + \\ + \hbar\tilde{\kappa}\Omega_1 \exp\{-i(\omega_1 t - k_1 z)\} |4\rangle \langle 1| + \\ + \hbar\tilde{q}\Omega_2 \exp\{-i(\omega_2 t - k_2 z)\} |4\rangle \langle 2| + \text{H.c.}, \quad (4)$$

где $\Omega_j = E_j d_{3j}/\hbar$ (j = 1, 2), а $\hat{\mathbf{d}} = \mathbf{e}_d \hat{d}$ — оператор вектора дипольного момента атомов. Коэффициенты $\tilde{\kappa} = d_{41}/d_{31}$, $\tilde{q} = d_{42}/d_{32}$ определяются как отношения матричных элементов дипольного момента; элементы матрицы дипольного момента $d_{12} = 0$ в силу того, что электродипольный переход $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ запрещен. В выражении (4) мы предположили, что поляризации падающих волн сонаправлены с вектором дипольного момента атомов ($\mathbf{e}_d \cdot \mathbf{e}_{1,2} = 1$).

В настоящей работе мы ограничимся одномерной моделью, рассматривая ячейку в виде плоского слоя толщиной *a*, расположенного перпендикулярно оси *z*. В этом случае матрица плотности будет зависеть только от проекции скорости атома на направление распространения излучения, т. е. от координаты $z: \hat{\rho}(\mathbf{p}, \mathbf{r}, t) = \hat{\rho}(v, z, t)$, где $v \equiv v_z$. Среду, как уже упоминалось, будем полагать оптически тонкой, поэтому поглощением излучения в ней можно пренебречь [42].

Выделим в недиагональных элементах матрицы плотности быстро осциллирующий множитель:

$$\tilde{\rho}_{ge} = \rho_{ge} \exp\{-i(\omega_g t - k_g z)\}, \ g = 1, 2, \ e = 3, 4,$$
$$\tilde{\rho}_{12} = \rho_{12} \exp\{-i(\omega_1 - \omega_2)t + i(k_1 - k_2)z\},$$

где $\rho_{nm}(v,z) = \langle n | \hat{\rho}(v,z) | m \rangle$, после чего воспользуемся приближением вращающейся волны. Тогда, пренебрегая малыми в рассматриваемом случае когерентностями ρ_{34} , получим систему уравнений для одноатомной матрицы плотности [38]:

$$\begin{split} \frac{\partial \rho_{11}}{\partial t} + v \frac{\partial \rho_{11}}{\partial z} &= \\ &= -i\Omega_{1}\tilde{\rho}_{13} + i\Omega_{1}^{*}\tilde{\rho}_{31} - i\tilde{\kappa}\Omega_{1}\tilde{\rho}_{14} + i\tilde{\kappa}^{*}\Omega_{1}^{*}\tilde{\rho}_{41} + \\ &+ \frac{\gamma}{2}(\rho_{33} + \tilde{\kappa}^{2}\rho_{44}) + \Gamma_{||}(\rho_{22} - \rho_{11}), \\ \frac{\partial \rho_{22}}{\partial z} &= \\ &= -i\Omega_{2}\tilde{\rho}_{23} + i\Omega_{2}^{*}\tilde{\rho}_{32} - i\tilde{q}\Omega_{2}\tilde{\rho}_{24} + i\tilde{q}\Omega_{2}^{*}\tilde{\rho}_{42} + \\ &+ \frac{\gamma}{2}(\rho_{33} + \tilde{q}^{2}\rho_{44}) + \Gamma_{||}(\rho_{11} - \rho_{22}), \\ \frac{\partial \rho_{33}}{\partial t} + v \frac{\partial \rho_{33}}{\partial z} &= \\ &= i\Omega_{1}\tilde{\rho}_{13} - i\Omega_{1}^{*}\tilde{\rho}_{31} + i\Omega_{2}\tilde{\rho}_{23} - i\Omega_{2}^{*}\tilde{\rho}_{42} - \gamma\rho_{33}, \\ \frac{\partial \rho_{44}}{\partial t} + v \frac{\partial \rho_{44}}{\partial z} &= \\ &= i\tilde{\kappa}\Omega_{1}\tilde{\rho}_{14} - i\tilde{\kappa}^{*}\Omega_{1}^{*}\tilde{\rho}_{41} + i\tilde{q}\Omega_{2}\tilde{\rho}_{24} - i\tilde{q}^{*}\Omega_{2}^{*}\tilde{\rho}_{32} - \\ &- \frac{\gamma}{2}(\tilde{\kappa}^{2} + \tilde{q}^{2})\rho_{44}, \\ \frac{\partial \tilde{\rho}_{12}}{\partial t} + v \frac{\partial \tilde{\rho}_{12}}{\partial z} &= \\ &= i\Omega_{1}^{*}\tilde{\rho}_{32} - i\Omega_{2}\tilde{\rho}_{13} + i\tilde{\kappa}^{*}\Omega_{1}^{*}\tilde{\rho}_{42} - i\tilde{q}\Omega_{2}^{*}\tilde{\rho}_{14} + \\ &+ [i(\delta_{R} + (k_{1} - k_{2})v) - \Gamma_{12}]\tilde{\rho}_{12}, \qquad (5) \\ \frac{\partial \tilde{\rho}_{13}}{\partial t} + v \frac{\partial \tilde{\rho}_{13}}{\partial z} &= \\ &= -i\Omega_{1}^{*}\rho_{11} - i\Omega_{2}\tilde{\rho}_{12} + i\Omega_{1}^{*}\tilde{\rho}_{33} + \\ &+ [-i(\Delta_{1} - k_{1}v) - \gamma']\tilde{\rho}_{13}, \\ \frac{\partial \tilde{\rho}_{14}}{\partial t} + v \frac{\partial \tilde{\rho}_{14}}{\partial z} &= \\ &= -i\tilde{\kappa}^{*}\Omega_{1}^{*}\rho_{11} - i\tilde{q}^{*}\Omega_{2}^{*}\tilde{\rho}_{12} + i\tilde{\kappa}^{*}\Omega_{1}^{*}\rho_{44} + \\ &+ [-i(\Delta_{1} - \omega_{34} - k_{1}v) - \tilde{\kappa}^{2}\gamma']\tilde{\rho}_{14}, \\ \frac{\partial \tilde{\rho}_{23}}{\partial t} + v \frac{\partial \tilde{\rho}_{23}}{\partial z} &= \\ &= -i\Omega_{1}^{*}\tilde{\rho}_{21} - i\Omega_{2}^{*}\rho_{22} + i\Omega_{2}^{*}\rho_{33} + \\ &+ [-i(\Delta_{2} - k_{2}v) - \gamma']\tilde{\rho}_{23}, \\ \frac{\partial \tilde{\rho}_{24}}{\partial t} + v \frac{\partial \tilde{\rho}_{24}}{\partial z} &= \\ &= -i\tilde{\kappa}^{*}\Omega_{1}^{*}\tilde{\rho}_{21} - i\tilde{q}^{*}\Omega_{2}^{*}\tilde{\rho}_{22} + i\tilde{q}^{*}\Omega_{2}^{*}\rho_{44} + \\ &+ [-i(\Delta_{2} - \omega_{34} - k_{2}v) - \tilde{q}^{2}\gamma']\tilde{\rho}_{24}. \end{split}$$

Здесь $\delta_R = (\Delta_1 - \Delta_2)/2$ — двухфотонная отстройка, γ — скорость спонтанного распада возбужденного состояния, γ' — скорость распада оптических когерентностей с уровня $|3\rangle$ ($\gamma' \approx \gamma/2$), $\Gamma_{||}$ — продольная скорость релаксации основного состояния, Γ_{12} поперечная скорость релаксации основного состояния ($\Gamma_{12} \approx \Gamma_{||}/2$).

Система уравнений (5) должна решаться с использованием граничных условий для матрицы плотности. В настоящей работе будем рассматривать два типа граничных условий — это зеркальнокогерентные граничные условия и граничные условия диффузного типа. Рассмотрим эти условия более подробно.

2.1. Граничные условия для зеркального отражения

Пусть отражение атома от стенок ячейки является упругим; процессы атомной деполяризации не зависят от скорости, с которой атом сталкивается со стенкой; при столкновениях, сопровождающихся деполяризацией, переходы между различными подуровнями основного состояния равновероятны. Тогда для элементов матрицы плотности можно записать следующие граничные условия [28, 32]:

.

$$\bar{\rho}_{ii}(v'_{z}) - \rho_{ii}(0, v'_{z}) = \beta(\bar{\rho}_{ii}(v_{z}) - \rho_{ii}(0, v_{z})),
\rho_{ij}(0, v'_{z}) = \alpha\rho_{ij}(0, v_{z}), \quad i \neq j,
\bar{\rho}_{ii}(v'_{z}) - \rho_{ii}(a, v'_{z}) = \beta(\bar{\rho}_{ii}(v_{z}) - \rho_{ii}(a, v_{z})),
\rho_{ij}(a, v'_{z}) = \alpha\rho_{ij}(a, v_{z}), \quad i \neq j.$$
(6)

Здесь $\bar{\rho}_{ii}(v)$ — населенность уровня в отсутствие возбуждающих полей. Коэффициенты α и β ($0 \leq \alpha, \beta \leq 1$) характеризуют степень сохранения поляризации населенностей ρ_{ii} и когерентностей ρ_{ij} , соответственно, в результате соударения атомов со стенкой.

Зеркально-когерентные граничные условия реализуются, когда $\alpha = 1, \beta = 1.$

2.2. Диффузные граничные условия

Пусть при взаимодействии атома со стенкой ячейки (налетающие на стенку атомы имеют неравновесную функцию распределения) потенциал взаимодействия атома с покрытием такой, что имеет место физическая адсорбция, т. е. атом захватывается стенкой ячейки, проводит на ней некоторое время [43], обменивается энергией, а затем вылетает с максвелловским распределением по скоростям [44]. Тогда потоки населенностей налетающих на стенку атомов ρ_{ij}^- на границах z = 0 и z = a имеют соответственно вид

$$-\int_{-\infty}^{0}\rho_{ii}(0,v_z)v_zdv_z,$$
(7)

$$\int_{0}^{\infty} \rho_{ii}(a, v_z) v_z dv_z.$$
(8)

Аналогичным образом записываются выражения и для когерентностей. Тогда атомы, вылетающие от стенки и описываемые потоком населенности ρ_{ij}^+ , будут иметь максвелловское распределение $M(v_z)$ по скоростям вне зависимости от их внутреннего состояния:

$$\rho_{ij}(0, v_z) = \frac{\rho_{ij}^+ M(v_z)}{a}, \quad v_z > 0, \tag{9}$$

$$\rho_{ij}(a, v_z) = \frac{\rho_{ij}^- M(v_z)}{a}, \quad v_z < 0.$$
 (10)

Сшивая выражения (7) и (9) при z = 0 и (8) и (10) при z = a, получим окончательный вид граничных условий диффузного типа:

$$\rho_{ij}^{+} \int_{0}^{\infty} \frac{M(v_z)}{a} v_z \, dv_z = -\alpha \int_{-\infty}^{0} \rho_{ij}(0, v_z) v_z \, dv_z,$$

$$\left[\rho_{ii}^{+} - \frac{1-\beta}{N}\right] \int_{0}^{\infty} \frac{M(v_z)}{a} v_z \, dv_z =$$

$$= -\beta \int_{-\infty}^{0} \rho_{ii}(0, v_z) v_z \, dv_z,$$

$$\rho_{ij}^{-} \int_{-\infty}^{0} \frac{M(v_z)}{a} v_z \, dv_z = -\alpha \int_{0}^{\infty} \rho_{ij}(a, v_z) v_z \, dv_z,$$
(11)

$$\begin{bmatrix} \rho_{ii}^{-} - \frac{1-\beta}{N} \end{bmatrix} \int_{0}^{\infty} \frac{M(v_z)}{a} v_z \, dv_z =$$
$$= \beta \int_{-\infty}^{0} \rho_{ii}(a, v_z) v_z \, dv_z, \quad i \neq j.$$

Здесь N = 2 — число уровней основного состояния. В результате система дифференциальных уравнений (5) решается совместно с граничными условиями (6) или (11). В следующем разделе мы подробно обсудим результаты численного решения.

Основной характеристикой, представляющей интерес при исследовании КПН, является контраст резонанса. В рассматриваемых приближениях сигнал КПН пропорционален суммарной заселенности возбужденных состояний всех атомов, $\rho_{ex}(\delta_R)$, при заданной двухфотонной отстройке, т. е. формально получается интегрированием населенностей возбужденных состояний из (5) по скоростям и длине ячейки. При этом контраст определяется следующим образом:

$$C(\delta_R) = 1 - \frac{\rho_{ex}(\delta_R)}{\rho_{ex}^N},$$

где ρ_{ex}^N — населенность возбужденного состояния в отсутствие двухфотонного резонанса, т. е. при больших двухфотонных отстройках.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ ЧИСЛЕННОГО РАСЧЕТА

Начнем рассмотрение численных результатов с анализа временной эволюции внутреннего состояния атома на каждом этапе его свободного пролета от стенки до стенки. При этом конечное состояние после удара о стенку является начальным для следующего этапа. В результате полная населенность возбужденных состояний всех атомов получается усреднением по их начальному однородному пространственному распределению и распределению Максвелла по скоростям. Динамика населенности отдельного атома для зеркально-когерентного и диффузного отражения в случае идеального покрытия ($\alpha = 1, \beta = 1$) представлена на рис. 2.



Рис. 2. Временная динамика заселенности возбужденного состояния атома при различных типах отражения. Начальное состояние — некогерентная суперпозиция нижних. Параметры расчета: $\Omega_1 = \Omega_2 = 2 \cdot 10^5 \text{ c}^{-1}$; лазер узкополосный, $\omega_{34} = 400 \text{ MFu}$; $\Gamma_{12} = 10 \text{ Fu}$; $\gamma' = 6 \text{ MFu}$; L = 10 см; $T = 50 \,^{\circ}\text{C}$; $v_z = 0.025 \, v_T \, (v_T - \text{наиболее вероятная скорость}).$ Шаг по времени 0.000125 с. Покрытие идеальное $(\alpha = 1, \beta = 1).$

На рис. 2 видно, что в случае диффузного отражения имеет место хаотичность, поскольку эволюция состояния отдельного атома случайна из-за случайного изменения величины скорости при соударении со стенкой. Как следует из граничных условий (11), скорость атома после такого столкновения с большой вероятностью становится соизмерима с наиболее вероятной скоростью. Поскольку эта величина достаточно большая, а время пролета мало, равновесное внутреннее состояние атома не успевает установиться до следующего столкновения. При этом в атомном ансамбле в целом происходит «самоусреднение» по состоянию большого числа атомов. С другой стороны, для зеркальногокогерентного типа отражения динамика полностью детерминирована [39], но при этом даже для идеального покрытия после изменения направления скорости начинаются переходные процессы установления «нового» равновесного состояния. Это вызвано изменением частоты внешних полей в системе отсчета, связанной с движущимся атомом. Для зеркально-когерентного отражения наблюдается периодичность в эволюции атомного состояния, что проявится в особенностях спектров КПН и сдвигов соответствующих резонансов. При этом периодичность зависит от скорости атома, размеров ячейки, интенсивности внешнего поля, скоростей спонтанного распада и др.

Различие в динамике отдельных атомов при разных типах отражения приводит к тому, что и форма резонанса КПН, и его сдвиг будут также различаться. Наиболее сильное влияние типа отражения имеет место в центре линии для ячеек малого размера. На рис. 3 проведено сравнение сдвигов абсолютного максимума контраста резонанса КПН для двух типов отражения для идеальных покрытий в зависимости от размеров L ячейки.

Как можно видеть из сравнения рис. 3a и 3b, частота расщепления возбужденного состояния существенно влияет на величины сдвигов резонанса КПН и их зависимость от размеров ячейки. Нетривиальным выглядит тот факт, что для диффузного отражения с увеличением ω_{34} среднее значение сдвига уменьшается, а амплитуда осцилляций для диффузного отражения растет (рис. 3a). Вторая особенность, присущая сдвигам КПН-резонанса при диффузионном отражении, — смена знака величины сдвига. При этом особенно важно подчеркнуть, что для малых ячеек, размеры которых существенно меньше длины волны микроволнового перехода ($L \ll \lambda_{hfs}$), сдвиг монотонно уменьшается с уменьшением размера.

Приведенные на рис. 3 результаты соответствуют ют положению максимума основного резонанса вблизи нулевых двухфотонных отстроек. Сложная немонотонная зависимость сдвига КПН-резонанса от размеров и наличие резких изменений при диффузном отражении связана со сложной формой контура резонанса КПН, обусловленной различным вкладом атомов, двигающихся в противоположных



Рис. 3. Сдвиги положения абсолютного максимума контраста резонанса КПН в зависимости от размеров ячейки для двух типов отражения — зеркально-когерентного и диффузного. Расчеты проведены для следующих параметров: $\Omega_1 = \Omega_2 = 3 \cdot 10^5 \text{ c}^{-1}$; $\lambda_{hfs} = 4.5 \text{ см}$; $T = 50 \degree \text{C}$; $\Delta_1 = \Delta_2 = 0$; $\omega_{34} = 800 \text{ МГц}$ (*a*); $\omega_{34} = 400 \text{ МГц}$ (*b*). Остальные параметры те же, как на рис. 2. Покрытие идеальное ($\alpha = 1, \beta = 1$)

направлениях. На рис. 4 показаны спектры КПНрезонанса для диффузного (рис. 4*a*) и зеркальнокогерентного отражения (рис. 4*b*). Размеры ячеек выбраны таким образом, чтобы они были близки к области первого резкого изменения знака сдвига.

Приведенный выше на рис. 2 результат получен для диффузного отражения. При зеркальном отражении ситуация иная. Когерентность разрушается не полностью, а скорость меняется только по направлению. Это создает условия для усиления механизма формирования дополнительных резонансов ЭИП, что хорошо демонстрирует рис. 3.

Диффузное отражение приводит к тому, что имеет место сложная структура спектра (рис. 4*a*). При $L = 3.1 \,\mathrm{cm} \, (0.69 \lambda_{hfs})$ явным образом выде-



Рис. 4. Зависимости формы резонанса от размеров ячейки. Все параметры, как на рис. 3; $\omega_{34} = 800 \text{ MF}$ ц. Граничные условия диффузного (*a*) и зеркально-когерентного (*b*) типа

ляется максимум в области отрицательных отстроек, при $L = 3.4 \,\mathrm{cm} \, (0.75 \lambda_{hfs})$ аналогичный максимум имеет место в области положительных отстроек. При $L = 3.25 \,\mathrm{cm} \, (0.72 \lambda_{hfs})$ имеет место двугорбая структура. Кривые сдвига на рис. 4a получены при анализе положения абсолютного максимума резонанса, поэтому небольшие изменения размера ячейки для двугорбого резонанса могут приводить к резкому изменению положения абсолютного максимума, когда превалировать начинает либо правый, либо левый локальный максимум. Это мы и наблюдаем на графике зависимости сдвига от размера.

Для зеркально-когерентного отражения ситуация другая. Спектры более симметричные (рис. 4b), поэтому зависимость сдвига КПН-резонанса от размеров ячейки более плавная.

При использовании явления КПН в задачах стабилизации частоты обычно проводят сканирование частоты вблизи резонанса. В связи с этим мы пола-



Рис. 5. Зависимости сдвига КПН-резонанса от размеров ячейки. Все параметры, как на рис. 3, $\omega_{34} = 800 \text{ MF}$ ц. Граничные условия диффузного (a) и зеркально-когерентного (b) типа

гаем целесообразным проанализировать то, как изменятся результаты в случае аппроксимации резонансной кривой вблизи максимума параболической зависимостью в определенной области частот $\Delta \omega$ вблизи нулевой двухфотонной отстройки. Параболическая аппроксимация выбрана для простоты, при этом она позволяет качественно наблюдать основные тенденции. Результаты сравнения для диффузионного и зеркального отражения приведены на рис. 5.

Основной вывод, который следует из рис. 5, состоит в том, что определение сдвига на основе метода сглаживания кривой приводит к ослаблению осцилляций этого сдвига. Однако даже в этом случае амплитуда изменений величины сдвига остается существенной, также сохраняется знакопеременность этого сдвига при диффузном отражении. Второй важный результат касается абсолютной величины сдвига. И при диффузном, и при зеркальном



Рис. 6. Зависимости сдвига КПН-резонанса от размеров ячейки. Все параметры, как на рис. 3, $\omega_{34} = 800 \text{ MF}$ ц, диапазон частот $\Delta \omega = 500 \text{ c}^{-1}$. Граничные условия диффузного (*a*) и зеркально-когерентного (*b*) типа

отражении для большинства размеров ячейки измерение сдвига по модуляционным измерениям дает большее значение, чем сдвиг абсолютного максимума резонанса. Особенно это заметно для зеркального отражения и для ячеек, размеры которых меньше или порядка половины длины волны радиочастотного перехода. По нашему мнению, это связано со сложной спектральной структурой КПН-резонанса для ячеек малого размера, обусловленной эффектом сужения Дике [28, 32, 45].

Рассмотрим теперь зависимость величины сдвига от качества покрытия (рис. 6). Будем изменять параметр α , при этом для простоты полагая, что $\alpha = \beta$. Это соответствует случаю, когда качество покрытия одинаково для населенностей и когерентностей.

На рис. 6 можно видеть, что ухудшение качества покрытия приводит к уменьшению абсолютной величины сдвига КПН-резонанса и его чув-



Рис. 7. Зависимости сдвига КПН-резонанса от ширины лазерного спектра. Все параметры, как на рис. 3, $\omega_{34} = 800 \text{ МГц}$, a = 1 см. Граничные условия диффузного (*a*) и зеркально-когерентного (*b*) типа

ствительности от размеров ячейки (снижается амплитуда осцилляций). С ухудшением качества покрытия также уменьшается различие между диффузным и зеркально-когерентным типами покрытия. Это связано с тем, что по мере ухудшения покрытия начинают превалировать разрушение когерентности и выравнивание населенностей при каждом акте столкновения со стенкой ячейки. В итоге при $\alpha = \beta = 0$ мы получаем картину, соответствующую граничным условиям полного гашения.

Выше нами были рассмотрены зависимости сдвигов для узкополосного излучения. Сейчас мы рассмотрим случай, когда лазерное излучение является широкополосным. Под широкополосным излучением будем полагать случай, когда ширина лазерного спектра в несколько раз больше естественной ширины возбужденного состояния атомов. Как показано в работе [28], учет ширины лазерного спектра может быть проведен путем



Рис. 8. Зависимости формы КПН-резонанса от размеров ячейки: $\omega_{34} = 800 M \Gamma$ ц; $\Gamma_L = 10 \gamma$; остальные параметры, как на рис. 3. Граничные условия диффузного (*a*) и зеркально-когерентного (*b*) типа

соответствующей аддитивной добавки к скорости распада оптической когерентности γ' . На рис. 7 представлена зависимость сдвига КПН-резонанса от размеров ячейки для различных ширин спектра лазерного излучения. Можно видеть, что, как и в случае узкополосного лазерного источника, имеет место квазипериодическая зависимость сдвига КПН-резонанса от размеров ячейки. При этом амплитуда и средняя величина изменяются существенно.

Отмеченные качественные изменения величины сдвигов и их зависимостей от размеров связаны с особенностями спектров при широкополосном возбуждении КПН [28, 32]. На рис. 8 показаны спектры диффузионного и зеркального отражений для двух размеров ячейки. Один соответствует области «провала», т. е. области большого по величине отрицательного сдвига, второй — области, когда сдвиг близок к нулю. Хорошо видно, что независимо от характера отражения малым сдвигам соответствует наличие в спектре сравнительно узкого пика вблизи резонансной частоты атома. Для тех размеров, для которых сдвиг велик, узкая структура отсутствует. Имеется один широкий максимум. Отметим также, что зависимости сдвигов и контраста резонанса КПН от качества покрытия для широкополосного лазерного возбуждения аналогичны случаю для узкополосного лазера. Различие состоит в абсолютной величине контраста, которая для широкополосного лазерного источника в несколько раз выше.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе исследовано совместное влияние движения атомов и их столкновений с антирелаксационным покрытием стенок газовых ячеек на форму резонанса КПН и его сдвиг в разреженном газе. Показано, что в случае и узкополосного, и широкополосного лазерных источников при любом типе отражения атомов от стенок имеет место сложная немонотонная, осциллирующая зависимость сдвига КПН-резонанса от размеров ячейки. Амплитуды осцилляций уменьшаются при ухудшении качества покрытия. Обнаруженные эффекты объяснены особенностями спектров КПН-резонансов при различных условиях возбуждения. Обнаружено, что в рассматриваемых условиях наблюдается сильная зависимость формы спектров КПН от размеров ячейки. В ряде случаев резонансы имеют двугорбую структуру, причем форма спектра испытывает существенные изменения при сравнительно небольших изменениях размеров ячейки.

Финансирование. Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования в рамках Государственного задания (базовая часть), проект № FSEG-2020-0024. Проведение исследований формы спектра резонансов КПН было поддержано грантом Фонда развития теоретической физики и математики «БАЗИС». Результаты работы были получены с использованием вычислительных ресурсов суперкомпьютерного центра Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого (http://www.spbstu.ru).

ЛИТЕРАТУРА

- G. Alzetta, A. Gozzini, L. Moi, and G. Orriols, Nuovo Cim. B 36, 5 (1976).
- E. Arimondo and G. Orriols, Lett. Nuovo Cim. 17, 333 (1976).

- H. R. Gray, R. M. Whitley, and C. R. Stroud, Jr., Opt. Lett. 3, 218 (1978).
- Б. Д. Агапьев, М. Б. Горный, Б. Г. Матисов, Ю. В. Рождественский, УФН 163 (9), 1 (1993).
- 5. М.Б. Горный, Б.Г. Матисов, Ю.В. Рождественский, ЖЭТФ 68, 728 (1989).
- 6. S. Harris, Phys. Today 50, 36 (1997).
- A. Akulshin, A. Celikov, and V. Velichansky, Opt. Comm. 84, 139 (1991).
- P. D. D. Schwindt, S. Knappe, Vishal Shah, L. Hollberg, and J. Kitching, Appl. Phys. Lett. 85, 6409 (2004).
- V. Andryushkov, D. Radnatarov, and S. Kobtsev, Appl. Opt. 61, 3604 (2022).
- О. А. Кочаровская, Я.И. Ханин, Письма в ЖЭТФ 48, 581 (1988).
- 11. M. D. Lukin, Rev. Mod. Phys. 75, 457 (2003).
- M. Fleischhauer, A. Imamoglu, and J. P. Marangos, Rev. Mod. Phys. 77, 633 (2005).
- 13. R. Zhang and X.-B. Wang, Phys. Rev. A 94, 063856 (2016).
- 14. J. Vanier, Appl. Phys. B 81, 421 (2005).
- С. А. Зибров, В. Л. Величанский, А. С. Зибров, А. В. Тайченачев, В. И. Юдин, Письма в ЖЭТФ 82, 534 (2005).
- 16. S. A. Zibrov, I. Novikova, D. F. Phillips, R. L. Walsworth, A. S. Zibrov, V. L. Velichansky, and V. I. Yudin, Phys. Rev. A 81, 013833 (2010).
- 17. J. Kitching, Appl. Phys. Rev. 5, 031302 (2018).
- S. Kobtsev, S. Donchenko, S. Khripunov, D. Radnatarov, I. Blinov, and V. Palchikov, Opt. Laser Technol. 119, 105634 (2019).
- M. Gozzelino, S. Micalizio, C. E. Calosso, A. Godone, H. Lin, and F. Levi, IEEE Trans. Ultrason., Ferroelectr., Freq. Control 68, 872 (2021).
- 20. M. Petersen, M. A. Hafiz, E. de Clercq, and R. Boudot, JOSA B 39, 910 (2022).
- H. Robinson, E. Ensberg and H.T. Dehmel, Bull. Am. Phys. Soc. 3, 9 (1958)
- 22. S. J. Seltzer and M. V. Romalis, J. Appl. Phys. 106, 114905 (2009)
- 23. M. V. Balabas, K. Jensen, W. Wasilewski, H. Krauter, L. S. Madsen, J. H. Müller, T. Fernholz, and E. S. Polzik, Opt. Express 18, 5825 (2010).

- 24. M. V. Balabas, T. Karaulanov, M. P. Ledbetter, and D. Budker, Phys. Rev. Lett. 105, 070801 (2010).
- 25. S. N. Atutov, A. I. Plekhanov, V. A. Sorokin, S. N. Bagayev, M. N. Skvortsov, and A. V. Taichenachev, Eur. Phys. J. D 72, 155 (2018).
- 26. M. T. Graf, D. F. Kimball, S. M. Rochester, K. Kerner, C. Wong, D. Budker, E. B. Alexandrov, and M. V. Balabas, Phys. Rev. A 72, 023401 (2005).
- D. Budker, L. Hollberg, D. F. Kimball, J. Kitching, S. Pustelny, and V.V. Yashchuk, Phys. Rev. A 71, 012903 (2005).
- 28. G. Kazakov, B. Matisov, A. Litvinov, and I. Mazets., J. Phys. B 40, 3851 (2007)
- 29. G. A. Kazakov, A. N. Litvinov, B. G. Matisov, V. I. Romanenko, L. P. Yatsenko, and A. V. Romanenko, J. Phys. B 44, 235401 (2011).
- 30. S. Gateva, L. Gurdev, E. Alipieva, E. Taskova, and G. Todorov, J. Phys. B 44(3), 035401 (2011).
- H.-J. Lee and H.S. Moon, J. Korean Phys. Soc. 63, 890 (2013).
- 32. K.A. Barantsev, S.V. Bozhokin, A.S. Kuraptsev, A.N. Litvinov, and I.M. Sokolov, JOSA B 38, 1613 (2021).
- 33. K. Nasyrov, S. Gozzini, A. Lucchesini, C. Marinelli, S. Gateva, S. Cartaleva, and L. Marmugi, Phys. Rev. A 92, 043803 (2015).

- 34. К.А. Насыров, Автометрия 52, 85 (2016).
- 35. M. Bhattarai, V. Bharti, V. Natarajan, A. Sargsyan, and D. Sarkisyan, Phys. Lett. A 383, 191 (2019).
- 36. E. Taskova and E. Alipieva, J. Phys. Conf. Ser. 1859, 012025 (2021)
- 87. Е. А. Алипиева, Е. Т. Таскова, Г. Ц. Тодоров,
 В. А. Полищук, Т. А. Вартанян, Опт. и спектр.
 127, 373 (2019).
- 38. К.А. Баранцев, А.С. Курапцев, А.Н. Литвинов, ЖЭТФ 160, 611 (2021).
- 39. А.Н. Литвинов, И.М. Соколов, Письма в ЖЭТФ 113, 791 (2021).
- 40. A.S. Kuraptsev and I.M. Sokolov, Phys. Rev. A 90, 012511 (2014).
- 41. S. E. Skipetrov and I. M. Sokolov, Phys. Rev. B 98, 064207 (2018).
- 42. К.А.Баранцев, Е.Н.Попов, А.Н.Литвинов, ЖЭТФ 148, 869 (2015).
- 43. M. A. Bouchiat and J. Brossel, Phys. Rev. 147, 41 (1966).
- 44. В. П. Силин, Введение в кинетическую теорию газов, Наука, Москва (1971).
- 45. R. H. Dicke, Phys. Rev. 89, 472 (1953).