

## “Асимметрия ветвления” резонанса когерентного пленения населенностей

Е. А. Цыганков<sup>1)</sup>, Д. С. Чучелов, М. И. Васьковская, С. А. Зибров, В. В. Васильев, В. Л. Величанский

Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 28 мая 2024  
После переработки 10 июня 2024 г.  
Принята к публикации 10 июня 2024 г.

Рассматривается ситуация, когда разность населенностей в основном состоянии  $\Lambda$ -схемы уровней возникает за счет спонтанного распада верхнего уровня в нижние. Показано, что возникающая из-за этого асимметрия резонанса когерентного пленения населенностей приводит к сдвигу частоты квадратурного сигнала, который нелинейно зависит от интенсивности оптического излучения. При этом данный вклад не подавляется за счет использования высоких частот модуляции по сравнению со скоростью релаксации поляризации основного состояния (аналог режима Паунда–Древера–Холла). Обсуждается, что указанный сдвиг существенно мал при использовании бинарной смеси благородных буферных газов.

DOI: 10.31857/S1234567824130068, EDN: CERHMD

Для применения в микроволновых стандартах частоты [1, 2] на основе газовых ячеек с атомами щелочного металла опорный резонанс должен иметь достаточно малую ширину. Для увеличения времени жизни поляризации основного состояния атомов могут быть использованы два стандартных способа. Первый заключается в использовании антирелаксационного покрытия, уменьшающего вероятность релаксации атомов при столкновениях со стенками ячейки. Известны алкановые, алкеновые, органхлорсилановые и другие типы покрытий, имеющие различные преимущества и недостатки [3]. Главный общий недостаток покрытий — отсутствие максимума в зависимости частоты микроволнового перехода между уровнями  $m_{F_g} = 0$  (здесь и далее индексы  $g, e$  соответствуют основному и возбужденному состоянию) от температуры [4], что требует ее строгого контроля при исполнении стандарта частоты [5]. Второй способ состоит в наполнении газовой ячейки буферным газом, который уменьшает время достижения атомами стенок, при этом вероятность релаксации при столкновении атомов щелочного металла с его частицами много меньше, чем со стенками. Роль буферного могут выполнять инертные газы и ряд молекулярных [6]. Часть из них приводит к положительному линейному температурному сдвигу частоты микроволнового перехода, часть — к отрицательному. Это позволяет подобрать бинарную смесь, которая обеспечивает квадратичную температурную зависимость частоты в приемлемом для стандарта

частоты диапазоне температур, поэтому в большинстве случаев используют буферный газ, а не антирелаксационные покрытия.

Благородные газы эффективно деполаризуют возбужденное состояние  $nP_{1/2}$  атомов щелочных металлов при столкновениях [7], что связано с его ненулевым орбитальным моментом  $L$  [8, 9]. Некоторые молекулярные газы, например, азот и метан, обладают свойством тушения флуоресценции атомов щелочных металлов: энергия возбужденного состояния последних переходит в колебательную энергию молекул. Поскольку спонтанное излучение должно приводить к уширению опорного резонанса и уменьшению его амплитуды [5, 6, 10], то азот считают более предпочтительным буферным газом.

Известно, что происходящее при деполаризующих столкновениях выравнивание населенностей магнитных подуровней возбужденного состояния уменьшает эффективность оптической накачки на подуровень основного состояния с максимальным значением  $m_{F_g}$  при использовании излучения циркулярной поляризации [8]. В нашей работе был рассмотрен случай электродипольных переходов между уровнями  $F_g = 1, F_g = 2$  и  $F_e = 1, F_e = 2$ . В предположении полного выравнивания населенностей магнитных подуровней последних было теоретически показано, что такой результат справедлив и для случая резонанса когерентного пленения населенностей (КПН) [11], который используется в малогабаритных атомных часах [12, 13]. При этом амплитуда КПН-резонанса, по сравнению с ситуацией отсутствия выравнивания населенно-

<sup>1)</sup>e-mail: tsygankov.e.a@yandex.ru

стей уровней  $F_e = 1$ ,  $F_e = 2$ , возрастает. Измерение технического контраста резонанса в атомах  $^{87}\text{Rb}$ , определяемого как отношение уровня пропускания в точном резонансе к разности между полным и нерезонансным уровнями пропускания излучения атомной средой [14], показало, что, в случае аргона и неона, он в разы больше, чем при использовании азота, когда скорость оптической накачки заметно превышает релаксацию населенностей основного состояния к равновесному. Данный результат можно объяснить следующим. Азот обеспечивает меньшую степень выравнивания населенностей состояния  $5P_{1/2}$ , чем инертные газы, поскольку часть столкновений приводит только к их безызлучательной релаксации. В такой ситуации населенности рабочих подуровней  $m_{F_g} = 0$  различны на величину около 10% из-за притока с неодинаково заселенных подуровней  $m_{F_e} = 0$  [11].

В работе [15] мы рассмотрели случай, когда модулируется разность частот компонент бихроматического излучения, индуцирующего резонанс КПН. Это обеспечивает в поглощении наличие отклика на частоте модуляции, амплитуда которого является нечетной функцией двухфотонной расстройки (отличия разности частот и частоты микроволнового перехода), что дает сигнал ошибки и позволяет организовать обратную связь для привязки частоты стандарта к микроволновому переходу. Его можно представить в виде суммы синфазного и квадратурного сигналов. Первый определяет осцилляции, происходящие в фазе с модуляцией разности частот компонент поля, осцилляции второго сдвинуты по фазе на  $\pi/2$ . Было показано, что модуляция обеспечивает многопиковую структуру КПН-резонанса. В случае отличия частот Раби компонент поля пики становятся асимметричны и возникает эффект затягивания частоты, смещающий положение центрального. Соответствующий сдвиг частоты нелинейно зависит от интенсивности оптического излучения. Как известно, методы подавления светового сдвига частоты исходят из предположения о линейной зависимости частоты сигнала ошибки от интенсивности излучения. Нелинейный сдвиг, вызванный асимметрией резонанса, снижает их эффективность. Однако было показано, что переход в режим высоких частот модуляции (предложено в [16]) приводит к подавлению нелинейного сдвига частоты, что происходит в силу разрешения многопиковой структуры резонанса [15].

В данной работе мы показываем, что при асимметрии КПН-резонанса, связанной с неодинаковым заселением уровней основного состояния за счет спон-

танного распада верхнего, возникает нелинейный сдвиг частоты квадратурного сигнала от интенсивности излучения. При этом он не оказывается подавлен в режиме высоких частот модуляции, который обеспечивает разрешение многопиковой структуры и подавление эффекта затягивания частоты. Отметим, что указанный механизм отличия населенностей нижних уровней  $\Lambda$ -схемы и его влияние на сдвиг частоты резонанса КПН рассматривался ранее в [17, 18]. В работах был исследован вариант Рэмси-спектроскопии перехода между уровнями основного состояния для получения сигнала ошибки.

Рассмотрим  $\Lambda$ -схему уровней, в которой приход в уровень  $|2\rangle$  за счет спонтанного распада верхнего равен  $(1 - \beta)\gamma/2$ , а в другой уровень основного состояния  $-(1 + \beta)\gamma/2$ ; см. рис. 1. Здесь  $\gamma$  есть естественная ширина верхнего уровня, параметр  $\beta$  задает отличие каналов спонтанного распада, т.е. моделирует различный приток с подуровней  $m_{F_e} = 0$  в рабочие  $m_{F_g} = 0$  атомов щелочного металла. В рамках модели  $\beta$  в принципе может принимать значения из интервала  $[-1, 1]$ , но мы рассматриваем случай  $|\beta| \sim 0.1$ .

Электродипольные переходы между уровнями  $|2\rangle$ ,  $|e\rangle$  и  $|1\rangle$ ,  $|e\rangle$  вызывает следующее бихроматическое поле:

$$\mathcal{E}(t) = \frac{1}{2} \left\{ \mathcal{E}_{-1} e^{-i[\omega_{-1}t - \varphi(t)]} + \mathcal{E}_1 e^{-i[\omega_1 t + \varphi(t)]} \right\} + \text{к. с.}, \quad (1)$$

где  $\omega_{\mp 1} = \omega_L \mp \Omega$ , а модуляционное слагаемое  $\varphi(t) = a \cdot \sin \omega_m t$  обеспечивает синфазный и квадратурный сигнал. Частота лазерного излучения содержит отстройку от полусуммы частот оптических переходов,  $\omega_L - \omega_0 = \Delta_L$ . При этом  $\omega_L, \omega_0 \gg \omega_g$ , где  $\omega_g$  есть частотный интервал между уровнями основного состояния. Считается, что низкочастотная компонен-

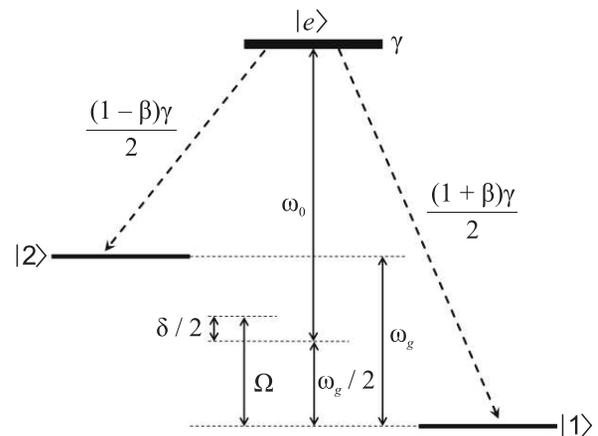


Рис. 1. Рассматриваемая схема уровней

та поля вызывает переходы только между уровнями  $|2\rangle$ ,  $|e\rangle$ , а высокочастотная – между  $|1\rangle$ ,  $|e\rangle$ . Частоты Раби переходов считаются реальными и равными величинами,  $d\mathcal{E}_{-1}/2\hbar = d\mathcal{E}_1/2\hbar = V$ . Разность частот компонент поля имеет малую отстройку от интервала между уровнями основного состояния,  $2\Omega - \omega_g = \delta$ .

Исходную систему уравнений для элементов атомной матрицы плотности упрощаем с помощью приближений малого насыщения, резонансного (вращающейся волны) и за счет адиабатического исключения возбужденного состояния. Соответствующие выкладки можно найти в [15, 19], они предполагают следующую иерархию параметров:

$$\delta \sim \omega_m \lesssim \Gamma_{g,c} \sim V^2/\Gamma \ll \gamma \ll \Gamma \ll \Omega \sim \omega_g \ll \omega_0, \omega_L, \quad (2)$$

где параметр  $\Gamma$  определяет однородное уширение оптической линии,  $\Gamma_g, \Gamma_c$  – релаксацию населенностей основного состояния к равновесному значению  $1/2$  и затухание недиагонального элемента  $\rho_{21}$ , определяющего поляризацию основного состояния, соответственно.

Указанные выше приближения позволяют выразить населенность верхнего уровня через элементы матрицы плотности основного состояния, которая в рассматриваемой ситуации определяет поглощение оптического излучения:

$$\rho_{ee} = 2S \frac{\Gamma}{\gamma} (1 + \rho_{21} + \rho_{12}), \quad (3)$$

где  $S = V^2 / (\Gamma^2 + \Delta_L^2)$ .

Для элементов основного состояния имеет место следующая система уравнений:

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho_{22} = -\Gamma S [2\rho_{22} - 1 + \beta(1 - \rho_{21} - \rho_{12})] - i\Delta_L S (\rho_{21} - \rho_{12}) - \Gamma_g (\rho_{22} - 1/2), \quad (4a)$$

$$\left( i \frac{\partial}{\partial t} + \delta + 2a \cdot \omega_m \cos \omega_m t + i\Gamma_c + 2i\Gamma S \right) \rho_{21} = -i\Gamma S + \Delta_L S (1 - 2\rho_{22}). \quad (4b)$$

Сперва опустим модуляционное слагаемое  $2a \cdot \omega_m \cos \omega_m t$  в скобках левой части уравнения (4b) и проанализируем влияние отличия каналов спонтанного распада на элементы основного состояния. В общем случае квазистационарное решение громоздко, но в случае  $\Delta_L = \delta = 0$  (точный оптический и двухфотонный резонанс) для населенности уровня  $|2\rangle$  можно получить удобное выражение

$$\rho_{22} = \frac{1}{2} \left[ 1 - \beta \frac{P_g}{(1 + P_g)^2} \right], \quad (5)$$

где  $P_g = 2\Gamma S/\Gamma_g$ , которое показывает, что в слабом поле  $P_g \ll 1$  населенность ведет себя как  $1/2(1 - \beta P_g)$ , т.е. линейно убывает с ростом интенсивности излучения. В противоположном случае  $P_g \gg 1$  поведение описывается выражением  $1/2(1 - \beta/P_g)$  и  $\rho_{22}$  стремится к  $1/2$  снизу – сильное поле задает распределение населенностей нижних уровней несмотря на то, что они неодинаковым образом заселяются за счет распада верхнего уровня. Таким образом, отличие каналов спонтанного распада приводит к неравенству  $\rho_{11} \neq \rho_{22}$  только в случае ненулевой релаксации основного состояния  $\Gamma_g \neq 0$ . Минимум населенности  $\rho_{22}$  и, соответственно, максимум для  $\rho_{11}$  достигается при  $P_g = 1$  и равен  $1/2 \mp \beta/8$ . Для получения компактного выражения для недиагонального элемента достаточно упрощения  $\Delta_L = 0$ :

$$\rho_{21} = -\frac{1}{2} P_c \frac{i\tilde{\delta} + 1 + P_c}{\tilde{\delta}^2 + (1 + P_c)^2}, \quad (6)$$

где  $P_c = 2\Gamma S/\Gamma_c$ ,  $\tilde{\delta} = \delta/\Gamma_c$ . Выражение (6) показывает, что в сильном поле  $P_c \gg 1$  при  $\delta = 0$  имеет место равенство  $\rho_{21} = 1/2$ , из чего следует, что  $\rho_{ee} \equiv 0$ , т.е. оптическое поле не испытывает поглощения. Также отметим, что в окрестности  $\delta = 0$  линейная по  $\delta$  часть  $\text{Im}(\rho_{21})$  достигает минимума  $-1/8$  при  $P_c = 1$ . Напомним, что при  $\Delta_L \neq 0$  реальная часть  $\rho_{21}$  приобретает пропорциональный  $\delta$  член, в результате чего функция  $\rho_{ee}(\delta)$  перестает быть четной, то есть КПН-резонанс становится асимметричным.

Далее учтем модуляционное слагаемое  $2a \cdot \omega_m \cos \omega_m t$  в уравнении (4b) и численно решим систему уравнений (4) при значении индекса модуляции  $a \simeq 0.541$ , обеспечивающего максимальную крутизну центральной дисперсионной кривой квадратного сигнала. Также будем использовать следующие значения параметров:  $\Gamma_c = 2\Gamma_g = 2\pi \cdot 500$  Гц,  $\Gamma = 2\pi \cdot 1.5 \cdot 10^9$  Гц,  $\Delta_L/\Gamma = -1/10$ ,  $\beta = 0.15$ .

На рисунке 2 приведена многопиковая структура  $A_0$  (неосциллирующая часть  $\rho_{ee}$  или ее нулевая гармоника по частоте  $\omega_m$ ) и соответствующий ей квадратурный сигнал  $A_Q$ , полученные как усредненная по периоду частоты  $\omega_m$  населенность  $\rho_{ee}$  без и с ее домножением на  $\sin \omega_m t$ . Усреднение проводилось в интервале времени  $[2\pi \cdot 199/\omega_m, 2\pi \cdot 200/\omega_m]$ , где заведомо достигается установившийся режим. Частота модуляции  $\omega_m$  равна  $2\pi \cdot 10$  кГц для всех случаев, кроме рис. 3, при таком значении эффект затягивания частоты уже пренебрежимо мал по сравнению со сдвигом нулей дисперсионных кривых квадратного сигнала, связанным с асимметрией резонанса КПН.

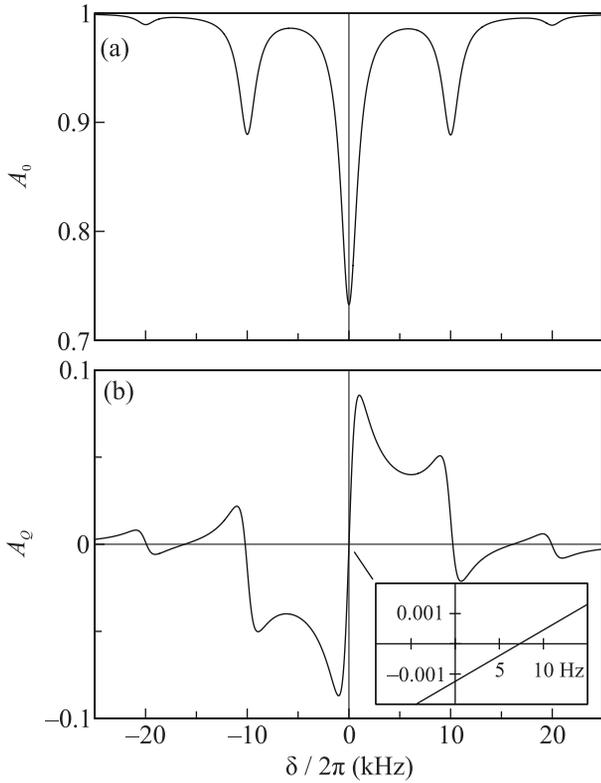


Рис. 2. (a) – Неосциллирующая часть населенности верхнего уровня. (b) – Квадратурный сигнал (амплитуда осцилляций поглощения  $\propto \sin \omega_m t$ ). Вставка демонстрирует смещение частоты нуля центральной дисперсионной кривой, связанное с асимметрией резонанса. Вертикальные оси приведены в единицах  $2S\Gamma/\gamma$

На рисунке 3 представлена зависимость сдвига частоты нуля центральной дисперсионной кривой квадратурного сигнала от величины  $P_c = 2S\Gamma/\Gamma_c$  – отношения полевого уширения к скорости релаксации недиагонального элемента основного состояния. Как показывает зависимость, нелинейная часть сдвига наиболее выражена при умеренных частотах Раби, когда населенности заметно отклоняются от равновесных значений.

Полученный результат позволяет сделать следующее заключение. В ячейках с антирелаксационным покрытием за счет неодинакового заселения подуровней  $m_{F_g} = 0$  спонтанным распадом верхнего уровня частота сигнала ошибки будет нелинейно зависеть от интенсивности излучения даже в случае режима высоких частот модуляции, который позволяет избежать эффекта затягивания частоты. Это дополнительная причина, по которой в стандартах частоты на основе эффекта КПН в газовых ячейках с атомами щелочного металла следует использовать буферный газ. При этом более предпочтительна бинарная смесь из благородных газов, поскольку из-

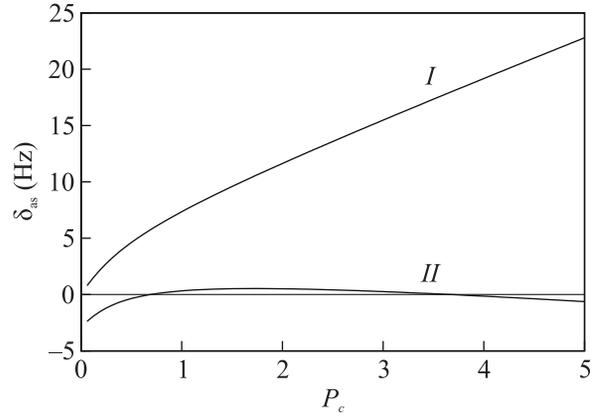


Рис. 3. Кривая I – зависимость сдвига частоты нуля центральной дисперсионной кривой квадратурного сигнала от отношения полевого уширения к скорости релаксации поляризации основного состояния. Кривая II – нелинейная часть сдвига. Выбранная частота модуляции  $\omega_m = 2\pi \cdot 100$  кГц обеспечивает подавление сдвига частоты из-за эффекта затягивания в случае существенного полевого уширения. Сдвиг посчитан с точностью  $5 \cdot 10^{-3}$  Гц

вестно, что они в значительной степени выравнивают населенности подуровней состояния  $nP_{1/2}$  атомов щелочного металла. В результате спонтанный распад практически одинаково заселяет подуровни и нелинейный по интенсивности излучения сдвиг частоты сигнала ошибки оказывается существенно подавлен.

**Финансирование работы.** Данная работа финансировалась за счет средств Физического института академии наук им. П. Н. Лебедева. Никаких дополнительных грантов на проведение или руководство данным конкретным исследованием получено не было.

**Конфликт интересов.** Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. J. Vanier and C. Tomescu, *The quantum physics of atomic frequency standards: recent developments*, CRC Press, Boca Raton (2015).
2. F. Riehle, *Frequency standards: basics and applications*, John Wiley & Sons, Darmstadt (2006).
3. H. Chi, W. Quan, J. Zhang, L. Zhao, and J. Fang, *Applied Surface Science* **501**, 143897 (2020).
4. M. Abdel Hafiz, V. Maurice, R. Chutani, N. Passilly, C. Gorecki, S. Guérandel, E. de Clercq, and R. Boudot, *J. Appl. Phys.* **117**, 184901 (2015).
5. J. Kitching, *Appl. Phys. Rev.*, **5**, 031302 (2018).
6. J. Vanier and C. Audoin, *The Quantum Physics of Atomic Frequency Standards*, CRC Press, Boca Raton (1989).

7. W. Happer, Rev. of Mod. Phys. **44**, 169 (1972).
8. W. Franzen and A. G. Emslie, Phys. Rev. **108**, 1453 (1957).
9. A. I. Okunevich and V. I. Perel', Soviet Physics JETP **31**, 666 (1970).
10. J. Vanier and C. Mandache, Appl. Phys. B **87**, 565, (2007).
11. K. M. Sabakar, M. I. Vaskovskaya, D. S. Chuchelov, E. A. Tsygankov, V. V. Vassiliev, S. A. Zibrov, and V. L. Velichansky, Phys. Rev. Appl. **20**, 034015 (2023).
12. M. Travagnin, Joint Research Center, <https://publications.jrc.ec.europa.eu/repository/handle/JRC125394>.
13. Microchip Technology Incorporated, <https://ww1.microchip.com/downloads/en/DeviceDoc/00003876.pdf>.
14. V. Shah and J. Kitching, *Advances in Atomic, Molecular, and Optical Physics*, Academic Press, New Jersey (2010), v. 59, ch. 2, p. 21.
15. E. A. Tsygankov, D. S. Chuchelov, M. I. Vaskovskaya, V. V. Vassiliev, S. A. Zibrov, and V. L. Velichansky, Phys. Rev. A, **109**, 053703 (2024).
16. V. I. Yudin, M. Yu. Basalaev, A. V. Taichenachev, O. N. Prudnikov, D. A. Radnatarov, S. M. Kobtsev, S. M. Ignatovich, and M. N. Skvortsov, Phys. Rev. A **108**, 013103 (2023).
17. T. Zanon-Willette, E. De Clercq, and E. Arimondo, Phys. Rev. A **84**, 062502 (2011).
18. L. Xiaoyan, Zh. Xu, S. Jianfang, X. Zhen, and H. Zhengfeng, Chin. Phys. B **30**, 083203 (2021).
19. D. S. Chuchelov, V. V. Vassiliev, M. I. Vaskovskaya, V. L. Velichansky, E. A. Tsygankov, S. A. Zibrov, S. V. Petropavlovsky, and V. P. Yakovlev, Phys. Scr. **93**, 114002 (2018).