

**ПРЯМОЕ ДВУХФОТОННОЕ ВОЗБУЖДЕНИЕ
ИЗОМЕРНОГО ПЕРЕХОДА В ЯДРЕ ТОРИЯ-229**

**В.И. РОМАНЕНКО,¹ Е.Г. УДОВИЦКАЯ,¹ Л.П. ЯЦЕНКО,¹
А.В. РОМАНЕНКО,² А.Н. ЛИТВИНОВ,³ Г.А. КАЗАКОВ^{4,3}**

¹**Институт физики НАН Украины**
(*Просп. Науки, 46, Киев 03680; e-mail: vr@iop.kiev.ua*)

²**Киевский национальный университет им. Тараса Шевченко**
(*Просп. Академика Глушкова, 4, Киев 03022; e-mail: alexrtm@univ.kiev.ua*)

³**Санкт-Петербургский государственный политехнический университет**
(*195251 Санкт-Петербург, Россия; e-mail: andrey.litvinov@mail.ru*)

⁴**Institute of Atomic and Subatomic Physics, Vienna University of Technology**
(*1020 Вена, Австрия; e-mail: kazakov@thorium.at*)

УДК 535.372
© 2012

Рассмотрена возможность двухфотонного возбуждения изомерного состояния в ядре тория-229. Показано, что интенсивность флуоресценции одинакова при возбуждении ядер монохроматическим излучением или полихроматическим излучением последовательности коротких световых импульсов той же интенсивности. При двухфотонном возбуждении иона Th^{3+} в электромагнитной ловушке сфокусированным излучением лазера с длиной волны ~ 320 нм и мощностью порядка 100 мВт можно достичь насыщения поглощения, при котором излучение флуоресценции с частотой перехода в ядре максимально. В кристаллах, допированных Th^{4+} с концентрацией порядка 10^{18} см $^{-3}$, в поле лазерного излучения мощностью 10 Вт возможно излучение нескольких фотонов в секунду с длиной волны ~ 160 нм.

ло получить стабильность на уровне 10^{-17} в холодных ионах Al^+ [3]. Атомные стандарты представляют интерес для навигационных систем, таких как GPS, GLONASS и GALILEO, а также телекоммуникационных сетей.

Перспективным кандидатом на роль эталонного квантового стандарта частоты является изомерный переход в ядре ^{229}Th . У этого изотопа чрезвычайно низкая энергия изомерного состояния. По последним данным, она составляет $7,8 \pm 0,5$ эВ [4], что соответствует длине волны излучения около 160 нм. Прогресс в области генерации высоких гармоник лазерного излучения позволяет рассматривать ядерный стандарт как реальную перспективу – например, в работе [5] получено излучение с длиной волны 205 нм с помощью генерации четвертой гармоники излучения титан-сапфирового лазера, близкой к необходимой для реализации ядерного стандарта. Стимулом для разработки ядерного стандарта является также перспектива его использования для изучения временной эволюции отношения фундаментальных констант [6, 7] – стандарт частоты на основе ^{229}Th должен быть на несколько порядков более чувствительным к возможному изменению постоянной сверхтонкой структуры, чем стандарты частоты, в основе работы которых лежат переходы внутри электронной оболочки атомов или ионов. Так же, как и атомные, ядерные часы, в случае их реализации, могут при-

1. Введение

Неубывающий интерес к работам по созданию квантовых стандартов частоты (атомных часов) стимулируется как развитием фундаментальной науки, так и потребностями техники. Современные определения единицы времени – секунды – связаны с цезиевым атомным стандартом частоты: одна секунда определяется как 9 192 631 770 периодов излучения сверхтонкого перехода в ^{133}Cs [1]. Точность первичного цезиевого стандарта частоты на цезиевом фонтане составляет $4 \cdot 10^{-16}$ [2]. Возможность охлаждения атомов и ионов до сверхнизких температур позволи-

меняться в метрологии, спектроскопии, глобальных навигационных системах.

Следует отметить, что к настоящему времени энергия изомерного перехода известна лишь по анализу γ -спектров с энергиями, значительно превышающими энергию ядерного изомерного перехода. Таким образом, ее нельзя считать окончательно известной, пока не будут проведены прямые измерения уровня. Для этих измерений необходимо одновременно возбуждать достаточно большое число ядер тория. В настоящий момент предлагается либо использовать ионы тория в ловушках [8–11], либо прозрачные в ультрафиолетовом диапазоне кристаллы, легированные торием [12, 13]. Преимуществом ловушек является возможность лучшего контроля полей, действующих на ионы тория. В то же время, в кристалле можно одновременно работать со значительно большим, чем в ловушках, количеством ядер.

Вместо того, чтобы использовать излучение с частотой, близкой к частоте перехода в ядре, можно возбуждать ядро путём двух- или многофотонных процессов. Выбор того или иного способа возбуждения зависит от параметров доступных источников лазерного излучения, таких как интенсивность, спектральная ширина и режим генерации – импульсный или непрерывный. Ввиду малой длины волны возбуждающее ядро излучение может быть получено благодаря генерации гармоник излучения импульсных лазеров видимого диапазона. При частоте повторения порядка 100 МГц при однофотонном возбуждении следует ожидать, что лишь одна из спектральных компонент, близкая к частоте перехода в ядре, приведет к переходу между состояниями ядра. Это означает, что при использовании в качестве накачки излучения пикосекундных и фемтосекундных лазеров, характеризующихся очень большим количеством спектральных компонент, лишь малая доля интенсивности их излучения может быть использована для возбуждения ядер. В то же время при двухфотонном возбуждении практически все спектральные компоненты (попарно, с частотами выше и ниже частоты перехода на одну и ту же величину) приводят к возбуждению ядра. С иной стороны, вероятность двухфотонного перехода значительно меньше, чем однофотонного, и возможность построения стандарта частоты на основе двухфотонного перехода не очевидна.

Следует отметить, что двухфотонное возбуждение, в отличие от однофотонного, при использовании встречных волн (т.е. возбуждение стоячей волной) нечувствительно, с точностью до квадратичного эффекта Доплера, к скорости атома [14]. Действительно,

при возбуждении атома, движущегося со скоростью v в направлении оси z , стоячей волной с частотой ω в системе отсчета, с ним связанной, на него действуют две монохроматические волны с частотами $\omega \pm kv$, где $k = 2\pi\omega/c$. Поглощение двух фотонов из встречных волн приводит к увеличению энергии атома на величину $\hbar(\omega + kv) + \hbar(\omega - kv) = 2\hbar\omega$, не зависящую от скорости атома.

Интересный метод двухфотонного возбуждения изомерного перехода предложен в работе [9]. Авторы предлагают с помощью лазера с малой спектральной шириной заселять промежуточный уровень в электронной оболочке иона Th^+ , энергия которого хорошо известна. Частота второго лазера сканируется вблизи разности предполагаемой частоты изомерного перехода и частоты первого лазера. Если в результате окажется возбуждён уровень электронной оболочки иона с энергией, близкой к энергии изомерного перехода, то эта энергия может перейти к ядру. При этом, за счёт изменения состояния ядра, положение промежуточного уровня иона также изменится, первое лазерное поле перестанет с ним взаимодействовать, и флуоресценция на частоте первого лазера уменьшится. В то же время вопрос о времени жизни изомерного состояния в однозарядном ионе до конца не ясен [15]. Отметим, что ширина резонанса такого возбуждения определяется временем жизни промежуточного уровня, так что предложенный в [9] метод двухфотонного возбуждения ядра не дает никаких преимуществ при построении стандарта частоты с возбуждением долгоживущего изомерного состояния ядра через возбуждение электронной оболочки по сравнению с возбуждением электронного перехода в атоме или ионе. Несомненно, однако, что предложенный в [9] метод возбуждения ядра в изомерное состояние может облегчить регистрацию оптического ядерного перехода.

Настоящая работа посвящена анализу “прямого” двухфотонного ядерного перехода в ядре тория без учёта каких-либо промежуточных уровней. Такое возбуждение может быть осуществлено, вообще говоря, в любых ионах тория. Рассмотрены возбуждения ядер как монохроматическим, так и полихроматическим полем световой волны или встречных световых волн. Во втором разделе описаны основные спектроскопические характеристики тория, касающиеся перехода из основного состояния ядра в возбужденное, в третьем приведены основные уравнения. В четвертом разделе приведен вывод эффективного гамильтониана, который служит основой для описания временной эволюции медленно изменяющихся, в мас-

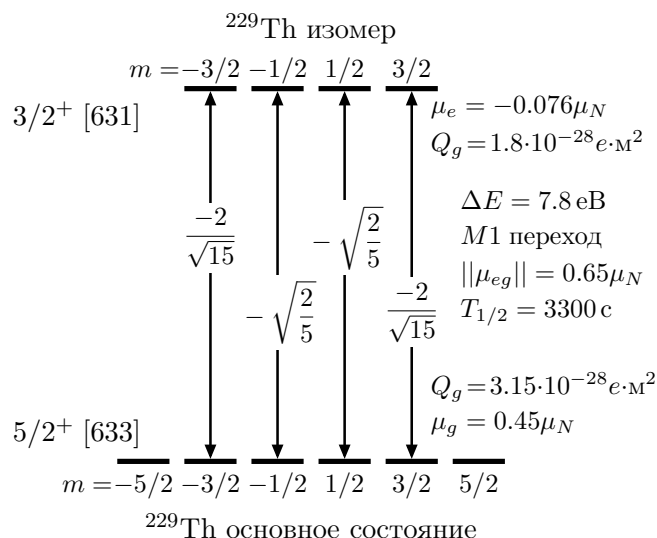
штабе периода лазерного излучения, частей амплитуд вероятности состояния ядра. Двухфотонное поглощение в монохроматическом поле обсуждается в пятом разделе, в поле последовательности бегущих световых импульсов – в шестом. В седьмом разделе рассмотрено двухфотонное возбуждение в поле последовательностей встречных световых импульсов. В восьмом разделе приведены оценки эффективности двухфотонного возбуждения и их обсуждение. В заключении кратко сформулированы итоги работы.

2. Изомер ^{229}Th

Изотоп ^{229}Th является α -активным с периодом полураспада 7340 лет [16]. На рис. 1 представлена обобщенная имеющаяся на сегодня спектроскопическая информация о магнитнодипольном ($M1$) переходе между первым возбужденным уровнем ($I_e = 3/2$) и основным состоянием ($I_g = 5/2$) ядра ^{229}Th .

Каждый из двух уровней с полным моментом I_i ($I_g = 5/2, I_e = 3/2$) расщепляется на $2I_i + 1$ подуровней, которые описываются магнитным квантовым числом $m = -I_i, -I_i + 1, \dots, I_i - 1, I_i$, и, если на ядро действует постоянное магнитное поле, имеют разную энергию. В твердом теле на ядро действует электрическое поле атомов окружения, в связи с чем возникает зависящий от m квадрупольный сдвиг энергии ядра. Будем считать, что на ядро действует линейно поляризованное излучение лазера, которое может быть зависимым от времени, в частности, может быть последовательностью импульсов с периодом T . При таком предположении для оценки эффективности двухфотонного возбуждения ядра достаточно проанализировать двухуровневую модель взаимодействия ядра с полем.

Из всей совокупности переходов между состояниями атома или иона с ядром в основном и возбужденном состоянии мы рассматриваем переход между состояниями с одинаковым орбитальным моментом и спином электронов в основном и возбужденном состоянии. Частота такого перехода, с точностью до поправок, связанных со сверхтонкой структурой уровней, совпадает с частотой перехода между основным и возбужденным состоянием ядра – реперной частотой оптического ядерного стандарта частоты. Хотя состояние электронов остается неизменным, их наличие приводит к изменению полного момента системы *электронная оболочка + ядро*, а также g -фактора, отвечающего за штарковский сдвиг энергетических уровней в магнитном поле. Четырехзарядный ион Th^{4+} имеет замкнутую электронную обо-



Основное и первое возбужденное состояния ядра ^{229}Th . Классификация уровней по модели Нильсона [17]. Радиационное время жизни свободного ядра $T_{1/2} = 55$ мин (скорость спонтанного излучения составляет $\gamma = 0,00021 \text{ c}^{-1}$) и приведённый матричный элемент перехода $\|\mu_{eg}\| = \sqrt{\frac{4\pi}{3}} B(M1)(2I_e + 1) = 0,65 \mu_N$, где $B(M1)$ – приведенная вероятность распада, вычислены на основе данных из [18]. Магнитные моменты уровней в ядерных магнетонах и квадрупольный момент $Q_g = 3,15 \cdot 10^{-28} \text{ e.m}^2$ основного состояния взяты из [19, 20], оценка квадрупольного момента в возбуждённом состоянии $Q_e = 1,8 \cdot 10^{-28} \text{ e.m}^2$ взята из [21]. Стрелками показаны возможные переходы между магнитными подуровнями в поле линейно поляризованного лазерного излучения. Указаны также коэффициенты Клебша-Гордана, которым пропорциональны матричные элементы магнитного дипольного момента соответствующих переходов

лочку радона, и на рис. 1 проиллюстрировано взаимодействие этого иона с полем. Для иона Th^3 основное состояние $5F_{5/2}$ [11]. В результате возникает сверхтонкая структура основного состояния с полным моментом $F = 0, 1, 2, 3, 4, 5$ и возбужденного состояния с $F = 1, 2, 3, 4$. В магнитном поле каждый уровень сверхтонкой структуры расщепляется на $2F + 1$ подуровней, сдвинутых благодаря эффекту Зеемана относительно положения в нулевом поле на

$$\Delta E = \mu_B g_F m_F B, \tag{1}$$

где B – индукция магнитного поля, μ_B – магнетон Бора, g_F для случая нулевого орбитального момента, который нас интересует, равно

$$g_F = g_J \frac{F(F + 1) - I(I + 1) + J(J + 1)}{2F(F + 1)} +$$

$$+g_I \frac{F(F+1) + I(I+1) - J(J+1)}{2F(F+1)}, \quad (2)$$

где I – момент ядра, J – момент импульса валентного электрона, $g_I = -\mu_i/(\mu_N I)$ – ядерный g -фактор, ($i = e, g$),

$$g_J = 1 + \frac{J(J+1) - L(L+1) + S(S+1)}{2J(J+1)}(g_e - 1) \quad (3)$$

– электронный g -фактор, L – орбитальный момент электронов, S – спин, $g_e = 2,0023$ – g -фактор свободного электрона; в дальнейших вычислениях примем $g_e = 2$.

Для иона Th^{4+} $J = 0$ и $g_F = g_I$, для иона Th^{3+} в основном состоянии имеем $g_F = \frac{3}{7} + \frac{1}{2}g_I$ для всех сверхтонких подуровней, а для иона Th^{3+} с возбужденным ядром ($I = \frac{3}{2}$) аналогичные вычисления дают, например, $g_F = \frac{15}{28} + \frac{3}{8}g_I$ для сверхтонкого подуровня с $F = 4$. Поскольку $g_I \sim \mu_N/\mu_B \ll 1$, последним слагаемым можно пренебречь. Таким образом, для Th^{3+} g -фактор на три порядка больше, чем для Th^{4+} . Это обстоятельство, как будет видно из дальнейшего, приводит к существенному повышению эффективности двухфотонного возбуждения ядра тория в ионе Th^{3+} по сравнению с Th^{4+} .

3. Модель взаимодействия ядра с полем

Для оценки возможности прямого двухфотонного возбуждения тория рассмотрим переходы между состояниями тория, характеризующихся определенным значением квантового числа m , относящемуся к основному и возбужденному состоянию ядра. Если ионы находятся в твердотельной матрице, благодаря взаимодействию с окружением энергии ионов, соответствующих различным m , разные. Если же ионы или атомы находятся в ловушке, то будем считать, что к ним приложено магнитное поле, снимающее вырождение по m . Поэтому для анализа возбуждения ядра можно воспользоваться двухуровневой моделью.

Основное состояние обозначим $|g\rangle$, а возбужденное – $|e\rangle$. Переход между состояниями магнитно-дипольный. Атом в основном и возбужденном состоянии имеет постоянные дипольные моменты $\mu_{gg} = -\mu_B g_g m$ и $\mu_{ee} = -\mu_B g_e m$, где g_g, g_e – g -факторы основного и возбужденного состояний. Магнитный дипольный момент перехода между состояниями $|g\rangle$ и $|e\rangle$ равен μ_{ge} . Считаем, что на атом действует поле (монохроматическое или последовательности световых импульсов) с несущей частотой ω такой, что

величина 2ω близка к частоте перехода ω_0 между состояниями $|g\rangle$ и $|e\rangle$. Кроме того, считаем, что при переходе в ядре состояние электронов атома остается неизменным, и в гамильтониане, описывающем взаимодействие атома с полем, существенны лишь члены, отвечающие за изменение состояния ядра. Индукция магнитного поля лазерного излучения с несущей частотой ω , действующего на атом, описывается выражением

$$B(t) = \tilde{B}(t)e^{-i\omega t} + \tilde{B}(t)^*e^{i\omega t}. \quad (4)$$

Изменение со временем амплитуд вероятности C_g и C_e обнаружить ядро, соответственно, в состояниях $|g\rangle$ и $|e\rangle$ описывается уравнением Шредингера:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{C} = \mathbf{H} \mathbf{C}, \quad (5)$$

где \mathbf{C} – вектор-столбец с компонентами C_g, C_e , а гамильтониан \mathbf{H} имеет вид

$$\mathbf{H} = \begin{pmatrix} -\mu_{gg}B(t) & -\mu_{ge}B(t) \\ -\mu_{eg}B(t) & \hbar\omega_0 - \mu_{ee}B(t) \end{pmatrix}, \quad (6)$$

где $\hbar\omega_0$ – разность энергий состояний $|g\rangle$ и $|e\rangle$.

В общем случае полихроматического поля с малой по сравнению с ω шириной спектра выражение (4) можно интерпретировать как быстрые осцилляции с оптической частотой ω и с медленным изменением амплитуды. Для монохроматического поля $\tilde{B}(t)$ от времени не зависит. Так, для бегущей монохроматической волны

$$\tilde{B}(t) = \frac{1}{2}B_0 e^{ikz}, \quad (7)$$

а для монохроматического поля двух встречных волн (стоячая волна):

$$\tilde{B}(t) = B_0 \cos kz, \quad (8)$$

где $k = \omega/c$, z – z -координата атома, B_0 – амплитуда волн.

Если на атом действует поле последовательности световых импульсов, повторяющихся с периодом T , то индукцию магнитного поля в точке нахождения атома можно записать в виде

$$B(t) = B_0 \sum_{n=-\infty}^{\infty} a_n \cos [(\omega + n\Delta)t - k_n z + \varphi_n], \quad (9)$$

где $k_n = (\omega + n\Delta)/c$, $\Delta = 2\pi/T$. Мы нормируем относительные амплитуды спектральных компонент

a_n таким образом, чтобы компонента с $n = 0$ имела максимальную амплитуду $a_0 = 1$.

Сравнивая (4) с (9), видим, что для поля последовательности бегущих световых импульсов

$$\tilde{B} = \frac{1}{2}B_0 \sum_{n=-\infty}^{\infty} a_n \exp(-in\Delta t + ik_n z - i\varphi_n). \quad (10)$$

Для поля встречных последовательностей импульсов

$$B(t) = B_0 \sum_{n=-\infty}^{\infty} a_n \cos[(\omega + n\Delta)t - k_n z + \varphi_n] + B_0 \sum_{n=-\infty}^{\infty} a_n \cos[(\omega + n\Delta)t + k_n z + \varphi_n], \quad (11)$$

имеем

$$\tilde{B} = B_0 \sum_{n=-\infty}^{\infty} a_n \cos k_n z \exp(-in\Delta t - i\varphi_n). \quad (12)$$

Здесь начало отсчета координаты z выбрано таким образом, что в точке $z = 0$ поле волны, распространяющейся в отрицательном направлении оси z , повторяет поле волны, распространяющейся в положительном направлении оси z .

4. Эффективный гамильтониан

В уравнении Шредингера (5) сделаем замену

$$C_g(t) = c_g(t) \exp\left(\frac{i\mu_{gg}}{\hbar} \int_0^t B(t') dt'\right),$$

$$C_e(t) = c_e(t) \exp\left(-Ni\omega t + \frac{i\mu_{ee}}{\hbar} \int_0^t B(t') dt'\right). \quad (13)$$

Изменение со временем вектора-столбца c с компонентами c_g, c_e описывается уравнением Шредингера с гамильтонианом

$$\mathcal{H} = \begin{pmatrix} 0 & -\mu_{ge}B(t)e^{i\Phi(t)} \\ -\mu_{eg}B(t)e^{-i\Phi(t)} & \hbar\omega_0 - 2\hbar\omega \end{pmatrix}, \quad (14)$$

где

$$\Phi(t) = -2\omega t + \frac{\mu_{ee} - \mu_{gg}}{\hbar} \int_0^t B(t') dt'. \quad (15)$$

Мы не указываем здесь нижней границы интегрирования, так как выбором начала отсчета времени значение первообразной для этой границы может быть нивелировано.

Считаем, что характерное время τ изменения амплитуд полей (например, продолжительность импульсов) значительно превышает обратную несущую частоту поля, так что справедливо неравенство

$$\omega\tau \gg 1. \quad (16)$$

Тогда имеем

$$\Phi(t) = -2\omega t + \frac{\mu_{ee} - \mu_{gg}}{i\hbar\omega} [\tilde{B}(t)^* e^{i\omega t} - \tilde{B}(t) e^{-i\omega t}]. \quad (17)$$

В частности, для монохроматического поля бегущей волны ($\tau = \infty$) получаем

$$\Phi(t) = -2\omega t + B_0 \frac{\mu_{ee} - \mu_{gg}}{\hbar\omega} \sin(\omega t - kz), \quad (18)$$

а для монохроматического поля встречных волн

$$\Phi(t) = -2\omega t + 2B_0 \frac{\mu_{ee} - \mu_{gg}}{\hbar\omega} \cos kz \sin \omega t. \quad (19)$$

Введем медленно изменяющиеся со временем функции

$$\beta(t) = \frac{\tilde{B}(t)\mu_{ge}}{\hbar}, \quad \alpha(t) = \frac{\tilde{B}(t)(\mu_{ee} - \mu_{gg})}{\hbar\omega}. \quad (20)$$

Поскольку $|\alpha| \ll 1$, дальнейшие вычисления проводим с точностью до линейных по α членов. Подставляя (17) и (20) в гамильтониан (14), имеем

$$\mathcal{H} = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & \Omega(t) + \tilde{\Omega}(t) \\ \Omega(t)^* + \tilde{\Omega}(t)^* & 2\delta \end{pmatrix}. \quad (21)$$

Здесь мы разделили в недиагональных элементах быстрые слагаемые $\tilde{\Omega}(t)$, меняющиеся с частотой ω , и медленные слагаемые $\Omega(t)$, и ввели двухфотонную отстройку $\delta = \omega_0 - 2\omega$. Быстрая и медленная часть частоты Раби равны

$$\Omega = -2\alpha^*\beta^*,$$

$$\tilde{\Omega} = -2\beta^*e^{-i\omega t} - 2\beta e^{-3i\omega t}. \quad (22)$$

Здесь и далее для упрощения обозначений, где это не может вызвать недоразумения, мы не указываем временную зависимость величин. В выражении (22) мы пренебрегли членами следующего порядка малости по $\alpha \ll 1$. В то же время отметим, что только благодаря ненулевому значению α отлична от нуля медленно

изменяющаяся во времени часть частоты Раби для рассматриваемого здесь двухфотонного процесса.

Решение уравнения Шредингера ищем в виде суммы медленно изменяющегося и быстро изменяющегося с течением времени, с характерным временем порядка $2\pi/\omega$, слагаемых для каждой из амплитуд вероятности:

$$c_n(t) = \sigma_n(t) + \tilde{\sigma}_n(t), \quad n = g, e, \quad (23)$$

где быстропеременные слагаемые обозначены значком $\tilde{\cdot}$. Считаем, что среднее за время $2\pi/\omega$ значение быстро изменяющегося слагаемого равно нулю. Из уравнения Шредингера следует

$$\begin{aligned} i\dot{\sigma}_g + \underline{i\dot{\tilde{\sigma}}_g} &= \frac{1}{2}\Omega\sigma_e + \underline{\frac{1}{2}\tilde{\Omega}\tilde{\sigma}_g} + \underline{\frac{1}{2}\tilde{\Omega}\sigma_e} + \underline{\frac{1}{2}\Omega\tilde{\sigma}_e}, \\ i\dot{\sigma}_e + \underline{i\dot{\tilde{\sigma}}_e} &= \frac{1}{2}\Omega^*\sigma_g + \underline{\frac{1}{2}\tilde{\Omega}^*\tilde{\sigma}_g} + \underline{\frac{1}{2}\tilde{\Omega}^*\sigma_g} + \underline{\frac{1}{2}\Omega^*\tilde{\sigma}_g} + \\ &+ \delta\sigma_e + \underline{\delta\tilde{\sigma}_e}. \end{aligned} \quad (24)$$

Подчеркнутые слагаемые быстро осциллируют и дают нуль после усреднения за период осцилляций $2\pi/\omega$. Дважды подчеркнуты слагаемые состоят из произведений осциллирующих множителей. Их можно представить в виде суммы медленно изменяющейся со временем части и быстро осциллирующей части с нулевым средним значением. Чтобы исключить быстрое движение, соберём в уравнениях (24) быстроосциллирующие и медленные слагаемые независимо [22]. Осциллирующие части уравнений (24) дают

$$\begin{aligned} i\dot{\tilde{\sigma}}_g &= \frac{1}{2}\tilde{\Omega}\sigma_e, \\ i\dot{\tilde{\sigma}}_e &= \frac{1}{2}\tilde{\Omega}^*\sigma_g. \end{aligned} \quad (25)$$

Здесь мы учли, что $|\dot{\tilde{\sigma}}_n(t)| \sim \omega|\tilde{\sigma}_n(t)|$, а также $\omega \gg \Omega, |\tilde{\Omega}(t)|, |\delta|$ и $|\tilde{\sigma}_n(t)| \ll 1$. Решение уравнений (25) имеет вид

$$\begin{aligned} \tilde{\sigma}_g &= -\left(\frac{\beta^*}{\omega}e^{-i\omega t} + \frac{\beta}{3\omega}e^{-3i\omega t}\right)\sigma_e, \\ \tilde{\sigma}_e &= \left(\frac{\beta}{\omega}e^{i\omega t} + \frac{\beta^*}{3\omega}e^{3i\omega t}\right)\sigma_g. \end{aligned} \quad (26)$$

Медленно изменяющиеся со временем части (24) дают

$$i\dot{\sigma}_g = \frac{1}{2}\Omega\sigma_e + \left\langle \frac{1}{2}\tilde{\Omega}\tilde{\sigma}_e \right\rangle,$$

$$i\dot{\sigma}_e = \frac{1}{2}\Omega^*\sigma_g + \left\langle \frac{1}{2}\tilde{\Omega}^*\tilde{\sigma}_g \right\rangle + \delta\sigma_e, \quad (27)$$

где $\langle \dots \rangle$ обозначает усреднение по времени на промежутке $2\pi/\omega$. Проводя это усреднение, находим

$$\begin{aligned} i\dot{\sigma}_g &= \frac{1}{2}\Omega\sigma_e - \frac{4|\beta|^2}{3\omega}\sigma_g, \\ i\dot{\sigma}_e &= \frac{1}{2}\Omega^*\sigma_g + \frac{4|\beta|^2}{3\omega}\sigma_e + \delta\sigma_e. \end{aligned} \quad (28)$$

В результате находим, что изменение медленных частей амплитуд вероятности описывается уравнением Шредингера с эффективным гамильтонианом

$$\mathcal{H}_{\text{eff}} = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} -S & \Omega \\ \Omega^* & 2\delta + S \end{pmatrix}, \quad (29)$$

где

$$\begin{aligned} S &= \frac{8|\beta|^2}{3\omega} = \frac{8|\tilde{B}\mu_{ge}|^2}{3\hbar^2\omega}, \\ \Omega &= -2\alpha^*\beta^* = -2\frac{\tilde{B}^{*2}}{\hbar^2\omega}\mu_{ge}(\mu_{ee} - \mu_{gg}). \end{aligned} \quad (30)$$

Как видно из (30), световой сдвиг пропорционален интенсивности лазерного излучения. По сути он получен нами за счёт выхода за рамки приближения вращающейся волны [23]. Отношение $|S/\Omega| \sim |\mu_{ge}/(\mu_{ee} - \mu_{gg})| \sim 10^{-3}$ в случае, когда g -фактор основного и возбужденного состояний атома обусловлен его электронной структурой, например, для трехзарядного иона тория в ловушке.

5. Двухфотонное взаимодействие ядра с монохроматическим полем

Для оценки скорости флуоресценции ядра под воздействием монохроматического лазерного излучения удобно записать выражения для частоты Раби и светового сдвига в случае возбуждения ядра через интенсивность бегущей монохроматической волны. Из выражения для интенсивности излучения в системе СИ

$$I = \frac{c}{2\mu_0}B_0^2 \quad (31)$$

и (7), (30) получим

$$S = \frac{4|\mu_{ge}|^2}{3\hbar^2\omega c}\mu_0 I,$$

$$\Omega = -\frac{\mu_0 I}{\hbar^2 \omega c} \mu_{ge} (\mu_{ee} - \mu_{gg}) e^{-2ikz}. \quad (32)$$

В случае монохроматической стоячей волны из выражений (8), (30) и (31) получаем (здесь I – интенсивность одной из встречных волн)

$$S = \frac{16|\mu_{ge}|^2}{3\hbar^2 \omega c} \mu_0 I \cos^2 kz,$$

$$\Omega = -\frac{4\mu_0 I}{\hbar^2 \omega c} \mu_{ge} (\mu_{ee} - \mu_{gg}) \cos^2 kz. \quad (33)$$

Для атома или иона, движущегося в ловушке, в случае бегущей монохроматической волны пропорциональность частоты Раби e^{-2ikz} благодаря линейной зависимости z от времени приводит к доплеровскому сдвигу резонанса на величину $2kv$, где v – скорость атома, так что для получения узких резонансов необходимо охлаждать атомы до сверхнизких температур. Для двух встречных волн (стоячей световой волны) множитель

$$\cos^2 kz = \frac{1}{2} + \frac{1}{4}e^{2ikz} + \frac{1}{4}e^{-2ikz} \quad (34)$$

в выражении (33) для частоты Раби свидетельствует о том, что при взаимодействии атома с полем появляются три резонанса – два сдвинуты относительно частоты перехода на $\pm 2kv$ и один на частоте перехода. Поскольку в последний резонанс вносят вклад все группы атомов, зависимость интенсивности флуоресценции от отстройки δ имеет вид широкого максимума, обусловленного доплеровским уширением линии, в центре которого находится узкий и высокий пик. Это явление лежит в основе двухфотонной спектроскопии [14, 24]. Таким образом, при двухфотонном возбуждении нет необходимости в использовании ультрахолодных атомов или их локализации в малом объеме (эффект Дике [25]) для уменьшения отрицательного влияния эффекта Доплера на работу стандарта частоты.

6. Взаимодействие ядра с полем последовательности бегущих световых импульсов

Пусть на атом действует поле последовательностей световых импульсов с периодом следования T . Индукция магнитного поля в точке нахождения атома описывается выражением (9). Спектр этого поля эквидистантный с разницей частот спектральных компонент $\Delta = 2\pi/T$. Исходя из выражений (10),

(30), видим, что световой сдвиг и частоту Раби можно записать в виде рядов Фурье:

$$S = \sum_{n=-\infty}^{\infty} S_n e^{in\Delta t} \quad (35)$$

и

$$\Omega = \sum_{n=-\infty}^{\infty} \Omega_n e^{in\Delta t}, \quad (36)$$

где

$$S_n = \frac{2|B_0 \mu_{ge}|^2}{3\hbar^2 \omega} \sum_{j=-\infty}^{\infty} a_{j-n} a_j \times \exp(i\varphi_j - i\varphi_{j-n} + ik_{j-n}z - ik_jz) \quad (37)$$

и

$$\Omega_n = -\frac{B_0^2}{2\hbar^2 \omega} \mu_{ge} (\mu_{ee} - \mu_{gg}) \sum_{j=-\infty}^{\infty} a_{n-j} a_j \times \exp(i\varphi_j + i\varphi_{n-j} - ik_{n-j}z - ik_jz). \quad (38)$$

Световой сдвиг S и частота Раби Ω состоят из независимых от времени частей и осциллирующих с периодом $T = 2\pi/\Delta$,

$$S = S_0 + \tilde{S}, \quad \Omega = \Omega_0 + \tilde{\Omega}. \quad (39)$$

Мы рассматриваем малые интенсивности лазерного излучения, когда $|S| \ll \Delta$, $|\Omega| \ll \Delta$. Тогда можно с помощью процедуры усреднения по быстрому движению, в данном случае с частотой Δ , изложенной в разделе 4, найти эффективный гамильтониан, описывающий изменение со временем медленных составляющих амплитуд вероятности σ_g , σ_e . Аналогично (23), запишем σ_g , σ_e в виде суммы медленно изменяющихся во времени и осциллирующих (обозначенных значком \sim) слагаемых:

$$\sigma_j(t) = b_j(t) + \tilde{b}_j(t), \quad j = g, e. \quad (40)$$

Из уравнения Шредингера с гамильтонианом (29) следует

$$i\dot{b}_g + \underline{i\dot{\tilde{b}}_g} = \frac{1}{2}\Omega_0 b_e + \underline{\frac{1}{2}\tilde{\Omega}\tilde{b}_e} + \underline{\frac{1}{2}\tilde{\Omega}b_e} + \underline{\frac{1}{2}\Omega_0\tilde{b}_e} - \underline{\frac{1}{2}S_0 b_g} - \underline{\frac{1}{2}\tilde{S}\tilde{b}_g} - \underline{\frac{1}{2}\tilde{S}b_g} - \underline{\frac{1}{2}S_0\tilde{b}_g},$$

$$\begin{aligned} i\dot{b}_e + \underline{i\dot{b}_e} &= \frac{1}{2}\Omega_0^*b_g + \frac{1}{2}\underline{\tilde{\Omega}^*b_g} + \frac{1}{2}\underline{\tilde{\Omega}^*b_g} + \frac{1}{2}\Omega_0^*b_g + \\ &+ \frac{1}{2}S_0b_e + \frac{1}{2}\underline{\tilde{S}b_e} + \frac{1}{2}\underline{\tilde{S}b_e} + \frac{1}{2}S_0b_e + \delta b_e + \underline{\delta b_e}. \end{aligned} \quad (41)$$

Здесь, как и в уравнении (24), подчеркнутые слагаемые быстро осциллируют и дают нуль после усреднения за период осцилляций, а дважды подчеркнутые слагаемые состоят из произведений осциллирующих множителей и могут быть представлены в виде суммы медленных и быстрых слагаемых. Приравнявая независимо быстрые слагаемые, получаем

$$\begin{aligned} i\dot{b}_g &= \frac{1}{2}\tilde{\Omega}b_e - \frac{1}{2}\tilde{S}b_g, \\ i\dot{b}_e &= \frac{1}{2}\tilde{\Omega}^*b_g + \frac{1}{2}\tilde{S}b_e. \end{aligned} \quad (42)$$

Здесь мы учли, что $|\dot{b}_n(t)| \sim \Delta|\tilde{b}_n(t)|$ и что $\Delta \gg \Omega_0, |\tilde{\Omega}|, |\delta|$ и $|\tilde{b}_n(t)| \ll 1$. Решение уравнений (42) имеет вид

$$\begin{aligned} \tilde{b}_g &= \frac{1}{2\Delta} \sum_{\substack{n=-\infty \\ n \neq 0}}^{\infty} (S_n b_g - \Omega_n b_e) \frac{e^{i\Delta n t}}{n}, \\ \tilde{b}_e &= -\frac{1}{2\Delta} \sum_{\substack{n=-\infty \\ n \neq 0}}^{\infty} (\Omega_{-n}^* b_g + S_n b_e) \frac{e^{i\Delta n t}}{n}. \end{aligned} \quad (43)$$

Медленно изменяющиеся со временем части (41) дают

$$\begin{aligned} i\dot{b}_g &= \frac{1}{2}\Omega_0 b_e - \frac{1}{2}S_0 b_g + \left\langle \frac{1}{2}\tilde{\Omega}b_e \right\rangle - \left\langle \frac{1}{2}\tilde{S}b_g \right\rangle, \\ i\dot{b}_e &= \frac{1}{2}\Omega_0^* b_g + \frac{1}{2}S_0 b_e + \left\langle \frac{1}{2}\tilde{\Omega}^*b_g \right\rangle + \left\langle \frac{1}{2}\tilde{S}b_e \right\rangle + \delta b_e, \end{aligned} \quad (44)$$

где $\langle \dots \rangle$ означает усреднение по времени на промежутке $2\pi/\Delta$. Из выражений (37), (38), (43) и (44) видно, что при двухфотонном взаимодействии члены в $\langle \dots \rangle$ квадратичны по интенсивности и ими можно пренебречь. Тогда уравнения для медленно изменяющихся со временем частей амплитуд вероятности принимают вид

$$\begin{aligned} i\dot{b}_g &= \frac{1}{2}\Omega_0 b_e - \frac{1}{2}\bar{S}b_g, \\ i\dot{b}_e &= \frac{1}{2}\Omega_0^* b_g + \frac{1}{2}\bar{S}b_e + \delta b_e, \end{aligned} \quad (45)$$

где

$$\bar{S} = S_0. \quad (46)$$

Таким образом, изменение со временем медленных частей амплитуд вероятности при возбуждении ядра последовательностью бегущих импульсов описывается уравнением Шредингера с эффективным гамильтонианом

$$\mathcal{H}_{\text{eff}} = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} -\bar{S} & \Omega_0 \\ \Omega_0^* & 2\delta + \bar{S} \end{pmatrix}, \quad (47)$$

где \bar{S} и Ω_0 определяются выражениями (46) и (38) с $n = 0$.

Для дальнейших вычислений нужно выбрать модель поля. Считаем, что фазы φ_n всех спектральных компонент поля равны нулю, а амплитуды описываются гауссовым распределением:

$$a_n = \exp\left(-\frac{n^2}{n_0^2}\right). \quad (48)$$

Считаем, что $n_0 \gg 1$, так что суммы в приведенных выше выражениях можно заменить интегрированием, если время t удовлетворяет условию $n\Delta t \ll 1$. Последнее неравенство означает, что мы не рассматриваем промежутки времени, далекие от световых импульсов, где напряженность поля очень мала. Вычисление \bar{B} дает

$$\bar{B} = B_0 \frac{n_0 \sqrt{\pi}}{2} \exp\left[ik_0 z - \frac{n_0^2 \Delta^2}{4} \left(t - \frac{z}{c}\right)^2\right]. \quad (49)$$

Это выражение описывает временную зависимость поля одного из импульсов, следующих с периодом T . Как видно из (49), поле импульсов описывается гауссовой функцией $\exp(-t^2/\tau_p^2)$, где

$$\tau_p = \frac{2}{\Delta n_0} = \frac{T}{\pi n_0}. \quad (50)$$

Интенсивность лазерного излучения, усредненная по времени, равна

$$I = \frac{2c\langle|\bar{B}|^2\rangle}{\mu_0} = \frac{n_0 c \sqrt{2\pi^3}}{4\mu_0} B_0^2. \quad (51)$$

Световой сдвиг определяется выражением

$$\bar{S} = \frac{4\mu_{ge}^2 \mu_0}{3\hbar^2 \omega c} I. \quad (52)$$

Вычисление частоты Раби Ω_0 дает

$$\Omega_0 = -\frac{\mu_{ge}(\mu_{ee} - \mu_{gg})}{\hbar^2 \omega c} \mu_0 I e^{-2ik_0 z} \quad (53)$$

Как выражение для светового сдвига (52), так и выражение для частоты Раби (53) совпадают с соответствующими выражениями (32) в поле бегущей монохроматической волны.

Зависимость частоты Раби (53) от координаты в случае движущегося атома свидетельствует, как это указывалось в случае бегущей монохроматической волны (см. раздел 5), о доплеровском смещении резонансной частоты взаимодействия ядра с полем на $2kv$. Таким образом, в случае свободных атомов или ионов необходимо проанализировать взаимодействие атома с полем встречных последовательностей импульсов, для которой, во всяком случае при взаимодействии с монохроматическим полем, возможно формирование узкого резонанса.

7. Двухфотонное взаимодействие ядра с полем встречных последовательностей световых импульсов

Из выражений (30) для светового сдвига и частоты Раби при двухфотонном взаимодействии ядра с полем встречных последовательностей световых импульсов (11), (12) имеем

$$S = \sum_{n=-\infty}^{\infty} S_n e^{in\Delta t} \quad (54)$$

и

$$\Omega = \sum_{n=-\infty}^{\infty} \Omega_n e^{in\Delta t}, \quad (55)$$

где

$$S_n = \frac{8|B_0\mu_{ge}|^2}{3\hbar^2\omega} \sum_{j=-\infty}^{\infty} a_{j-n} a_j \cos k_{j-n} z \times \times \cos k_j z \exp(i\varphi_j - i\varphi_{j-n}) \quad (56)$$

и

$$\Omega_n = -2 \frac{B_0^2}{\hbar^2\omega} \mu_{ge} (\mu_{ee} - \mu_{gg}) \sum_{j=-\infty}^{\infty} a_{n-j} a_j \times \times \cos k_{n-j} z \cos k_j z \exp(i\varphi_j + i\varphi_{n-j}). \quad (57)$$

Как и в разделе 6, мы нормируем относительные амплитуды спектральных компонент a_n таким образом, чтобы компонента с $n = 0$ имела максимальную амплитуду $a_0 = 1$. Проводя вычисления, аналогичные

приведенным в разделе 6, находим эффективный гамильтониан (47), описывающий двухфотонное взаимодействие атома с полем, где $\bar{S} = S_0$.

Выберем такую же модель поля, как в предыдущем разделе:

$$a_n = \exp\left(-\frac{n^2}{n_0^2}\right). \quad (58)$$

Для пикосекундных и фемтосекундного импульсов, которыми мы здесь интересуемся, $n_0 \gg 1$, так что суммы в приведенных выше выражениях можно заменить интегрированием при $n\Delta t \ll 1$. Вычисление \tilde{B} дает

$$\begin{aligned} \tilde{B} = & B_0 \frac{n_0\sqrt{\pi}}{2} \exp\left[ik_0 z - \frac{n_0^2\Delta^2}{4} \left(t - \frac{z}{c}\right)^2\right] + \\ & + B_0 \frac{n_0\sqrt{\pi}}{2} \exp\left[-ik_0 z - \frac{n_0^2\Delta^2}{4} \left(t + \frac{z}{c}\right)^2\right] \end{aligned} \quad (59)$$

для двух встречных импульсов. Вся последовательность импульсов получается из (59) повторением с периодом T . Как видно из (59), поле импульсов описывается гауссовой функцией $\exp(-t^2/\tau_p^2)$, где τ_p определяется выражением (50).

Световой сдвиг вычисляем из (56) при $n = 0$ с учетом (51):

$$S_0 = \frac{8\mu_{ge}^2\mu_0 I}{3\hbar^2\omega c} \left(1 + e^{-2z^2/l_p^2} \cos 2kz\right), \quad (60)$$

где $l_p = c\tau_p$, I – интенсивность одной из встречных волн. Выражение (60) справедливо, если $\Delta z/2\pi c$ близко к целому числу. Таким образом, световой сдвиг состоит из двух частей – постоянной в пространстве и промодулированной с пространственным периодом $\lambda = 2\pi/k_0$ с огибающей в форме набора гауссовых кривых, расположенных вблизи $z = cTn$, где n – целое число (здесь встречные импульсы “сталкиваются”).

Аналогичные вычисления частоты Раби Ω_0 из (57) дают

$$\Omega_0 = -\frac{2\mu_0 I}{\hbar^2\omega c} \mu_{ge} (\mu_{ee} - \mu_{gg}) \left(\cos 2kz + e^{-2z^2/l_p^2}\right). \quad (61)$$

Экспоненты в (61) соответствуют пространственному перекрытию импульсов. Составляющая Ω_0 , пропорциональная $\cos 2kz$, отвечает за формирование сдвинутых на $\pm 2kv$ благодаря эффекту Доплера резонансов в случае движущихся атомов или ионов. Резонанс, не зависящий от скорости атома, возникает

благодаря слагаемому с гауссовой зависимости от координаты. Он обусловлен одновременным поглощением фотонов с двух встречных импульсов. Усредненные на длине волны значения S_0 и Ω_0 равны

$$\langle S_0 \rangle = \frac{8\mu_{ge}^2 \mu_0 I}{3\hbar^2 \omega c}, \quad (62)$$

и

$$\langle \Omega_0 \rangle = -\frac{2\mu_0 I}{\hbar^2 \omega c} \mu_{ge} (\mu_{ee} - \mu_{gg}) e^{-2z^2/l_p^2}. \quad (63)$$

Именно это, усредненное на длине волны значение частоты Раби, отвечает за формирование узкого резонанса на половинной частоте перехода в ядре.

Как видно, усредненное на длине волны значение частоты Раби описывается гауссианом с максимумом в точке, где импульсы “сталкиваются”. Отсюда следует, что для эффективного взаимодействия атомов с полем их следует локализовать в объеме с линейным размером вдоль направления распространения импульсов порядка l_p (например, использование ячейки с газом, содержащим торий, или локализация атомов в оптической ловушке). Двухфотонное возбуждение ядер последовательностью лазерных импульсов так же эффективно, как монохроматическим полем, поскольку в нем участвуют все спектральные компоненты поля. Например, в резонансном случае $2\omega = \omega_0$ в формировании двухфотонного перехода участвуют пары спектральных компонент $n, -n$.

8. Обсуждение полученных результатов

Оценим ожидаемую флуоресценцию образца для двухуровневой модели взаимодействия ядра с полем лазерного излучения. При скорости релаксации населенностей γ (мы предполагаем, что она происходит за счет спонтанного излучения из возбужденного состояния) и когерентности γ' стационарная населенность возбужденного состояния составляет

$$\rho_{22} = \frac{1}{2} \frac{|\Omega_0|^2 \gamma'}{|\Omega_0|^2 \gamma' + \gamma (\gamma'^2 + (\delta + S)^2)}, \quad (64)$$

где δ – отстройка от двухфотонного резонанса. Для свободного атома или иона в поле лазерного излучения $\gamma' = \frac{1}{2}(\gamma + \gamma_L)$, где γ_L – коэффициент диффузии фазы лазерного излучения [26] (ширина лазерного спектра в случае монохроматического излучения).

Принимая во внимание $\gamma \ll \gamma_L$, из (64) видим, что для насыщения поглощения при резонансе ($\delta + S = 0$) необходимо выполнение условия $|\Omega_0| >$

$\sqrt{\gamma \gamma_L} \sim 0,03 \text{ с}^{-1}$. Например, для $\gamma_L/2\pi \sim 1 \text{ Гц}$ оно выполнено при $|\Omega_0| \sim 0,03 \text{ с}^{-1}$, для $\gamma_L/2\pi \sim 100 \text{ Гц}$ – при $|\Omega_0| > 0,3 \text{ с}^{-1}$. Число фотонов, излучаемых при насыщении поглощения, достигает максимальной величины $\gamma/2 \sim 0,0001 \text{ с}^{-1}$ в среднем на каждое ядро.

Поскольку при возбуждении спин ядра изменяется с $5/2$ на $3/2$, сверхтонкая структура энергетических уровней атома или иона с ядром в изомерном состоянии также изменяется. В результате появляется возможность детектировать возбужденное ядро с помощью оптического лазерного излучения с частотой, настроенной на одну из частот перехода между сверхтонкими уровнями. Поскольку ширина линий соответствующих электронных переходов составляет порядка $\Gamma \sim 10^7 \text{ с}^{-1}$, возбуждение каждого ядра приводит к излучению порядка 10^7 фотонов за секунду. При осуществлении такой схемы регистрации необходимо одновременное возбуждение атомов или ионов со всех подуровней сверхтонкой структуры основного электронного состояния атома или иона с изомерным ядром, чтобы воспрепятствовать накоплению атомов или ионов на одном из них при переходе из возбужденного состояния в основное в процессе спонтанного излучения.

Оценим частоту Раби при двухфотонном возбуждении иона Th^{3+} . У этого иона основное состояние имеет 6 сверхтонких компонент со значениями полного момента F от 0 до 5, а основное состояние электронной оболочки иона с возбужденным ядром имеет 4 сверхтонкие компоненты со значениями F от 1 до 4. Из выражений (32), (53), (63) видно, что частота Раби максимальна, если максимально произведение $(\mu_{ee} - \mu_{gg})\mu_{eg}$. Такое условие выполняется для перехода между уровнями $|g\rangle = |F = 1, m = 0, I = 5/2\rangle$ и $|e\rangle = |F = 1, m = 1, I = 3/2\rangle$. В этом случае

$$\mu_{ee} - \mu_{gg} = \frac{3}{2} \mu_B, \quad (65)$$

$$\begin{aligned} \mu_{eg} &= (-1)^{F_g + I_e + J - 1} \|\mu_{eg}\| \sqrt{2F_g + 1} \times \\ &\times C_{F_g m_g 1 q}^{F_e m_e} \left\{ \begin{matrix} I_g & J & F_g \\ F_e & 1 & I_e \end{matrix} \right\} = -\sqrt{\frac{7}{30}} \frac{\|\mu_{eg}\|}{2}. \end{aligned} \quad (66)$$

При мощности лазерного излучения 100 мВт и фокусировке излучения в пятно диаметром 1 мкм получаем $I = 10^7 \text{ Вт/см}^2$. При этом частота Раби Ω_0 перехода, согласно (63), составит порядка $0,07 \text{ с}^{-1}$, а световой сдвиг, согласно (62), окажется около $5,3 \cdot 10^{-6} \text{ с}^{-1}$. Столь малая величина светового сдвига говорит о

том, что сама методика получения сигнала от ядра тория по сути не вносит дополнительной погрешности в измерение частоты перехода. Реальная точность оптических часов будет определяться другими, не связанными с возбуждением тория факторами – стабильностью частоты источника излучения и полями ловушки. Приведенная оценка частоты Раби свидетельствует о возможности достижения насыщения поглощения двухфотонного перехода в ядре тория лазерным излучением умеренной мощности.

Для увеличения сигнала флуоресценции необходимо увеличить количество облучаемых ядер тория. Большой концентрации ядер тория можно достичь в кристаллах. В этом случае, с одной стороны, произойдет уменьшение частоты Раби на три порядка за счет того, что в известных химических соединениях торий четырехвалентен, но, с другой стороны, можно на много порядков увеличить количество ионов тория. Оценим количество излучаемых фотонов в этом случае. В случае перехода в Th^{4+} выражение для дипольного момента перехода имеет вид:

$$\mu_{eg} = \frac{\|\mu_{eg}\|}{\sqrt{2I_e + 1}} \cdot C_{I_g m_g 1 q}^{I_e m_e}, \quad q = m_e - m_g. \quad (67)$$

Для $|g\rangle = |I = 5/2, m = 3/2\rangle$ и $|e\rangle = |I = 3/2, m = 3/2\rangle$ находим $\mu_{eg} = \frac{1}{\sqrt{15}}\|\mu_{eg}\|$. При мощности лазерного излучения 100 мВт и фокусировке излучения в пятно диаметром 1 мкм получаем $I = 10^7$ Вт/см². Такая интенсивность излучения не может обеспечить насыщение поглощения – частота Раби Ω_0 перехода, согласно (63), составит порядка $1 \cdot 10^{-5}$ с⁻¹, и в знаменателе выражения (64) для ρ_{22} можно пренебречь слагаемым, содержащим Ω_0 .

Пусть кристалл освещается лазерным пучком с пространственным распределением интенсивности

$$I = \frac{2P}{\pi w^2} \exp\left(-\frac{2r^2}{w^2}\right), \quad (68)$$

где P – мощность лазерного излучения,

$$w = w_0 \sqrt{1 + \frac{z^2}{b^2}}, \quad (69)$$

r – расстояние точки до оси пучка, w_0 – минимальный радиус пучка (наименьшее расстояние от оси пучка, на котором поле уменьшается в e раз), z – координата вдоль оси пучка, $b = \pi w_0^2 / \lambda$ – конфокальный параметр, λ – длина волны лазерного излучения. Найдем количество фотонов, излучаемых в единицу времени из облучаемого объема кристалла при двухфотонном возбуждении. Пусть концентрация ядер тория в

образце равна n . Тогда в единицу времени из единицы объема излучается $\gamma n \rho_{22}$ фотонов. Принимая во внимание неравенство $\Omega_0 \ll \gamma \gamma'$, находим, интегрируя по всему объему образца, полное количество излучаемых фотонов в единицу времени

$$F = \int_0^\infty dr 2\pi r \int_{-\infty}^\infty dz n \mathcal{N} = \frac{n\pi P^2}{2\lambda\gamma'} \left[\frac{\mu_{ge}(\mu_{ee} - \mu_{gg})}{\hbar^2 \omega c} \mu_0 \right]^2. \quad (70)$$

В работе [21] при оценках возможности создания оптического γ -лазера в кристалле LiCaAlF_6 с примесью тория для оценок концентрацию последнего полагали равной 10^{18} см⁻³. При такой концентрации ионы Th^{4+} не изменяют существенно структуру кристалла. Для оценок примем, как и в случае свободного иона, $\gamma' = \gamma_L$. Тогда, согласно (70), при интенсивности излучения 10 Вт и $\gamma_L/2\pi = 1$ Гц из образца излучается 3,6 фотона за секунду.

Оценим величину рабочей области кристалла. При $w_0 = 10$ мкм для $\lambda = 320$ нм находим $b = 1$ мм. Таким образом, объем кристалла может составлять менее 0,1 мм³. В таком объеме при $n = 10^{18}$ см⁻³ содержится $n = 10^{14}$ атомов тория, из которых 400 распадается каждую секунду. В результате, в зависимости от используемого кристалла, может возникать дополнительное излучение. Например, в кристалле CaF_2 размером 25 мм³ после каждого α -распада ^{241}Am наблюдались сцинтилляции (около 40 фотонов) в течение 10^{-5} с в диапазоне 220–400 нм, далеко от длины сигнала флуоресценции возбужденного ^{229}Th [27]. Это излучение можно значительно уменьшить, используя тонкий образец так, чтобы после распада α -частица его быстро покинула. В частности, можно использовать кристалл толщиной до 1 мкм на металлической подложке, в котором флуоресценция может возбуждаться поверхностной электромагнитной волной.

9. Выводы

Проведенный анализ двухфотонных оптических переходов в ядре ^{229}Th показал, что средние интенсивности бегущей монохроматической волны и поля последовательности коротких световых импульсов, необходимые для одинакового возбуждения ядер, равны. Совпадают также и световые сдвиги в полихроматическом и монохроматическом полях. Поскольку излучения для возбуждения ядер (длина волны около 320 нм) генерируются в многофотонных процес-

сах, получить необходимую интенсивность лазерного излучения для последовательности импульсов проще, чем для монохроматического излучения. Кроме того, использование двухфотонных переходов позволяет значительно уменьшить фоновый сигнал рассеяния, поскольку возбуждение ядер происходит при вдвое меньшей частоте, чем сигнал флуоресценции. Еще одним преимуществом импульсного возбуждения может быть возможность, в случае возбуждения широкополосной гребенкой частот, измерения частоты ядерного перехода. При облучении ионов тория Th^{3+} в электромагнитной ловушке при мощности накачки 100 мВт можно достичь насыщения поглощения двухфотонного перехода. Ввиду большого времени жизни для детектирования возбужденных ядер можно использовать вспомогательное излучение, резонансное одному из переходов между компонентами сверхтонкой структуры иона тория с изомерным ядром, что позволяет увеличить сигнал флуоресценции на много порядков. В твердом теле при возбуждении ионов Th^{4+} лазерным излучением мощности 10 Вт можно ожидать излучения нескольких фотонов в секунду с частотой, равной частоте оптического перехода в ядре тория-229. Таким образом, предлагаемый метод создания возбужденного изомерного состояния тория-229 на основе двухфотонного поглощения может быть использован как в твердотельных оптических ядерных часах, так и часах на основе ионов в электромагнитной ловушке.

Работа поддержана Государственным фондом фундаментальных исследований Украины, проект Ф40.2/039, Австрийским научным фондом (FWF): M1272-N16, ФЦП “Научные и научно-педагогические кадры инновационной России на 2009–2013” (ГК 14.740.11.0463, ГК 16.740.11.0586), грантом Российского фонда фундаментальных исследований РФФИ-11-02-90426_Укр_Ф_а.

1. W. Markowitz, R. Glenn Hall, L. Essen, and J.V.L. Parry, *Phys. Rev. Lett.* **1**, 105 (1958).
2. T.E. Parker, *Metrologia* **47**, 1 (2010).
3. C.W. Chou, D.B. Hume, J.C.J. Koelemeij, D.J. Wineland, and T. Rosenband, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 070802 (2010).
4. B.R. Beck, C.Y. Wu, P. Beiersdorfer, G.V. Brown, J.A. Becker, K.J. Moody, J.B. Wilhelmy, F.S. Porter, C.A. Kilbourne, and R.L. Kelley, in *Proceedings of the 12th International Conference on Nuclear Reaction Mechanisms, Varenna, Italy, 2009* (2009), paper LLNL-PROC-415170.
5. E. Peters, S.A. Diddams, P. Fendel, S. Reinhardt, T.W. Hänsch, and Th. Udem, *Opt. Express* **17**, 9183 (2009).
6. V.V. Flambaum, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 092502 (2006).
7. E. Litvinova, H. Feldmeier, J. Dobaczewski, and V. Flambaum, *Phys. Rev. C* **79**, 064303 (2009).
8. E. Peik, K. Zimmermann, M. Okhapkin, and Chr. Tamm, *Proceedings of the 7th Symposium on Frequency Standards, and Metrology*, edited by L. Maleki (World Scientific, 2009), p. 532; arXiv:0812.3458.
9. S.G. Porsev, V.V. Flambaum, E. Peik, and Chr. Tamm, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 182501 (2010).
10. C.J. Campbell, A.V. Steele, L.R. Churchill, M.V. DePalatis, D.E. Naylor, D.N. Matsukevich, A. Kuzmich, and M.S. Chapman, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 233004 (2009).
11. C.J. Campbell, A.G. Radnaev, and A. Kuzmich, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 223001 (2011).
12. W.G. Rellergert, D. DeMille, R.R. Greco, M.P. Hehlen, J.R. Torgerson, and E.R. Hudson, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 200802 (2010).
13. G.A. Kazakov, M. Schreitl, G. Winkler, J.H. Sterba, G. Steinhauser, and T. Schumm, arXiv: atom-ph/1110.0741v1 (2011).
14. Л.С. Василенко, В.П. Чеботаев, А.В. Шишаев, Письма в ЖЭТФ **12**, 161 (1970).
15. S.G. Porsev and V.V. Flambaum, *Phys. Rev. A* **81**, 042516 (2010).
16. G. Audi, O. Bersillon, J. Blachot, and A.H. Wapstra, *Nucl. Phys. A* **729**, 3 (2003).
17. S.G. Nilsson, *Kgl. Danske Videnskab. Selskab. Mat.-Fys. Medd.* **29**, N. 16, 1 (1955).
18. E. Ruchowska, W. A. Plóciennik, J. Żylicz, H. Mach, J. Kvasil, A. Algora, N. Amzal, T. Bäck, M.G. Borge, R. Boutami, P.A. Butler, J. Cederkäll, B. Cederwall, B. Fogelberg, L.M. Fraile, H.O.U. Fynbo, E. Hagebø, P. Hoff, H. Gausemel, A. Jungclaus, R. Kaczarowski, A. Kerek, W. Kurcewicz, K. Lagergren, E. Nacher, B. Rubio, A. Syntfeld, O. Tengblad, A.A. Wasilewski, and L. Weissman. *Phys. Rev. C* **73**, 044326 (2006).
19. А.М. Дыхне, Е.В. Ткаля, Письма в ЖЭТФ **67**, 233 (1998).
20. C.E. Bemis, F.K. McGowan, J.L.C. Ford, W.T. Milner, R.L. Robinson, P.H. Stelson, G.A. Leander, and C.W. Reich, *Phys. Scr.* **38**, 657 (1988).
21. E.V. Tkalya, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 162501 (2011).
22. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц, *Механика* (Наука, Главная редакция физ.-мат. литературы, Москва, 1973).
23. B.W. Shore, *The Theory of Coherent Atomic Excitation* (Wiley, New York, 1990).
24. В. С. Летохов, В. П. Чеботаев, *Нелинейная лазерная спектроскопия сверхвысокого разрешения* (Наука, Москва, 1990).

25. R.H. Dicke, Phys. Rev. **89**, 472 (1953).
26. R.J. Cook, Phys. Rev. A **21**, 268 (1980).
27. V.B. Mikhailik, H. Kraus, J. Imber, and D. Wahl, Nucl. Instrum. Methods A **566**, 522 (2006).

Получено 10.04.12

ПРЯМЕ ДВОФОТОННЕ ЗБУДЖЕННЯ ІЗОМЕРНОГО ПЕРЕХОДУ В ЯДРІ ТОРІЮ-229

*В.І. Романенко, О.Г. Удовитська, Л.П. Яценко,
О.В. Романенко, А.Н. Литвінов, Г.А. Казаков*

Резюме

Розглядається можливість двофотонного збудження ізомерного стану в ядрі торію-229. Показано, що інтенсивність флуоресценції однакова при збудженні ядер монохроматичним випромінюванням або поліхроматичним випромінюванням послідовності коротких світлових імпульсів тієї ж інтенсивності. При двофотонному збудженні іона Th^{3+} в електромагнітній пастці сфокусованим випромінюванням лазера з довжиною хвилі ~ 320 нм і потужністю близько 100 мВт можна досягти насичення поглинання, за якого випромінювання флуоресценції з частотою переходу в ядрі максимальне. В кристалах, допованих Th^{4+} з концентрацією близько 10^{18} cm^{-3} , у полі лазерного випромінювання потужністю 10 Вт можливе випромінювання кількох фотонів за секунду з довжиною хвилі ~ 160 нм.

DIRECT TWO-PHOTON EXCITATION OF ISOMERIC TRANSITION IN THORIUM-229 NUCLEUS

*V.I. Romanenko¹, Ye.G. Udovitskaya¹, L.P. Yatsenko¹,
A.V. Romanenko², A.N. Litvinov³, G.A. Kazakov^{4,3}*

¹Institute of Physics, Nat. Acad. of Sci. of Ukraine
(46, Nauky Ave., Kyiv 03680, Ukraine; e-mail: vr@iop.kiev.ua),

²Taras Shevchenko National University of Kyiv
(4, Prosp. Academician Glushkov, Kyiv 03022, Ukraine;
e-mail: alexrm@univ.kiev.ua),

³St. Petersburg State Polytechnical University
(29, Politekhnicheskaya Str., St. Petersburg 195251, Russia;
e-mail: andrey.litvinov@mail.ru),

⁴Institute of Atomic and Subatomic Physics,
Vienna University of Technology
(Vienna 1020, Austria; e-mail: kazakov@thorium.at)

Summary

A possibility of the two-photon excitation of an isomeric state in a nucleus of thorium-229 has been discussed. The fluorescence intensity of the excitation is demonstrated to be identical for the irradiation of nuclei with either monochromatic light or polychromatic radiation consisting of a sequence of short light pulses of the same intensity. The two-photon excitation of Th^{3+} ion in an electromagnetic trap with a focused laser beam with a wavelength of about 320 nm and power of 100 mW can lead to the absorption saturation, at which the fluorescence emission with the frequency of the transition in a nucleus is maximal. In crystals doped with Th^{4+} to a concentration of about 10^{18} cm^{-3} and irradiated with a laser radiation 10 W in power, the emission of several photons per second with a wavelength of about 160 nm becomes possible.