

В.П. Кочанов

## О систематических погрешностях определения частоты переходов между возбужденными состояниями атомов посредством регистрации и анализа импульсов флуоресценции

*Институт оптики атмосферы СО РАН, г. Томск*

Поступила в редакцию 28.11.2005 г.

На примере 5-уровневой модели атома определены характер и величины систематических погрешностей измерения частот неупругих переходов между возбужденными состояниями флуоресцентным методом, которые возникают вследствие описания динамики заселенностей с помощью моделей, включающих меньшее число состояний (2, 3 и 4). Показано, что в области достаточно больших давлений указанные погрешности могут приводить к занижению определяемой частоты на порядок величины. Даны два критерия выбора адекватной модели.

При возбуждении атомов короткими лазерными импульсами возможно измерение скоростей неупругих переходов между достаточно близко расположенными состояниями, с которых происходит флуоресценция, поскольку длительность и форма импульсов флуоресценции существенно зависят от времени перераспределения заселенностей при столкновениях атома с частицами буферного газа. Наиболее простой вариант подобных измерений реализуется, когда в обмене энергией участвуют только два уровня, один из которых заселяется импульсом лазера, а с другого происходит высвечивание. Однако такая ситуация довольно редкая. Как правило, заселенность мигрирует в пределах нескольких состояний. Применение в обработке наблюдаемых импульсов моделей атома, учитывающих меньшее число состояний, чем имеет место в действительности, очевидно, приводит к систематической погрешности измерений частоты неупругих столкновений. А именно: в таком случае следует ожидать ее уменьшения, так как скорость заселения уровня, с которого происходит высвечивание, реально уменьшается вследствие того, что часть времени атом находится в неучтенных состояниях.

Целью данной работы является выяснение характера и степени влияния полноты описания атома (незамкнутости квантовой системы) на частоту неупругих столкновений, определяемую с помощью обработки формы импульса флуоресценции.

Будем считать, что в обмене энергией участвуют пять уровней (рис. 1) и перенос заселенности столкновениями происходит только между соседними уровнями. Для простоты описания положим все частоты неупругих столкновений равными. Заселенность уровня «-1» в нулевой момент времени считаем равной единице, а остальные уровни в этот

момент не заселены. Измеряемой величиной является форма импульса интегральной по спектру интенсивности флуоресценции с уровня «0» на ниже лежащий (не показанный на рис. 1) уровень, в качестве которого может быть в том числе и основное состояние. В условиях оптически тонкой среды реабсорбцию излучения можно не учитывать, и интенсивность флуоресценции пропорциональна заселенности уровня «0». Поскольку состояния вблизи уровня, с которого происходит флуоресценция, как правило, не являются верхними уровнями резонансных переходов, в дальнейшем не будем учитывать их радиационную релаксацию.

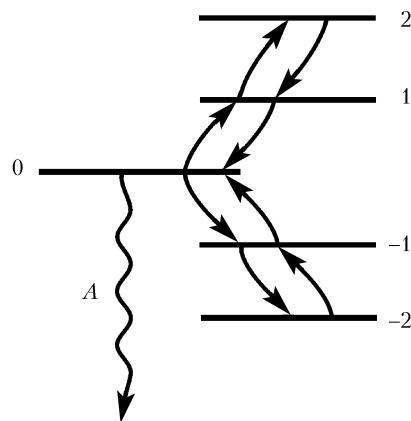


Рис. 1. Схема уровней атома

Принятая модель довольно условна, но легко может быть обобщена на случай конкретных атомов и позволяет проследить основные особенности проявлений динамики заселенностей в форме и длительности импульса флуоресценции. Тестирование полноты описания будем проводить путем подгонки

по методу наименьших квадратов формы импульса флуоресценции (заселенности уровня «0»), полученной для систем с меньшим числом уровней (2, 3 и 4), к «экспериментальному» импульсу, рассчитанному для пятиуровневой системы для различных частот  $\nu$  (давлений буферного газа). Коэффициент Эйнштейна  $A$  при этом считается известным, и в качестве подгоночных параметров выступают частота неупругих столкновений  $\nu$  и амплитудный множитель. Нормируем  $\nu$  на  $A$  и время на  $A^{-1}$ . Уравнения для заселенностей состояний в 2-, 3-, 4- и 5-уровневых моделях атома в рамках принятых приближений имеют вид

$$a\dot{\rho}_0 = -(1+a)\rho_0 + \rho_{-1}, \quad a\dot{\rho}_{-1} = \rho_0 - \rho_{-1}, \quad (1)$$

$$a\dot{\rho}_1 = -\rho_1 + \rho_0, \quad a\dot{\rho}_0 = \rho_1 - (2+a)\rho_0 + \rho_{-1}, \quad (2)$$

$$a\dot{\rho}_{-1} = \rho_0 - \rho_{-1},$$

$$a\dot{\rho}_1 = -\rho_1 + \rho_0, \quad a\dot{\rho}_0 = \rho_1 - (2+a)\rho_0 + \rho_{-1}, \quad (3)$$

$$a\dot{\rho}_{-1} = \rho_0 - 2\rho_{-1} + \rho_{-2}, \quad a\dot{\rho}_{-2} = \rho_{-1} - \rho_{-2},$$

$$a\dot{\rho}_2 = -\rho_2 + \rho_1, \quad a\dot{\rho}_1 = \rho_2 - 2\rho_1 + \rho_0, \quad (4)$$

$$a\dot{\rho}_0 = \rho_1 - (2+a)\rho_0 + \rho_{-1}, \quad a\dot{\rho}_{-1} = \rho_0 - 2\rho_{-1} + \rho_{-2},$$

$$a\dot{\rho}_{-2} = \rho_{-1} - \rho_{-2}, \quad a = 1/\nu, \quad A = 1.$$

Решения (1)–(4) есть соответственно

$$\rho_0 = \frac{2B\nu}{\sqrt{1+4\nu^2}} e^{-(\nu+1/2)t} \text{sh}(t\sqrt{1+4\nu^2}/2), \quad (5)$$

$$\rho_0 = \frac{2B\nu}{\sqrt{1+2\nu+9\nu^2}} e^{-(3\nu+1)t/2} \text{sh}(t\sqrt{1+2\nu+9\nu^2}/2), \quad (6)$$

$$\rho_0 = \frac{Be^{-pt}}{8qr_1r_2} \{ (1+b+2q)r_1e^{-q\tau} \text{sh}(r_2\tau) - (1+b-2q)r_2e^{q\tau} \text{sh}(r_1\tau) + 2r_1r_2[e^{q\tau} \text{ch}(r_1\tau) - e^{-q\tau} \text{ch}(r_2\tau)] \}; \quad (7)$$

$$\tau = \nu t; \quad p = (3+b)/2; \quad q = \sqrt{1+b^2}/2; \quad b = a/2;$$

$$r_{1,2} = \sqrt{3+b+b^2 \mp (1+b)\sqrt{1+b^2}}/\sqrt{2};$$

$$\rho_0 = -c_1e^{-\lambda_1\tau} + c_2e^{-\lambda_2\tau} + c_3e^{-\lambda_3\tau};$$

$$\lambda_1 = \frac{1}{3}(a-1-2s\cos\beta) + 2,$$

$$\lambda_{2,3} = \frac{1}{3}[a-1+s(\cos\beta \mp \sqrt{3}\sin\beta)] + 2;$$

$$c_1 = \frac{2+a-2s\cos\beta}{s^2(1+2\cos 2\beta)}, \quad (8)$$

$$c_{2,3} = \mp \frac{2+a+s(\cos\beta \pm \sqrt{3}\sin\beta)}{2s^2\sin\beta(\sqrt{3}\cos\beta \pm \sin\beta)};$$

$$s = \sqrt{a^2+a+10};$$

$$\beta = \frac{1}{3} \arctg \frac{3\sqrt{3}\sqrt{5a^4+6a^3+43a^2+50a+125}}{2a^3+3a^2-3a+25}.$$

Здесь  $B$  — амплитудный множитель, определенный в результате подгонки (5)–(7) к (8).

Рис. 2 иллюстрирует соответствие форм импульсов (5)–(7) расчетному импульсу (8) для малых ( $a$ ) и больших ( $b$ ) давлений  $\nu$ . Четырехуровневая модель (кривые 4) практически неотличима от

(8) для небольших давлений и дает небольшое различие в максимуме импульса при больших давлениях. Двух- и трехуровневые модели в случае малых давлений почти совпадают, но заметно отличаются от «реального» импульса. При больших давлениях отклонения увеличиваются, и это связано с тем, что менее высокий порядок характеристических уравнений систем (1), (2) по сравнению с (4) приводит к импульсам с менее крутым передним фронтом и более быстрым спаданием на временах, больших времени достижения максимума.

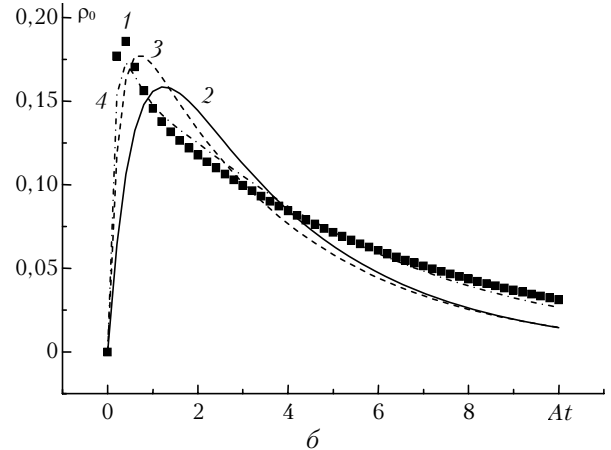
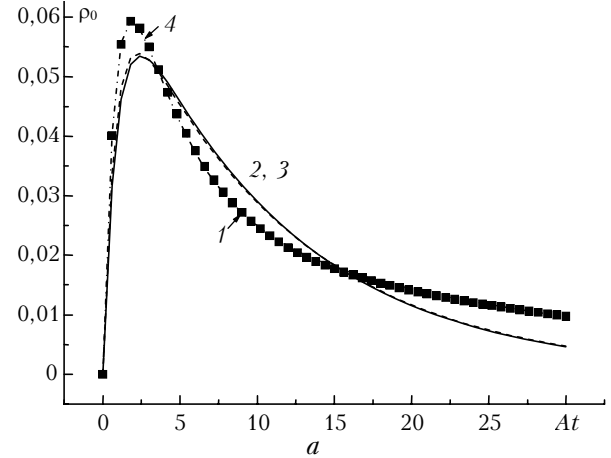


Рис. 2. Результаты подгонки формы импульсов флуоресценции для двух-, трех- и четырехуровневой моделей (кривые 2–4 соответственно) к расчетной форме импульса для пятиуровневой модели (квадраты 1):  $a = \nu/A = 0,1$ ;  $b = \nu/A = 2$

Таким образом, первым критерием соответствия количества уровней, включенных в модель описания реальной квантовой системы, действительному числу уровней является достаточно хорошее (на уровне процентов) совпадение расчетных и экспериментальных форм импульса флуоресценции при больших давлениях буферного газа ( $\nu > 1-2$ ). Полагая  $\nu = Nu\sigma$ , где  $N$  — плотность буферного газа;  $u$  — среднеплотная скорость;  $\sigma$  — сечение неупругих столкновений, для  $\nu = A$  и  $A = 10^8 \text{ с}^{-1}$ ,  $u \sim 2 \cdot 10^4 \text{ см/с}$ ,  $\sigma \sim 10^{-15} \text{ см}^2$  имеем  $N \sim 2 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$ , что отвечает давлению газа  $\sim 250$  торр при температуре  $200^\circ \text{C}$ .

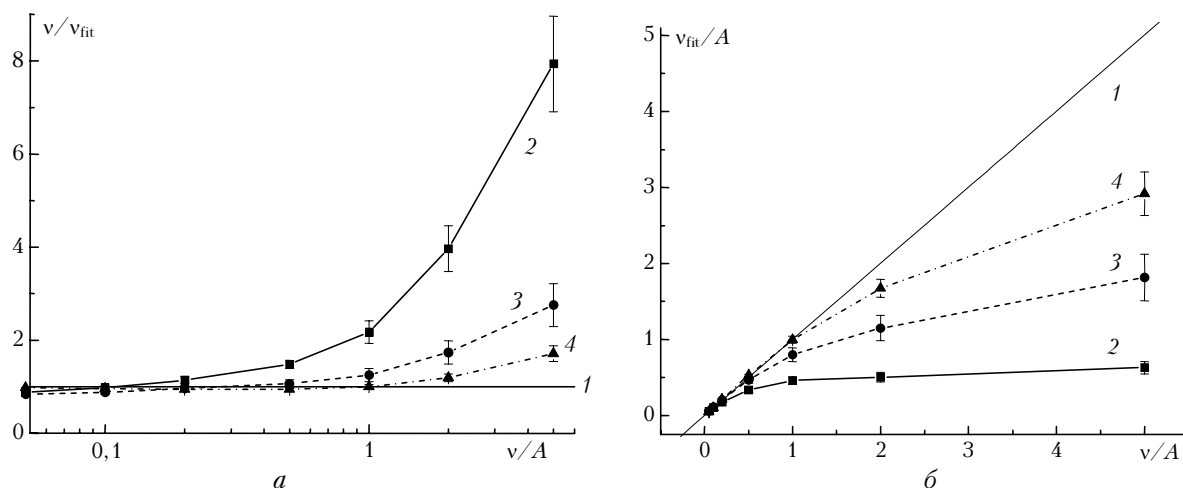


Рис. 3. Полученные в результате подгонки отношения заданной частоты  $\nu$  для пятиуровневой модели к определяемым из подгонки частотам  $\nu_{fit}$  как функция частоты  $\nu$  (давления газа) (а); зависимость частот  $\nu_{fit}$  от давления (б). Обозначения кривых 2–4 те же, что и кривых 2–4 на рис. 2, прямые 1 соответствуют задаваемой частоте  $\nu$

На рис. 3 представлены результаты подгонки импульсов (5)–(7) к (8). В качестве ошибки определения подгоняемых частот  $\nu_{fit}$  приведены 95%-е доверительные интервалы.

Из рис. 3,а следует, что несоответствие модели реальной квантовой системе приводит к значительной систематической погрешности измерения частоты  $\nu$ . Для  $\nu \sim 0,5$  погрешность составляет десятки процентов, достигая порядка величины для двухуровневой модели при  $\nu > 5$ . Таким образом, выбор правильной модели атома является определяющим фактором для количественных измерений скоростей неупругих переходов между возбужденными состояниями флуоресцентным методом. Наибольшая погрешность при этом имеет место в области высоких давлений буферного газа. В то же время именно измерения при больших давлениях позволяют сделать заключение

о соответствии выбранной модели описания эксперименту. Вторым, дополнительным к форме импульсов, критерием здесь является зависимость извлекаемых из подгонки частот  $\nu_{fit}$  от давления (рис. 3,б). При полном соответствии эта зависимость линейная, но существенно отличается от линейной в случае неполноты описания квантовой системы. Как видно из рис. 3,б, данный критерий весьма чувствителен к модели. Применение двух указанных критериев позволит выбрать адекватное описание эксперимента. Поскольку эти критерии связаны с общими особенностями динамики заселенностей, они должны быть применимы также и в случае более сложных моделей для конкретных атомов.

Автор признателен В.Е. Прокопьеву за обсуждения, стимулировавшие постановку и решение рассмотренной в данной статье задачи.

**V.P. Kochanov. On the systematic errors of frequency determination for transitions between excited states of atoms via recording and analysis of fluorescence pulses.**

On the example of a five-level atom the character and the magnitudes of systematic errors of determination of frequencies of inelastic transitions between excited states by fluorescence method are determined, which arise due to the description of population dynamics by the aid of models involving less number (2, 3, and 4) of states. It is shown, that specified errors may lead to reduction of a sought frequency in the order of magnitude at the high enough pressures. Two criteria for selection of an adequate model are given.