

539.184.2

ЛАЗЕРНОЕ ДЕТЕКТИРОВАНИЕ ЕДИНИЧНЫХ АТОМОВ

В. И. Балыкин, Г. И. Беков, В. С. Летохов, В. И. Мишин

СОДЕРЖАНИЕ

1. Введение	293
а) Классификация методов (294). б) Постановка задачи (295). в) Используемые лазеры с перестраиваемой длиной волны (297)	
2. Флуоресцентное детектирование атомов	298
а) Многократное переизлучение атомом фотонов (298). б) Источники фона и его дискриминация (300). 1) Случай $\nu_{фл} = \nu_{л}$ (300); 2) Случай $\nu_{фл} \neq \nu_{л}$ (301). в) Селективность детектирования (303). г) Обсуждение экспериментов (307). 1) Атомы в паре (307); 2) Атомы в буферном газе (308); 3) Атомы в пучке (310). д) Абсолютная чувствительность (315). е) Дополнительные возможности метода (317).	
3. Фотоионизационное детектирование атомов	317
а) Многоступенчатая фотоионизация атомов (318). 1) Нерезонансная фотоионизация возбужденных атомов (320); 2) Резонансное возбуждение высоколежащего ридберговского состояния и ионизация его электрическим полем (321); 3) Резонансная ионизация атома через автоионизационное состояние (322). б) Источники фона и его дискриминация (325). в) Селективность детектирования (326). г) Обсуждение экспериментов (328). 1) Атомный пар (329); 2) Атомы в буферном газе (329); 3) Атомы в пучке (330). д) Абсолютная чувствительность (332). е) Дополнительные возможности (336).	
4. Детектирование атомов методом отклонения	336
а) Отклонение атомов в магнитном поле (336). б) Отклонение атомов резонансным световым давлением (338). в) Возможные комбинации методов (340).	
5. Заключение. Приложение	341
Цитированная литература	341

1. ВВЕДЕНИЕ

Проблема детектирования одиночных частиц решена в экспериментальной физике совершенно в разной степени в зависимости от того, являются ли частицы заряженными или нейтральными, а если они нейтральны, то эффективность детектирования существенно зависит от энергии частиц.

Детектирование заряженных одиночных частиц является хорошо разработанной областью экспериментальной ядерной физики^{1,2}. Оно основано на том, что заряженная частица в электрическом поле может приобрести значительную энергию и при прохождении через вещество вызвать ионизацию и возбуждение большого числа атомов или молекул, которые вполне можно зарегистрировать, причем иногда даже без каких-либо дополнительных приборов. Так, например, работали самые первые флуоресцентные счетчики частиц, в которых флуоресценция наблюдалась визуально. Разработаны самые разнообразные счетчики, использующие эффект ионизации (счетчик Гейгера — Мюллера, ионизационная камера, кристаллический счетчик и др.).

Нейтральные частицы, такие, как нейтроны и γ -кванты, непосредственно не приводят ни к ионизации, ни к возбуждению, но при прохождении че-

рез вещество они создают вторичные заряженные частицы (ядра отдачи, электроны, ионы, пары электрон — позитрон и др.), которые можно зарегистрировать. Что касается самых распространенных нейтральных частиц — атомов и молекул, то возможности экспериментальной физики гораздо скромнее. Некоторые атомы можно регистрировать при попадании их на поверхность благодаря эффекту поверхностной ионизации³, но такой метод детектирования не универсален и обладает низкой избирательностью. Столь кардинальное различие в эффективности детектирования заряженных и нейтральных частиц высокой энергии по сравнению с нейтральными атомами и молекулами с низкой энергией вполне понятно уже из самого сравнения. Чтобы частицу зарегистрировать, необходимо вызвать в детекторе существенный эффект, а нейтральный атом или молекула сделать это обычно не могут. Поэтому проблема детектирования одиночных атомов и молекул оставалась нерешенной в физике, и лишь в самое последнее время были предложены и реализованы новые, лазерные методы. Обсуждению их и посвящен настоящий обзор. В обзоре мы рассматриваем только детектирование атомов. Ряд из рассматриваемых ниже методов, в частности, фотоионизационный метод, применим с большим успехом и к молекулам. Однако в целом проблема детектирования одиночных молекул даже с помощью лазерного излучения еще далека от полного решения, и обсуждение ее мы откладываем на будущее. Читатель, интересующийся всеми проблемами лазерной спектроскопии, в том числе и проблемой детектирования молекул очень низкой концентрации, может обратиться к обзорам и монографиям⁴⁻⁶.

а) К л а с с и ф и к а ц и я м е т о д о в

На рис. 1 в упрощенном виде показаны три основных лазерных метода селективного детектирования одиночных атомов. Они используют все эффекты, возникающие при резонансном взаимодействии атома со светом. Во-первых, в резонансном поле атом спонтанно переизлучает поглощаемое излучение, и возникшие при этом флуоресцентные фотоны можно

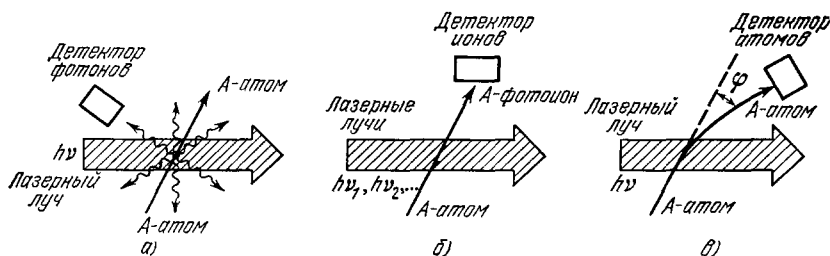


Рис. 1. Различные механизмы взаимодействия лазерного излучения с атомом, которые можно использовать для детектирования атома.

а) Спонтанное испускание возбужденного атома и детектирование переизлученных фотонов; б) фотоионизация атома и детектирование образующихся иона и электрона; в) отклонение атома из-за резонансного светового давления и детектирование отклоненного атома.

детектировать (рис. 1, а). Детектирование одиночного атома возможно, если за время взаимодействия с лазерным полем атом переизлучает достаточно большое число фотонов, так, чтобы светособирающая система и фотодетектор обеспечили появление отчетливого полезного сигнала. Во-вторых, многочастотным лазерным излучением можно осуществить резонансную селективную ионизацию атома (рис. 1, б) с квантовым выходом, близким к единице. Полученный фотон можно надежно регистрировать уже разработанными методами. Наконец, при взаимодействии атома со све-

товым полем можно изменить траекторию его движения (рис. 1, в). Это возможно либо за счет передачи импульса от лазерного луча к атому при многократном переизлучении фотонов, либо за счет изменения характера движения атома во внешнем электромагнитном поле за счет изменения поляризуемости или магнитного момента после лазерного возбуждения.

Два первых метода — флуоресцентный и фотоионизационный — достаточно универсальны и эффективны. Для них характерно то, что лазерное излучение обеспечивает как высокую селективность, так и высокую эффективность детектирования. Селективность достигается за счет резонансного характера взаимодействия лазерного излучения с атомом, а эффективность детектирования обеспечивается легкостью последующей регистрации за счет получения либо большого числа флуоресцентных фотонов, либо легко регистрируемого фотоиона. Оба метода применимы для атомов в паре, буферном газе или атомном пучке. Третий метод, отклонительный, гораздо менее универсален и эффективен. Для него характерно, что лазерное излучение обеспечивает только селективность детектирования за счет резонансного характера либо отдачи, либо изменения квантового состояния атома. В нем остается нерешенной задача регистрации нейтрального атома низкой энергии. Поэтому этот метод применим только для атомов, например, щелочных элементов, которые можно эффективно регистрировать методом поверхностной ионизации. Возможно также его сочетание с флуоресцентным или фотоионизационным методами. Кроме того, метод отклонения применим только к атомам в пучке.

б) Постановка задачи

Задача детектирования одиночных атомов имеет несколько вариантов, зависящих от условий эксперимента, в котором возникает малое количество атомов какого-либо элемента (рис. 2). Атомы в паре очень низкого

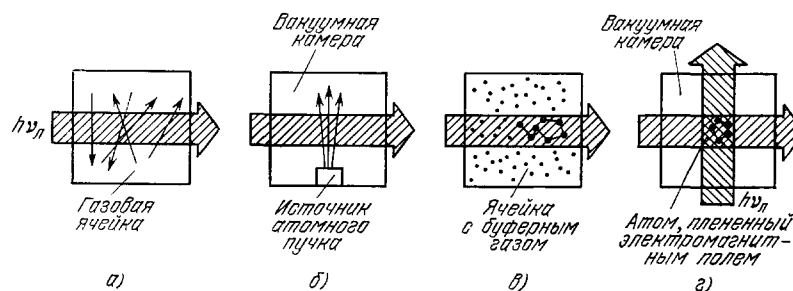


Рис. 2. Различные случаи движения атома в области облучения.

а) Свободное ненаправленное пересечение лазерного луча атомами пара; б) свободный пролет атомов в коллимированном пучке; в) диффузионное движение атома в буферном газе; г) длительное пребывание плененного ультрахолодного атома в области облучения.

давления хаотически пересекают область взаимодействия с лазерным излучением (рис. 2, а). В этом эксперименте линия поглощения уширена из-за эффекта Доплера, и необходимо облучать весь ее доплеровски-уширенный контур. В таком эксперименте разрешение ограничено эффектом Доплера, так как заранее неизвестна скорость атома. Исключение составляет случай двухфотонного возбуждения атома в поле стоячей волны, когда обеспечивается взаимодействие с полем всех атомов независимо от их скорости⁷. Время пролета атомов $\tau_{пр}$ со средней тепловой скоростью через луч сравнительно мало ($\tau_{пр} = 10^{-4} - 10^{-6}$ с). Поэтому необходимо использовать либо непрерывное облучение, либо облучение

импульсами с периодом повторения $T_{\text{повт}} < \tau_{\text{пр}}$. В противном случае значительная доля атомов будет пересекать область детектирования без взаимодействия с лазерным излучением. Непрерывное облучение наиболее выгодно применять для флуоресцентного метода, а для метода ступенчатой фотоионизации из-за быстрого распада промежуточных квантовых состояний выгодно только импульсное облучение. Эксперименты по схеме (а) проведены с помощью флуоресцентного метода для атомов Na с непрерывным лазером на красителе⁸.

Более благоприятна ситуация при детектировании атомов в коллимированном атомном пучке (рис. 2, б). В этом случае одновременно повышается разрешение и снижается требование к интенсивности лазерного излучения на фактор, равный отношению ширин линий поглощения в паре и атомном пучке. Все сказанное для случая (а) относительно режима облучения относится и к случаю атомного пучка. Отметим лишь, что в случае (б) можно, кроме флуоресцентного и фотоионизационного методов, использовать и метод отклонения атомов. Эксперименты типа (б) проведены с помощью: 1) флуоресцентного метода при непрерывном облучении (атомы U⁹, Na¹⁰ и Ba¹¹), 2) фотоионизационного метода при импульсном облучении при $T_{\text{повт}} \gg \tau_{\text{пр}}$ (атомы Na¹², Yb¹³), 3) метода отклонения при непрерывном облучении (атомы Na¹⁴).

Обратим внимание, что в экспериментах (а, б) происходит быстрый уход атомов на стенку, что требует сравнительно большого числа атомов для исследования всего спектра поглощения.

Детектирование атомов существенно облегчается, если атом способен проводить в области излучения длительное время. В этом случае снижается требуемая для обнаружения мощность лазерного излучения и уменьшается полное число атомов, необходимое для измерения его спектра поглощения. Если детектируемый атом находится в инертном буферном газе достаточно высокого давления (сотни тор), то время его пребывания в области облучения определяется временем диффузии $\tau_{\text{диф}}$ и может быть сравнительно велико (10^{-3} — 1 с). Диффузионное удержание атома в области облучения (рис. 2, в) достигается ценой существенной потери разрешающей способности из-за уширения спектральных линий давлением. Эксперименты по схеме (в) были выполнены как флуоресцентным методом при непрерывном облучении атомов ²⁰Na, образующихся в ходе ядерной реакции¹⁵, так и фотоионизационным методом при импульсном облучении атомов Cs¹⁶. Заметим, что импульсный режим работы при диффузионном удержании атомов существенно облегчается, так как можно увеличить период повторения лазерных импульсов $T_{\text{повт}}$ до величины $\tau_{\text{диф}}$. Особенно важно это для реализации фотоионизационного метода детектирования одиночных атомов, что было осуществлено впервые в работе¹⁶.

Идеальным является случай пленения и последующего хранения свободных атомов с малой кинетической энергией в неоднородном электромагнитном поле за счет градиентных сил¹⁷. В этом случае (рис. 2, г) время пребывания атома в облучаемой области может составлять часы¹⁸. Так принципиально можно измерить весь спектр поглощения, располагая всего одним-единственным атомом. Проведенные недавно¹⁹ первые успешные эксперименты по лазерному охлаждению атомов Na показывают, что и такой близкий к идеальному метод вполне осуществим. Заметим, что в случае исследования спектра ионов, имеющих спектральные линии в доступной области оптического спектра, ситуация существенно упрощается, так как можно использовать метод ограничения движения ионов в электромагнитной ловушке. Таким способом уже осуществлены эксперименты даже с визуальным наблюдением флуоресценции одиночных ионов в резонансном лазерном поле²⁰.

в) Используемые лазеры с перестраиваемой длиной волны

Совершенно ясно, что все упомянутые методы детектирования одиночных атомов нельзя было реализовать до тех пор, пока не были разработаны лазеры с перестраиваемой частотой излучения. Только такие лазеры обеспечивают резонансное насыщение квантовых переходов с многократным переизлучением фотонов или быстрой ионизацией, т. е. необходимую высокую эффективность детектирования. Обычные источники монохроматического излучения не позволяют это сделать из-за крайне низкой скорости стимулированных переходов атома в их поле.

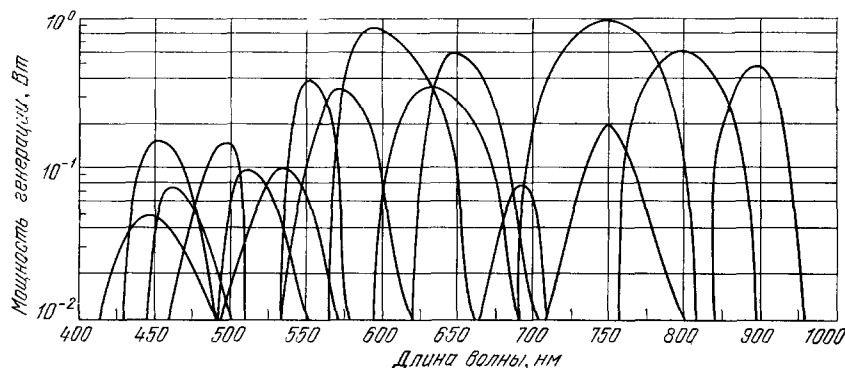


Рис. 3. Области перестройки длины волны излучения лазера на красителе непрерывного действия с накачкой аргоновым лазером фирмы «Spectra Physics»²².

В основе всех лазерных методов детектирования одиночных атомов лежат перестраиваемые лазеры на красителях импульсного или непрерывного действия (см. обзоры в²¹). Для флуоресцентного метода наиболее пригодны перестраиваемые лазеры непрерывного действия, которые сейчас работают в широком диапазоне длин волн. Например, коммерческая модель лазера на красителе «М-375» фирмы «Спектра-физикс» с накачкой излучением непрерывного аргонового лазера позволяет работать во всей видимой области длин волн за счет применения различных красителей (рис. 3). Необходимый для флуоресцентного метода уровень мощности непрерывного излучения определяется интенсивностью насыщения поглощения используемого резонансного перехода:

$$I_{\text{нас}} = \frac{\hbar\omega}{2\sigma_{01}\tau_{\text{сп}}}, \quad (1.1)$$

где σ_{01} — сечение резонансного перехода, $\tau_{\text{сп}}$ — время спонтанного распада возбуждаемого состояния. Обычно величина $I_{\text{нас}}$ лежит в области 0,01—10 Вт/см². С этой точки зрения плохо освоенной в непрерывном режиме пока остается область ультрафиолета и вакуумного ультрафиолета, поскольку методы генерации гармоник малоэффективны при низком уровне мощности преобразуемого излучения. Это серьезно ограничивает возможности флуоресцентного метода, и пока он применим только для атомов с резонансными линиями в видимой области спектра.

Для фотоионизационного метода наиболее пригодны перестраиваемые лазеры импульсного действия с высокой частотой повторения импульсов. Одним из наиболее распространенных источников накачки является импульсный лазер на молекуле N₂ ($\lambda = 3371 \text{ \AA}$), позволяющий получать

генерацию в красителях во всем видимом диапазоне, а за счет генерации второй гармоники освоить и УФ область. Так работает, например, коммерческая модель импульсного лазера на красителе фирмы «Молектрон», область перестройки которого показана на рис. 4. Требуемый для фотоионизационного метода уровень мощности опять-таки определяется необходимостью насыщения каждого квантового перехода в многоступенчатой

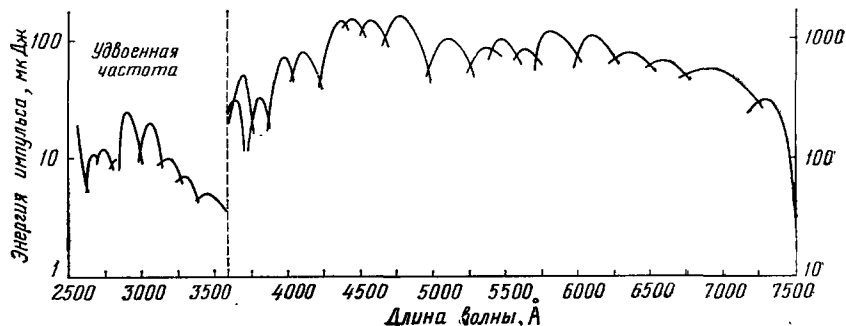


Рис. 4. Области перестройки длины волны излучения лазера на красителе импульсного действия с накачкой импульсным азотным УФ лазером фирмы «Molelectron»²³.

схеме возбуждения. Максимальный квантовый выход фотоионизации достигается, когда длительность импульса на каждой ступени возбуждения короче времени распада начального и конечного уровней перехода. В этом случае насыщение перехода $k \rightarrow n$ требует плотности энергии

$$\mathcal{E}_{\text{нас}}^{kn} = \frac{\hbar \omega_{kn}}{2\sigma_{kn}}, \quad (1.2)$$

где ω_{kn} и σ_{kn} — частота и поперечное сечение насыщаемого квантового перехода. Величина $\mathcal{E}_{\text{нас}}$ лежит в области 10^{-8} – 10^{-5} Дж/см² для разрешенных квантовых переходов и 10^{-5} – 10^{-3} Дж/см² для слабых квантовых переходов. Уровень средней мощности определяется требуемой по схеме детектирования частотой повторения импульсов.

Для увеличения пиковой мощности лазера на красителе, что крайне важно для эффективного преобразования частоты его излучения в УФ- и особенно в ВУФ-диапазоны, для накачки применяют эксимерный лазер на молекуле KrF (2470 Å)²⁴. Для получения высокой частоты повторения импульсов, которая необходима для обнаружения одиночных атомов при их быстром пролете через облучаемую область, применяют для накачки лазер на парах меди (5105 и 5782 Å) с частотой повторения до 10^4 Гц²⁵.

2. ФЛУОРЕСЦЕНТНОЕ ДЕТЕКТИРОВАНИЕ АТОМОВ

а) Многократное переизлучение атомом фотонов

Для детектирования единичных атомов флуоресцентным методом принципиальным является реализация в эксперименте многократного циклического взаимодействия атомов с лазерным излучением, в результате которого атом спонтанно переизлучает поглощаемое излучение. Возможны несколько способов реализации циклического взаимодействия атомов с лазерным излучением (рис. 5). Эти способы зависят как от энергетической структуры возбуждаемых уровней, так и от спектра используемого для возбуждения атомов лазерного излучения.

Самым простым является случай взаимодействия лазерного излучения с резонансным переходом атома, нерасщепленным за счет сверхтонкого взаимодействия, т. е. с идеальной двухуровневой квантовой системой (рис. 5, а). В этом случае для реализации циклического взаимодействия необходимо только, чтобы стабильность частоты лазерного излучения была за время взаимодействия не хуже однородной ширины линии поглощения атома. Примером таких атомов являются атомы четных изотопов щелочных и щелочно-земельных элементов, у которых между основным и первым возбужденным уровнем нет метастабильных уровней (Mg, Sr, Ca).

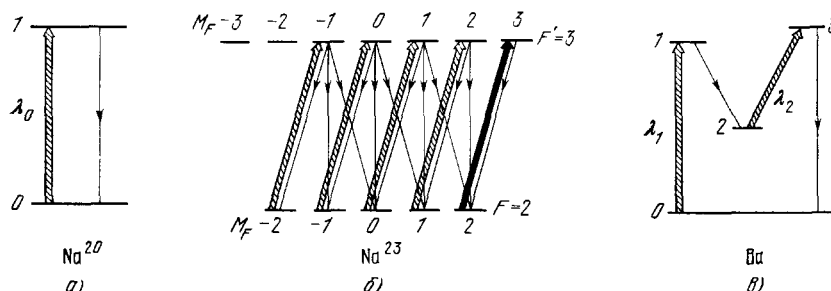


Рис. 5. Схемы квантовых переходов, обеспечивающих циклическое взаимодействие лазерного излучения с атомом.

а) Идеальная двухуровневая схема для атома ^{20}Na без сверхтонкой структуры уровней; б) ориентированный атом ^{23}Na ; в) универсальная схема взаимодействия с двухчастотным полем для атомов с метастабильным состоянием.

В том случае, когда атом имеет сверхтонкую структуру (рис. 5, б), можно использовать несколько способов реализации многократного циклического взаимодействия с лазерным излучением.

1) Атом можно перевести в определенное состояние сверхтонкой структуры, из которого атомы будут многократно взаимодействовать с излучением. Например (рис. 5, б), в результате воздействия поляризованного по кругу лазерного излучения на переход $3^2S_{1/2}, F=2 \rightarrow 3^2P_{3/2}, F'=3$ атома Na происходит оптическая накачка атома в состояние $F=2, m_F=2$, из которого возможен вынужденный переход только в верхнее состояние $F'=3, m_F'=3$ и спонтанный распад в исходное состояние $F=2, m_F=2$. Такой способ многократного переизлучения атомом фотонов использовался в работах ²⁶ для исследования поведения двухуровневой системы в сильном поле и для детектирования единичных атомов Na в работе ²⁷.

2) Атом можно возбуждать с обеих подуровней сверхтонкой структуры многомодовым лазером, расстояние между модами которого равно или кратно расстоянию между компонентами сверхтонкой структуры ^{10, 28}.

3) Атом можно облучать лазерным излучением одной и той же частоты, но направленным под разными углами к направлению движения возбуждаемого атома ^{29, 30}. При определенном угле между лазерными лучами можно за счет доплеровского сдвига осуществлять одновременное возбуждение атомов с двух подуровней основного состояния.

Наиболее общий случай реализации циклического взаимодействия атома с излучением — использование нескольких переходов атома, возбуждаемых многочастотным лазером (рис. 5, в). Из основного состояния «0» атом излучением на длине волны λ_1 переводится в возбужденное состояние «1», из которого он может перейти в основное состояние или в промежуточное метастабильное «2». При переходе в основное состояние атом снова возбуждается тем же излучением, и цикличность возбуждения не

прерывается. Если атом попал в метастабильное состояние «2», его можно вернуть в исходное состояние «0» через уровень «3» при возбуждении излучением другой длины волны λ_2 . Подобная схема многократного переизлучения фотонов была использована в работе ³¹ в экспериментах по отклонению атомного пучка Ва силой светового давления, и в работе ²⁰ для охлаждения ионов Ва⁺.

Пусть атом пересекает луч лазера, частота излучения которого настроена на резонансную линию поглощения. Тогда в режиме циклического взаимодействия атома с лазерным излучением за время пересечения луча атом поглотит и испустит количество фотонов, определяемое выражением

$$n = \frac{\tau_{\text{пр}} A_{21}}{1 + (1/\rho)} = \frac{\tau_{\text{пр}}}{\tau_{21} [1 + (1/\rho)]}, \quad (2.1)$$

где A_{21} , τ_{21} — соответственно коэффициент Эйнштейна рассматриваемого перехода и время жизни верхнего уровня, ρ — отношение средних заселенностей верхнего и нижнего уровней, $\tau_{\text{пр}}$ — время пересечения атомом луча. Если интенсивность лазерного излучения больше интенсивности насыщения этого перехода, то в этом случае количество испущенных фотонов равно

$$n_{\text{max}} = \frac{\tau_{\text{пр}}}{2\tau_{21}}. \quad (2.2)$$

Из выражения (2.2) следует, что максимальная скорость переизлучения фотонов, равная $n_{\text{max}}/\tau_{\text{пр}} = 1/2\tau_{21}$, определяется временем жизни возбужденного состояния. Например, для резонансного перехода атома Na, для которого $\tau_{21} = 1,6 \cdot 10^{-8}$ с, $n_{\text{max}}/\tau_{\text{пр}} = 3,1 \cdot 10^7$ фотон/с.

б) Источники фона и его дискриминация

Во флуоресцентном методе детектирования атомов чувствительность ограничивается световым фоном, обусловленным рассеянием лазерного излучения на элементах кюветы, в которой происходит регистрация сигнала флуоресценции. Если регистрируемые атомы находятся в буферном газе, то добавляется фоновый сигнал рэлеевского рассеяния. Методы дискриминации полезного сигнала существенно зависят от используемой схемы квантовых переходов (см. рис. 5). При использовании схем (а, б) частота флуоресценции $\nu_{\text{фл}}$ совпадает с частотой возбуждающего лазерного излучения $\nu_{\text{л}}$, и поэтому необходимо тщательное подавление фона, который по частоте не отличим от полезного сигнала. При использовании схемы (в) дискриминация сигнала и фона существенно облегчается, так как частоты возбуждения $\nu_{\text{л}}$ и флуоресценции $\nu_{\text{фл}}$ различны.

1) С л у ч а й $\nu_{\text{фл}} = \nu_{\text{л}}$. В этом случае дискриминацию сигнала от фона за счет частотных селекторов (монокроматоры, интерференционные фильтры и др.) осуществить нельзя. Основным способом подавления фонового сигнала в этом случае является использование кюветы с очень малым уровнем рассеяния и тщательная коллимация лазерного луча с высокой спектральной яркостью. Это позволяет обеспечить облучение атома с интенсивностью, достаточной для насыщения квантового перехода, при низком уровне нерезонансно рассеянного излучения.

Величина фонового сигнала, попадающего на фотокатод детектора за время взаимодействия $\tau_{\text{пр}}$ атома с излучением, равна

$$n_{\text{фон}} = \xi \frac{P_{\text{л}} \tau_{\text{пр}}}{h\nu_{\text{л}}}, \quad (2.3)$$

где P_L — мощность лазерного излучения на входе кюветы, ξ — параметр, характеризующий степень подавления рассеянного паразитного излучения, равный отношению попавшего на фотокатод рассеянного лазерного излучения к мощности лазерного излучения на входе кюветы.

Необходимым условием обнаружения сигнала (атома) является требование $n_{\text{фон}} \ll n_{\text{дет}}$, т. е.

$$\xi \ll \frac{n_{\text{дет}} h\nu}{P_L \tau_{\text{пр}}}, \quad (2.4)$$

где $n_{\text{дет}}$ — количество фотонов от атома, попавших на катод фотодетектора, определяемое с точностью до эффективности светособирающей системы выражением (2.1). Например, в работе ⁸, в которой были измерены низкие концентрации насыщенных паров Na, использовалась кювета с параметром $\xi = 3 \cdot 10^{-10}$. Это соответствовало сигналу флуоресценции от $3 \cdot 10^3$ атомов. При детектировании атомов урана в атомном пучке в работе ⁹ использовалась камера с $\xi = 2 \cdot 10^{-12}$, а для детектирования единичных атомов в работе ¹⁰ была сконструирована кювета, для которой $\xi = 10^{-14}$.

Помимо чисто технического приема — применения высококачественной кюветы — можно использовать более тонкие методы дискриминации, основанные на различии зависимостей полезного и фонового сигналов от частоты и интенсивности лазерного излучения, и даже различие их статистических свойств. В частности, для дополнительной дискриминации фона можно использовать частотную модуляцию лазерного излучения ⁸; в этом случае сигнал флуоресценции будет промодулирован по интенсивности, а фоновый сигнал постоянен. Применяя метод синхронного детектирования можно, очевидно, дополнительно подавить фон. В работе ¹⁰ для дискриминации фона флуоресценция регистрировалась одновременно двумя фотоумножителями. Поскольку фоновое излучение совершенно случайно во времени, а рассеянный сигнал от облучаемого атома дает в течение времени $\tau_{\text{пр}}$ «вспышку» фотонов одновременно на два фотодетектора, то, используя схему совпадений, можно дискриминировать полезный сигнал относительно фона.

При условии многократного взаимодействия атома с излучением и в режиме насыщения поглощения, т. е. когда атом испускает большое количество фотонов при пересечении лазерного луча, фотоны от атома должны приходить на детектор преимущественно группами, в то время как фотоны нерезонансно рассеянного света поступают на детектор случайно во времени. Анализируя количество пришедших на детектор фотонов за время пролета атома через луч лазера $\tau_{\text{пр}}$, можно отличить вспышки фотонов от пролетающих атомов, дающие многофотоэлектронный полезный сигнал, от случайных фотонов рассеянного света, вызывающих однофотоэлектронные импульсы на фотодетекторе ^{11,27,32}.

Отметим также предложение ³³ по дискриминации полезного сигнала от фона, состоящее в регистрации статистики фотоэлектронов за время пролета $\tau_{\text{пр}}$ атома через лазерный луч. В этом случае можно, в принципе, отличить многофотоэлектронный сигнал за счет последовательного переизлучения фотонов одним атомом от многофотоэлектронного сигнала за счет одновременного переизлучения нескольких фоновых фотонов.

2) С л у ч а й $\nu_{\text{фл}} \neq \nu_L$. Для частотной дискриминации полезного сигнала от атомов авторы работ ^{34, 35} предложили схему детектирования атомов, в которой одновременно осуществляется многократное циклическое взаимодействие с лазерным излучением одной частоты и насыщение перехода (что обеспечивает большое количество испущенных атомом фотонов), и регистрируется сигнал флуоресценции на смещенной частоте. Идея

их предложения ясна из рис. 6. Лазерное излучение возбуждает и насыщает резонансный переход «0» → «1» на частоте ν_0 . За счет столкновения возбужденных атомов с буферным газом происходит передача возбуждения на близлежащий уровень «2» и дальнейший переход атомов в основное состояние с излучением фотона на смещенной частоте $\nu_{\text{фл}}$, на которой происходит регистрация сигнала флуоресценции. Авторы назвали свой метод SONRES (saturated optical nonresonant emission spectroscopy). Такой метод применим только для тех элементов, у которых расстояние между уровнями «1» и «2» порядка kT . Только в этом случае происходит эффективная передача возбуждения с одного уровня на другой.

Подавление фонового сигнала при $\nu_{\text{фл}} \neq \nu_{\text{л}}$ происходит за счет использования монохроматора или интерференционного фильтра, центр полосы пропускания которых настроен на частоту сигнала флуоресценции. Степень подавления фона ξ определяется величиной коэффициентов рэлеевского рассеяния (K_R), рассеяния Ми ($K_{\text{Ми}}$), аппаратной функцией пропускания используемого спектрального прибора ($f(\nu_1 - \nu_0)$) и степенью подавления рассеянного света в кювете (ξ_K):

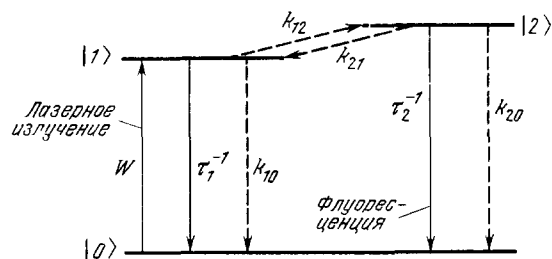


Рис. 6. Схема возбуждения атомов методом SONRES³⁶.

Лазерное излучение возбуждает переход $0 \rightarrow 1$. При столкновении с буферным газом возбуждение передается состоянию 2. Сигнал флуоресценции регистрируется на частоте перехода $2 \rightarrow 0$. Пунктирными линиями показаны переходы за счет столкновения с буферным газом.

$$\xi = (\xi_K + K_R l \Omega + K_{\text{Ми}} l \Omega) f(\nu_1 - \nu_0), \quad (2.5)$$

где l — длина области взаимодействия, отображаемой оптикой на детектор, Ω —

телесный угол, в котором регистрируется сигнал флуоресценции. Если разница частот $\Delta\nu = \nu_{\text{л}} - \nu_{\text{фл}}$ достаточно велика ($\Delta\nu > 50 \text{ \AA}$), то на величину подавления фона уже влияет рассеянный в спектральном приборе свет, который и определяет максимальное подавление фона. В современных тройных монохроматорах величина подавления фона при $\Delta\nu > 50 \text{ \AA}$ $f(\Delta\nu) = 10^{-10-12}$ ³⁶. Если учитывать вклад в образование фона только рэлеевского рассеяния, то, например, при $K_R = 5 \cdot 10^{-9} \text{ см}^{-1}$ ³⁷, $l = 1 \text{ см}$, $\Omega = 1 \text{ стер}$, минимальное значение ξ будет составлять $\xi_{\text{min}} = 4 \cdot 10^{-20}$.

При использовании для детектирования атомов двухчастотного режима возбуждения (см. рис. 5, в) проблема подавления фонового сигнала решается значительно проще. В этом случае циклическое возбуждение атомов можно осуществить в вакууме, где нет рассеянного за счет буферного газа излучения. Регистрацию сигнала флуоресценции можно осуществлять на смещенной частоте ν_3 (см. рис. 5, в) и поскольку, как правило, частоты возбуждающего излучения ν_1 и ν_2 по величине сильно отличаются от ν_3 , то не представляет труда дискриминировать фон от сигнала. Параметр подавления фонового сигнала в этом случае равен

$$\xi = \xi_K f(\Delta\nu), \quad (2.6)$$

где $\Delta\nu$ — минимальная частотная расстройка между возбуждающими частотами ν_1 и ν_2 и частотой флуоресценции ν_3 .

Естественно, что для дополнительной дискриминации фонового сигнала можно применять все те методы, о которых говорилось при обсуждении подавления фона в случае $\nu_{\text{л}} = \nu_{\text{фл}}$.

в) Селективность детектирования

Рассмотрим смесь атомов A и B , в которой надо детектировать редкие атомы B на преобладающем фоне атомов A . Пусть N_A и N_B — соответственно концентрации атомов A и B в рассматриваемой смеси. Определим селективность S обнаружения атомов B на фоне атомов A как обратную величину отношения минимальной концентрации N_B , обнаружимой на фоне концентрации N_A :

$$S = \frac{N_A}{N_B}. \quad (2.7)$$

Существующие методы оптической спектроскопии имеют ограниченную селективность детектирования из-за неизбежного перекрытия

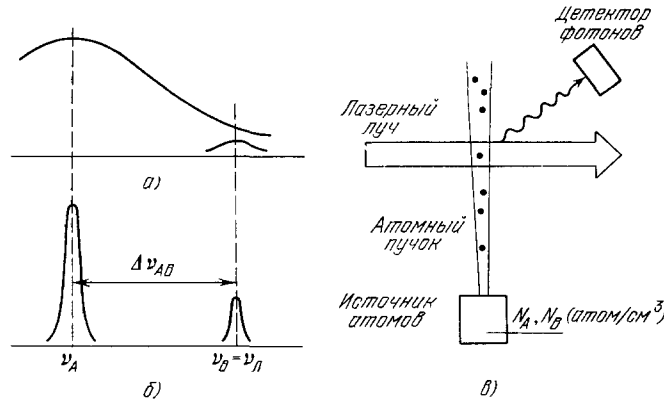


Рис. 7. Подавление крыла спектральной линии и увеличение селективности детектирования при многофотоэлектронной регистрации сигнала флуоресценции от атомов.

Контуры линий возбуждения флуоресценции фонового изотопа (центральная частота ν_A) и детектируемого изотопа (центральная частота ν_B) при суммарной регистрации сигнала флуоресценции (а) и при многофотоэлектронной регистрации сигнала флуоресценции (б). Схема наблюдения спектральной линии в атомном пучке (в).

крыльев спектральных линий. Предельная селективность оптического обнаружения атомов B на фоне атомов A того же элемента составляет величину

$$S_0 \approx \left(\frac{\Delta\omega_{AB}}{\Gamma} \right)^2, \quad \Delta\omega_{AB} = 2\pi\Delta\nu_{AB}, \quad (2.8)$$

которая определяется поглощением крыла линии атома A в центре линии поглощения атомов B , где Γ — однородная полуширина линий поглощения (рис. 7, а). Например, в случае детектирования редких изотопов величина $S_0 \simeq 10^4 - 10^6$.

В условиях многократного циклического взаимодействия лазерного излучения с атомом, когда сигнал флуоресценции от каждого атома генерирует $k \gg 1$ фотоэлектронов, можно реализовать такой режим детектирования атомов, при котором резко повысится селективность детектирования атомов B на фоне атомов A .

Идея повышения селективности заключается в следующем^{27, 33}. Пусть имеется очень разреженный атомный пучок смеси атомов A и B (рис. 7, в), пересекающих луч лазера непрерывного действия с частотой ν_L , причем в области взаимодействия находится одновременно не более одного атома A ($N_A \gg N_B$) (оценки на предельные концентрации атомов будут даны ниже). Пусть частота лазерного излучения ν_L настроена

в точный резонанс с частотой ν_B резонансного перехода атома B и, следовательно, находится на крыле линии поглощения атома A (рис. 7, а). Интенсивность лазерного излучения достаточна для насыщения резонансного перехода атомов B , а структура квантовых уравнений обеспечивает возвращение атома после быстрого флуоресцентного распада за $\tau_{сп}$ в исходное квантовое состояние. Тогда атом B , находящийся в точном резонансе с лазерным полем, за время пролета $\tau_{пр}$ через лазерный луч переизлучит в среднем $\bar{n}_B = \tau_{пр}/2\tau_{сп}$ фотонов. Так как атом A не находится в точном резонансе с полем, сечение квантового перехода для него далеко на крыле лоренцева контура уменьшено на фактор $(\Delta\omega_{AB}/\Gamma)^2$ и, следовательно, он переизлучает за время пролета в среднем $\bar{n}_A = \bar{n}_B (\Gamma/\Delta\omega_{AB})^2$ фотонов. Пусть полная эффективность счета фотонов равна η (эффективность сбора фотонов и квантовая эффективность фотокатода). Тогда при пролете через лазерный луч атом B в среднем рождает $\bar{k}_B = \eta\bar{n}_B$ фотоэлектронов, число фотоэлектронов за счет внерезонансных атомов A определяется выражением

$$\bar{k}_A = \eta\bar{n}_A = \eta\bar{n}_B \left(\frac{\Gamma}{\Delta\omega_{AB}} \right)^2 \ll \eta\bar{n}_B. \quad (2.9)$$

Если $\eta\bar{n}_B \gg 1$, а $\eta\bar{n}_A \ll 1$, то пролет атомов B можно дискриминировать относительно атомов A , регистрируя только многофотоэлектронные события и пренебрегая однофотоэлектронными событиями. Спектр возбуждения флуоресценции атомов, полученный путем регистрации многофотоэлектронных событий, будет обеспечивать сильное сужение линий и подавление их крыльев, как наблюдалось в работе ¹¹. Этот эффект можно использовать для увеличения селективности флуоресцентного детектирования.

Сделаем оценки возможной селективности детектирования. Пусть P_B — вероятность регистрации атома B , т. е. вероятность того, что при пролете атома B через луч лазера число фотоэлектронов от атома превышает пороговый уровень регистрации. Тогда селективность детектирования равна отношению вероятностей детектирования атома B на фоне атомов A при $\nu_A = \nu_B$, т. е.

$$S = \frac{P_B(\nu_B)}{P_A(\nu_B)}. \quad (2.10)$$

Вероятность регистрации атома зависит как от среднего числа фотоэлектронов, принимаемых от атома $k = \eta\bar{n}$, так и от порога дискриминации $k_{пор}$ числа принимаемых фотоэлектронов, и равна

$$P(\bar{k}, k_{пор}) = \sum_{m=n_{пор}}^{\infty} \frac{e^{-\bar{k}} (\bar{k})^m}{m!}. \quad (2.11)$$

Тогда выражение для селективности детектирования принимает вид:

$$S(\bar{k}_A, \bar{k}_B, k_{пор}) = \frac{P(\bar{k}_B, k_{пор})}{P(\bar{k}_A, k_{пор})}. \quad (2.12)$$

Повышение селективности за счет такой многофотоэлектронной дискриминации можно исследовать, измеряя зависимость вероятности детектирования $P(\bar{k}, k_{пор})$ от расстройки частоты лазерного излучения относительно центра линии поглощения. Такие измерения селективности детектирования были проведены в работе ³³. Для этой цели с помощью лазера на красителе непрерывного действия измерялся контур

линии поглощения атомов Na в пучке, соответствующей переходу

$$3^2S_{1/2}, F=2 \rightarrow 3^2P_{3/2}, F'=3 \quad (\lambda=589,0 \text{ нм}). \quad (2.13)$$

Для увеличения времени взаимодействия (увеличения количества переизлученных фотонов) атомный пучок пересекал под небольшим углом

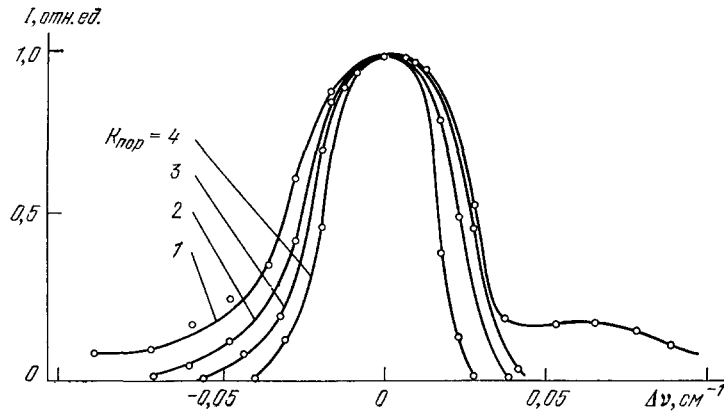


Рис. 8. Изменение контура возбуждения флуоресценции атомов Na в пучке, соответствующего переходу $3^2S_{1/2}, F=2 \rightarrow 3^2P_{3/2}, F'=3$ при многофотонной регистрации сигнала флуоресценции ²⁷.

$K_{\text{пор}}$ — порог дискриминации числа принимаемых фотоэлектронов.

(7°) лазерный луч, так что длина взаимодействия составляла 4 мм. Среднее количество регистрируемых фотоэлектронов от атома составляло $\bar{k}=1,8$. На рис. 8 представлены частотные зависимости амплитуды сигнала от атомов Na в пучке в режиме дискриминации количества принимаемых фотоэлектронов. Порог дискриминации изменялся от 1 до 4. На графике отчетливо заметно подавление крыльев спектральных линий при увеличении порога дискриминации.

По величине подавления крыла спектральной линии можно определить максимально достижимую селективность детектирования. На рис. 9 представлена зависимость селективности детектирования атома Na от порога дискриминации, полученная из графика рис. 8, для частотной отстройки от центра линии поглощения, равной $\Delta\nu=0,036 \text{ см}^{-1}$. На том же графике представлена расчетная зависимость селективности детектирования, полученная по формуле (2.12) при $\bar{k}=1,8$, взятом из этого же эксперимента, где измерялся профиль линии возбуждения флуоресценции в режиме многофотонной регистрации. В пределах ошибок измерения обе кривые совпадают. В эксперименте отстройка от центра линии поглощения был одного порядка с полушириной измеряемого контура (линии поглощения), поэтому увеличение

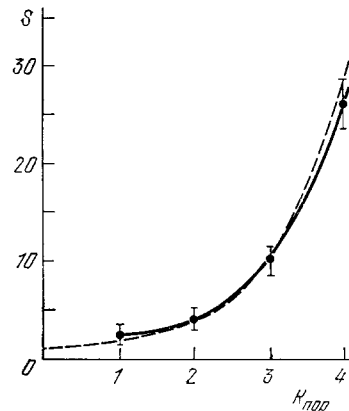


Рис. 9. Потенциальная селективность детектирования атомов Na в зависимости от порога дискриминации числа регистрируемых фотоэлектронов при отстройке от центра линии поглощения $\Delta\nu=0,036 \text{ см}^{-1}$ ²⁷.

селективности детектирования составляет относительно небольшую величину (около 25).

Эффект подавления крыла линии и увеличения селективности детектирования при многофотоэлектронной регистрации сигнала резко возрастает при увеличении отстройки от центра линии поглощения по сравнению с полушириной линии, поскольку резко падает количество регистрируемых фотоэлектронов. На рис. 10 представлены зависимости селективности детектирования атомов от величины отстройки для различных значений порога дискриминации для лоренцева контура линии поглощения. Зависимости построены по формуле (2.12) для среднего числа принимаемых фотоэлектронов в центре линии поглощения $\bar{k} = 5$.

Из рис. 10 видно, что при незначительном уменьшении вероятности регистрации атомов селективность детектирования принципиально может достигать величины 10^{30} .

В реальном эксперименте предельная величина селективности ограничивается присутствием паразитных шумов и конечным временем измерения. Например, в эксперименте ³³ основным шумом являлась фоновая засветка от лазера. При минимальном фоновом сигнале $3 \cdot 10^3$ фотоэлектрон/с, среднее число фотоэлектронов фона за время регистрации ($T = \tau_{\text{пр}} = 12$ мкс) $\bar{k}_\phi = 4,5 \cdot 10^{-2}$. На

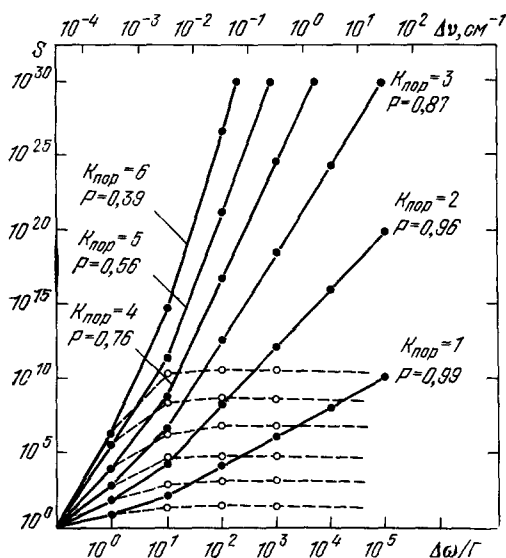


Рис. 10. Расчетная селективность детектирования атомов в зависимости от величины отстройки от центра линии поглощения при различных значениях порога дискриминации $k_{\text{пор}}$ числа регистрируемых фотоэлектронов, p — вероятность регистрации атома ²⁷.

рис. 10 пунктирными кривыми показаны изменения зависимостей $S(k_{\text{пор}}, \nu)$ при учете фонового сигнала. Из графика видно, что при наличии фоновых фотоэлектронов нельзя увеличить селективность ни при какой большой отстройке частоты поглощения детектируемого атома от частоты поглощения паразитных атомов.

Другой причиной, серьезно ограничивающей реальную селективность детектирования, является низкая допустимая интенсивность атомного пучка. При большой интенсивности атомного пучка в лазерном луче одновременно присутствуют более чем один атом сорта A . Ясно, что в этом случае будет труднее выполнить условие (2.9) из-за появления многофотоэлектронных событий от ансамбля атомов A . Пусть m_A — число атомов A , находящихся одновременно в лазерном луче, \bar{k}_A и \bar{k}_B средние количества фотоэлектронов от одного атома A и, соответственно, от одного атома B при $\nu_A = \nu_B$ (ν_B — по-прежнему центральная частота поглощения атома B с малой концентрацией). Тогда для случая $\bar{k}_B \geq 1$, но $\bar{k}_A, \bar{k}_A m_A \ll 1$, селективность детектирования определяется выражением ³³

$$\tilde{S}(k_{\text{пор}}) = S(k_{\text{пор}}) \frac{1}{m_A^{\bar{k}_{\text{пор}}} p(\nu_B)} \approx \frac{S(k_{\text{пор}})}{m_A^{\bar{k}_{\text{пор}}}}, \quad (2.14)$$

где $S(k_{\text{пор}})$ — селективность детектирования для случая, когда в луче одновременно не более одного атома (см. формулу (2.12)).

С помощью этого выражения можно оценить время, необходимое для реализации высокой селективности, и уменьшение величины селективности при переходе к более плотным атомным пучкам. Например, из рис. 10 следует, что при $\Delta\omega = 10\Gamma$, $k_{\text{пор}} = 5$ селективность детектирования с учетом фона равна 10^{10} . Максимальная интенсивность потока атомов, проходящих через лазерный луч, при которой одновременно в лазерном луче присутствует не более одного атома, при средней скорости атомов $v = 4 \cdot 10^4$ см/с и диаметре лазерного луча $d = 0,2$ см равна $F = v/d = 3,5 \cdot 10^5$ атомов/с. Для реализации указанной селективности необходимо время детектирования $T = S(k_{\text{пор}})/F = 2,85 \cdot 10^4$ с. Увеличение интенсивности потока в 10 раз уменьшает время до $2,85 \cdot 10^3$ с, но при этом селективность падает до величины $\tilde{S}(k_{\text{пор}}) = 10^5$. Таким образом, как всегда, извлечение полезного сигнала от атомов из шума достигается ценой увеличения времени наблюдения.

г) Обсуждение экспериментов

1) Атомы в паре. Использование флуоресценции атомов для абсолютного и относительного определения концентрации элементов осуществлялось еще до создания лазерных источников света. Уже с использованием стандартных источников света удалось осуществить ряд экспериментов, в которых были получены хорошие результаты. Наилучшие результаты при возбуждении атомов нелазерными источниками света были получены в работе ³⁸, в которой была зарегистрирована минимальная плотность паров Na — 10^7 атом/см³.

Применение лазеров на красителях, перестраиваемых в широком диапазоне спектра, позволило не только существенно повысить чувствительность флуоресцентного метода, но и подойти вплотную к проблеме детектирования единичных атомов. Авторы работы ¹⁵, используя в качестве источника возбуждения перестраиваемый лазер на красителе, осуществили детектирование очень малой концентрации атомов радиоактивного изотопа ²⁰Na ($N < 3 \cdot 10^3$ атомов/см³). Изотоп ²⁰Na рождался в результате ядерной реакции ²⁰Ne(p, n)²⁰Na при прохождении протонного пучка с энергией 20 МэВ через камеру с плотностью неона $3,5 \cdot 10^{18}$ ат/см³. Была измерена временная зависимость плотности атомов ²⁰Na (рис. 11) после облучения Ne протонным пучком, время радиоактивного распада атомов ²⁰Na и время их диффузии в неоне. Минимальная регистрируемая концентрация в этом эксперименте определялась рассеянным лазерным светом в камере и рэлеевским рассеянием в неоне.

Дальнейшим шагом на пути детектирования единичных атомов явилась работа ⁸ по абсолютному измерению очень низких концентраций атомов Na. Цель этой работы заключалась в измерении давления насыщенных паров в отпаянной кювете. Чтобы обеспечить необходимую точность измерения зависимости давления в кювете от температуры, лазерная интенсивность была много меньше интенсивности насыщения. Плотность паров атомов была измерена от 10^{11} атом/см³ ($t = 144^\circ\text{C}$) до 10^2 атом/см³ ($t = -28^\circ\text{C}$) (рис. 12). Для возбуждения атомов Na использовался одномодовый лазер на красителе, частота излучения которого настраивалась в резонанс с D_2 -линией натрия. Сигнал флуоресценции регистрировался на той же частоте. Кювета, в которой осуществлялось детектирование паров натрия, была тщательно сконструирована для того, чтобы избавиться от рассеянного лазерного излучения. Отношение рассеянного света, попавшего на катод фотоумножителя, к входному лазерному излу-

чению составляло величину $\xi = 3 \cdot 10^{-10}$. Это соответствовало сигналу флуоресценции от 3000 атом/см³. Для измерения меньшей концентрации использовалась частотная модуляция лазерного излучения, которая позволила улучшить отношение сигнала к шуму еще в 30 раз. Минимальная регистрируемая плотность паров определялась флуктуациями фона и несовершенством системы модуляции частоты лазера. Минимальной регистрируемой плотности (100 атом/см³) соответствует нахождение в регистрируемом объеме в среднем одного-двух атомов. Следует отметить, что

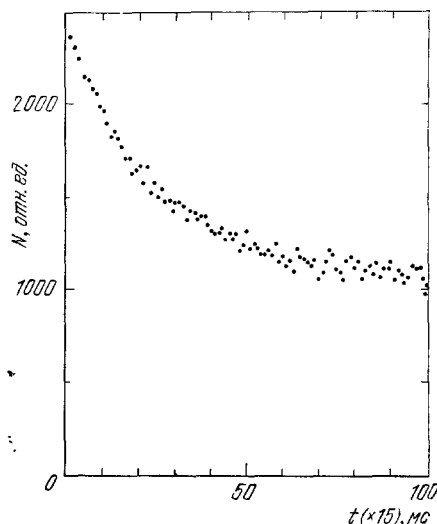


Рис. 11. Измерение флуоресцентным методом временной зависимости плотности атомов ^{20}Na в буферном газе Ne^{16} .

Атомы ^{20}Na образуются в результате ядерной реакции $^{20}\text{Ne}(\text{p}, \text{n})^{20}\text{Na}$ при прохождении протонного луча с энергией 20 Мэв через камеру, заполненную неоном плотностью $3,5 \cdot 10^{18}$ атом/см³.

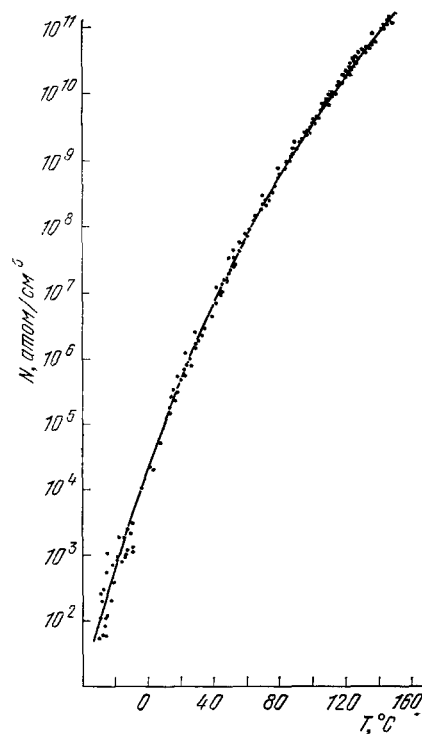


Рис. 12. Зависимость давления насыщенных паров Na от температуры, измеренная флуоресцентным методом ⁸.

в этом эксперименте сигнал за длительное время измерения возникал от многих атомов и регистрация отдельных атомов не происходила, но тем не менее была продемонстрирована очень высокая чувствительность флуоресцентного метода детектирования атомов.

2) Атомы в буферном газе. Для регистрации низких концентраций атомов Na в буферном газе в работах ^{34,35} была использована методика, названная авторами SONRES, описанная в п. б) гл. 2. Лазерное излучение возбуждает и насыщает резонансный переход $3^2S_{1/2} \rightarrow 3^2P_{1/2}$ ($\lambda = 589,6$ нм). За счет столкновения возбужденных атомов с буферным газом происходит передача возбуждения на ближайший энергетический уровень $3^2P_{3/2}$ и дальнейший переход атомов в основное состояние с излучением фотона на смещенной частоте, на которой происходит регистрация сигнала флуоресценции ($\lambda = 589,0$ нм).

Следует отметить, что существует несколько каналов потери поглощенной из лазерного луча энергии. Во-первых, существует безызлуча-

тельный переход как из состояния $3^2P_{1/2}$, так и из состояния $3^2P_{3/2}$ в основное. Во-вторых, в состоянии $3^2P_{3/2}$ переходит не более половины возбужденных атомов. Поэтому максимальное количество рассеянных фотонов в этом методе при $I \gg I_{\text{нас}}$ равно

$$n_{\text{SONRES}} = \frac{1}{\tau_2} \left(1 + \frac{2k_2}{k_{12}} \right)^{-1}, \quad (2.15)$$

где τ_2 — время распада состояния «2», $k_2 = k_{21} + k_{20} + (1/\tau_2)$; k_{12} , k_{21} , k_{20} — скорости безызлучательного перехода атома между соответствующими уровнями.

Возможности метода SONRES в эксперименте были продемонстрированы на примере детектирования атома Na в пламени и в буферном газе. Излучение коммерческого импульсного лазера на красителе (Chromatix CMX-4) настраивалось на D_1 -линию поглощения атома Na (589,6 нм) в пламени воздушно-ацетиленовой горелки. Флуоресценция от атомов Na через монохроматор регистрировалась фотоумножителем. Сигнал мог регистрироваться как на D_1 -линии, так и на D_2 -линии, фоновый сигнал дискриминировался монохроматором.

Высокая чувствительность метода иллюстрируется на рис. 13. При каждом сканировании, показанном на рисунке, возбуждение осуществлялось на D_1 -линии. Рис. 13, а представляет собой спектральный профиль излучения D_1 - и D_2 -линий при большой вводимой в пламя концентрации NaCl. Сигнал флуоресценции от натрия превышает рэлеевское рассеяние и рассеяние Ми. На рисунке 13, б изображено сканирование в том же частотном интервале, когда в пламя горелки не вводился раствор NaCl. На рис. 13, в чувствительность аппаратуры увеличена в 30 раз. Сигнал на частоте, соответствующей флуоресценции D_1 -линии, состоит преимущественно из рэлеевского рассеяния и рассеяния Ми. На смещенной от возбуждающего излучения частоте D_2 -линии наблюдается сигнал флуоресценции Na, присутствующего в воздухе. Минимальный регистрируемый сигнал в пламени горелки соответствовал концентрации 10^4 атом/см³.

При замене пламени отпаянной кюветой с металлическим Na в атмосфере аргона предельная чувствительность обнаружения паров Na увеличилась до 10 атом/см³ (в среднем 0,2 атома в объеме регистрации). Увеличение чувствительности произошло за счет увеличения скорости передачи возбуждения между подуровнями $3^2P_{1/2} \rightarrow 3^2P_{3/2}$ и уменьшения тушения возбужденных состояний аргоном по сравнению с воздухом. Сделанные авторами оценки указывают на возможности достижения предельной чувствительности 10^{-4} атомов в регистрируемом объеме, и делается вывод о возможности применения метода SONRES для детектирования единичных атомов при атмосферном давлении окружающего буферного газа.

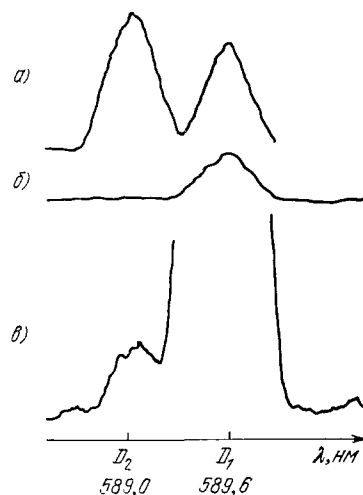


Рис. 13. Иллюстрация применения метода SONRES для детектирования низких концентраций атомов Na в пламени ацетиленовой горелки ^{34, 35}.

Показано спектральное сканирование D_1 и D_2 -линий испускания атомов Na при возбуждении атомов лазерным излучением на D_1 -линии. а) большая концентрация NaCl в растворе, поступающем в пламя; б) в пламя не поступает NaCl (на частоте D_1 сигнал рэлеевского рассеяния); в) то же самое, что и на (б), только чувствительность увеличена в 30 раз (на частоте D_2 сигнал от Na, обнаруженного в воздухе).

3) Атомы в пучке. В описанных выше экспериментах по детектированию атомов в парах и буферном газе в объеме взаимодействия или облучения регистрировалось в среднем несколько атомов. Более того, в формировании сигнала принимало участие гораздо большее число атомов, так как время пребывания атомов в области наблюдения было гораздо короче времени регистрации, и потому на место покинувших область облучения атомов всегда приходили новые атомы и т. д. Поэтому конечная цель — детектирование одиночных атомов — в предыдущих экспериментах не была достигнута. С этой точки зрения удобны эксперименты с атомными пучками, когда можно контролировать поступление атомов в область взаимодействия с лазерным полем. Такие эксперименты флуоресцентным методом впервые были сделаны в 1977 г. двумя группами исследователей: в Институте спектроскопии АН СССР^{10,28} и в Миннесотском университете США^{11,32}.

В работах^{10,11} исследовалась возможность детектирования единичных атомов Na и Ba методом резонансной флуоресценции. Авторы предположили, что при условии многократного взаимодействия атома с излучением и в режиме насыщения поглощения, когда атом испускает большое

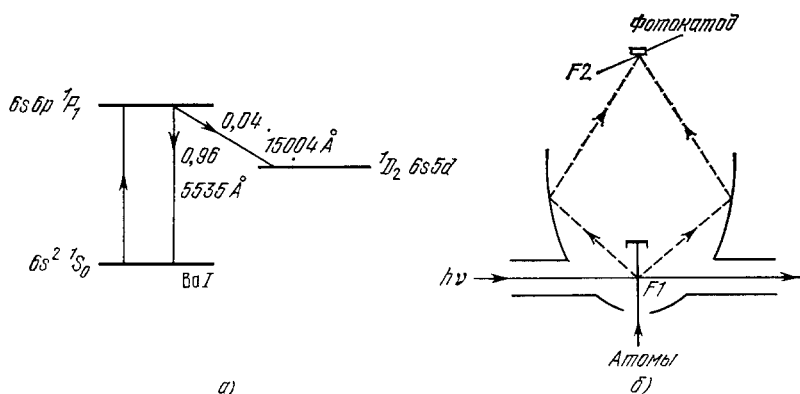


Рис. 14. Флуоресцентное детектирование атомов Ba в пучке¹¹.
(а) Диаграмма уровней атома Ba; б) использование эллипсоидов для сбора рассеянных фотонов от атома. F_1 и F_2 — фокусы эллипсоидов.

количество фотонов при пересечении лазерного луча, фотоны от атома должны приходить преимущественно группами, в то время как фотоны рассеянного света поступают на детектор случайно и в среднем равномерно во времени.

Анализируя количество пришедших на детектор фотонов за время, равное времени пролета атома через луч, можно различить фотоны от атомов на фоне фотонов рассеянного света.

При детектировании атомов Ba в эксперименте¹¹ число переизлученных одним атомом фотонов составляло 24 фотона/атом и определялось переходом атома из возбужденного состояния в метастабильное (рис. 14, а). Среднее число детектируемых фотонов определялось эффективностью сбора рассеянных фотонов и квантовым выходом катода ФЭУ. Для сбора рассеянных фотонов использовалось эллипсоидное зеркало (рис. 14, б), в одном фокусе (F_1) которого осуществлялось взаимодействие излучения с атомом, а в другой фокус (F_2) помещался катод ФЭУ. В этом эксперименте 46% испущенных атомом фотонов попадало на фотодетектор, квантовая эффективность которого равнялась 12% на длине волны регистра-

ции ($\lambda = 5535 \text{ \AA}$). Общая эффективность детектирования была 5,5%. Таким образом, от каждого взаимодействующего с излучением атома ожидался сигнал около 1 фотопотока. Тем не менее из-за статистической природы процесса переизлучения и детектирования некоторая доля атомов должна была давать сигнал в два, три и т. д. фотопотока.

Среднее число фотонов от одного атома Ва, измеренное в этом эксперименте, равнялось 1,3. В качестве примера регистрации потока атомов Ва на рис. 15 приведен спектр возбуждения флуоресценции естественной смеси изотопов Ва, полученный при регистрации одно-, двух-, трех- и т. д. импульсов. При регистрации только многофотопоточных импульсов было найдено, что происходит сужение спектрального профиля линии возбуждения. Это позволило отчетливо выявить в смеси изотопов Ва изотоп ^{130}Ba , который обычно не проявляется в суммарном спектре линейного поглощения. Таким образом, несмотря на то, что не-

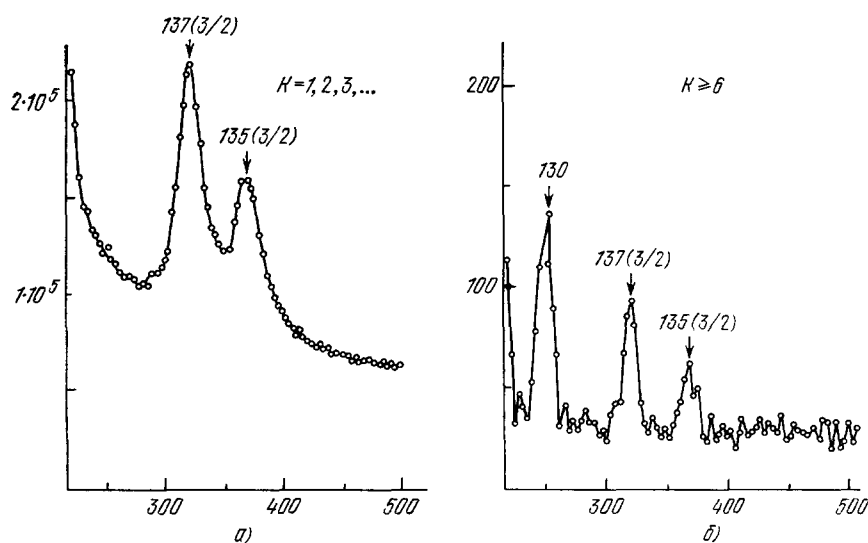


Рис. 15. Спектр возбуждения флуоресценции естественной смеси изотопов Ва, полученный при регистрации многофотопоточных импульсов ¹¹
 а) «Суммарный» спектр; б) спектр при регистрации импульсов в шесть и более фотопотоков — отчетливо заметно появление линии изотопа ^{130}Ba .

каждый атом, пересекающий луч, детектировался, отдельные индивидуальные атомы регистрировались в этом эксперименте. Другими словами, сигнал флуоресценции от отдельных индивидуальных атомов превышал фоновый сигнал, и его величина была достаточна для регистрации детектором.

В работах ^{10,28} использовался другой принцип регистрации сигнала от отдельных атомов и подавления фона. Использовалась двухканальная система регистрации со схемой совпадений. Сигнал флуоресценции регистрировался двумя ФЭУ в течение времени пролета атома через луч, т. е. накапливался в течение времени $\tau_{\text{пр}} = 20 \text{ мкс}$, а затем поступал в схему совпадений. Если в эксперименте осуществляется такой режим возбуждения атома, при котором сигнал флуоресценции от атома с каждого фотокатода больше одного фотопотока, т. е. заведомо возможен прием сигнала от каждого атома, то количество зарегистрированных импульсов в одном канале должно быть равно количеству импульсов и в

схеме совпадений. Измерение отношения количества регистрируемых импульсов в одном канале и в схеме совпадений должно давать информацию о вероятности обнаружения атома при его пролете через лазерный луч. При этом накладывается естественное ограничение на величину фонового сигнала. Необходимо, чтобы фоновый сигнал, попадающий на катод ФЭУ за время $\tau_{\text{пр}}$, был меньше сигнала от атома. В эксперименте¹⁰ величина фонового сигнала составляла 10^{-2} фотонов за время $\tau_{\text{пр}}$.

Для осуществления циклического взаимодействия атома с излучением в работах^{10,28} использовалось многомодовое излучение лазера на красителе (межмодовый интервал $\Delta\nu_m = c/2l = 416$ МГц) и большая мощность лазерного излучения ($0,18$ Вт/см² в каждой аксиальной моде). При настройке частоты одной из аксиальных мод лазерного излучения на переход $F = 2 \rightarrow F' = 3$ (рис. 16) из-за большой мощности излучения происходило уширение линии поглощения этого перехода, что приводило

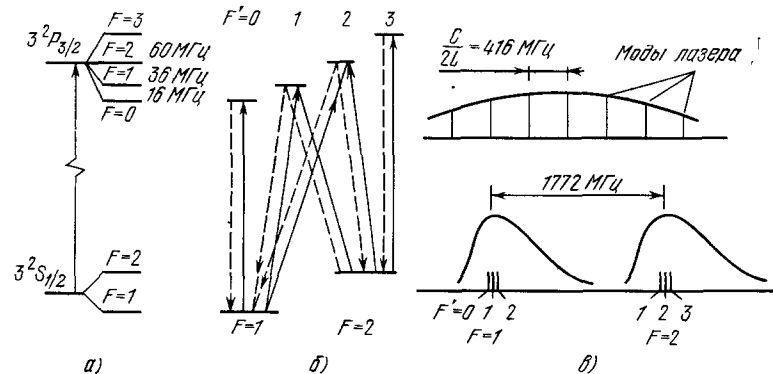


Рис. 16. Циклическое взаимодействие атома Na с многомодовым лазерным излучением^{10, 28}.

а) Энергетическая диаграмма основного и возбужденного состояний Na; б) спонтанные и вынужденные переходы; в) спектр лазерного излучения и контур линии поглощения атомов Na в атомном пучке.

к возможности возбуждения атомов на верхние подуровни с $F' = 2,1$. С подуровней $F' = 2,1$ атом мог перейти в основное состояние с $F = 1$, где он мог взаимодействовать с ближайшей аксиальной модой за счет крыла линии поглощения. Таким образом осуществлялось непрерывное циклическое взаимодействие атома с излучением. Схема экспериментальной установки показана на рис. 17. Излучение лазера на красителе с шириной линии $\Delta\nu_{\text{л}} = 0,16$ см⁻¹ возбуждало атомы в кювете. Сигнал флуоресценции регистрировался фотоумножителями, с которых он поступал последовательно на усилитель, дискриминатор, формирователь импульсов и на схему совпадений. Сигнал флуоресценции можно было регистрировать как в каждом канале, так и в схеме совпадений. Постоянная времени регистрирующей системы была выбрана равной времени пролета $\tau_{\text{пр}}$ атома через луч. Схема совпадений срабатывала, когда интервал между импульсами из обоих каналов не превышал $\tau_{\text{пр}} = 20$ мкс.

Камера была сконструирована так, чтобы максимально подавить рассеянный свет. Отношение мощности рассеянного света, попадающего на катод ФЭУ к входной мощности лазерного излучения, составлял величину $\xi = 10^{-14}$.

На рис. 18 приведена зависимость количества импульсов, регистрируемых в одном канале и в схеме совпадений, от мощности лазерного излучения. Видно, что в режиме, далеком от насыщения, когда атом

испускает недостаточное количество фотонов для достоверной его регистрации в каждом из каналов, количество импульсов в одном канале превышает количество импульсов в схеме совпадений. При большой мощно-

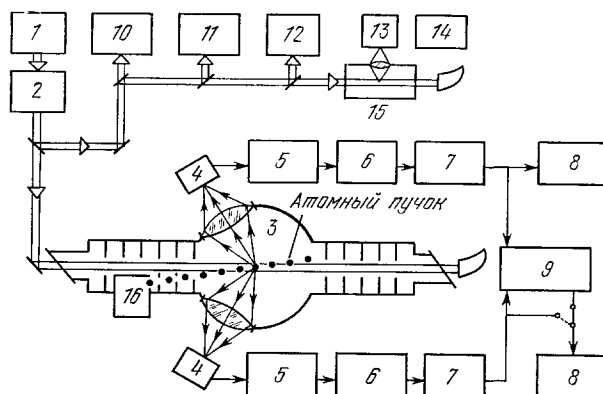


Рис. 17. Схема экспериментальной установки для флуоресцентного детектирования единичных атомов $\text{Na } 10, 28$.

1 — Ag^+ -лазер, 2 — лазер на красителе непрерывного действия, 3 — кювета; 4, 13 — ФЭУ, 5 — усилитель, 6 — дискриминатор; 7 — формирователь импульсов; 8 — частотомер; 9 — схема совпадений; 10 — спектрометр; 11 — интерферометр Фабри-Перо; 12 — измеритель мощности; 14 — осциллограф; 15 — контрольная кювета с парами Na ; 16 — источник атомного пучка.

сти количество импульсов в одном канале равно количеству импульсов в схеме совпадений, что говорит о регистрации практически каждого пролетающего атома. В случае, изображенном на рис. 18, поток таких атомов составляет 210 атом/с. На рис. 19

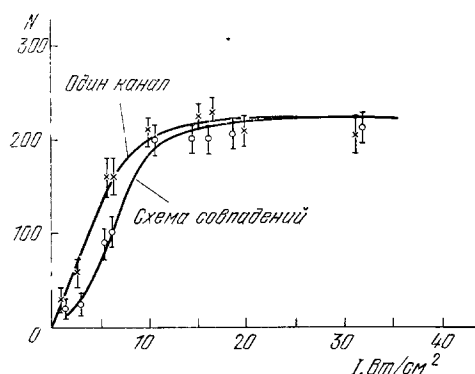


Рис. 18. Флуоресцентное детектирование атомов в двухканальной схеме: зависимость количества импульсов, регистрируемых в одном канале и в схеме совпадений, от интенсивности лазерного излучения $10, 28$.

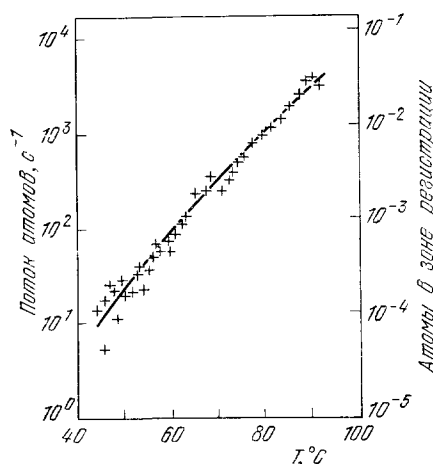


Рис. 19. Флуоресцентное детектирование потока взаимодействующих с излучением атомов натрия в зависимости от температуры источника $10, 28$. Правая шкала — число атомов в зоне регистрации.

показана зависимость потока регистрируемых атомов от температуры печи. Минимально обнаружимый поток через область регистрации составлял 10 атом/с и ограничивался фоновым сигналом от лазерного излучения.

В работе 27 для детектирования единичных атомов Na была выбрана схема, которая объединяла в себе обе обсуждаемые схемы работ 10 и 11 .

Для дискриминации фонового сигнала в каждом из каналов производился анализ количества полученных фотоэлектронов с последующей дискри-

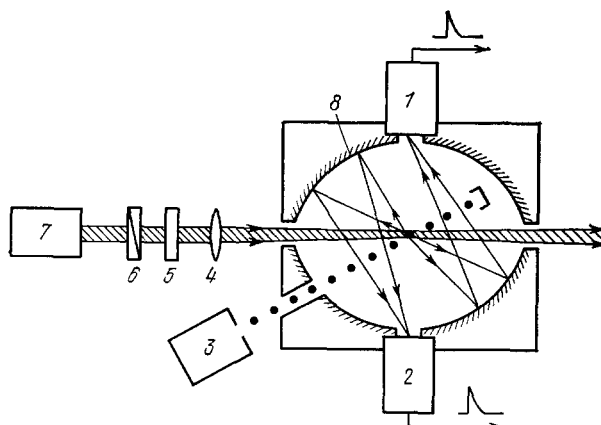


Рис. 20. Схема экспериментальной установки для флуоресцентного детектирования атомов $\text{Na } ^{27}$.

1, 2 — фотоумножители; 3 — источник атомного пучка; 4 — линза; 5 — пластинка $\lambda/4$; 6 — призма Глана; 7 — лазер на красителе; 8 — эллипсоиды.

минацией по количеству фотоэлектронов, а также использовалась схема совпадений для дополнительной дискриминации фонового сигнала и определения вероятности регистрации атома. На рис. 20 изображена схема эксперимента. Для циклического взаимодействия атома с излучением использовалась предварительная ориентация атома Na , в результате которой атом оказывался в состоянии $F = 2$, $m_F = 2$, и дальнейшее взаимо-

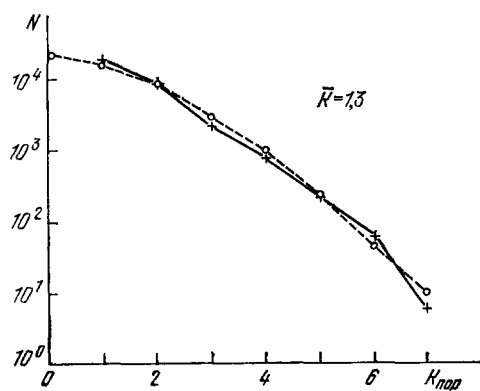


Рис. 21. К определению среднего числа фотоэлектронов от атома.

Изображена зависимость количества регистрируемых от потока атомов натрия фотоэлектронных импульсов от порога дискриминации. Штриховая кривая — функция распределения Пуассона при $\bar{h} = 1,3$, наилучшим образом аппроксимирующая экспериментальные точки 27 .

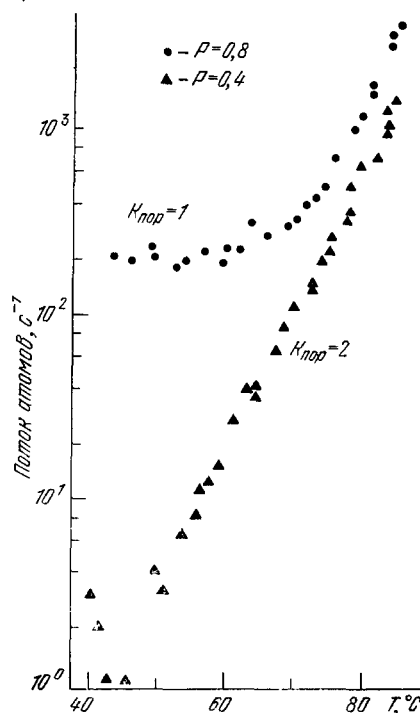


Рис. 22. Регистрируемый флуоресцентным методом поток атомов в зависимости от температуры источника при различных порогах дискриминации количества фотоэлектронов 27 . Верхняя зависимость (●) при пороге дискриминации $h_{\text{пор}} = 1$, нижняя (▲) при $h_{\text{пор}} = 2$.

действие осуществлялось на переходе между подуровнями $F = 2$, $m_F = 2 \rightarrow F' = 3$, $m_F' = 3$. Для увеличения сбора рассеянных фотонов использовались эллипсоиды, в одном из фокусов которых (общем для обоих эллипсоидов) происходило взаимодействие атома с излучением, в других фокусах располагались катоды ФЭУ.

Количество фотонов, которое испускает каждый атом, пролетая через лазерный луч, является величиной случайной и описывается пуассоновским распределением. Статистика фотоэлектронной эмиссии также описывается распределением Пуассона. Повторяя эксперимент по приему сигнала от пролетающих атомов Na через лазерный луч много раз, можно было измерить ²⁷ это распределение. Зная распределение числа фотоэлектронов, можно определить средние значения фотоэлектронов, получаемых от одного атома. На рис. 21 показана зависимость количества регистрируемых от потока атомов натрия фотоэлектронных импульсов от порога дискриминации, по которой определялось среднее число фотоэлектронов от одного атома, равное $\bar{k} = 1,3$.

На рис. 22 представлена зависимость потока атомов, регистрируемых в этом эксперименте, от температуры печи при различных порогах дискриминации. Верхняя зависимость получена при $k_{\text{пор}} = 1$, когда регистрируются все события, дающие один фотоэлектрон и более; нижняя зависимость получена при $k_{\text{пор}} = 2$, когда регистрируются только атомы, от которых возникает сигнал в два фотоэлектрона и более. Видно, что при $k_{\text{пор}} = 1$ минимальный регистрируемый поток атомов составляет 200 атом/с. Вероятность регистрации каждого атома при этом равна 0,8. При $k_{\text{пор}} = 2$ сигнал от фона уменьшается и соответственно увеличивается чувствительность системы. В этом случае минимально регистрируемый поток атомов составляет несколько атомов в секунду. Однако при этом вероятность регистрации уменьшается до значения 0,4.

д) Абсолютная чувствительность

Принципиальным является вопрос о минимальном числе атомов, которое необходимо для регистрации их спектра. Для получения отчетливого сигнала в пределах одного разрешаемого спектрального интервала $\delta\omega$ с точностью $\Delta = 10\%$ необходимо, чтобы регистрируемый сигнал от атомов был равен $1/\Delta^2 = 100$ фотоэлектронов. Это число диктуется статистикой наблюдения. Для измерения сверхтонкой структуры спектра необходимо увеличить это число на фактор $\Delta\omega_{\text{СТС}}/\delta\omega$. Таким образом, для измерения деталей структуры одной спектральной линии принципиально достаточно, чтобы сигнал составлял $10^4 - 10^5$ фотоэлектронов. В зависимости от условий эксперимента (см. рис. 2) это измерение осуществляется либо с различными атомами (рис. 2, а, б), либо с небольшим числом атомов за счет повторного наблюдения за одними и теми же атомами (рис. 2, в), либо в идеальном случае — с одним атомом (рис. 2, г). Последнее является конечной целью лазерных методов спектроскопии атомов, которая пока еще не достигнута. Сделаем некоторые оценки абсолютной чувствительности с точки зрения приема сигнала.

В настоящее время существуют два основных способа приема оптического сигнала: гетеродинный (когерентное детектирование) и прямое фотодетектирование (некогерентное фотодетектирование) ^{39, 40}. Во флуоресцентном детектировании атомов применяется второй способ приема сигнала, так как рассеянные атомом фотоны, которые и представляют собой обнаруживаемый сигнал, некогерентны с возбуждающим лазерным излучением, которое, в принципе, можно использовать в качестве гетеродина.

Из теории информации известно, что в методе прямого фотодетектирования максимальная информация, которую можно получить от сигнала с интенсивностью P (фотон/с), равна ^{41, 42}

$$H = \frac{B}{2} T \log_2 \left[1 + \frac{P}{N + (h\nu B/\varepsilon)} \right] \text{ (бит)}, \quad (2.16)$$

где B — ширина полосы системы (Гц), N — фоновый шум, $\nu = \omega/2\pi$ — частота (в Гц), h — постоянная Планка, ε — квантовая эффективность детектора, T — время наблюдения. Величина $h\nu B/\varepsilon$ представляет собой шум, обусловленный квантовыми флуктуациями самого сигнала. Из выражения (2.16) легко получить ту минимальную рассеянную мощность, которая необходима для приема сигнала от атома, когда регистрируется минимальная информация от атома (пролет атома через луч, т. е. $H = 1$ бит):

$$P_{\min} = \left(N + \frac{h\nu B}{\varepsilon} \right) (2^{2/BT} - 1). \quad (2.17)$$

При времени приема T , равном времени пролета $\tau_{\text{пр}} = 10^{-5}$ с, постоянной времени приема $\tau = 1/B = 10^{-7}$ с, $\varepsilon = 0,1$ и отсутствии фона ($N = 0$) минимальное количество фотонов $n_{\min} = P_{\min} \tau_{\text{пр}} = 14$ фотонов. Для получения более полной информации необходима большая рассеянная атомом мощность.

Из выражений (2.16), (2.17) следует, что существуют несколько путей увеличения максимальной информации от атома. Во-первых, можно увеличить мощность рассеянного атомом излучения P , во-вторых, можно увеличить полосу B , в-третьих, можно увеличить время приема T .

В настоящее время высокая спектральная яркость лазерного излучения позволяет насыщать резонансные переходы атомов и получить максимальную рассеянную мощность. Увеличение полосы регистрации B одновременно приводит к увеличению шума, обусловленного квантовыми флуктуациями самого сигнала, а это в свою очередь приводит к увеличению P_{\min} . Единственный параметр, который в настоящее время может привести к существенному увеличению получаемой от атома информации, а следовательно, и увеличению абсолютной чувствительности — это время взаимодействия T атома с излучением. Существуют несколько способов увеличения времени взаимодействия. Не рассматривая тривиальный способ увеличения пути пересечения атомом лазерного луча, отметим способ, который нам представляется наиболее перспективным. Этот способ состоит в охлаждении атомов силами светового давления и пленении охлажденных атомов в различного рода ловушках, т. е. в реализации общей схемы, изображенной на рис. 2, г.

Существует несколько теоретических работ ^{18, 43–45} (см. также обзор ⁴⁶), в которых рассматривается возможность охлаждения и пленения атомов, и несколько экспериментальных работ, в которых продемонстрировано охлаждение ионов ^{20, 47} и атомов ¹⁹ лазерным излучением. Используя методы охлаждения и пленения атомов, можно, в принципе, локализовать атом в пределах ловушки в течение времени, определяемого столкновениями с остаточным газом кюветы. Например, для вакуума с остаточным давлением $p \approx 10^{-10}$ Торр ($N_{\text{ат}} = 3,6 \cdot 10^6$ ат/см³) и для средней тепловой скорости остаточных частиц $v \approx 10^4$ см/с, для типичного полного сечения рассеяния $\sigma_{\text{расс}} \approx 10^{-14}$ см² время удержания атома, а значит, и время взаимодействия $\tau_{\text{вз}}$, должно составлять

$$\tau_{\text{вз}} = (\sigma_{\text{расс}} N_{\text{ост}} v)^{-1} \simeq 1 \text{ час}. \quad (2.18)$$

В таком режиме можно реализовать длительное взаимодействие атома с лазерным излучением и полное наблюдение его спектра.

В заключение этого раздела подчеркнем, что речь шла о необходимом количестве атомов для их регистрации и исследования спектра флуоресцентным методом в зоне взаимодействия с лазерным излучением. Для многих задач, например, в ядерной физике, существенным являются вопросы об абсолютном количестве атомов в источнике и их «транспортировке» в зону взаимодействия с излучением. Эти вопросы рассматриваются в работах ^{49, 50}.

е) Дополнительные возможности метода

Флуоресцентный метод детектирования единичных атомов, основанный на приеме большого количества рассеянных атомом за время взаимодействия с лазерным излучением фотонов, позволяет получить дополнительную информацию об атоме, что характерно только для этого метода регистрации.

Одним из таких возможных экспериментов является прямое измерение скорости индивидуальных атомов ⁴⁸. Идея эксперимента заключается в следующем (рис. 23). Луч лазера на красителе непрерывного действия расщепляется на два параллельных луча равной интенсивности и разделенных расстоянием d . Лучи направляются в камеру, содержащую движущиеся атомы. Концентрация атомов в камере такова, что в области, из которой осуществляется прием сигнала флуоресценции, находится одновременно не более одного атома. Когда атом пересекает оба лазерных луча и частота лазера настроена в резонанс с частотой поглощения атома, два последовательных сигнала флуоресценции поступают на систему регистрации. Каждый из сигналов является результатом взаимодействия атома с одним из лазерных лучей. Измеряя на экране осциллографа время между двумя импульсами $t_{\text{имп}}$, можно определить скорость индивидуального атома: $v = d/t_{\text{имп}}$. Такая техника открывает возможность различных экспериментов с атомами, имеющими определенные скорость и направление движения, а такую информацию можно использовать в последующих экспериментах с атомом.

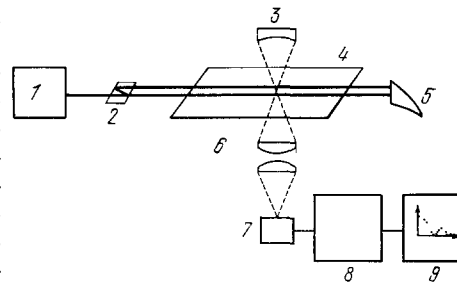


Рис. 23. Схема эксперимента для измерения скорости индивидуальных атомов ⁴⁸.

1 — лазер на красителе непрерывного действия; 2 — делительная пластинка; 3 — зеркало; 4 — кювета; 5 — световая ловушка; 6 — линза; 7 — детектор излучения; 8 — анализатор сигнала; 9 — осциллограф.

3. ФОТОИОНИЗАЦИОННОЕ ДЕТЕКТИРОВАНИЕ АТОМОВ

Современные методы регистрации заряженных частиц позволяют проводить детектирование ионов и электронов с эффективностью, практически равной единице. Этот факт позволяет рассматривать ионизацию как один из возможных способов детектирования атомов и молекул по продуктам ионизации (регистрация иона или электрона, либо того и другого одновременно). При этом эффективность и селективность детектирования нейтральной частицы будет определяться в основном эффективностью и селективностью процесса ионизации. Сначала рассмотрим способы высокоэффективной селективной ионизации атомов с помощью лазерного излучения.

а) Многоступенчатая фотоионизация атомов

Для селективной ионизации атомов наиболее пригоден метод ступенчатой ионизации атомов лазерным излучением, впервые реализованный в работе ⁵¹. В этом методе атомы возбуждаются лазерным излучением в промежуточное состояние в одну или несколько ступеней, а затем осуществляется фотоионизация только возбужденных атомов. Поскольку процесс возбуждения атомов на промежуточные уровни является резонансным, то для насыщения соответствующих переходов, т. е. для эффективного возбуждения атомов, требуются умеренные интенсивности лазерного излучения. В работах ^{52, 53} было показано, что при достаточно интенсивном ионизирующем излучении квантовый выход фотоионизации близок к единице. В таком режиме метод ступенчатой ионизации может эффективно использоваться для детектирования атомов ^{4, 54}.

Для детектирования одиночного атома, очевидно, необходимо обеспечить его фотоионизацию за время пребывания $\tau_{пр}$ в лазерном луче. Это

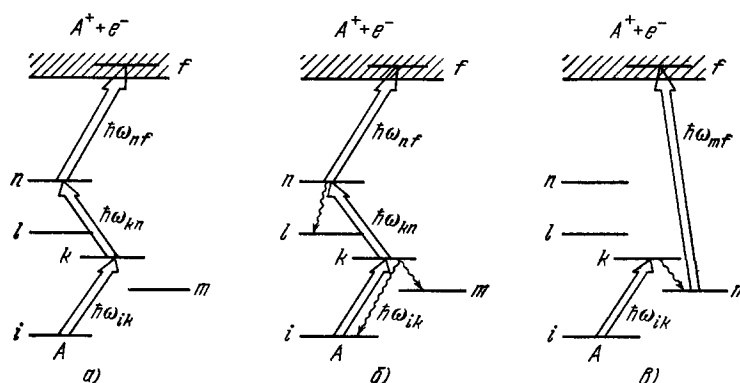


Рис. 24. Многоступенчатое возбуждение и ионизация атома.

а) Общая схема возбуждения короткими импульсами без застревания атома на нерабочих промежуточных уровнях; б) случай облучения атома длительными импульсами ($\tau_{и} \gg \tau_R$), когда происходит застревание атома на промежуточных уровнях (l, m); в) возможная схема возбуждения и ионизации длительными импульсами в случае релаксации возбужденных атомов на один метастабильный уровень.

время существенно зависит от схемы эксперимента (см. рис. 2) и изменяется от 10^{-6} с (свободный пролет атома через световой луч) до секунд (диффузия атома из области облучения). Это время гораздо больше времени жизни промежуточных состояний атомов, за исключением редких случаев использования метастабильных состояний. Поэтому для гарантированной фотоионизации каждого атома методом многоступенчатого возбуждения (рис. 24, а) необходимо, чтобы скорость индуцированных переходов на каждой ступени возбуждения W_{kn} была гораздо больше скорости релаксации заселенности каждого из промежуточных состояний $1/\tau_k$ и $1/\tau_n$.

Оптimalен случай одновременного облучения многоуровневой системы набором лазерных импульсов одинаковой длительности $\tau_{и} \ll \tau_k$ ($k = i, \dots, f$) на резонансных частотах ω_{kn} последовательных квантовых переходов (рис. 24, а). Если поток энергии $\mathcal{E}(\omega_{kn})$ каждого из таких импульсов удовлетворяет условию насыщения

$$\mathcal{E}(\omega_{kn}) \gg \mathcal{E}_{нас}^{kn}, \quad (3.1)$$

где $\mathcal{E}_{нас}^{kn}$ — плотность энергии насыщения резонансного перехода $k \rightarrow n$, определяемая выражением (1.2), то под действием многочастотного лазер-

ного излучения в среднем устанавливается равномерное распределение квантовой системы по начальному, всем промежуточным и конечному уровням *):

$$\frac{n_i}{g_i} \approx \frac{n_k}{g_k} \approx \dots \approx \frac{n_f}{g_f}, \quad (3.2)$$

где g_k — статистический вес k -го состояния. Если статистический вес растет с номером квантового состояния, то в высоковозбужденном состоянии может сосредоточиться значительная доля атомов.

Если условия насыщения промежуточных квантовых переходов (3.1) выполняются с достаточным запасом, то распределение квантовых систем по промежуточным уровням (3.2) устанавливается за короткое время, меньшее длительности облучения

$$\tau_{\text{возб}} \approx \sum_k \frac{1}{W_{kn}} \tau_{\text{ж}}, \quad (3.3)$$

где $W_{kn} = \sigma(\omega_{kn}) \cdot I(\omega_{kn})$.

Сильно возбужденный атом может либо спонтанно, либо под действием облучения или дополнительного возмущения перейти в континуум, т. е. ионизоваться. Если скорость перехода в континуум W_{fc} мала по сравнению со скоростью фотовозбуждения $1/\tau_{\text{возб}}$ и распад происходит главным образом после облучения, то величина абсолютного выхода в континуум ограничена относительной заселенностью конечного возбужденного уровня:

$$\beta \leq \frac{g_f}{\sum_k g_k}. \quad (3.4)$$

Однако, если во время фотовозбуждения открыт канал распада квантовой системы и скорость такого распада W_{fc} достаточно велика,

$$W_{fc} \geq \frac{1}{\tau_{\text{возб}}}, \quad (3.5)$$

то под действием такого однократного облучения можно опустошить начальный, все промежуточные и конечный уровни и, следовательно, добиться максимального выхода фотоионизации $\beta \approx 1$.

Условия (3.1) и (3.3) могут оказаться слишком жесткими. Но, как правило, атом находится в области облучения гораздо дольше, чем время жизни возбужденных состояний. Поэтому при более длительном облучении можно обеспечить гарантированную фотоионизацию даже вдали от насыщения каждой ступени возбуждения. В принципе, это справедливо для идеального трех- или четырехуровневого атома. В действительности атом обычно имеет много других промежуточных состояний, в которые атом может попасть при медленном возбуждении и из которых он уже не может быть фотоионизован излучением на нескольких строго фиксированных частотах облучения (см. рис. 24, б). Именно поэтому для реализации единичного квантового выхода фотоионизации оптимален режим импульсного облучения с длительностью импульсов

$$\tau_{\text{и}} \ll \tau_k. \quad (3.6)$$

Именно этот режим и будет рассматриваться в дальнейшем. Возможным исключением из этого общего правила является случай быстрого распада промежуточного состояния в одно долгоживущее промежуточное состояние « m » (рис. 24, в). Тогда можно реализовать, например, двухступенчатую фотоионизацию по схеме, изображенной на рис. 24, в, при более

*) Здесь мы отвлекаемся от эффектов когерентного взаимодействия.

мягком требовании на скорость индуцированных переходов:

$$\tau_{\text{возб}} \ll \tau_{\text{и}} \ll \tau_{\text{т}}. \quad (3.7)$$

Условие детектирования каждого атома за время его пребывания в области взаимодействия с излучением диктует необходимый период повторения лазерных импульсов:

$$T_{\text{повт}} \ll \tau_{\text{пр}}. \quad (3.8)$$

Отсюда вытекает требование на необходимую среднюю мощность излучения на каждой ступени:

$$P_{\text{ср}}^{kn} = \frac{\mathcal{E}_{\text{нас}}^{kn} s}{T_{\text{повт}}}, \quad (3.9)$$

где s — поперечное сечение лазерного луча.

Для выполнения условия (3.1) и (3.3) необходимо использовать квантовые переходы с наибольшим сечением. Особенно критично это условие для последнего квантового перехода из промежуточного состояния в ионизационный континуум. По способу ионизации атомов из промежуточного состояния в методе ступенчатой ионизации можно условно выделить три подхода (см. обзоры ^{55,56}) (рис. 25):

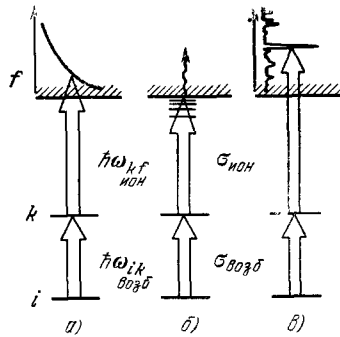


Рис. 25. Способы селективной ступенчатой ионизации атомов. а) Нерезонансная фотоионизация; б) ионизация атома электрическим полем из ридберговского состояния; в) ионизация атома через автоионизационное состояние.

ного состояния в методе ступенчатой ионизации можно условно выделить три подхода (см. обзоры ^{55,56}) (рис. 25):

- 1) нерезонансная фотоионизация возбужденного атома;
- 2) ионизация атома электрическим полем из ридберговского состояния;
- 3) резонансная фотоионизация возбужденного атома путем возбуждения автоионизационного состояния.

Рассмотрим подробнее каждый из подходов.

1) Нерезонансная фотоионизация возбужденных атомов. При таком способе возбужденный атом ионизуется дополнительным лазерным излучением, либо излучением, используемым на одной из ступеней резонансного возбуждения. Для такой нерезонансной фотоионизации характерны относительно низкие поперечные сечения $\sigma_{\text{ион}} = 10^{-17} - 10^{-19} \text{ см}^2$ по сравнению с сечением резонансного возбуждения промежуточных уровней $\sigma_{\text{возб}} = 10^{-11} \div 10^{-14} \text{ см}^2$. Для эффективного возбуждения и последующей фотоионизации возбужденных атомов плотности энергии импульсов должны удовлетворять следующим условиям ⁵¹, являющимся частным случаем общих условий (3.1):

$$\mathcal{E}_{\text{возб}} \geq \mathcal{E}_{\text{возб}}^{\text{нас}} = \frac{\hbar\omega_{\text{возб}}}{2\sigma_{\text{возб}}}, \quad \mathcal{E}_{\text{ион}} \geq \mathcal{E}_{\text{ион}}^{\text{нас}} = \frac{\hbar\omega_{\text{ион}}}{\sigma_{\text{ион}}}. \quad (3.10)$$

Для ионизирующего импульса плотность энергии насыщения $\mathcal{E}_{\text{ион}}^{\text{нас}}$ лежит в пределах $0,01 - 1 \text{ Дж/см}^2$ (для возбуждающего импульса соответствующие значения $\mathcal{E}_{\text{возб}}^{\text{нас}}$ в $2\sigma_{\text{возб}}/\sigma_{\text{ион}}$ раз меньше). Такие параметры лазерного излучения могут быть достигнуты существующими импульсными лазерами, если требуемая частота следования импульсов лежит только в пределах нескольких десятков Гц. В то же время, в соответствии с требованием (3.8), для ионизации каждого влетевшего в лазерный луч атома временной интервал между импульсами должен быть меньше времени пролета атома через область луча $\tau_{\text{пр}}$. Для атома, движущегося с тепловой

скоростью, $\tau_{\text{пр}} \approx 2 \cdot 10^{-5}$ с. Таким образом, необходимо посылать лазерные импульсы с частотой следования $f_{\text{повт}} \geq 1/\tau_{\text{пр}} = 50$ кГц. В этих условиях средняя интенсивность лазерного излучения, необходимая для эффективной ионизации, должна составлять несколько киловатт:

$$I_{\text{ср}} = (10^4 - 10^5 \text{ Гц}) \times (0,01 - 1 \text{ Дж/см}^2) = 10^2 - 10^5 \text{ Вт/см}^2.$$

Если же осуществлять детектирование атомов в плотном паре или буферном газе, то время пролета атомов через луч будет определяться их диффузией в газе, причем значения $\tau_{\text{диф}}$ лежат в диапазоне от десятков миллисекунд до нескольких секунд. И несмотря на значительную величину плотности энергии ионизирующего импульса, для эффективной ионизации требуется умеренная средняя интенсивность лазерного излучения:

$$I_{\text{ср}} = f_{\text{повт}} \mathcal{E}_{\text{ион}}^{\text{нас}} = (10^2 - 1 \text{ Гц}) (0,01 - 1 \text{ Дж/см}^2) = 0,01 - 100 \text{ Вт/см}^2.$$

Однако в таком эксперименте нельзя добиться высокого спектрального разрешения, поскольку наличие буферного газа приводит к значительному ударному уширению линий поглощения. В тех случаях, когда необходимо реализовать максимальное спектральное разрешение, детектирование нужно осуществлять в разреженном газе или в вакууме в атомном пучке. В таких условиях атомы движутся с тепловой скоростью практически без соударений и, как было показано, применение здесь метода нерезонансной ионизации предъявляет очень высокие требования к энергетике ионизирующего лазерного излучения. Эти трудности могут быть успешно преодолены, если использовать метод ионизации ридберговских атомов электрическим полем.

2) Резонансное возбуждение высоколежащего ридберговского состояния и ионизация его электрическим полем. В этом методе, предложенном в работе ⁵⁷, атом из промежуточного состояния возбуждается под границу ионизации в ридберговское (высоколежащее) состояние и затем ионизируется импульсом электрического поля. Ионизация ридберговских атомов электрическим полем исследовалась в работах ⁵⁸⁻⁶⁰. Последующие исследования ⁶¹⁻⁶⁴ продемонстрировали, что ридберговские атомы обладают уникальной способностью сравнительно легко ионизоваться в электрическом поле независимо от вида атома. На рис. 26 представлены зависимости сигнала ионизации ридберговского состояния от напряженности импульсного электрического поля для $28f$ -состояния атома ксенона ⁵⁹ — а) и $17s$ -состояния атома натрия ⁶³ — б). Как видно, каждое состояние характеризуется своим значением критического электрического поля, вблизи которого сигнал ионизации имеет пороговый характер. Зависимость критического электрического поля от эффективного главного квантового числа n^* состояния для значительной части элементов хорошо описывается классической формулой

$$E_{\text{кр}} = \frac{1}{16n^{*4}} \text{ ат. ед.} \quad (1 \text{ ат. ед.} \approx 5 \cdot 10^9 \text{ В/см}). \quad (3.11)$$

При напряженности электрического поля, большей критической для данного высоколежащего состояния, ридберговские атомы ионизируются с выходом ионов, близким к единице. При этом сечение ионизации возбужденного в промежуточное состояние атома определяется сечением резонансного возбуждения его в ридберговское состояние. Это сечение на несколько порядков превышает сечение нерезонансной ионизации в континуум.

Возбуждение атома в высоколежащее состояние можно осуществить в две или три ступени излучением импульсных лазеров на красителях, синхронизованных друг с другом. Выбор схемы возбуждения зависит от конкретного атома. Для атомов щелочных металлов удобной является двухступенчатая схема возбуждения. Для тяжелых элементов со сложным спектром атомных состояний и потенциалом ионизации, большим 6 эВ, наиболее предпочтительна трехступенчатая схема возбуждения атома в высоколежащие состояния. Поскольку процессы ступенчатого возбуждения атома в ридберговские состояния являются резонансными, то для насыщения переходов требуются относительно небольшие плотности

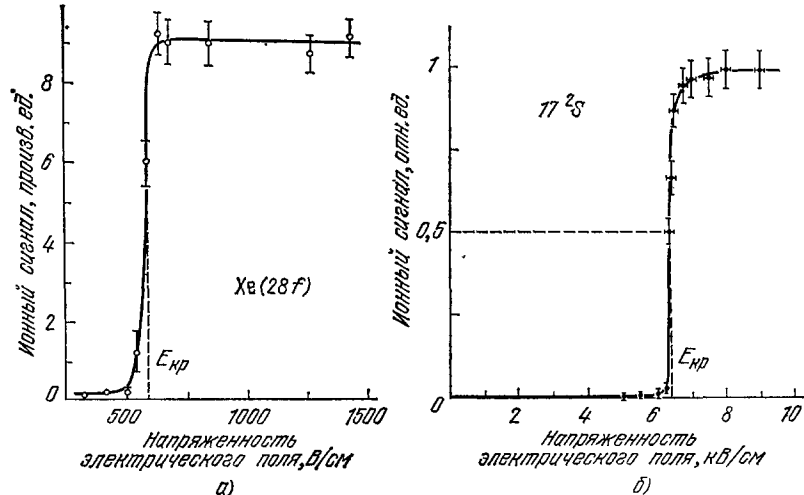


Рис. 26. Ионизация электрическим полем ридберговских состояний атомов. а) Зависимость сигнала ионизации от напряженности импульсного электрического поля для 28f-состояния атома ксенона 80 , б) то же для 17s-состояния атома натрия 23 .

энергии лазерных импульсов, достижимые с помощью существующих лазеров на красителях. Типичные значения плотности энергии насыщения лежат в пределах $\mathcal{E}_{\text{возб}}^{\text{нас}} = 10^{-6} - 10^{-4}$ Дж/см². Поэтому даже в режиме перехвата каждого атома, движущегося с тепловой скоростью, средняя интенсивность возбуждающего лазерного излучения составляет

$$I_{\text{ср}} = (10^4 - 10^5 \text{ Гц}) (10^{-6} - 10^{-4} \text{ Дж/см}^2) = 10^{-2} - 10 \text{ Вт/см}^2.$$

Импульсом электрического поля наиболее удобно действовать на атом после окончания лазерных импульсов. В этом случае процесс возбуждения атома не осложнен штарковским сдвигом и расщеплением высоколежащего последнего уровня. Абсолютный выход фотоионизации в таком случае ограничен относительной заселенностью последнего возбуждаемого дискретного состояния, определяемого выражением (3.4). С этой точки зрения для достижения предельного ($\beta = 1$) абсолютного выхода ступенчатой фотоионизации при умеренных требованиях к средней мощности фотоионизирующего излучения наиболее выгодно использование автоионизационных состояний.

3) Резонансная ионизация атома через автоионизационное состояние. Еще одной возможностью повышения сечения фотоионизации атомов является возбуждение атома на последней ступени в автоионизационное состояние. Для многоэлектронных атомов такие состояния могут быть достаточно узкими, и сече-

ние такого автоионизационного перехода может на несколько порядков превышать сечение нерезонансной ионизации^{65, 66}. С другой стороны, даже при весьма малой ширине автоионизационного резонанса, например, $\Delta\nu_{a.и} \simeq 0,01 \text{ см}^{-1}$, время жизни его по отношению к распаду в континуум составляет несколько нс. Следовательно, при возбуждении такого состояния лазерным импульсом с типичной длительностью 10^{-8} с будет происходить его эффективное опустошение в течение лазерного импульса. Это обеспечивает достижение предельного абсолютного выхода ионизации $\beta = 1$.

Систематические исследования автоионизационных состояний стали возможными с разработкой методов ступенчатого возбуждения высоколежащих состояний атомов излучением лазеров с перестраиваемой частотой. Такие состояния представляют как практическую ценность для

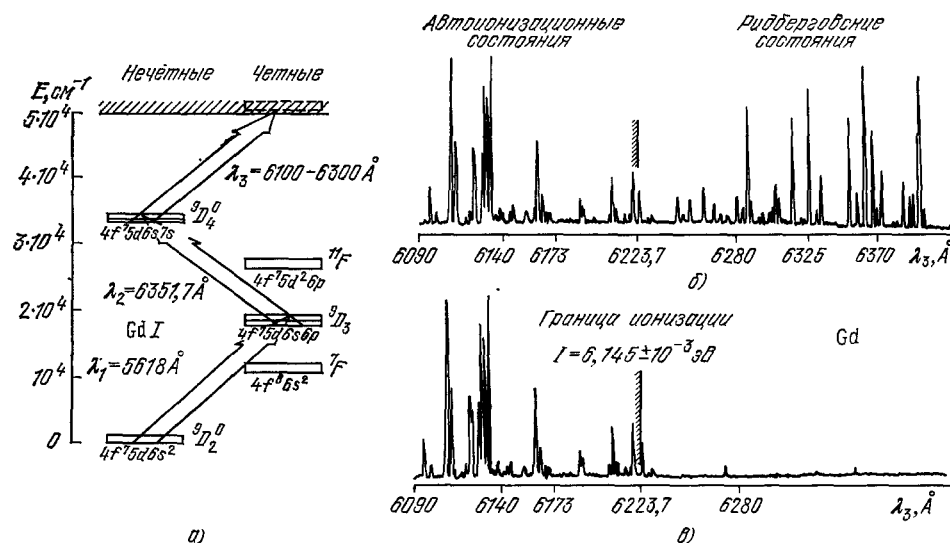


Рис. 27. Спектры ридберговских и автоионизационных состояний атома гадолиния ⁶⁷. а) Схема возбуждения атома Gd в ридберговские и автоионизационные состояния, б) спектр возбуждаемых состояний в импульсном электрическом поле напряженностью $E = 13$ кВ/см; в) то же в постоянном электрическом поле с $E = 30$ В/см.

повышения сечения фотоионизации атомов лазерным излучением, так и самостоятельный научный интерес для понимания, идентификации и расшифровки атомных спектров многоэлектронных атомов. Поскольку автоионизационные состояния исследованы лишь для небольшой части элементов, эксперименты по их поиску и изучению являются весьма актуальными.

В работе ⁶⁷ было проведено исследование автоионизационных состояний атома гадолиния и обнаружено состояние с временем жизни около 10^{-9} с. Атомы гадолиния в пучке возбуждались в состояния, лежащие выше границы ионизации на 300 см^{-1} , в три ступени излучением импульсных лазеров на красителях (рис. 27, а). На рис. 27, б, в представлены спектры ридберговских и автоионизационных состояний Gd, полученные в импульсном электрическом поле (б) и в постоянном поле (в). Как видно из рисунка, амплитуды ридберговских и автоионизационных резонансов близки. Особенно выделяется автоионизационный максимум с $\lambda_3 = 6133 \text{ \AA}$. На рис. 28 представлена запись этого участка спектра с высоким разрешением. В этом эксперименте возбуждение атома на третьей ступени осу-

ществлялось перестраиваемым давлением лазером на красителе с шириной линии излучения $\Delta\nu_L = 0,03 \text{ см}^{-1}$. Ширина автоионизационного резонанса на полувывсоте, включая ширину линии возбуждения лазера, составляет около $0,07 \text{ см}^{-1}$. Это дает оценку времени жизни состояния $\tau_{a.и} \approx 0,5 \text{ нс}$. Сечение этого автоионизационного перехода, измеренное по методу насыщения, предложенному в ⁵², равно $\sigma_{a.и} = 0,8 \cdot 10^{-15} \text{ см}^2$.

Данный эксперимент показал, что в спектре многоэлектронных атомов возможно существование узких автоионизационных состояний с временем жизни порядка 10^{-9} с . Сечение возбуждения таких состояний

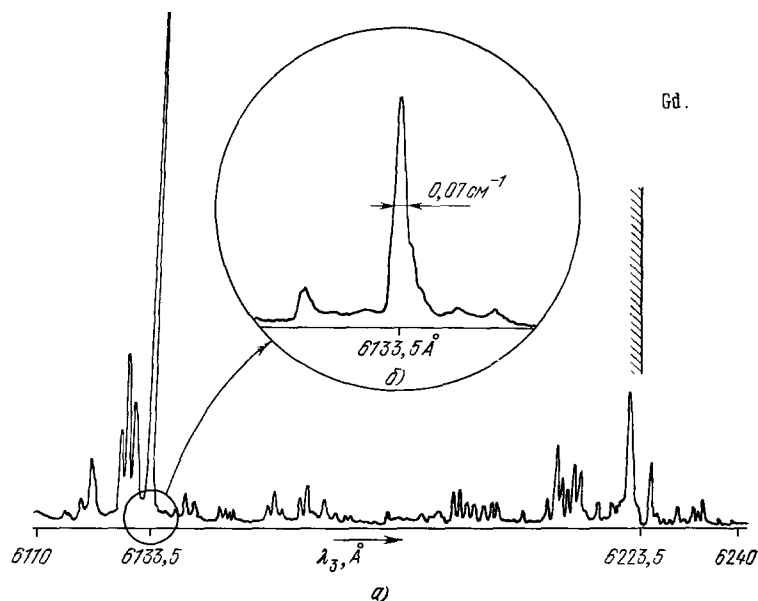


Рис. 28. Спектр автоионизационных состояний Gd, полученный с разрешением $\Delta\nu_L^{(3)} = 1 \text{ см}^{-1}$ (a), и запись наиболее интенсивного резонанса с разрешением $\Delta\nu_L^{(3)} = 0,03 \text{ см}^{-1}$ (б) ⁶⁷.

сравнимо с сечением возбуждения ридберговских состояний, и эти долгоживущие автоионизационные состояния могут эффективно использоваться в методе ступенчатой ионизации атомов лазерным излучением. При этом не требуется ионизирующее электрическое поле, а постоянный канал распада позволяет ионизовать в течение лазерного импульса практически все атомы, находящиеся в основном состоянии.

Каждая из рассмотренных схем ионизации имеет как свои преимущества, так и недостатки. Метод нерезонансной ионизации позволяет ионизовать за время лазерного импульса практически все атомы, взаимодействующие с лазерным излучением. Однако этот метод неприменим, если требуется высокая частота следования импульсов. Метод ионизации высоковозбужденных атомов электрическим полем снижает требования к энергетике ионизирующего лазерного излучения на несколько порядков. Это позволяет осуществлять эффективную ионизацию атомов в атомном пучке, когда требуется высокая частота следования импульсов. При работе с пучком достигается максимальное спектральное разрешение, а использование многоступенчатой схемы возбуждения позволяет получить необычайно высокую селективность ионизации. Правда, таким методом можно возбудить в ридберговское состояние только около половины взаимодействующих с излучением атомов. В результате будет ио-

низован лишь каждый второй атом. Однако этот фактор не всегда является существенным. Метод ионизации атомов через узкие автоионизационные состояния является достаточно перспективным, поскольку он представляет собой своего рода синтез предыдущих способов ионизации — сохраняется резонансный характер ионизации при наличии постоянного канала распада состояния. Однако недостатком этого метода является отсутствие таких состояний для значительного числа элементов. Наиболее универсальным и доступным методом ионизации атомов с целью их детектирования является селективное возбуждение ридберговских состояний лазерным излучением и их ионизация электрическим полем.

При обсуждении кинетики многоступенчатого возбуждения атомов, в частности, распределения заселенности атомов по возбужденным уровням, мы ограничились простейшим приближением скоростных уравнений, когда в стационарном случае справедливо соотношение (3.2). Обсуждение нестационарного поведения атомов, а также роли когерентных эффектов можно найти в обзорах⁵⁵. Когерентные эффекты типа «л-импульса» могут быть использованы для полного опустошения нижнего состояния. Правда, в этом случае требуется строгий контроль не только за частотой, но и за интенсивностью лазерных импульсов. Это существенно осложняет использование подобных эффектов на практике. Поэтому роль когерентных эффектов в процессе ступенчатого возбуждения и фотоионизации атомов экспериментально еще не исследована.

б) Источники фона и его дискриминация

При фотоионизационном детектировании атомов с высокой чувствительностью неизбежно возникает проблема ионного фона. Под этим подразумеваются ионы, не связанные с селективным воздействием лазерного излучения на детектируемые атомы. Такие ионы могут образовываться в регистрируемом объеме под влиянием либо внешних условий, либо условий эксперимента. Например, применение метода нерезонансной ионизации возбужденных атомов требует использования ионизирующих лазерных импульсов с высокой интенсивностью. Если детектирование осуществляется в буферном газе, то возможна многофотонная ионизация атомов или молекул газа таким интенсивным импульсом. Рассеяние лазерного излучения на окнах регистрационной камеры и попадание его на стенки также может привести к появлению посторонних электронов и ионов. Их возникновение обусловлено условиями эксперимента. Для предотвращения такой паразитной ионизации необходимы специальная обработка стенок камеры и выбор определенного буферного газа с очень малым сечением ионизации под действием лазерного излучения¹⁶. В этой связи особенно перспективно применение методов резонансной ионизации возбужденных атомов, использующих лазерное излучение умеренной интенсивности.

При осуществлении процесса детектирования в атомном пучке в вакууме значительный фон создается за счет тепловых ионов и электронов. Их источником является нагретая до высокой температуры печь, служащая для создания атомного пучка. Система нескольких диафрагм, находящихся под потенциалами разного знака и амплитуды, позволяет уменьшить уровень фона до одиночных ионов и электронов. Дальнейшая его дискриминация осуществляется с помощью техники стробирования сигнала. Такой способ позволяет при регистрации полезного сигнала эффективно избавиться и от ионов, образующихся в объеме регистрации под действием космического излучения.

Одним из путей дальнейшего подавления уровня ионного фона является применение схемы совпадений при одновременной регистрации с помощью электронных умножителей иона и электрона, образовавшихся в акте ионизации (рис. 29).

в) Селективность детектирования

Применение метода ступенчатой фотоионизации для детектирования атомов позволяет достичь очень высокой селективности (до 10^{19}) при регистрации атомов одного сорта на фоне большого числа атомов другого сорта⁶⁸. Это связано с тем, что частоты переходов на всех ступенях возбуждения сильно отличаются. Однако модификации одного и того же элемента, такие как изотопы, ядерные изомеры и т. д., у которых смещение атомных уровней энергии мало и определяется малым возмущением, обусловленным структурой ядра, могут быть возбуждены с гораздо меньшей селективностью. Это связано с неизбежным

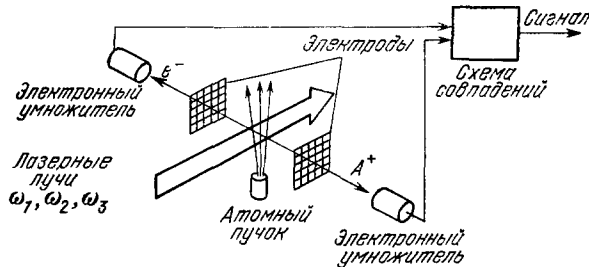


Рис. 29. Возможная схема одновременной регистрации иона и электрона, образовавшихся в акте ионизации, для дискриминации ионов и электронов постороннего происхождения⁷⁸.

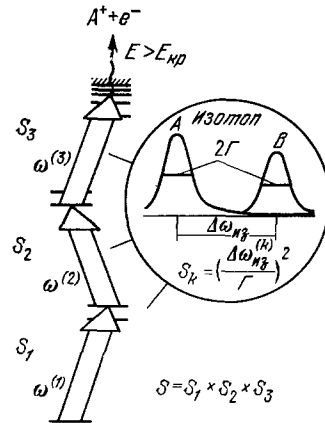


Рис. 30. Селективное трехступенчатое возбуждение атомов в атомном пучке с использованием изотопических сдвигов на каждой ступени⁶⁹.

поглощением на крыльях линий. Однако высокая селективность может быть достигнута и в этом случае, если использовать подходящую схему ступенчатого возбуждения атомов в ридберговские состояния⁶⁹.

Для некоторых атомов можно подобрать такую последовательность квантовых переходов, что смещение будут испытывать два или три промежуточных уровня (рис. 30). Поскольку процессы возбуждения на каждой ступени независимы, то селективность всего процесса возбуждения и ионизации атома будет равна произведению селективностей возбуждения на каждой ступени.

В атомах некоторых элементов, например, щелочных металлов, из-за изотопного эффекта заметно смещается только основное s -состояние, а p -состояние смещается на порядок меньше. Изотопическое смещение остальных состояний пренебрежимо мало. Поэтому здесь селективной оказывается только первая ступень возбуждения. Однако у многих элементов изотопическое смещение обнаруживается на всех трех ступенях. Примером этому являются элементы групп лантана и актиния — Yb, Gd, U.

В случае возбуждения атомов в атомном пучке (см. рис. 30) монохроматическим лазерным излучением поглощение на крыле линии

описывается формулой

$$\gamma(\omega) = \frac{\Gamma}{\pi[(\omega - \omega_0)^2 + \Gamma^2]}, \quad (3.12)$$

где ω_0 — центральная частота, Γ — радиационная полуширина линии на полувысоте. Так как обычно Γ много меньше изотопического смещения $\Delta\omega_{из}$, то возбуждение одного изотопа осуществляется на крыле линии поглощения другого изотопа. Максимальная селективность возбуждения одного из изотопов при расстоянии между центрами их линий $\Delta\omega_{из}$ будет равна

$$S = \left(\frac{\Delta\omega_{из}}{\Gamma} \right)^2. \quad (3.13)$$

При возбуждении атома в три ступени результирующая селективность увеличивается до значения

$$S = S_1 \times S_2 \times S_3, \quad (3.14)$$

где S_i — селективность возбуждения на i -й ступени.

Если ширина спектра лазерного излучения $\Delta\omega_{л}$ больше радиационной ширины линии поглощения, то реальная селективность будет меньше и составит

$$S = \frac{2\Delta\omega_{из}^2}{\Gamma \cdot \Delta\omega_{л}}. \quad (3.15)$$

Многоступенчатое изотопически-селективное возбуждение дает возможность достигнуть достаточно высокой селективности даже в случае перекрывающихся доплеровски-уширенных линий изотопов ⁶⁹. Действительно, пусть возбуждение осуществляется коллимированной световой волной с шириной спектра $\Delta\omega_{л} \ll \Gamma$. Такая бегущая волна с частотой ω_1 возбуждает только атомы в узких интервалах проекции их скорости на направление световой волны \mathbf{k} (см. детали в ⁷⁰):

$$|\mathbf{k}_1 \mathbf{v}_A - \omega_1 + \omega_{OA}| \ll \Gamma \quad \text{и} \quad |\mathbf{k}_1 \mathbf{v}_B - \omega_1 + \omega_{OB}| \ll \Gamma, \quad (3.16)$$

где $|\mathbf{k}_1| = \omega_1/c$ — волновой вектор поля на первой ступени; \mathbf{v}_A и \mathbf{v}_B — скорость атомов изотопов A и B ; ω_{OA} и ω_{OB} — центры доплеровски-уширенных линий поглощения этих изотопов.

Так как $\Delta\omega_{л} \gg \Delta\omega_{из}$, то какой-либо заметной селективности после первой ступени возбуждения не возникает. Однако форма линии поглощения для коллинеарной монохроматической световой волны на второй и третьей ступенях резко изменяется. Если изотопический сдвиг превышает однородную ширину ($\Delta\omega_{из} > 2\Gamma$), то форма линии поглощения на второй ступени (рис. 31) имеет два отчетливых резонанса, принадлежащих различным изотопам со скоростями движения

$$\mathbf{k}_1 \mathbf{v}_A \simeq \omega_1 - \omega_{OA} \quad \text{и} \quad \mathbf{k}_1 \mathbf{v}_B \simeq \omega_1 - \omega_{OB}. \quad (3.17)$$

Если частота лазерного излучения ω_2 настроена точно на один из резонансов, то селективность возбуждения на второй ступени определяется выражением типа (3.13). Аналогичная ситуация возникает при правильной настройке частоты излучения ω_3 на вершину возникающего единственного узкого резонанса на третьей ступени.

Таким образом, результирующая селективность трехступенчатого возбуждения тремя коллинеарными бегущими волнами с правильно выбранными частотами ω_1 , ω_2 , ω_3 может достигать значения

$$S = S_2 \times S_3. \quad (3.18)$$

Несмотря на отсутствие селективности возбуждения на первой ступени, можно получить высокую селективность за счет последующих ступеней даже без использования коллимированного атомного пучка.

При благоприятных условиях, когда изотопическое смещение велико, а ширина линии 2Γ мала, селективность возбуждения на одной

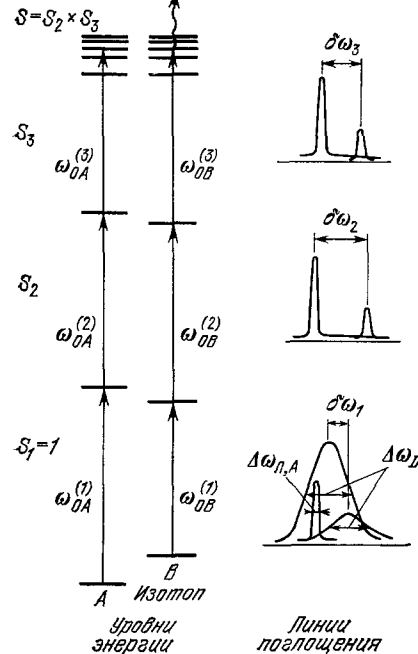


Рис. 31. Селективное трехступенчатое возбуждение в условиях доплеровского уширения линий $\Delta\omega_D$ с селективностью на второй и третьей ступенях ⁶⁹.

$\Delta\omega_{л,А}$ — ширина линии лазера или атомного перехода ⁶⁹.

должна быть меньше обратной селективности возбуждения на первой ступени:

$$\sigma_{\text{рез. пер}} N_A v_0 \tau_1 \leq \frac{1}{S_1}, \quad (3.19)$$

где $\sigma_{\text{рез. пер}}$ — сечение резонансной передачи возбуждения. Для сохранения селективности $S_1 \simeq 10^6$ допустимая плотность атомов при $\sigma_{\text{рез. пер}} = 10^{-13} \text{ см}^2$, $\tau_1 = 10^{-8} \text{ с}$ и $v_0 = 10^4 \text{ см/с}$ составляет величину $N_A \leq 10^{11} \text{ см}^{-3}$. Легко видеть, что резонансная перезарядка может уменьшить селективность разделения изотопов, но не снижает полную селективность детектирования редкого изотопа.

Таким образом, рассмотренные методы существенно повышают селективность детектирования и позволяют регистрировать одиночные атомы определенного изотопа среди $10^{13} \div 10^{18}$ атомов других изотопов.

г) Обсуждение экспериментов

Эксперименты по селективной ступенчатой фотоионизации атомов, направленные на достижение максимального абсолютного выхода фотоионизации и детектирование одиночных атомов, выполнены для всех трех

ступени может достигать 10^6 , а на трех ступенях — 10^{18} . В качестве примера рассмотрим трехступенчатое возбуждение изотопов иттербия 174 и 176. На первой ступени ($\lambda_1 = 555,6 \text{ нм}$) $\Delta v_{\text{из}}^{(1)} (174-176) = 0,032 \text{ см}^{-1} \text{ }^{71}$, $\Gamma_1 = 0,6 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$. Так как вторая и третья ступени связаны общим уровнем, испытывающим изотопический сдвиг, то для них изотопическое смещение будет одинаково и равно $|\Delta v_{\text{из}}^{(2)}| = |\Delta v_{\text{из}}^{(3)}| = 0,013 \text{ см}^{-1} \text{ }^{72}$, $\Gamma_2 = 0,5 \cdot 10^8 \text{ с}^{-1}$. При ширине лазерного излучения $\Delta\omega_{л,А} = 0,5 \cdot 10^8 \text{ с}^{-1}$ селективности возбуждения равны $S_1 = 6 \cdot 10^5$, $S_{2,3} = 2,7 \cdot 10^5$, а полная селективность $S = 4,4 \cdot 10^{16}$. Это означает, что один из изотопов может быть зарегистрирован с отношением сигнал/шум, равным единице, при относительном содержании этого изотопа, равном $N_B/N_A \approx 2 \cdot 10^{-17}$.

Следует отметить, что такая высокая селективность накладывает жесткое ограничение на концентрацию основного изотопа из-за процесса резонансной передачи возбуждения от атома на первом промежуточном уровне другому изотопу. Вероятность передачи возбуждения за время пребывания атома на промежуточном уровне τ_1

случаев: атомы в паре, буферном газе и атомном пучке. Рассмотрим их кратко.

1) **А т о м н ы й п а р.** В работе ⁵² экспериментально исследовалась двухступенчатая ионизация атомов рубидия при селективном возбуждении компонент дублета $6p^2P$ излучением перестраиваемого по частоте лазера на красителе ($\nu_1 = 23799$ или 23725 см^{-1}) и одновременной нерезонансной ионизации возбужденных атомов излучением рубинового лазера ($\nu_2 = 14403 \text{ см}^{-1}$) или излучением его второй гармоники ($\nu'_2 = 28806 \text{ см}^{-1}$). Возбуждение атомов рубидия осуществлялось в парах, плотность которых менялась в широких пределах вплоть до 10^{14} см^{-3} . Исследовались зависимости числа регистрируемых ионов от интенсивности возбуждающего и ионизирующего излучений, от концентрации атомов рубидия, от разности потенциалов на регистрирующих электродах. В эксперименте было получено насыщение по интенсивности ионизирующего излучения ($\nu_2 = 14403 \text{ см}^{-1}$), т. е. была осуществлена ионизация каждого возбужденного атома. Этот результат доказал возможность использования метода ступенчатой фотоионизации атомов лазерным излучением для эффективной ионизации атомов.

2) **А т о м ы в б у ф е р н о м г а з е.** Именно в таких условиях был выполнен первый успешный эксперимент по детектированию единичных атомов методом ступенчатой фотоионизации ¹⁶. Атомы цезия в буферном газе возбуждались в состояние $7^2P_{3/2}$ излучением импульсного лазера на красителе с ламповой накачкой. Этим же импульсом возбужденные атомы ионизовались. Первоначально была сделана оценка потока энергии лазерного импульса, необходимого для эффективной ионизации атома. Исходя из этого были выбраны режимы фокусировки лазерного излучения. Полученные зависимости сигнала ионизации от интенсивности лазерного излучения подтвердили достижение режима насыщения на ионизирующей ступени, подобно тому как это было сделано в эксперименте ⁵².

Особенностью эксперимента ¹⁶ является детектирование возникающих при ионизации электронов по разряду в газе. Ионизационная камера была заполнена смесью аргона и метана при давлении 100–200 тор и представляла собой газовый ионизационный пропорциональный счетчик с усилением порядка 10^4 . Атомы цезия диффундировали в буферном газе в область луча из цезиевого источника.

На рис. 32 представлено распределение амплитуды импульсов счетчика для случая, когда один атом цезия регистрировался за 20 лазерных импульсов. Для сравнения дано одноэлектронное распределение, полученное с помощью ртутной лампы. Наблюдаемые флуктуации в распределениях обусловлены статистикой счета импульсов. Близость этих двух

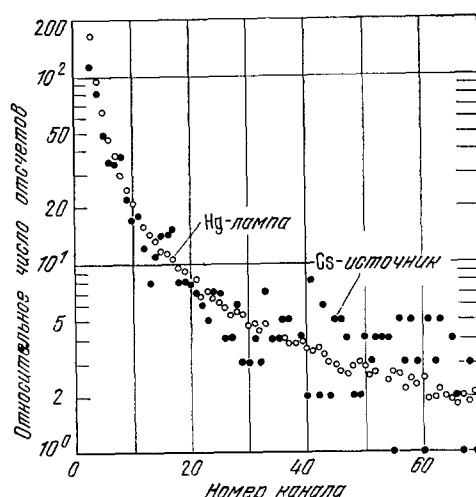


Рис. 32. Распределение амплитуды импульсов пропорционального счетчика для случая регистрации одного атома цезия за 20 лазерных импульсов ¹⁶.

Для сравнения приведено одноэлектронное распределение, полученное от некогерентного источника света.

распределений указывает на то, что чувствительность системы достаточна для устойчивой регистрации одного атома цезия, попавшего в лазерный луч. Объем зоны регистрации составлял $0,05 \text{ см}^3$.

В последующих экспериментах такой метод был успешно применен для детектирования атомов Cs, образующихся в результате деления ядер Cf^{252} .

Наряду с достоинством такого типа экспериментов из-за их простоты они обладают существенным недостатком из-за использования буферного газа, приводящего к ударному уширению линии поглощения и, следовательно, к исчезновению изотопического сдвига и сверхтонкого расщепления. Следствием этого является невысокая селективность обнаружения атомов изотопов одного и того же элемента. Тем не менее, этот способ может успешно использоваться при детектировании атомов в постороннем газе с концентрацией $10^{19} \text{ атом/см}^3$ ⁶⁸.

3) Атомы в пучке. В экспериментах с пучками наиболее целесообразно использовать метод резонансной ионизации из возбужденных состояний через ридберговские, либо через автоионизационные состояния. В этом случае можно реализовать режим высокой частоты повторения лазерных импульсов из-за умеренных требований к их энергетике. Используя такой метод ионизации, в работах^{12, 13, 74, 75} было осуществлено детектирование единичных атомов натрия и иттербия. Атомы элемента в пучке (рис. 33) возбуждались в ридберговские состояния ступенчатым образом излучением импульсных лазеров на красителях с перестраиваемой частотой генерации (длительность каждого импульса 7 нс, ширина спектра генерации $\Delta\nu_{\text{д}} \approx 1 \text{ см}^{-1}$).

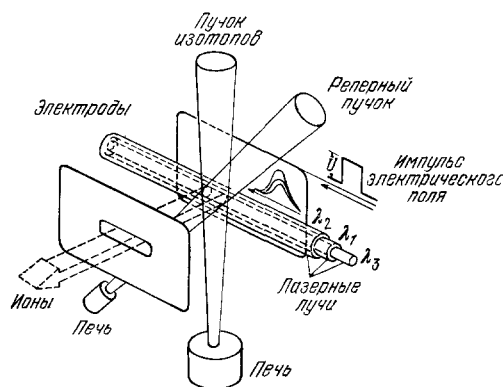


Рис. 33. Взаимное расположение атомных пучков, лазерных лучей и электродов в экспериментах по детектированию атомов в пучке⁷⁶.

Накачка всех лазеров на красителях осуществлялась одновременно одним азотным лазером с частотой следования импульсов 12 Гц. Атомы натрия возбуждались в две ступени, для иттербия применялась трехступенчатая схема возбуждения. Лазерные лучи пересекали атомный пучок между двумя электродами, на которые с задержкой 20—50 нс относительно лазерных импульсов подавался импульс электрического поля. Образующиеся ионы извлекались через щель в одном из электродов и регистрировались вторично-электронным умножителем (ВЭУ). Геометрия лазерных лучей, атомного пучка и щели позволяла извлекать из межэлектродного промежутка практически все ионы. В условиях эксперимента эффективность регистрации ионов вторично-электронным умножителем была близка к единице.

Для эффективного возбуждения атомов в высоколежащее состояние необходимо обеспечить насыщение всех используемых квантовых переходов. А напряженность импульсного электрического поля должна быть достаточной для ионизации ридберговских атомов с близкой к единице вероятностью. Только при выполнении этих двух условий будет реализован режим максимального выхода ионов. Поэтому в таком эксперименте важным является выбор главного квантового числа n ридберговского

состояния. Для эффективного возбуждения атомов в высоколежащее состояние необходимо обеспечить насыщение всех используемых квантовых переходов. А напряженность импульсного электрического поля должна быть достаточной для ионизации ридберговских атомов с близкой к единице вероятностью. Только при выполнении этих двух условий будет реализован режим максимального выхода ионов. Поэтому в таком эксперименте важным является выбор главного квантового числа n ридберговского

состояния. Сечение возбуждения атома на последней ступени сильно падает с увеличением главного квантового числа уровня ($\sigma_{\text{возб}} \sim n^{-3}$). С другой стороны, критическое поле, т. е. поле, в котором выход ионов близок к единице, с уменьшением n резко нарастает. Оптимальным является случай, когда сечение возбуждения высоколежащего состояния по возможности максимально, а напряженность электрического поля, необходимая для эффективной ионизации, сравнительно легко достигается в лабораторных условиях. Этому удовлетворяют, для натрия $13\ ^2D_{5/2}$ -состояние ($E_{\text{кр}} = 14,2$ кВ/см), а для иттербия состояние $17\ ^3P_2^0$ ($E_{\text{кр}} = 11,5$ кВ/см).

На рис. 34 приведены зависимости выхода ионов иттербия от плотности энергии импульсов лазеров первой, второй и третьей ступеней возбуждения (а — в) и напряженности импульсного электрического поля (г).

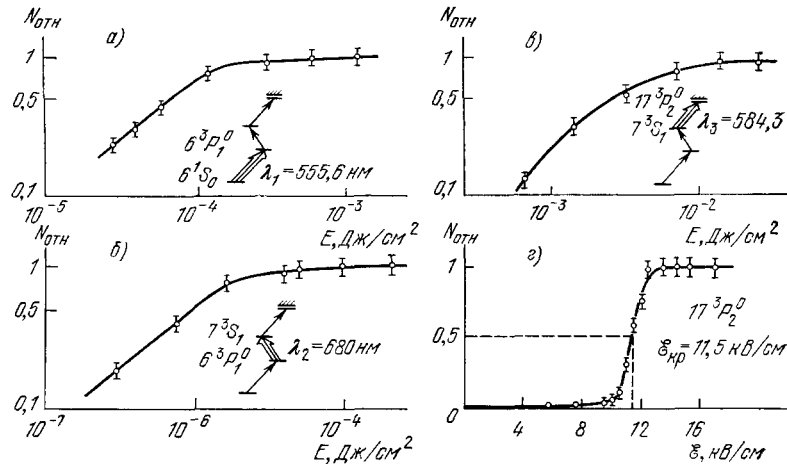


Рис. 34. Зависимости выхода ионов иттербия от плотности энергии импульсов лазеров первой, второй, третьей ступеней возбуждения (а — в — соответственно) и напряженности импульсного электрического поля (г) ¹³.

при возбуждении состояния $17\ ^3P_2^0$ (аналогичные зависимости были получены для натрия). Из выражения (3.2) следует, что при одновременном насыщении всех трех переходов в состояние $17\ ^3P_2^0$ возбуждается 5/12 всех атомов, находящихся в области взаимодействия с лазерным излучением. Таким образом, при оптимальных условиях эксперимента около половины атомов, находящихся в зоне регистрации в момент прихода лазерных импульсов, возбуждается в высоколежащее состояние, и каждый высоковозбужденный атом ионизуется.

В таком режиме была исследована зависимость ионного сигнала от температуры печи с иттербием (рис. 35, а). При понижении температуры сначала наблюдалось постепенное падение амплитуды сигнала, а затем возникала и его сильная нестабильность. Она была обусловлена флуктуациями числа атомов в объеме возбуждения. При малой плотности пучка такие флуктуации становятся сравнимыми со средним числом атомов в возбуждаемом объеме.

Плотность атомного пучка можно сделать столь низкой, что в подавляющем большинстве случаев в зоне регистрации будет находиться не более одного атома. В таком режиме счета ионов была исследована статистика появления атомов в зоне регистрации (см. рис. 35, б, в). Близость

полученного распределения к пуассоновскому позволила сделать вывод, что система детектирования точно регистрирует попадание атома в возбуждаемый объем в момент прихода туда лазерных импульсов.

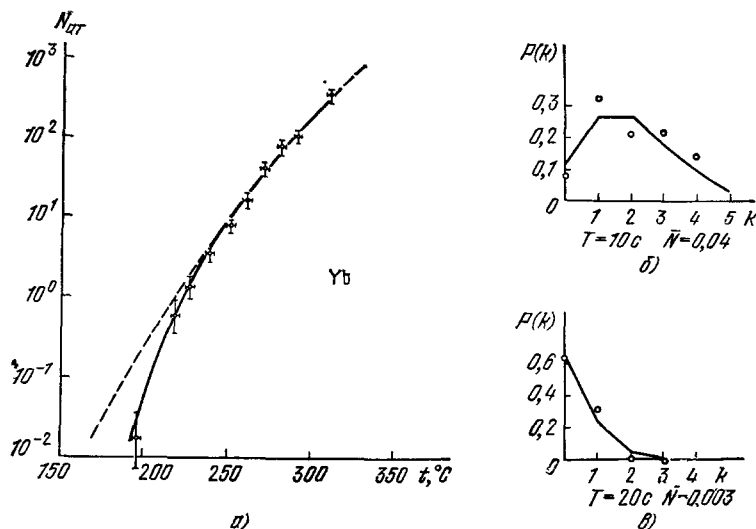


Рис. 35. Температурная зависимость ионного сигнала иттербия: флуктуации числа атомов в области возбуждения ¹³.

а) Зависимость выхода ионов иттербия от температуры печи в режиме максимального выхода ионов: штриховая кривая — расчет, сплошная кривая — эксперимент; б) распределение числа ионов иттербия, регистрируемых за время $T = 10$ с, при среднем числе ионов $\bar{k} = 3$ и среднем числе атомов в объеме возбуждения $\bar{N} = 0,04$; в) то же при $T = 20$ с, $\bar{k} = 0,35$, $\bar{N} = 0,003$.

Таким образом, рассмотренный метод ионизации ридберговских атомов электрическим полем, являясь универсальным, позволяет уже с существующими типами перестраиваемых лазеров на красителях с малой средней мощностью и практически на лабораторных установках проводить эффективное детектирование атомов с предельной чувствительностью.

д) Абсолютная чувствительность

Всю проблему детектирования единичных атомов можно условно разделить на три взаимосвязанные задачи:

- 1) накопление, хранение элемента и получение свободных атомов;
- 2) транспортировка атомов в область детектирования;
- 3) детектирование атомов с помощью лазерного излучения.

В рассмотренных выше примерах, по существу, была решена третья задача. От одиночного атома, взаимодействующего с лазерным излучением, с помощью различных способов ионизации и регистрации был получен селективный ионный сигнал, причем этот сигнал превосходил уровень шумов настолько, что можно было однозначно установить факт пролета атома через лазерный луч. Однако в этих экспериментах источниками свободных атомов являлись образцы, содержащие макроскопическое (весовое) количество элемента. К настоящему времени накопился большой круг как научных, так и практических задач, для решения которых необходима абсолютная чувствительность на уровне 10^3 — 10^6 атомов и даже менее. Поэтому особенно актуальным сейчас, применительно ко всей проблеме детектирования ультрамалых количеств вещества, является решение первых двух задач. Примером успешного поиска в этом направлении является работа ⁷⁶. В ней проведено исследование изото-

пической и сверхтонкой структуры перехода $6^1S_0 \rightarrow 6^3P_1$ иттербия при использовании образцов, содержащих около 10^{10} атомов какого-либо изотопа иттербия.

На рис. 36 показана схема приготовления таких образцов. Образцы готовились на ускорителе с масс-сепаратором ЛИЯФ АН СССР *) по методу имплантации ионов в металл. Танталовая мишень, нагретая до температуры 2000—3000 °С, облучается интенсивным пучком протонов. В результате ядерных реакций ядер мишени с протонами образуется почти весь ряд изотопов иттербия, в том числе и нестабильных. В ионном источнике продукты реакции ионизуются и после коллимации попадают в масс-сепаратор. В масс-сепараторе осуществляется пространственное разделение изотопов по массам, и ионы различных изотопов с энергией около 30 кэВ попадают в разные участки танталовой фольги толщиной 50 мкм. Ионы проникают в фольгу на глубину до 100 Å и нейтрализуются.

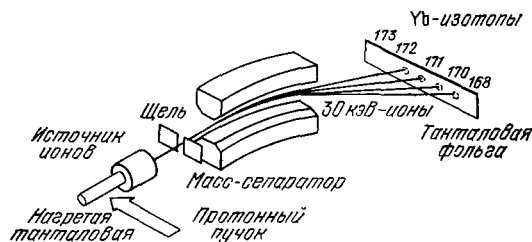


Рис. 36. Схема приготовления образцов с изотопами иттербия путем имплантации ионов в фольгу ^{76}Ta .

Атомы оказываются изолированными от внешней среды и при нормальных условиях долго сохраняются в фольге. Таким образом, методика имплантации ионов в фольгу является удобным способом накопления, хранения и транспортировки ультрамалого количества элемента. При этом, как уже говорилось, можно имплантировать и нестабильный изотоп. Современные масс-сепараторы позволяют получать потоки ионов 10^7 — 10^{11} с $^{-1}$. Такая производительность дает возможность сравнительно быстро накапливать 10^8 — 10^{12} атомов нестабильного изотопа. Используя эти же методы детектирования в режиме «on-line», можно получить спектральную информацию от

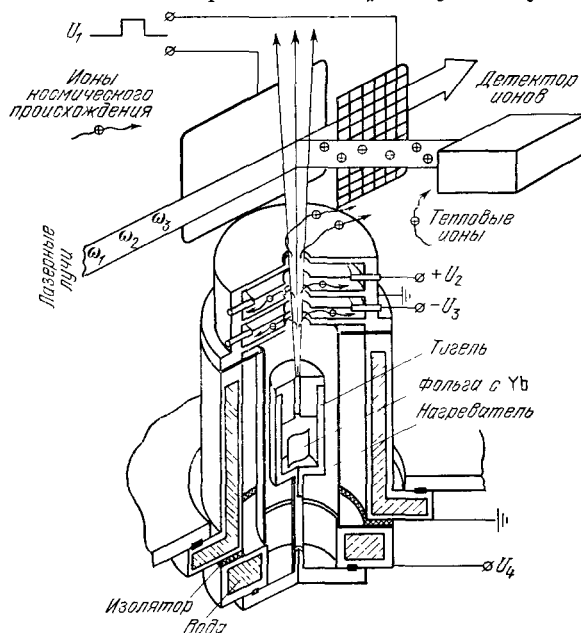


Рис. 37. Конструкция высокотемпературной печи для создания атомного пучка элемента, имплантированного в фольгу ^{76}Ta .

изотопов с временем жизни несколько секунд и менее.

В эксперименте применялась танталовая фольга, в которую предварительно имплантировалось описанным способом около 10^{10} ионов стабильного изотопа иттербия. При нагревании такой фольги свыше 1200 °С происходит заметная диффузия атомов иттербия из тантала. Атомный

*) Описываемый эксперимент был выполнен совместно с группой проф. Э. Е. Берловича (ЛИЯФ АН СССР).

пучок из образовавшихся свободных атомов иттербия формировался следующим образом. Облученная на ускорителе фольга помещалась в танталовый тигель с узким цилиндрическим каналом (рис. 37). Тигель располагался внутри танталовой трубки, нагреваемой электрическим током. Конструкция печи при небольших размерах позволяла доводить температуру тигля до 1800 °С. Свободные атомы после коллимации узким

каналом образовывали хорошо направленный атомный пучок.

Методика эксперимента и лазерная установка полностью аналогичны описанным в предыдущем разделе. Реперный атомный пучок (см. рис. 33) использовался для настройки лазерного излучения на соответствующие переходы. Это гарантировало резонанс с линией поглощения любого из изотопов, поскольку ширина спектра лазеров $\Delta\nu_{\text{л}} = 1 \text{ см}^{-1}$ гораздо больше ширины изотопической и сверхтонкой структуры переходов иттербия. Измерения плотности энергии показали, что согласно кривым насыщения (см. рис. 34), осуществляется режим, когда практически каждый третий атом, попавший в область возбуждения в момент прихода туда лазерных импульсов, ионизируется. В условиях эксперимента фоновый сигнал составлял 2—3 импульса ВЭУ за три минуты. Затем проводился нагрев тигля с фольгой, содержащей один из изотопов иттербия. Регистрация селективного сигнала

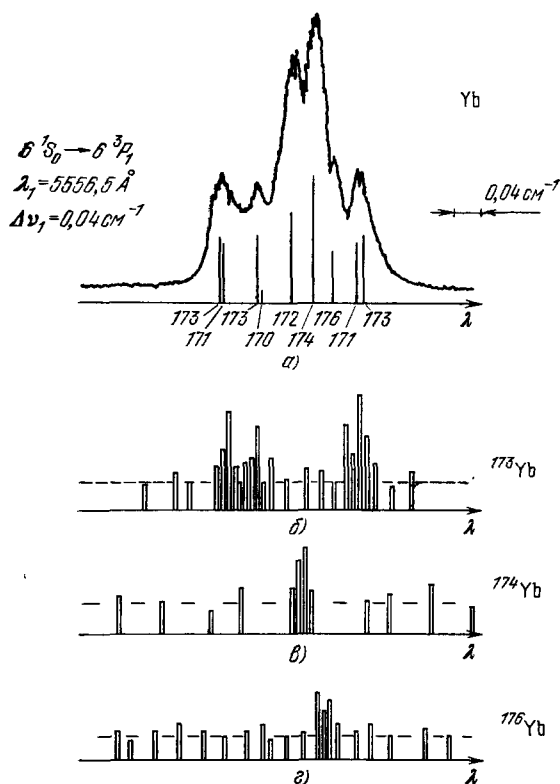


Рис. 38. Сверхтонкая и изотопическая структура перехода $6^1S_0 \rightarrow 6^3P_1$ Yb I 78 .

а) Полученная с разрешением $0,04 \text{ см}^{-1}$ для реперного пучка иттербия естественного изотопического состава; б) — в) — то же для моноизотопов ^{173}Yb , ^{174}Yb , ^{176}Yb , испаряемых из фольги, содержащей около 10^{10} атомов изотопа.

ла показала, что оптимальной областью температур является 1300—1400 °С, когда отношение сигнал — шум не менее трех в течение 20 мин. Такое время достаточно для прописывания узкополосным лазером структуры одного из переходов. Для этой цели на первой ступени возбуждения использовался плавное перестраиваемый давлением лазер на красителе с шириной линии генерации $\Delta\nu_{\text{л}} \leq 0,04 \text{ см}^{-1}$.

На рис. 38, а представлена зависимость ионного тока от длины волны лазера первой ступени для реперного пучка, образованного испарением иттербия природного изотопического состава. Вертикальные линии указывают положение линий поглощения моноизотопов иттербия. Затем при закрытом реперном пучке осуществлялся нагрев тигля с фольгой, и проводился новый цикл перестройки длины волны лазера. Поскольку плотность исследуемого изотопного атомного пучка очень низка, то регистрация ионного сигнала сводилась к детектированию отдельных

ионов в процессе сканирования частоты лазера. Типичные спектры в виде одиночных импульсов, полученные для разных изотопов, представлены на рис. 38 (б, в, г). Пунктирные линии соответствуют уровню полного фона. Вид спектров позволяет однозначно идентифицировать по ним изотопы иттербия ^{173}Yb , ^{174}Yb , ^{176}Yb .

По результатам эксперимента можно было оценить минимальное количество атомов, необходимое для регистрации полного спектра, коэффициент выхода атомов из фольги и тигля. Рис. 39 иллюстрирует оценку абсолютной чувствительности метода в условиях описанного эксперимента. Для устойчивой регистрации одного разрешаемого спектрального

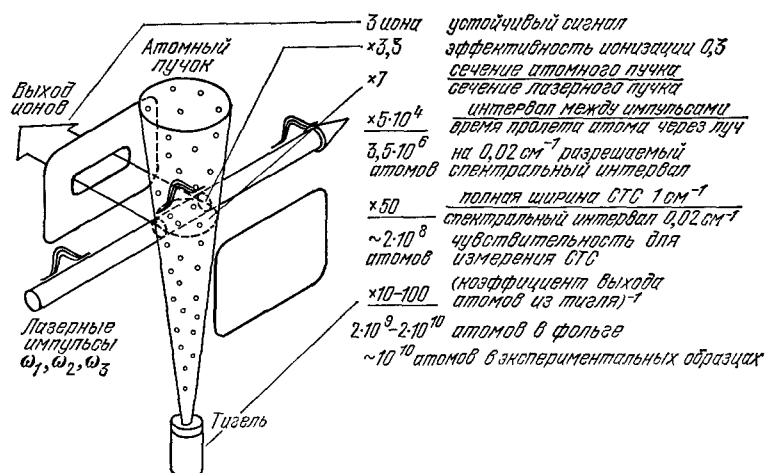


Рис. 39. К оценке абсолютной чувствительности системы детектирования атомов в пучке 78 .

интервала было достаточно трех ионов. При вероятности ионизации 0,3 для получения трех ионов необходимо 10 атомов. Зона регистрации захватывала лишь $1/7$ часть от сечения атомного пучка. При скорости атомов в пучке $5 \cdot 10^4 \text{ см/с}$ и диаметре лазерного луча 1 мм скважность между лазерными импульсами для перехвата всех атомов должна быть в $5 \cdot 10^4$ раз меньше скважности, используемой в эксперименте. Таким образом, для записи одного спектрального интервала требовалось $3,5 \times 10^6$ атомов, вылетевших из тигля. Для регистрации полного спектра в интервале 1 см^{-1} с разрешением $0,02 \text{ см}^{-1}$ необходимо 50 спектральных интервалов, т. е. в конечном счете $2 \cdot 10^8$ атомов в атомном пучке. В эксперименте для каждого из образцов фольги ($\sim 10^{10}$ атомов иттербия) было получено 3—4 спектра, т. е. на каждый цикл приходилось $\sim 3 \cdot 10^9$ атомов. Следовательно, коэффициент выхода атомов из фольги и тигля равнялся 0,07, что является вполне реальной величиной.

Этот эксперимент показал, что методика детектирования в атомном пучке, образованном диффундирующими из фольги атомами элемента, может успешно применяться с лазерами на красителях с небольшой частотой повторения импульсов. При этом могут быть получены спектры элементов, доступных в количестве $10^9 \div 10^{10}$ атомов. Чувствительность метода может быть радикально повышена, если использовать для накачки лазеров на красителях лазер на парах меди с частотой повторения импульсов 10—20 кГц. Это позволит ионизовать практически каждый второй атом, пересекающий зону возбуждения. При улучшении геометрии схемы, для измерения спектра СТС будет достаточно 10^5 — 10^6 атомов в фольге.

е) Дополнительные возможности

В фотоионизационном методе детектируемый атом конвертируется в ион. Это является и преимуществом, и недостатком метода. В тех задачах, где необходимо дальнейшее исследование и накопление обнаруженных атомов, такая конверсия является дополнительной возможностью, так как с помощью электромагнитного поля можно легко управлять движением ионов, выводить их из зоны регистрации, накапливать и т. д. С другой стороны, такой метод наблюдения является разрушающим и потому существенно затрудняет повторное взаимодействие атома с лазерным полем, как это достигается, например, во флуоресцентном методе. Если осуществить способ циклической перезарядки иона и возвращения атома в лазерное поле, то можно, в принципе, устранить этот, пожалуй, единственный, недостаток фотоионизационного метода. Здесь имеется несколько возможностей. Например, ион, образовавшийся в акте ионизации, ускоряется электрическим полем и проходит пленку детектора. По вторичной эмиссии из пленки осуществляется регистрация иона. Сам же ион системой электрических и магнитных полей возвращается в область источника, где осуществляется его перезарядка (нейтрализация). Появившийся атом снова попадает в лазерное поле, ионизуется и весь процесс повторяется. Это позволяет также ввести в систему детектирования новую частоту — частоту циклическости обращения атома в ион и обратно, и тем самым существенно снизить фон за счет ионов постороннего происхождения.

4. ДЕТЕКТИРОВАНИЕ АТОМОВ МЕТОДОМ ОТКЛОНЕНИЯ

В основу метода детектирования атома может быть также положено изменение траектории движения атома при взаимодействии с лазерным полем (см. рис. 1, в). Здесь имеется, по крайней мере, две возможности. Во-первых, лазерное поле может изменить квантовое состояние атома и тем самым повлиять на траекторию его движения во внешних полях. Во-вторых, при многократном переизлучении фотонов атом может изменить направление движения из-за эффекта отдачи. Возможны также комбинации этих методов с флуоресцентным и фотоионизационным методами.

а) Отклонение атомов в магнитном поле

Селективное лазерное возбуждение атома в определенное квантовое состояние из основного состояния изменяет его квантовые числа, что может проявиться в изменении характера его движения во внешних электрическом и магнитном полях. Другими словами, после лазерного возбуждения атом может изменить траекторию своего движения, что можно весьма эффективно использовать для детектирования единичных атомов. К настоящему времени успешно реализован один из вариантов такого подхода, основанный на перераспределении атомов по магнитным подуровням при лазерном возбуждении и последующем «магнитном детектировании» оптически ориентированных атомов.

Идея «магнитного детектирования» атомов восходит еще к работам Штерна — Герлаха. Она состоит в том, что в магнитном поле определенной конфигурации, например, в шестиполюсном магните происходит отклонение атомов в соответствии с их магнитным моментом. Если лазерное излучение способно изменить магнитный момент атома, то этот эффект можно использовать для селективного оптического детектирования атомов. Применение такого подхода в задаче оптического детектирования

атомов обсуждалось еще в работе ⁷⁷. Но только с созданием непрерывных лазеров на красителях с перестраиваемой частотой он был практически реализован в работах ¹⁴, ⁷⁸, ⁷⁹. В этих работах был развит метод лазерной спектроскопии высокого разрешения атомов Na в пучках. Он был успешно применен для измерения сверхтонкой структуры и изотопических сдвигов радиоактивных изотопов Na. Схема эксперимента показана на рис. 40. Радиоактивные изотопы ²¹Na, ²²Na, ²⁴Na, ²⁵Na получались путем бомбардировки алюминиевой мишени протонами с энергией 150 МэВ

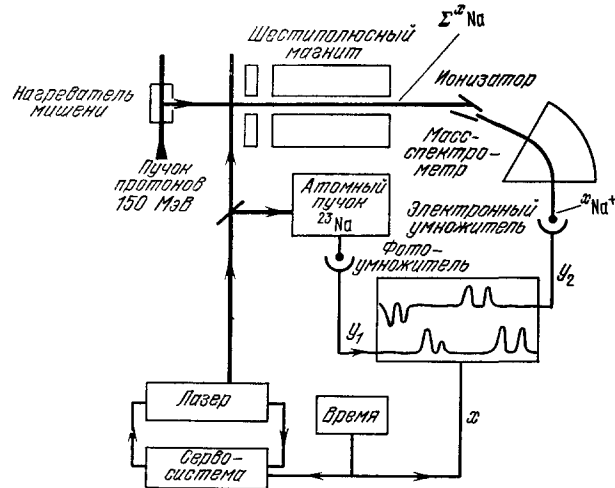


Рис. 40. Схема экспериментальной установки для оптического детектирования радиоактивных атомов Na на одной линии с ускорителем методом магнитного отклонения оптически-ориентированных атомов ¹⁴, ⁷⁹.

в результате ядерной реакции ²⁷Al (p, Зр × n) Na. Атомный пучок формировался при испарении мишени в процессе непрерывного облучения протонами. Полный поток радиоактивных атомов Na в пучке составлял величину 10^8 с⁻¹. В случае атомов Na основное состояние расщеплено на два подуровня сверхтонкой структуры, например, с $F = 2$ и $F = 1$ для стабильного изотопа. В сильном магнитном поле эти два подуровня расщепляются снова, так что возникает две одинаково заселенные группы подуровней, соответствующие $m_j = \pm 1/2$. Шестиполюсный магнит обладает способностью фокусировать атомы на магнитном подуровне $m_j = +1/2$ в основном состоянии, и, наоборот, дефокусировать атомы на магнитном подуровне $m_j = -1/2$. Резонансное лазерное излучение изменяет распределение заселенностей этих подуровней, что проявляется в числе сфокусированных атомов на подуровнях с $m_j = +1/2$, которые попадают на ионизационный детектор.

В эксперименте ¹⁴ достигалось уверенное измерение сверхтонкой структуры радиоактивных изотопов атомов Na при интенсивности пучка 10^8 атом/с (рис. 41). Плотность атомов в области взаимодействия с лазерным лучом, вероятно, лежала в диапазоне $1-10^2$ атом/см³. Для уверенного измерения сверхтонкой структуры отдельных изотопов Na одновременно осуществлялось разделение изотопов по массам, т. е. комбинация метода с масс-спектрометром.

С помощью селективного лазерного возбуждения можно реализовать и другие методы отклонения атомов с целью их селективного детектирования. Например, можно осуществлять селективное ступенчатое возбуж-

дение атомов в ридберговские состояния, в которых они, в отличие от атомов в нижних состояниях, имеют очень высокую поляризуемость⁶⁶. Поляризуемость атома α пропорциональна n^{*6} , где n^* — эффективное

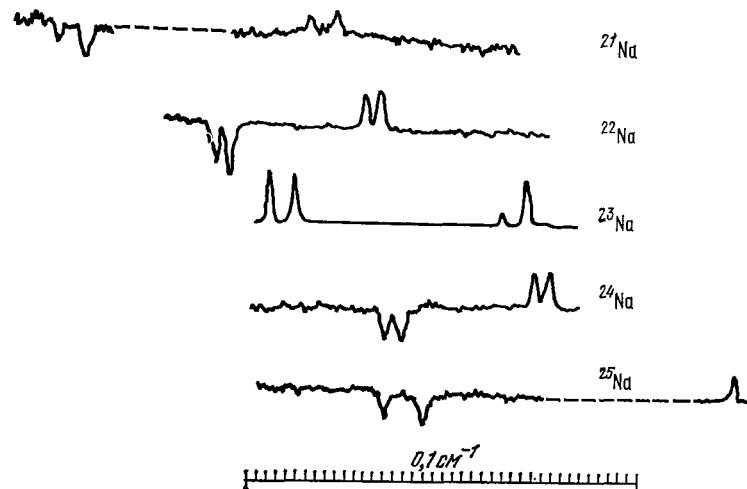


Рис. 41. Сверхтонкая структура и изотопные сдвиги D_1 -линии радиоактивных изотопов Na, полученных на установке, изображенной на рис. 40^{14, 79}.

Спектр каждого изотопа измерен независимо по отношению к спектру стабильного изотопа ^{23}Na и приведен на общей шкале волновых чисел.

главное квантовое число. Такие высоковозбужденные атомы должны испытывать очень сильное отклонение в пространственно-неоднородном электрическом поле умеренной напряженности.

б) Отклонение атомов резонансным световым давлением

При многократном переизлучении фотонов из резонансного коллимированного лазерного луча (см. гл. 2) атом неизбежно испытывает отклонение траектории из-за эффекта отдачи. Управление движением атомов с помощью лазерного излучения сейчас является актуальной областью исследований, так как принципиально позволяет охладить атомы и хранить их в световом поле длительное время, т. е. реализовать режим детектирования, изображенный на рис. 2, г. Этой проблеме посвящены специальные обзоры^{80, 81}, к которым мы отсылаем заинтересованного читателя. Здесь же мы кратко рассмотрим простейший случай управления движением — отклонение траектории, которое принципиально также можно использовать для детектирования атомов.

Пусть атом поглощает резонансное излучение из коллимированного светового луча и затем переизлучает его изотропно. Тогда в направлении светового луча на атом будет действовать сила

$$F_{\text{сп}} = \frac{I\sigma}{c} (|a_1|^2 - |a_2|^2), \quad (4.1)$$

где I — интенсивность излучения, σ — сечение резонансного поглощения, $|a_i|^2$ — вероятность нахождения атома на i -м уровне перехода, находящегося в резонансе со световым полем. Первый член в выражении (4.1) соответствует, очевидно, поглощению фотона атомом в состоянии «1», а второй член — стимулированному излучению фотона атомом в сос-

тоянии «2» в ту же самую волну. В режиме сильного насыщения квантового перехода, когда в среднем $|a_i|^2 \approx 1/2$, стимулированное испускание из-за противоположного знака момента отдачи почти точно компенсирует силу за счет поглощения. Разность вероятностей в (4.1) стремится к величине:

$$(|a_1|^2 - |a_2|^2) \rightarrow (|a_1|_0^2 - |a_2|_0^2) \left(1 + \frac{I}{I_{\text{нас}}}\right)^{-1}, \quad (4.2)$$

где $|a_i|_0^2$ — начальная относительная заселенность i -го состояния, $I_{\text{нас}}$ — интенсивность насыщения квантового перехода, которая существенно определяется скоростью релаксации возбужденного атома из состояния «2» в исходное состояние «1». При $I \gg I_{\text{нас}}$ действующая на атом сила стремится к постоянному значению

$$F_{\text{сн}}^{\text{max}} = \frac{\hbar\omega\Gamma}{2c}. \quad (4.3)$$

Физический смысл выражения (4.3) очень прост. За счет каждого переизлучения фотона атом получает момент $\hbar\omega/c$. Число таких переизлучений определяется скоростью релаксации Γ атома в основное состояние, а множитель $1/2$ возникает за счет того, что атом в среднем проводит в основном состоянии только половину времени.

Если атом перпендикулярно пересекает световой луч диаметром d в течение времени $\tau_{\text{пр}} = d/v_0$, то в результате у него появляется в направлении световой волны скорость Δv и он отклоняется на угол $\Delta\varphi$:

$$\Delta\varphi = \frac{\Delta v}{v_0} = \frac{\Gamma d}{2c} \cdot \frac{\hbar\omega}{Mv_0^2} \simeq \frac{\Gamma d}{2c} \frac{\hbar\omega}{kT_0}, \quad (4.4)$$

где v_0 — средняя скорость атома, определяемая температурой T_0 источника атомного пучка. Для разрешенных переходов с $\Gamma = 10^8 \text{ с}^{-1}$, $d = 1 \text{ см}$, $T_0 = 10^3 \text{ К}$ и $\hbar\omega = 2 \text{ эВ}$, атом, пересекая световой луч, может совершить 10^3 — 10^4 переизлучений (см. гл. 2) и отклониться на угол $\Delta\varphi \approx 0,04$ рад, который вполне наблюдаем. Очевидно, что для уверенного наблюдения необходимо, чтобы угловая расходимость самого атомного пучка была гораздо меньше угла фотоотклонения.

Сила спонтанного резонансного светового давления была экспериментально изучена в работах ^{82–84} по фотоотклонению атомов Na в пучке, освещаемых коллимированным лучом Na лампы ⁸², ⁸⁴ или перестраиваемого лазера на красителе ⁸³. В этих экспериментах не был реализован режим многократного циклического взаимодействия атомов с лазерным излучением и поэтому атомы отклонялись на очень малый угол.

Сегодня этот эксперимент может быть существенно улучшен за счет реализации режима циклического взаимодействия, описанного в гл. 2. Гораздо лучшие результаты были получены в экспериментах ⁸⁵, ⁸⁶, в которых наблюдалось изотопически-селективное фотоотклонение атомов Ba при взаимодействии лазерного луча с переходом $6s^2 \ ^1S_0 \rightarrow 6s6p \ ^1P_1$ на 553,5 нм. Время жизни возбужденного состояния 1P_1 $\tau_{\text{сл}} = 8,4 \text{ нс}$, и таким образом, в течение времени пролета атомов Ba через луч $\tau_{\text{пр}} \approx 10^{-4} \text{ с}$ атом может потенциально переизлучить 10^4 фотонов.

В действительности это не достигается, так как атом Ba имеет заметную вероятность радиационного перехода из возбужденного состояния 1P_1 в нижележащее метастабильное состояние 1P_2 . Отношение вероятностей возвращения в основное и метастабильное состояния равно 60 и, следовательно, максимальное приращение поперечной скорости за счет резонансного светового давления равно 60 ($\hbar\omega/Mc$) = 45 см/с. Такое селективное фотоотклонение атомов Ba за счет селективного возбуждения определенного изотопа наблюдалось путем масс-анализа отклоненных

атомов. Рис. 42 показывает некоторые результаты этого эксперимента. ^{138}Ba является основным (71,66%) изотопом в естественной смеси. При селективном возбуждении изотопа ^{137}Ba наблюдается увеличение соответствующего массового пика (рис. 42, а).

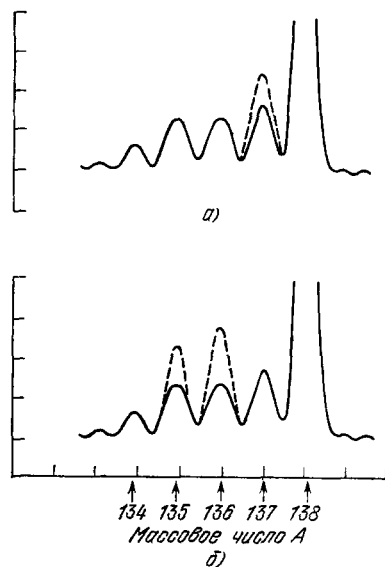


Рис. 42. Изотопически-селективное фотоотклонение атомов Ba резонансным лазерным излучением при облучении естественной смеси изотопов ^{85}Ba .

Сплошными линиями показан масс-спектр без облучения и пунктирными линиями — масс-спектр при облучении изотопа ^{137}Ba (а), ^{138}Ba и ^{136}Ba (б).

Возбуждение компоненты сверхтонкой структуры, соответствующей ^{138}Ba , приводит также к увеличению массового пика ^{135}Ba из-за перекрытия двух спектральных компонент (рис. 42, б).

Во всех описанных экспериментах не ставилась задача детектирования одиночных атомов, но наблюдавшиеся явления могут быть положены в основу детектирования атомов. Особенно успешным может оказаться сочетание метода фотоотклонения с другими описанными выше (гл. 2, 3) методами.

в) Возможные комбинации методов

На рис. 43 показаны схемы возможных сочетаний различных методов лазерного детектирования атомов. При многократном циклическом взаимодействии атома с лазерным лучом можно одновременно наблюдать как фотоотклоненные атомы, так и изотропно переизлученные фотоны (рис. 43, а). Такое сочетание флуоресцентного метода и метода фотоотклонения полезно и для увеличения селективности детектирования, и для подавления фона, поскольку детекторы фотонов и атомов могут работать в режиме совпадения сигналов. Фотоотклоненные атомы можно

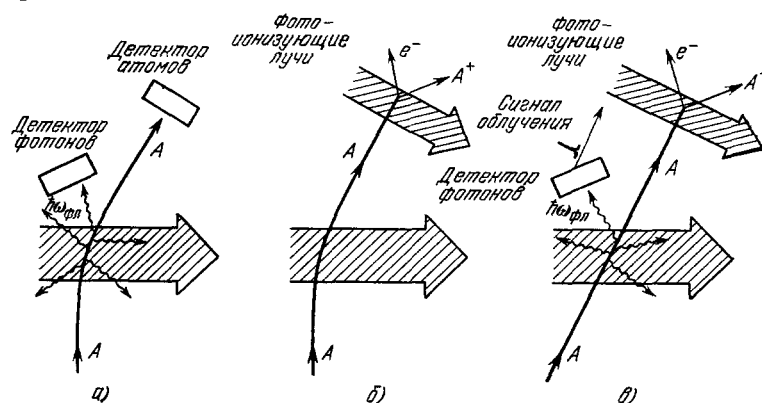


Рис. 43. Возможные комбинации различных лазерных методов детектирования атомов. а) Сочетание метода фотоотклонения и флуоресцентного метода; б) сочетание метода фотоотклонения и ступенчатой фотоионизации; в) сочетание методов флуоресценции и ступенчатой фотоионизации.

детектировать методом ступенчатой фотоионизации (см. рис. 43, б). Это также обеспечивает перемножение селективностей каждого метода и подавление фона. Наконец, возможно сочетание флуоресцентного и фотоиониза-

ционного методов (рис. 43, в). Дополнительно ко всему здесь возможно по сигналу флуоресценции включать лазерное излучение, обеспечивающее селективную фотоионизацию обнаруженных атомов и извлечение их из потока атомов.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ. ПРИМЕНЕНИЯ

Разработанные в последние годы методы лазерного детектирования одиночных атомов: фотоионизационный, флуоресцентный, фотоотклонения и их комбинации, — в настоящее время могут быть применены почти ко всем элементам периодической таблицы. Они обещают стать важным направлением в экспериментальной физике, имеющим множество применений в атомной физике, химии и фотофизике, ядерной физике, астрофизике и космохронологии, где имеется ряд важных и интересных задач, для решения которых могут быть использованы лазерные методы детектирования одиночных атомов. Обсуждение открывающихся здесь новых экспериментальных возможностей выходит далеко за объем данного обзора и должно, вероятно, стать предметом специального обзора. Поэтому мы ограничимся лишь их кратким перечислением.

Прежде всего необходимо выделить ядерную физику, где практически все атомы с интересными, необычными ядрами рождаются в счетном количестве: короткоживущие ядра, удаленные от полосы стабильности, атомы, рождающиеся в детекторах солнечных нейтрино, изомеры формы, космогенные изотопы. Некоторые эксперименты в этом направлении уже проведены (измерения деформации ядер нестабильных изотопов щелочных ¹⁴, ¹⁵ и некоторых щелочно-земельных элементов ¹¹), другие находятся в стадии постановки (аналогичные измерения для изотопов редкоземельных элементов ⁷⁶), третьи в стадии разработки (детектирование дочерних атомов в физико-химическом методе регистрации солнечных нейтрино ⁸⁷), четвертые — в стадии обсуждения (обнаружение сверхплотных ядер ⁸⁸) и др.

В атомной физике и химии техника лазерного детектирования одиночных атомов позволяет изучать диффузию и химические реакции атомов, фотодиссоциацию молекул и фотоионизацию атомов, уширение линий поглощения столкновениями, обнаруживать редкие примеси в чистых материалах, окружающей среде и т. д.

Институт спектроскопии АН СССР.
Троицк (Московская обл.)

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. Векслер В. И., Грошев Л. В., Исаев Б. М. Ионизационные методы исследования излучений. — М.: Гостехиздат, 1949.
2. Экспериментальная ядерная физика/Под ред. Э. Сегре. Т. I. — М.: ИЛ, 1955.
3. Зандберг Э. Я., Ионов Н. И. Поверхностная ионизация. — М.: Наука, 1969.
4. Летохов В. С. — УФН, 1976, т. 118, с. 199.
5. Laser Spectroscopy of Atoms and Molecules/Ed. H. Walther. Heidelberg; New York; Berlin, Springer-Verlag, 1976. — (Topics in Applied Physics) V. 2, перевод: Лазерная спектроскопия атомов и молекул/Под ред. Г. Вальтера. — М.: Мир, 1979.
6. Летохов В. С. — УФН, 1978, т. 125, с. 57.
7. Василенко Л. С., Чеботаев В. П., Шипаев А. В. — Письма ЖЭТФ, 1970, т. 12, с. 161.
8. Fairbank W. M., Jr., Hänsch T. W., Schawlow A. L. — JOSA, 1975, v. 65, p. 199.
9. Балыкин В. И., Летохов В. С., Мишин В. И., Семчишен В. А. — Письма ЖЭТФ, 1975, т. 24, с. 475.
10. Балыкин В. И., Летохов В. С., Мишин В. И., Семчишен В. А. — Ibid., 1977, т. 26, с. 492.

11. Greenless G. W., Clark D. L., Kaufman S. L., Lewis D. A., Tonn J. F., Broadhurst J. H.,— *Opt. Comm.*, 1977, v. 23, p. 236.
12. Беков Г. И., Летохов В. С., Мишин В. И.— *Письма ЖЭТФ*, 1978, т. 27, с. 52.
13. Беков Г. И., Letokhov V. S., Matveev O. I., Mishin V. I.— *Opt. Lett.*, 1978, v. 3, p. 159.
14. Huber G., Thibault C., Klapisch R., Duong H. T., Vialle J. L., Pinard J., Jacquinet P.— *Phys. Rev. Lett.*, 1975, v. 34, p. 1209.
15. Coolen F. C. M., Hagedoorn H. L.— *JOSA*, 1975, v. 65, p. 952.
16. Hurst G. S., Nayfeh M. H., Young J. P.— *Appl. Phys. Lett.*, 1977, v. 30, p. 229, *Phys. Rev. Ser. A*, 1977, v. 15, p. 2283.
17. Летохов В. С., Миногин В. С., Павлик Б. Д.— *ЖЭТФ*, 1977, т. 72, с. 1328.
18. Minogin V. G., Letokhov V. S.— *JOSA*, 1979, v. 69, p. 413; *Appl. Phys.*, 1978, v. 17, p. 99.
19. Балыкин В. И., Летохов В. С., Мишин В. И.— *Письма ЖЭТФ*, 1979, т. 29, с. 614.
20. Neuhauser W., Hohenstatt H., Toschek P., Dehmelt H.— *Phys. Rev. Lett.*, 1978, v. 41, p. 233.
21. *Dye Lasers*/Ed. F. P. Schäfer— 2nd rev. ed Berlin: Heidelberg, New York, Springer-Verlag, 1977. (Topics in Applied Physics) Vol. 1. Перевод 1-го изд: Лазеры на красителях.— М.: Мир, 1978.
22. Проспект фирмы «Spectra — Physics», 1978.
23. Проспект фирмы «Molelectron», 1977.
24. Bücher H., Chow W.— *Appl. Phys.* (in press).
25. Hargrove R. S., Kan T.— *IEEE J. Quantum Electron*, 1977, v. QE-13, p. 280.
26. Grove R. E., Wu F. Y., Ezekiel S.— *Phys. Rev. Ser. A*, 1977, v. 15, p. 227.
Citron M. L., Gray H. R., Gabel C. W., Stroud C. R. Jr.— *Ibid.*, 1977, v. 16, p. 1507.
27. Балыкин В. И., Летохов В. С., Мишин В. И.— *ЖЭТФ*, 1979, т. 77, с. 2221.
28. Balykin V. I., Bekov G. I., Letokhov V. S., Mishin V. I.— In: *Atomic Physics-6: Proc. of 6th Intern. Conference on Atomic Physics, Riga, August 1978*,— P. 565.
29. Abate J. A.— *Opt. Comm.*, 1974, v. 10, p. 269.
30. Carter G. M., Pritchard D. E., Ducas T. W.— *Appl. Phys. Lett.*, 1975, v. 27, p. 498.
31. Bernhardt A. F., Duerre D. E., Simpson J. R., Wood L. L.— *Opt. Comm.* 1976, v. 16, p. 169.
32. Kaufman S. L., Greenless G. W., Lewis D. A., Tonn J. F., Broadhurst J. H., Clark D. L.— In: 4th Intern. Conference on Hyperfine Interaction, Madison, New Jersey, June 13—17, 1977.
33. Balykin V. I., Letokhov V. S., Mishin V. I.— *Appl. Phys.* (in press).
34. Gelbwachs J. A., Klein C. F., Wessel J. E.— *Appl. Phys. Lett.*, 1977, v. 30, p. 489.
35. Gelbwachs J. A., Klein C. F., Wessel J. E.— *IEEE J. Quantum Electron*, 1978, v. QE-14, p. 121.
36. Simon R. E.— *Appl. Opt.*, 1974, v. 13, p. 697.
37. Фабелинский И. Л. Молекулярное рассеяние света.— М.: Наука.— с. 220.
38. Coolen F. C. M., Baghuis L. C. J., Hagedoorn H. L., van der Heide J. A.— *JOSA*, 1974, v. 64, p. 482.
39. Ross M., *Laser Receivers*— N.Y., J. Wiley, 1966. Перевод: Росс М. Лазерные приемники.— М.: Мир, 1969.
40. Kingston R. H.— In: *Detection of Optical and Infrared Radiation*.— Berlin; Heidelberg; New York: Springer-Verlag, 1978.— (Springer Series in Optical Sciences. V. 10).
41. Ross M.— *Proc. IEEE* 1963, v. 51, p. 602.
42. Jones R. S.— *JOSA*, 1962, v. 52, p. 493; *Appl. Opt.*, 1963, v. 2, p. 351.
43. Hänsch T. W., Schawlow A. L.— *Optics Comm.*, 1975, v. 13, p. 68.
44. Letokhov V. S., Minogin V. G., Pavlik B. D.— *Ibid.*, 1976, v. 19, p. 72; *ЖЭТФ*, 1977 т. 72, с. 1328.
45. Ashkin A.— *Phys. Rev. Lett.*, 1978, v. 40, p. 729.
46. Letokhov V. S., Minogin V. G.— *Phys. Rept* (in press).
47. Wineland D. J., Drullinger R. E., Walls F. L.— *Phys. Rev. Lett.*, 1978, v. 40, p. 1939.
48. She C. Y., Fairbank W. M., Billman K. W.— *Opt. Lett.*, 1978, v. 2, p. 30.

49. Weeks S. J., Haraguchi H., Winefordner J. D.,—*Anal. Chem.* 1978, v. 50, p. 360.
50. Bolshov M. A., Zybin A. V., Zybin L. A., Koloshnikov V. G., Majorov I. A.—*Spectrochim. Acta Ser. B*, 1976, v. 31, p. 493.
51. Амбарцумян Р. В., Калинин В. П., Летохов В. С.—*Письма ЖЭТФ*, 1971, т. 13, с. 305 Ambartzumian R. V., Letokhov V. S.—*IEEE J. Quantum Electron.* 1971, v. QE-7, p. 305; *Appl. Optics*, 1972, v. 11, p. 354.
52. Амбарцумян Р. В., Апатин В. М., Летохов В. С., Макаров А. А., Мишин В. И., Пурецкий А. А., Фурзиков Н. П.—*ЖЭТФ*, 1976, т. 70, с. 1660.
53. Hurst G. S., Payne M. G., Nayfeh M. N., Judish J. P., Wagner E. B.—*Phys. Rev. Lett.*, 1975, v. 35, p. 82.
54. Letokhov V. S.—In: *Frontiers in Laser Spectroscopy*/Ed. R. Balian, S. Haroshe, S. Liberman. V. 2 — Amsterdam/North-Holland, 1977 — P. 771. In: *Tunable Lasers and Applications*/Ed. A. Mooradian, T. Jaeger, P. Stokseth, V. 3 Heidelberg: Springer-Verlag, 1976 — P. 122.
55. Letokhov V. S., Mishin V. I., Puzetzk A. A.—*Progr. Quantum Electron.* 1977, v. 5, p. 139. В кн. *Химия плазмы*.— М.: Атомиздат, 1977.— Вып. 4, с. 3.
56. Карлов Н. В., Крынецкий Б. Б., Мишин В. А., Прохоров А. М.—*УФН*, 1979, т. 127, с. 593.
57. Иванов Л. Н., Летохов В. С.—*Квант. электрон.*, 1975, т. 2, с. 585.
58. Амбарцумян Р. В., Беков Г. И., Летохов В. С., Мишин В. И.—*Письма ЖЭТФ*, 1975, т. 21, с. 279.
59. Stebbings R. F., Latimer C. J., West W. P., Dunning F. B., Cook T. B.—*Phys. Rev. Ser. A*, 1975, v. 12, p. 1453.
60. Ducas T. W., Littman M. G., Freeman R. R., Kleppner D.—*Phys. Rev. Lett.* 1975, v. 35, p. 366.
61. Paisner J. A., Solarz R. W., Worden E. F., Conway J. G.—In *Laser Spectroscopy III*/Ed. J. L. Hall, J. L. Carlsten. Proc. of 3rd Intern. Conference, Jackson Lake Lodge, Wyoming, USA, July 4—8, 1977, Berlin; Heidelberg; New York, Springer Verlag, 1977.— P. 160.— (Springer Series in Optical Sciences v. 7).
62. Tuan D. H., Liberman S., Pinard J.—*Opt. Comm.* 1976, v. 18, p. 533.
63. Беков Г. И., Летохов В. С., Мишин В. И.—*ЖЭТФ*, 1977, т. 73, с. 157.
64. Беков Г. И., Letokhov V. S., Mishin V. I.—*Opt. Comm.*, 1977, v. 23, p. 85.
65. Stebbings R. F., Dunning F. B., Rundel R. D.—In: *Atomic Physics IV* (No. 4)/Ed. G. Zu Putlitz, E. Weler, A. Winnache.— Lnd.: Plenum Press, 1975.— P. 713.
66. Stebbings R. F.—*Science*, 1976, v. 193, p. 537.
67. Беков Г. И., Летохов В. С.; Матвеев О. И., Мишин В. И.—*Письма ЖЭТФ*, 1978, т. 28, с. 308.
68. Hurst G. S., Nayfeh M. H., Young J. P., Payne M. G., Grossman L. W.—*Цит. в* ⁶¹ сб.— P. 39.
69. Letokhov V. S., Mishin V. I.—*Opt. Comm.*, 1979, v. 29, p. 168.
70. Летохов В. С., Чеботаев В. П. *Принципы нелинейной лазерной спектроскопии*.— М.: Наука, 1975.
71. Broadhurst J. H., Cage M. E., Clark D. L., Greenless G. W., Griffith J. A. R., Isaak G. R.—*J. Phys. Ser. B*, 1974, v. 7, p. L513.
72. Головин А. Ф., Стриганов А. Р.—*Опт. и спектр.* 1974, т. 19, с. 837.
73. Kramer S. D., Bemis C. E., Jr., Young J. P., Hurst G. S.—*Opt. Lett.*, 1978, v. 3, p. 16.
74. Беков Г. И., Летохов В. С., Матвеев О. И., Мишин В. И.—*ЖЭТФ*, 1978, т. 75, с. 2092.
75. Балыкин В. И., Беков Г. И., Летохов В. С., Мишин В. И.—В кн. *Применение лазеров в атомной, молекулярной и ядерной физике: Труды I Всесоюзной школы*. Вильнюс, 21—31 августа 1978, Наука, М.: 1979, с. 41.
76. Беков Г. И., Vidolova - Angelova E. P., Letokhov V. S., Mishin V. I.—In: *Laser Spectroscopy IV*/Ed. H. Walther, K. W. Rothe. Proc. of 4th International Conference, Rottach-Egern.— N.Y., Heidelberg, Berlin, Springer-Verlag, 1979. (Springer Series in Optical Sciences.)
77. Marrus R., McColm D.—*Phys. Rev. Lett.*, 1965, v. 15, p. 813.
78. Duong H. T., Vialle J. L.—*Opt. Comm.*, 1974, v. 12, p. 71.
79. Duong H. T., Jacquinet P., Juncar P., Liberman S., Pinard J., Vialle J. L.—In: *Laser Spectroscopy*/Ed. S. Haroche, J. C. Pebay-Peyroula, T. W. Hänsch, S. E. Harris; Proc. of 2nd Intern. Conference. Megeve, June 23—27, 1975. Berlin; Heidelberg; New York; Springer-Verlag, 1975— P. 144.
80. Казанцев А. П.—*УФН*, 1978, т. 124, с. 113.
81. Letokhov V. S., Minogin V. G.—*Phys. Rept.* (in press).

- 82. Frisch R.— Z. Phys., 1933, Bd. 86, S. 42.
- 83. Schieder R., Walther H., Wöste L.— Opt. Comm., 1972, v. 5, p. 337.
- 84. Picque J.-L., Viallo J.-L.— Ibid., p. 402.
- 85. Bernhardt A. F., Duerre D. E., Simpson J. R., Wood L. L.— Appl. Phys. Lett. 1974, v. 25, p. 617, Opt. Comm., 1976, v. 16, p. 169.
- 86. Bernhardt A. F.— Appl. Phys. 1976, v. 9, p. 19.
- 87. Rowley J. K.— In: Proc. of Intern. Conference on Status and Future of Solar Neutrino Research; January 5—7, 1978/Ed. Friedlander Q. N.Y.: Brookhavan National Laboratory, Upton, 1978.
- 88. Карнаухов В. А.— В кн. Труды I Международной школы по применению лазеров в атомной, молекулярной и ядерной физике. Вильнюс, 1978.— М.: Наука, 1979.