

LATVIJAS UNIVERSITĀTE
FIZIKAS UN MATEMĀTIKAS FAKULTĀTE



Ilja Feščenko

KOHERENTU PROCESU
LĀZERU SPEKTROSKOPIJAS PĒTĪJUMI
SĀRMU METĀLU ATOMOS UN MOLEKULĀS

Promocijas darba kopsavilkums

Doktora grāda iegūšanai fizikas nozarē
Apakšnozare: Lāzeru fizika un spektroskopija

Rīga, 2014

Promocijas darbs izstrādāts Latvijas Universitātes Fizikas un Matemātikas fakultātes Lāzeru centrā sadarbībā ar prof. A. Vaisa grupu Friburgas Universitātē (Šveice) un prof. T. W. Henša grupu Maksa Planka Kvantu Optikas Institutā (Vācija) laika posmā no 2009. līdz 2014. gadam.

Darbs daļēji izstrādāts ar Eiropas Sociālā fonda atbalstu projektā «Atbalsts doktora studijām Latvijas Universitātē».



LATVIJAS
UNIVERSITĀTE
ANNO 1919

IEGULDĪJUMS TAVĀ NĀKOTNĒ

Darba forma: Zinātnisko publikāciju kopa

Zinātniskais vadītājs: *Dr. habil. phys.*, prof. MĀRCIS AUZIŅŠ, Fizikas un matemātikas fakultāte, Latvijas Universitāte

Darba recenzenti:

1. *Dr. phys.*, asoc. prof. Ilze Klincāre
2. *Dr. habil. phys.*, prof. Andris Ozols
3. *PhD*, prof. Dmitrijs Budkers

Darba aizstāvēšana notiks Latvijas Universitātes Fizikas, astronomijas un mehānikas zinātņu nozares promocijas padomes atklātā sēdē 2014. gada 10. decembrī, pulksten 16:30, LU Fizikas un matemātikas fakultātes (Zeļļu ielā 8, Rīgā) 233. auditorijā.

Ar darbu un tā kopsavilkumu var iepazīties Latvijas Universitātes Bibliotēkā (Kalpaka bulvārī 4) un Latvijas Akadēmiskajā Bibliotēkā (Rūpniecības ielā 10).

Fizikas, astronomijas un mehānikas specializētās promocijas padomes priekšsēdētājs:

prof. Ruvins Ferbers

© Latvijas Universitāte, 2014

© Ilja Feščenko, 2014

Saturs

Lietotie saīsinājumi	4
Anotācija	5
Ievads	6
Izvēlētas tēmas pamatojums	6
Promocijas darba mērķis, uzdevumi un tēzes	7
Metodes un izpilde	8
Rezultātu aprobācija	10
1. Koherences modulācijas pētījumi	12
1.1. Pirmā ranga multipolu modulācija	12
1.2. Algebriskais modelis	13
1.3. Bela-Blūma eksperiments	15
1.4. Polarizācijas modulācijas spektri	16
2. Koherenču telpiski selektīvā sabrukšana	18
2.1. Pirmā un otrā ranga multipolu attēlošana	18
2.2. LIF intensitāšu 2D sadalījuma aprēķini	20
2.3. Iekārta magnētisko skalāro potenciālu attēlošanai	24
2.4. Divdimensiju fluorescences sadalījumi	28
3. Koherentās apdzīvotības slazdošana molekulās	31
3.1. Augstāko rangu multipolu novērošana molekulās	31
3.2. Iekārta nelineārajai K_2 molekulas spektroskopijai	33
3.3. Divatomu molekulām pielāgots teorētiskais modelis	34
3.4. Augstāko rangu multipolu novērošana	38
4. Divmodu stabilizācija	40
4.1. Lāzera stabilitātes uzlabošana ar divmodu metodi	40
4.2. Teorētiskais aprēķins	41
4.3. Eksperimentālā shēma	43
4.4. Frekvences stabilitātes raksturojums	46
Rezultātu kopsavilkums	48
Pateicības	49
Literatūras saraksts	50

Lietotie saīsinājumi

- ČGM — čukstošās galerijas moda
DAS lāzers — dalītās atgriezeniskās saites lāzers
DATLS — dihroisko atomu tvaiku lāzera stabilizācija
DLAR — diožu lāzers ar ārējo rezonatoru
EOM — elektrooptiskais modulators
FD – fotodiode
LED — mirdzdiode (angļu: Light-emitting diode)
LIF — lāzera inducētā fluorescence
LP — lineārs polarizators
LSM — lādiņa saites matrica
MLV — magnētiskā lauka vadība
MRV — magnētiskās rezonanses vizualizācija
NF — neitrāla blīvuma filtrs
PDH metode — Paunda-Drevera-Hola metode
(PI)D — proporcionālā, integrējošā un diferencējošā atgriezeniskā saite
PMPP — pusmaksimuma pilns platums
(P)SD — polarizējošs stara dalītājs
PSHE — pamatstāvokļa Hanlē efekts
PVŠŠ — polarizācijas virzienu saglabājošā optiskā šķiedra
rf — radio frekvence
SVO — sprieguma vadīts oscilators
UZI — ultrazema izplešanās

Anotācija

Promocijas darbs veltīts Zēmana koherenču sārnu metālu atomu un molekulu elektroniskajos pamatstāvokļos veidošanas un sabrukšanas teorētiskajai un eksperimentālajai izpētei ar nelineārās spektroskopijas metodēm. Lai pētītu vēl joprojām maz zināmās koherences īpašības, veikti trīs pētījumi ar nolūku attīstīt jaunus pielietojumus.

Pirmkārt, veikts polarizācijas modulācijas pētījums, ierosinot D_1 pārejas $4 \rightarrow 3$ supersīkstruktūras pāreju ar cēzija tvaikiem pildītā šūnā, kura no iekšpuses pārklāta ar parafīnu. Lāzera stara polarizācija periodiski pārslēgta starp kreiso un labo cirkulāro polarizāciju ar ātrumu 200 Hz, izmantojot modulāciju ar dažādiem darba cikliem. Pārraidītās gaismas jaudas izmaiņas reģistrētas pie šķērseniskā magnētiskā lauka dažādām amplitūdām.

Otrkārt, izstrādāta spektroskopijas metode magnētiskā lauka stipruma divdimensiju sadalījuma kartēšanai, izmantojot fluorescences reģistrēšanu ar lādiņa saites matricu (LSM), bufera gāzē esošiem spin-polarizētiem cēzija tvaikiem pieliekot nehomogēnu magnētisko lauku. Metode balstās uz telpiski selektīvo koherences sabrukšanu oscilējošā magnētiskajā laukā magnētisko rezonanšu rezultātā. Metodes telpiskā izšķirtspēja ir apmēram 1 mm^2 .

Treškārt, veikts nelineāro magnetooptisko rezonanšu pētījums K_2 molekulu pamatstāvokļa rotācijas līmeņos ar lielām leņķiskā momenta kvantu skaitļa $J \sim 100$ vērtībām. Molekulu Q tipa un R tipa pārejas ierosinātas ar regulējamo diožu lāzeru, izmantojot stikla šūnu, kas pildīta ar kālija metāla tvaikiem. Labi izteikti nelineārā Hanlē efekta signāli novēroti lāzera inducētās fluorescences (LIF) lineāri polarizētu ortogonālu komponentu intensitātēs.

Lai uzlabotu diožu lāzera ilgtermiņa frekvences stabilitāti, veikts eksperimentāls pētījums, kurā frekvences stabilizācija demonstrēta diožu lāzera, kas saslēgts ar čukstošās galerijas modu (ČGM) tipa MgF_2 monokristāla optisko rezonatoru. Divu ortogonāli polarizētu modu frekvenču starpības (divmodu frekvences) spēcīga termiskā atkarība kristālā ar dubultlaušanas spēju tika izmantota kā pašattiecināta atgriezeniskā saite, ļaujot stabilizēt rezonatora temperatūru ar nanokelvinu precizitāti. Veicot stabilizētās frekvences mērījumus attiecībā pret neatkarīgu ultrastabilu lāzeru, tika sasniegta optiskās frekvences stabilitāte līdz 0.3 MHz stundā.

Visi iegūtie rezultāti salīdzināti ar atbilstošiem teorētiskiem modeļiem, kas pielāgoti konkrētajiem eksperimentu apstākļiem un aprēķināti promocijas darba ietvaros. Magnetooptisko efektu pētījumu rezultāti var būt noderīgi jauna tipa pilnīgi optisko magnetometru izstrādei, bioloģiskos audos ievadītu magnētisko nanodaļiņu attēlošanai, magnētisko lauku mērīšanai astronomijā. Savukārt, piedāvātā frekvences stabilizācijas metode varētu būt alternatīva sarežģītākai un tehniski prasīgākai stabilizācijas shēmai, kas izmanto ievērojami lielākus Fabrī-Pero rezonatorus.

Ievads

Izvēlētas tēmas pamatojums

Šajā promocijas darbā ir pētītas sārmu metālu atomu un molekulu Zēmana koherenču noteiktas īpašības. Šādu koherenču sabrukšana ārējā magnētiskajā laukā izpaužas magnetooptiskajos efektos. Magnetooptiskie efekti notiek, ierosinot ar lāzera starojumu atomāru vai molekulāru enerģētisko līmeņu koherentu superpozīciju. Gaisma sinhronizē šo koherenti ierosināto līmeņu viļņu funkciju fāzes. Ja gadījumā šie stāvokļi ir leņķiskā momenta stāvokļa ar leņķiskā momenta kvantu skaitli J deģenerēti Zēmana magnētiskie apakšlīmeņi M_J , tad pielikts ārējs magnētiskais lauks B var sašķelt šos Zēmana M_J apakšlīmeņus, noņemot deģenerāciju. Tā rezultātā tiek sagrautas magnētisko apakšlīmeņu Zēmana koherences, jeb citiem vārdiem, tiek iznīcināta atbilstošu viļņu funkciju fāzu sinhronizācija. Šīs izmaiņas atomu vai molekulu īpašībās koherences sabrukšanas rezultātā noved pie magnetooptiskām rezonansēm. Pirmo reizi šādas magnetooptiskos rezonanses Hg atomu ierosinātos stāvokļos 1924. gadā novēroja vācu fiziķis Vilhelms Hanlē [1], tāpēc tagad tās ir zināmas kā Hanlē efekts. Tādēļ arī par rezonansu novērošanu Hanlē konfigurācijā sauc tādu eksperimenta konfigurāciju, kad magnetooptiskās rezonanses parādās fluorescences signālā, kurš novērots gar pielikta magnētiskā lauka \vec{B} virzienu, un tiek mērītas fluorescences intensitātes vai polarizācijas pakāpes atkarības no šī magnētiskā lauka intensitātes. Šajā konfigurācijā atomus vai molekulas ierosina ar lineāri polarizētu lāzeru ar polarizācijas vektoru \vec{E} , kas ir perpendikulārs vektoram \vec{B} .

Ja gaismas intensitāte ir pietiekoši liela, tā nelineāras gaismas absorbcijas rezultātā var radīt koherences ne tikai atoma ierosinātā stāvoklī, bet arī tā pamatstāvoklī. Šo metodi pirmoreiz pielietoja franču fiziķis Alfrēds Kastlers, kurš 1966. gadā tika apbalvots ar Nobela prēmiju fizikā par ‘optisko metožu atklāšanu un attīstīšanu radioviļņu atomāru rezonansu pētījumiem’ [2]. Ja šīs rezonanses tiek pētītas Hanlē konfigurācijā, tās bieži sauc par pamatstāvokļa Hanlē efektu (PSHE). Pirmoreiz šo efektu atomos novēroja 1964. gadā [3] (skatīt arī rakstu [4]).

Magnetooptiskie efekti joprojām tiek aktīvi pētīti (skatīt, piemēram, pārskata rakstus [5, 6]). Šie pētījumi veicināja vairākus interesantus pielietojumus optoelektronikā [7], medicīnā [8] un precīzu mērījumu tehnoloģijās. Piemēram, viena no visjutīgākajām magnetometrijas metodēm izmanto nelineāros magnetooptisko efektus atomu tvaikos [9].

Magnetooptiskie efekti novērojami visdažādākajos veidos, piemēram, kā tumšās un gaišās rezonanses [10, 11, 12, 13]. Šīs rezonanses veidojas lāzera starojumam izmainot absorbcijas koeficientu gāzei, caur kuru tas izplatās. Ja starojumam mijiedarbojoties ar gāzi tās absorbcijas koeficients samazinās, tādu rezonansi sauc par tumšo, bet ja absorbcijas koeficients palie-

linās – par gaišo rezonansi. Šīs ar lāzera starojumu izraisītas absorbcijas koeficienta izmaiņas var tikt vājinātas, pieliekot ārējo magnētisko lauku. Citas magnetooptisko efektu manifestācijas ir koherentās apdzīvotības slazdošana [14], elektromagnētiski inducētā caurspīdība [15] un elektromagnētiski inducētā absorbcija [16]. Ar šiem efektiem tieši saistīta arī lēnās gaismas parādība [17].

Koherences ir ērti aprakstīt ar multipola jeb polarizācijas momentiem ρ_q^κ , kuri ir stāvokļa blīvuma matricas izvirkājuma koeficienti ar rangu κ pa nereducējamajiem tenzora operatoriem [18, 19]. Pirmā ranga $\kappa = 1$ polarizācijas moments, ko sauc par dipola momentu, izpaužas atomārās vai molekulārās vides leņķiskā momenta orientācijā (vektora polarizācija), savukārt, otrā ranga $\kappa = 2$ polarizācijas moments, ko sauc par kvadrupola momentu, izpaužas leņķiskā momenta izkārtošanā (tenzora polarizācija). Augstāko rangu multipolu izpausme parasti tiek maskēta ar iepriekšējo divu veidu multipola momentiem, tāpēc, lai to novērotu, ir nepieciešamas sarežģītākas eksperimentālās metodes.

Promocijas darba mērķis, uzdevumi un tēzes

Promocijas darba galvenais mērķis bija veikt Zēmana koherenču veidošanās un sabrukšanas atsevišķu aspektu teorētisku un eksperimentālu izpēti sārnu metālu atomāros un molekulāros stāvokļos, izmantojot nelineārās lāzera spektroskopijas metodes. Darba izpildes gaitā tika izvirkāts papildus mērķis – paplašināt magnetooptisko rezonanšu eksperimentālu mērījumu iespējas, izveidojot lāzera frekvences ilglaicīgas (dažas stundas) stabilizācijas iekārtu, kurā izmantota inovatīva divmodu temperatūras kompensācijas metode. Lai sasniegtu šos mērķus, tika izvirkāti sekojoši uzdevumi:

1. Veikt magnetooptisko rezonanšu amplitūdu kvantitatīvu pētījumu, izmantojot lāzera ierosmes taisnstūra formas intensitātes modulāciju ar dažādiem darba cikliem, kā arī veikt polarizācijas modulācijas eksperimentus, ierosinot D_1 līnijas $4 \rightarrow 3$ supersīkstruktūras pāreju ar cēzija tvaikiem pildītā šūnā, kura no iekšpuses pārklāta ar antirelaksācijas klājumu – parafīnu.
2. Izveidot vispārēju algebrisku modeli, kas ļauj aprēķināt fluorescences divdimensionālu sadalījumu, kā arī veikt magnētiskā lauka kartēšanu trim atšķirīgām nehomogēna lauka topoloģijām, izmantojot fluorescences reģistrēšanu ar lādiņa saites matricu bufera gāzē esošos spin-polarizētos cēzija tvaikos.
3. Pielāgot teorētisko modeli lāzera starojuma mijiedarbībai ar molekulāro sistēmu ārējā magnētiskajā laukā. Modelis balstās uz Zēmana koherences dinamikas vienādojumiem (ar vidējošanu Doplera profilā, ņemot

vērā magnētisko apakšlīmeņu sašķelšanās ārējā magnētiskajā laukā un starojuma koherences īpašības). Veikt nelineāro magnetooptisko rezonansu mērījumus kālija divatomu molekulu tvaikos.

4. Uzbūvēt un izpētīt diožu lāzera frekvences stabilizācijas iekārtu, kas satur kompakto MgF_2 monokristāla čukstošās galerijas modu optisko rezonatoru, kuram tiek piemērota divmodu temperatūras kompensācijas metode. Šī metode ir balstīta uz laušanas koeficientu atšķirīgo termisko atkarību, kura veidojas dubultlaušanas rezultātā.

Attiecīgi, promocijas darba aizstāvēšanai tika izvirzītas sekojošas četras tēzes:

1. Polarizācijas modulācijas rezonansu dažādu harmoniku amplitūdu atkarības no darba cikliem var aprakstīt ar algebrisko modeli, kas ietver tikai pirmā ranga multipolus.
2. LIF intensitātes atkarība no magnētiskā lauka parametriem var tikt izmantota pirmā un otrā ranga multipolu vizualizācijai un magnētiskā lauka kartēšanai.
3. Uz Zēmāna koherenču dinamikas vienādojumiem balstītais teorētiskais modelis stacionārā gadījumā var aprakstīt molekulārus stāvokļus ar lielām leņķiskā momenta kvantu skaitļa $J \sim 100$ vērtībām.
4. Divmodu temperatūras kompensācijas metode, kurā izmanto kompakto MgF_2 monokristāla čukstošās galerijas modu optisko rezonatoru, uzlabo lāzera ģenerācijas kvalitāti, samazinot tā frekvences dreifu.

Metodes un izpilde

Lai izpildītu pirmo uzdevumu – polarizācijas modulācijas pētījumu – promocijas darbā tika izmantota klasiskajam Bela-Blūma eksperimentam [20] līdzīga eksperimentālā shēma, kurā magnētiskās rezonanses atomu pamatstāvoklī tika veidotas modulējot cirkulāri polarizēta starojuma amplitūdu un skenējot šķērseniskā magnētiskā lauka stiprumu. Tika pētīts vienkāršākais polarizācijas modulācijas rezonansu variants izmantojot vienu cirkulāri polarizētu lāzera staru aizvietojojot sinusoidālo jaudas modulāciju ar taisnstūra polarizācijas modulāciju. Šāds modulācijas veids Bela-Blūma eksperimentā līdz šim nav pietiekoši pētīts. Magnētiskās rezonanses tika novērotas cēzija atomu tvaiku šūnā ar parafīna pārklājumu. Šis pētījums tika veikts Friburgas Universitātē, Šveicē, izmantojot Dr. Evelīnas Breski laboratorijas iekārtu un signālu analīzei Prof. Antuāna Vaisa izveidoto teorētisko modeli.

Tā kā fluorescences intensitāte ir atkarīga gan no magnētiskā lauka amplitūdas, gan no tā relatīvās orientācijas attiecībā pret spinu polarizācijas virzienu, ir sagaidāms, ka nehomogēns magnētiskais lauks radīs sarežģītu fluorescences telpisko ainu, kura, savukārt, varētu raksturot nehomogēnu magnētisko lauku. Lai izveidotu vispārējo teorētisko modeli fluorescences intensitātes telpiskajam sadalījumam, cēzija atomiem mījiedarboties ar lineāri vai cirkulāri polarizētu gaismu nehomogēnā magnētiskajā laukā, tika izmantotas iepriekš iegūtas [21, 22] algebriskas izteiksmes. Eksperimentālai pārbaudei tika sagatavotas trīs dažādas nehomogēna magnētiskā lauka konfigurācijas. Apstarojot cēzija tvaiku šūnu ar papildus mono- vai polihromatisko rf lauku, šie tvaiki depolarizējas vietā, kur lokālā Larmora frekvence atbilst rf lauka frekvencei, liekot fluorescēt telpas apgabaliem ar noteiktu magnētiskā lauka stiprumu. Cēzija tvaiku fluorescences no šim apgabaliem tika reģistrēta ar LSM kameru. Šis uzdevums tika realizēts Friburgas Universitātē, kopā ar prof. Antuānu Vaisu.

Trešajam uzdevumam – pamatstāvokļa Hanlē efekta pētījumiem kālija divatomu molekulās – tika pielāgots detalizēts teorētiskais apraksts, kas iepriekš izstrādāts un aprobēts sārnu metālu atomos [23, 24]. Nelineārie Hanlē signāli tika novēroti lāzera inducētās fluorescences lineāri polarizētu ortogonālu komponentu intensitātēs pie dažādiem ierosmes jaudas blīvumiem un relaksācijas nosacījumiem. Kamēr iepriekšējos divos uzdevumos uzmanība tika pievērsta tikai pirmā un otra ranga multipolu momentu izpausmi, nelineārais PSHE, pateicoties lielumam leņķiskam momentam, kas piemīt divatomu molekulām, deva iespējas pētīt arī augstāku rangu multipolus caur PSHE signāla formas īpatnībām. Trešais uzdevums tika realizēts Latvijas Universitātes Lāzeru centrā.

Ceturtais uzdevums tika realizēts un kvantitatīvi aprakstīts, izmantojot MgF_2 monokristāla īpašības, proti, dubultlaušanas spēju. Lāzera frekvences aktīvai stabilizācijas un rezonatora temperatūras mērīšanai tika izmantotas divas neatkarīgas ortogonālas lāzera starojuma modas apaļā rezonatorā. Šo modu frekvenču starpība ir jūtīga pret temperatūras fluktuācijām. Tādējādi, temperatūra tika mērīta modu tilpumā un kontrolēta ar jaudīgas gaismas diodes starojumu. Frekvences un rezonatora temperatūras stabilitāte tika aprakstīta ar Alana novirzi, kas ļāva salīdzināt stabilitāti ar pārējiem frekvences standartiem. Lai salīdzinātu pētāmā lāzera frekvenci ar cita ultrastabila lāzera frekvenci, stabilizācijas iekārta tika sagatavota un darbināta Maksa Planka Kvantu optikas institūtā, Vācijā, prof. T. Henša laboratorijā.

Visos promocijas darbā iekļautos pētījumos autors veica teorētiskā apraksta pielāgošanu konkrētā eksperimenta rezultātu analīzei, aprēķinus, eksperimenta plānošanu, sagatavošanu un izpildi, mērījumu rezultātu apstrādi un analīzi, kā arī rezultātu sagatavošanu publicēšanai. Izmantotais teorētiskais aparāts nav darba autora izstrādāts, tāpēc promocijas darbā tas netiek aizstāvēts.

Promocijas darba pētījumi tika atbalstīti ar sekojošiem individuāliem grantiem:

1. Eiropas Sociālā fonda atbalsts projektā “Atbalsts doktora studijām Latvijas Universitātē”, 2010.
2. Eiropas Sociālā fonda atbalsts projektā “Atbalsts doktora studijām Latvijas Universitātē”, 2011.
3. ERASMUS prakses mobilitāte, 08/01/2012 - 01/05/2012
4. Zinātniskā apmaiņas programma starp Šveici un Eiropas Savienības jaunajām dalībvalstīm (Sciex-NMS^{ch}), 2012.

Rezultātu aprobācija

Promocijas darbs ir zinātnisko rakstu kopa, kurā ir iekļautās sekojošas publikācijas:

- [P1] M. Auzinsh, R. Ferber, I. Fescenko, L. Kalvans, and M. Tamanis, “Non-linear magneto-optical resonances for systems with $J \sim 100$ observed in K_2 molecules,” *Physical Review A*, **85**, 013421, (2012).
- [P2] I. Fescenko, J. Alnis, A. Schliesser, C. Y. Wang, T. J. Kippenberg, and T. W. Hänsch, “Dual-mode temperature compensation technique for laser stabilization to a crystalline whispering gallery mode resonator,” *Optics Express*, **20**(17), 19185–19193, (2012).
- [P3] I. Fescenko, P. Knowles, A. Weis, and E. Breschi, “A Bell-Bloom experiment with polarization-modulated light of arbitrary duty cycle,” *Optics Express*, **21**, 15121—15130, (2013).
- [P4] I. Fescenko and A. Weis, “Imaging magnetic scalar potentials by laser-induced fluorescence from bright and dark atoms,” *Journal of Physics D*, **47**, 235001, (2014).

Promocijas darba rezultāti prezentēti sekojošās zinātniskās konferencēs:

- [C1] **I. Feščenko**, “Koherentās apdzīvotības slazdošanas eksperimentālie pētījumi divatomu molekulās,” Latvijas Universitātes 68. konferencē, Rīga, Latvija, 5. februāris, (2010).

- [C2] **I. Fescenko**, M. Auzinsh, R. Ferber, L. Kalvans, and M. Tamanis, “Studies of coherent population trapping in diatomic molecules,” in ECAMP X, Salamanca, Spain, July 4–9, (2010).
- [C3] M. Auzinsh, R. Ferber, **I. Fescenko**, L. Kalvans, and M. Tamanis, “Dark resonances for systems with large J studied in potassium diatomic molecules,” in EGAS 44, Gothenburg, Sweden, July 9–13, (2012).
- [C4] **I. Fescenko**, P. Knowles, A. Weis, and E. Breschi, “A Bell-Bloom experiment with polarization-modulated light,” in ECAMP11, Aarhus, Denmark, June 24—28, (2013).
- [C5] **A. Weis** and I. Fescenko, “Visualizing magnetic scalar potential lines by laser-induced fluorescence from bright and dark atoms,” in Seventh Photonics Workshop, Kopaonik, Serbia, March 10—14, (2014).
- [C6] **A. Weis**, I. Fescenko, V. Dolgovskiy, S. Colombo, and V. Lebedev, “Visualizing magnetic fields by bright and dark atoms,” in LPHYS’14, Sofia, Bulgaria, July 14—18, (2014).

Kopsavilkuma pirmajā nodaļā ir stāstīts par sārnu atomu pirmā ranga multipolu pētījumiem polarizācijas modulācijas eksperimentos Bela-Blūma konfigurācijā [P1]. Otrajā nodaļā aplūkoti pirmā un otrā ranga polarizācijas momentu vizualizācijas pētījumi, izmantojot lāzera inducētu fluorescenci atomāros tvaikos [P2]. Magnetooptisko efektu pētījumi divatomu kālija molekulās ar lielām leņķiskā momenta kvantu skaitļa vērtībām [P3] prezentēti trešajā nodaļā. Ceturtajā nodaļā aprakstīta jauna metode lāzera frekvences stabilizācijai [P4].

1. Koherences modulācijas pētījumi

1.1. Pirmā ranga multipolu modulācija

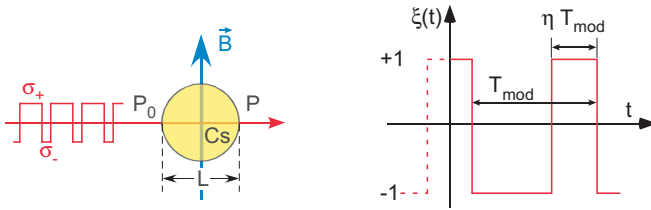
1961. gadā Bels un Blūms ir parādījuši [20], ka, modulējot cirkulāri polarizēta, ar atomāro pāreju rezonansē esoša starojuma amplitūdu, var veidot magnētiskās rezonanses atomu pamatstāvoklī. Efekts izpaužas kā rezonanses ar Lorencas funkcijas formu, kad tiek skenēts pieliktā statistiskā šķērseniskā (attiecībā pret gaismas izplatīšanās virzienu) magnētiskā lauka stiprums B . Rezonanse rodas, ja Larmora frekvence $\omega_L = \pm \gamma_F |B|$ atbilst gaismas intensitātes modulācijas frekvencei ω_{mod} , kur γ_F ir atomu pamatstāvokļa žiromagnētiskais faktors.

Pētot šo efektu, Bels un Blūms izmantoja amplitūdas sinusoidālu modulāciju. Tomēr izmantojot intensitātes taisnstūra modulāciju, kas satur visas pamatfrekvences ω_{mod} augstākas harmonikas, var iegūt bagātāku signāla spektru, kurā rezonanses notiek pie $\omega_L = \pm m \omega_{\text{mod}}$, kur m ir vesels skaitlis. Līdzīgi magnētisko rezonāņu spektri var tikt iegūti arī modulējot gaismas frekvenci [25] vai polarizāciju [26, 27]. Vaiss un Grujičs [28] nesēn izstrādājuši analītisku pieeju, kas ļauj rēķināt magnētisko rezonāņu pozīciju, amplitūdu un formu pie amplitūdas, frekvences vai polarizācijas modulācijas ar patvaļīgu darba ciklu. Šādi modulācijas veidi ir zināmi kā fāzu rezonanses [29, 30].

Fāzu rezonāņu fizikas pamatā ir atomu spinu polarizācijas veidošanās optiskās pumpēšanas procesā, kur gaismas modulācija ir līdzvērtīga optiskās pumpēšanas efektivitātes modulācijai. Magnētiskais lauks inducē lāzera starojuma veidotās polarizācijas precesiju, kā rezultātā no periodiskā polarizācijas radīšanas procesa mijiedarbības ar šo lauku inducētu leņķisko momentu polarizācijas dinamiku veidojas absorbētās gaismas vai fluorescences intensitātes rezonāņu struktūra. Vienkāršākajā realizācijā viens un tas pats gaismas stars tiek izmantots, lai izveidotu spinu polarizāciju un, lai detektētu tās izmaiņas magnētiskās mijiedarbības rezultātā. Reģistrējot caur vidi izejošu gaismu, magnētiskās rezonanses var novērot vai nu līdzstrāvas (proti, zemfrekvenču filtrētā) jaudā, vai arī kā šīs jaudas oscilācijas, kas atbilst modulācijas frekvences harmonikām. Pēdējā gadījumā rezonanses var tikt reģistrētas ar fāzjutīgu detektēšanas metodi, kas šajā darbā nav izmantota. Promocijas darbā ir pētīts vienkāršākais polarizācijas modulācijas rezonāņu variants, kas izmanto vienu lāzera staru un veic zemfrekvenču filtrētās lāzera jaudas reģistrēšanu. Šī shēma ir sākotnējā Bela-Blūma eksperimenta tālāka attīstība, kur sinusoidālā jaudas modulācija ir aizvietota ar taisnstūra polarizācijas modulāciju.

1.2. Algebriskais modelis

Nesenajā pētījumā [28] ir iegūtas magnētisko rezonанšu līniju formu algebriskās izteiksmes spektriem, kas veidojas gaismas cirkulārās polarizācijas modulācijas rezultātā šķērseniskajā magnētiskajā laukā \vec{B} . Polarizācijas modulācijas spektroskopijas eksperimentālā ģeometrija ir parādīta 1. attēlā pa kreisi. Vienmodas lāzera stars šķērso atomāro vidi ar optisko garumu L , turklāt lāzera frekvence ir aktīvi stabilizēta ar kādu atomāro pāreju. Lai periodiski pārslēgtu cirkulārās gaismas polarizācijas spirālītātes $\xi(t)$ virzienu ar frekvenci ω_{mod} tiek izmantots gaismas polarizācijas modulators. Iepriekš parādīts [28], ka magnētiskā lauka atkarība no pārraidītas gaismas jaudas $P(\omega_L \propto |\vec{B}|)$ satur gan neatkarīgu, gan atkarīgu no laika komponentes.



1. attēls. Pa kreisi: shematiskais polarizācijas modulācijas eksperimenta attēls. Pa labi: laikā simetriskā polarizācijas modulācijas funkcija $\xi(t)$ ar patvaļīgu darba ciklu η .

Šajā darbā pētīti no laika neatkarīgi Bela-Blūma tipa signāli, kas sastāv no fona, kurš nav atkarīgs no magnētiskā lauka, un no absorbcijas rezonанšu bezgalīgas rindas. Šie signāli var tikt uzrakstīti kā

$$P(\omega_L) = (1 - \kappa_0 L) P_0 + \alpha \kappa_0 L \frac{P_0^2}{P_S} \sum_{m=-\infty}^{\infty} g_m^2 \mathcal{L}_m(\omega_L) \quad (1)$$

$$\equiv (1 - \kappa_0 L) P_0 + \sum_{m=-\infty}^{\infty} A_m \mathcal{L}_m(\omega_L), \quad (2)$$

kur P_0 un P ir lāzera jauda, attiecīgi, pirms un pēc optiskās šūnas; κ_0 – tvaiku rezonанses absorbcijas koeficients, un α – atomu polarizāciju (orientāciju) raksturojoša jauda [21], kas ir atkarīga no atomu pārejas, ar kuru lāzera frekvence ir rezonансē. Faktori $A_m \propto g_m^2$ apzīmē Lorencas rezonанšu amplitūdas

$$\mathcal{L}_m(\omega_L) = \frac{\gamma^2}{(m\omega_{\text{mod}} - \omega_L)^2 + \gamma^2}, \quad (3)$$

ar centru pie $\omega_L = m\omega_{\text{mod}}$. Līnijas platums γ reprezentē (šķērsenisko) koherences relaksācijas ātrumu [28], kas ir pieņemts vienāds ar garenisko atomu polarizācijas relaksācijas ātrumu. Konstantes g_m ir polarizācijas modulācijas

funkcijas $\xi(t)$ Furjē m -tās komponentes koeficienti. Jāņem vērā, ka vienādojums (2) tika iegūts optiski plānām vidēm ($\kappa_0 L \ll 1$) pie zemām jaudām, kad rezonanses amplitūdas ir proporcionālas P_0^2 . Vienādojumā (1) P_S apzīmē optiskās pumpēšanas piesātinājuma jaudu, kas ir saistīta ar optisko pumpēšanas ātrumu γ_p kā $\gamma_p = \gamma P_0 / P_S$.

Ekspērimētos gaismas spirālītātē ξ periodiski tika pārslēgta starp σ_+ un σ_- , kas atbilst $\xi = +1$ un $\xi = -1$. Pirmā attēla labajā pusē parādīta atbilstošā modulācijas funkcija ar periodu $T_{\text{mod}} = 2\pi\omega_{\text{mod}}^{-1}$ patvaļīgam darba ciklam η , kas atbilst σ_+ polarizētas gaismas proporcijai no funkcijas $\xi(t)$ perioda. Lai Furjē rinda sastāvētu tikai no kosinusiem

$$\xi(t) = \sum_{m=-\infty}^{+\infty} g_m(\eta) \cos(m\omega_{\text{mod}}t) \quad (4)$$

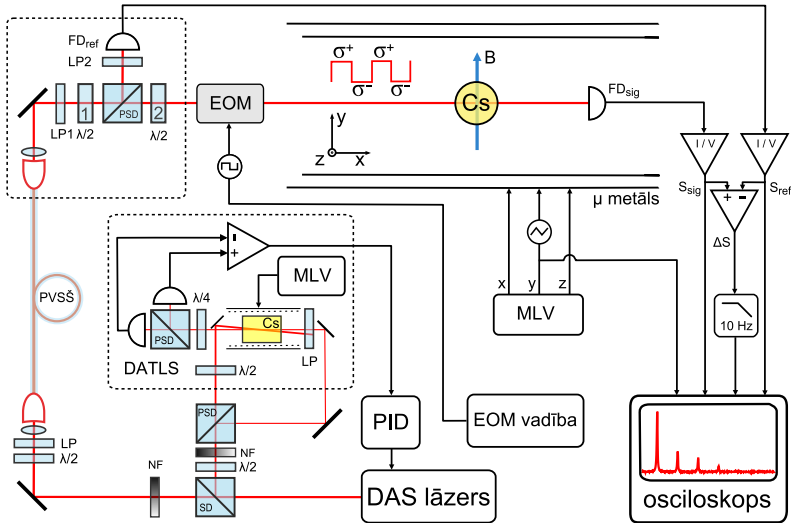
ar η -atkarīgiem koeficientiem

$$g_{m=0}(\eta) = 2\eta - 1 \quad \text{un} \quad g_{m \neq 0}(\eta) = \frac{2}{\pi} \frac{\sin(\pi m \eta)}{m}, \quad (5)$$

modeļa aprēķini [28] veikti simetriskai $\xi(t) = \xi(-t)$ modulācijas funkcijai. Pie patvaļīga darba cikla rezonanšu amplitūdas ir η -atkarīgas, un relatīvās rezonanšu amplitūdas var tikt izteiktas kā

$$R_m(\eta) = \frac{A_m(\eta)}{A_1(0.5)} = \frac{g_m^2(\eta)}{g_1^2(0.5)} = \begin{cases} \left[\frac{\pi(2\eta - 1)}{2} \right]^2 & m = 0 \\ \frac{\sin^2(\pi m \eta)}{m^2} & m \neq 0 \end{cases} \quad (6)$$

Pie 50% darba cikla ($\eta = 0.5$) vienīgās no nulles atšķirīgās amplitūdas ir $R_m(0.5) = m^{-2}$ ar nepāru m . Tādējādi šajā simetriskās modulācijas gadījumā nav sagaidāms novērot Hanlē signālu, kas atbilst rezonanses $m = 0$ komponentei.



2. attēls. Eksperimentālās iekārtas blokshēma. SD: stara dalītājs; DAS lāzers: dalītās atgriezeniskās saites lāzers; DATLS: dihroisko atomu tvaiku lāzera stabilizācija; EOM: elektrooptiskais modulators; I/V: transimpedances pastiprinātājs; LP: lineārs polarizators; NF: neitrāla blīvuma filtrs; MLV: magnētiskā lauka vadība; PSD: polarizējošs stara dalītājs; FD_{sig} un FD_{ref} : signāla un references fotodiodes; PID: proporcionālā, integrējošā un diferencējošā atgriezeniskā saite; PVSS: polarizācijas virzienu saglabājošā optiskā šķiedra.

1.3. Bela-Blūma eksperiments

Eksperimentālās iekārtas shematiskā diagramma parādīta 2. attēlā. Eksperimenti veikti ar 894 nm diožu lāzera gaismu, kuras frekvence tika piesaistīta cēzija D_1 līnijas $F_g = 4 \rightarrow F_e = 3$ supersīkstruktūras pārejai, izmantojot no Doplera nobīdes brīvu dihroisko atomu tvaiku lāzera stabilizācijas (DATLS) metodi [31, 32].

Lāzera stars pie eksperimentālās iekārtas tika pievadīts ar polarizācijas virzienu saglabājošo optisko šķiedru un sadalīts ar polarizējošo stara dalītāja kubu divos staros ar aptuveni vienādām intensitātēm. Viena stara jauda tika reģistrēta ar fotodiodei FD_{ref} , kas kalpoja kā references sensors fona atņemšanai un lāzera intensitātes trokšņu slāpēšanai. Otrā stara polarizācija tika modulēta starp labo (σ_-) un kreiso (σ_+) cirkulāro polarizāciju ar elektrooptisko modulatoru (EOM). Šis EOM tika vadīts ar funkcijas ģeneratora radītu taisnstūra formas signāli, kuram varēja mainīt darba ciklu. Abu ortogonālu polarizācijas stāvokļu (σ_{\pm}) cirkulārās polarizācijas pakāpes bija augstākas pār

95%. Lāzera stara šķērseniskais intensitātes profils tika noteikts ar 2 mm lielu EOM apertūru.

Stars ar modulēto polarizāciju šķērsoja atsūkņētu 30 mm diametra sfērisku stikla šūnu, kas saturēja cēzija tvaikus istabas temperatūrā. Lai samazinātu spinu depolarizāciju, kas rodas sadursmju ar sienām dēļ, šūnas iekšējās sienas tika pārklātas ar plānu parafīna kārtiņu. Šādu šūnu īpašības un izgatavošanas metodika ir aprakstīta rakstā [33]. Lai ekranētu parazītiskos magnētiskos laukus, šūna tika ievietota ≈ 1 m garā divslāņu cilindriskā μ metāla ekrānā bez gala vākiem un ar iekšējo diametru ≈ 200 mm. Lai pieliktu kontrolētu magnētisko lauku patvaļīgā virzienā un, lai kompensētu paliekošo magnētisko lauku, ekrāna iekšpusē tika uzstādīts solenoīds un divi taisnstūra spoļi pāri Helmholca konfigurācijā. Spoļu kalibrēšanas un paliekošā lauka kompensācijas procedūras aprakstītas rakstā [34]. Lai mainītu lauku B_y horizontālajā plaknē (skat. 2. att.), strāvu Helmholca spolē kontrolēja signāls no funkcijas ģenerators, kurš tika vadīts ar spriegumu kontrolētu strāvas avotu. Lai izvairītos no signāla kropļojumiem, kas rodas pārklātajās šūnās ilga (desmitiem ms) spinu polarizācijas relaksācijas laika dēļ [21], skenēšanas ātrums dv_L/dt bija aptuveni 20–40 Hz/s.

Gaisma pēc šūnas tika detektēta ar signālu reģistrējošo fotodiodei FD_{sig} . Sekojošas optiskās komponentes (rāmītī 2. attēla augšējā kreisajā pusē) kalpoja, lai kontrolētu jaudu eksperimentā un references kanālā sekojošā veidā: polarizators LP1 nosaka polarizāciju pēc optiskās šķiedras, 1. pusvilņa plāksnīte kontrolē jaudu P_0 , kas tiek sūtīta uz eksperimentu, bet 2. pusvilņa plāksnīte optimizē no EOM izejošo cirkulāri polarizēto gaismu. Visbeidzot, polarizators LP2 tika izmantots, lai līdzsvarotu S_{sig} un S_{ref} , kad lāzera frekvence izskaņota no absorbcijas frekvences. Signālus no diodēm FD_{ref} un FD_{sig} pastiprināja transimpedances pastiprinātāji.

Lai reducētu no laika atkarīgas signālu komponentes, signālu elektroniskā starpība $\Delta S = S_{sig} - S_{ref}$ tika filtrēta ar analogo zemfrekvenču filtru ar 10 Hz sliekšņa frekvenci. Šāda diferenciālā detektēšanas shēma uzlaboja signāla/trokšņa attiecību vairāk nekā par vienu lieluma kārtu un ļāva novērot līdz pat $m = 21$ harmonikām.

1.4. Polarizācijas modulācijas spektri

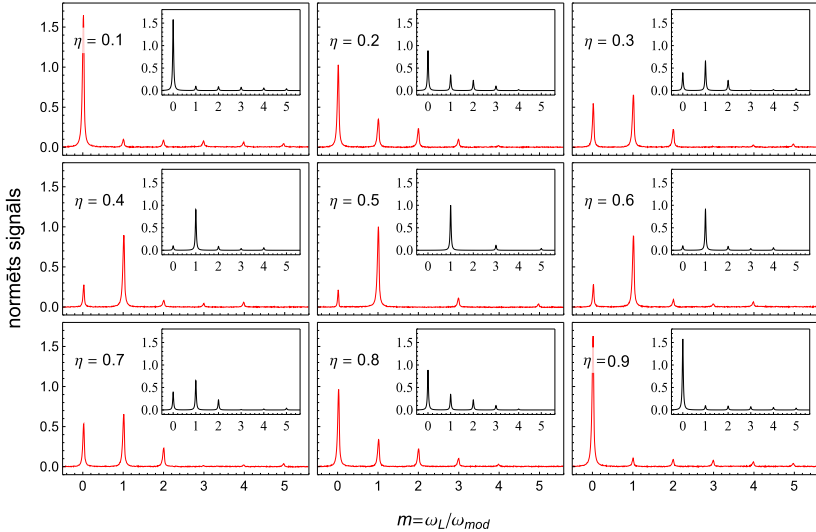
Visi eksperimenti tika veikti ar fiksētu σ_+/σ_- modulācijas frekvenci $\omega_{mod}/2\pi = 200$ Hz, kas izvēlēta tā, lai samazinātu gan blakus esošu rezonanses harmoniku pārklāšanos, gan novērotu vairākas harmonikas dotajā magnētiskā lauka B_y diapazonā.

Polarizācijas modulācijas spektri ierakstīti, skenējot magnētisko lauku B_y diapazonā, kas aptver rezonanses ar $\omega_L = (0 \dots 5)\omega_{mod}$. Signāli S_{sig} , S_{ref} , ΔS un magnētisko lauku kontrolējoša sprieguma funkcija tika ierakstīti ar

digitālo osciloskopu un vidējoti 20 minūšu intervālā, iegūstot laikā vidējo signālu $\overline{\Delta S} = \langle S_{\text{sig}} - S_{\text{ref}} \rangle$. Saskaņā ar vienādojumu (2), eksperimentālais signāls $\overline{\Delta S}$ ir proporcionāls teorētiskajai izteiksmei

$$\overline{\Delta S}(\eta) \propto P(\omega_L) - P_0 = -\kappa_0 L P_0 + \sum_{m=-\infty}^{\infty} A_m(\eta) \mathcal{L}_m(\omega_L), \quad (8)$$

un tādējādi sastāv no vairākām vienmērīgi atdalītām rezonansēm ar centriem pie $\omega_L = m\omega_{\text{mod}}$, kuras summējas ar no lauka neatkarīgu fonu.



3. attēls. Polarizācijas modulācijas spektri rāda pārraidītas lāzera jaudas (pie krītošās lāzera jaudas $P_0 = 1.0 \mu\text{W}$) atkarības no magnētiskā lauka pie dažādiem modulācijas darba cikliem η . Iespraudumos parādīti teorētiskie spektri. Abi eksperimentālie un teorētiskie spektri ir normēti, un tiem ir atņemts fons, kā aprakstīts tekstā.

Trešajā attēlā parādīta eksperimentālo spektru virkne deviņām dažādām darba ciklu η vērtībām pie krītošās lāzera jaudas $P_0 = 1.0 \mu\text{W}$. Katrs eksperimentālais spektrs tika aproksimēts ar Lorenca funkciju summu uz pastāvīga fona, saskaņā ar vienādojumu (8). Fons tika atņemts no spektriem, kas redzami 3. attēlā. Signāla aprakstam tika lietoti identiski platumi visām rezonansēm pie $\omega_L \neq 0$, bet $\omega_L = 0$ Hanlē rezonansei tika pieļauts atšķirīgs platumi. Tika konstatēts, ka Hanlē līnijas platumi ir mazāks nekā pārējo rezonansu signāla platumi. Tādējādi, no apraksta funkcijas tika iegūtas visu rezonansu amplitūdas $A_m^{\text{exp}}(\eta)$, kā arī divi līnijas platumi.

Trešajā attēlā parādītie spektri tika normēti ar $m = 1$ rezonanses fitētu amplitūdu $A_1^{\text{exp}}(0.5)$ pie $\omega_L = \omega_{\text{mod}}$, kas tika iegūta pie 50% darba cikla.

Magnētiskā lauka, proti, Larmora frekvences atkarība ir parādīta modulācijas frekvences ($m = \omega_L / \omega_{\text{mod}}$) vienībās.

Iespraudums katrā grafikā parāda attiecīgo teorētisko spektru, kas tika iegūts no vienādojumiem (6,7), izmantojot rezonanšu platumus, kas tika noteikti no signāla apraksta. Visu spektru identiskās vertikālās skalas ļauj ne tikai novērtēt harmoniku signālu relatīvās intensitātes noteiktai η vērtībai, bet arī relatīvās intensitātes spektriem, kas reģistrēti pie dažādām η vērtībām. Teorētiskais modelis paredzēja η un $1 - \eta$ spektru simetriju.

Saskaņā ar vienādojumu (5), $m = 0$ Hanlē rezonanse pie 50% darba cikla modulācijas nav sagaidāma. Tomēr eksperimentālajā spektrā 3. attēlā pie $\eta = 0.5$ ir redzama izteikta rezonanse pie $\omega_L = 0$. Visdrīzāk, šī rezonanse ir saistīta ar atomu izkārtošanu, ko inducē optiskā pumpēšana ar cirkulāri polarizētu gaismu. Tā kā modeļa [28] aprēķini ņem vērā tikai atomu orientāciju, tie nevar prognozēt jebkādu rezonansi, kas veidojas spinu izkārtošanas rezultātā. Tomēr šim konkrētajai supersīkstruktūras pārejai spinu izkārtošana nav dominējošs process, tāpēc teorētiskais modelis pietiekoši labi apraksta harmoniku *relatīvās* amplitūdas.

2. Koherenču telpiski selektīvā sabrukšana

2.1. Pirmā un otrā ranga multipolu attēlošana

Nehomogēna magnētiskā lauka izmantošana spin-polarizētu daļiņu nehomogēna sadalījuma kodēšanai Larmora frekvenču spektrā ir magnētiskās rezonanses vizualizācijas (MRV) pamatprincips. Šajā darbā tika pētīta pretēja procedūra, izmantojot polarizētu daļiņu viendabīgu sadalījumu nehomogēnu magnētisko lauku attēlošanai. Eksperimentā demonstrēts, ka ar šo metodi ir iespējams iegūt magnētiskā potenciāla līniju detalizētus attēlus iepriekš zināmiem laukiem. Kamēr parasta medicīniskā MRV balstās uz attiecīgo Larmora frekvenču spektru detektēšanu ar uztvērēju spolēm, šajā darbā aprakstītais attēlveidošanas sensors izmanto spin-polarizētu sārnu atomu tvaiķus kombinācijā ar optisko detektēšanu. Magnētiskā lauka vizualizācijas ierīce, kas balstās uz šo principu, piedāvā jaunas iespējas pētīt bioloģiskajos paraugos esošu nanodaļiņu telpisko sadalījumu un to dinamiku laikā.

Parasti absorbcijas koeficients atomu vai molekulu ansambļi ir atkarīgs no tā spinu polarizācijas pakāpes un rakstura (vektoru vai tenzora), tas ir, no pamatstāvoklī izveidotās koherences stipruma un radītā multipola momenta ranga. Spinu polarizācijas veidošanās atomiem, mijiedarboties ar rezonansē esošu polarizētu gaismu, optiskās pumpēšanas rezultātā samazina absorbcijas koeficientu atomārā vidē, kas tādējādi kļūst daudz caurspīdīgāka pumpējošajai gaismai. Šis efekts ir elektromagnētiski inducētās caurspīdības izpausme, kas notiek reizē ar atomu fluorescences samazinājumu. Tāpēc

mēdz teikt, ka polarizētā vide ir tumšajā stāvoklī. Tumšie atomu ansambļi atrodas koherentas apdzīvotības slazdošanas stāvoklī, jo optiskā pumpēšana rada (Zēmana vai supersikstruktūras) magnētisko apakšlīmeņu koherentu superpozīciju ar tādām amplitūdām un fāzēm, ka krītoša polarizēta gaisma netiek absorbēta sagatavotās atomāro stāvokļu superpozīcijās. Piemēram, tumšās rezonanses tika pirmo reizi pētītas Alzetas *et al.* rakstā [13], izmantojot fotogrāfisko metodi.

Pagātnē spin-polarizētu atomu nehomogēna sadalījuma attēlošana tika izmantota atomu difūzijas mērījumiem, kas tika izšķirti telpiski un laikā [35, 36, 37]. Tams un Hapers pirmo reizi kartēja magnētiskā lauka izolīnijas ar fluorescences fotogrāfisko ierakstu [38], ierosinot Na tvaikus ar vairāku frekvenču optisko lauku (frekvenču ķemmi) homogēnā un nehomogēnā magnētiskajā laukā. Viņi pielietoja šo metodi optisko *rf* spektru vizuālai analīzei [38, 39]. Vēlāk tika izstrādātas kvantitatīvās digitālās metodes, kas balstās uz LSM kameru izmantošanu lauka vizualizācijai fluorescencē [40] un absorbcijas eksperimentos [41]. Atšķirībā no iepriekšējiem lauka kartēšanas eksperimentiem, kas izmantoja bi- vai polihromatisko optisko lauku, lai sagatavotu neabsorbējošu (nefluorescējošu) stāvokli, šajā darbā tiek izmantots monohromatiskais lāzera starojums. Cēzija D_1 līnijas $F_g=4 \rightarrow F_e=3$ pārejas optiskā pumpēšana ar *lineāri polarizētu* gaismu rada spinu izkārtošanu, kas ir orientēta gar gaismas polarizācijas virzienu, bet pumpēšana ar *cirkulāri polarizētu* gaismu sagatavo reizē gan vektora polarizāciju (orientāciju), gan otrā ranga tenzora polarizāciju (izkārtošanu) gar gaismas izplatīšanās virzienu \hat{k} . Jāuzsver, ka izkārtošanas ieguldījums ir niecīgs salīdzinājumā ar orientāciju šai konkrētajai supersikstruktūras pārejai [28]. Statiskais magnētiskais lauks, kas pielikts optiski polarizētai videi, ietekmē šīs vides polarizācijas pakāpi; šī parādība pazīstama kā pamatstāvokļa Hanlē efekts. Tā kā fluorescences intensitāte ir atkarīga gan no magnētiskā lauka amplitūdas, gan no tā relatīvās orientācijas attiecībā pret spinu polarizācijas virzienu, nehomogēns magnētiskais lauks rada telpiski dažādu fluorescences ainu (Hanlē fona ainu). Apstarojot paraugu nehomogēnajā magnētiskā laukā ar papildus monovai polihromatisko *rf* lauku, šis paraugs depolarizējas vietā, kur lokālā Larmora frekvence atbilst *rf* frekvencei, liekot fluorescēt apgabalus ar noteiktu magnētiskā lauka stipruma moduli. Tādā veidā fluorescences ainas ieraksts ar LSM kameru ļauj kartēt magnētiskā lauka potenciāla līnijas.

2.2. LIF intensitāšu 2D sadalījuma aprēķini

Fluorescences jauda P_0 , kas inducēta lāzera starojumam šķērsot *spin-orientētus* atomāros tvaikus, ir dota ar izteiksmi [21, 22]

$$dP_f^{(1)} = P_0 \kappa_0 L (1 - \alpha^{(1)} m_{1,0}) f^{(1)}(\Omega) d\Omega, \quad (9)$$

kur κ_0 ir atomārās (mūsu gadījumā, Doplera paplašinātas) līnijas maksimālās optiskās absorbcijas koeficients, L ir fluorescences detektorā projicētās apgaismotu tvaiku kolonnas garums, un $d\Omega$ ir no detektora redzamais telpiskais leņķis. Augšējais indekss (1) attiecas uz $k=1$ un apzīmē spinu polarizācijas (orientācijas) vektora raksturu. Funkcija $f^{(1)}(\Omega)$ raksturo fluorescences intensitātes leņķisko sadalījumu. Darbā pieņemts, ka fluorescences sadalījums ir izotropis, tādējādi $f^{(1)}(\Omega)$ ir nemainīga. Parametrs $\alpha^{(1)} = \alpha_{F_g, F_e}^{(1)}$ ir rakstā [21] ieviestā orientāciju raksturojoša jauda, kas atkarīga no noteiktas ierosinātās pārejas leņķiskā momenta kvantu skaitļiem. Spinu orientācija aprakstīta ar garenisko vektora multipolu momentu $m_{1,0}$, kas ir vienīgais anizotropais parametrs, ja nav ņemta vērā ierosinātas vides izkārtošana ar cirkulāri polarizētu gaismu. Izejot no iepriekš minētā, reģistrētās fluorescences kopējo jaudu var izteikt kā

$$P_f^{(1)} = \int \frac{dP_f^{(1)}}{d\Omega} d\Omega \equiv A^{(1)} \left(1 - \alpha^{(1)} m_{1,0} \right). \quad (10)$$

Tādā pašā veidā var aprakstīt spin-izkārtotu atomu fluorescenci

$$P_f^{(2)} = \int \frac{dP_f^{(2)}}{d\Omega} d\Omega \equiv A^{(2)} \left(1 - \alpha^{(2)} m_{2,0} \right), \quad (11)$$

kur atomu multipolu moments $m_{2,0}$ ir gareniskā spinu izkārtošana, kura veidojas optiskās pumpēšanas ar lineāri polarizētu gaismu rezultātā. Tā ir orientēta gar gaismas polarizācijas vektoru. $\alpha^{(2)}$ ir izkārtošanos raksturojoša jauda, kas ieviesta rakstā [22].

Pielikts patvaļīga virziena magnētiskais lauks maina vides spinu polarizācijas pakāpi un virzienu. Kā tika parādīts pētījumā [21], stacionārā stāvokļa multipola momentu vērtība $m_{1,0}^{ss}$, kas ir gareniskā orientācija PSHE rezultātā, var tikt aprakstīta ar Hanlē funkciju

$$\mu^{(1)}(\beta_{\parallel}, \beta_{\perp}) \equiv \frac{m_{1,0}^{ss}}{m_{1,0}^{eq}} = \frac{1 + \beta_{\parallel}^2}{1 + \beta_{\parallel}^2 + \beta_{\perp}^2}, \quad (12)$$

kur β_{\parallel} un β_{\perp} apzīmē garenisko un šķērsenisko (attiecībā pret \vec{k}) magnētiskā lauka komponentes, kas tiek izteiktas bezdimensiju vienībās, atbilstoši

$$\beta_{\parallel} \equiv \frac{\omega_{\parallel}}{\gamma} = \frac{\gamma_F |\vec{B}_{\parallel}|}{\gamma} \quad \text{un} \quad \beta_{\perp} \equiv \frac{\omega_{\perp}}{\gamma} = \frac{\gamma_F |\vec{B}_{\perp}|}{\gamma}. \quad (13)$$

Šeit ir pieņemts, ka gareniskās un šķērseniskās orientācijas relaksācijas ātrumi ir identiski ($\gamma_1 = \gamma_2 \equiv \gamma$). Larmora frekvences $\omega_{\parallel, \perp}$ cēzija pamatstāvoklī ir saistītas ar attiecīgā lauka komponentēm caur žiromagnētisko attiecību $\gamma_F \approx (2\pi) 3.5 \text{ Hz/nT}$. Lai $\mu^{(1)}(\beta_{\parallel}, \beta_{\perp})$ varētu pieņemt vērtības no 0 līdz 1, vienādojumā (12) ir ieviesta orientācija $m_{1,0}^{eq}$ polarizāciju stabilizējošā gareniskajā laukā ($\beta_{\parallel} \gg \beta_{\perp}$).

Kad atomāra vide ir pakļauta nehomogēnam magnētiskajam laukam, β_{\parallel} un β_{\perp} ir atkarīgi no pozīcijas \vec{r} atomārā vidē, no kuras tiek izstarota fluorescences. Šīs fluorescences jaudu, kas izstarota no atomāras vides tilpuma elementa (vokseļa) pozīcijā \vec{r} , var uzrakstīt kā

$$P_f^{(1)}(\vec{r}) = A^{(1)} \left(1 - \alpha^{(1)} m_{1,0}^{eq} \mu^{(1)}(\beta_{\parallel}, \beta_{\perp}) \right) \quad (14a)$$

$$\propto 1 - C^{(1)} \frac{1 + \beta_{\parallel}^2(\vec{r})}{1 + \beta_{\parallel}^2(\vec{r}) + \beta_{\perp}^2(\vec{r})}, \quad (14b)$$

ar

$$C^{(1)} = \frac{B^{(1)}}{A^{(1)}} = \frac{\alpha^{(1)} m_{1,0}^{eq}}{P_0 \kappa_0 L \int f^{(1)}(\Omega) d\Omega}. \quad (15)$$

Lai reģistrētu no kvazi divdimensiju tilpuma izstarotu fluorescenci, kas ierosināta ar lāzera starojumu kubveidīgā tvaiku šūnā tai atrodoties nehomogēnā magnētiskajā laukā, tika izmantota LSM kamera. Tādā gadījumā gaismas intensitātes sadalījumu uz LSM virsmas var aprēķināt, ievietojot vienādojumā (14b) noteikta fluorescējoša tilpuma (kas atrodas pozīcijā \vec{r}) zināmas $\beta_{\parallel}(\vec{r})$ un $\beta_{\perp}(\vec{r})$ telpiskās atkarības.

Polarizēti atomi izstaro vāju fluorescenci, bet nepolarizēti atomi izstaro spēcīgāku fluorescenci. Lokāli magnētiskie lauki, kas ir orientēti gar spinu polarizācijas asi, stabilizē to, tādējādi vokseļi, kas satur polarizētus atomus, rada tumšāku vietu LSM attēlā. Zemāk aprakstītie eksperimenti liecina, ka darbā izstrādātais modelis dod labu kvantitatīvu novērotās fluorescences prognozi dažādos nehomogēnos laukos. Grūtāk veicams ir pretējs uzdevums, tas ir, noteikt magnētiskā lauka sadalījumu no reģistrētas fluorescences ainās. Darbā tiek piedāvāta alternatīva metode, kas ļauj viegli vizualizēt un mērit magnētiskā potenciāla līnijas. Metode balstās uz telpiski selektīvu spinu polarizācijas sabrukšanu magnētiskajā rezonansē. Ir labi zināms, ka vājš oscilējošs magnētiskais lauks $B_1 \cos(\omega_{rf}t)$, ko sauc par radiofrekvences jeb 'rf' lauku, rezonansē maina vides magnetizāciju (spinu polarizāciju), ja tās oscilāciju frekvence sakrīt ar Larmora frekvenci, tas ir, kad $\omega_{rf} = \omega_L(\vec{r})$. Šī parādība ir pazīstama kā magnētiskā rezonanse. Bloha vienādojumu stacionārs risinājums (pieņemot identiskus garenisko un šķērsenisko relaksācijas ātrumus) aprēķina pēc zināmas izteiksmes [42]

$$m_{1,0} = m_{1,0}^{ss} \left(1 - \frac{\sqrt{S_{rf}}}{\delta^2 + S_{rf} + 1} \right) \quad (16)$$

gareniskajai spinu orientācijai, ar $\delta = (\omega_{rf} - \omega_L)/\gamma \equiv \beta_{rf} - \beta$, kur γ ir polarizācijas relaksācijas ātrums. Šeit rf lauka piesātinājuma parametrs S_{rf} ir definēts kā

$$S_{rf} = \left(\frac{\gamma_F B_1}{\gamma} \right)^2 \equiv \beta_1^2. \quad (17)$$

Vienādojumā (16), multipolu momenti $m_{1,0}^{ss}$ pārstāv stacionāra stāvokļa spinu polarizāciju, kas veidojas Hanlē efekta dēļ bez rf lauka ($S_{rf}=0$) un doti ar izteiksmi (12). Tādējādi orientācija kopīgās depolarizācijas dēļ nehomogēnajā laukā un rf laukā ir dota kā

$$m_{1,0} = m_{1,0}^{eq} \frac{1 + \beta_{\parallel}^2}{1 + \beta_{\parallel}^2 + \beta_{\perp}^2} \left(1 - \frac{\sqrt{S_{rf}}}{\delta^2 + S_{rf} + 1} \right). \quad (18)$$

Līdz ar to vienādojuma (14a) aprakstītā fluorescences jauda kļūst vienāda ar

$$P_f^{(1)}(\vec{r}) = A^{(1)} \left(1 - \alpha^{(1)} m_{1,0} \right) \quad (19a)$$

$$= A^{(1)} \left[1 - \alpha^{(1)} m_{1,0}^{eq} \frac{1 + \beta_{\parallel}^2}{1 + \beta_{\parallel}^2 + \beta_{\perp}^2} \left(1 - \frac{\sqrt{S_{rf}}}{\delta^2 + S_{rf} + 1} \right) \right] \quad (19b)$$

$$= A^{(1)} - B^{(1)} \frac{1 + \beta_{\parallel}^2}{1 + \beta_{\parallel}^2 + \beta_{\perp}^2} \left(1 - \frac{\sqrt{S_{rf}}}{\delta^2 + S_{rf} + 1} \right) \quad (19c)$$

$$\propto 1 - C^{(1)} \frac{1 + \beta_{\parallel}^2}{1 + \beta_{\parallel}^2 + \beta_{\perp}^2} \left(1 - \frac{\sqrt{S_{rf}}}{(\beta_{rf} - \beta)^2 + S_{rf} + 1} \right), \quad (19d)$$

kas reducējas līdz vienādojumam (14b) pie $S_{rf} = 0$.

Nehomogēnajā laukā $\vec{\beta}(\vec{r}) = \vec{\beta}_{\parallel}(\vec{r}) + \vec{\beta}_{\perp}(\vec{r})$ vienādojuma (19d) parametri β_{\parallel} , β_{\perp} , $\beta = \sqrt{\beta_{\parallel}^2 + \beta_{\perp}^2}$ ir atkarīgi no \vec{r} , kamēr tika pieņemts ka $S_{rf} = \beta_1^2$ ir homogēns. Kad spin-polarizētu atomu ansamblis nehomogēnā magnētiskajā laukā tiek apstarots ar rf lauku, šis lauks depolarizē vidi vietās \vec{r} , kur lokālā magnētiskā lauka $\vec{\beta}$ modulis $\beta = \beta_{rf} = \omega_{rf}/\gamma_F$, tādējādi LSM attēlā šīs vietas parādīsies ar lielāku intensitāti. Kad fluorescences plakne nofotografēta ar LSM kameru, ir iespējams vizualizēt šajā plāknē pastāvīgā magnētiskā lauka $|\vec{\beta}|$ izointensitātes līnijas.

Jāņem vērā, ka pastāvīgā $|\vec{\beta}|$ līnijas pārstāv magnētisko skalāro potenciālu $\Psi(\vec{r})$, no kura magnētiskais lauks (no strāvas brīvos reģionos) varētu

būt iegūts kā $\vec{B}(\vec{r}) = -\mu_0 \vec{\nabla} \Psi(\vec{r})$. Pēc parastas laboratorijas prakses, darbā magnētiskās indukcijas vektors \vec{B} tiek saukts par ‘magnētiskā lauka’ vektoru.

Optiskā pumpēšana ar lineāri polarizētu gaismu rada garenisko izkārtošanu $m_{2,0}^{eq}$, kas ir orientēta gar gaismas polarizāciju. Rakstā [22] tika parādīts, ka patvaļīga lieluma un orientācijas magnētiskais lauks veicina stacionāru magnetizāciju $m_{2,0}^{ss}$, kas ir aprakstīta ar izteiksmi

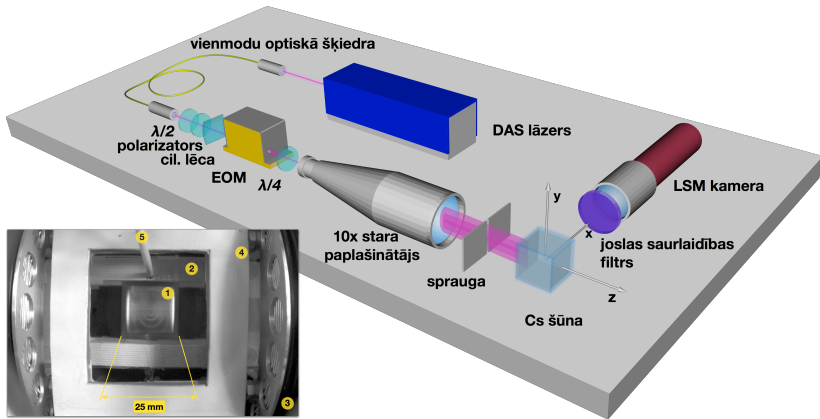
$$\mu^{(2)}(\beta_{\parallel}, \beta_{\perp}) \equiv \frac{m_{2,0}^{ss}}{m_{2,0}^{eq}} = \frac{1}{4} + \frac{3}{4} \frac{1 + 8\beta_{\parallel}^2 + 16\beta_{\parallel}^4}{1 + 4\beta_{\parallel}^2 + 4\beta_{\perp}^2} - 3 \frac{\beta_{\parallel}^2 + \beta_{\parallel}^4}{1 + \beta_{\parallel}^2 + \beta_{\perp}^2}, \quad (20)$$

kur $0 \leq \mu^{(2)} \leq 1$, bet $m_{2,0}^{eq}$ ir orientēta gar lāzera polarizāciju izkārtošana, kas veidojās stabilizējošā ($\beta_{\parallel} \gg \beta_{\perp}$) laukā optiskās pumpēšanas rezultātā. Jāņem vērā, ka lineāri polarizētas pumpēšanas un zondēšanas gaismas gadījumā, β_{\parallel} attiecas uz magnētiskā lauka komponenti gar lāzera polarizāciju, bet β_{\perp} ir polarizācijai perpendikulāra lauka modulis. Pēc analogijas ar iepriekšējo gadījumu, magnētiskās rezonanses pārejas noved pie fluorescences signāla, kas izteikts kā

$$P_f^{(2)}(\vec{r}) \propto 1 - C^{(2)} \left(\frac{1}{4} + \frac{3}{4} \frac{1 + 8\beta_{\parallel}^2 + 16\beta_{\parallel}^4}{1 + 4\beta_{\parallel}^2 + 4\beta_{\perp}^2} - 3 \frac{\beta_{\parallel}^2 + \beta_{\parallel}^4}{1 + \beta_{\parallel}^2 + \beta_{\perp}^2} \right) \times \left(1 - \frac{\sqrt{S_{rf}}}{(\beta_{rf} - \beta)^2 + S_{rf} + 1} \right), \quad (21)$$

ar

$$C^{(2)} = \frac{\alpha^{(2)} m_{2,0}^{eq}}{P_0 \kappa_0 L \int f^{(2)}(\Omega) d\Omega}. \quad (22)$$



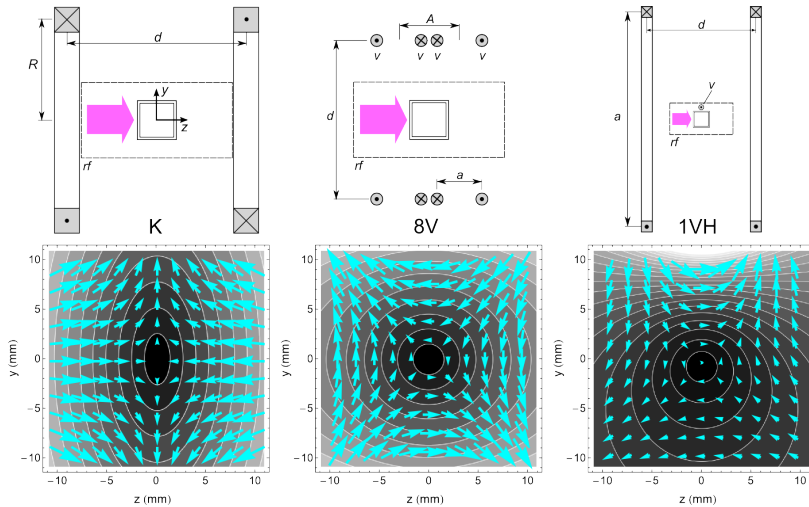
4. attēls. Shematisks iekārtas zīmējums (bez magnētiskā lauka spolēm). Fotografija rāda iekārtas centrālo daļu, kāda tā ir redzama no LSM kameras. Var izšķirt: kubveida tvaiku šūnu ar fluorescences gredzenu struktūru, kas veidojas 1VH lauka konfigurācijā (1); vienas no rf spoļu pamatni (2); kvadrupola lauka spoles (3); 8V-konfigurācijas astoņu vadu pamatni (4); un 1VH lauka konfigurācijas stieņa galu (5).

2.3. Iekārta magnētisko skalāro potenciālu attēlošanai

Shematiska eksperimentālā iekārta ir parādīta 4. attēlā. Koordinātu sistēma šī eksperimenta aprakstam izvēlēta tādā veidā, lai lāzera stara virziens \vec{k} būtu gar \hat{z} , bet x ass būtu horizontālā virzienā (perpendikulāri \vec{k}) un \hat{z} būtu vertikālā virzienā. Koordinātu sākums izvēlēts optiskās šūnas centrā.

Eksperimentā tika izmantots 894 nm starojums no dalītās atgriezeniskās saites (DAS) lāzera, kura stars tika pievadīts pie optiskās iekārtas ar vienmodas optisko šķiedru. Pēc šķiedras izejas kolimētā stara intensitāte bija ≈ 1 mW. DAS lāzera frekvences stabilitāte bija pietiekoša, lai veiktu mērījumus bez papildus stabilizēšanas, bet labākai veiktspējai lāzera frekvence tika aktīvi stabilizēta piesaistot to cēzija D_1 līnijas $F=4 \rightarrow F'=3$ supersīkstruktūras pārejas frekvencei.

Kolimētais izejošs no šķiedras stars tika sagatavots ar $\lambda/2$ -plāksnes, polarizatora un $\lambda/4$ -plāksnes kombināciju, kas ļāva neatkarīgi kontrolēt lāzera jaudu un polarizāciju. Ar starā pēc polarizatora ievietotu cilindrisko lēcu lāzera stara profils tika izstiepts līdz elipsoīda formai un pēc tam $10\times$ paplašināts ar sfērisku lēcu teleskopu. Pirms ieešanas optiskajā šūnā, tika veidota ar 1.2 mm platu spraugu paplašinātā lāzera stara profila šaura vertikāla josla. Tādējādi, gaismai ienākot šūnā, bija krasi definētas robežas novērošanas virzienā, bet tās vertikālam (y) intensitātes profilam bija Gausa forma ar pusmaksimuma pilnu platumu (PMPP) 15 mm. Optiskā šūna, kurai bija kubiskā forma (iekšējais tilpums $22\times 22\times 22$ mm³) un pieci optiskas



5. attēls. Augšējā rindā: Trīs magnētiskā lauka konfigurācijas $x=0$ plaknes šķērs griezumā. No kreisās uz labo pusi: Kvadrupolu (K), astoņu vadu (8V), un viena vada lauks Helmholca laukā (1VH) konfigurācijas. Katras konfigurācijas relatīvie izmēri ir proporcionāli, izņemot vadus (v), kuru diametrs ir palielināts 3 reizes. Kubiskā optiskā šūna atrodas katras spoļu konstrukcijas centrā. Pārtrauktie taisnstūri apzīmē divas rf spoles, kas tiek nobīdītas no $x = 0$ plaknes par ± 11 mm. Apakšējā rindā attēloti aprēķinātie magnētiskā skalārā potenciāla kontūru grafiki tam $x = 0$ plaknes apgabalam, kas atrodas šūnas robežās. Šie kontūru grafiki pārklāti ar atbilstošiem magnētiskā lauka līniju vektoru grafikiem.

kvalitātes lodziņi no pireksa stikla, saturēja piesātinātus cēzija tvaikus istabas temperatūrā kopā ar Ar (8 mbar) un Ne (45 mbar) bufera gāzes maisījumu.

Lai kompensētu visas Zemes magnētiskā lauka komponentes, tika izmantoti trīs savstarpēji perpendikulāri Helmholca kvadrātveida spoļu pāri (300×300 mm²). Mainīgs lauks tika veidots ar divām taisnstūra (44×100 mm²) spolēm, atdalītām ar 22 mm attālumu, ko vadīja viens sinusa formas signāls vai tādu signālu superpozīcija no programmējama funkciju ģeneratora. Lietojot daudzkomponenšu rf lauku, tika ņemta vērā no frekvences atkarīga rf spoļu pretestība, programmējot katram frekvences komponentam atbilstošas sprieguma amplitūdas, kas nodrošināja tiem vienādas strāvas spolēs.

Magnētiskā lauka kartēšanas eksperimentam tika sagatavoti trīs veidu nehomogēni lauki, izmantojot trīs atšķirīgas spoļu un vadu konfigurācijas, kā parādīts 5. attēlā.

Pirmkārt, divas apaļas spoles tika barotas ar identiskām pretējas zīmes strāvām, tādējādi radot kvadrupola lauku. Šī lauka dēļ šāda spoļu izmantošana tiek saukta darbā par K konfigurāciju. Šāds lauks ir labi aprakstīts

šūnas dimensijās ar funkciju $\vec{B}(\vec{r}) = B_0(x\hat{e}_x + y\hat{e}_y - 2z\hat{e}_z)$, kur $\vec{r} = (x, y, z)$. Augšējais grafiks 5. attēla kreisajā slejā attēlo K konfigurāciju kopā ar spektroskopijas šūnu. Magnētiskā lauka līnijas $x = 0$ plaknē ir parādītas tās pašas slejas apakšā ar bultiņām, kuru izmēri ir proporcionāli magnētiskā lauka intensitātei. Lauka līnijas ir attēlotas $|\vec{B}|$ kontūru grafikiem pa virsu. Tā kā skalārā magnētiskā potenciāla virsmas ir elipsoīdi ar asu attiecību 2:1 pie $y-z$ un $x-z$ koordinātēm, ekvipotenciālas līnijas $x = 0$ plaknē arī ir elipses ar to pašu proporciju. Raksturīga K konfigurācijas iezīme ir nemainīgi lauka gradienti dB_z/dz un dB_y/dy ar vērtību attiecību $-2:1$ gar z un y asīm, attiecīgi.

Otrkārt, astoņi gari vadi ir sakārtoti kā parādīts 5. attēla centrālās slejas augšpusē (8V konfigurācija). Tie veido vienāda lieluma homogēnus gradientus dB_y/dz un dB_z/dy , kas attēloti ar lauka līnijām attēla apakšējā daļā. Eksperimentālajā iekārtā vadi bija 90 mm gari vara stieņi. 8V konfigurācijas ekvipotenciālās līnijas $x=0$ plaknē $y=0$ un $z=0$ tuvumā ir aplī.

Trešā lauka konfigurācija sastāv no divām kvadrātveida spolēm Helmholca konfigurācijā, kas veido homogēnu lauku gar \hat{z} , kas pārklājas ar lauku no viena vadītāja stieņa (v) gar \hat{x} virzienu (1VH konfigurācija). Stieņa strāvas virziens izvēlēts tā, lai kompensētu homogēnu lauku vietā netālu no šūnas centra. Šādu lauka konfigurāciju, kas pazīstama kā ‘z-vada slazds’, parasti izmanto auksto atomu magnētiskajai slazdošanai atomu mikroshēmās (skat., piemēram, [43]), jo, mainot vada un Helmholca spoļu strāvas relatīvo lielumu, var kontrolēt nulles lauka punkta pārvietošanos pa vertikāli (y) virzienā. Spoļu konfigurācija un tipiska lauka koncentrisku potenciālo līniju aina parādīta 5. attēla labajā slejā.

Lāzera inducētā fluorescence no apstarotā cēzija tvaiku slāņa tika nofotografēta ar 16 bitu LSM kameru (640×480 pikseļi), kuras novērošanas virziens bija gar \hat{x} (4. attēls). Tālummaiņas objektīvs tika uzstādīts tā, lai LSM sensorā tiktu reģistrēts apgabals, kas būtu nedaudz lielāks nekā 25×25 mm² liels šūnas (ārējs) šķērsgriezums. Pētītā LIF intensitātes izmaiņa, izkliedētās uz optiskās šūnas sānu logiem gaismas spilgtu apgabalu dēļ (skat. fotogrāfiju 4. attēlā), aizņēma $\approx 10\%$ no $65'536$ kamerā reģistrēto pelēko toņu. Jāņem vērā, ka ar parasto 8 bitu kameru, šīs izmaiņas attēlotos tikai ≈ 25 pelēkos toņos. Lai samazinātu telpas apgaismojuma ietekmi, pirms objektīva tika uzstādīts 894 nm interferences filtrs.

Tipiska datu reģistrēšanas procedūra eksperimentos ar depolarizējošo rf lauku bija sekojoša: tika ierakstīti divi attēli ar līdzīgu ekspozīcijas laiku, kas parasti bija 20–30 s. Proti, viens attēls (galvenais attēls) ar pieliktu šūnai magnētiskā lauka gradientu un rf lauku, un otrs attēls (atbalsta attēls) bez pielikta rf lauka. Abi attēli tika reducēti, lai parādītu tikai šūnas iekšējo 22×22 mm² lielu šķērsgriezumu. Pēc tam atbalsta attēls tika pa pikseļiem atņemts no galvenā attēla. Lai aizpildītu visu pelēko krāsu diapazonu no balta līdz melnai, šai diferenciālā attēlā tika pielāgoti pelēkie toņi, piešķirot 0

tumšākam pikselim un 1 gaišākam pikselim, un lineāri sadalot visus starpposma pelēkos toņus [0,1] intervālā.

Pamatojoties uz vienādojumu (19), *orientētu* atomu fluorescences diferenciālais attēls var tikt aprakstīts ar izteiksmi

$$\begin{aligned} \delta P_f^{(1)}(\vec{r}) &= P_f^{(1)}(\vec{r}, S_{rf}, \beta_{\parallel}, \beta_{\perp}) - P_f^{(1)}(\vec{r}, S_{rf}=0, \beta_{\parallel} \gg 1, \beta_{\perp}=0) \\ &\propto C^{(1)} \left[\frac{1 + \beta_{\parallel}^2(\vec{r})}{1 + \beta_{\parallel}^2(\vec{r}) + \beta_{\perp}^2(\vec{r})} \left(1 - \frac{\sqrt{S_{rf}}}{[\beta_{rf} - \beta(\vec{r})]^2 + S_{rf} + 1} \right) \right], \end{aligned} \quad (23)$$

kur katra vokseļa lokālā magnētiskā lauka komponente β_{\parallel} attēlotā tvaiku slāņa pozīcijā \vec{r} nosaka fluorescences intensitāti. Pie $C^{(1)}=1$ šī attēla pikseļu intensitātes atrodas diapazonā [0, 1], līdzīgi kā eksperimentālos attēlos.

Tādā pašā veidā iegūstam *izkārtotu* atomu fluorescences diferenciālo attēlu

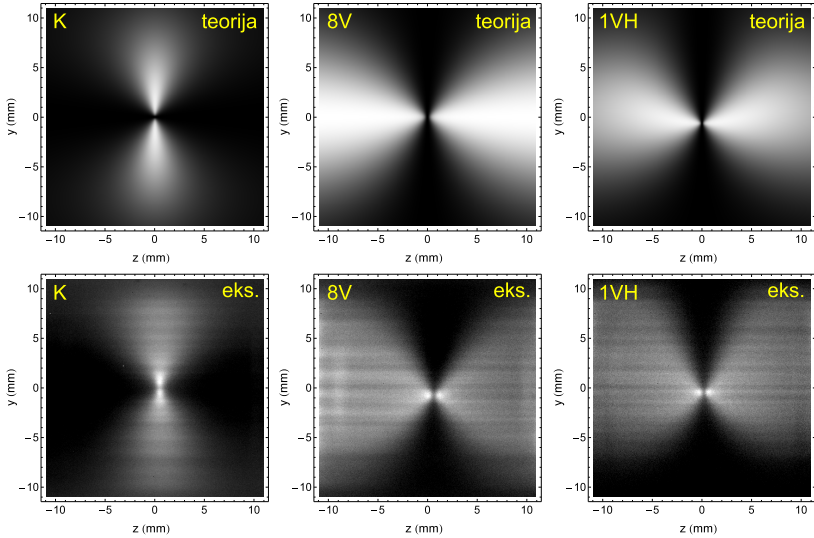
$$\begin{aligned} \delta P_f^{(2)}(\vec{r}) &= P_f^{(2)}(\vec{r}, S_{rf}, \beta_{\parallel}, \beta_{\perp}) - P_f^{(2)}(\vec{r}, S_{rf}=0, \beta_{\parallel} \gg 1, \beta_{\perp}=0) \\ &\propto C^{(2)} \left[1 - \left(\frac{1}{4} + \frac{3}{4} \frac{1 + 8\beta_{\parallel}^2 + 16\beta_{\parallel}^4}{1 + 4\beta_{\parallel}^2 + 4\beta_{\perp}^2} - 3 \frac{\beta_{\parallel}^2 + \beta_{\parallel}^4}{1 + \beta_{\parallel}^2 + \beta_{\perp}^2} \right) \times \right. \\ &\quad \left. \times \left(1 - \frac{\sqrt{S_{rf}}}{(\beta_{rf} - \beta)^2 + S_{rf} + 1} \right) \right], \end{aligned} \quad (24)$$

kur, līdzīgā veidā, pie $C^{(2)}=1$ iegūstam attēlus ar pikseļu vērtībām diapazonā no 0 (melns) līdz 1 (balts).

Eksperiments, kur rf magnētiskais lauks netika izmantots, atbalsta attēli tika ierakstīti, aizstājot nehomogēnu magnētisko lauku ar polarizāciju stabilizējošu garenisku lauku $\beta_{\parallel} \gg 1 \gg \beta_{\perp}$. Izmantojot vienādojumu (14), var redzēt, ka diferenciālais attēls šajā gadījumā var tikt uzrakstīts kā

$$\begin{aligned} \delta P_f^{(1)}(\vec{r}) &= P_f^{(1)}(\vec{r}, \beta_{\parallel}, \beta_{\perp}) - P_f^{(1)}(\vec{r}, \beta_{\parallel} \gg 1, \beta_{\perp}=0) \\ &\propto \frac{\beta_{\perp}^2(\vec{r})}{1 + \beta_{\parallel}^2(\vec{r}) + \beta_{\perp}^2(\vec{r})}. \end{aligned} \quad (25)$$

Eksperimentālie rezultāti nākamajā apakšnodaļā ir modelēti ar vienādojumiem (23–25), koriģējot tikai rf lauka piesātinājuma parametru S_{rf} un spini relaksācijas ātrumu γ . Lai ņemtu vērā lāzera stara nehomogēno vertikālu intensitātes sadalījumu šūnā, teorētiskās fluorescences attēli vienādojumos (23–25) tika reizināti ar Gausa funkciju $\exp[-y^2/2\sigma_y^2]$, kur pilnais platums (PMPP) σ_y ir 15 mm.

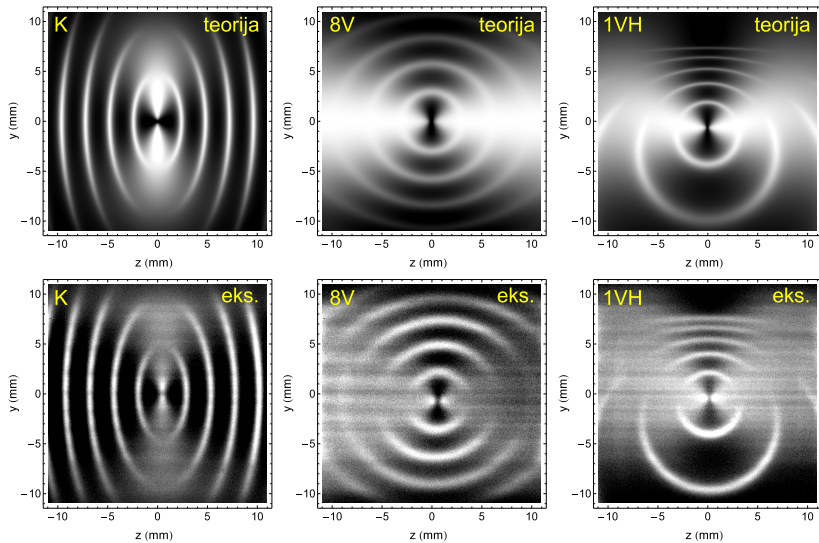


6. attēls. Divdimensiju fluorescences sadalījumi, ierosināti ar cirkulāri polarizētu lāzera gaismu trīs nehomogēnu lauku konfigurācijās, kas parādītas 5. attēlā. No kreisās uz labo pusi: kvadrupola lauks (K), astoņu vadu lauks (8V), un viena vada lauks Helmholca laukā (1VH). Augšējā rindā ir LIF sadalījumi aprēķināti ar vienādojuma (25) palīdzību, bet apakšējā rindā ir eksperimentāli reģistrētas fluorescences ainas.

2.4. Divdimensiju fluorescences sadalījumi

Fluorescence, kas tika ierosināta šūnā ar cirkulāri polarizētu gaismu trijās iepriekš aprakstītās nehomogēnu lauku konfigurācijās attēlota sestā attēla apakšējā rindā. Šie fluorescences ainas attēli darbā dēvēti par ‘Hanlē fona fluorescences’ attēliem. Augšējā rindā ir ar izteiksmi (25) modelēti attēli, izmantojot telpisko lauka sadalījumus $\beta_{\parallel}(\vec{r})$ un $\beta_{\perp}(\vec{r})$ trijās spoļu konfigurācijās. Indeksi \parallel un \perp apzīmē lokālā magnētiskā lauka komponenti, kas ir paralēla vai perpendikulāra ierosmes gaismas \hat{k} vektoram. Novērotās un modelētās fluorescences ainas ir līdzīgas, izņemot apgabalu pie $\vec{r} = 0$, kur tumšais plankums ir nedaudz mazāk pagarināts eksperimentālajos attēlos. To varētu izskaidrot ar atomu izkārtošanas nelielo ieguldījumu, kas šai modelī nav ņemts vērā.

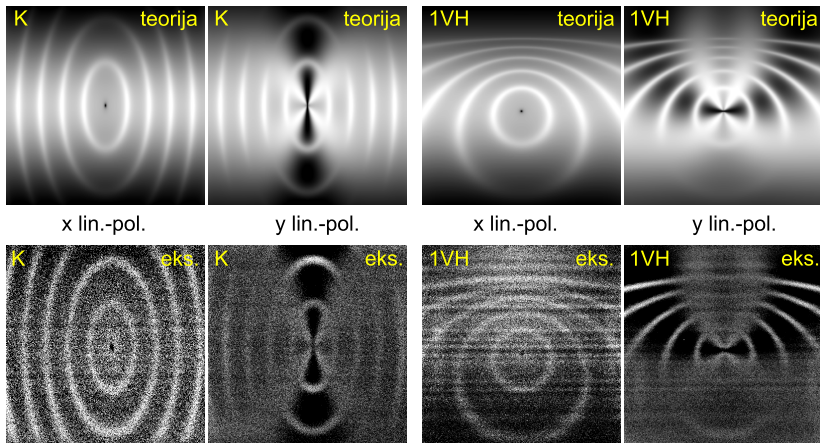
Ierosinātas ar rf lauku, kas oscilē ar ω_{rf} frekvenci, magnētiskās rezonanses pārejas depolarizē atomus vietās, kur ir izpildīts magnētiskās rezonanses nosacījums $\beta = |\vec{\beta}| = \sqrt{\beta_{\parallel}^2 + \beta_{\perp}^2} \equiv \omega_{rf} / \gamma_F$. Tāda depolarizācija noved pie pastiprinātas fluorescences intensitātes, tādējādi apgaismojot reģionus ar pastāvīgu magnētiskā lauka stiprumu ($\beta = \text{const}$), tas ir, vizualizējot gaišas



7. attēls. Ierosinātas ar *cirkulāri polarizēto* gaismu fluorescences depolarizācija magnētisku rezonansu dēļ trijās nehomogēnu lauku konfigurācijās. Daudzkomponentu rf -lauks tika izmantots, lai telpiski-selektīvi depolarizēt atomus; gaišās līnijas reprezentē skalāros magnētiskos ekvipotenciālos līnijas. Augšējā rindā attēloti LIF sadalījumi, aprēķināti ar vienādojumu (23), bet apakšējā rindā attēlotas atbilstošās izmērītās diferenciālās fluorescences ainas.

skalārās ekvipotenciālās līnijas. Lai pārbaudītu šo pieeju, šūnai tika pielikts rf magnētiskais lauks, kas sastāvēja no piecu vienmērīgi izvietotu harmonisko svārstību ķemmes.

K un 1VH konfigurācijās rf lauks veidojas no fundamentālas frekvences $\omega_{rf}/2\pi=65$ kHz un četrām tās harmonikām, bet mērījumos ar 8V lauku tika izmantota 35 kHz pamatfrekvence un tās harmonikas. Grafiki 7. attēla apakšējā rindā parāda eksperimenta rezultātus, kur spožas ekvipotenciālās līnijas skaidri izceļas uz gludas Hanlē fona fluorescences ainas. Fluorescence, kas ir modelēta ar vienādojumu (23), parādīta 7. attēla augšējā rindā. Rezultāti tika izvēlēti, lai parādītu, ka modeļa aprēķini ne tikai reproducē gaišās potenciālās līnijas, bet arī aiz tām esošo Hanlē fona fluorescences ainu.



8. attēls. Ierosinātas ar *lineāri polarizēto* gaismu fluorescences depolarizācija magnētisku rezonansu dēļ kvadrupola (K) laukam un viena vada laukam Helmholtca laukā (1VH), attiecīgi. Fluorescences attēli tiek parādīti lāzera polarizācijai, kas ir paralēla (x) un perpendikulāra (y) kameras novērošanas virzienam. Tiek izmantots daudzkomponentu rf lauks, kas sastāv no 65 kHz pamatfrekvences un tās harmonikām, lai telpiski-selektīvi depolarizētu atomus. Augšējā rindā attēloti LIF sadalījumi, aprēķināti ar vienādojumu (24), bet apakšējā rindā attēlotas atbilstošās izmērītās diferenciālās fluorescences ainas.

Tika ierakstīti arī fluorescences attēli, kur fluorescences ierosināta ar *lineāri* polarizētu gaismu. Tā radīja atomu izkārtošanu, kas savukārt tika telpiski-selektīvi iznīcināta ar rezonējošu rf magnētisko lauku. Lineārās polarizācijas izmantošana ievieš papildu brīvības pakāpi, proti, polarizācijas virziena un gradientu spoļu simetrijas ass (ja tāda ir) relatīvu orientāciju.

Astotajā attēlā parādīti rezultāti un modelēšana (pēc vienādojuma (24)) kvadrupola (K) laukam un viena vada laukam Helmholtca laukā (1VH). Novērota teicama saskaņa starp netriviālo modeli un eksperimentāli iegūto ainu. Var atzīmēt, piemēram, tumšo plankumu nulles lauka vietā, kas ir īpaši labi redzams eksperimentos ar x -polarizētu gaismu. Mazāka signāla/trokšņa attiecība eksperimentālajos datos, salīdzinot ar datiem, kas iegūti ar cirkulāri polarizētu gaismu, ir saistīta ar to, ka bufera gāze samazina optisko pumpēšanas efektivitāti ar lineāri polarizētu gaismu.

Fluorescences intensitātes atkarību no gaismas polarizācijas orientācijas var saprast kvalitatīvā veidā šādi. Piemēram, y -polarizētas gaismas ierosmes gadījumā K -konfigurācijā pastāv izkārtošanu stabilizējošs lauks B_y , augošs y virzienā, uz ko norāda 5. attēlā redzamā tumša josla ar augošu platumu, tai attālinoties (gar y) no šūnas centra. No otras puses, ja gaismas polarizācija (tajā pašā K -konfigurācijā) ir gar x , visi lauka komponentes $x = 0$ plaknē (izņemot plankumu pie $y=z=0$) iedarbojas depolarizējoši, līdz ar to veidojot kopumā gaišāku attēlu. Līdzīgi argumenti ļauj saprast tumšos un gaišos apgabalus arī 1VH un 8V konfigurācijās.

Promocijas darbā izstrādātās magnētiskā lauka vizualizācijas metodes telpiskā izšķirtspēja ir tikai ap 1 mm, jo eksperimenti veikti no gadījuma magnētiskajiem laukiem neekranētā vidē. Izšķirtspēju ierobežo laboratorijas magnētiskā lauka fluktuācijas, kas paplašina magnētiskās rezonanses platumu līdz dažiem kHz. Tās pašas šūnas magnētiskās rezonanses platums magnētiski ekranētā vidē ir ap 50 Hz, kā bija noteikts papildus eksperimentā, izmantojot divslāņu μ -metāla ekrānu. Pamatojoties uz to, eksperimentu veicot ekranētā vidē, ir sagaidāma telpiskā izšķirtspēja $\Delta z = \sqrt{D/\Gamma_{\text{pump}}} \approx 100 \mu\text{m}$.

3. Koherentās apdzīvotības slazdošana molekulās

3.1. Augstāko rangu multipolu novērošana molekulās

Magnetooptiskie efekti gāzēs iepriekš pētīti, galvenokārt, atomārā vidē. Kaut magnetooptiskās rezonanses molekulās parādās tādu pašu iemeslu dēļ kā atomos – leņķiskā momenta magnētisku apakšlīmeņu Zēmāna koherenču dēļ, mazas molekulas (tādas kā divatomu molekulas) paver jaunas perspektīvas šo efektu pētījumos. Molekulāriem stāvokļiem divatomu molekulās parasti piemīt īpašības, kas ievērojami atšķiras no atomāru stāvokļu īpašībām.

Leņķiskā momenta stāvokļi ar $J \sim 100$ uzvedas gandrīz klasiski, kas nozīmē, ka šī leņķiskā momenta projekcija uz kvantēšanas asi mainās gandrīz nepārtraukti. Piemēram, pie $J \sim 100$ ir $2J + 1 = 201$ atļautu projekcijas vērtību. Atšķirībā no atomāriem stāvokļiem ar mazām leņķiskā momenta vērtībām J , molekulās leņķisko momentu dažreiz var aprakstīt pat kā klasisko leņķisko momentu ar precīzi nosakāmu virzienu telpā, kurš izmainās nepārtraukti – skat., piemēram, monogrāfiju [19]. Interesantas perspektīvas paveras pētot molekulārus stāvokļus ar maziem, vidējiem un lieliem leņķiskā momenta kvantu skaitļiem un novērojot, kā kvantu apraksta modelis pakāpeniski sāk sakrist ar klasisko apraksta modeli.

Cits praktisks iemesls, kāpēc molekulāru stāvokļu izpēte būtu sevišķi interesanta, ir to relatīvi mazais magnētiskais moments, jo Landē faktors molekulāros pamatstāvokļos parasti ir $10^{-4} - 10^{-5}$ reizes mazāks nekā atomos. Tas ļauj magnetometrijas metodes, balsfītas uz magnetooptiskajām parādībām

atomos un lietojamas ārkārtīgi vāju magnētisko lauku mērījumos, izmantot lielāku lauku mērīšanai, piemēram, Saules magnētiskā lauka izpētei.

Cita molekulām raksturīga īpašība ir to niecīgi maza supersīkstruktūras sašķelšanās gan pamatstāvokļos, gan ierosinātos stāvokļos. Tā nav sārnu metālu atomos, kuri bieži tiek izmantoti magnetooptisko efektu pētījumos. Molekulu mazā supersīkstruktūras sašķelšanās var krietni atvieglot lāzera un molekulu mijiedarbības analīzi, jo nevajag ņemt vērā starojuma mijiedarbību ar vairākām daļēji pārklājošām supersīkstruktūras pārejām vienlaicīgi.

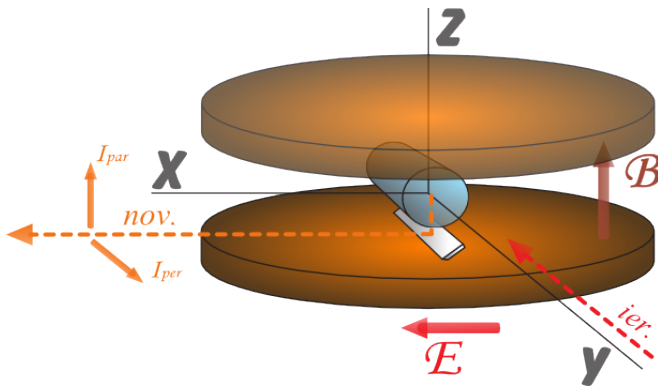
Pirmie tiešie eksperimentālie pamatstāvokļa Hanlē efekta pētījumi tika publicēti rakstā [44], proti, K_2 un Na_2 divatomu molekulu $X^1\Sigma_g^+$ elektroniskajos pamatstāvokļos ar lielu leņķisko momentu $J'' = 73$ un 99 , attiecīgi. Palielinot ārēja magnētiskā lauka intensitāti \vec{B} , kas vērsts perpendikulāri gaismas \vec{E} vektoram, LIF polarizācijas pakāpes izmaiņas tika novērotas nelineāras Q -tipa ierosmes apstākļos ($J' - J'' = 0$) ar daudzmodu lāzeru, kas ierosina kādu no šo sistēmu $B^1\Pi$ (v', J') stāvokļa rotācijas-vibrācijas līmeņiem. Šādos apstākļos tā sauktā pamatstāvokļa optiskā pumpēšana, kas noved pie LIF polarizācijas pakāpes samazināšanas pie $B = 0$, pirmo reizi tika novērota Na_2 molekulai pētījumā [45].

Divatomu molekulās novērotais [44] nelineārais Hanlē signāls tika analizēts izmantojot klasisko pieeju, ko izstrādāja Dukluā (Ducloy) [46] asimptotiskajai robežai $J \rightarrow \infty$. Šī pieeja izmantoja leņķiskā momenta kustības vienādojumus klasiskajam leņķiskā momenta sadalījuma varbūtības blīvumam, ņemot vērā klasiskā leņķiskā momenta \vec{J} precesiju magnētiskajā laukā. Šādas pieejas saistība ar Zēmana koherenci ir apspriesta pētījumā [19]. Lai izskaidrotu šos rezultātus, tika izstrādāts modelis, izvirzot stāvokļa blīvuma matricu rindā pa nereducējamajiem tenzora operatoriem. Tas ļāva interpretēt $B = 0$ tuvumā novērotu papildu šauru nelineārā Hanlē signāla struktūru [44] kā pamatstāvokļa ar $J \gg 1$ sestā ranga polarizācijas momenta izpausmi caur ceturrtā ranga momentu [19]. Kvantu mehānikas un klasiskās pieejas nelineāro Hanlē signālu traktēšanai tiek salīdzinātas rakstā [47] un monogrāfijā [19], izmantojot multipolu momentu kustības vienādojumus.

Viena no promocijas darba motivācijām bija, izmantojot mūsdienu tehniskās iespējas un pēdējos gados attīstītās teorētiskās metodes, detāli izpētīt nelineāro pamatstāvokļa Hanlē efektu divatomu molekulās ar $J \sim 100$ un precizēt īpatnības, kas novērotas iepriekšējos darbos [44, 19]. Mērķis bija izpētīt nelineārās magnetooptiskos rezonanses pie dažādiem ierosmes jaudas blīvumiem un relaksācijas nosacījumiem, kā arī pielāgot šiem eksperimentiem detalizēto teorētisko aprakstu, kas piedāvāts rakstos [48, 49]. Šāds modelis jau bija veiksmīgi piemērots atomiem (skat., piemēram, rakstu [24] un atsauces tajā).

3.2. Iekārta nelineārajai K_2 molekulas spektroskopijai

K_2 molekulas veidojās 8-cm garā paštaisītā stikla šūnā ar piedēkli, kurā atradās kālija izotopu dabisks maisījums. Šūnas diametrs bija 16 mm, un tai abos galos bija plakani un paralēli lodziņi. Lai samazinātu atstarojumus, šūna no ārpusē bija daļēji nokrāsota melnā krāsā. Lai izsūkņētu piesārņojumus, kas izdalās no šūnas sienām, tā tika pievienota caur ventiļu sistēmu pie vakuuma sistēmas. Pati šūna atradās krāsniņā, kura, savukārt, atradās starp elektromagnēta diviem poliēm, starp kuriem bija 5 cm atstarpe. Krāsniņa tika izgatavota no nemagnētiskiem materiāliem un saturēja divus atsevišķi ieslēgtus sildelementus. Temperatūra piedēklī mainījās no 150 līdz 180°C. Lai izvairītos no metāla nogulsnešanās uz šūnas sienām, šūnas temperatūra bija par 30°C lielāka.



9. attēls. Molekulu tvaiku šūna starp diviem elektromagnēta poliēm. Savstarpēji ierosinošā lāzera stara (*ier.*), tā polarizācijas vektora \vec{E}_{exc} , magnētiskā lauka vektora \vec{B} un novērošanas (*nov.*) virzieni.

Q un R tipa $X^1\Sigma_g^+ \rightarrow B^1\Pi_u$ pārejas K_2 molekulā tika ierosinātas ar frekvencēm 15 111.270 un 15 111.940 cm^{-1} , attiecīgi, ar regulējamu, vienmodu, nepārtrauktas ģenerācijas diožu lāzeru ar ārējo rezonatoru. Lāzerā tika izmantota lāzera diode ar centrālo viļņa garumu 660 nm. Tās temperatūra un strāva tika stabilizētas ar kontrolieriem. Lai nodrošinātu augstu lineāras polarizācijas pakāpi, lāzera stars gāja caur Glana-Tompsona prizmu. Lāzera līnijas spektrālais platums tika pieņemts mazāks par 10 MHz. Lāzera stara diametrs tika definēts kā lāzera stara intensitātes sadalījuma pusmaksimuma pilns platums (PMPP), bet lāzera jaudas blīvums tika definēts kā lāzera pilna jauda, dalīta ar lāzera stara šķērsriezuma laukumu, kas tika rēķināts no šī stara diametra. Lāzera stara diametrs bija 1.1 mm; tā šķērsriezums tika mērīts ar stara profila analizatoru. Maksimālā lāzera jauda pirms šūnas bija 22 mW. Lāzera frekvence tika kontrolēta ar viļņa garumu mērītāju, kura

relatīvā precizitāte bija 10 MHz. Lai izvēlētu piemērotu ierosmes frekvenci, $B^1\Pi_u \rightarrow X^1\Sigma_g^+$ pārejas LIF spektri tika pētīti ar ISF-125 lielas izšķirtspējas Furjē transformāciju spektrometru.

LIF no 1.5 cm gara šūnas apgabala tika savākta ar divu lēcu sistēmu ieejošā dubultrežģa monohromatora (ar inverso dispersiju 0.5 nm/mm) ieejas spraugā. Monohromators izdalīja LIF pāreju ar viļņa skaitli 15023.476 cm^{-1} Q ierosmes gadījumā vai 15001.650 cm^{-1} R ierosmes gadījumā. Lai apspiestu blakuslīnijas no citiem līmeņiem, kas bija vienlaikus ierosināti absorbcijas līnijas Doplera profila platuma ietvaros, bija nepieciešams izskaņot lāzera frekvenci no rezonanses par +200 MHz Q ierosmei un +170 MHz R ierosmei. LIF intensitātes tika reģistrētas ar fotoelektronu pavairotāja moduli un impulsu skaitītāju. Elektromagnēti, kurus darbināja divi saslēgti paralēli barošanas avoti, ļāva veidot homogēnu magnētisko lauku B ar intensitāti līdz 0.7 T. Magnētiskais lauks tika kalibrēts ar digitālo magnetometru ar precizitāti līdz $5 \cdot 10^{-4}$ T.

Lai mērītu LIF intensitātes, kas bija polarizētas vai nu paralēli (I_{par}), vai perpendikulāri (I_{per}) ierosinoša lāzera polarizācijas vektoram \vec{E} Hanlē konfigurācijā, pirms monohromatora spraugas tika ievietoti divi pārslēdzami plēves polarizatori. Eksperimentālā ģeometrija parādīta 9. attēlā, attēlojot savstarpēji ierosinoša lāzera stara (ier.), tā polarizācijas vektora \vec{E}_{exc} , magnētiskā lauka vektora \vec{B} un novērošanas (*nov.*) virzienus. Lai reģistrētu fluorescenci magnētiskā lauka virzienā, vienam no elektromagnēta poliēm tika pielīmēts spogulis.

Fluorescence tika reģistrēta skenējot magnētisko lauku no 0 līdz 0.7 T vienā virzienā ar diskrētiem soļiem. Katrā solī signāls tika krāts 2 sekunžu laikā. Tādējādi tipiskais skenējums ilga 40 sekundes, ieskaitot laiku, kas bija nepieciešams pastāvīga magnētiskā lauka izveidošanai. Parasti tika veikti un vidējoti no 40 līdz 80 skenējumu. LIF intensitātes (I_{par} un I_{per}) tika reģistrētas atsevišķi atkarībā no magnētiskā lauka un pēc tam normētas uz I_{par} vērtību pie $B = 0$. Polarizācijas pakāpe tika rēķināta kā $P = (I_{par} - I_{per}) / (I_{par} + I_{per})$, ņemot vērā katru LIF polarizācijas komponenta atšķirīgus zudumus reģistrācijas sistēmā.

3.3. Divatomu molekulām pielāgots teorētiskais modelis

Divatomu molekulu pētīšanai izmantotais teorētiskais modelis tika iepriekš izstrādāts, lai aprakstītu gaišos un tumšos rezonanses sārnu metālu atomu tvaiku šūnās [23, 24]. To detalizētu aprakstu var atrast augstākminētajos rakstos. Šajā darbā ir dots īss modeļa apraksts, uzsverot izmaiņas, kas veiktas, lai to pielietotu divatomu molekulām. Modelis apraksta iekšējo molekulāro dinamiku ar blīvuma matricas ρ palīdzību, kura ir parametriski atkarīga no molekulu masas centra klasiskajām koordinātēm. Blīvuma matricas

ρ evolūcija laikā seko optiskajiem Bloha vienādojumiem (OBEs) [50]:

$$i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t} = [\hat{H}, \rho] + i\hbar \hat{\mathcal{R}}\rho. \quad (26)$$

Hamiltona operators \hat{H} ir ņemts šādā formā: $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_B + \hat{V}$, kur \hat{H}_0 apraksta neperturbēto molekulāro enerģijas struktūru, \hat{H}_B – molekulu mijiedarbību ar statisko magnētisko lauku, un $\hat{V} = -\hat{d} \cdot \vec{E}(t)$ ir dipola mijiedarbības operators, kas apraksta mijiedarbību starp molekulām un ierosinošu starojumu. Relaksācijas operators $\hat{\mathcal{R}}$ ietver spontānās emisijas ātrumu, kas ir vienāds ar ierosinātā stāvokļa spontānās sabrukšanas ātrumu Γ un kombinēto caurlidošanas un sadursmju relaksācijas ātrumu γ . Pēdējo parametru var noteikt pēc ierosinoša lāzera stara diametra, temperatūras un gāzes blīvuma šūnā, kā arī sadursmju efektīvā šķērsgriezuma. Sīkāka informācija par šo novērtējumu ir dota nākamajā apakšnodaļā.

Ierosinošais starojums ir aprakstīts klasiski kā oscilējošs elektriskais lauks ar stohastiski oscilējošu fāzi, kas rada Lorenca formas frekvenču sadalījumu ar pilnu platumu pusmaksimumā $\Delta\omega$. Centrālā frekvence, molekulām esot termiskā kustībā, pārbīdās Doplera efekta rezultātā. Lai iegūtu stohastisko diferenciālvienādojumu sistēmu no (26), pielieto rotējošā viļņa tuvinājumu [51]. Tikai tie vienādojumi, kas raksturo optisko koherenču laika attīstību, satur stohastiskās fāzes mainīgos. Ņemot vērā, ka eksperimentāli novērotas gaismas intensitātes tiek vidējotas laika intervālos, kuri ir lielāki salīdzinājumā ar fāžu oscilācijas raksturīgo laiku, optiskās koherences tiek adiabatiski izslēgtas no diferenciālo vienādojumu sistēmas. Vienādojumi, kas atbilst optiskajām koherencēm tiek integrēti [50], bet stohastiskais fāzes mainīgais tiek atsaistīts un vidējots atsevišķi [52]. Iegūtie rezultāti tiek izmantoti substitūcijai vienādojumos, kas atbilst Zēmana koherencēm [24]. Metode noved pie Zēmana koherenču ātrumu vienādojumiem, kas ir spēkā vai nu spektrāli plātam ierosinošam starojumam ($\Delta\omega \gg \Gamma$), vai stacionāras ierosmes apstākļos:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_{g_i g_j}}{\partial t} = & (\Xi_{g_i e_m} + \Xi_{e_k g_j}^*) \sum_{e_k, e_m} (d_1^{g_i e_k})^* d_1^{e_m g_j} \rho_{e_k e_m} \\ & - \sum_{e_k, g_m} \left[\Xi_{e_k g_j}^* (d_1^{g_i e_k})^* d_1^{e_k g_m} \rho_{g_m g_j} \right. \\ & \left. + \Xi_{g_i e_k} (d_1^{g_m e_k})^* d_1^{e_k g_j} \rho_{g_i g_m} \right] - i\omega_{g_i g_j} \rho_{g_i g_j} \\ & + \alpha \sum_{e_k, e_m} \Gamma_{g_i g_j}^{e_k e_m} \rho_{e_k e_m} - \gamma \rho_{g_i g_j} + \lambda \delta(g_i, g_j) \end{aligned} \quad (27)$$

un

$$\begin{aligned}
\frac{\partial \rho_{e_i e_j}}{\partial t} = & (\Xi_{e_i g_m}^* + \Xi_{g_k e_j}) \sum_{g_k, g_m} d_1^{e_i g_k} (d_1^{g_m e_j})^* \rho_{g_k g_m} \\
& - \sum_{g_k, e_m} \left[\Xi_{g_k e_j} d_1^{e_i g_k} (d_1^{g_k e_m})^* \rho_{e_m e_j} \right. \\
& \left. + \Xi_{e_i g_k}^* d_1^{e_m g_k} (d_1^{g_k e_j})^* \rho_{e_i e_m} \right] \\
& - i \omega_{e_i e_j} \rho_{e_i e_j} - \Gamma \rho_{e_i e_j}.
\end{aligned} \tag{28}$$

Šajos vienādojumos $\rho_{g_i g_j}$ un $\rho_{e_i e_j}$ ir blīvuma matricas elementi pamata un ierosinātiem stāvokļiem, attiecīgi. Lielumi $\Xi_{g_i e_j}$ un $\Xi_{e_i g_j}^*$ apraksta saiti starp pamata un ierosinātiem stāvokļiem, ko ierosina lāzera lauks; tie ir atkarīgi no Rabi frekvences (Ω_R), kas tiek apspriesta nākamajā apakšnodaļā, kā arī no ierosinātā stāvokļa spontānās sabrukšanas ātruma (Γ), ierosinošā lāzera līnijas platuma ($\Delta\omega$) un faktiskās frekvences izskaņošanas starp konkrēto divu magnētisko apakšlīmeņu pāreju un ierosmes frekvenci:

$$\Xi_{ij} = \frac{\Omega_R^2}{\frac{\Gamma + \gamma + \Delta\omega}{2} + i \left(\bar{\omega} - \vec{k}_{\bar{\omega}} \vec{v} + \omega_{g_i e_j} \right)}. \tag{29}$$

Vienādojuma (29) saucējā kompleksā daļa ietver lāzera izskaņošanu no precīzas optiskās pārejas frekvences ($\bar{\omega}$), Doplera nobīdi ($\vec{k}_{\bar{\omega}} \vec{v}$), un Zēmana efektu ($\omega_{g_i e_j}$).

Dipola pārejas matricas elementus $d_1^{e_i g_j}$ starp pamatstāvokli i un ierosināto stāvokli j var aprēķināt pēc leņķiskā momenta teorijas, īpaši pēc Ekarta-Vīgnera teorēmas [18]. Enerģijas sašķelšanās starp vai nu pamata, vai ierosinātā stāvokļa magnētiskajiem apakšlīmeņiem tiek apzīmētas ar ω_{ij} . Šī pētījuma ietvaros tiek pieņemts, ka to izraisa lineārais Zēmana efekts. Arī tiek pieņemts, ka pāreja ir atvērta (tas ir, ne visas molekulas no ierosinātā stāvokļa atgriežas sākotnējā pamatstāvoklī), apzīmējot spontāno pāreju varbūtību uz sākotnējo līmeni ar koeficientu α . $\Gamma_{g_i g_j}^{e_i e_j}$ apraksta koherences pārnesei spontānajās pārejās no ierosinātā uz pamata stāvokli. Pamatstāvokļa apdzīvotības relaksācija ne-optisko procesu dēļ (piemēram, nepolarizētām molekulām, kurām nav veidojušās magnētisko apakšlīmeņu koherences, ielidojot mijiedarbības reģionā, vai molekulām zaudējot savu koherenci sadursmju rezultātā) notiek ar ātrumu λ [$\delta(g_i, g_j)$ ir Kronekera delta funkcija]. Pieņemts, ka molekulārā līdzsvara blīvums ārpus mijiedarbības reģiona ir normēts uz vieninieku, un tāpēc $\lambda = \gamma$.

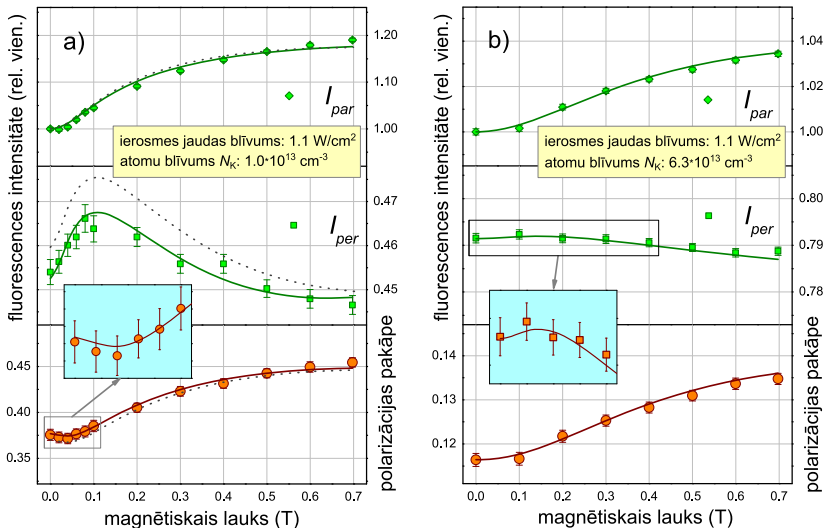
Tiek arī pieņemts, ka eksperimenti notiek pie stacionārās ierosmes, tāpēc $\partial \rho_{g_i g_j} / \partial t = \partial \rho_{e_i e_j} / \partial t = 0$. Tādējādi diferenciālvienādojumus (27) + (28) var reducēt līdz lineāro algebrisko vienādojumu sistēmai, kuru atrisinot ie-

gūstam blīvuma matricas pamata un ierosinātiem stāvokļiem. Lineāro algebrisko sistēmu var atrisināt analītiski mazām rotācijas leņķiskā momenta J vērtībām, bet šīs problēmas sarežģītība strauji pieaug, kad leņķiskais moments ir palielināts: vienādojumu skaits lineārā sistēmā ir proporcionāls $(2J + 1)^2$. Tādējādi sistēmu (27) + (28) ar šī pētījuma J vērtībām var atrisināt tikai skaitliski konkrētiem ierosmes nosacījumiem, jo vienādojumu skaits sistēmā tad ir ar kārtu 10^5 . Ja lineārā algebriskā sistēma ir uzrakstīta matricas formā $A\vec{x} = \vec{b}$, lai to atrisinātu, ir nepieciešams diagonalizēt koeficientu matricu A . Fakts, ka vairāki no šiem elementiem koeficientu matricā ir vienādi ar nulli, tiek izmantots, lai optimizētu diagonalizācijas procesu un tādējādi arī skaitļošanas resursu izmantošanu. Rutīnprogrammu pakotne (UMFPACK), kas izmanto nesimetrisko multifrontālo metodi [53], tiek izmantota, lai veiktu lineārās sistēmas retinātās matricas dekompozīciju uz vairākiem apakšējo un augšējo trijstūru matricu reizinājumiem (LU faktORIZĀCIJA).

Kad stāvokļa blīvuma matricas $\rho_{e_i e_j}$ ir zināmas, novēroto fluorescences intensitāti iegūst šādi:

$$I_f(\vec{\epsilon}) = \tilde{I}_0 \sum_{g_i, e_i, e_j} d_{g_i e_j}^{(ob)*} d_{e_i g_i}^{(ob)} \rho_{e_i e_j}, \quad (30)$$

kur \tilde{I}_0 ir proporcionalitātes konstante. Tika aprēķinātas divas ortogonālas polarizācijas komponentes (skat. 9. attēlu). Lai ņemtu vērā Doplera efekta ietekmi, fluorescences tika summēta pa dažādām atomu ātrumu grupām. Frekvenču vidējošanai izvēlēts solis, kas mazāks par šīs pārejas dabisko līnijas platumu. Sekojoši parametri tika izmantoti K_2 molekulai: $B^1\Pi_u$ stāvokļa spontānās sabrukšanas laiks $\Gamma^{-1} = 12 \cdot 10^{-9}$ s [44], ierosināta stāvokļa Landē faktors $g_{J'} = 1/J'(J' + 1)$ [54], pamatstāvokļa Landē faktors $g_{J''} = (1.01 \pm 0.04) \cdot 10^{-5}$ [19].



10. attēls. LIF intensitāšu I_{par} , I_{per} un polarizācijas pakāpes P atkarības no magnētiskā lauka. Punkti – eksperiments, nepārtrauktas līnijas – skaitliskā modelēšana. a) Q tipa pāreja ir ierosināta pie temperatūras šūnas piedēklī 150°C . Skaitliskā modelēšana pie $\Omega_R = 27 \text{ MHz}$ un $\gamma = 0.03 \text{ MHz}$, ņemot vērā 200 MHz izskaņošanas attiecībā pret precīzu pārejas pozīciju. Punktētās līnijas rēķinātas ar tiem pašiem parametriem, bet bez izskaņošanās. b) R tipa pāreja ir ierosināta pie temperatūras šūnas piedēklī 185°C . Skaitliskā modelēšana pie $\Omega_R = 27 \text{ MHz}$ un $\gamma = 0.09 \text{ MHz}$, ņemot vērā 170 MHz ieskaņošanas attiecībā pret precīzu pārejas pozīciju.

3.4. Augstāko rangu multipolu novērošana

Izmērīto LIF intensitāšu un polarizācijas pakāpes atkarības no magnētiskā lauka Q tipa ierosmei ir parādītas 10. attēla kreisajā pusē. Attēla kreisajā pusē ir redzams R tipa ierosmes piemērs. Attēlos salikti blakus intensitāšu $I_{par}(B)$ un $I_{per}(B)$ un polarizācijas pakāpes $P(B)$ grafiki. Intensitātes ir dotas relatīvās vienībās, un vērtība I_{par} pie $B = 0$ ir normēta uz vieninieku. Punkti attēlo eksperimentālos datus, bet nepārtrauktas līnijas ir aprēķins, kas pamatojas uz vienādojumiem (27) – (30).

Abās attēla pusēs ir norādīts lāzera jaudas blīvums un kālija atomu koncentrācija N_K . Molekulu K_2 koncentrācija N_{K_2} ir par aptuveni divām lielumu kārtām mazāka nekā N_K . Kālija atomu un molekulu koncentrācijas ir aprēķinātas no metāla tvaiku temperatūras atbilstoši monogrāfijai [55]. Rabi frekvences Ω_R un pamatstāvokļa relaksācijas ātruma γ vērtības var aptuveni novērtēt pēc eksperimentāliem parametriem. Rabi frekvence ir proporcionāla

pārejas ierosmes varbūtībai un lāzera lauka amplitūdai \vec{E} [18]:

$$\Omega_R \propto |\vec{E}| \propto \sqrt{I}. \quad (31)$$

Proporcionalitātes koeficientu izteiksmei (31) var novērtēt, aprēķinot piesātinājuma lāzera jaudas blīvumu I_{pies} , pie kura Rabi frekvence kļūst vienāda ar spontānās emisijas ātrumu (pieņemot, ka $\gamma \ll \Gamma$), kā tas parādīts rakstā [56].

Pamatstāvokļa relaksācijas ātrumu γ var sadalīt divās komponentēs. Tas ir sadursmju izraisītas relaksācijas ātrums γ_{sad} un caurlidošanas relaksācijas ātrums γ_{caur} , kas notiek molekulām termiskajā kustībā izlidojot no lāzera stara reģiona un ‘svaigām’ molekulām tur ielidojot:

$$\gamma = \gamma_{sad} + \gamma_{caur} = \sigma_{sad} N_K \langle \vec{v} \rangle + \frac{\langle \vec{v} \rangle}{d_L}, \quad (32)$$

kur d_L ir lāzera stara diametrs, $\langle \vec{v} \rangle$ ir vidējais termiskais ātrums un σ_{sad} ir $K_2(X^1\Sigma_g^+) + K$ neelastīgu sadursmju šķērsriezums.

Desmitā attēla kreisajā pusē parādīts Q tipa ierosmes LIF signāls pie iespējami zemākās temperatūras šūnas piedēklī, lai samazinātu sadursmju inducētu relaksāciju. Nelineārā pamatstāvokļa Hanlē efekta jeb tumšās rezonanses izpausme ir labi redzama $I_{par}(B)$ komponentē ar kontrastu apmēram 0.18, kā paredzēja aprēķins (nepārtraukta līnija) pie $\gamma = 0.03$ MHz, kurš sakrīt arī ar novērtējumu no izteiksmes (32). I_{per} atkarība no B ir sarežģītāka. Tā parāda tumšo rezonansi, kura ir ievērojami šaurāka nekā $I_{par}(B)$ ar vienmērīgu kritumu pie $B > 0.1$ T. Šādas $I_{par}(B)$ un $I_{per}(B)$ atkarības noved pie polarizācijas pakāpes $P(B)$, kura parādīta 10. attēla apakšējā grafikā pa kreisi. Jāņem vērā, ka polarizācijas pakāpe P pie $B = 0$ ir aptuveni 0.37, kas ir ievērojami mazāka par vājas ierosmes robežu, kas ir tuvu 1/2 [19]. Varētu tikt izšķīrta īpatnība piķa formā, ar maksimumu pie $P(0)$ (skat. iespraudumu). Šāda $P(B)$ papildu struktūra tika atklāta pētījumā [44] (sk. [19] pārskatam), tomēr šaurā tumšā rezonanse $I_{per}(B)$ signālā toreiz netika reģistrēta, jo tika pētītas tikai $P(B)$ rezonanses. 10. attēla labajā pusē ir parādītas LIF intensitātes un polarizācijas pakāpe R tipa ierosmei. Līkņu struktūra ir līdzīga novērotajai pie Q tipa ierosmes, kas norāda, ka par abu ierosmes veidu struktūru, galvenokārt, ir atbildīgs viens un tas pats mehānisms.

Lai pārbaudītu, kā izskaņošana varētu ietekmēt signālus, tika aprēķinātas LIF atkarības no magnētiskā lauka Q tipa ierosmei bez jebkādas izskaņošanas no rezonanses frekvences. Rezultāti parādīti 10. attēla kreisajā pusē ar punktētu līniju. Kā redzams, šāda izskaņošana būtiski neietekmē magneto-optisko rezonanšu formas.

Ir vērts sīkāk apspriest nelineārās pamatstāvokļa magnētiskās rezonanses sašaurināšanos ortogonāli polarizētas LIF intensitātes I_{per} atkarībā no B , un salīdzināt to ar attiecīgo paralēli polarizēta LIF komponenta I_{par} atkarību. Šāds efekts teorētiski prognozēts pie konkrētiem nosacījumiem, izmantojot

pašreizējo modeli, un tika eksperimentāli apstiprināts (skat. 10. attēla kreisajā pusē). Patiešām, $I_{per}(B)$ augošās daļas (tumšās rezonanses) pusplatums $B_{1/2}$ 10. attēlā ir aptuveni $B_{1/2} \sim 0.05$ T, kas ir daudz mazāks (aptuveni 0.2 T) nekā attiecīgais pusplatums $I_{par}(B)$ signālā. Ja šaurās tumšās rezonanses augošo daļu $I_{per}(B)$ signālā aproksimētu ar Lorenca tipa funkciju, kur attiecīgā pamatstāvokļa magnētiskā momenta precesijas Larmora frekvence $\omega_{g_i g_j}(B_{1/2}) = \omega_L$ ir saistīta ar pamatstāvokļa relaksācijas ātrumu kā $\gamma = |g_i - g_j| \omega_L$, tad attiecīgā koherence starp J'' Zēmana apakšlīmeņiem ir tuvu $|g_i - g_j| = 4$.

Tas atbilst polarizācijas momentu $\rho_q^{\kappa=4}$ relaksācijai magnētiskajā laukā, kuri ir stāvokļa blīvuma matricas $\rho_{g_i g_j}$ (27) izvīzījuma koeficienti ar rangu κ pa nereducējamajiem tenzora operatoriem (skat., piemēram, [18, 19] un references tajās). Šādu polarizācijas momentu sauc par heksadekapola momentu, un tā izpausme LIF signālos parasti ir maskēta ar otrā ranga $\kappa = 2$ kvadrupola polarizācijas momentu jeb izkārtošanu. Pēdējam jāproducē aptuveni divreiz plašāka B atkarība, ar $B_{1/2}$, kas atbilst $\gamma = 2\omega_L$. Nelineārās ierosmes apstākļos (kā 10. attēla kreisajā pusē) starojuma jaudas dēļ ir sagaidāma rezonansu paplašināšana, un šāda paplašināšana būtu daudz izteiktāka $I_{par}(B)$ signālā, kas noteikts ar otrā ranga polarizācijas momentu (izkārtošanu), nekā $I_{per}(B)$ signālā, ko pārsvarā ietekmē ceturta ranga $\kappa = 4$ (vai augstāko rangu $\kappa > 4$, sk [19]) moments. Tas varētu izskaidrot atšķirību starp $I_{par}(B)$ un $I_{per}(B)$ pusplatumiem, kas redzams 10. attēla kreisajā pusē.

4. Divmodu stabilizācija

4.1. Lāzera stabilitātes uzlabošana ar divmodu metodi

Lai pētītu magnetooptiskos efektus sārnu metālu molekulās, vāja fluorescences signāla dēļ ir nepieciešams ilgs datu uzkrāšanas laiks. Tas rada nepieciešamību stabilizēt lāzera frekvenci ilgā (dažas stundas) laika posmā. Pastāv daudz efektīvu īslaicīgās stabilizācijas metožu, tomēr ilglaicīga lāzera frekvences aktīvā stabilizācija joprojām ir izaicinājums.

Ultrastabili lāzери parasti tiek realizēti, elektroniski piesaistot lāzera frekvenci rezonansei, ko veido ārējā references rezonatora divi spoguļi ar augstu atstarošanas koeficientu, kuri piestiprināti pie starplikas ar zemu termiskās izplešanās koeficientu. Atšķirīga pieeja [57, 58, 59, 60, 61, 62, 63] ir attīstījusies pēdējos gados, kurā kā referenci lāzera frekvencei, izmanto čukstošās galerijas modu (ČGM) rezonatorus, kas izgatavoti no monokristāliskiem materiāliem. Šie rezonatori, kuru labums Q var sasniegt ļoti augstas vērtības ($Q > 10^{11}$) [64], ir kompakti ($\lesssim 1\text{cm}^3$), un to monolitā daba ļauj tos darbināt trokšņainā un telpiski ierobežotā vidē. Tie var strādāt plašā viļņu garuma diapazonā, kas ir ierobežots tikai ar rezonatora materiāla optisko ab-

sorbciju. Lāzera, kurš saslēgts ar ČGM rezonatoru, relatīvā optiskās frekvences stabilitāte tika prognozēta labāka par 10^{-13} vienā sekundē [65], kas tika nesen arī demonstrēts rakstā [62]. Šis rezultāts tika ierobežots tikai ar rezonatora termodinamiskajām svārstībām [62, 66, 65].

Šādu rezonatoru veiktspējas priekšnosacījums ir vides temperatūras svārstību slāpēšana, jo gan rezonatora rādiuss, gan refrakcijas koeficients izmainās līdz ar temperatūru, un tas ietekmē modu rezonanses frekvences. Lai pasargātu modu tilpumu no vides temperatūras nestabilitātes, parasti ir vajadzīgas tehniski sarežģītas metodes. Prasības attiecībā uz ekranēšanu varētu būt mazāk stingras, ja šī rezonatora temperatūru varētu precīzi izmērīt un tās svārstības kompensēt. Lai to panāktu, tika ierosināts izmantot divu ortogonāli polarizētu modu nevienādu frekvences izmaiņu, kas notiek optiski anizotropā kristāliskā rezonatora temperatūras izmaiņas rezultātā [59]. Šī ‘divmodu frekvences’ maiņa tādējādi varētu kalpot par jutīgu termometru [67, 68]. Šāda pieeja, ko bieži dēvē par divmodu metodi, varētu vienkāršot lāzera frekvences stabilizācijas metodes un, iespējams, veicināt ‘stabilitātes transformatora’ izstrādi, uzlabojot radiofrekvences standartu stabilitāti [63]. Jāatzīmē, ka divmodu metode jau tika veiksmīgi pielietota radiofrekvenču diapazonā, uzlabojot kvarca oscilatoru [69] un kriogēno safīra oscilatoru [70, 71, 72] ilglaicīgu stabilitāti.

Divmodu temperatūras mērīšana un stabilizācija ir īstenota nesen [67, 68], panākot *netieši mērītas* temperatūras stabilitāti līdz dažiem nK 1000 sekunžu laikā. Šis rezultāts iegūts saskaņā ar mērītas divmodu frekvences palielošās kļūdas signālu, kamēr frekvences stabilitāte tika novērtēta no temperatūras svārstībām. Promocijas darbs prezentē pirmo *tieši* izmērīto optiskās frekvences stabilitāti, kas iegūta saslēdzot lāzeru ar ČGM rezonatoru, kura temperatūra tika stabilizēta ar divmodu metodi. Tas tika panākts, salīdzinot ČGM stabilizētā lāzera frekvenci ar neatkarīgu, ultrastabilu, saslēgtu ar Fabri-Pero tipa rezonatoru lāzeru, ko izmanto augstas precizitātes spektroskopijā [73]. Divmodu signāls tika izmantots kā kļūdas signāls, lai kontrolētu ČGM rezonatora temperatūru, sildot to ar gaismas diodi (LED). Rezultāti tika salīdzināti ar teorētisko aprēķinu 972 nm viļņu garumam istabas temperatūrā.

4.2. Teorētiskais aprēķins

Apskatīsim diska formas ČGM rezonatoru, kas ir izgatavots no magnija difluorīda (MgF_2) monokristāla ar z -asi rezonatora simetrijas ass virzienā. ČGM rezonanses frekvences atkarība no temperatūras ir aprakstīta ar termolaušanas koeficientu $\alpha_n^{(o,e)}$ un termiskās izplešanās koeficientu $\alpha_l^{(o)}$ kā

$$\frac{df}{dT} = -f(\alpha_n^{(o,e)} + \alpha_l^{(o)}), \quad (33)$$

kur horizontāli jeb ordināri (o) polarizēta lāzera gaisma ir rezonansē ar šāda rezonatora TE modu, un vertikāli jeb neordināri (e) polarizēta gaisma – ar TM modu [67]. Par TE un TM modām sauc tādas rezonatora modas, kurās elektromagnētiskajam starojumam izplatīšanas virzienā nav elektriskā vai magnētiskā lauka komponentes, attiecīgi. Termiskās izplešanās koeficients $\alpha_l^{(o)}$ ir vienāds abu modu saimēm, bet termolaušanas koeficienti $\alpha_n^{(o)}$ un $\alpha_n^{(e)}$ ietekmē TE un TM modas dažādā veidā (skat. 11. attēla labo pusi). Pie $\lambda = 972$ nm ierosmes frekvences istabas temperatūrā (20°C), šos koeficientus var iegūt no eksperimentālajiem datiem [74, 75] kā

$$\alpha_l^{(o)} = 9.3 \times 10^{-6}, \quad (34)$$

$$\alpha_n^{(o)} = 0.87 \times 10^{-6}, \quad (35)$$

$$\alpha_n^{(e)} = 0.33 \times 10^{-6}. \quad (36)$$

Tā kā $\alpha_l^{(o)} \gg \alpha_n^{(o,e)}$, frekvences dreifs šādā sistēmā ir pārsvarā noteikts ar termisko izplešanos

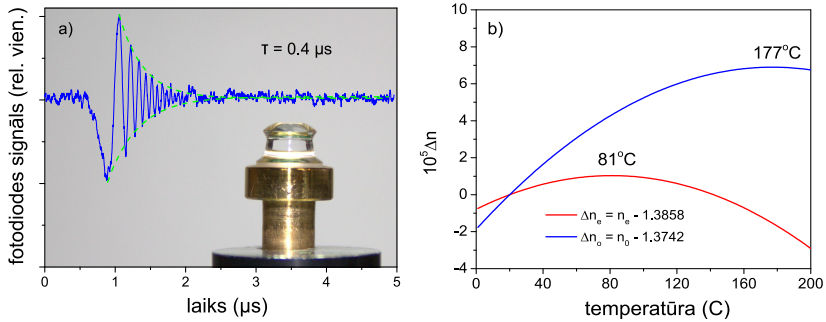
$$\frac{df}{dT} \approx -f\alpha_l^{(o)} = -2.9 \text{ GHz/K}. \quad (37)$$

Starpības jeb divmodu frekvence starp divām ortogonālām TE un TM modām $\Delta f = f_o - f_e$ ir atkarīga no temperatūras kā

$$\frac{d}{dT} (f_o - f_e) \approx -f_o (\alpha_n^{(o)} - \alpha_n^{(e)}) = -0.17 \text{ GHz/K}. \quad (38)$$

Termolaušanas trokšņa [66, 65, 62] izraisītas lielas fluktuācijas ierobežo divmodu frekvences stabilitāti un, rezultātā, arī temperatūras monitorinģa jutīgumu īsos mērīšanas laika intervālos. Šis troksnis nāk no labi zināma fakta, ka ķermeņa temperatūra iekšēji fluktuē kā $\langle \delta T^2 \rangle = k_B T^2 / \rho C V$, kur V ir ķermeņa tilpums, ρ – tā blīvums, C – īpatnējā siltumietilpība pie vidējās temperatūras T , un k_B ir Bolcmaņa konstante. Šajā pētījumā izmantotie parametri – novērtētais MgF₂ rezonatora modas tilpums $V \approx 2 \times 10^{-12}$ m³, kristāla blīvums $\rho = 3180$ kg/m³ un tā īpatnējā siltumietilpība $C = 1020$ J/kg·K – ved pie $\langle \delta T^2 \rangle = (400 \text{ nK})^2$. Šīs temperatūras fluktuācijas maina ČGM termolaušanas koeficientus un to rezonansi ω_c kā $\langle \delta \omega_c^2 \rangle = \omega_c^2 \alpha_n^{(o,e)2} \langle \delta T^2 \rangle$. Ja ortogonāli polarizēto modu tilpumi pilnīgi pārklājas, references modas (kuras absolūta frekvence nav mērīta) fluktuācijas ir sinhronas ar citas modas (kuras absolūtā frekvence tiek mērīta) fluktuācijām. Pretējā gadījumā modu fluktuācijas jāsummē kvadrātiski.

Vienādojumi (37) un (38) paredz, ka divmodu frekvence Δf ir tikai 17 reizes mazāk jutīga pret temperatūru nekā jebkura no ČGM modām. Tas



11. attēls. a) MgF_2 kristāla rezonators, kas izmantots lāzera frekvences stabilizācijai. Nepārtrauktā zilā līnijā – transmisijas signāla rimstošas oscilācijas, kas novērotas ātri skenējot lāzera frekvenci pāri rezonansei. Oscilāciju apliecēja (zaļā raustītā līnija) norāda, ka ČGM lauks samazinās eksponenciāli $0.4 \mu\text{s}$ laikā, kas atbilst labumam $Q \approx 3.9 \times 10^8$ un līnijas platumam 800 kHz. Rezonators (ar rādiusu ap 2 mm) uz misiņa pamatnes ir parādīts fotogrāfijā. b) Magnija fluorīda kristāla ordināro un neordināro laušanas koeficientu novirzes atkarībā no temperatūras. Atkarības tika iegūtas viļņa garumam 972 nm, interpolējot mērījumu datus [74].

ir krasā pretstatā divu blakus modu (modas indekss i) no tās pašas saimes $f_{i+1} - f_i$ diferenciālās frekvences pieaugumam

$$\frac{d}{dT} (f_{i+1} - f_i) \approx - (f_{i+1} - f_i) \alpha_l^{(0)} \approx \frac{c}{2\pi n R} \alpha_l^{(0)} = -160 \text{ kHz/K}. \quad (39)$$

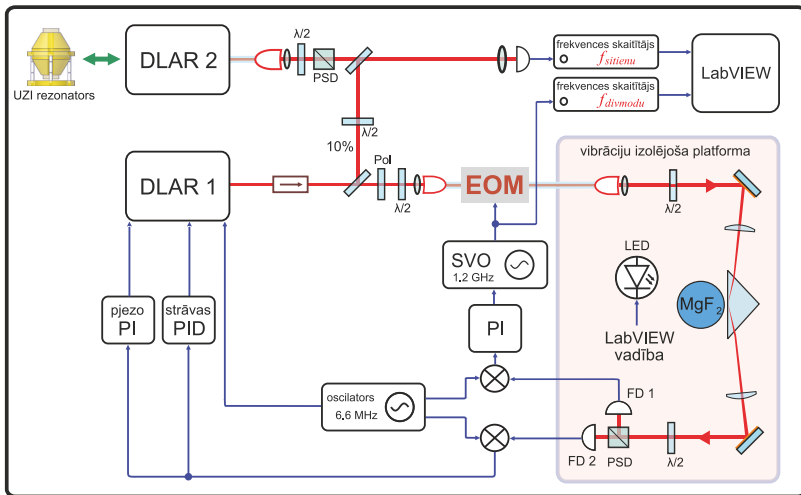
Tāpēc, izmantojot divmodu pieeju, temperatūru ČGM rezonatora iekšpusē var kontrolēt ar augstu precizitāti bez ārējā temperatūras sensora. Izmantojot atgriezeniskās saites metodi, temperatūra varētu tādējādi tikt stabilizēta, kā parādīts šajā promocijas darbā.

4.3. Eksperimentālā shēma

ČGM rezonators ar rādiusu 2 mm (skat. fotogrāfiju 11. attēlā) tika izgatavots no magnija difluorīda ultratīra kristāliska materiāla līdzīgi kā darbos [76, 62]. Čukstošās galerijas modas atradās rezonatora malā, bet rezonators tika pielīmēts pie misiņa balsta, kas, savukārt, tika iestiprināts prizmas saslēgšanas iekārtā.

Lai ievadītu ČGM rezonatorā staru no diožu lāzera ar ārējo rezonatoru, tika izmantota augstākas kvalitātes prizma (gadolinija gallija granāts). Rezonators tika uzstādīts konstrukcijā, kas pasargāja no vibrāciju un siltuma svārstībām. Šī prizmas saslēgšanas iekārta bija tāda pati, kāda aprakstīta rakstā [62], bet šajā idejas demonstrācijas eksperimentā nebija mērķa iegūt

maksimālu īslaicīgu lāzera frekvences stabilitāti. Tāpēc tika izmantots uz do to brīdi pieejams rezonators ar zemāku labumu $Q \approx 3.9 \times 10^8$, salīdzinot ar $Q \approx 2.0 \times 10^9$ rakstā [62].



12. attēls. Stabilizācijas iekārtas shēma, kas izmanto PDH metodi lāzera piesaistei MgF_2 rezonatoram, divmodu temperatūras regulēšanu un salīdzināšanu ar ultrastabilu lāzeru, kurš ir piesaistīts divu spoguļu rezonatoram uz cita optiskā galda. DLAR: diožu lāzers ar ārējo rezonatoru; EOM: elektrooptiskais modulators; $\lambda/2$: pusviļņa plāksnīte; PSD: polarizējošs stara dalītājs; FD: fotodiode; PI(D): proporcionālā, integrējošā un diferencējošā atgriezeniskā saite; UZI: stikls ar ultrazemu izplešanos; SVO: sprieguma vadīts oscilators. LED ir viena vata gaismas diode, kas apgaismo ČGM rezonatoru un tiek izmantota temperatūras kompensācijai divmodu frekvences stabilizācijas kontūrā.

Rezonatora labums Q un rezonanses līnijas platumu $\kappa = \omega/Q$ tika mērīts skenējot lāzera frekvenci $\omega = 2\pi c/\lambda$ (c ir gaismas ātrums vakuumā, $\lambda = 972$ nm ir lāzera viļņa garums) pāri ČGM rezonansei. Mainīgs heterodīna sitiens tika novērots pārraidītā jaudā κ^{-1} laikā, kad ČGM rezonatorā cirkulējoša jauda norimst interferējot ar jau esošu nerezonanses lāzera lauku. Sitienu signāla apliecēja sabrūk rezonatora lauka amplitūdas rimšanas laikā $\tau = 2\kappa^{-1}$ (skat. 11. attēla kreiso pusi). No apliecējas apraksta ar eksponenciālo funkciju tika iegūts līnijas platumu $\kappa = 2\pi \times 800$ kHz ČGM rezonatoram, kurš tika izmantots šajā darbā.

Lai mazinātu siltuma apmaiņu caur gāzi un akustisko troksni, kā arī lai izvairītos no kristāliskā rezonatora labuma Q degradācijas, iekārta tika ievietota alumīnija kamerā ar vakuumu ($p < 10^{-6}$ mbar). Lai mazinātu vibrāciju pārraidi uz saslēgšanas iekārtu, kamera atradās uz pasīvas vibrāciju izolējošas

platformas. Divi alumīnija ekrāni starp kameras sienām un sapārotības iekārtu (skat. rakstu [62]) samazināja siltuma apmaiņu, kas radās termiskā starojuma rezultātā. Saslēgšanas iekārta tika nostiprināta kamerā uz trim termiski izolējošām starplikām. Bez tam, ārējā ekrāna temperatūra tika aktīvi stabilizēta pie vērtības, kas bija tuvu istabas temperatūrai.

Stars no pašizgatavota Litrova tipa 972 nm diožu lāzera ar ārējo rezonatoru tika fokusēts uz saslēgšanas prizmas virsmu caur vakuuma kameras lodziņiem ar antiatstarojošo pārklājumu. Ieejošās gaismas polarizācija tika sagatavota, lai ierosinātu gan TE gan TM modu saimes. Lai novērotu TE un TM modas, izejošā gaisma tika sadalīta ar polarizējošo stara dalītāju un reģistrēta ar divām fotodiodēm ar signāla pastiprinātājiem.

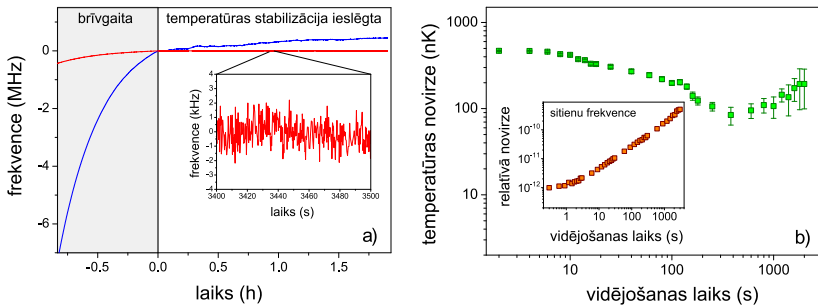
Lāzers tika piesaistīts TM modai ar Paunda-Drevera-Hola (PDH) metodi [77], modulējot diodes barošu strāvu ar 6.6 MHz frekvenci un demodulējot pārraidīto signālu ar to pašu frekvenci (12. attēls). Šis kļūdas signāls tika izmantots kā atgriezeniskā saite, lai kontrolētu gan lāzera režģa slīpumu caur pjezoaktuatoru, gan diodes barojošo strāvu. Signāls abos kanālos tika pastiprināts ar pašizgatavotiem proporcionālajiem-integrējošajiem (PI) kontrolieriem; lāzera strāvas zaram bija papildu fāzes apsteidze (PID).

Neatkarīga moda ar ortogonālu polarizāciju tika atrasta 1.2 GHz attālumā no TM modas, kura tika izmantota lāzera stabilizācijai. Lai izveidotu sānjoslu, kas ierosināja otro modu, starpības frekvence starp šīm modām tika pārraidīta uz ārēju, caur šķiedru savienotu elektrooptisko modulatoru (EOM). Tādā veidā lāzera sānjosla varētu tikt stabilizēta pie TE modas: 1) demodulējot atbilstošās gaismas polarizācijas pārraidīto signālu ar 6.6 MHz modulācijas frekvenci; 2) pastiprinot un filtrējot šo PDH kļūdas signālu ar pašizgatavotu proporcionālo-integrējošo (PI) kontrolieri; 3) un padodot rezultējošo korekcijas signālu atpakaļ uz ar sprieguma vadītu oscilatoru (SVO), kurš savukārt iedarbināja EOM. Abi ortogonāli polarizēto modu kļūdas signāli bija neatkarīgi; pie labi noregulētiem polarizatoriem kļūdas signālu pārklāšanās bija zem 4%.

Tika pētīta divmodu frekvences korelācija ar ČGM piesaistīta lāzera absolūto frekvenci, izmantojot radio frekvenču (rf) sitienu ar neatkarīgu diožu lāzeru, kurš tika piesaistīts ultrastabilam spoguļu tipa rezonatoram [73]. Divmodu frekvence un sitienu frekvence tika reģistrētas ar rf mērītājiem. Visbeidzot, divmodu frekvence tika stabilizēta ar LabVIEW sistēmā programmētu, aktīvu atgriezenisko saiti, izmantojot proporcionālos un integrējošos pieaugumus. Šajā vienkāršajā, idejas pārbaudes eksperimentā, viena vata baltas gaismas diode, kas spīdēja uz ČGM rezonatoru caur vakuuma kameras logu, tika izmantota kontūrā, lai novērstu divmodu frekvences dreifu, kompensējot to ar ČGM rezonatora temperatūras izmaiņu. Atgriezeniskās saites laika konstante bija 0.2 s.

Kopumā tika izmantoti trīs stabilizācijas kontūri, kuri visi varētu būt aktivizēti atsevišķi: 1) lāzers tika piesaistīts vienai no rezonatora TM modām; 2) optiska sāņjosla, kas tika ģenerēta ar EOM, tika piesaistīta ortogonāli polarizētajai TE modai, mainot EOM frekvenci; 3) EOM frekvence tika piesaistīta references oscilatoram, kontrolējot rezonatora temperatūru.

4.4. Frekvences stabilitātes raksturojums



13. attēls. a) ČGM absolūtas frekvences (zilā nepārtrauktā līnija) un divmodu frekvences (sarkanā nepārtrauktā līnija) ilglaicīgas izmaiņas kā funkcijas no novērošanas laika, temperatūrai mainoties brīvgaītā ($t < 0$ h) un temperatūrai esot stabilizētai ($t > 0$ h) ar divmodu metodi. ČGM frekvences tipiskas izmaiņas bez temperatūras stabilizācijas ir līdz 10 MHz/h, bet ar stabilizāciju – 0.3 MHz/h. Iespraudumā parādītas divmodu frekvences fluktuācijas palielinājumā. b) Alana novirze temperatūrai ČGM rezonatorā, kas iegūta saskaņā ar divmodu frekvences izmaiņām. Iespraudumā parādīta normēta uz 308 THz nesējfrekvenci sitienu frekvences Alana novirze pie ieslēgtas divmodu stabilizācijas.

Ir sagaidāms, ka atgriezeniskā saite caur rezonatora temperatūru, apturot divmodu frekvences dreifu, reducēs modu (un līdz ar to lāzera) frekvences dreifu. Kā minēts iepriekš, šāda atgriezeniskā saite tika īstenota darbā sildot rezonatoru ar baltu LED lampu. 13. attēla kreisajā pusē parādīts attiecīgo mērījumu rezultāts. Laikā $t = 0$ divmodu temperatūras kompensācija ir ieslēgta un divmodu frekvences dreifs ir apturēts. Tas acīmredzami rada absolūtās frekvences stabilitātes uzlabošanos, tomēr paliekošs dreifs ap 0.3 MHz/h joprojām tika novērots visos mērījumos. Divmodu frekvences Alana novirze, kas konvertēta temperatūras vienībās saskaņā ar vienādojumu (38), attēlota 13. attēla labajā pusē. Precizitāte temperatūras mērīšanai ar divmodu metodi, pieaug no 480 nK pie integrācijas laika 1 s līdz 80 nK pie integrācijas laika 400 s. Iespraudums tajā pašā attēlā parāda tipisko lāzera frekvences relatīvo Alana novirzi ar vērtību 10^{-12} pie 1 s integrācijas laika, divmodu stabilizācijai esot aktivizētai.

Atlikušo dreifu var izskaidrot ar ČGM rezonatora konstrukcijas īpatnībām. Rezonators tika pielīmēts pie misiņa pamatnes (kas ir nepieciešama apstrādei un tīrīšanai), kuras temperatūra netika stabilizēta ar divmodu metodi. Tomēr, lai gan rezonatora temperatūra bija nemainīga, tā rādīuss turpināja līdzmainīties ar tā misiņa pamatnes rādīusu. Tādējādi frekvences stabilizācijai ar divmodu kompensācijas metodi ir svarīgi izslēgt jebkādu radiālu spriedzi, kas rodas no temperatūras starpības starp iekārtu un pašu rezonatoru. Šo problēmu var mazināt, piestiprinot rezonatoru pie balsta, ar pareizi izvēlēto termiskās izplešanās koeficientu. Plašākā mērogā, svarīgs uzdevums šajā stabilizācijas shēmā būtu pareizi kompensēt rezonatora temperatūras perturbācijas, kuru telpiskais sadalījums nav precīzi zināms. Labāku rezultātu varētu nodrošināt citi lokālas temperatūras svārstību kompensācijas veidi, piemēram, sildīšana, izmantojot lāzera starojuma absorbētu jaudu.

Rezultātu kopsavilkums

Promocijas darba izstrādes gaitā ir iegūti sekojoši rezultāti:

1. Ierosinot cēzija D_1 līnijas $4 \rightarrow 3$ supersīkstruktūras pāreju ar cirkulāri polarizētu modulētu gaismu, plašā ierosmes jaudu diapazonā novērotas un ar algebrisku modeli aprakstītas polarizācijas modulācijas rezonanšu dažādu harmoniku amplitūdu atkarības no darba cikliem.

Izmantotais teorētiskais modelis labi apraksta rezonanšu relatīvo amplitūdu atkarības no modulācijas darba cikla dotajai supersīkstruktūras pārejai.

2. Izstrādāta un demonstrēta metode magnētisko skalāro potenciālu divdimensiju sadalījuma kartēšanai ar telpisko izšķirtspēju ap 1 mm. Metode balstīta uz telpiski selektīvo spinu polarizācijas sabrukšanu, pieliekot daudzkomponenšu oscilējošo radiofrekvences magnētisko lauku.

Tika parādīts, ka, veicot eksperimentu ekranētā vidē, šīs metodes telpiskā izšķirtspēja var sasniegt $100 \mu\text{m}$.

3. Tumšās rezonanses kālija divatomu molekulāros stāvokļos ar lielām leņķiskā momenta kvanta skaitļa $J \sim 100$ vērtībām teorētiski modelētas un eksperimentāli reģistrētas LIF intensitātēs $I(B)$ pie lineāri polarizētas Q un R tipa ierosmes un pie dažādiem eksperimentāliem parametriem.

LIF intensitātes $I_{per}(B)$ komponentē, kas ir polarizēta perpendikulāri ierosinošās gaismas polarizācijai, tika novērota ievērojami šaurāka Hanlē rezonanse nekā tas būtu sagaidāms no molekulu pamatstāvokļa relaksācijas ātruma γ . Šī parādība tika izskaidrota ar molekulu leņķiskā momenta polarizācijas augstāku multipolu ietekmi.

4. Uzbūvēta un, izmantojot neatkarīgu ultrastabilu lāzeru, pirmoreiz pārbaudīta diožu lāzera frekvences stabilizācijas iekārta, kas satur kompaktu čukstošās galerijas modu optisko rezonatoru, kam piemērota divmodu temperatūras kompensācijas metode.

Uzbūvētā stabilizācijas iekārta samazināja lāzera frekvences dreifu līdz 0.3 MHz/h . Atlikušais dreifs tika izskaidrots ar ČGM rezonatora stiprinājuma konstrukcijas nepilnībām.

Pateicības

Vispirms, vēlos izteikt savu visdziļāko pateicību Prof. Mārcim Auziņam par doktorantūras studiju vadīšanu un atbalstu.

Pateicos no visas sirds visiem cilvēkiem, kuri atbalstījuši šī promocijas darba tapšanu:

Prof. Antuānam Vaisam par sniegto iespēju pievienoties viņa pētnieciskajai grupai Friburgas Universitātē. Patiesībā Antuāns, dedzīgs un iedvesmojošs fiziķis, bija mans zinātniskais vadītājs Šveicē, kur tika izstrādāta puse no mana promocijas darba.

Dr. Viktoram Ļebedevam, Dr. Vladimiram Dolgovskim, Dr. Zoranam Grujičam un pārējiem kolēģiem no Friburgas Atomfizikas grupas par viņu ļoti vērtīgajiem padomiem un diskusijām.

Dr. Jānim Alnim par iepazīstināšanu ar laboratorijas elektronikas un eksperimentālo metožu sarežģīto pasauli.

Prof. Teodoram W. Henšam par iespēju stažēties Maksa Planka Kvantu Optikas Institutā, apgūstot dažādas metroloģiskās metodes, galvenokārt, diožu lāzeru stabilizācijai.

Dr. Mārim Tamanim un pārējiem kolēģiem no MOLPOL laboratorijas par iepazīstināšanu ar aizraujošo molekulārās spektroskopijas nozari un atbalstu eksperimentu sagatavošanas gaitā.

Dr. Andrejam Jarmolam un Dr. Florianam Gahbaueram, maniem kolēģiem Latvijas Universitātes Lāzeru Centrā, par noderīgiem padomiem un diskusijām.

Dr. Arnoldam Ūbelim no Atomfizikas un Spektroskopijas Institūta par atbalstu atgriežoties Latvijā.

Visiem maniem līdzautoriem par lielisko darbu šī darba rezultātu publicēšanā.

Visbeidzot, bet ne mazāk sirsnīgi, es pateicos saviem draugiem un ģimenei. Bez viņiem šis darbs būtu neiespējams.

Literatūras saraksts

- [1] W. Hanle, “Über magnetische beeinflussung der polarisation der resonanzfluoreszenz,” *Zeitschrift für Physik* **30**, 93–105 (1924).
- [2] A. Kastler, “Optical methods for studying Hertzian resonances,” *Science* **158**, 214–221 (1967).
- [3] J. C. Lehmann and C. Cohen-Tannoudji, “Pompage optique en champ magnétique faible,” *C.R. Acad. Sci. (Paris)* **258**, 4463–4466 (1964).
- [4] G. Moruzzi and F. Strumia, *The Hanle effect and level-crossing spectroscopy*, Physics of atoms and molecules (Plenum Press, New York, 1991).
- [5] D. Budker, W. Gawlik, D. F. Kimball, S. M. Rochester, V. V. Yashchuk, and A. Weis, “Resonant nonlinear magneto-optical effects in atoms,” *Reviews of Modern Physics* **74**, 1153 (2002).
- [6] E. B. Alexandrov, M. Auzinsh, D. Budker, D. F. Kimball, S. Rochester, and V. V. Yashchuk, “Dynamic effects in nonlinear magneto-optics of atoms and molecules,” *Journal of the Optical Society of America B* **22**, 7–20 (2005).
- [7] A. Dawes, L. Illing, S. Clark, and D. Gauthier, “All-optical switching in rubidium vapor,” *Science* **308**, 672–4 (2005).
- [8] S. Groeger, G. Bison, P. Knowles, R. Wynands, and A. Weis, “Laser-pumped cesium magnetometers for high-resolution medical and fundamental research,” *Sensors and Actuators A: Physical* **129**, 1–5 (2006). EMSA 2004 - Selected Papers from the 5th European Magnetic Sensors & Actuators Conference - EMSA 2004, Cardiff, UK, 4-6 July 2004.
- [9] D. Budker and M. V. Romalis, “Optical magnetometry,” *Nature Physics* **3**, 227–234 (2007).
- [10] M. D. Lukin, S. F. Yelin, M. Fleischhauer, and M. O. Scully, “Quantum interference effects induced by interacting dark resonances,” *Physical Review A* **60**, 3225–3228 (1999).
- [11] J. Alnis and M. Auzinsh, “Angular-momentum spatial distribution symmetry breaking in Rb by an external magnetic field,” *Physical Review A* **63**, 023407 (2001).
- [12] Y. Dancheva, G. Alzetta, S. Cartalava, M. Taslakov, and C. Andreeva, “Coherent effects on the Zeeman sublevels of hyperfine states in optical pumping of Rb by monomode diode laser,” *Optics Communications* **178**, 103–110 (2000).

- [13] G. Alzetta, A. Gozzini, L. Moi, and G. Orriols, “An experimental method for the observation of RF transitions and laser beat resonances in oriented Na vapour,” *Il Nuovo Cimento* **36 B**, 5–20 (1976).
- [14] E. Arimondo, *Coherent population trapping in laser spectroscopy*, vol. 35 (Elsevier, 1996).
- [15] M. Fleischhauer, A. Imamoglu, and J. P. Marangos, “Electromagnetically induced transparency: Optics in coherent media,” *Reviews of Modern Physics* **77**, 633–673 (2005).
- [16] D. Budker and S. M. Rochester, “Relation between electromagnetically induced absorption resonances and nonlinear magneto-optics in Lambda systems,” *Physical Review A* **70**, 025804 (2004).
- [17] L. V. Hau, S. E. Harris, Z. Dutton, and C. H. Behroozi, “Light speed reduction to 17 metres per second in an ultracold atomic gas,” *Nature* **397**, 594–598 (1999).
- [18] M. Auzinsh, D. Budker, and S. M. Rochester, *Optically polarized atoms: understanding light-atom interactions* (Oxford University Press, USA, 2010).
- [19] M. Auzinsh and R. Ferber, *Optical Polarization of Molecules* (Cambridge University Press, 1995).
- [20] W. E. Bell and A. L. Bloom, “Observation of forbidden resonances in optically driven spin systems,” *Physical Review Letters* **6**, 623–624 (1961).
- [21] N. Castagna and A. Weis, “Measurement of longitudinal and transverse spin relaxation rates using the ground-state Hanle effect,” *Physical Review A* **84**, 053421 (2011).
- [22] E. Breschi and A. Weis, “Ground-state Hanle effect based on atomic alignment,” *Physical Review A* **86**, 053427 (2012).
- [23] K. Blushs and M. Auzinsh, “Validity of rate equations for Zeeman coherences for analysis of nonlinear interaction of atoms with broadband laser radiation,” *Physical Review A* **69**, 063806 (2004).
- [24] M. Auzinsh, R. Ferber, F. Gahbauer, A. Jarmola, and L. Kalvans, “Non-linear magneto-optical resonances at D_1 excitation of ^{85}Rb and ^{87}Rb for partially resolved hyperfine F levels,” *Physical Review A* **79**, 053404 (2009).

- [25] V. Acosta, M. P. Ledbetter, S. M. Rochester, D. Budker, D. F. Jackson Kimball, D. C. Hovde, W. Gawlik, S. Pustelny, J. Zachorowski, and V. V. Yashchuk, “Nonlinear magneto-optical rotation with frequency-modulated light in the geophysical field range,” *Physical Review A* **73**, 053404 (2006).
- [26] M. Huang and J. C. Camparo, “Coherent population trapping under periodic polarization modulation: Appearance of the CPT doublet,” *Physical Review A* **85**, 012509 (2012).
- [27] A. Ben-Kish and M. Romalis, “Dead-zone-free atomic magnetometry with simultaneous excitation of orientation and alignment resonances,” *Physical Review Letters* **105**, 193601 (2010).
- [28] Z. D. Grujić and A. Weis, “Atomic magnetic resonance induced by amplitude-, frequency-, or polarization-modulated light,” *Physical Review A* **88**, 012508 (2013).
- [29] E. B. Aleksandrov, “Optical manifestations of the interference of non-degenerate atomic states,” *Physics-Uspekhi* **15**, 595–622 (1973).
- [30] E. B. Alexandrov, M. Auzinsh, D. Budker, D. F. Kimball, S. M. Rochester, and V. V. Yashchuk, “Dynamic effects in nonlinear magneto-optics of atoms and molecules: review,” *Journal of the Optical Society of America B* **22**, 7 (2005).
- [31] T. Petelski, M. Fattori, G. Lamporesi, J. Stuhler, and G. Tino, “Doppler-free spectroscopy using magnetically induced dichroism of atomic vapor: a new scheme for laser frequency locking,” *The European Physical Journal D - Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics* **22**, 279–283 (2003).
- [32] G. Wasik, W. Gawlik, J. Zachorowski, and W. Zawadzki, “Laser frequency stabilization by Doppler-free magnetic dichroism,” *Applied Physics B* **75**, 613–619 (2002).
- [33] N. Castagna, G. Bison, G. Di Domenico, A. Hofer, P. Knowles, C. Macchione, H. Saudan, and A. Weis, “A large sample study of spin relaxation and magnetometric sensitivity of paraffin-coated Cs vapor cells,” *Applied Physics B* **96**, 763–772 (2009).
- [34] E. Breschi, Z. D. Grujić, P. Knowles, and A. Weis, “Magneto-optical spectroscopy with polarization-modulated light,” *Physical Review A* **88**, 022506 (2013).

- [35] J. Skalla, G. Wäckerle, M. Mehring, and A. Pines, “Optical magnetic resonance imaging of Rb vapor in low magnetic fields,” *Physics Letters A* **226**, 69–74 (1997).
- [36] K. Ishikawa, Y. Anraku, Y. Takahashi, and T. Yabuzaki, “Optical magnetic-resonance imaging of laser-polarized Cs atoms,” *Journal of the Optical Society of America B* **16**, 31 (1999).
- [37] D. Giel, G. Hinz, D. Nettels, and A. Weis, “Diffusion of Cs atoms in Ne buffer gas measured by optical magnetic resonance tomography,” *Optics Express* **6**, 251–256 (2000).
- [38] A. C. Tam and W. Happer, “Optically pumped cell for novel visible decay of inhomogeneous magnetic field or of *rf* frequency spectrum,” *Applied Physics Letters* **30**, 580 (1977).
- [39] A. C. Tam, “Optical pumping of a dense Na+He+N₂ system: Application as an *rf* spectrum analyzer,” *Journal of Applied Physics* **50**, 1171 (1979).
- [40] H. Asahi, K. Motomura, K.-i. Harada, and M. Mitsunaga, “Dark-state imaging for two-dimensional mapping of a magnetic field.” *Optics Letters* **28**, 1153–5 (2003).
- [41] E. E. Mikhailov, I. Novikova, M. D. Havey, and F. A. Narducci, “Magnetic field imaging with atomic Rb vapor,” *Optics Letters* **34**, 3529–3531 (2009).
- [42] F. Bloch, “Nuclear Induction,” *Physical review* **70**, 460–474 (1946).
- [43] R. Folman, P. Krüger, J. Schmiedmayer, J. Denschlag, and C. Henkel, “Microscopic atom optics: From wires to an atom chip,” (Academic Press, 2002), pp. 263—356.
- [44] R. S. Ferber, O. A. Shmit, and M. Y. Tamanis, “Ground state Hanle effect in optically aligned diatomic molecules Na₂ and K₂,” *Chemical Physics Letters* **61**, 441–444 (1979).
- [45] R. E. Drullinger and R. N. Zare, “Optical pumping of molecules,” *Journal of Chemical Physics* **51**, 5532–5542 (1969).
- [46] M. Ducloy, “Non-linear effects in optical pumping with lasers. I. General theory of the classical limit for levels of large angular momenta,” *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* **9**, 357 (1976).
- [47] M. P. Auzinsh and R. S. Ferber, “Optical pumping of diatomic molecules in the electronic ground state: Classical and quantum approaches,” *Physical Review A* **43**, 2374–2386 (1991).

- [48] F. Renzoni, S. Cartaleva, G. Alzetta, and E. Arimondo, “Enhanced absorption Hanle effect in the configuration of crossed laser beam and magnetic field,” *Physical Review A* **63**, 065401 (2001).
- [49] J. Alnis and M. Auzinsh, “Reverse dark resonance in Rb excited by a diode laser,” *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics* **34**, 3889–3898 (2001).
- [50] S. Stenholm, *Foundations of Laser Spectroscopy* (Dover Publications, Inc., Mineola, New York, 2005).
- [51] L. Allen and J. H. Eberly, *Optical Resonance and Two Level Atoms* (Wiley, New York, 1975).
- [52] N. G. van Kampen, “Stochastic differential equations,” *Physics Reports* **24**, 171–228 (1976).
- [53] T. A. Davis, “A column pre-ordering strategy for the unsymmetric-pattern multifrontal method,” *ACM Transactions on Mathematical Software* **30**, 165–195 (2004).
- [54] G. Herzberg, *Molecular spectra and molecular structure. Vol. I: Spectra of diatomic molecules* (New York: Van Nostrand Reinhold, 1950).
- [55] A. N. Nesmeyanov, *Vapour Pressure of the Elements* (Academic Press, New York, 1963).
- [56] J. Alnis, K. Blushs, M. Auzinsh, S. Kennedy, N. Shafer-Ray, and E. Abraham, “The Hanle effect and level crossing spectroscopy in Rb vapour under strong laser excitation,” *Journal of Physics B* **36**, 1161–1173 (2003).
- [57] V. V. Vassiliev, V. L. Velichansky, V. S. Ilchenko, M. L. Gorodetsky, L. Hollberg, and A. V. Yarovitsky, “Narrow-line-width diode laser with a high-Q microsphere resonator,” *Optics Communications* **158**, 305–312 (1998).
- [58] T. Carmon, T. J. Kippenberg, L. Yang, H. Rokhsari, S. M. Spillane, and K. J. Vahala, “Feedback control of ultra-high-Q microcavities: application to micro-Raman lasers and microparametric oscillators,” *Optics Express* **13**, 3558 (2005).
- [59] A. A. Savchenkov, A. B. Matsko, V. S. Ilchenko, N. Yu, and L. Maleki, “Whispering-gallery-mode resonators as frequency references. II. Stabilization,” *Journal of the Optical Society of America B* **24**, 2988–2997 (2007).

- [60] B. Sprenger, H. G. L. Schwefel, Z. H. Lu, S. Svitlov, and L. J. Wang, “CaF₂ whispering-gallery-mode-resonator stabilized-narrow-linewidth laser,” *Optics Letters* **35**, 2870–2872 (2010).
- [61] W. Liang, V. S. Ilchenko, A. A. Savchenkov, A. B. Matsko, D. Seidel, and L. Maleki, “Whispering gallery mode resonator based ultra-narrow linewidth external cavity semiconductor laser,” *Optics Letters* **35**, 2822–2824 (2010).
- [62] J. Alnis, A. Schliesser, C. Wang, J. Hofer, T. J. Kippenberg, and T. W. Hänsch, “Thermal-noise-limited crystalline whispering-gallery-mode resonator for laser stabilization,” *Physical Review A* **84**, 2–5 (2011).
- [63] A. B. Matsko, A. A. Savchenkov, V. S. Ilchenko, D. Seidel, and L. Maleki, “Optical-RF frequency stability transformer,” *Optics letters* **36**, 4527–9 (2011).
- [64] A. A. Savchenkov, A. B. Matsko, V. S. Ilchenko, and L. Maleki, “Optical resonators with ten million finesse,” *Optics express* **15**, 6768–73 (2007).
- [65] A. B. Matsko, A. A. Savchenkov, N. Yu, and L. Maleki, “Whispering-gallery-mode resonators as frequency references. I. Fundamental limitations,” *Journal of the Optical Society of America* **24**, 1324–1335 (2007).
- [66] M. L. Gorodetsky and I. S. Grudinin, “Fundamental thermal fluctuations in microspheres,” *Journal of the Optical Society of America B* **21**, 697 (2004).
- [67] D. Strekalov, R. Thompson, L. Baumgartel, I. Grudinin, and N. Yu, “Temperature measurement and stabilization in a birefringent whispering gallery mode resonator,” *Optics Express* **19**, 14495–14501 (2011).
- [68] L. Baumgartel, R. Thompson, D. Strekalov, I. Grudinin, and N. Yu, “Dual mode frequency stabilization of a whispering gallery mode optical reference cavity,” in “CLEO: Science and Innovations,” (Optical Society of America, 2012).
- [69] J. R. Vig, “Dual-mode oscillators for clocks and sensors,” in “Ultrasonics Symposium, 1999. Proceedings. 1999 IEEE,” , vol. 2 (IEEE, 2002), vol. 2, pp. 859–868.
- [70] N. Boubekeur, J. Hartnett, M. Tobar, N. Bazin, Y. Kersalé, and V. Giordano, “Frequency stability of Ti³⁺-doped whispering gallery mode sapphire resonator oscillator at 34 K,” *Electronics Letters* **41**, 534–535 (2005).

- [71] M. E. Tobar, G. L. Hamilton, E. N. Ivanov, and J. G. Hartnett, “New method to build a high stability sapphire oscillator from the temperature compensation of the difference frequency between modes of orthogonal polarization,” *Ultrasonics, Ferroelectrics and Frequency Control, IEEE Transactions on* **50**, 214–219 (2003).
- [72] M. E. Tobar, G. L. Hamilton, J. G. Hartnett, E. N. Ivanov, D. Cros, and P. Guillon, “The dual-mode frequency-locked technique for the characterization of the temperature coefficient of permittivity of anisotropic materials,” *Measurement Science and Technology* **15**, 29 (2004).
- [73] J. Alnis, A. Matveev, N. Kolachevsky, T. Udem, and T. W. Hänsch, “Subhertz linewidth diode lasers by stabilization to vibrationally and thermally compensated ultralow-expansion glass Fabry-pérot cavities,” *Physical Review A* **77**, 053809 (2008).
- [74] A. Feldman, D. Horowitz, R. M. Waxler, and M. J. Dodge, “Optical materials characterization, final technical report february 1, 1978-september 30, 1978,” Tech. rep., DTIC Document (1979).
- [75] G. Ghosh, *Handbook of Optical Constants of Solids: Handbook of Thermo-Optic Coefficients of Optical Materials with Applications* (Academic Press, 1998).
- [76] I. S. Grudin, A. B. Matsko, A. A. Savchenkov, D. Strekalov, V. S. Ilchenko, and L. Maleki, “Ultra high Q crystalline microcavities,” *Optics Communications* **265**, 33 – 38 (2006).
- [77] R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalski, J. Hough, G. M. Ford, a. J. Munley, and H. Ward, “Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator,” *Applied Physics B Photophysics and Laser Chemistry* **31**, 97–105 (1983).