

Когерентная кинетика многоступенчатой λ -схемы для лазерного разделения изотопов

© А.Б. Дьячков, С.М. Миронов, Г.О. Цветков[¶]

Национальный исследовательский центр „Курчатовский институт“,
123182 Москва, Россия

[¶]e-mail: Tsvetkov_GO@nrcki.ru

Поступила в редакцию 14.12.2021 г.

В окончательной редакции 26.07.2022 г.

Принята к публикации 27.07.2022 г.

Получены аналитические решения уравнений Шредингера для когерентного возбуждения атома в схеме двух- и трехступенчатой фотоионизации применительно к задаче лазерного разделения изотопов. Особенностью исследования является введение лазерного возбуждения из дополнительного начального состояния для увеличения доли атомов, вовлекаемых в процесс разделения. Найдены оптимальные с точки зрения выхода фотоионов соотношения интенсивностей излучения на отдельных ступенях схемы фотоионизации.

Ключевые слова: лазерная фотоионизация, лазерное разделение изотопов.

DOI: 10.21883/OS.2022.09.53294.3036-22

Введение

Одним из важнейших параметров лазерного разделения изотопов является степень извлечения целевого изотопа за счет фотоионизации. Суть метода состоит в том, что поток атомов, формируемый испарителем в вакууме, проходит через рабочий объем — область, заполненную лазерным излучением, в которой происходит селективная фотоионизация целевого изотопа. Фотоионы целевого изотопа электрическим полем вытягиваются из потока на коллектор продукта, в то время как атомы других изотопов, оставаясь нейтральными, продолжают свой путь на коллектор отвала. Составляющими степени извлечения целевого изотопа являются эффективность фотоионизации, вероятность облучения атома импульсным лазерным излучением и вероятность экстракции и удержания фотоиона на коллекторе. В этом контексте под эффективностью фотоионизации понимается вероятность фотоионизации атома, который подвергся лазерному облучению. Эта вероятность зависит, помимо параметров переходов и лазерного излучения, от доли облученных атомов, которые вообще вовлечены в процесс фотоионизации. У большинства атомов основное состояние или расщеплено или имеются близлежащие метастабильные состояния. Таким образом, заселенность стартового уровня, который используется в схеме фотоионизации, оказывается далека от 1. Например, при фотоионизации изотопа ^{150}Nd заселенность основного состояния 5I_4 при температуре испарения неодима составляет 0.58, в то время как имеется метастабильное состояние 5I_5 с энергией 1128 см^{-1} с заселенностью 0.26 [1]. При использовании в схеме фотоионизации первого перехода на возбужденный уровень с полным электронным моментом атома $J = 4$ или $J = 5$ возможно использование дополнительного лазера, обеспечивающе-

го переход из метастабильного состояния 5I_5 на тот же самый уровень, что позволит лазерам второй и третьей степени фотоионизовать эти дополнительные атомы. Это позволит увеличить долю вовлекаемых в процесс фотоионизации атомов на 45%. Аналогичная ситуация имеется и в актуальных случаях фотоионизационного выделения изотопов ^{63}Ni , ^{176}Lu , ^{177}Lu и ^{177}Lu .

В случае лютеция заселенность основного состояния при температуре испарения 1700°C составляет ~ 0.7 , однако основное состояние, как и другие уровни, вследствие сверхтонкого взаимодействия расщеплены в мультиплеты. Подуровни в мультиплете определяются полным атомным моментом $F = J + I$, $J + I - 1, \dots, |J - I|$, где I — спин ядра. Расщепление, как правило, превышает спектральную ширину лазерного излучения, и при определенной настройке частот лазеров первой, второй и третьей ступеней фотоионизации происходит с учетом правил отбора ($\Delta F = 0, \pm 1$) по определенной цепочке подуровней F — каналу фотоионизации. Например, для ^{177}Lu подуровни основного состояния $5d6s^2\ ^2D_{3/2}$ ($I = 7/2$) с квантовыми числами $F = 2, 3, 4, 5$ заселены в соответствии с их статистическими весами $2F + 1$, и соответственно при использовании канала фотоионизации 5-6-5-4 [2] в процесс фотоионизации вовлекаются $0.7 \cdot 11/32 = 0.24$ от всех облученных атомов. В то же время возможно одновременное использование каналов 2-3-4-3 и 4-3-4-3, в этом случае доля вовлеченных атомов $0.7 \cdot (9 + 7)/32 = 0.35$ оказывается на 46% больше. Использование двух начальных состояний с возбуждением на один и тот же подуровень приводит к формированию так называемой λ -схемы фотоионизации. Однако при определенных условиях [3] наличие боковой ступени может, наоборот, подавить возбуждение атомов благодаря „тёмным состояниям“ (population trapping „dark“ states), которые возникают

при условии точного двухфотонного резонанса между двумя начальными уровнями.

При лазерном разделении изотопов редкоземельных элементов часто приходится иметь дело с небольшими (около 1 ГГц) разностями частот при возбуждении различных изотопов, что требует применения узкополосных одномодовых лазеров на красителях со спектральной шириной 120–150 МГц. При использовании таких лазеров экспериментатор часто встречается с эффектами расщепления атомных переходов и снижения фотоионного тока при увеличении интенсивности лазерного излучения, что находит объяснение в рамках когерентного взаимодействия лазерного излучения с атомом.

Теоретическое рассмотрение многоступенчатой когерентной фотоионизации классических схем (не λ -схем) широко представлены в литературе [4–7]. Наиболее универсальным условием эффективной фотоионизации в таких схемах является равенство частот Раби f_i между собой на каждом переходе. В частности, в случае трехуровневой системы при настройке частоты лазерного излучения в резонанс с переходами усредненная по времени заселенность верхнего возбужденного состояния W_3 в отсутствие релаксации пропорциональна множителю $\frac{f_1^2 f_2^2}{(f_1^2 + f_2^2)}$ [4], максимум которого соответствует условию $f_1 = f_2$, где f_1 и f_2 — частоты Раби на первом и втором переходах соответственно. К сожалению, это условие невозможно непосредственно распространить на случай λ -схемы. Данная работа представляет собой попытку найти условие эффективной многоступенчатой фотоионизации с двумя начальными состояниями, возбуждаемыми лазерным излучением на общий промежуточный уровень.

Аналитические оценки

Современная лазерная техника имеет в арсенале хорошо развитый аппарат измерения и стабилизации частот лазеров, поэтому теоретическое рассмотрение случая точного резонанса имеет большое практическое значение. Кроме того, в случае точного резонанса теоретические выражения существенно упрощаются и появляется возможность получить простые аналитические результаты, которые позволяют понять общие закономерности. В случае трехступенчатой фотоионизации возможны два варианта использования третьей ступени (рис. 1). Первый вариант реализуется при фотоионизации в континуум (рис. 1, *a*), второй вариант соответствует настройке длины волны лазерного излучения третьей ступени в резонанс с автоионизационным состоянием (рис. 1, *b*). В обоих случаях мы рассматриваем идеализированную систему уровней атома, которые участвуют в фотоионизации монохроматическим (одночастотным) лазерным излучением. Предполагается, что уровни не вырождены, частоты лазерного излучения $\omega_0, \omega_1, \omega_2$ совпадают с боровскими частотами переходов. Лазерные импульсы имеют прямоугольную форму и их длительность гораздо

меньше времени жизни возбужденных уровней $|2\rangle$ и $|3\rangle$. Считаем, что в первом случае переходы $|0\rangle \rightarrow |2\rangle$, $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ и $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$ являются когерентными, а переход с уровня $|3\rangle$ в сплошной спектр (ионизация) является некогерентным и не рассматривается. Во втором случае все переходы являются когерентными.

В более общем виде N -уровневая когерентная динамика возбуждения исследована в работах [4]. Отличие заключается в том, что в нашем случае возбуждение на первый возбужденный уровень происходит с двух нижних уровней. Наличие второго нижнего состояния $|1\rangle$ обусловлено необходимостью максимально заселить предионизационный уровень и получить соответственно максимальный фототок. Уровень $|1\rangle$ лежит вблизи от уровня $|0\rangle$ и имеет в начальный момент времени сравнимую населенность. Предполагаем тем не менее, что уровни $|0\rangle$ и $|1\rangle$ достаточно разнесены по энергии, так что отсутствуют вынужденные переходы с уровня $|2\rangle$ на уровень $|1\rangle$ под действием излучения с частотой ω_0 и, наоборот, нет переходов с уровня $|2\rangle$ на уровень $|0\rangle$, индуцируемых излучением с частотой ω_1 . В отличие от некогерентного случая с монотонным поведением населенностей когерентная динамика в отсутствие сильной релаксации характеризуется осцилляциями населенностей уровней и поэтому проблемой является определение таких соотношений интенсивностей излучений с частотами ω_i , которые обеспечивают максимальную населенность уровней $|3\rangle$ или $|4\rangle$, усредненную по длительности импульса. Для классической трёхуровневой системы, когда внизу один уровень [4,7], это соотношение заключается в равенстве частот Раби на переходах $|0\rangle \rightarrow |2\rangle$ и $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$. Мы, однако, не нашли работ для случая двух возбуждаемых нижних уровней, где бы решение получалось аналитически.

Взаимодействие атома с лазерным полем будем рассматривать как возмущение и полную волновую функцию атома $\Psi(t)$, зависящую от времени, ищем в виде суперпозиции собственных волновых функций стационарных состояний невозмущенного атома. В случае двухступенчатого возбуждения это волновые функции $\Psi_0, \Psi_1, \Psi_2, \Psi_3$, так что

$$\Psi(t) = a_0(t)\Psi_0 + a_1(t)\Psi_1 + a_2(t)\Psi_2 + a_3(t)\Psi_3. \quad (1)$$

Для трехступенчатого возбуждения используем пять невозмущенных волновых функций ($\Psi_0, \Psi_1, \Psi_2, \Psi_3, \Psi_4$), а полная волновая функция есть

$$\Psi(t) = a_0(t)\Psi_0 + a_1(t)\Psi_1 + a_2(t)\Psi_2 + a_3(t)\Psi_3 + a_4(t)\Psi_4. \quad (2)$$

Квадраты $|a_i|^2$ — это вероятности найти атом в стационарных состояниях $|0\rangle, |1\rangle, |2\rangle, |3\rangle$ и $|4\rangle$ в момент времени t . В начальный момент времени коэффициенты a_2, a_3 и a_4 равны нулю. Считая, что электрическое поле лазерного излучения имеет вид $E_j(t) = E_j(\exp(i\omega_j t) + \exp(-i\omega_j t))$ и справедливо дипольное приближение для взаимодействия с атомом, уравнение Шредингера для $\Psi(t)$ в приближении RWA

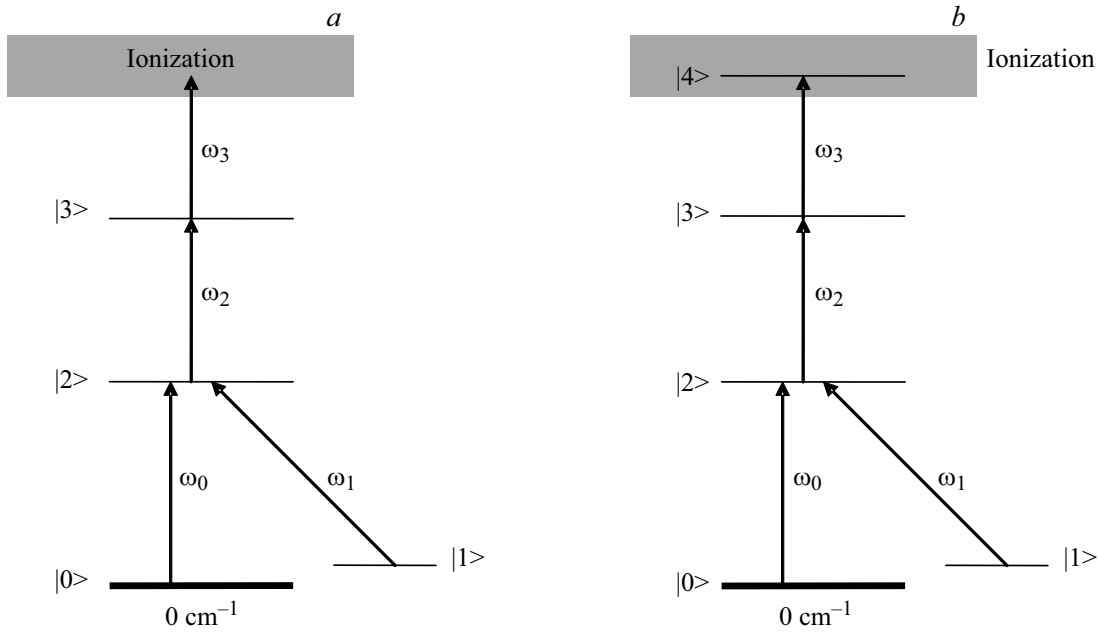


Рис. 1. λ — схемы фотоионизации: a — двухступенчатая схема, b — трехступенчатая схема.

(rotating wave approximation) сводится к системе уравнений при двухступенчатом фотовозбуждении [8]:

$$\frac{da_3}{dt} = if_2a_2, \tag{3}$$

$$\frac{da_2}{dt} = if_2^*a_3 + if_0a_0 + if_1a_1, \tag{4}$$

$$\frac{da_1}{dt} = if_1^*a_2, \tag{5}$$

$$\frac{da_0}{dt} = if_0^*a_2. \tag{6}$$

В левой части уравнений стоят производные коэффициентов $a_i(t)$ от времени, а в правых частях множители f_i — резонансные частоты Раби:

$$f_0 = \frac{d_{02}E_0}{\hbar}, \quad f_1 = \frac{d_{12}E_1}{\hbar}, \quad f_2 = \frac{d_{23}E_2}{\hbar}. \tag{7}$$

Здесь d_{ji} — дипольные матричные элементы соответствующих переходов.

Если начальные состояния не приготовлены когерентно, то фазы для $a_0(0)$ и $a_1(0)$ можно выбрать равными нулю и тогда коэффициенты a_i в момент $t = 0$ являются действительными величинами и удовлетворяют следующим начальным условиям:

$$a_3(t = 0) = 0, \tag{8}$$

$$a_2(t = 0) = 0, \tag{9}$$

$$a_1(t = 0) = \sqrt{M}, \tag{10}$$

$$a_0(t = 0) = \sqrt{G}. \tag{11}$$

Здесь G и M — начальные заселенности состояний $|0\rangle$ и $|1\rangle$ соответственно. Значения G и M зависят

от природы нижних состояний — это могут быть компоненты сверхтонкой структуры основного состояния или, например, комбинация основного состояния и близлежащего метастабильного. Задачей расчета является определение условий, при которых населенность верхнего состояния ($W_3 = |a_3|^2$ для двухступенчатого возбуждения и $W_4 = |a_4|^2$ при трехступенчатом) будет максимальной. Решение системы (3)–(6) с начальными условиями (8)–(11) для преионизационного состояния $|a_3|^2$ запишется в виде

$$W_3 = |a_3|^2 = 4 \left(\frac{f_0 f_2 \sqrt{G} + f_1 f_2 \sqrt{M}}{\Omega^2} \right)^2 \left(\sin \frac{\Omega}{2} t \right)^4, \tag{12}$$

где

$$\Omega = \sqrt{|f_0|^2 + |f_1|^2 + |f_2|^2}. \tag{13}$$

Усредняя значение W_3 по осцилляциям с частотой Ω , получаем среднее значение вероятности W_3

$$\bar{W}_3 = \frac{3}{2} \left(\frac{f_0 f_2 \sqrt{G} + f_1 f_2 \sqrt{M}}{f_0^2 + f_1^2 + f_2^2} \right)^2. \tag{14}$$

При равенстве частот Раби $f_0 = f_1 = f_2$ и $G = M = 0.5$

$$\bar{W}_3 = \frac{1}{3}. \tag{15}$$

Рассматривая \bar{W}_3 как функцию двух переменных f_0 и f_1 при постоянных f_2 , G и M , нетрудно видеть, что максимум \bar{W}_3 реализуется при

$$\begin{cases} f_0 = f_2 \sqrt{G}, \\ f_1 = f_2 \sqrt{M}. \end{cases} \tag{16}$$

При подстановке условия (16) в (14) получаем ($G + M = 1$)

$$\bar{W}_3 = \frac{3}{8}. \quad (17)$$

Таким образом, при двухступенчатом фотовозбуждении с использованием λ -схемы на первом переходе оптимальным распределением интенсивностей являются интенсивности, пропорциональные начальным заселенностям нижних состояний.

При трехступенчатом фотовозбуждении следует рассматривать систему уравнений:

$$\frac{da_4}{dt} = if_3 a_3, \quad (18)$$

$$\frac{da_3}{dt} = if_3^* a_4 + if_2 a_2, \quad (19)$$

$$\frac{da_2}{dt} = if_2^* a_3 + if_0 a_0 + if_1 a_1, \quad (20)$$

$$\frac{da_1}{dt} = if_1^* a_2, \quad (21)$$

$$\frac{da_0}{dt} = if_0^* a_1, \quad (22)$$

и решение для верхнего уровня существенно усложняется

$$W_4 = |a_4|^2 = \left(\frac{f_2 f_3 (f_0 \sqrt{G} + f_2 \sqrt{W})}{\Omega_+^2 - \Omega_-^2} \right)^2 \times \left(\frac{\sin \Omega_+ t}{\Omega_+} - \frac{\sin \Omega_- t}{\Omega_-} \right)^2. \quad (23)$$

Появляются две характеристические частоты Ω_+ и Ω_- :

$$\Omega_+ = \sqrt{\frac{(f_0^2 + f_1^2 + f_2^2 + f_3^2) + \sqrt{(f_0^2 + f_1^2 + f_2^2 + f_3^2)^2 - 4(f_3^2 f_0^2 + f_3^2 f_1^2)}}{2}}, \quad (24)$$

$$\Omega_- = \sqrt{\frac{(f_0^2 + f_1^2 + f_2^2 + f_3^2) - \sqrt{(f_0^2 + f_1^2 + f_2^2 + f_3^2)^2 - 4(f_3^2 f_0^2 + f_3^2 f_1^2)}}{2}}. \quad (25)$$

Усредненное значение W_4 по осцилляциям с частотами Ω_+ и Ω_- равно

$$\bar{W}_4 = \frac{f_2^2 (f_0 \sqrt{G} + f_1 \sqrt{M})^2 (f_0^2 + f_1^2 + f_2^2 + f_3^2)}{2[(f_0^2 + f_1^2 + f_2^2 - f_3^2)^2 + 4f_2^2 f_3^2 (f_0^2 + f_1^2)]}. \quad (26)$$

При равенстве частот Раби и одновременно $G = M = 0.5$ из (26) следует $\bar{W}_4 = 0.25$. Если распространить оптимальное условие (16) на случай трехступенчатого фотовозбуждения:

$$\frac{f_0}{\sqrt{G}} = \frac{f_1}{\sqrt{M}} = f_2 = f_3, \quad G + M = 1, \quad (27)$$

то усредненное значение $\bar{W}_4 = 0.3$, что на 20% выше, чем в случае равных частот Раби. Отметим, что выражения средних значений \bar{W}_3 системы (3)–(6) и \bar{W}_4 системы (18)–(22) совпадают с аналогичными выражениями

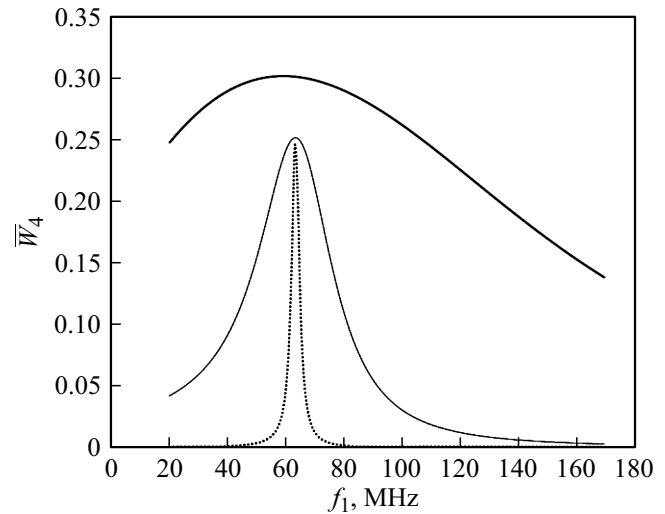


Рис. 2. Зависимость значения заселенности \bar{W}_4 от частоты f_1 при различных значениях f_2 и $f_0/\sqrt{G} = f_3 = 100$ MHz при $G = 0.6, M = 0.4$. $f_2 = 1$ (пунктир), 10 (тонкая линия), 100 MHz (толстая линия).

средних из работы [4], если в наших формулах (14) и (26) соответственно положить $f_1 = 0, M = 0, G = 1$.

На рис. 2 представлена зависимость \bar{W}_4 от f_1 при условии $f_0/\sqrt{G} = f_3 = 100$ MHz, $G = 0.6, M = 0.4$ при различных значениях f_2 . Как видно из рисунка, наблюдается максимум при условии (27), причем с уменьшением f_2 максимум становится более острым в то время как амплитуда его меняется незначительно. Это является, по-видимому, результатом интерференции колебаний населенностей уровней схемы фотоионизации в идеализированных условиях отсутствия релаксации. С уменьшением f_2 ($f_2 \ll f_3$) нетрудно видеть, что в максимуме при соблюдении условий

$$\frac{f_0}{\sqrt{G}} = \frac{f_1}{\sqrt{M}} = f_3, \quad G + M = 1 \quad (28)$$

частоты

$$\Omega_+ \approx f_3 + f_2/2, \quad (29)$$

$$\Omega_- \approx f_3 - f_2/2 \quad (30)$$

оказываются очень близки между собой, и сумму синусов в (23) можно представить как квадрат косинуса f_3 , модулированный более медленным квадратом синуса $f_2/2$. Время нарастания W_4 до её максимального значения существенно увеличивается и соответственно требование к точности соблюдения условий (28) возрастает, что и приводит к обострению пика. При $f_2 \ll f_3$ усредненная населенность \bar{W}_4 как функция f_1 вблизи максимума может быть с хорошей точностью представлена в виде резонансно-подобной кривой:

$$\bar{W}_4 \approx \frac{f_2^2 f_3^2}{[(f_1^2 - M f_3^2)^2 + 4f_2^2 f_3^2]}, \quad (31)$$

где ширина максимума пропорциональна $f_2(f_2f_3)$. В координатах интенсивностей лазерного излучения (пропорциональных квадрату частоты Раби) максимум (31) имеет лоренцеву форму с шириной, пропорциональной корню из произведения интенсивностей второй и третьей ступени.

Заключение

Целью работы было получение аналитических зависимостей при описании когерентного возбуждения в схеме многоступенчатой лазерной фотоионизации. Эти результаты могут быть использованы для предсказания поведения населённости предионизационного состояния системы, в которое требуется перевести максимальное число атомов с начальных уровней системы. В стандартной постановке задачи для эффективного возбуждения предионизационного состояния требуется равенство частот Раби на промежуточных переходах, и это равенство реализуется благодаря различным интенсивностям для компенсации разных дипольных матричных элементов переходов. В задаче, когда имеется два исходных уровня, это условие изменяется. Для получения максимального выхода ионизации интенсивности лазерного излучения на первых ступенях должны находиться в определенном соотношении с интенсивностями верхних ступеней, причём это соотношение зависит от начальной населённости первых уровней. Подобная дополнительная корреляция интенсивностей является прямым следствием когерентного характера взаимодействия излучения с атомом. Представленные результаты показывают, что в случае когерентного возбуждения процесс оказывается очень чувствительным к выбору и поддержанию заданных значений интенсивности лазерного излучения на всех ступенях схемы фотоионизации и несоблюдение этих условий приводит в некоторых случаях к резкому, резонансно-подобному падению эффективности.

Финансирование

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект № 17-13-01180).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] A.P. Babichev, I.S. Grigor'ev, A.I. Grigor'ev, A.P. Dorovskii, A.B. Dyachkov, S.K. Kovalevich, V.A. Kochetov, V.A. Kuznetsov, V.P. Labozin, A.V. Matrakhov, S.M. Mironov, S.A. Nikulin, A.V. Pesnya, N.I. Timofeev, V.A. Firsov, G.O. Tsvetkov, G.G. Shatalova. *Kvantovaya Elektron.*, **35**, 879–890 (2005). DOI: 10.1070/qe2005v035n10abeh006601
- [2] I.V. Ageeva, A.B. D'yachkov, A.A. Gorkunov, A.V. Labozin, S.M. Mironov, V.Y. Panchenko, V.A. Firsov, G.O. Tsvetkov, E.G. Tsvetkova. *Quantum Electron.*, **49**, 832–838 (2019). DOI: 10.1070/qel17049
- [3] H.R. Gray, R.M. Whitley, C.R. Stroud. *Opt. Lett.*, **3**, 218–220 (1978).
- [4] Z. Białynicka-Birula, I. Białynicki-Birula, J.H. Eberly, B.W. Shore. *Phys. Rev. A*, **16**, 2048–2054 (1977). DOI: 10.1103/PhysRevA.16.2048
- [5] B.W. Shore, J.H. Eberly. *Opt. Commun.*, **24**, 83–88 (1978).
- [6] B.W. Shore, M.A. Johnson. *J. Chem. Phys.*, **68**, 5631–5635 (1977). DOI: 10.1063/1.435694
- [7] B.W. Shore, J. Ackerhalt. *Phys. Rev. A*, **15**, 1640–1647 (1977). DOI: 10.1103/PhysRevA.15.1640
- [8] E.M. Lifshitz, L.D. Landau. *Quantum Mechanics; Non-relativistic Theory* (Pergamon Press, 1965).