

01

Эффект Ауллера-Таунса автоионизационного перехода при лазерном разделении изотопов лютетия

© А.Б. Дьячков, А.А. Горкунов, С.К. Ковалевич, А.В. Лабозин, В.А. Фирсов, С.В. Фомичев, Г.О. Цветков[✉], В.Я. Панченко

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

[✉]e-mail: Tsvetkov_GO@nrcki.ru

Поступила в редакцию 06.07.2023 г.

В окончательной редакции 06.07.2023 г.

Принята к публикации 02.09.2023 г.

Исследовано расщепление перехода из дискретного в автоионизационное состояние, использующегося в трехступенчатой схеме фотоионизации лютетия $5d6s^2 2D_{3/2} - 5d6s6p^4 F_{5/2}^{\circ} - 5d6s7s^4 D_{3/2} - (53375 \text{ cm}^{-1})_{1/2}^{\circ}$. Расщепление пропорционально квадратному корню из интенсивности, что соответствует эффекту Ауллера-Таунса.

Ключевые слова: автоионизационное состояние, фотоионизация, лазерное разделение изотопов.

DOI: 10.61011/OS.2023.09.56603.5398-23

Введение

Метод лазерного разделения изотопов в атомном паре (AVLIS-метод) основывается на селективной лазерной фотоионизации, при которой несколько ступеней селективного фотовозбуждения сопровождаются ступенью фотоионизации, которая закрепляет достигнутую селективность. Энергия кванта фотоионизирующего излучения может лежать в достаточно широком диапазоне и должна обеспечивать фотоионизацию из верхнего возбужденного состояния, однако по соображениям селективности энергия кванта не должна быть достаточной для фотоионизации из промежуточных возбужденных состояний. Эффективность фотоионизации определяется этой последней ступенью, поскольку сечения фотоионизации в континуум как правило на несколько порядков ниже, чем сечения возбуждения атомов. Использование фотоионизации через автоионизационные состояния (АИС) позволяет не только существенно повысить эффективность фотоионизации, но и увеличить селективность фотоионизации за счет резонансного характера возбуждения в АИС. В этом случае длина волны лазерного излучения на ступени фотоионизации должна, так же как и длины волн ступеней фотовозбуждения, стабилизироваться с высокой степенью точности.

Автоионизационные состояния используются практически во всех известных схемах фотоионизации, которые ассоциируются с лазерным методом разделения изотопов. Например, в трехступенчатой схеме фотоионизации урана [1] $0 \text{ cm}^{-1} - 17362 \text{ cm}^{-1} - 34659 \text{ cm}^{-1} - 50422 \text{ cm}^{-1}$ используется АИС с энергией 50422 cm^{-1} , в схеме фотоионизации иттербия [2] $0 \text{ cm}^{-1} - 17977 \text{ cm}^{-1} - 35187 \text{ cm}^{-1} - 52346 \text{ cm}^{-1}$ привлекается АИС с энергией 52346 cm^{-1} , в схемах фотоионизации неодима — АИС с энергией 49624 [3] и 50474 cm^{-1} [4],

и в трехступенчатой схеме фотоионизации лютетия $5d6s^2 2D_{3/2} - 5d6s6p^4 F_{5/2}^{\circ} - 5d6s7s^4 D_{3/2} - (53375 \text{ cm}^{-1})_{1/2}^{\circ}$ используется АИС с энергией 53375 cm^{-1} [5]. При разделении изотопов иттербия, неодима и лютетия необходимо использовать узкополосные одномодовые лазеры со спектральной шириной около 150 МГц, и в этом случае следует принимать во внимание когерентные эффекты, проявляющиеся в расщеплении линий переходов и влиянии двухфотонных переходов. Эти явления хорошо изучены [6] для резонансных переходов между уровнями, лежащими под порогом ионизации, однако влияние когерентных эффектов на само АИС, лежащее выше порога фотоионизации, практически не исследовано. Наше внимание к исследованию АИС в сильном поле было привлечено из-за обнаруженного в экспериментах по насыщению уменьшения выхода ионов по мере увеличения мощности на третьей, последней ступени ионизации [7], что можно интерпретировать как возрастание доли радиационного распада по сравнению с каналом ионизации. Отметим в то же время, что наблюдаемый спад происходит при интенсивностях, существенно больших выхода ионизации на насыщение. В этой работе мы экспериментально исследуем влияние когерентных эффектов на автоионизационный переход и представляем численную модель для сравнения с полученными данными.

В лазерном поле изучение АИС активно началось на рубеже восьмидесятых годов прошлого века и было, по-видимому, связано с появившимися возможностями по многофотонному возбуждению атомов для лазерного разделения изотопов и генерацией (в том числе и лазерной [8–10]) перестраиваемого излучения в ультрафиолетовой (УФ) области и в области вакуумного ультрафиолета. Интерес к АИС был обусловлен также и работами по автоионизационно подобным резонан-

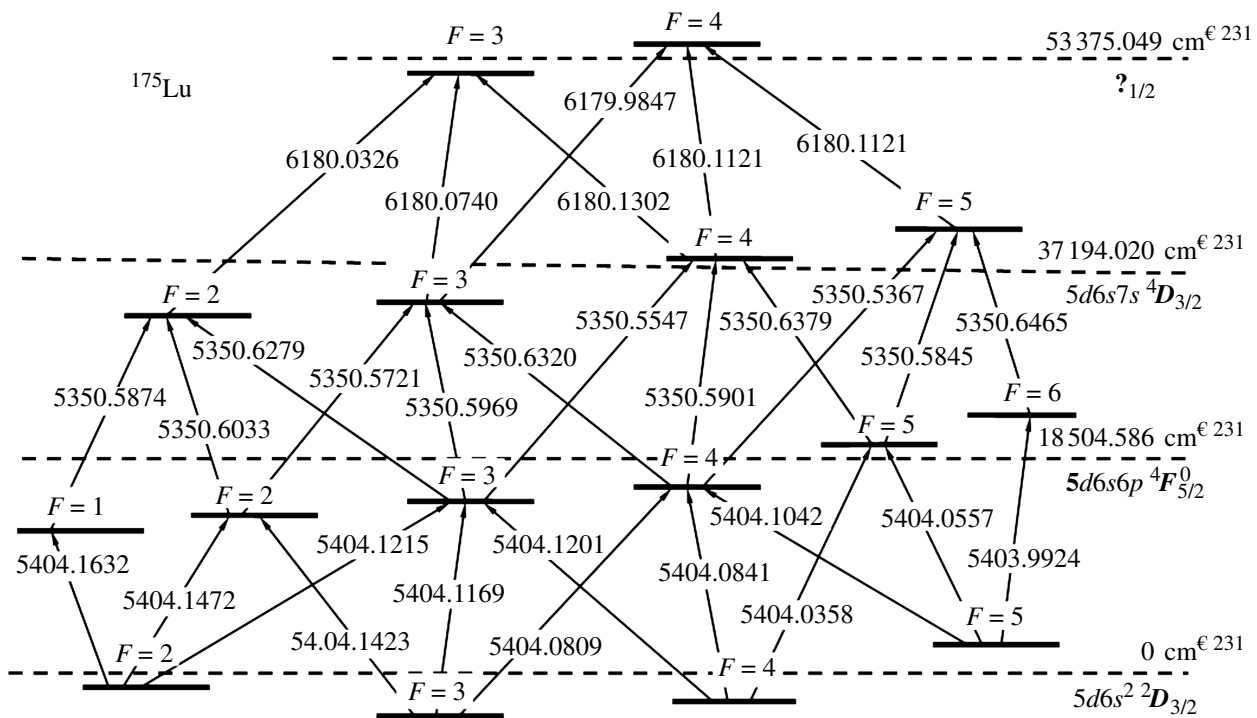


Рис. 1. Оптическая схема фотоионизации ^{175}Lu ($I = 7/2$) (длины волн вакуумные, Å) [5].

сам (лазерно индуцированные состояния континуума — LICs), появившимся в это время [11]. Если сначала исследования ограничивались оптическим или ближним УФ диапазоном (энергия возбуждения $< 10\text{ eV}$), источники которых имелись на тот момент, то с развитием коротковолновых мощных источников света с ультракороткими импульсами (высокие оптические гармоники, лазеры на свободных электронах) изучение атомных состояний континуума сместилось к высоковозбужденным состояниям (несколько десятков eV и выше). Это открыло возможности изучения АИС атомов с большим потенциалом ионизации, таких как He, Ne, Ar, и с высоким временным разрешением [12–16].

При лазерной ступенчатой фотоионизации атом попадает в АИС при поглощении фотона из дискретного состояния, лежащего ниже порога ионизации. В противоположность обычным атомным связанным состояниям АИС из-за кулоновского межэлектронного взаимодействия имеют возможность самопроизвольно ионизоваться в одноэлектронный континуум, и ширина АИС складывается из ширины распада в ионизованное состояние и спонтанного радиационного распада. Типичные ионизационные ширины, в этом случае превышающие 10^{13} s^{-1} , много больше радиационных ширин дискретных уровней ($10^8 - 10^9\text{ s}^{-1}$) и атом, попав в АИС, как правило, ионизируется. Распад АИС в континуум и прямая ионизация атома полем интерферируют, если конечные состояния этих процессов совпадают. В результате фотоионизационный резонанс приобретает асимметричный профиль Фано [17]. В сильном лазерном поле ситуация

существенно меняется. Это может приводить к заметному изменению формы автоионизационного резонанса и спектра возникающих фотоэлектронов. Благодаря радиационному каналу возникают осцилляции между АИС и нижним состоянием (динамический эффект Штарка), когда частота Раби становится порядка или превышает ширину распада АИС. Это приводит, в частности, к расщеплению автоионизационного резонанса и при определенных условиях к его сужению вплоть до радиационных ширин [10,18–20]. Теоретически в работе [10] предсказывалось, что сильное поле на автоионизационном резонансе может стабилизировать АИС относительно распада в континуум как результат деструктивной интерференции между ионизацией и радиационным распадом АИС. Влияние сильного лазерного поля на переходы между связанными состояниями, лежащими ниже порога ионизации, известны давно. В работе [21] впервые экспериментально продемонстрирован динамический эффект Штарка на двух АИС, находящихся в континууме. Было показано, что эффект приводит к существенному уменьшению фотоионизации. Нам удалось найти только одну экспериментальную работу, где, хотя и косвенно, рассматривались переходы из связанного состояния ниже порога ионизации в два состояния АИС [22]. При довольно внушительной интенсивности 10^9 W/cm^2 расщепление Ауллера-Таунса на одном из переходов составило 7.5 cm^{-1} , а на другом эффект не был обнаружен. В нашей работе также рассматривается переход под влиянием сильного лазерного поля в АИС

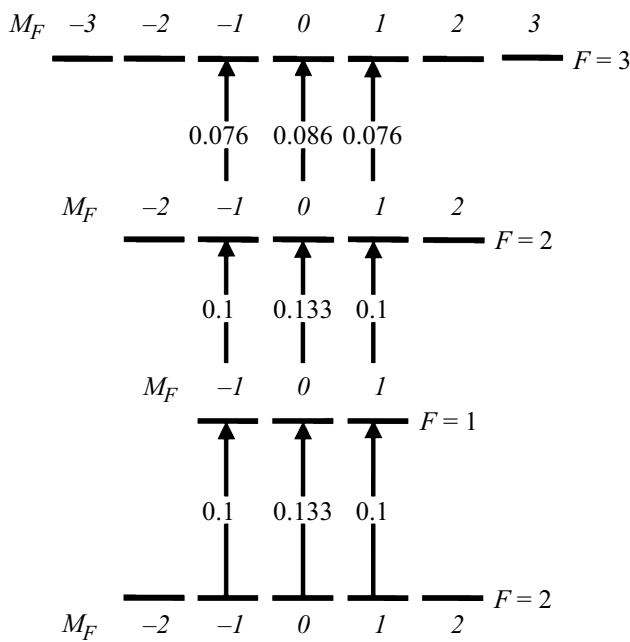


Рис. 2. Схемы переходов между проекциями по каналу 2-1-2-3. На стрелках указаны значения матричного элемента дипольного момента перехода.

из связанного преионизационного состояния в схеме фотоионизации лютеция (рис. 1).

Из рис. 1 видно, что сверхтонкое расщепление уровней схемы фотоионизации, как правило, значительно превышает спектральную ширину лазерного излучения (100–150 МГц). Соответственно при определенной настройке длин волн фотоионизация может быть проведена только по одному каналу — определенному сочетанию компонент сверхтонкой структуры (СТС) основного, первого и второго возбужденного и автоионизационного состояний, определяемых значениями полного момента атома F_i ($F_0 \rightarrow F_1 \rightarrow F_2 \rightarrow F_3$). Для того, чтобы минимизировать возможный разброс значений частот Раби, связанный с переходами между различными проекциями полного момента M_F , для экспериментального исследования был выбран канал 2–1–2–3. В этом случае при использовании линейной поляризации лазерного излучения для проекций полного момента M_F действует правило отбора $\Delta M_F = 0$ и возможны переходы с участием проекций $-1, 0$ и 1 (рис. 2). Матричные элементы дипольного момента переходов (рис. 2, числа на стрелках) с участием проекций -1 и 1 совпадают, и для третьего перехода незначительно отличаются от значений для проекции 0 .

Эксперимент

Исследование расщепления АИС ^{175}Lu (природная концентрация 96.4%) в схеме фотоионизации $5d6s^2\ ^2D_{3/2} - 5d6s6p\ ^4F_{5/2}^\circ - 5d6s7s\ ^4D_{3/2} - (53375\text{ cm}^{-1})_{1/2}^\circ$ проводилось методом лазерной

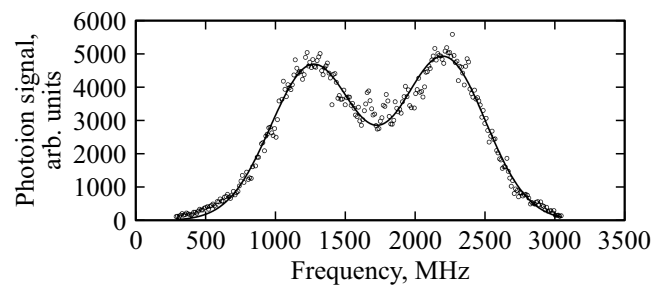


Рис. 3. Зависимость фотоионного сигнала от частоты излучения лазера второй ступени. Средняя плотность мощности излучения на третьей ступени 23.7 W/cm^2 (интенсивность 118.5 kW/cm^2).

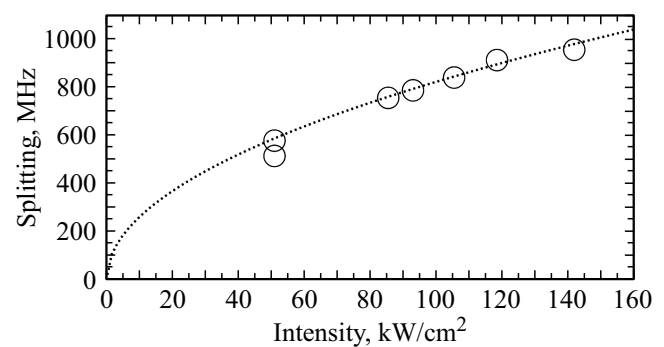


Рис. 4. Зависимость расщепления от интенсивности I лазерного излучения третьей ступени. Кружки — экспериментальные точки. Пунктирная линия — зависимость $\sim \sqrt{I}$.

резонансной ионизационной масс-спектропии (LRIMS). Для резонансного возбуждения и ионизации атомов использовалось излучение трех импульсных одномодовых лазеров на красителях (ЛК) с накачкой излучением лазеров на парах меди. Спектральная ширина линии генерации ЛК составляла 100–150 МГц (FWHM), длительность импульсов (FWHM) 20 ns, частота следования импульсов 10 kHz, излучение всех трех лазеров имело линейную поляризацию в одном направлении. Лазерные импульсы второй и третьей ступеней были совмещены во времени и задержаны относительно импульса первой ступени на 20 ns (время жизни первого возбужденного состояния $5d6s6p\ ^4F_{5/2}^\circ$ составляет 472 ns [23]). Для регистрации фотоионов использовался коммерческий квадрупольный масс-спектрометр MS-7302, эксперименты проводились с узким атомным пучком (доплеровское уширение $\sim 150\text{ MHz}$). Технические параметры и особенности экспериментальной установки детально описаны в работах [4,24].

В ходе исследования ЛК 1 со средней плотностью мощности 48 mW/cm^2 (интенсивность 240 W/cm^2) настраивался в резонанс с первым переходом. Длина волны ЛК 3 настраивалась на резонанс с переходом в АИС с энергией 53375 cm^{-1} , интенсивность ЛК 3 изменялась в диапазоне 20–150 kW/cm^2 . Интенсивность ЛК 2 была

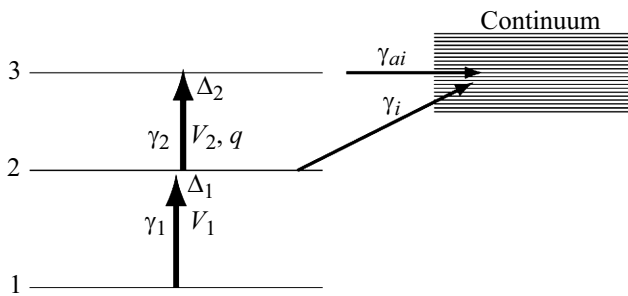


Рис. 5. Схема двухфотонной ионизации атома через АИС, соответствующая расчетной модели и уравнениям (1)–(7).

снижена до 10 W/cm^2 , и в качестве пробного лазера длина волны ЛК 2 сканировалась в области резонанса второго перехода при постоянной интенсивности ЛК 3. Зависимость фотоионного тока при сканировании длины волны ЛК 2 в области резонанса со вторым переходом при интенсивности ЛК 3, равной 118.5 kW/cm^2 , представлена на рис. 3. На рис. 4 представлена зависимость расщепления от интенсивности лазерного излучения ЛК 3. Экспериментальные результаты хорошо согласуются с корневой зависимостью от интенсивности.

Теоретическое моделирование результатов эксперимента

Для теоретического моделирования результатов проведенных экспериментов была использована упрощенная модель двухфотонной ионизации атома через АИС 3, схематически представленная на рис. 5. Благодаря временным задержкам, которые использовались в экспериментах, на атомную систему одновременно воздействует лазерное излучение второй и третьей ступеней. В результате вместо четырехуровневой системы в численной модели рассматривается трехуровневая, когда начальным состоянием является первое возбужденное состояние $5d6s6p^4F_{5/2}^o$, начальная населенность которого создается лазерным импульсом первой ступени. При этом нижняя 1 и верхняя 2 ступени фотовозбуждения в этой модельной схеме (рис. 5) соответствуют второй и третьей ступеням в экспериментальной схеме фотоионизации, причем мы полагаем, что первый возбужденный уровень с $F = 1$ (соответствующий нижнему уровню 1 на рис. 5) вырожден по проекциям момента F (по которым производится усреднение). Возбуждение и последующая ионизация атома в этой модели может быть описана следующей системой уравнений для матрицы плотности ρ_{ij} ($i, j = 1, 2, 3$), детальный вывод которой может быть найден в работе [25]:

$$i \frac{\partial \rho_{11}}{\partial t} = -\frac{V_1^*}{2} \rho_{21} + \frac{V_1}{2} \rho_{12} + i\gamma_1 \rho_{22}, \quad (1)$$

$$i \frac{\partial \rho_{22}}{\partial t} = -\frac{V_1}{2} \rho_{12} + \frac{V_1^*}{2} \rho_{21} - \frac{V_2^*}{2} \left(1 - \frac{i}{q}\right) \rho_{32} + \frac{V_2}{2} \left(1 + \frac{i}{q}\right) \rho_{23} - i(\gamma_1 + \gamma_i) \rho_{22} + i\gamma_2 \rho_{33}, \quad (2)$$

$$i \frac{\partial \rho_{33}}{\partial t} = -\frac{V_2}{2} \left(1 - \frac{i}{q}\right) \rho_{23} + \frac{V_2^*}{2} \left(1 + \frac{i}{q}\right) \rho_{32} - i(\gamma_2 + \gamma_{ai}) \rho_{33}, \quad (3)$$

$$i \frac{\partial \rho_{21}}{\partial t} = -\left(\Delta_1 + \frac{i}{2}(\gamma_1 + \gamma_i) + 2i\Delta_{L1}\right) \rho_{21} - \frac{V_1}{2} (\rho_{11} - \rho_{22}) - \frac{V_2^*}{2} \left(1 - \frac{i}{q}\right) \rho_{31}, \quad (4)$$

$$i \frac{\partial \rho_{32}}{\partial t} = -\left(\Delta_2 + \frac{i}{2}(\gamma_1 + \gamma_2 + \gamma_i + \gamma_{ai}) + 2i\Delta_{L2}\right) \rho_{32} - \frac{V_2}{2} \left(\left(1 - \frac{i}{q}\right) \rho_{22} - \left(1 + \frac{i}{q}\right) \rho_{33}\right) + \frac{V_1^*}{2} \rho_{31}, \quad (5)$$

$$i \frac{\partial \rho_{31}}{\partial t} = -\left(\Delta_1 + \Delta_2 + \frac{i}{2}(\gamma_2 + \gamma_{ai}) + 2i(\Delta_{L1} + \Delta_{L2})\right) \rho_{31} - \frac{V_2}{2} \left(1 - \frac{i}{q}\right) \rho_{21} + \frac{V_1}{2} \rho_{32}, \quad (6)$$

$$\rho_i = 1 - \rho_{11} - \rho_{22} - \rho_{33}. \quad (7)$$

Здесь ρ_i есть искомая степень ионизации атома после его возбуждения двумя лазерными импульсами, и уравнения для элементов матрицы плотности ρ_{12} , ρ_{23} и ρ_{13} являются уравнениями, комплексно-сопряженными с уравнениями (4), (5) и (6) соответственно. Начальными условиями при решении этой системы уравнений в момент времени $t = 0$ являлись значение $\rho_{11}(t = 0) = 1$ и нулевые начальные значения для всех остальных элементов матрицы плотности.

В этих уравнениях $\Delta_1 = \omega_1 - \omega_{01}$, $\Delta_2 = \omega_2 - \omega_{02}$ — отстройки частот лазерных излучений на нижней и верхней ступенях возбуждения от соответствующих резонансных частот $\omega_{0k} = 2\pi\nu_{0k}$ ($k = 1, 2$), со значениями для нашего случая $\nu_{01} = 5.6029 \cdot 10^{14} \text{ Hz}$ и $\nu_{02} = 4.8507 \cdot 10^{14} \text{ Hz}$ (что эквивалентно 18690 и 16181 cm^{-1} соответственно). Величины $V_1 = d_1 E_1 / \hbar \sim \sqrt{I_1}$ и $V_2 = d_2 E_2 / \hbar \sim \sqrt{I_2}$ — частоты Раби, определяемые матричными элементами оператора взаимодействия резонансных излучений с атомом на соответствующих переходах, которые предполагаются вещественными (считая резонансные излучения линейно поляризованными) и пропорциональными квадратным корням из соответствующих интенсивностей лазерных излучений I_1 и I_2 , d_1 и d_2 — дипольные моменты резонансных переходов, $\gamma_1 = 1/\tau_1$ и $\gamma_2 = 1/\tau_2$ — их однородные радиационные ширины (обратные времена спонтанной релаксации или коэффициенты Эйнштейна). Квадраты модуля дипольного момента для перехода с определенными значениями полного момента F и F'

запишем через $3j$ - и $6j$ -символы Вигнера следующим образом [26]:

$$|d_{FF'}|^2 = (2F+1)(2F'+1) \overline{\begin{pmatrix} F & 1 & F' \\ -M & 0 & M' \end{pmatrix}}^2 \times \left\{ \begin{matrix} -J & 1 & J' \\ F' & I & F \end{matrix} \right\}^2 |\langle J \| D \| J' \rangle|^2, \quad (8)$$

где черта сверху означает усреднение по переходам с разными значениями (0 или ± 1) проекций момента M и M' при $\Delta M = M - M' = 0$ (рис. 2), J и J' — квантовые числа суммарного орбитального и спинового моментов электронов, $I = 7/2$ — спин ядра лютеция. Поскольку величины γ_1 и γ_2 определяются теми же приведенными дипольными матричными элементами переходов $\vec{d} = \langle J \| D \| J' \rangle$ согласно соотношениям $\gamma_k = 4\omega_{0k}^3 |\vec{d}_k|^2 / \{3(2J'+1)\hbar c^3\}$ (при $k = 1, 2$), то можно установить связь между величинами γ_1 и γ_2 и частотами Раби в использованной здесь простейшей модели невырожденных переходов в виде $V_k^2 = \gamma_k \omega_{0k} (I_k / I_{0k})$, где $I_k = cE_k^2 / (8\pi)$ — интенсивность лазерного излучения k -й ступени, $I_{0k} = \hbar\omega_{0k}^4 / (6\pi c^2 f_k)$ и где

$$f_k = (2J'+1)(2F+1)(2F'+1) \overline{\begin{pmatrix} F & 1 & F' \\ -M & 0 & M' \end{pmatrix}}^2 \times \left\{ \begin{matrix} -J & 1 & J' \\ F' & I & F \end{matrix} \right\}^2. \quad (9)$$

В нашем случае $f_1 = 2/9$ (при $F = 1$, $F' = 2$, $J = 5/2$, $J' = 3/2$) и $f_2 = 25/126$ (при $F = 2$, $F' = 3$, $J = 3/2$, $J' = 1/2$), при этом $I_{01} = 4.3 \cdot 10^6 \text{ W/cm}^2$ и $I_{02} = 2.7 \cdot 10^6 \text{ W/cm}^2$. Величина $\gamma_i = \sigma_i I_2 / (\hbar\omega_{02})$ есть ионизационная ширина промежуточного уровня 2, пропорциональная сечению прямой фотоионизации σ_i с уровня 2 и интенсивности лазерного излучения верхней ступени I_2 . Величина γ_{ai} — ширина автоионизационного уровня 3, связанная с переходами с этого уровня непосредственно в континуум, и q — параметр Фано перехода в автоионизационное состояние 3 из дискретного атомного состояния 2, с которым связана асимметрия фотоионизационной резонансной кривой. Параметр q характеризует отношение амплитуды вероятности фотоионизационного перехода через дискретное состояние к амплитуде вероятности прямого перехода в непрерывный спектр [25], и в контексте настоящей работы он может рассматриваться как феноменологический параметр, значение которого выбирается из условия наилучшего соответствия между расчетными и экспериментальными результатами. В пределе $|q| \gg 1$ асимметрия исчезает. Отметим, что для типичных значений сечения фотоионизации $\sigma_i \sim 10^{-17} \text{ cm}^2$ ионизационная ширина для прямого перехода в непрерывный спектр $\gamma_i [\text{s}^{-1}] \sim 10^2 \times I_2 [\text{W/cm}^2]$, и она слабо влияла на форму фотоионизационных резонансных кривых. И, наконец, величины Δ_{L1} и Δ_{L2} в уравнениях (4), (5) и (6) —

это однородные лоренцевы ширины спектров лазерной генерации на первой и второй ступенях соответственно. Подгонка экспериментальных данных в использованной модели проводилась в двух вариантах: в отсутствие уширения спектров лазеров (при $\Delta_{L1} = \Delta_{L2} = 0$) и при их одинаковых ненулевых значениях, соответствующих уширениям спектров $\tilde{\Delta}_{L1} = \Delta_{L1}/(2\pi)$ и $\tilde{\Delta}_{L2} = \Delta_{L2}/(2\pi)$, равным 30 МГц, что по различным данным близко к спектральной ширине лазерного излучения в отдельном импульсе [27].

При моделировании процесса фотоионизации отстройки от резонанса нижней ступени возбуждения Δ_1 (или соответственно лазерная частота ν_1) сканировалась в широком диапазоне значений, в то время как для верхней ступени возбуждения было положено $\Delta_2 = 0$. Для параметров нижней ступени возбуждения были выбраны значения интенсивности лазерного излучения I_1 в области 5–13 W/cm^2 (чтобы избежать полного насыщения в процессе фотоионизации) и значение коэффициента Эйнштейна $\gamma_1 = 8.7 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ (при этом $\tilde{\gamma}_1 = \gamma_1/(2\pi) = 13.85 \text{ MHz}$), что соответствует экспериментальному времени жизни $\tau_1 = 11.5 \text{ ns}$ состояния 2. Расчет производился для двух прямоугольных синхронизированных лазерных импульсов нижней и верхней ступеней с временем импульсов $\tau_{\text{имп}} = 20 \text{ ps}$ (отметим, что расчет фотоионизации был продолжен и после окончания действия импульсов, чтобы учесть все образовавшиеся в результате автоионизации ионы). Оставшиеся три величины, именно γ_2 , γ_{ai} и q играли роль подгоночных параметров. При этом основную роль при подгонке экспериментальных результатов, представленных на рис. 4, играли первые два параметра, в то время как параметр асимметрии q подбирался по визуальному согласию по асимметрии экспериментальных резонансных кривых (подобных тому, что представлено на рис. 3) с рассчитанными резонансными кривыми. Наилучшее количественное согласие экспериментальных результатов с результатами расчетов касательно расщепления резонансов и качественного согласия для самих резонансных кривых в рамках использованной модели было получено со значением $q = 7$ при следующих значениях остальных подгоночных параметров: в случае нулевых лазерных ширин $\gamma_2 = 2.82 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$, $\gamma_{ai} = 3.40 \cdot 10^9 \text{ s}^{-1}$ ($\tilde{\gamma}_2 = 4.5 \cdot 10^4 \text{ Hz}$, $\tilde{\gamma}_{ai} = 500 \text{ MHz}$), а в случае лазерных ширин, соответствующих 30 МГц, $\gamma_2 = 2.82 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$, $\gamma_{ai} = 1.63 \cdot 10^9 \text{ s}^{-1}$ ($\tilde{\gamma}_2 = 4.5 \cdot 10^4 \text{ Hz}$, $\tilde{\gamma}_{ai} = 260 \text{ MHz}$).

Результаты расчетов изменения расщепления фотоионизационной кривой при приведенных выше значениях параметров модели в зависимости от интенсивности лазерного излучения верхней ступени I_2 и их сравнение с экспериментом показано на рис. 6 при интенсивности $I_1 = 9 \text{ W/cm}^2$. Отметим, что результаты расчетов для расщепления резонансов слабо зависят от интенсивности лазерного излучения нижней ступени I_1 в рассматриваемой области её значений. Для некоторых

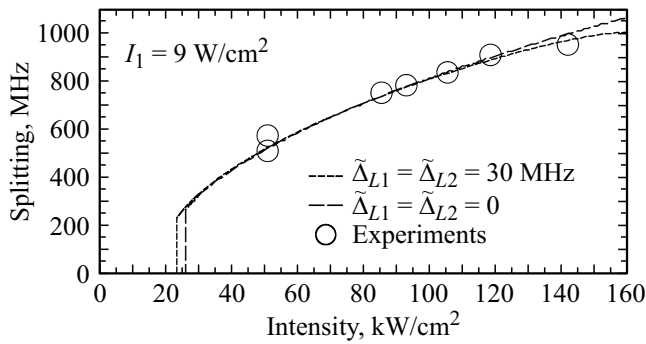


Рис. 6. Результаты расчетов расщепления пиков на кривых фотоионизации как функции лазерной интенсивности I_2 при интенсивности лазерного излучения нижней ступени $I_1 = 9 \text{ W/cm}^2$ при нулевых лазерных ширинах и при лазерных ширинах 30 MHz, сравнение с экспериментальными данными (рис. 4).

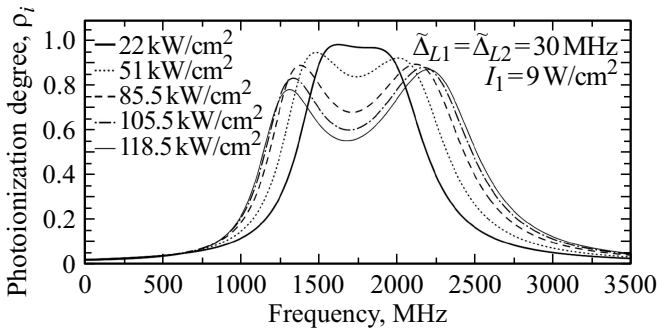


Рис. 7. Результаты расчетов степени фотоионизации ρ_i при лазерных ширинах 30 MHz для нескольких значений интенсивности лазерного излучения верхней ступени I_2 (приведены на рисунке) и при интенсивности лазерного излучения нижней ступени $I_1 = 9 \text{ W/cm}^2$.

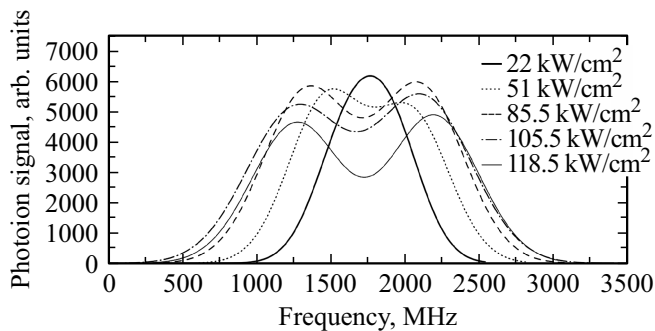


Рис. 8. Экспериментальный фотоионный сигнал при разных интенсивностях лазерного излучения третьей ступени (приведены на рисунке), возбуждающего АИС.

конкретных значений интенсивности лазерного излучения верхней ступени I_2 , для которых были получены экспериментальные результаты, были рассчитаны ионизационные кривые как функция отстройки Δ_1 (рис. 7).

Для сравнения с соответствующими экспериментальными результатами последние выведены на рис. 8.

Полученные результаты показывают, что зависимость расщепления резонанса от интенсивности лазерного излучения I_2 может быть одинаково хорошо описана разными наборами подгоночных параметров, в нашем случае для разных значений ширин лазерных излучений двух возбуждающих ступеней. В обоих случаях эффект появления двухпиковой структуры фотоионизационной кривой (появление провала в центре кривой) имеет ярко выраженный пороговый характер: расщепление на два пика появляется как некоторая конечная величина начиная с определенной ненулевой интенсивности лазерного излучения I_2 , равной для нашего случая примерно 25 kW/cm^2 . Ниже этой интенсивности расщепление отсутствует, что соответствует эксперименту при интенсивности $I_2 = 22 \text{ kW/cm}^2$, когда вместо двухпиковой структуры еще только намечается перегиб на резонансной кривой. Представляется, однако, что это свойство пороговости эффекта Ауллера-Таунса не является специфичным только для резонанса с участием АИС, а должно иметь общий характер.

Визуальное сравнение рассчитанных фотоионизационных кривых как функций частоты лазера нижней ступени возбуждения с экспериментальными результатами показывает, что неплохое полуколичественное согласие касательно провалов между пиками, асимметрии пиков и общей ширины фотоионизационных кривых демонстрирует расчет, выполненный со вторым набором изменяемых параметров, полученным для ненулевой ширины 30 MHz лазерных излучений (рис. 7).

Что касается асимметрии фотоионизационных кривых, то стоит отметить, что асимметрия связана не только с параметром Фано q АИС (при замене q на $-q$ происходит инверсия асимметрии), но её также может вызывать ненулевая отстройка Δ_2 лазера верхней ступени от резонанса (изменение знака Δ_2 также вызывает инверсию асимметрии). Хотя в эксперименте лазер верхней ступени возбуждения настраивался строго на центр перехода, соответствующий значению $\Delta_2 = 0$, флуктуации отстройки Δ_2 для отдельных импульсов могут иметь место при многоимпульсном возбуждении атомной системы. Однако в результате усреднения по многим импульсам итог должен соответствовать ситуации с $\Delta_2 \equiv 0$. Более существенным может оказаться возможный эффект сдвига резонансной частоты верхнего перехода, зависящий от интенсивности лазерного излучения верхней ступени возбуждения I_2 . Тогда комбинированное действие двух механизмов асимметрии может в принципе привести к изменению характера асимметрии фотоионизационных кривых с изменением интенсивности лазерного излучения I_2 . Именно это и наблюдается как в экспериментальных результатах на рис. 4, 8, так и в теоретических результатах на рис. 7, соответствующих расчетам с ненулевой шириной лазерного излучения при интенсивности лазерного излучения нижней ступени $I_1 = 9 \text{ W/cm}^2$. Отметим, что

при меньших значениях интенсивности I_1 , к примеру, при $I_1 = 5 \text{ W/cm}^2$, характер асимметрии с изменением интенсивности лазерного излучения I_2 не менялся. Такие тонкие эффекты требуют отдельного специального исследования и не рассматриваются детально в данной работе. В целом проведенное моделирование дает основание утверждать, что эффект Ауллера-Таунса должен проявляться при возбуждении атомов и/или молекул в АИС, также как это имеет место для обычных процессов их возбуждения и ионизации через дискретные связанные состояния.

Выводы

Таким образом, при осуществлении лазерной изотопически селективной фотоионизации узкополосными одномодовыми лазерами с использованием АИС следует считать с возможностью расщепления АИС, как и любого другого резонансного состояния, участвующего в схеме фотоионизации. На практике это будет проявляться как снижение фотоионного сигнала целевого изотопа при увеличении интенсивности лазерного излучения последней ионизирующей ступени. В наибольшей степени это может проявляться для „слабых“ АИС с невысоким значением γ_{ai} , в этом случае может потребоваться согласованное увеличение интенсивности лазерного излучения на всех ступенях схемы фотоионизации для выравнивания частот Раби.

В случае исследованной схемы фотоионизации с АИС 53375 cm^{-1} наилучшим образом результаты расчетов совпадают с экспериментальными результатами при $\tilde{\gamma}_{ai} = 260 \text{ MHz}$, $\tilde{\gamma}_2 = 4.5 \cdot 10^4 \text{ Hz}$ и параметре Фано $q = 7$. Расщепление проявляется при интенсивности третьей ступени выше 25 kW/cm^2 , в то время как типичные значения интенсивности при осуществлении селективной фотоионизации составляют $15\text{--}30 \text{ kW/cm}^2$.

При расчете эффективности и селективности фотоионизации с использованием АИС следует рассматривать АИС так же, как и резонансный уровень, находящийся ниже порога ионизации, где роль распада в связанное состояние играет ионизация с постоянной γ_{ai} . Единственным отличием является наличие у АИС параметра Фано q , характеризующего канал прямой фотоионизации в континуум из преионизационного состояния. При такой постановке задачи возможен учет дополнительной селективности, возникающей при использовании АИС и таким образом достигается наиболее полное описание процесса селективной фотоионизации.

Финансирование работы

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] P.T. Greenland, D.N. Travis, D.J.H. Wort. *J. Phys. B*, **23**(17), 2945 (1990). DOI: 10.1088/0953-4075/23/17/007
- [2] С.И. Яковленко. *Квант. электрон.*, **25**(11), 971 (1998). [S.I. Yakovlenko. *Quant. Electron.*, **28**(11), 945 (1998). DOI: 10.1070/QE1998v028n11ABEH001364].
- [3] А.П. Бабичев, И.С. Григорьев, А.И. Григорьев, А.П. Доровский, А.Б. Дьячков, С.К. Ковалевич, В.А. Кочетов, В.А. Кузнецов, В.П. Лабозин, А.В. Матрахов, С.М. Миронов, С.А. Никулин, А.В. Песня, Н.И. Тимофеев, В.А. Фирсов, Г.О. Цветков, Г.Г. Шаталова. *Квант. электрон.*, **35**(10), 879 (2005). [A.P. Babichev, I.S. Grigoriev, A.I. Grigoriev, A.P. Dorovskii, A.B. D'yachkov, S.K. Kovalevich, V.A. Kochetov, V.A. Kuznetsov, V.P. Labozin, A.V. Matrahov, S.M. Mironov, S.A. Nikulin, A.V. Pesnya, N.I. Timofeev, V.A. Firsov, G.O. Tsvetkov, G.G. Shatalova. *Quant. Electron.*, **35**(10), 879 (2005). DOI: 10.1070/QE2005v035n10ABEH006601].
- [4] А.Б. Дьячков, А.А. Горкунов, А.В. Лабозин, С.М. Миронов, В.Я. Панченко, В.А. Фирсов, Г.О. Цветков. *Квант. электрон.*, **48**(1), 75 (2018). [A.B. D'yachkov, A.A. Gorkunov, A.V. Labozin, S.M. Mironov, V.Ya. Panchenko, V.A. Firsov, G.O. Tsvetkov. *Quant. Electron.*, **48**(1), 75 (2018). DOI: 10.1070/QEL16493].
- [5] И.В. Агеева, А.Б. Дьячков, А.А. Горкунов, А.В. Лабозин, С.М. Миронов, В.Я. Панченко, В.А. Фирсов, Г.О. Цветков, Е.Г. Цветкова. *Квант. электрон.*, **49**(9), 832 (2019). [I.V. Ageeva, A.B. D'yachkov, A.A. Gorkunov, A.V. Labozin, S.M. Mironov, V.Ya. Panchenko, V.A. Firsov, G.O. Tsvetkov, E.G. Tsvetkova. *Quant. Electron.*, **49**(9), 832 (2019). DOI: 10.1070/QEL17049].
- [6] B. Shore. *Acta Phys. Slovaca. Rev. Tutorials*, **58**(3), 243 (2008).
- [7] А.Б. Дьячков, А.А. Горкунов, А.В. Лабозин, К.А. Маковеева, С.М. Миронов, В.А. Фирсов, Г.О. Цветков, В.Я. Панченко. *Радиохимия*, **64**(1), 65 (2022). DOI: 10.31857/S0033831122010063. [A.B. D'yachkov, A.A. Gorkunov, A.V. Labozin, K.A. Makoveeva, S.M. Mironov, V.A. Firsov, G.O. Tsvetkov, V.Ya. Panchenko. *Radiochemistry*, **64**(1), 49 (2022). DOI: 10.1134/S1066362222010088].
- [8] J. Bokor, R.R. Freeman, W.E. Cooke. *Phys. Rev. Lett.*, **48**(18), 1242 (1982). DOI: 10.1103/PhysRevLett.48.1242
- [9] С.К. Rhodes. *VUV and XUV Generation with Multiphoton Excitation, in Int. Quant. Electron. Conf., H. Koglnik, Y. Shen, M. Richardson, C. Tang, eds., OSA Technical Digest (Optica Publishing Group, 1984), p. WLL2.* <https://opg.optica.org/abstract.cfm?URI=IQEC-1984-WLL2>
- [10] P. Lambropoulos, P. Zoller. *Phys. Rev. A*, **24**(1), 379 (1981). DOI: 10.1103/PhysRevA.24.379
- [11] Ю.И. Геллер, А.К. Попов. *Квант. электрон.*, **3**(5), 1129 (1976). [Yu.I. Geller, A.K. Popov. *Sov. J. Quantum Electron.*, **6**(5), 606 (1976). DOI:10.1070/QE1976v006n05ABEH011378].
- [12] N. Harkema, C. Cariker, E. Lindroth, L. Argenti, A. Sandhu. *Phys. Rev. Lett.*, **127**(2), 023202 (2021). DOI: 10.1103/PhysRevLett.127.023202
- [13] S.I. Themelis, P. Lambropoulos, M. Meyer. *J. Phys. B*, **37**(21), 4281 (2004). DOI: 10.1088/0953-4075/37/21/005

- [14] V. Gruson, L. Barreau, Á Jiménez-Galan, F. Risoud, J. Caillat, A. Maquet, B. Carré, F. Lepetit, J.-F. Hergott, T. Ruchon, L. Argenti, R. Taïeb, F. Martín, P. Salières. *Science*, **354**(6313), 734 (2016). DOI: 10.1126/science.aah5188
- [15] Z.-H. Loh, C.H. Greene, S.R. Leone. *Chem. Phys.*, **350**(1–3), 7 (2008). DOI: 10.1016/j.chemphys.2007.11.005
- [16] M. Isinger, R.J. Squibb, D. Busto, S. Zhong, A. Harth, D. Kroon, S. Nandi, C.L. Arnold, M. Miranda, J.M. Dahlström, E. Lindroth, R. Feifel, M. Gisselbrecht, A. L’Huillier. *Science*, **358**(6365), 893 (2017). DOI: 10.1126/science.aao7043
- [17] U. Fano. *Phys. Rev.*, **124**(6), 1866 (1961). DOI: 10.1103/PhysRev.124.1866
- [18] Yu.I. Heller, A.K. Popov. *Phys. Lett. A*, **56**(6), 453 (1976). DOI: 10.1016/0375-9601(76)90725-8
- [19] А.И. Андрияшин, А.Е. Казаков, М.В. Федоров. *ЖЭТФ*, **82**(1), 91 (1982). [A.I. Andryushin, A.E. Kazakov, M.V. Fedorov. *JETP*, **55**(1), 53 (1982)].
- [20] А.И. Андрияшин, А.Е. Казаков, М.В. Федоров. *ЖЭТФ*, **88**(4), 1153 (1985). [A.I. Andryushin, A.E. Kazakov, M.V. Fedorov. *JETP*, **61**(4), 678 (1985)].
- [21] N.E. Karapanagioti, O. Faucher, Y.L. Shao, D. Charalambidis, H. Bachau, E. Cormier. *Phys. Rev. Lett.*, **74**(13), 2431 (1995). DOI: 10.1103/PhysRevLett.74.2431
- [22] O. Faucher, Y.L. Shao, D. Charalambidis, C. Fotakis. *Phys. Rev. A*, **50**(1), 641 (1994). DOI: 10.1103/PhysRevA.50.641
- [23] J.A. Fedchak, E.A. Den Hartog, J.E. Lawler, P. Palmeri, P. Quinet, E. Biémont. *Astrophys. J.*, **542**(2), 1109 (2000). DOI: 10.1086/317034
- [24] A.B. D’yachkov, A.A. Gorkunov, A.V. Labozin, S.M. Mironov, V.Ya. Panchenko, V.A. Firsov, G.O. Tsvetkov. *Instr. Exp. Tech.*, **61**(4), 548 (2018). DOI: 10.1134/S0020441218040048
- [25] A. Voeglin, B. Fain, S.-H. Lin. *J. Chem. Phys.*, **84**(9), 4838 (1986). DOI: 10.1063/1.449973
- [26] А.Б. Дьячков, А.А. Горкунов, А.В. Лабозин, С.М. Миронов, В.А. Фирсов, Г.О. Цветков, В.Я. Панченко. *Квант. электрон.*, **52**(4), 367 (2022). [A.B. D’yachkov, A.A. Gorkunov, A.V. Labozin, S.M. Mironov, V.A. Firsov, G.O. Tsvetkov, V.Ya. Panchenko. *Quant. Electron.*, **52**(4), 367 (2022). DOI: 10.1070/QEL18029].
- [27] А.Б. Дьячков, А.А. Горкунов, А.В. Лабозин, С.М. Миронов, В.А. Фирсов, Г.О. Цветков, В.Я. Панченко. *Квант. электрон.*, **52**(10), 912 (2022).