

УДК 535.343

АНАЛИЗ СЕЛЕКТИВНОСТИ ЛАЗЕРНОГО ВОЗБУЖДЕНИЯ АТОМНЫХ ПАРОВ НА ОСНОВЕ УРАВНЕНИЙ БАЛАНСА

В.О. ЧАЛТЫКЯН, Г.Г. ГРИГОРЯН, Ю.П. МАЛАКЯН, К.Х. СИМОНЯН*

Институт физических исследований НАН Армении

*Ереванский государственный университет

(Поступила в редакцию 15 апреля 2003 г.)

На основе балансных уравнений проведен анализ селективности лазерного возбуждения двух видов двухуровневых атомов в парах. Рассмотрено влияние оптической накачки, столкновений атомов разных видов с перебро-сом энергии возбуждения, пленения излучения и т.п. на концентрацию возбужденных атомов разных видов, вступающих в химическую реакцию с молекулами буферного газа. Показана возможность значительного увеличения содержания одного из видов атомов в молекулах, образующихся в результате химических реакций. Проведены оценки для двух изотопов рубидия.

Рассмотрим газ двухуровневых атомов двух видов (например, пары природного рубидия, состоящего из двух изотопов) в поле лазерного излучения, настроенного на резонанс с определенным переходом атома определенного вида. Это излучение может оказаться довольно близким к резонансу с ближайшим переходом атома другого вида (в пределах ширины линии лазерного излучения), так что необходимо учитывать возможность возбуждения также этих атомов.

Задача в такой постановке может быть применена для целей разделения изотопов любым методом, в котором первым этапом является селективное возбуждение одного из них. Поэтому необходим анализ динамики населенностей атомных уровней с учетом различных процессов, которые могут иметь место в парах под воздействием лазерного излучения. Простейший анализ может быть проведен на основе уравнений баланса для населенностей атомных уровней, пренебрегая на первом этапе когерентными процессами (хотя в последующих рассмотрениях их необходимо принять во внимание и оценить их влияние).

Анализ на основе уравнений баланса был проведен недавно в [1] в случае химических реакций атомов натрия с водородом с целью оценки скоростей этих реакций с учетом процессов тушения при столкновениях атомов натрия с молекулами водорода. Для константы скорости реакции образования молекул гидрида натрия была получена величина $1.1 \cdot 10^{-9} \text{ см}^3 \text{ с}^{-1}$. Уравне-

ния баланса использовались также в [2] для расчета влияния пленения излучения на ширину атомной линии в парах цезия. Показано, в частности, существенное влияние длительности лазерного импульса на плотность числа возбужденных атомов. В литературе имеются также некоторые данные, относящиеся к различным процессам столкновений атомов рубидия с молекулами водорода [3,4]. В [3] измерено сечение переноса энергии между компонентами первого возбужденного дублета атома рубидия при столкновении с молекулами водорода. Приводятся значения константы скорости процесса — 10^{-15} и $13.9 \cdot 10^{-16} \text{ см}^3 \text{ с}^{-1}$ для переходов с увеличением и уменьшением энергии, соответственно. В работе [4] измерены столкновительно-индуцированные уширение и сдвиг спектральных линий D-дублета рубидия в атмосфере различных буферных газов. В случае водорода приводятся значения 17.3 и -2.17 МГц/Торр для линии D_1 и 26.4 и -3.83 МГц/Торр для линии D_2 .

Уравнения баланса для двух видов атомов с учетом процессов взаимосвязанного изменения концентраций атомов обоих видов рассмотрены не были.

Для проведения балансного анализа предположим, что в кювете, облучаемой лазерным излучением, имеются два вида двухуровневых атомов и молекулы (а также атомы) водорода. Обозначим плотность числа атомов обоих изотопов в основном состоянии через n_1, n_2 , в возбужденном состоянии — через n_1^*, n_2^* , плотность числа молекул водорода через N , а числа молекул гидрида рубидия обоих изотопов — $m_{1,2}^*$. Звездочки означают, что эти молекулы образуются только с возбужденными атомами. Предположим далее, что в кювете имеют место следующие процессы: возбуждение атомов при поглощении лазерного излучения (с вероятностью I), вынужденное (I) и спонтанное (γ) излучение с переходом в основное состояние (полная вероятность распада верхнего уровня равна при этом γ' ; в общем случае $\gamma \neq \gamma'$, т.е. может происходить оптическая накачка, если рассматриваемая двухуровневая система не является замкнутой), столкновения с переносом энергии между возбужденным и невозбужденным атомами разного вида ($K_{1,2}$ — константа скорости переноса энергии в единицах $\text{см}^3 \text{ с}^{-1}$ с переносом возбуждения, соответственно, с изотопа 1 на изотоп 2 и наоборот), образование (с константой скорости k^*) молекул гидрида и возбуждение атомов при поглощении флуоресцентного фотона, испущенного атомом того же вида (средняя константа скорости — r) либо атомом другого вида (средняя константа скорости — r'). Кроме того, атомы в основном состоянии попадают в лазерный пучок (с вероятностью Γ) после отражения от стенок кюветы (предполагается, что при отражении они теряют возбуждение); они также могут вылетать из лазерного пучка (Γ) в основном состоянии (вероятность покинуть лазерный пучок в возбужденном состоянии пренебрежимо мала, поскольку она намного меньше вероятности спонтанного распада). Тогда уравнения, описывающие эволюцию населенностей атомных уровней и плотности числа молекул, могут быть записаны в виде (индексы 1 и 2 относятся к

разным изотопам, а звездочка обозначает возбужденный атом либо образованную из него молекулу, а также вероятности вышеперечисленных процессов, если они происходят с возбужденными атомами)

$$\frac{\partial n_1}{\partial t} = -(W_1 + \Gamma_1 + r_1 n_1^* + K_2' n_2^*) n_1 + (W_1 + \gamma_1 + K_1 n_2) n_1^* + \Gamma_1 n_{10}, \quad (1)$$

$$\frac{\partial n_1^*}{\partial t} = -(W_1 + \gamma_1' + k_1^* N + K_1 n_2) n_1^* + (W_1 + r_1 n_1^* + K_2' n_2^*) n_1, \quad (2)$$

$$\frac{\partial m_1^*}{\partial t} = k_1^* n_1^* N. \quad (3)$$

Остальные три уравнения получаются из (1)-(3) заменой индексов $1 \leftrightarrow 2$ ($K_{1,2}' = K_{1,2} + r_{2,1}'$). Уравнение, описывающее убыль числа молекул водорода, очевидно:

$$\frac{\partial N}{\partial t} = -N \sum_{i=1,2} (k_i^* n_i^*). \quad (4)$$

Величины n_{10} и n_{20} суть начальные плотности чисел атомов соответствующих изотопов. При решении системы уравнений мы будем нормировать плотности чисел частиц на n_{10} , вероятности — на γ_1 и константы скоростей — на γ_1/n_{10} ; безразмерное время есть $\gamma_1 t$.

Для предварительного аналитического исследования нелинейных уравнений (1)-(3) предположим сначала, что лазерный пучок заполняет весь объем кюветы с парами металла, т.е. положим $\Gamma = 0$, оптическая накачка отсутствует ($\gamma_{1,2}' = \gamma_{1,2}$), в кювете нет молекул водорода, т.е. химические реакции не происходят ($k=0$), лазерное излучение далеко от резонанса с ближайшим переходом другого изотопа ($W_2=0$), а также пренебрежем поглощением атомами флуоресцентных фотонов, испущенных атомами того же типа ($r_{1,2}'=0$). В этом случае имеется, очевидно, стационарный режим и полное число атомов каждого вида сохраняется ($n_{1,2} + n_{1,2}^* = n_{10,20}$). Для плотности числа атомов второго изотопа получаем уравнение

$$a \frac{n_2^*}{K_1 n_{20} + (K_2 - K_1) n_2^*} (b + r_2 n_2^*) + r_1 \frac{n_2^{*2} (b + r_2 n_2^*)^2}{(K_1 n_{20} + (K_2 - K_1) n_2^*)^2} + \\ + n_2^* \left(\frac{(K_2 - K_1) n_2^* (b + r_2 n_2^*)}{K_1 n_{20} + (K_2 - K_1) n_2^*} - K_2 n_{10} \right) = W_1 n_{10}, \quad (5)$$

где введены обозначения

$$a = 2W_1 + \gamma_1 - r_1 n_{10} + K_1 n_{20}, \quad b = \gamma_2 - r_2 n_{20} + K_2 n_{10}.$$

Если также допустить, что $r_2 \approx 0$, а константы скоростей переброса энергии примерно одинаковы для обоих изотопов, $K_1 \approx K_2 \equiv K$, то уравнение (5) сводится к квадратному:

$$r_1(\gamma_2 + Kn_{10})^2 n_2^* + Kn_{20}[(\gamma_2 + Kn_{10})(2W_1 + \gamma_1 - r_1 n_{10} + Kn_{20}) - K^2 n_{10} n_{20}] n_2^* - \\ - W_1 K^2 n_{10} n_{20}^2 = 0. \quad (6)$$

При сделанных допущениях единственным процессом, приводящим к возбуждению второго изотопа, является переброс энергии при столкновениях атомов различных изотопов. Поэтому при $K=0$ имеем $n_2^*=0$. В случае же $r_1 \rightarrow 0$ концентрация второго изотопа определяется выражением

$$n_2^* = \frac{W_1 K n_{10} n_{20}}{(\gamma_2 + Kn_{10})(2W_1 + \gamma_1 + Kn_{20})}, \quad (7)$$

а концентрация первого изотопа – выражением

$$n_1^* = \frac{W_1 n_{10}}{2W_1 + \gamma_1 + Kn_{20}}. \quad (8)$$

Таким образом, при сделанных допущениях отношение плотностей чисел возбужденных атомов двух изотопов равно

$$\frac{n_2^*}{n_1^*} = \frac{Kn_{20}}{\gamma_2 + Kn_{10}}. \quad (9)$$

При больших плотностях либо при слабой накачке ($\gamma_{1,2} \ll Kn_{10,20}$, $W_1 \ll Kn_{20}$) получаем $n_2^* \approx W_1/K$. При этом число возбужденных атомов первого изотопа равно примерно $n_1^* = W_1 n_{10} / Kn_{20}$. Как и следовало ожидать, в этом случае отношение концентраций изотопов практически не отличается от начального. В обратном предельном случае имеем $n_2^* = (W_1 K / (\gamma_1 (2W_1 + \gamma_1))) n_{10} n_{20}$, $n_1^* = (W_1 / (2W_1 + \gamma_1)) n_{10}$ и отношение n_2^* / n_1^* имеет порядок величины Kn_{20} / γ_1 , т.е. значительно меньше начального отношения концентраций. В промежуточном случае, то есть при условии $\gamma_{1,2} \ll Kn_{10,20}$, $W_1 \gg Kn_{20}$ получаем $n_2^* \approx n_{20}/2$, т.е. возбуждается примерно половина атомов второго изотопа, в то время как плотность числа возбужденных атомов первого изотопа зависит от соотношения между вероятностью поглощения лазерного излучения и естественной шириной линии: при $W_1 \gg \gamma_1/2$ имеем $n_1^* \approx n_{10}/4$, а при $W_1 \ll \gamma_1/2$ эта величина равна $(W_1 / \gamma_1)(n_{10}/2)$. В случае рубидия два изотопа – ^{87}Rb и ^{85}Rb , находятся в природной смеси в соотношении 28 и 72%, соответственно. Если считать, что лазерное излучение настроено на резонанс с одним из переходов 87-го изотопа (изотоп 1), использовать вышеприведенное значение константы скорости переброса энергии между компонентами дублета в качестве величины K и известное значение $\gamma_1 = 6$ МГц, то в стационарном режиме будем иметь отношение концентраций второго и первого изотопов порядка 10^{-2} вместо 72/28 в начальной смеси.

Простейшим случаем, когда можно получить аналитические выражения для населенностей в зависимости от времени, является наличие только

лазерной накачки и химических реакций образования гидрида. В этом случае для плотности чисел возбужденных атомов получается выражение $n^* = W n_0 (e^{-Wt} - e^{-k^* N t}) / (k^* N - W)$, из которого следует, что если $W_1 \leq k_1^* N$, в то время как $W_2 \ll k_2^* N$, то при $t \geq W_1^{-1}$ мы будем иметь $n_1^* \gg n_2^*$, т.е. возбужденных атомов первого изотопа будет намного больше (селективное возбуждение).

В случае достаточно малых плотностей можно пренебречь процессами переброса энергии и система уравнений (1)-(4) становится линейной с постоянными коэффициентами (в действительности коэффициенты зависят от времени через положения атомов и их скорости, однако эти зависимости здесь не рассматриваются). Решение этой системы для плотности числа атомов в основном состоянии показывает, что населенность основного состояния резонансно возбуждаемого изотопа убывает намного быстрее, чем у другого изотопа (в широком интервале значений параметров).

В качестве примера для численных расчетов мы выбрали переход между уровнями $F_g = 2 \rightarrow F_e = 3$ сверхтонкой структуры линии D₁ изотопа 85 рубидия, считая его резонансно возбуждаемым (изотоп 1). Ближайший переход другого изотопа, который может возбуждаться спектральным крылом лазерного излучения, $F_g = 1 \rightarrow F_e = 1$, отстоит по частоте примерно на 1.5 ГГц, так что величина W_2 / W_1 имеет порядок 0.01-0.001. С использованием также вышеприведенных данных и известных значений (см., например, [5]) естественных ширин линий переходов между сверхтонкими компонентами линии D₁ рубидия, были построены кривые [6] эволюции во времени плотностей чисел молекул гидрида, из которых следует, что можно достичь отношения содержаний первого и второго изотопов в гидриде в несколько раз больше, чем в начальной смеси.

Таким образом, соответствующим выбором температуры паров в кювете, давления водорода и других параметров можно использовать процесс образования гидрида для разделения изотопов.

В заключение отметим, что рассмотрение в рамках уравнений баланса допускает более детальный анализ, учитывающий доплеровское уширение атомной линии, форму лазерного импульса (т.е. зависимость от времени величин W) и другие факторы.

Работа выполнена при частичной поддержке гранта МНТЦ А-635.

ЛИТЕРАТУРА

1. M.Motzkus, G.Pichler, K.L.Kompa, and P.Hering. J. Chem. Phys., **108**, 9291 (1998).
2. A.F.Molish et al. Opt. Comm., **120**, 149 (1995).
3. M.D.Rotondaro and G.P.Perram. Phys. Rev. A, **57**, 4045 (1998).
4. M.D.Rotondaro and G.P.Perram. JQSRT, **57**, 497 (1997).
5. Yong-qing Li and Min Xiao. Phys. Rev. A, **51**, R2703 (1995).
6. V.O.Chaltykian, G.G.Grigoryan, Yu.P.Malakyan, 3rd GR-I Intern. Conf. on New Laser Technologies and Applications, 5-8 Sept., 2002, Patras, Greece, Abstracts, p.53.

ԱՏՈՍԱՅԻՆ ԳՈՒՈՐԾԻՆԵՐՈՒՄ ԼԱԶԵՐԱՅԻՆ ԳՐԳՈՍԱՆ
ՍԵԼԵԿՏԻՎՈՒԹՅԱՆ ՎԵՐԼՈՒԾՈՒԹՅՈՒՆԸ ՀԱՇՎԵԿՇՈՒ
ՀԱՎԱՍԱՐՈՒՄՆԵՐԻ ՕԳՆՈՒԹՅԱՄԲ

Վ.Օ. ՉԱԼԹԻԿՅԱՆ, Գ.Գ. ԳՐԻԳՈՐՅԱՆ, ՅՈՒ.Պ. ՄԱԼԱԶՅԱՆ, Կ.Խ. ՍԻՄՈՆՅԱՆ

Հաշվեկշռի հավասարումների հիման վրա կատարված է գոլորշիներում երկու տեսակի երկ-
մակարդականի ատոմների լազերային գրգռման սելեկտիվության վերլուծությունը: Դիտարկված է
օպտիկական մղման, տարբեր տեսակի ատոմների գրգռման էներգիայի տեղափոխմամբ բախում-
ների, ճառագայթման գրավման և այլ պրոցեսների ազդեցությունը՝ բուֆերային գազի հետ
քիմիական ռեակցիայի մեջ մտնող տարբեր տեսակների գրգռված ատոմների կոնցենտրացիայի
վրա: Ցույց է տրված քիմիական ռեակցիաների հետևանքով առաջացող մոլեկուլներում որևէ
տեսակի ատոմների պարունակության զգալի մեծացման հնարավորությունը: Կատարված են
գնահատումներ ռուբիդիումի երկու իզոտոպների համար:

RATE EQUATION ANALYSIS OF LASER EXCITATION SELECTIVITY
IN ATOMIC VAPORS

V.O. CHALTYKYAN, G.G. GRIGORYAN, YU.P. MALAKYAN, K.KH. SIMONYAN

Analysis of selectivity of laser excitation of two kinds of two-level atoms in a vapor is
performed with use of rate equations. The influence of the optical pumping, of energy exchange
collisions between different kind atoms, of radiation trapping, etc., on the number density of
excited atoms entering then a chemical reaction with the buffer gas molecules is considered. The
possibility to raise significantly the abundance of certain kind atoms in the formed molecules is
shown. Evaluations are made for two isotopes of rubidium.