

УДК 535.343

ВЛИЯНИЕ ПРОЦЕССОВ СТОЛКНОВИТЕЛЬНОЙ ПЕРЕДАЧИ ЭНЕРГИИ НА СЕЛЕКТИВНОСТЬ ЛАЗЕРНОГО ВОЗБУЖДЕНИЯ

Г.Г. ГРИГОРЯН, Ю.П. МАЛАКЯН, В.О. ЧАЛТЫКЯН

Институт физических исследований НАН Армении

(Поступила в редакцию 19 января 2005 г.)

Рассмотрена простая модель скоростных уравнений для двух видов трех-уровневых атомов, учитывающая процессы передачи энергии при столкновениях между атомами разных видов (пулинг). Такая модель может описывать селективное возбуждение определенного изотопа в естественной смеси двух изотопов с целью их разделения, в частности, лазерно-химического разделения изотопов рубидия. Оценено влияние пулинга между двумя изотопами на селективность возбуждения одного из них. Приведены аналитические расчеты и показаны некоторые примеры численных расчетов временной эволюции плотности числа дважды возбужденных атомов второго вида.

Если поставлена цель селективно возбуждать определенный вид атомов в кювете с атомными парами (это может быть смесь различных металлов либо изотопов одного и того же металла), то должны быть учтены и оценены все процессы, нарушающие селективность. Известно, что в этом смысле процесс пулинга играет достаточно важную роль, если плотность числа атомов в кювете достаточно велика.

Термин пулинг обычно используется для любого процесса передачи энергии или обмена энергиями при столкновениях частиц. Этот процесс довольно интенсивно изучался для различных атомов, в частности, для щелочных металлов. В работе [1] измерено поперечное сечение передачи энергии при столкновении двух атомов натрия, возбужденных на уровень 3P, при которой один из атомов возбуждается на более высоколежащий уровень 4D (либо 5S), а другой высвечивается на основной уровень 3S. Авторами получены значения этих сечений – $(3.2 \pm 1.1) \cdot 10^{-15}$ и $(2.0 \pm 0.7) \cdot 10^{-15}$ см² при температуре паров 210°C (константы скорости соответствующих процессов равны $(3 \pm 0.9) \cdot 10^{-10}$ и $(1.9 \pm 0.6) \cdot 10^{-10}$ см³с⁻¹). В работе [1] отмечено также, что имеется значительное расхождение между данными, полученными в разных работах (расхождение может составлять несколько порядков величины). Другой случай пулинга был рассмотрен в [2], где один из атомов возбуждался на уровень 4F. Измеренное значение константы скорости в этом случае равнялось $(5.6 \pm 2.2) \cdot 10^{-11}$ см³с⁻¹ при температуре паров 260°C.

Теоретическое рассмотрение этих процессов для атомов натрия было

проведено в [1,2] путем решения упрощенных скоростных уравнений и фитирования результатов на данные измерений, а также в ряде работ непосредственным вычислением с помощью соответствующих молекулярных термов (см., например, [3-5]) в случае, когда сталкивающиеся атомы были возбуждены на определенные магнитные подуровни состояния 3P. Сечение возбуждения посредством пулинга состояния 5S вычислено в [3] для интервала относительных скоростей сталкивающихся атомов $(0.1 \div 3.6) \cdot 10^5$ см/с. Получено значение $8.38 \cdot 10^{-15}$ см² для скорости 10^4 см/с в случае столкновения $m=0 \leftrightarrow m=1$. Возбуждение уровня 4D имеет место при скоростях, больших чем $1.2 \cdot 10^5$ см/с, и наибольшее сечение равно $11.59 \cdot 10^{-15}$ см² (столкновение $m=0 \leftrightarrow m=1$). В работе [4] наибольшее вычисленное сечение также относится к столкновению $m=0 \leftrightarrow m=1$ и равно $6.181 \cdot 10^{-15}$ см² в случае возбуждения на 4D и относительной скорости $1.2 \cdot 10^5$ см/с, в то время как в случае возбуждения на 5S оно равно $2.08 \cdot 10^{-15}$ см² и соответствует скорости 10^5 см/с и столкновению $m=-1 \leftrightarrow m=1$. В работе [4] показано также, что вычисления с прямолинейными, а не с криволинейными траекториями сталкивающихся частиц значительно уменьшают величину сечения. В [5] был найден, при определенных допущениях, интервал относительных скоростей, в котором возможен пулинг в натрии (от 550 м/с до 5000 (5S), 2000 (4D), и 3000 м/с (4F)). В этой работе наибольшее приводимое значение сечения соответствует столкновению $m=1 \leftrightarrow m=1$. Оно равно $(5.62 - 5.78) \cdot 10^{-15}$ см² в случае возбуждения на 5S при относительной скорости $1.2 \cdot 10^5$ см/с.

Столкновительные процессы в парах рубидия и в смеси паров рубидия и натрия изучались в [6], где была установлена возможность эффективного заселения состояния 4D атома рубидия, не связанного дипольным переходом с основным состоянием. Было показано, что если смесь атомов натрия и рубидия возбуждается на частоте D-линии натрия, то столкновение атома натрия в состоянии 3P с атомом рубидия в состоянии 5S переводит атом рубидия в состояние 4D с константой скорости $6.3 \cdot 10^{-13}$ см³с⁻¹ при температуре 357°C.

Квазирезонансный процесс пулинга в парах рубидия экспериментально исследован в [7] в случае столкновений с возбуждением на 5D. Теоретическая асимптотическая модель этого процесса дает сечение $\sim 10^{-14}$ см², близкое к измеренному $- 3 \cdot 10^{-14}$ см² (константа скорости $(1.5 \pm 0.6) \cdot 10^{-9}$ см³с⁻¹) при температуре 177°C.

В настоящей работе мы исследуем процесс пулинга с точки зрения задачи разделения изотопов. Анализ селективности лазерного возбуждения двух видов двухуровневых атомов в парах был проведен в [8] с использованием балансных уравнений. Рассмотрено влияние оптической накачки, столкновительного обмена энергией между атомами разного вида, пленения излучения и т.д., на плотность числа возбужденных атомов обоих изотопов. Показана возможность значительного увеличения содержания возбужденных атомов определенного изотопа с последующим образованием молекул гид-

рида рубидия. Расчеты проведены для двух изотопов рубидия.

Поскольку в работе [8] рассматривались двухуровневые атомы, то процессы пулинга не могли учитываться. Однако при больших концентрациях (температурах) эти процессы могут играть существенную роль. С одной стороны, они могут способствовать реакции образования гидрида, возбуждая нужный изотоп на более высоколежащий уровень из-за пулинга при столкновениях одинаковых, селективно возбуждаемых изотопов. С другой стороны, эти же процессы могут ухудшать селективность возбуждения нужного изотопа из-за пулинга при столкновениях между атомами различных изотопов, приводящего к высвечиванию атома селективно возбуждаемого изотопа.

Мы будем рассматривать модель двух видов трехуровневых атомов для изучения влияния процессов столкновительной передачи энергии на изотопический состав возбужденных атомов, т.е. на селективность возбуждения. Трехуровневые атомы предполагаются лестничного типа (уровни 1,2,3 с возрастающей энергией). Допустим, что превалирующими процессами в системе являются лазерная накачка, спонтанный распад, оптическая накачка и все возможные процессы пулинга. Задача состоит в вычислении отношения концентрации изотопа, который не возбуждается непосредственно, но возникает в результате пулинга, и концентрации непосредственно возбуждаемого изотопа при различных известных величинах констант скорости и для различных плотностей паров. Целью является проверка этих данных в предстоящих экспериментах.

Обозначим концентрации атомов первого и второго вида в основном и двух возбужденных состояниях через $n_{I,II}$, $n_{I,II}^*$ и $n_{I,II}^{**}$, соответственно. Скоростные уравнения для этих атомов могут быть записаны в виде

$$\begin{aligned} \dot{n}_I &= -W_{12}^I(n_I - n_I^*) + \gamma_{21}^I n_I^* + k_p^I n_I^{*2} + k_p^I n_I^* n_{II}^*, \\ \dot{n}_I^* &= W_{12}^I(n_I - n_I^*) - W_{23}^I(n_I^* - n_I^{**}) + \gamma_{32}^I n_I^{**} - \gamma_2^I n_I^* - (k_p^I + k_p^I) n_I^* n_{II}^* - 2k_p^I n_I^{*2}, \\ \dot{n}_I^{**} &= W_{23}^I(n_I^* - n_I^{**}) - \gamma_3^I n_I^{**} + k_p^I n_I^{*2} + k_p^I n_I^* n_{II}^*, \\ \dot{n}_{II} &= -W_{12}^{II}(n_{II} - n_{II}^*) + \gamma_{21}^{II} n_{II}^* + k_p^{II} n_{II}^{*2} + k_p^{II} n_{II}^* n_{II}^*, \\ \dot{n}_{II}^* &= W_{12}^{II}(n_{II} - n_{II}^*) - W_{23}^{II}(n_{II}^* - n_{II}^{**}) + \gamma_{32}^{II} n_{II}^{**} - \gamma_2^{II} n_{II}^* - (k_p^{II} + k_p^{II}) n_{II}^* n_{II}^* - 2k_p^{II} n_{II}^{*2}, \\ \dot{n}_{II}^{**} &= W_{23}^{II}(n_{II}^* - n_{II}^{**}) - \gamma_3^{II} n_{II}^{**} + k_p^{II} n_{II}^{*2} + k_p^{II} n_{II}^* n_{II}^*. \end{aligned} \quad (1)$$

В этих уравнениях $W_{ij}^{I,II}$ есть вероятность поглощения и вынужденного излучения лазерного излучения в переходе $i \rightarrow j$ первым и вторым видом атомов, соответственно, $\gamma_{ij}^{I,II}$ суть скорости спонтанного распада соответствующих видов в переходе $i \rightarrow j$, $\gamma_i^{I,II}$ — полная скорость распада i -го уровня соответствующего изотопа, $k_p^{I,II}$ — константа скорости пулинг-столкновений между атомами одного и того же вида: $A_{I,II}^* + A_{I,II}^* \leftrightarrow A_{I,II} + A_{I,II}^*$, а k_p^I

и k_p^* — константы скорости пулинг-столкновений между атомами разных видов: $A_I^* + A_{II}^* \leftrightarrow A_{I,II} + A_{II,I}^*$, соответственно: сумма энергий первых возбужденных состояний двух изотопов достаточна для обеих пулинг-реакций. Отметим, что последние две константы скорости, вообще говоря, различны, поскольку две возможные реакции между разными изотопами разнятся, хотя и очень мало, дефектами энергии.

В случае, когда в системе нет оптической накачки ($\gamma_{ij}^{I,II} = \gamma_{ij}^{I,II}$), например, если все участвующие в процессе резонансные переходы являются замкнутыми переходами между сверхтонкими подуровнями рассматриваемых состояний, система уравнений (1) имеет стационарные решения ($n_{I,II} + n_{I,II}^* + n_{I,II}^{**} = \text{const} \equiv n_{ol,II}$). В этом случае легко получить, что система сводится к двум уравнениям

$$\alpha_1 n_I^* + \beta_1 n_I^{*2} + \delta_1 n_I^* n_{II}^* = W_{12}^I n_{ol}, \quad \alpha_2 n_{II}^* + \beta_2 n_{II}^{*2} + \delta_2 n_I^* n_{II}^* = W_{12}^{II} n_{ol}, \quad (2)$$

в которых постоянные коэффициенты выражаются (довольно сложным образом) через параметры уравнений (1). Из уравнений (2) можно легко получить выражения для обеих концентраций (тоже довольно громоздкие). После ряда упрощающих предположений ($W_{12}^{II} \approx W_{23}^{II} \approx 0$, $W_{23}^I \ll W_{12}^I$, $n_{II}^* \ll n_I^*$) получаем отношение концентраций дважды возбужденных атомов второго и первого вида:

$$\frac{n_{II}^{**}}{n_I^{**}} = \frac{n_{ol}}{n_{ol}} \frac{k_p^I}{k_p^I} \frac{W_{12}^{II}}{W_{12}^I} \frac{2W_{12}^I + \gamma_{21}^I}{\gamma_{21}^{II}}. \quad (3)$$

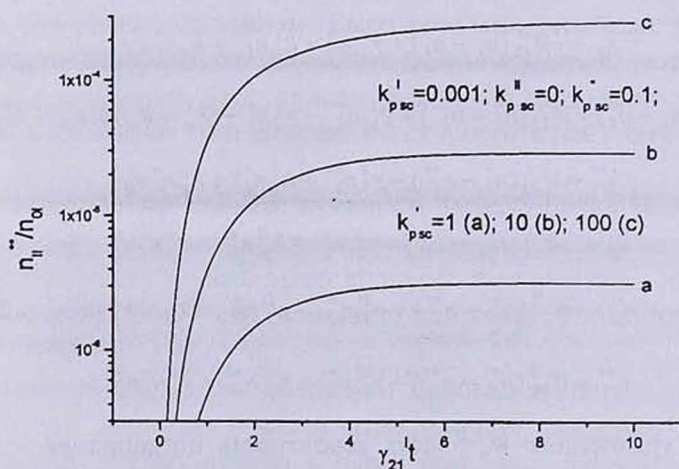


Рис.1. Временное развитие нормированных концентраций дважды возбужденного второго изотопа в случае отсутствия оптической накачки для следующих значений параметров (нормированных): $W_{12,sc}^I = 0.01$; $W_{23,sc}^I = 0.005$; $W_{12,sc}^{II} = 0.001$; $W_{23,sc}^{II} = 0.001$. Индекс sc у констант скорости означает, что они нормированы указанным выше образом.

В случае естественного рубидия отношение n_{0II}/n_{0I} равно 1/3 (точнее 22/78). Если положить интенсивность накачки W_{12}^I близкой к насыщению, т.е. $W_{12}^I \approx \gamma_{21}^I$, то скорости распадов промежуточных состояний обоих изотопов примерно одинаковы ($\gamma_{21}^{II} \approx \gamma_{21}^I$), и принять $W_{12}^{II}/W_{12}^I \approx 0.01$, то получим для отношения (3) примерно $0.01(k_p'/k_p^I)$. Поскольку в литературе отсутствуют данные о k_p' , полученные выражения могут использоваться для определения этой величины из измерений отношения (3).

Более точные вычисления этого отношения могут быть проведены путем численного решения системы уравнений (1). Для этого мы будем нормировать вероятности в уравнениях (1) на γ_{21}^I , константы скорости – на γ_{21}^I/n_{0I} , а концентрации – на n_{0I} . Время нормируется на $1/\gamma_{21}^I$. С такими нормировками система (1) решалась для целого ряда наборов параметров. Один из примеров приведен на рис.1.

На этом рисунке предполагается, что изотоп I возбуждается непосредственно на промежуточный и второй возбужденный уровень, в то время как возбуждение второго вида атомов происходит за счет крыльев спектра лазерного излучения и является гораздо более слабым. Константа скорости пулинга для первого изотопа взята из вышеприведенных данных, пулинг второго изотопа пренебрегается ввиду малой концентрации атомов этого изотопа, а константа скорости пулинга между двумя изотопами меняется (мы подставляли довольно экзотические значения, поскольку какие-либо данные отсутствуют, а нас интересует динамика при изменении этой величины: когда соответствующие величины будут измерены в эксперименте, то численные расчеты будут проведены с конкретными данными для атомов рубидия). При этих условиях вычислялась временная эволюция концентрации дважды возбужденных атомов второго изотопа. Графики показывают, что увеличение константы скорости k_p' (нормированной) на порядок величины приводит к небольшому (несколько меньше, чем на порядок величины) увеличению концентрации дважды возбужденных атомов второго изотопа. Таким образом, мы показали, что при достаточно больших плотностях пулинг-столкновения между атомами разных изотопов должны учитываться в задачах селективного возбуждения с целью разделения изотопов.

Работа выполнена при частичной поддержке гранта МНТЦ А-635. Авторы благодарны М.Е.Мовсисяну, А.М.Ханбекяну и А.В.Папояну за полезные обсуждения.

ЛИТЕРАТУРА

1. M.Allegri, P.Bicchi, L.Moi. Phys. Rev. A, **28**, 1338 (1981).
2. M.Allegri, C.Gabbanini, L.Moi, R.Colle. Phys. Rev. A, **32**, 2068 (1985).
3. S.Geltman. Phys. Rev. A, **40**, 2301 (1989).
4. P.H.T.Philipsen, J.H.Nijland, H.Rudolph, H.G.M.Heideman. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., **26**, 939 (1993).
5. I.Yu.Yurova. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., **28**, 999 (1995).
6. Я.Клявиньш, С.Папернов, М.Янсон. Оптика и спектроскопия, **65**, 261 (1988).

7. L.Barbier, M.Cheret. J. Phys. B: At. Mol. Phys., 16, 3213 (1983).
8. В.О.Чалтыкян, Г.Г.Григорян, Ю.П.Малакян, К.Х.Симонян. Изв. НАН Армении, Физика, 38, 384 (2003).

ԷՆԵՐԳԻԱՅԻ ԲԱՆՈՒՄԱՅԻՆ ՓՈԽԱՆՑՄԱՆ ՊՐՈՑԵՍՆԵՐԻ ԱԶԳԵՑՈՒԹՅՈՒՆԸ ԼԱԶԵՐԱՅԻՆ ԳՐԳՈՄԱՆ ՍԵԼԵԿՏԻՎՈՒԹՅԱՆ ՎՐԱ

Վ.Վ. ՉԱԼԹԻԿՅԱՆ, Գ.Գ.ԳՐԻԳՐՅԱՆ, ՅՈՒ.Պ.ՄԱԼԱԿՅԱՆ

Դիտարկված է երկու տեսակի եռամակարդակ ատոմների հաշվեկշռային հավասարումներով նկարագրվող մոդելը հաշվի առնելով էներգիայի փոխանցման պրոցեսները տարբեր տեսակի ատոմների միջև բախումների ժամանակ: Մոդելը ծառայում է երկու իզոտոպների բնական խառնուրդում որոշակի իզոտոպի սելեկտիվ գրգռման նկարագրության համար, մասնավորապես, ռուբիդիումի իզոտոպների լազերային-քիմիական անջատման նպատակով: Գնահատված է, թե ինչպես կազդի էներգիայի փոխանցումը երկու իզոտոպների միջև իզոտոպներից մեկի գրգռման սելեկտիվության վրա: Տրված են վերլուծական մոտավոր հաշվարկներ և բերված են երկրորդ տեսակի կրկնակի գրգռված ատոմների թվի խտության ժամանակային կախման թվային հաշվարկների մի քանի օրինակներ:

INFLUENCE OF ENERGY POOLING ON THE LASER EXCITATION SELECTIVITY

V.O. CHALTYKYAN, G.G. GRIGORYAN, YU.P. MALAKYAN

We consider a simple rate equation model of two species of three-level atoms allowing for the energy pooling processes in collisions between the atoms of different species. The model is valid for description of the selective excitation of a certain isotope in a natural mixture of two isotopes with the isotope separation purposes, in particular, for the laser-chemical separation of the rubidium isotopes. We evaluate how the energy pooling between the two isotopes will affect the selectivity of excitation of one of them. Analytical estimation is given and several examples of computation of the time evolution of the number density of the doubly excited atoms of the second specie are demonstrated.