

# ЧИСЛЕННЫЙ РАСЧЕТ ЭФФЕКТИВНОСТИ ФОТОИОНИЗАЦИИ МНОГОУРОВНЕВЫХ СИСТЕМ В ОПТИЧЕСКИ ТОЛСТЫХ СЛОЯХ

А.И. Григорьев, И.С. Григорьев, А.Б. Дьячков, В.П. Лабозин, А.В. Песня, Г.О. Цветков,  
Г.Г. Шаталова

РНЦ "Курчатовский институт" Институт Молекулярной физики  
123182, Москва, пл. Курчатова, д. 1,  
tel. (095) 196 76 60, fax (095) 19419 94, e-mail: adjach@imp.kiae.ru

RU0311428



*Рассмотрена задача о многоступенчатой некогерентной фотоионизации оптически толстого слоя атомов в рабочем объеме АВЛИС-установок. Применен метод численной оценки эффективности фотоионизации. На нескольких примерах показана возможность поиска оптимального решения задачи. Предложен вариант удобного задания интенсивностей лазерного импульса близких к оптимальным. Выполнено измерение сечения фотоионизации для трехступенчатой схемы.*

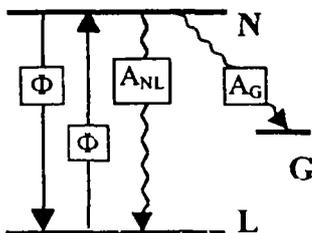
## 1. ВВЕДЕНИЕ

Оптимальное решение проблемы использования лазерного излучения при фотоионизации атомов крайне важно для практической реализации методики разделения АВЛИС. Для некоторых несложных схем фотоионизации аналитические решения были найдены еще в пионерских работах по АВЛИС [1–6]. В последние годы, в связи с решением конкретных задач, появились работы, основанные на численном решении кинетических уравнений материального баланса для трехступенчатой схемы фотоионизации в когерентных и некогерентных вариантах, с учетом Доплер-эффекта, неселективного возбуждения и ионизации других изотопов, при конкретной привязке к объему в многоходовых отражательных системах, сберегающих излучение [7–9]. Здесь мы предлагаем некоторые общие оценки эффективности фотоионизации оптически толстых слоев при реализации разделения изотопов AVLIS-методом, полученные при расчете детальной картины некогерентного взаимодействия внутри светового импульса.

## 2. МЕТОДИКА РАСЧЕТА

### 2.1. Тонкий слой

Лазерный импульс разбивается на очень большое число отрезков по времени  $\Delta t$ . И для каждого из этих интервалов производится расчет соотношений баланса заселенностей, записанных в форме конечных разностей. Эти уравнения баланса заселенностей одного из переходов схемы фотоионизации для оптически тонкого (не поглощающего) слоя запишутся следующим образом:



$$\Delta L_k = (N_k - L_k) \cdot \Phi \sigma \Delta t + N_k A_{NL} \Delta t$$

$$\Delta N_k = (L_k - N_k) \cdot \Phi \sigma \Delta t - N_k A_{NL} \Delta t - N_k A_G \Delta t$$

$$L_{k+1} = L_k + \Delta L_k; \quad N_{k+1} = N_k + \Delta N_k$$

$$k = 1, 2, \dots, T_0 / \Delta t, \quad T_0 \text{ — длительность импульса}$$

$$\Delta L \ll L; \quad \frac{\Delta L}{L} \sim \Phi \sigma \Delta t \ll 1 \Rightarrow \Delta t \ll \frac{1}{\Phi \sigma}$$

### 2.2. Толстый слой

Если рассматривается поглощающий слой с оптической толщиной  $J$  [см<sup>-2</sup>], то он разбивается на достаточно большое количество  $H_{\text{от}}$  квазитонких (слабо поглощающих) слоев таких, что изменение потока квантов лазера  $i$ -ого перехода после прохождения сквозь любой из этих слоев ( $H$ ) было бы незначительным ( $\Delta \Phi_{ik}^H / \Phi_{ik}^H \ll 1$ ).

Таким образом, система уравнений для численного расчета заселенности уровней в оптически толстом слое состоит из уравнений баланса населенностей энергетических уровней, записанных для квазитонкого слоя  $H$ , к которым добавляется учет убыли квантов в возбуждающих и ионизирующем импульсах:

$$\Delta q_k^H = (L_k - N_k)\Phi_k^H \sigma \Delta t - \text{убыль поглощенных квантов}$$

$$\Phi_{k+1}^H = \Phi_k^H - \frac{\Delta q_k^H}{\Delta t} - \text{деформация потока } \Phi(t)$$

$$\Delta q \ll q; \quad \frac{\Delta q}{q} \sim \sigma L \ll 1 \Rightarrow \text{т.к. } L = \frac{J}{H_{tot}}, \text{ то } H_{tot} \gg J\sigma$$

Так последовательно, шаг за шагом, моделируется реальная физическая картина взаимодействия поглощающего слоя с лазерным импульсом.

Численный метод был протестирован сравнением с известными аналитическими расчетами для несложных схем. Результаты сравнения показывают хорошее совпадение численного расчета с аналитическим (0.1% – 0.001% и менее в зависимости от шага разбиения по времени).

### 3. СХЕМА ФОТОИОНИЗАЦИИ

Все дальнейшие расчеты будут производиться для схемы, изображенной на рис. 1. Здесь приведена схема фотоионизации характерная, например, для элементов редкоземельной группы. Потенциалы ионизации атомов редких земель лежат в диапазоне  $\phi_{ion} = 5,5 - 6,2$  эВ [10], поэтому удобно применение трехступенчатой схемы  $h\nu_i = 2$  эВ с накачкой перестраиваемых лазеров лазерами на парах меди [11–13]. Температуры испарения редких земель довольно высоки ( $T_{evap.} = 1200 - 2200$  К [10]), поэтому нижние метастабильные уровни в оптических спектрах редкоземельных элементов [14] оказываются заселенными. На рис. 10 этот факт отмечен введением возбуждения с метастабильного уровня  $M$ .

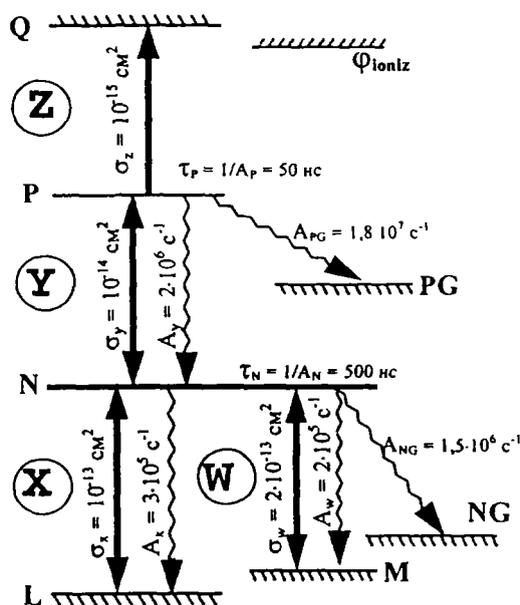


Рис. 1. Схема многоступенчатой фотоионизации (многоуровневой системы) принятая для расчета и основные обозначения

### 4. ИЗМЕРЕНИЕ СЕЧЕНИЯ ФОТОИОНИЗАЦИИ

Для того, чтобы проводить расчет фотоионизации конкретного элемента, необходимо знать сечения взаимодействия атомных переходов с лазерным излучением. Численное моделирование позволяет применить способ определения сечения, не требующий измерения заселенности его уровней: можно сравнить расчетные кривые эффективности фотоионизации с экспериментальными данными, полученными при условии стабильной работы источника пара и лазеров всех ступеней.

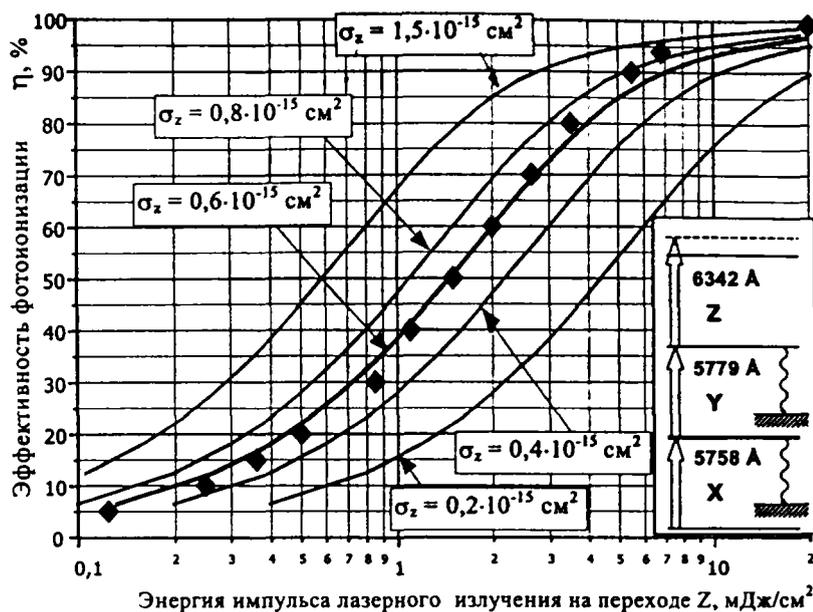


Рис. 2. Зависимость эффективности фотоионизации от энергии импульса лазерного излучения на переходе Z при условии, что энергии импульса остальных переходов фиксированы и достаточно велики.

На графике рис. 2 значками "♦" отмечены экспериментальные точки. Фотоионный ток отложен в относительных единицах таким образом, что значение эффективности фотоионизации  $\eta$ , соответствующее  $q_z = 20 \text{ мДж/см}^2$ , было принято за  $\eta = 99\%$ . Далее был произведен численный расчет кривых  $\eta = f(q_z)$  при различных значениях  $\sigma_z$ . На рис. 2 представлена процедура совмещения расчетных кривых с экспериментом. При значении сечения  $\sigma_z \approx 6.0 \cdot 10^{-16} \text{ см}^2$  расчетная кривая  $\eta = f(q_z)$  имеет приемлемое совпадение с экспериментальными точками. Это значение примерно в 2.5 раза меньше, чем приведенное в [11] (возможно, в силу того, что нами не контролировалась поляризация излучения). Аналогичным образом могут быть определены и сечения на других переходах.

Нами был проведен следующий эксперимент по измерению сечения ионизации по схеме фотоионизации, описанной в [15]. Путём плавного изменения интенсивности лазера на переходе Z (рис. 2) регистрировалась величина фотоионного тока  $i_{ph} = f(I_z)$ , причем энергии лазерных импульсов на переходах X и Y брались по возможности большими ( $3 - 4 \text{ мДж/см}^2$ ) с целью обеспечить глубокое насыщение и очень быстрое выравнивание заселенностей уровней этих переходов, что позволило бы минимизировать зависимость фотоионного тока от величин сечений  $\sigma_x$  и  $\sigma_y$ .

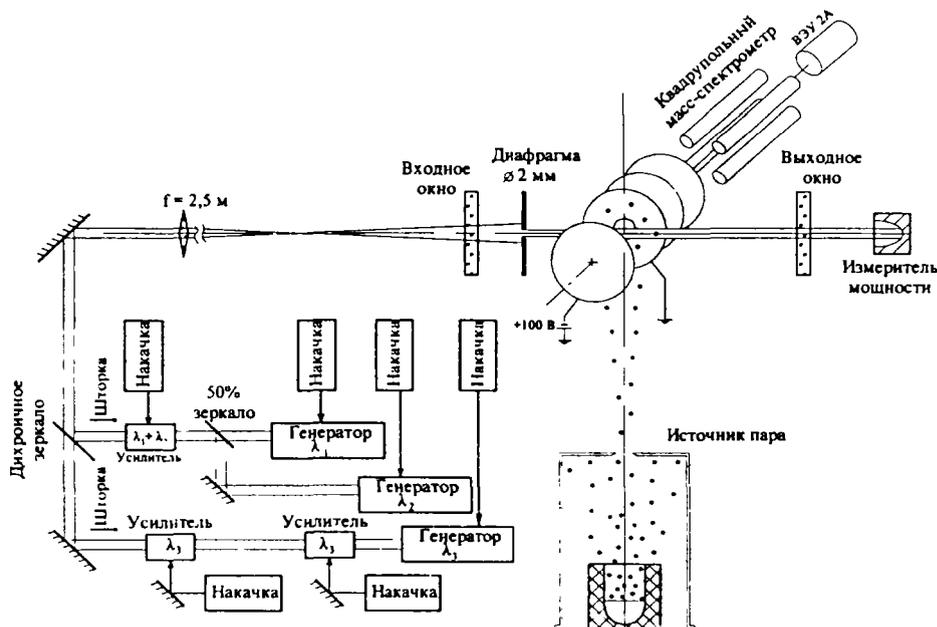


Рис. 3. Схема эксперимента по измерению сечения фотоионизации: лазерный эгрет  $\lambda_1 + \lambda_2 + \lambda_3$  направлялся длиннофокусной линзой на диафрагму  $\varnothing 2 \text{ мм}$ , находившуюся внутри вакуумной камеры в непосредственной близости от потока пара. Таким образом обрезалась внешняя наиболее слабая область лазерных лучей. Электростатическая система экстракции направляла образованные ионы в квадрупольный масс-спектрометр МС7302, выделявший ионы только одной массы. Регистрация ионов производилась вакуумным электронным умножителем ВЭУ-2. По ходу эксперимента регистрировалась мощность лазера  $P_z$  и контролировались мощности на переходах X и Y, которые были примерно одинаковыми.

## 5. ОПТИЧЕСКИ ТОЛСТЫЙ СЛОЙ

### 5.1. Результаты расчета эффективности фотоионизации.

Возьмем для конкретного расчета оптический слой с некоторой толщиной  $J$  [см<sup>2</sup>] и положим начальные заселенности уровней равными  $L_0 = 0.7J$  и  $M_0 = 0.3J$  (рис. 1). Будем формировать лазерные импульсы гауссовой формы с полным числом квантов обратно пропорциональным сечению перехода? учитывая при этом, что необходимо ионизовать  $\sim J$  атомов:

$$q_i = R_i/\sigma_i + J_i \text{ [квант/см}^2\text{]}, \quad P_{las}^i = q_i \cdot (S_{las} h\nu_i f) \text{ [Вт]}, \quad (1)$$

где  $R_i$  — некоторый коэффициент пропорциональности (в данном случае принят  $R = 15$ , при котором фотоионизация квазитонкого слоя  $\sim 80\%$ ),  $\sigma_i$  [см<sup>2</sup>] — сечение перехода,  $J_x = L_0$ ,  $J_w = M_0$ ,  $J_y = J_z = L_0 + M_0$ ,  $S_{las}$  [см<sup>2</sup>] — площадь сечения лазерного луча,  $h\nu_i$  [Дж] — энергия кванта данного перехода,  $f$  [Гц] — частота повторения импульсов.

Расчет включает в себя вычисление заселенностей уровней в каждом квазитонком слое, формы лазерных импульсов после прохождения этих слоев (рис. 4) и, в конечном итоге, дает величину эффективности фотоионизации толстого слоя (рис. 5).

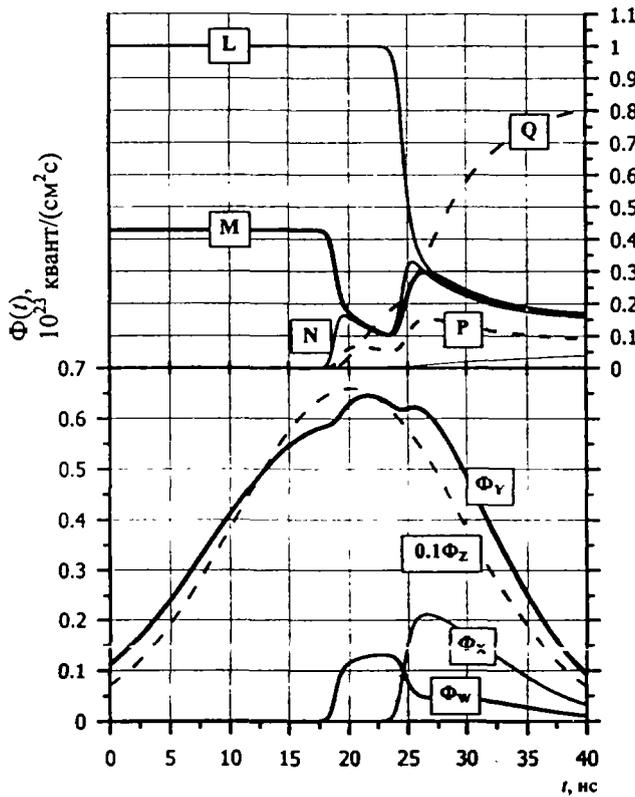


Рис. 4. Формы импульсов лазерного излучения на выходе из толстого слоя, а также динамика заселения уровней последнего квазитонкого слоя ( $H = H_{tot}$ ) в течение времени воздействия на него лазерного згрета, состоящего из четырех импульсов разных длин волн. Оптическая толщина поглощающего слоя  $J = 1,05 \cdot 10^{15}$  см<sup>2</sup>. Начальные потоки квантов  $\Phi_i(t)$  — гауссовы с шириной 40 нс на уровне 10% высоты. Полное число квантов задавалось как  $q_i = 15/\sigma + J_i$ .

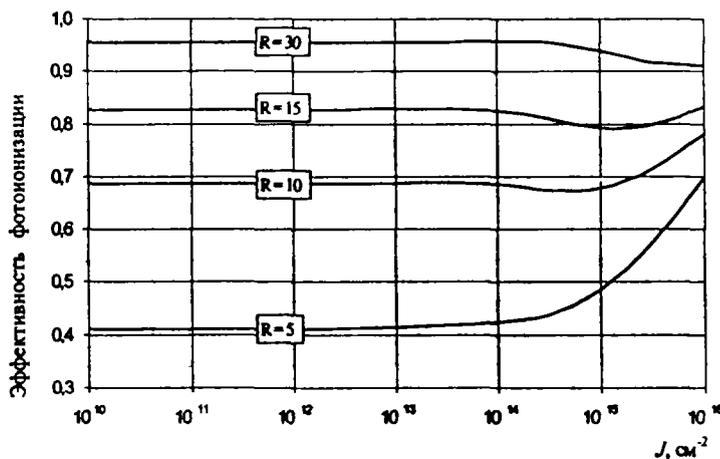


Рис. 5. Зависимость эффективности фотоионизации от оптической плотности  $J$  при задании мощностей лазеров  $P_{las}^i = (R/\sigma_i + J_i) S_{las} h\nu_i f$  для различных  $R$ .

**5.2. Затраты фотонов на один произведенный ион в АБЛИС-установках с различной оптической толщиной поглощающего слоя**

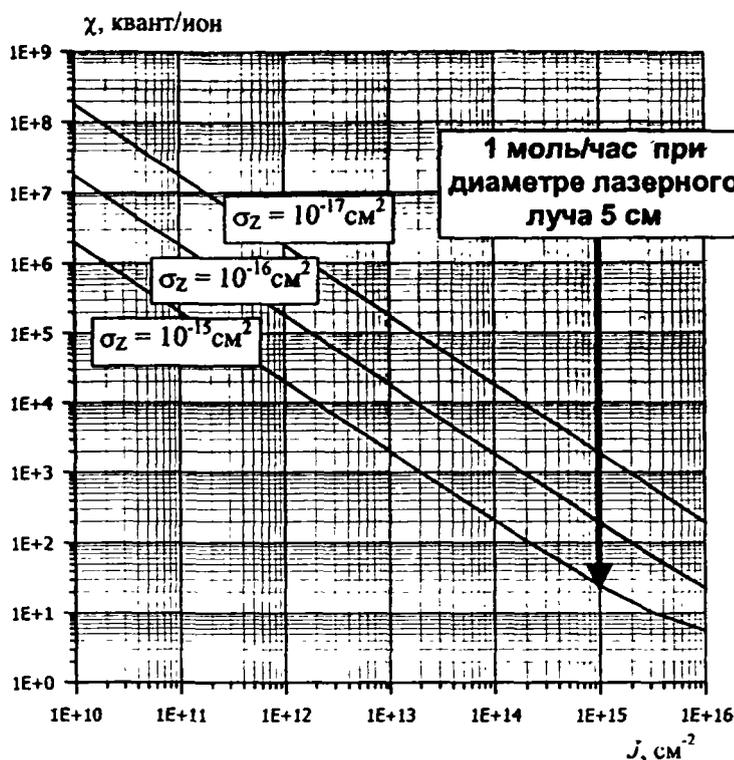


Рис. 6. Зависимость расхода фотонов на образование одного иона от толщины оптического слоя  $\chi(J)$  при различных комбинациях сечений взаимодействия, а также при условии, что количество фотонов в лазерных импульсах задается как  $q_i = 15/\sigma + J_i$ , эффективность фотоионизации  $\eta(\Sigma q_i) \sim 80\%$ .

При оценке производительности установки лазерного разделения одним из важных параметров ее экономичности является расход фотонов излучения на образование одного иона. На рис. 6 приведены зависимости  $\chi(J)$  [квант/ион] этого расхода от оптической толщины поглощающего слоя в рабочем объеме установки при различных значениях сечений взаимодействия. Из графика видно, что основной вклад в ход кривых вносит лишь сечение фотоионизации  $\sigma_z$ , т.к. оно много меньше, чем сечения возбуждения, и потому поток квантов  $\Phi_z$  необходимо сделать много большим. Из графика следует сделать вывод, что наиболее эффективными, с точки зрения использования фотонов лазерного излучения, являются установки большой производительности с большими оптическими толщинами поглощающих слоев.

**5.2. Результаты оптимизационных расчетов**

Для конкретного толстого слоя расход фотонов можно минимизировать оптимальным заданием интенсивностей лазерных импульсов всех ступеней. Из рис. 4 видно, что уже в середине, и особенно в конце толстого слоя, мощное излучение  $P_{las}^z$  расходуется впустую, не встречая на предыонизационном уровне  $P$  возбужденных атомов. Пути решения этой проблемы следующие: 1) перераспределение мощностей импульсов с целью уменьшить полное значение  $q_{tot}$ , сохранив при этом эффективность фотоионизации (т. е. производительность установки); 2) Небольшая задержка ионизирующего импульса, которая в нашем примере (рис. 1) не может быть большой, поскольку мы выбрали малое время жизни предыонизационного уровня  $\tau_p = 50$  нс.

После оптимизации было найдено, что значение эффективности фотоионизации  $\eta = 79,6\%$  можно получить и при несколько меньших затратах лазерного излучения (см. табл. 1 и 2), причем еще большей экономии фотонов можно достичь за счет задержки импульса  $\Phi_z$  примерно на 4 нс

Таблица 1. Интенсивности импульсов до и после оптимизации

	$q_x \cdot 10^{-14}$	$q_w \cdot 10^{-14}$	$q_v \cdot 10^{-14}$	$q_z \cdot 10^{-14}$	$\Sigma q_i \cdot 10^{-14}$	$\eta, \%$	$\chi$ , [квант/ион] затраты фотонов на один образованный ион
До оптимизации	8,85	3,9	25,5	160,5	198,7	79,6	23,8
После оптимизации перераспределением	18,9	4,7	31,7	107,5	162,8	79,6	19,5
После оптимизации перераспределением и сдвигом	17,5	4,6	30,6	103,7	156,4	79,6	18,8

Таблица 2. Эффективность фотоионизации квазитонких слоев до и после оптимизации

Номер слоя →	$H = 1$	$H = H_{tot}/3$	$H = H_{tot}/2$	$H = 2H_{tot}/3$	$H = H_{tot}$	$\eta, \%$
До оптимизации	89,8	86,5	82,7	76,9	56,2	79,6
После оптимизации перераспределением	83,7	81,9	80,2	78,2	72,9	79,6
После оптимизации перераспределением и сдвигом	81,9	81,3	80,2	78,7	74,6	79,6

Из таблиц 1 и 2 следует, что результатом проведенной оптимизации стало не только уменьшение затрат квантов  $\chi$  на 18% после перераспределения мощностей лазеров и на 21% после перераспределения мощностей и сдвига импульса  $\Phi_2$ , но и выравнивание эффективности фотоионизации вдоль толстого слоя, что безусловно важно при организации экстракции образованных ионов.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе на основе представления о скорости перехода между атомными уровнями  $W [c^{-1}] = \sigma [cm^2] \cdot \Phi [квант/cm^2c]$  (включающей константы атомного перехода, лоренцево и полевое уширения, а также конкретные условия эксперимента: доплеровское уширение и форм-фактор лазерной линии) с помощью численного метода решения элементарных уравнений баланса найдены эффективности фотоионизации для многоуровневых систем в случае тонкого и толстого ( $nl \leq 10^{16} cm^2$ ) оптических слоев. На основе конкретного примера показано, как путем сравнения расчетных кривых с серией экспериментальных точек можно определить сечение перехода без измерения абсолютных значений заселенностей уровней. Методика расчета позволяет получить промежуточные результаты по заселенностям уровней как в течение лазерного импульса, так и в любом месте оптически толстого слоя. Проведена оптимизация эффективности фотоионизации в сравнении с исходной (рассчитываемой при равных скоростях  $W_i$ ) путем перераспределения лазерных мощностей в пользу первых переходов и введением небольшого запаздывания ионизирующего излучения. Показано, что чем выше производительность лазерной разделительной установки, тем ниже расход квантов дорогого лазерного излучения на ионизацию пара рабочего элемента, тем, следовательно, ниже цена продукта. Работа может быть полезна при реализации лазерного обогащения изотопов различных элементов в весовых количествах AVLIS-методом.

## ЛИТЕРАТУРА

1. В.С. Летохов, С.Б. Мур, *Лазерное разделение изотопов*, Квантовая электроника 6, вып.3, 485 (1976).
2. Н.В. Карлов, А.М. Прохоров, *Лазерное разделение изотопов*, УФН, 118, вып.4, 583 (1976).
3. В.С. Летохов, В.И. Мишин, А.А. Пурецкий, *Селективная фотоионизация атомов лазерным излучением*, в сборнике *Химия плазмы* под ред. Б.Н. Смирнова, вып.4 стр.3, Атомиздат, М. (1977).
4. В.С. Летохов, УФН 125, №1, с.57 (1978).
5. Н.В. Карлов, Б.Б. Крынецкий, В.А. Мишин, А.М. Прохоров, УФН 127, №4, 593 (1979).
6. Н.В. Карлов, *Лазерное разделение изотопов*, ЛРИ, Труды ФИАН, 114, Наука, Москва (1979).
7. А.Н. Ткачев, С.И. Яковленко, *Многоступенчатая фотоионизация иттербия*, *Квантовая электроника*, 23, №9 (1996), стр. 860.
8. С.К. Борисов, М.А. Кузьмина, В.А. Мишин, *Лазерный метод разделения изотопов иттербия*, *Прикладная физика*, №1, (1995), стр. 65.
9. T. Ohnishi, *A Three-Dimensional Numerical Model of the Uranium AVLIS System*, SPIE Milestone Series, vol. MS 113, SPIE Optical Engineering Press, p. 212. 0
10. I.S. Grigoriev, E.Z. Meilikhov, *Handbook of Physical Quantities*, CRC Press, Boca Raton, New York, London, Tokio.
11. D. Levron, A. Bar Shalom, Z. Burshtein, R. David, G. Hazak, J. Ivery, L.A. Levin, J. Oreg, M. Strauss, *Photon flux optimization in three-color multiphoton ionization of uranium atoms*, SPIE, *Laser Isotope Separation*, vol. 1859, sess. 2, p. 69.
12. C. Haynam, B. Comaskey, J.G. Conway, J. Eggert, J. Glaser, Ed Ng, J.P. Paisner, R.W. Solarz, E. Worden, *Status of gadolinium enrichment technology at LLNL*, Proceedings SPIE, *Laser Isotope Separation*, vol. 1859, sess.1, p. 24.
13. А.Б. Дьячков, С.К. Ковалевич, А.В. Песня, Г.О. Цветков, *Узкополосный лазер на красителе и фотоионизация Nd-150*, 5-я Всероссийская конференция по физико-химическим процессам при селекции атомов и молекул, (Звенигород 2000), стр. 120.
14. W. Martin, R. Zalubas, L. Hagan, *Atomic Energy levels of the Rare Earth Elements*, U.S., NBS, *National standard reference data series*, NSRDS-NBS 60, (1978).
15. P.T. Greenland, D.N. Travis, D.J.H. Wort, *J.Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 23 (1990), p. 2945-2956.