

ИСТОЧНИКИ И ПРИЕМНИКИ ОПТИЧЕСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ
ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЫ

УДК 539.184.3:621.039.3

Исследование двухфотонной селективной фотоионизации паров щелочно-земельных и редкоземельных элементов

В.Г. Соковиков*

*Институт оптики атмосферы им. В.Е. Зуева СО РАН
634021, г. Томск, пл. Академика Зуева, 1*

Поступила в редакцию 3.10.2011 г.

Сообщается о поиске и исследовании каналов двухфотонной селективной фотоионизации (ДФСИ), позволяющих возбуждать первые резонансные уровни ионов щелочно-земельных и редкоземельных элементов непосредственно с основных состояний атомов. Для увеличения вероятности ДФСИ использовался квадризрезонанс накачки с промежуточным уровнем. Использовались лазеры либо с фиксированной, либо с перестраиваемой длиной волны. Установлена квадратичная зависимость интенсивности генерации ионных линий бария от интенсивности накачки, осуществляемой ХеСl*-лазером. При облучении паров бария излучением, перестраиваемым вблизи промежуточного уровня $6s7p^1P_1^0$, наблюдалось вынужденное излучение на переходах иона бария $6p^2P_{3/2}^0 \rightarrow 5d^2D_{3/2}$ ($\lambda = 614,2$ нм) и $6p^2P_{3/2}^0 \rightarrow 6s^2S_{1/2}$ ($\lambda = 455,4$ нм). Установлено, что при интенсивности накачки $I_n \leq 10^6$ Вт/см² возможен успешный поиск каналов ДФСИ. Эта возможность является следствием двухфотонного резонанса накачки с автоионизационными состояниями, лежащими выше первых резонансных уровней ионов. Обсуждаются механизмы конкуренции между ионными и атомными линиями генерации.

Ключевые слова: оптическая накачка, лазеры на парах металлов, фотоионизация, смещенные состояния, безызлучательная релаксация; optical pumping, metal vapor lasers, photoionization, shifted state, nonradiative relaxation.

Введение

В ряде работ сообщалось об обнаружении каналов селективной двухступенчатой или двухфотонной фотоионизации (ДФСИ) атомов стронция [1], бария [2, 3] и европия [4]. Важно, что в результате такой ионизации образуются ионы в возбужденном резонансном состоянии — $M^{++}(r)$. Это обстоятельство позволяет регистрировать результат фотоионизации не по проводимости среды и анализу фотоэлектронных спектров, а по наблюдаемому оптическому распаду возбужденного иона — $M^{++}(r)$. При достаточно высокой скорости накачки этот оптический распад приобретает характер вынужденного излучения. Высокая интенсивность вынужденного излучения еще более упрощает наблюдение оптического распада возбужденных ионов, что в свою очередь упрощает изучение и поиск каналов ДФСИ.

Прежде всего, поиск каналов ДФСИ представляет интерес для квантовой электроники. Прямое и селективное возбуждение резонансных уровней ионов приводит к генерации на $r \rightarrow m$ - и $r \rightarrow g$ -переходах иона. Особый интерес для практических применений представляют источники лазерного излучения, генерирующие на переходах в основное состояние ионов $r \rightarrow g$. Эти источники когерентно-

го излучения представляют интерес для зондирования ионов металлов, например кальция [5], в верхней атмосфере.

Наличие каналов селективного возбуждения открывает дополнительные возможности для изучения активных сред газоразрядных ионных лазеров на парах металлов, например методом модуляции населенности [6]. Кроме того, становится возможным получение информации об активной среде ионных лазеров на основе сравнения и сочетания газоразрядного [7] и оптического методов возбуждения [4].

Информация о каналах ДФСИ может быть весьма полезной для задач разделения изотопов. Так, контролируя спектральный состав линии излучения иона нужного изотопа, можно контролировать селективность процесса разделения.

К сожалению, метод исследования фотоионизации, основанный на регистрации оптического излучения возбужденных ионов, не является универсальным. В тех случаях, когда в результате фотоионизации образуются ионы, находящиеся в основном $M^+(g)$ или первом метастабильном состоянии $M^{++}(m)$, он не применим. Ионы в основном состоянии не могут излучать фотоны. Переходы с метастабильных уровней в основное состояние маловероятны. В этом случае можно надеяться на излучение, сопровождающее процесс рекомбинации фотоионов.

* Владимир Григорьевич Соковиков (gel@asd.iao.ru).

При рекомбинации однократных ионов может наблюдаться излучение на атомных переходах [7, 8]. Однако излучение на атомных линиях чаще является следствием квазирезонанса накачки с промежуточным уровнем при двухфотонной или двухступенчатой фотоионизации [9]. Выделить линии, обусловленные именно рекомбинационным механизмом свечения, в принципе можно по наличию временной задержки, наблюдаемой относительно импульса возбуждения.

Задачи исследования

Исследования проводились с целью поиска каналов оптического возбуждения первых резонансных уровней ионов $M^{+*}(r)$, начинающихся с основного состояния атома $M(g)$. Анализ работ [1–4] позволяет выделить некоторые условия наблюдения каналов ДФСИ.

Прежде всего, это энергетическое условие

$$2h\nu_n > U_I + E_r \quad (1)$$

согласно которому энергия двух квантов накачки $2h\nu_n$ должна превышать сумму энергий возбуждения резонансных уровней ионов E_r и первого потенциала ионизации атома U_I .

Во всех работах [1–4] для увеличения скорости ДФСИ использовался квазирезонанс накачки с промежуточным уровнем (ПУ) $M^*(r)$ атома. В работе [1], в которой впервые была предложена и экспериментально реализована одночастотная двухступенчатая схема селективного возбуждения резонансного уровня иона $5p^2P_{3/2}^0$ стронция, было сформулировано требование к виду промежуточного уровня. Согласно этому требованию для обеспечения селективности фотоионизации промежуточный уровень должен быть двухэлектронным (ДЭ). Авторы использовали двухэлектронное $4d5p^3P_1^0$ состояние стронция, лежащее ниже первого потенциала ионизации.

В работе [2] было показано, что это условие не является строго обязательным. Оказалось, что, используя в качестве промежуточного уровень $6s7p^1P_1^0$ главной серии бария, можно также реализовать двухфотонное селективное возбуждение уровня иона бария $6p^2P_{3/2}^0$. Возможность использования в схемах ДФСИ не только ДЭ-состояний, но и состояний главных серий исследуемых элементов в качестве ПУ, позволяет расширить круг исследуемых элементов.

Анализируя результаты исследования ДФСИ в барии, авторы [2] сделали следующее предположение. Важным условием успешной реализации схемы ДФСИ является двухфотонный резонанс накачки с автоионизационным состоянием (АИС), лежащим выше первого резонансного уровня иона $M^{+*}(r)$. Последующие работы прямо [3] и косвенно [4] показали, что использование двухэлектронных АИС является условием достижения положительного результата поиска каналов ДФСИ. Двухфотонный резонанс частоты накачки с частотами дискрет-

ных двухэлектронных состояний атома, подверженных автоионизации, обеспечивает резонансное увеличение сечения ионизации на несколько порядков. «Узким местом» схем двухквантовой ионизации, использующих состояние континуума в качестве конечного состояния, является малая величина сечения такого перехода. Попытка скомпенсировать эту величину увеличением плотности энергии накачки может вызвать включение неселективной туннельной ионизации [10] и других нежелательных процессов, например оптического пробоя возбуждаемой среды.

Атомы щелочно-земельных (ЩЗ) и редкоземельных (РЗ) элементов имеют развитую структуру двухэлектронных автоионизационных состояний, обусловленную ns^2 -конфигурацией их основных состояний. Кроме того, так как двухфотонный резонанс накачки с АИС резко увеличивает сечение ДФИ, его использование может обеспечить селективное возбуждение состояний иона. К сожалению, в литературе очень мало информации относительно ДЭ-состояний и АИС, расположенных выше первых резонансных уровней ЩЗ- и РЗ-элементов. Экспериментальные данные об АИС, полученные при исследовании однофотонного поглощения в ВУФ-области спектра [11], прямо использовать для предсказания и интерпретации результатов двухфотонной ионизации нельзя. Согласно правилам отбора при однофотонном поглощении начальное и конечное состояния должны иметь противоположную четность, а при двухфотонной одинаковую. То есть речь идет о возбуждении разных групп уровней.

Тем не менее имеется работа [3], в которой для достижения селективной фотоионизации использовался автоионизационный распад ДЭ-состояния атома бария $6p12s$. Возбуждение ДЭ-состояния бария $6p12s$ осуществлялось в двухступенчатом двухчастотном процессе через промежуточное ридберговское состояние бария $6s12p^1P_1^0$. Сечение второй ступени $6s12p \rightarrow 6p12s$ перехода велико ($10^{-14} - 10^{-15} \text{ см}^2$), так как он фактически является резонансным переходом $6s-6p$ иона бария [13]. Селективный распад АИС такого вида был обнаружен ранее [12]. В результате автоионизации образовывались ионы бария в возбужденном резонансном состоянии $Ba^+(6p^2P_{3/2}^0)$. Оптический распад резонансного состояния $Ba^+(6p^2P_{3/2}^0)$ в основное $Ba^+(6s^2S_{1/2})$ и метастабильные $Ba^+(5d^2D_{3/2,5/2})$ состояния имел характер вынужденного излучения. При отсутствии данных об АИС вероятность найти канал ДФСИ, обусловленный двухфотонным резонансом накачки с ДЭ-состоянием, подверженным автоионизации, ограничена случайным совпадением удвоенной частоты накачки с частотой перехода в ДЭ-состояние. Вероятность такого совпадения пропорциональна ширине АИС. Ширина автоионизационного резонанса определяется типом взаимодействия АИС с ионизационным континуумом. Диапазон экспериментально наблюдаемых ширин АИС велик и простирается от десятых долей до сотен волновых чисел [13].

Таким образом, для поиска каналов ДФСИ, осуществляемого с помощью лазеров с фиксированной или перестраиваемой частотой излучения ν_n , отбирались те РЗ- и ЦЗ-элементы, для которых выполняется условие (1). Для увеличения скорости двухфотонной селективной фотоионизации использовался квазирезонанс накачки с промежуточным уровнем $M^*(r)$ атома. Данных о резонансных уровнях, которые могут быть использованы в схемах ДФСИ в качестве промежуточных, значительно больше, чем данных об АИС.

В первой серии экспериментов предполагалось с целью поиска каналов ДФСИ облучать пары ЦЗ- и РЗ-элементов мощным излучением эксимерных УФ-лазеров ($\lambda_n = 308$ и 248 нм) и четвертых гармоник ($\lambda_n = 269$ и 266 нм) твердотельных ИК-лазеров. Для исследования выбирались пары элементов, имеющих резонансные переходы с длинами волн, близкими к фиксированным длинам волн генерации лазеров, указанных выше.

Вторую и третью серии экспериментов по поиску каналов ДФСИ в парах ЦЗ- и РЗ-элементов предполагалось провести с использованием излучения вторых гармоник перестраиваемых лазеров на красителях. Применение лазеров с перестраиваемой частотой излучения позволяло значительно расширить количество исследуемых ЦЗ- и РЗ-элементов.

С помощью перестраиваемого излучения можно производить последовательный поиск каналов ДФСИ, используя каждый раз в качестве промежуточного уровня $M^*(r)$ один из нескольких резонансных уровней исследуемого атома. Ранее [4], используя этот метод, мы обнаружили два канала ДФСИ, приводящие к возбуждению резонансных уровней $6p^7P_J$ и $6p^9P_J$ иона европия. Конкретно во второй серии экспериментов для поиска каналов ДФСИ предполагалось использовать в качестве промежуточного уровня главной серии атома бария $6snp^1P_1^0$ со значениями главного квантового числа n от 7 до 14 в качестве промежуточных уровней.

В третьей серии экспериментов поиск каналов ДФСИ предполагалось провести в соответствии с условием, сформулированным в работе [1]. Это условие касается выбора типа ПУ $M^*(r)$. Он должен быть двухэлектронным, как, например, уровень $5p4d^3P_1^0$ в стронции. В соответствии с этим условием предполагалось выбрать двухэлектронные состояния Ca, Sr и Ba и использовать их в качестве промежуточных уровней при поиске каналов ДФСИ.

Экспериментальная техника

Большая часть исследований проводилась на экспериментальной установке, представленной на рис. 1.

Основными элементами этой установки являются лазер накачки ЛН и кювета К с исследуемыми парами металла. Излучение лазера накачки направлялось в кювету системой зеркал M_1 и M_2 . Часть излучения накачки, отраженного кварцевой пластиной КП₁, использовалась для контроля мощ-

ности калориметром ИМО-2. В некоторых случаях с целью спектральной селекции излучения накачки поворотное зеркало M_1 заменялось на 60°-ную кварцевую призму.

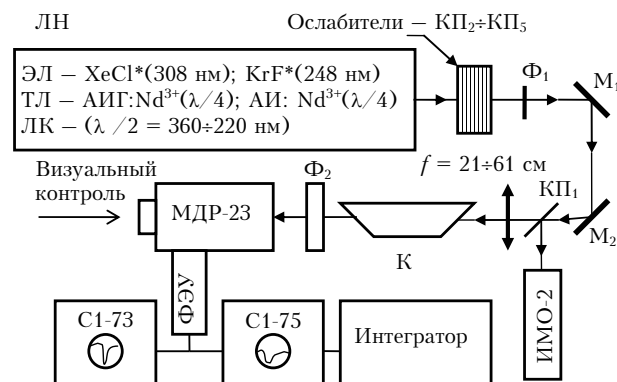


Рис. 1. Схема экспериментальной установки, используемой для исследования ДФСИ ЦЗ- и РЗ-элементов

В качестве источников накачки применялись следующие типы лазеров. В первой серии экспериментов использовались лазеры с фиксированной длиной волны. Прежде всего, это эксимерные лазеры (ЭЛ) на молекулах XeCl^* (308 нм) и KrF^* (248 нм). Лазеры снабжались неустойчивыми резонаторами для снижения расходимости. Эксимерные лазеры генерировали импульсы с энергией 10–20 мДж. Для устранения влияния спонтанного излучения, возникающего при газоразрядном возбуждении активной среды ЭЛ, на процесс регистрации преобразованного излучения использовался фильтр Φ_1 из стандартного набора цветного стекла.

Несколько реже применялось излучение четвертых гармоник ($\lambda/4 = 266$ и 269 нм) твердотельных лазерных излучателей ИЗ-25-1 ($\lambda = 1064$ нм) и ИЗ-25-1А (1079,6 нм). Оба лазерных излучателя работали в режиме модуляции добротности. В излучателях в качестве активных элементов используются монокристаллы алюмоиттриевого граната или алюмината иттрия, легированные неодимом.

Во второй и третьей сериях экспериментов применялся лазер на красителе (ЛК) ВЛ-22 с накачкой эксимерным XeCl^* -лазером ЭЛИ-5М. При использовании в качестве удвоителя частоты кристалла ВВО диапазон перестройки ЛК начинался от 360 нм и простирался в коротковолновую область спектра до 220 нм. Длительность импульса генерации основного перестраиваемого излучения ЛК составляла 10–15 нс, удвоенного — 5–10 нс. Энергия импульса излучения второй гармоники лазера на красителе составляла 100–200 мкДж в зависимости от типа красителя.

Для увеличения плотности мощности излучения накачки фокусировалось в центральную область кюветы К. Фокусировка осуществлялась кварцевыми линзами f с фокусными расстояниями от 21 до 61 см.

Вышедшее из кюветы преобразованное излучение (ПИ) и остаточное излучение накачки направлялись на входную щель монохроматора МДР-23.

Фильтр Φ_2 служит для поглощения остаточного излучения накачки.

Фотоэлектрическая схема регистрации состояла из фотоэлектронного умножителя, универсального С1-73 и скоростного С1-75 осциллографов, а также стробируемого интегратора с вольтметром. Чтобы избежать ошибок в идентификации спектра ПИ, применялся канал визуального наблюдения (см. рис. 1). Для этого мы использовали свободную выходную щель монохроматора МДР-23. В отличие от фотоэлектрического способа регистрации непосредственное наблюдение спектральных линий в фокальной плоскости у выходной щели монохроматора позволяло однозначно отличать лазерные линии от спонтанных.

В ходе исследования использовались кюветы различной длины, в которых продольный размер столба паров варьировался от 10 до 25 см. Диаметр столба паров, ограниченный диаметром вкладыша, как правило, оставался постоянным и составлял примерно 1 см.

Для измерения температуры внутренней стенки кювет применялись термопары или пирометр. Конструкция кюветы позволяла оперативно менять тип исследуемого металла. Наличие нескольких одинаковых керамических вкладышей значительно упрощало процесс перезагрузки или замены одного исследуемого металла на другой.

Результаты исследования

1. Исследование ДФСИ ЩЗ- и РЗ-элементов при оптической накачке мощными лазерными источниками с фиксированной длиной волны генерации

На рис. 2 представлена обобщенная диаграмма уровней энергии исследуемых элементов, поясняющая схему поиска каналов ДФСИ во всех трех сериях экспериментов. В первой серии экспериментов исследовалась двухфотонная селективная фотоионизация под действием излучения УФ-лазеров с фиксированной длиной волны.

Для исследования были выбраны ЩЗ- и РЗ-элементы, имеющие сильные резонансные переходы, близкие к частотам эксимерных лазеров и четвертых гармоник твердотельных лазеров.

На схеме символ Δ_λ обозначает отстройку частоты накачки от частоты перехода на промежуточный уровень $M^*(r)$. Дефект энергии двухфотонного возбуждения первого резонансного уровня иона $M^{+*}(r)$ обозначен как Δ_π . Конкретные значения параметров, характеризующие каждый из исследуемых случаев в этой серии экспериментов, представлены в табл. 1. Там же представлены результаты поиска каналов ДФСИ.

Критерием обнаружения канала ДФСИ являлось наличие генерации на $r \rightarrow m$ - и $r \rightarrow g$ -переходах иона, наблюдаемых на длинах волн $\lambda_{\text{ион}}$. Генерация на атомных переходах $r \rightarrow m$, начинающихся с ПУ $M^*(r)$ на длинах волн $\lambda_{\text{атом}}$, указывала

на достижение квазирезонансного выигрыша процесса двухфотонной ионизации.

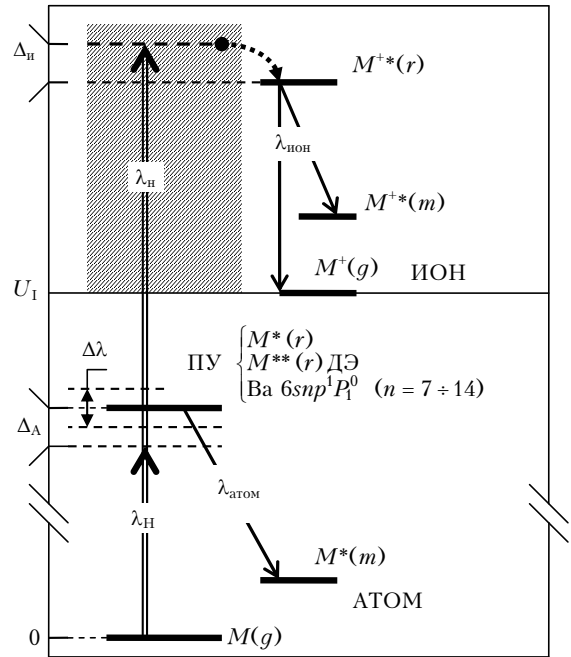


Рис. 2. Обобщенная диаграмма уровней энергии исследуемых элементов, поясняющая схему поиска каналов ДФСИ

Таблица 1

Условия и результаты поиска каналов ДФСИ при облучении паров ЩЗ- и РЗ-элементов лазерами с фиксированными длинами волн

№ комбинации	АТОМ	λ_n , нм	ПУ $M^*(r)$, см ⁻¹	Δ_λ , см ⁻¹	$M^{+*}(r)$	Δ_π , см ⁻¹	Генерация	
							$\lambda_{\text{атом}}$	$\lambda_{\text{ион}}$
1	Eu	248,5	40374	130	$6p^9P_5$	8572	(+)	(-)
2	Yb	248,5	40564	300	$6p^2P_{1/2}^0$	2977	(+)	(-)
3	Ba	248,5	40421	181	$6p^2P_{1/2}^0 \cdot 2 \cdot 10^4$		(+)	(-)
4	Sr	248,5	41172	932	$5p^2P_{1/2}^0$	1084	(-)	(-)
5	Ca	248,5	41679	1439	$4p^2P_{1/2}^0$	5984	(-)	(-)
6	Ca	266,1	36732	-862	$4p^2P_{1/2}^0$	691	(-)	(-)
7	Eu	269,6	37094	43	$6p^9P_5$	2192	(+)	(-)
8	Ba	307,9	32544	50	$6p^2P_{3/2}^0$	900	(+)	(+)
9	Eu	266,1	37591	16	$6p^9P_5$	3280	(+)	(+)

При квазирезонансной накачке паров бария излучением эксимерного XeCl*-лазера был обнаружен канал ДФСИ, приводящий к возбуждению резонансных уровней $6p^2P_{3/2}^0$ иона бария. Этот результат представлен под № 8 в табл. 1.

На наличие такого канала указывала интенсивная генерация на $6p^2P_{3/2}^0 \rightarrow 5d^2D_{5/2}$ ($\lambda_{\text{ион}} = 614,2$ нм) и $6p^2P_{3/2}^0 \rightarrow 6s^2S_{1/2}$ ($\lambda_{\text{ион}} = 455,4$ нм) переходах иона. Интенсивность генерации ионных линий $\lambda_{\text{ион}}$ бария росла с ростом концентрации его паров до момента появления генерации на переходе

с промежуточного уровня бария $6s7p^1P_1^0 \rightarrow 6s5d^1D_2$ ($\lambda_{\text{атом}} = 472,6$ нм).

Дальнейший рост концентрации паров бария сопровождался увеличением интенсивности генерации на длине волны $\lambda_{\text{атом}} = 472,6$ нм. Интенсивность генерации ионных линий $\lambda_{\text{ион}}$ при этом падала и вскоре прекращалась. С ростом концентрации паров бария в спектре преобразованного излучения последовательно появлялись линии генерации, принадлежащие сначала синглетной, а затем триплетной системам уровней энергии.

Последовательность появления линий генерации бария, наблюдаемая при повышении температуры кюветы с парами бария, представлена на рис. 3.

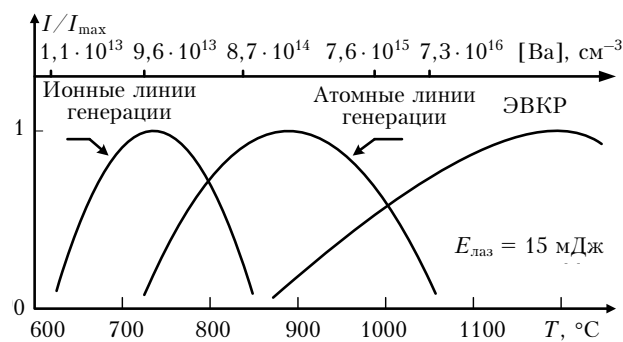


Рис. 3. Эволюция интенсивности линий генерации иона, атома бария и линии ЭВКР ($\lambda = 474$ нм) с ростом температуры кюветы при оптической накачке паров бария XeCl^* -лазером

Для некоторых температур на верхней оси абсцисс даны значения концентрации паров бария [Ba]. Причины спада интенсивности ионных линий генерации, наблюдаемого при появлении генерации на атомных переходах, будут рассмотрены позже. Заметим, что при газоразрядном возбуждении генерация на ионных линиях бария также имеет более низкий порог по концентрации паров [14], чем генерация на атомных переходах.

С целью подтверждения двухфотонного механизма накачки резонансных уровней бария исследовался вид зависимости интенсивности генерации I_T от интенсивности накачки I_H . Для этого излучение накачки ступенчато ослаблялось путем последовательного введения в луч накачки четырех кварцевых пластин КП₂–КП₅. Полученная зависимость I_T от I_H представлена в логарифмическом масштабе на рис. 4. Наклон прямой указывает на квадратичную зависимость интенсивности генерации I_T от интенсивности накачки I_H и подтверждает двухфотонный характер ионизации бария.

Второй положительный результат в этой серии экспериментов был получен при возбуждении паров европия излучением 4-й гармоники $\text{Nd}^{+3}:\text{YAG}$ -лазера. Был обнаружен канал ДФСИ, приводящий к возбуждению резонансных уровней иона европия. Анализ спектрального состава преобразованного излучения показал наличие в нем интенсивных линий генерации, принадлежащих иону европия. Верхними лазерными уровнями обнаруженных ионных линий оказались резонансные уровни $6p^3P_{3,4,5}$ иона европия.

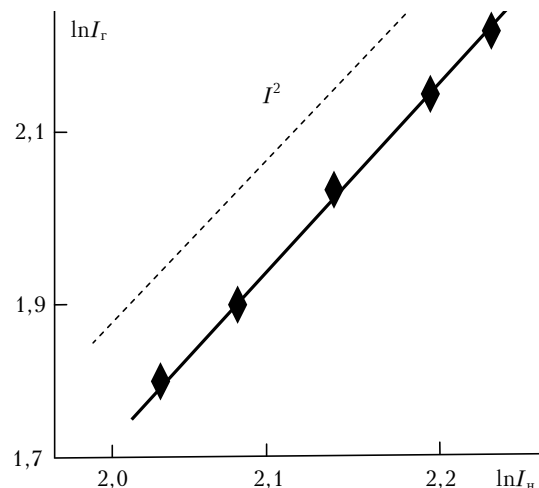


Рис. 4. Зависимость интенсивности генерации I_T от интенсивности накачки I_H в логарифмическом масштабе

Этот результат представлен в табл. 1 под № 9. Оба положительных результата, обозначенные № 8 и 9, представлены в отдельных публикациях [1, 2]. Во всех остальных случаях, представленных в табл. 1 (за исключением № 4, 5 и 6), оптическая накачка приводила лишь к появлению интенсивных линий генерации на атомных переходах (№ 8, 9 и 10). Отсутствие генерации на атомных переходах для № 4–6 в табл. 1 обусловлено большим дефектом возбуждения ПУ – Δ_A . Тем не менее исследование проводилось в надежде на случайный двухфотонный резонанс накачки с АИС.

2. Исследование ДФСИ ШЗ- и РЗ-элементов при оптической накачке перестраиваемым излучением вторых гармоник лазеров на красителях

Вторую серию исследования проводили с использованием перестраиваемого УФ-излучения вторых гармоник лазеров на красителях. Излучение накачки перестраивалось вблизи от центра резонансных линий. Схема перестройки излучения накачки показана на рис. 2.

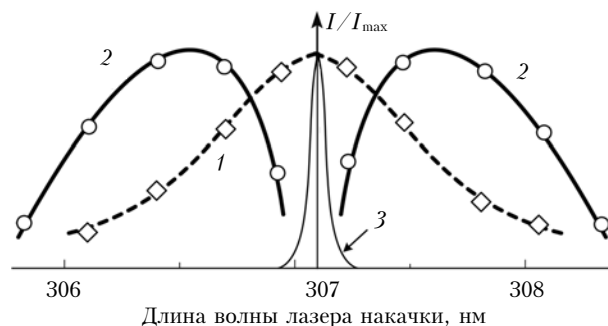


Рис. 5. Зависимость интенсивности генерации ионных и атомных линий бария, наблюдаемая при перестройке излучения накачки в окрестности промежуточного резонансного уровня $\text{Ba}(6s7p^1P_1^0)$. Кривая 1 – атомная линия $7p^1P_1^0 \rightarrow 5d^1D_2$ (472,6 нм); 2 – ионная линия $6p^2P_{3/2}^0 \rightarrow 5d^2D_{5/2}$ (614,2 нм); 3 – резонансная линия бария $6s^1S_0 - 7p^1P_1^0$ (307,16 нм)

Диапазон перестройки длин волн $\Delta\lambda$ указан в табл. 2.

Т а б л и ц а 2

Условия и результаты поиска каналов ДФСИ в атоме бария при оптическом возбуждении перестраиваемым излучением

№ комбинации	ПУ $6snp^1P_1^0$	λ_n , нм	$\Delta\lambda$, нм	I_n , Вт/см ²	Генерация	
					$\lambda_{\text{атом}}$	$\lambda_{\text{ион}}$
1	$6s7p^1P_1^0$	307	1,4	10^6	(+)	(+)
2	$6s8p^1P_1^0$	279	1,5	10^6	(+)	(-)
3	$6s9p^1P_1^0$	265	1,5	10^6	(+)	(-)
4	$6s10p^1P_1^0$	254	1,5	10^6	(+)	(-)
5	$6s11p^1P_1^0$	250	1,5	10^6	(+)	(-)
6	$6s12p^1P_1^0$	247	1,5	10^6	(+)	(-)
7	$6s13p^1P_1^0$	245	1,5	10^6	(+)	(-)
8	$6s14p^1P_1^0$	244	1,5	10^6	(+)	(-)

Было проведено исследование ДФСИ паров бария при использовании в качестве промежуточных резонансных уровней главной серии бария $6snp^1P_1^0$ ($n = 7 \div 14$). Положительный результат получен только при использовании в качестве промежуточного резонансного уровня с $n = 7$. Генерация на $6p^2P_{3/2}^0 \rightarrow 5d^2D_{5/2}$ ($\lambda_{\text{ион}} = 614,2$ нм) и $6p^2P_{3/2}^0 \rightarrow 6s^2S_{1/2}$ ($\lambda_{\text{ион}} = 455,4$ нм) переходах иона бария указывала на то, что в барии обнаружен канал ДФСИ. Этот результат представлен в табл. 2 под № 1. Ранее этот канал ДФСИ был обнаружен и при возбуждении паров бария излучением ХеСl*-лазера [2].

В ходе исследования было установлено, что при настройке частоты накачки на центральную частоту промежуточного резонансного перехода $6s7p^1P_1^0$ вынужденное излучение в ионе $\lambda_{\text{ион}}$ почти полностью исчезает. При этом интенсивность генерации атомного перехода с промежуточного уровня ($\lambda_{\text{атом}} = 472,6$ нм) максимальна. Эта закономерность нашла свое отражение на рис. 5. Аналогичное поведение интенсивности генерации ионных и атомных линий при сканировании частоты накачки в окрестности ПУ было обнаружено и в европии [3]. Напомним, что появление генерации с ПУ, связанное с ростом концентрации паров бария и отмеченное выше, также приводит к спаду интенсивности генерации в ионе.

Конкурентной зависимости интенсивности ионных и атомных линий генерации, наблюдаемой при исследовании ДФСИ, можно найти следующее общее объяснение.

По мере приближения частоты перестраиваемого лазера к центральной частоте резонансного перехода $g \rightarrow r$ увеличивается поглощение излучения накачки. При этом растет населенность промежуточного уровня $M^*(r)$. Аналогично, при накачке лазером с фиксированной частотой рост concentra-

ции паров металла также вызывает рост поглощения накачки квазимолекулами [15] и, как следствие, вызывает рост населенности промежуточного уровня $M^*(r)$. В обоих случаях при достижении пороговых концентраций на переходе атома $r \rightarrow m$ начинается генерация.

Генерация на атомном переходе $r \rightarrow m$ переводит часть атомов в метастабильное состояние $M^*(m)$. Энергии кванта накачки, поглощенного атомом, находящимся в низкорасположенном метастабильном $M^*(m)$ -состоянии, недостаточно для возбуждения резонансных уровней иона $M^{+*}(r)$. При таком поглощении энергетически возможно образование ионов только в основном $M^+(g)$ - и метастабильных $M^{+*}(m)$ -состояниях. Образование ионов в состояниях $M^+(g)$ и $M^{+*}(m)$ в возбуждаемой среде является следствием появления дополнительных каналов фотоионизации.

Таким образом, поглощение кванта накачки с метастабильного уровня $M^*(m)$ атома приводит к паразитному заселению основного $M^+(g)$ - и метастабильных $M^{+*}(m)$ -состояний иона и, как следствие, к срыву генерации на соответствующих $r - m$ и $r - g$ -переходах иона.

Кроме того, поглощение на резонансном переходе атома $g \rightarrow r$ ослабляет интенсивность излучения накачки I_n . Квадратичная зависимость выхода возбужденных ионов $M^{+*}(r)$ от I_n при ДФСИ делает такое поглощение крайне нежелательным.

Генерация на переходах атома бария $\lambda_{\text{атом}}$ во второй серии экспериментов наблюдалась во всех случаях и во всем диапазоне перестройки излучения накачки $\Delta\lambda$ (табл. 2).

В третьей серии экспериментов поиск каналов ДФСИ производился в соответствии со схемой, предложенной и реализованной для стронция [3]. В этой схеме, как уже упоминалось раньше, в качестве промежуточного уровня $M^*(r)$ используется двухэлектронное состояние $4d5p^3P_1^0$ стронция. При поиске каналов ДФСИ излучение накачки перестраивалось вблизи центральных частот двухэлектронных $M^{+*}(\text{ДЭ})$ -уровней, используемых в качестве ПУ. В табл. 3 указаны длины волн накачки $\Delta\lambda$, диапазоны перестройки излучения накачки λ_n , его интенсивность I_n . Там же представлены ДЭ-состояния Са, Sr и Ва, которые были выбраны в качестве промежуточных в схеме поиска каналов ДФСИ. Исключение составляет позиция под № 5, которая помещена в табл. 3 для сравнения.

Прежде всего, была предпринята попытка повторить результаты работы [1], представленные в табл. 3 под № 1. Условия эксперимента, в которых проводилось настоящее исследование, и его результат помещены под № 2. Как видно из сравнения условий возбуждения, авторы [1] облучали пары стронция перестраиваемым излучением со значительно большей интенсивностью, чем в нашем случае. Интенсивности, которую мог обеспечить наш источник накачки $I_n \sim 10^6$ Вт/см², по-видимому, оказалось недостаточно для повторения результатов, полученных в работе [1]. Между тем генерация

с промежуточного уровня $4d5p^3P_1^0$ на длине волны $\lambda_{\text{атом}} = 523,9$ нм [1] наблюдалась и в нашем случае.

Таблица № 3

Условия и результаты поиска каналов ДФСИ в ШЗ-элементах при использовании ДЭ-состояний в качестве промежуточных

№ комбинации	Атом	ПУ $M^{**}(\text{ДЭ})$	$\lambda_{\text{п}}$, нм	$\Delta\lambda$, нм	$I_{\text{н}}$, Вт/см ²	Генерация	
						$\lambda_{\text{атом}}$	$\lambda_{\text{ион}}$
1	Sr	$4d5p^3P_1^0$	268	1,8	10^{10}	(+)	(+)
2		$4d5p^3P_1^0$	268	1,6	10^6	(+)	(-)
3	Ca	$3d4p^3P_1^0$	254	1,5	10^6	(+)	(-)
4		$3d4p^3D_1^0$	261	1,6	10^6	(+)	(-)
5	Ba	$6s7p^1P_1^0$	308	1,4	10^6	(+)	(+)
6		$5d7p^3D_1^0$	274	1,5	10^6	(+)	(-)
7		$5d7p^3P_1^0$	270	1,5	10^6	(+)	(-)
8		$5d7p^1P_1^0$	260	1,5	10^6	(+)	(-)
9		$5d8p^3D_3^0$	245	1,5	10^6	(+)	(-)
10		$5d8p^3P_3^0$	243	1,5	10^6	(+)	(-)

Все остальные попытки распространить схему поиска ДФСИ, предложенную и реализованную для стронция [1], на другие ШЗ-элементы оказались неудачными.

Причина неудачи заключается, по-видимому, в недостаточной интенсивности нашего лазера накачки. Условием высокой вероятности двухступенчатой ионизации, как известно [13], является насыщение первой и второй ступеней накачки. Наличие генерации с промежуточных ДЭ-уровней $\lambda_{\text{атом}}$, отмеченное во всех случаях, представленных в табл. 3, показывает, что интенсивности нашего источника достаточно только для насыщения переходов первой ступени накачки. Отсутствие генерации на переходах ионов является следствием малого сечения перехода в ионизационный континуум на второй ступени ионизации. Интенсивности нашего источника накачки $I_{\text{н}} \sim 10^6$ Вт/см² было недостаточно для насыщения второй ступени.

Интересно отметить, что каналы ДФСИ в барии и европии [4] были обнаружены при интенсивности накачки $I_{\text{н}} \sim 10^6$ Вт/см². Канал, обнаруженный нами в барии, представлен для сравнения в табл. 3 под № 5. По всей видимости, сравнительно низкий порог по интенсивности накачки обнаруженных каналов ДФСИ в барии и европии (настоящая статья и статья [4]) является следствием случайного двухфотонного резонанса накачки с АИС.

Заключение

Общий вывод по результатам исследования заключается в следующем. Условие $2\hbar\nu_{\text{н}} > U_{\text{I}} + E_{\text{r}}$ является необходимым, но недостаточным для образования инверсии на переходах ионов. При ин-

тенсивности накачки $I_{\text{н}} \leq 10^6$ Вт/см² генерация на переходах иона бария, обнаруженная в настоящей работе и в работах [2, 3], является следствием двухфотонного резонанса накачки с автоионизационными состояниями, лежащими выше первых резонансных уровней ионов $M^{*}(r)$.

Наличие квазирезонанса с промежуточным уровнем атома позволяет значительно увеличить скорость процесса ДФСИ. С другой стороны, при малых расстройках или больших мощностях накачки становится неизбежным заселение ПУ. В результате вынужденных оптических и столкновительных переходов с ПУ оказывается заселенным множество других уровней атома. Наличие заселенности на других промежуточных уровнях может привести к появлению дополнительных ступенчатых каналов ионизации и к потере селективности.

Необходимо внести ясность относительно терминологии, применяемой в настоящей статье. Речь идет о том, как правильно классифицировать исследуемый процесс: как двухфотонную селективную фотоионизацию либо как двухступенчатую селективную фотоионизацию.

Представление о двухфотонных и ступенчатых процессах сформулировано в рамках теории возмущения, предполагающей малую энергию взаимодействия атома с электромагнитным полем. Различие ступенчатого и двухфотонного процессов рассмотрено в работе [16]. Авторы более ранней публикации [17] показали, что если энергия взаимодействия атома и поля оказывается порядка или больше ширины уровней, то различие между двухфотонными и ступенчатыми процессами нивелируется. При достаточно сильных интенсивностях накачки вообще теряется возможность отличить их друг от друга.

Итак, в работе установлено, что конкуренция между ионными и атомными линиями генерации имеет место при возбуждении паров ШЗ- и РЗ-элементов лазерами как с фиксированной, так и с перестраиваемой длиной волны. Тот факт, что генерация в ионе наблюдается в тех случаях, когда населенность ПУ невелика, дает формальное основание классифицировать обнаруженные каналы ДФСИ как двухфотонные.

1. Green W.R., Falcone R.W. Inversion of the resonance line of Sr⁺ produced by optically pumping Sr atoms // Opt. Lett. 1978. V. 2, N 5. P. 115–116.
2. Климкин В.М., Николаев В.Н., Соколов В.Г., Щеглов В.Б. Генерация в основном и метастабильные состояния Ba⁺ при двухфотонной ионизации паров Ba излучением XeCl⁺-лазера // Письма в ЖЭТФ. 1980. Т. 34, вып. 3. С. 111–114.
3. Bokor J., Freeman R.R., Cooke W.E. Photo-autoionization pumped Ba ion laser // Phys. Rev. Lett. 1982. V. 48, N 18. P. 1242–1245.
4. Соколов В.Г., Климкин В.М., Прокопьев В.Е. Генерация вынужденного излучения на переходах в основном и метастабильные состояния иона европия // Оптика атмосф. и океана. 2010. Т. 2, № 5. С. 359–363.

5. *Granier C., Jegou J.P., Megie G.* Resonant lidar detection of Ca and Ca⁺ in the upper atmosphere // *Geophys. Res. Lett.* 1985. V. 12, N 10. P. 655–658.
6. *Klimkin V.M., Sokovikov V.G.* Modulation methods of studying processes in pulsed gas-discharge lasers // *J. Rus. Laser Res.* 1998. V. 19, N 3. P. 211–220.
7. *Климкин В.М., Прокопьев В.Е., Сокоиков В.Г.* Экспериментальное исследование взаимосвязи ионных и атомных спектров Eu в Eu–He-смеси // *Оптика атмосф. и океана.* 1993. Т. 6, № 6. С. 628–634.
8. *Лебедев В.В., Проворов А.С., Трошин Б.И., Черненко А.А., Чеботаев В.П.* Генерация в парах магния на $\lambda = 518$ нм при использовании резонансной накачки // *Письма в ЖТФ.* 1980. Т. 6, вып. 22. С. 1364–1367.
9. *Верховский В.С., Климкин В.М., Прокопьев В.Е., Тарасенко В.Ф., Сокоиков В.Г., Федоров А.И.* Исследование ВКР излучения эксимерных лазеров на электронных переходах атомов металлов // *Квант. электрон.* 1982. Т. 9, № 11. С. 2151–2156.
10. *Келдыш Л.В.* Ионизация в поле сильной электромагнитной волны // *Ж. эксперим. и теор. физ.* 1964. Т. 47, вып. 5. С. 1945–1952.
11. *Козлов М.Г.* Спектры поглощения паров металлов в вакуумном ультрафиолете. М.: Наука, 1981. 264 с.
12. *Gallagher T.F., Safinya K.A., Cook W.E.* Energy analysis of the electron ejected in autoionization of the Ba($6p_{3/2}20s_{1/2}$)_J states // *Phys. Rev. A.* 1980. V. 21, N 1. P. 148–150.
13. *Летохов В.С.* Лазерная фотоионизационная спектроскопия. М.: Наука, 1987. 320 с.
14. *Справочник по лазерам* / Под ред. А.М. Прохорова М.: Сов. радио, 1978. Т. 1. С. 504.
15. *Бонч-Бруевич А.М., Пржибельский С.Г., Хромов В.В.* Оптические процессы при близких атомных столкновениях // *Квант. электрон.* 1978. Т. 5, № 2. С. 455–457.
16. *Геллер Ю.И., Попов А.К.* Лазерное индуцирование нелинейных резонансов в сплошных спектрах / Отв. ред. д-р физ.-мат. наук Г.М. Заславский. Новосибирск: Наука, 1981. 160 с.
17. *Попова Т.Я., Попов А.К., Раутиан С.Г., Феоктистов А.А.* О резонансных радиационных процессах // *Ж. эксперим. и теор. физ.* 1969. Т. 57, вып. 2. С. 444–451.

V.G. Sokovikov. Investigation of two-photon selective ionization in vapors of alkaline earth and rare earth elements.

Reports on the search and study of two-photon photoionization channels (TPSI) for bringing the first resonance level of ions alkaline earth (AE) and rare earth (RE) elements directly from the ground states of atoms. To increase the output of TPSI we used quasiresonance of pump with an intermediate level. Lasers were employed with either fixed or tunable wavelength. Installed a quadratic dependence of the generation rate of the ion lines of barium on the pump intensity carried out by XeCl* laser. The irradiation of barium vapor by radiation tuned near the intermediate level $6s7p^1P_1^0$, stimulated emission was observed at $6p^2P_{3/2}^0 \rightarrow 5d^2D_{3/2}$ ($\lambda = 614.2$ nm) и $6p^2P_{3/2}^0 \rightarrow 6s^2S_{1/2}$ ($\lambda = 455.4$ nm) transitions of barium ion. Established that when the pump intensity $I_p \leq 10^6$ W/cm² can search channels of DFSI with successful. This feature is a consequence of two-photon resonance with the pump autoionization states lying above the first resonant levels of ions. The mechanisms of competition between ionic and atomic lines of generation are discusses in article.