

Возбуждение атомов свинца в ридберговские состояния

С. Ф. Дюбко, Н. Л. Погребняк, А. С. Куценко, М. П. Перепечай

*Харьковский национальный университет имени В. Н. Каразина,
пл. Свободы, 4, г. Харьков, 61022, Украина
E-mail: Stanislav.F.Dyubko@univer.kharkov.ua*

Статья поступила в редакцию 11 марта 2011 г.

Исследуются методы селективного возбуждения атомов свинца в ридберговские состояния лазерным излучением. Возбуждения в nP состояния с разрешением тонкой структуры переходов осуществлены в две ступени: $6p2 \rightarrow 6p7s[1/2, 1/2]_1 \rightarrow nP\{[1/2, 1/2]_1, [1/2, 1/2]_0, [1/2, 3/2]_1, [1/2, 3/2]_2\}$ в диапазоне изменений главного квантового числа $n = 30 \div 75$. Впервые предложена и реализована схема получения атомов PbI в nS и nD ридберговских состояниях путем трехступенчатого возбуждения, базирующаяся на случайном совпадении частоты перехода второй ступени возбуждения $6p7s[1/2, 1/2]_1 \rightarrow 6p7p[1/2, 3/2]_1$ с частотой основного излучения YAG : Nd³⁺ лазера.

Ключевые слова: свинец, ридберговский атом, возбужденные состояния, лазерное возбуждение, частота перехода, потенциал ионизации

1. Введение

Широкая распространенность тяжелых химических элементов, в частности свинца, была выявлена в отдаленных звездах нашей Галактики [1]. Астрономические наблюдения показывают, что все “свинцовые звезды” являются членами бинарных звездных систем, обогащенных свинцом больше, чем любым другим химическим элементом тяжелее железа.

Количество свинца, добываемого на нашей планете, непрерывно возрастает. Сегодня годовая добыча составляет 5 млн т. Основная масса добытого свинца используется для изготовления аккумуляторных пластин, зарядов и антидетонатора – тетраэтилсвинца.

Свинец и его соединения ядовиты, однако отказать от него человечество пока не может. Свинцовое загрязнение приобрело в XX столетии глобальный характер. Даже в снегах Гренландии его содержание за сто лет увеличилось в пять раз, а в центрах больших городов, в почве и растениях, свинца в 25 раз больше, чем на окраинах. Каждый год в Мировой океан со сточными водами попадает больше полумиллиона тонн этого ядовитого металла. Безусловно, актуальной является задача мониторинга

содержания свинца в воде, почве, растениях и продуктах питания. Целесообразность использования для этих целей сверхчувствительных анализаторов примесей, базирующихся на свойствах атомов в ридберговских состояниях, не вызывает сомнений. Новые результаты в области спектроскопии ридберговских атомов свинца имеют ценность для радиоастрономии и фундаментальных исследований в области физики многоэлектронных атомов.

Постановка любых экспериментов с ридберговскими атомами начинается с решения проблемы получения их из атомов, находящихся обычно в основном состоянии. Идеальным считается такое решение, при котором в заданной области пространства хотя бы на некоторое время появляются атомы в возбужденном состоянии с заданным набором квантовых чисел – n, L, J, S – и в минимальном количестве атомы в других состояниях с близкой энергией, а также ионы и свободные электроны. Для каждого атома можно предложить ряд способов перевода в заданные ридберговские состояния. Несомненно, лучшим способом решения проблемы является применение для возбуждения атомов узкополосного лазерного из-

лучения, частота которого резонансна частоте переходов атома в те или другие возбужденные состояния. Самую высокую селективность возбуждения обеспечивают многоступенчатые схемы, но они же являются и наиболее дорогими и сложными в настройке. При решении конкретных задач число ступеней обычно выбирают в диапазоне 1–4. Проблема возбуждения атомов с высоким потенциалом ионизации усложняется тем, что в первой ступени возбуждения необходимо использовать перестраиваемое узкополосное излучение, лежащее в ультрафиолетовом (УФ) диапазоне длин волн, получение которого представляет самостоятельную проблему. Чтобы обойти эти трудности, предлагаются схемы возбуждения атомов с высоколежащих метастабильных состояний. Но и такой подход имеет очевидные недостатки. Нами предложены и испытаны схемы перевода атомов свинца из основного в ридберговские состояния. В этих схемах все необходимые частоты резонансных излучений получены путем преобразования инфракрасного (ИК) излучения доступного YAG:Nd³⁺ лазера с помощью лазеров на красителях и нелинейных оптических кристаллах.

2. Общая характеристика атома свинца с позиций атомной физики

Свинец имеет ряд стабильных изотопов: ²⁰⁴Pb (1.4 %), ²⁰⁶Pb (24.1 %), ²⁰⁷Pb (22.1 %) и ²⁰⁸Pb (52.4 %). Последние три нуклида – конечные продукты обычных радиоактивных преобразований урана, актиния и тория. Кроме того, известно также больше 20 радиоактивных изотопов свинца, из которых наиболее долгоживущим является ²⁰²Pb с периодом полураспада 300 тыс. лет. В земной коре свинца немного, лишь 0.0016 % от общей массы. Это один из наиболее тяжелых металлов, распространенный значительно шире, чем его ближайшие соседи в периодической системе элементов – золото, ртуть и висмут.

Сверх заполненной 6s-подобной оболочки у атома свинца есть 2 эквивалентных p-электрона. Конфигурация np^2 дает три термина – ³P_{0,1,2}, ¹D₂, ¹S₀. Основным термом является терм максимальной мультиплетности, т. е. ⁶3P_J. Поскольку в данном случае p-оболочка заполнена менее чем наполовину, уровни $J = 0, 1, 2$ расположе-

ны в нормальном порядке, т. е. ниже всех лежит уровень $J = 0$. Термы ¹D и ¹S₀ расположены намного выше основного состояния и являются метастабильными. Дипольные переходы между ¹D₂, ¹S₀ и основным термом запрещены правилами отбора по четности. В атомах с двумя эквивалентными p-электронами возможны возбуждения или одного из p-электронов, или одного из s-электронов. В первом случае имеем конфигурации типа $6s^2 6pn1$ – синглетные и триплетные термы, во втором – конфигурации типа $6s6p^2 n1$ (синглетные, триплетные и квинтетные термы). Таким образом, количество рядов термов будет существенно больше, чем в атомах с одним s-электроном, так как теперь для каждой электронной конфигурации будет получаться ряд термов, что видно на упрощенной энергетической диаграмме атома PbI на рис. 1. Оптические спектры поглощения свинца, в том числе и в УФ диапазоне, в период 1960–1980 гг. изучались авторами ряда работ [2–4], а накопленные данные систематизированы в [5].

Потенциал ионизации PbI составляет 59819 см⁻¹, поэтому для возбуждения его в ридберговские состояния нужны лазеры с перестройкой частоты, работающие в УФ области спектра. Обычно такие лазеры весьма дороги и практически недоступны. Поэтому в некоторых работах, например в [3], возбуждение атомов PbI осуществляли из метастабильного состояния ¹D₂ с энергией 21458 см⁻¹ излучением второй гармоники лазера на красителе С-510 с перестройкой длины волны в области 510 ÷ 550 нм. Таким образом удастся получить атомы в ридберговских ns, nd и ng состояниях. Проблема заключается в заселении метастабильного состояния ¹D₂. Дело в том, что термическое заселение метастабильного состояния ¹D₂ даже при температурах испарения свинца близко к нулю.

Для заметного заселения уровня ¹D₂ авторы работы [3] использовали дуговой электрический разряд вблизи отверстия разогретого контейнера для выхода атомного пучка. В таком разряде, кроме нужных атомов в состоянии ¹D₂, будут присутствовать атомы во многих других возбужденных состояниях, а также электроны и ионы, которые дают сильные ложные сигналы при детектировании ридберговских атомов наиболее чувствительным методом – методом

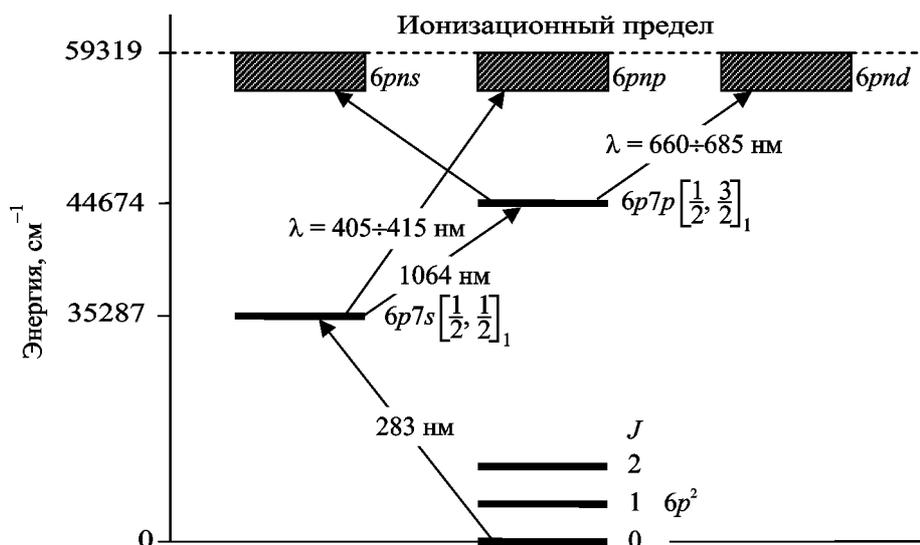


Рис. 1. Упрощенная энергетическая диаграмма атома свинца с указанными переходами для возбуждения в ридберговские состояния

ионизации импульсным электрическим полем. Поэтому мы выбрали методы возбуждения атомов в ридберговские состояния прямо из основного уровня 6^3P_0 путем каскадного возбуждения резонансным излучением. Ниже представлены результаты наших исследований.

3. Эксперименты и их анализ

3.1. Возбуждение атома свинца в nP ридберговские состояния

В свое время была проведена большая работа, связанная с поиском оптимальных путей перевода в ридберговские состояния любых элементов таблицы Менделеева. Ее итоги представлены в таблице под названием “Схемы резонансной ступенчатой ионизации атомов” в монографии В. С. Летохова [6]. Интересно отметить, что в таблице отсутствуют соответствующие рекомендации по элементам 4-й группы. Объясняется это тем, что для возбуждения самых легких элементов этой группы (углерод и кремний) пришлось бы рекомендовать применение недоступных источников коротковолнового УФ излучения. Этим же объясняется и отсутствие до сих пор работ по лабораторным исследованиям указанных атомов в ридберговских состояниях. С увеличением веса элементов 4-й группы указанные трудности постепенно сни-

жаются. В частности, становится вполне доступным для исследований обычными методами самый тяжелый элемент группы – свинец.

В качестве одного из возможных вариантов нами предложена и реализована двухступенчатая схема возбуждения триплетных nP состояний атомов Pb1. Первый каскад возбуждения из основного состояния $6p2p$ в состояние $6p7s$ представляет собой резонансный переход с длиной волны 283 нм, а второй каскад обеспечивает переход в заданные nP ридберговские состояния интенсивным когерентным излучением с перестройкой частоты в диапазоне длин волн 405 ÷ 415 нм.

Для возбуждения первого уровня использовалась вторая гармоника лазера на красителе R-6G с перестройкой частоты. Излучение второго каскада возбуждения получено путем сложения в нелинейном кристалле частот основного излучения YAG : Nd³⁺ лазера и лазера на красителе Ох-17, частота которого перестраивается в диапазоне длин волн 660 ÷ 680 нм. Для генерации второй гармоники и смешивания частот применялись кристаллы KDP. Энергия импульсов УФ излучения первого каскада – 150 мкДж, энергия импульсов излучения второго каскада – 100 ÷ 300 мкДж, продолжительность импульсов – 20 нс, частота повторения – 10 ÷ 20 Гц. Схема оптической лазерной сис-

темы возбуждения в nP состояния показана на рис. 2.

Регистрация ридберговских атомов проводится методом полевой ионизации. Пучок атомов формируется системой диафрагм и направляется в область пространства между двумя параллельными полированными пластинами, образующими плоский конденсатор. За одной из пластин, имеющей электрический контакт с корпусом ионизационной камеры, а также множество отверстий диаметром 0.5 мм в центральной области, установлен вторично-электронный умножитель (ВЭУ). Входное окно ВЭУ расположено напротив области пластины с отверстиями. Вторая пластина ионизационной ячейки также имеет нулевой потенциал, но допускает подачу короткого (~ 1 мкс) импульса напряжением до 1024 В отрицательной полярности от специального генератора. Перпендикулярно к оси пучка атомов в пространство между пластинами вводится лазерное излучение системы возбуждения через оптическое окно камеры. Пучки лазерного излучения со-

вмещаются в области взаимодействия с атомами, и результатом взаимодействия становится образование облака возбужденных ридберговских состояний атомов свинца с наперед заданным главным квантовым числом. Через короткий промежуток времени (> 0.5 мкс), который может изменяться, после окончания действия лазерного излучения возбуждения на вторую пластину подается импульс ионизации. В результате воздействия приложенного электрического поля ридберговские атомы ионизируются, электроны устремляются в направлении пластины с отверстиями, и часть из них достигает ВЭУ, вызывая импульс тока, пропорциональный числу образовавшихся методом полевой ионизации атомов. Более детальное описание устройства и работы используемого спектрометра можно найти в [7].

Источник пучка атомов свинца представляет собой полый стальной цилиндр с дном и небольшим отверстием в верхней крышке для выхода атомов. Цилиндр подогревается молибденовой спиралью с алундовой изоляцией

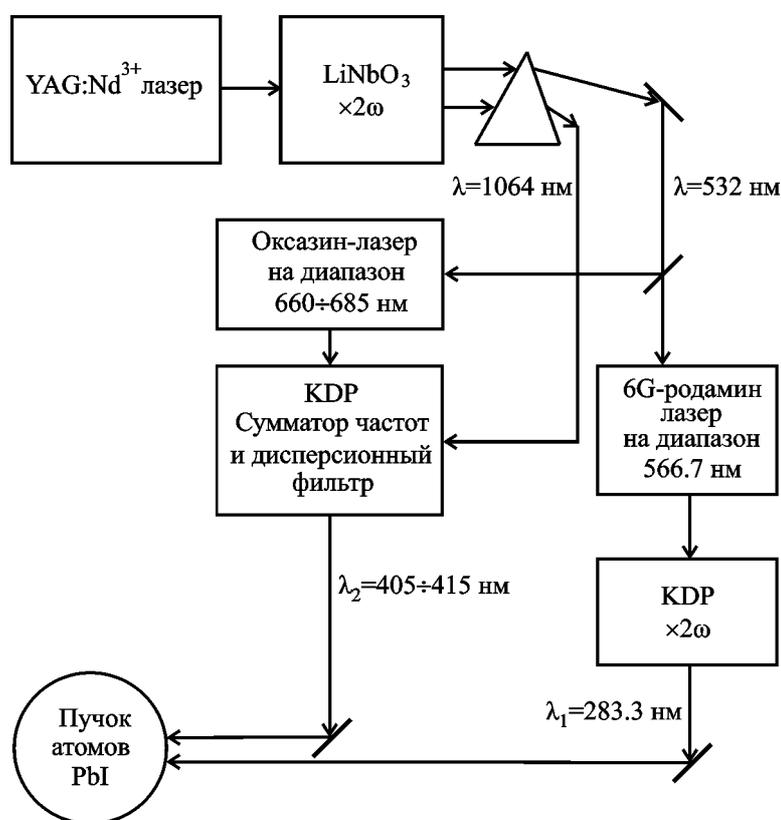


Рис. 2. Схема оптической части спектрометра для исследований nP состояний атомов свинца

до температуры $800 \div 1100$ °С, температура контролируется термопарой. Источник пучка атомов находится на расстоянии ~ 15 см от ионизационной камеры. На расстоянии 30 мм от выходного отверстия располагается диафрагма с отверстием диаметром 0.8 мм. Источник пучка атомов, коллимирующие диафрагмы, ионизационная ячейка, ВЭУ смонтированы в вакуумной камере, где давление остаточных газов в экспериментах снижается до 10^{-6} мм рт. ст.

В первых экспериментах по резонансному оптическому возбуждению атомов Pb1 в ридберговские состояния возникла проблема помех при введении в камеру УФ излучения первой ступени возбуждения. Причина – появление электронов в камере при рассеянии квантов УФ излучения на ее металлических частях. Помеха была очень сильная, по величине сравнимая с полезным сигналом. Изменение конструкции камеры и материала стенок практически ничего не дало. Устранить помеху удалось подачей на пластины ионизационной камеры положительного импульса амплитудой $3 \div 10$ В. Продолжительность этого импульса составляла 0.5 мкс, а начало воздействия предшествовало моменту появления лазерного возбуждения в камере. Только после этой доработки удалось получить хорошего качества оптические спектры возбуждения атомов Pb1.

Фрагмент такой записи показан на рис. 3. В диапазоне главного квантового числа $n = 30 \div 70$ с хорошим соотношением сигнал/шум прописаны резонансы переходов указанного на рисунке типа. Запись получена при изменении частоты “красного” лазера путем поворота его дифракционной решетки двигателем с замедляющим редуктором. Заметное несовершенство записи

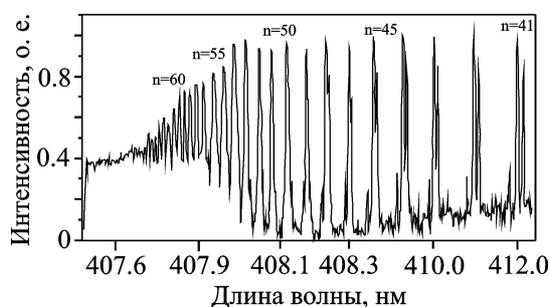


Рис. 3. Фрагмент записи спектра возбуждения атомов свинца в nP состояния

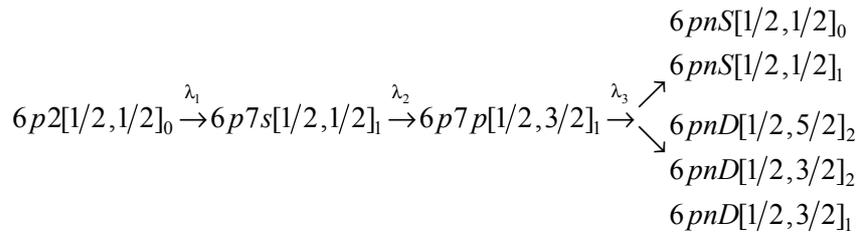
спектра объясняется временной неравномерностью угла поворота решетки, вибрациями от двигателя и флуктуациями частоты лазера. Для резонансов с $n < 50$ видна тонкая структура переходов. Переходы идентифицированы по n путем измерения критической напряженности ионизации для ряда резонансов. Измерено время жизни атомов в ридберговских состояниях с $n = 45$. Оценка времени жизни осуществлялась путем записи величины ионного тока при плавном введении задержки между лазерным импульсом и импульсом ионизации. Значение тока уменьшалось в два раза при задержке импульса ионизации $6 \div 8$ мкс. Влияние столкновений атомов в ридберговском состоянии с молекулами остаточных газов и поверхностью ионизационных пластин, а также воздействие ИК излучения раскаленной печи источника атомов на уменьшение времени жизни не исследовались.

Но наблюдаемое в наших экспериментах время жизни атомов позволяет рассчитывать на получение довольно узких микроволновых резонансов. В числе главных проблем, которые будут влиять на качество записей микроволновых резонансов, является обнаруженная слабая крутизна ионного тока как функции напряженности ионизирующего поля. Даже при уменьшении напряженности поля до уровня заметно ниже критического наблюдается значительный ($30 \div 50$ %) ионный ток каналотрона. На величину этого тока влияет остаточное давление газов в камере. Применение азотной ловушки снижает остаточный ток, но не более чем в два раза.

3.2. Возбуждение атома свинца в nS и nD ридберговские состояния

Нами предложен и реализован упрощенный способ перевода атомов свинца в nS и nD ридберговские состояния путем 3-ступенчатого возбуждения. Особенность такого способа возбуждения состоит в том, что он позволяет воспользоваться случайным совпадением частоты перехода $6p7s [1/2, 1/2]_1 \rightarrow 6p7p [1/2, 3/2]_1$ и частоты генерации YAG:Nd³⁺ лазера. Частота этого перехода составляет 9387.76 см^{-1} [2], а частота генерации YAG:Nd³⁺ лазера приблизительно равняется 9397 см^{-1} . Небольшое расхождение частот можно легко компенсировать мощностью резонансного излучения.

Таким образом, переход атомов из основного состояния в ридберговские можно осуществить по схеме:



В такой схеме возбуждения применяются по-каскадно три вида излучения с длинами волн $\lambda_1 = 283$ нм, $\lambda_2 = 1064$ нм и $\lambda_3 = 610 \div 680$ нм соответственно. В последнем каскаде нужно применять лазер с перестройкой длины волны на красителе DCM. Оптическая схема возбуждения спектрометра для исследований атомов свинца в nS и nD состояниях показана на рис. 4. Уникальность этой схемы возбуждения атомов в том, что здесь не нужен отдельный лазер с подстройкой частоты для второго каскада накачки.

Запись зависимости ионного тока при резонансной настройке первых двух каскадов воз-

буждения и перестройке частоты лазера третьей ступени показана на рис. 5.

4. Выводы

1. Предложены и испытаны эффективные способы получения ридберговских атомов свинца в nP , nS и nD состояниях, которые базируются на использовании излучения YAG : Nd³⁺ лазера.

2. Предложен и реализован упрощенный метод перевода атомов свинца в nS и nD ридберговские состояния путем 3-ступенчатого возбуждения. Особенность этого метода состоит в том,

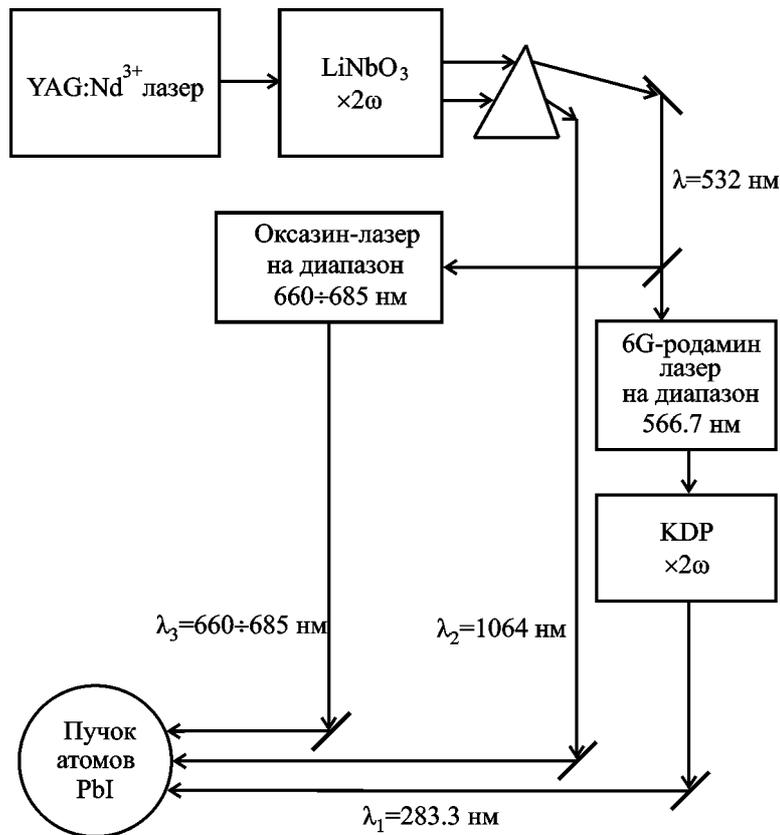


Рис. 4. Схема оптической части спектрометра для исследований nS и nD состояний атомов свинца

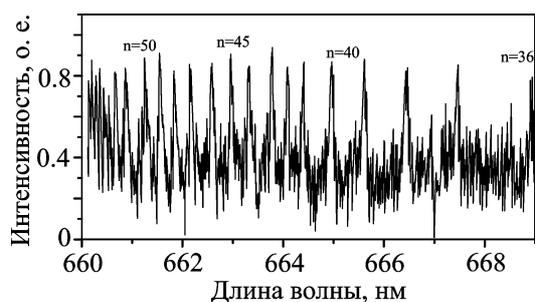


Рис. 5. Фрагмент записи спектра возбуждения атомов свинца в nS и nD состояниях

что в такой схеме используется случайное совпадение частоты перехода атомов свинца $6p7s [1/2, 1/2]_1 \rightarrow 6p7p [1/2, 3/2]_1$ и частоты генерации YAG : Nd³⁺ лазера.

3. Записи тока ионизации при детектировании атомов свинца в ридберговских nP , nS и nD состояниях и наблюдаемое в наших экспериментах значительное время их жизни дают основание рассчитывать на получение узких микроволновых резонансов. В числе главных проблем, которые влияют на возможности получения качественных записей микроволновых резонансов, – слабая крутизна ионного тока, как функции ионизационной напряженности поля при ионизации nP -атомов. Причины этого явления выясняются. При ионизации импульсным полем атомов в nS и nD состояниях такой проблемы не существует.

Работа выполнена при поддержке совместного проекта РФФИ – ГФФИ Украины (№ 09-02-90427 – № Ф28.2/023), а также гранта РФФИ № 10-02-00133. Авторы признательны партнеру по совместной работе – руководителю российской исследовательской группы. И. И. Рябцеву, за помощь и поддержку в ходе выполнения работы.

Литература

1. Van Eck S., Goriely S., Jorissen A. and Plez B. Discovery of three lead-rich stars // Nature. – 2001. – Vol. 412. – P. 793-795.
2. Wood David R. and Andrew Kenneth L. Arc Spectrum of Lead // J. Opt. Soc. Am. – 1968. – Vol. 58, No. 6. – P. 818-828.
3. Buch P., Nellessen J., and Ertmer W. Laser Spectroscopic Studies of $6pnd$, $6pns$, and $6png$ Rydberg States of Lead // Physica Scripta. – 1988. – Vol. 38. – P. 664-669.

4. Brown C. M., Tilford S. G., and Ginter Marshall L. Absorption spectrum of PbI between 1350 and 2041 Å // J. Opt. Soc. Am. – 1977. – Vol. 67, Is. 9. – P. 1240-1252.
5. Fuhr J. R. and Wiese W. L. NIST Atomic Transition Probability Tables, CRC Handbook of Chemistry & Physics, 77th Edition, Ed. by D. R. Lide. – Boca Raton, FL: CRS Press, Inc., 1996.
6. Летохов В. С. Лазерная фотоионизационная спектроскопия. – М.: Наука, Гл. ред. физ.-мат. лит., 1987. – 320 с.
7. Дюбко С. Ф., Погребняк Н. Л., Алексеев Е. А., Рябцев И. И., Куценко А. С. Микроволновый спектрометр атомов в ридберговских состояниях // Радиофизика и радиоастрономия. – 2011. – Т. 16, № 2. – С. 198-208.

Збудження атомів свинцю в рідбергівські стани

С. П. Дюбко, М. Л. Погребняк,
О. С. Куценко, М. П. Перепечай

Досліджуються методи селективного збудження атомів свинцю в рідбергівські стани лазерним випромінюванням. Збудження в nP стани з розрізненням тонкої структури переходів здійснено двома ступенями: $6p2 \rightarrow 6p7s[1/2, 1/2]_1 \rightarrow nP \{ [1/2, 1/2]_1, [1/2, 1/2]_0, [1/2, 3/2]_1, [1/2, 3/2]_2 \}$ в діапазоні зміни головного квантового числа $n = 30 \div 75$. Вперше запропоновано і реалізовано схему отримання атомів PbI в nS та nD рідбергівських станах шляхом триступінчатого збудження, яка базується на випадковому збігові частоти переходу другого ступеня збудження $6p7s[1/2, 1/2]_1 \rightarrow 6p7p[1/2, 3/2]_1$ з частотою основного випромінювання YAG : Nd³⁺ лазера.

Excitation of Lead Atoms to Rydberg States

S. F. Dyubko, N. L. Pogrebnyak,
A. S. Kutsenko, and M. P. Perepechay

The techniques of selective laser excitation of lead atoms to Rydberg states are investigated experimentally. In the principle quantum number range $n = 30 \div 75$, an excitation to nP states with fine structure resolution was performed in two steps: $6p2 \rightarrow 6p7s[1/2, 1/2]_1 \rightarrow nP \{ [1/2, 1/2]_1, [1/2, 1/2]_0, [1/2, 3/2]_1, [1/2, 3/2]_2 \}$. A three step scheme of PbI atom excitation to nS and nD Rydberg states has been first proposed and implemented, the scheme being based on an accidental coincidence of the second excitation step $6p7s[1/2, 1/2]_1 \rightarrow 6p7p[1/2, 3/2]_1$ with the YAG : Nd³⁺ laser radiation basic frequency.