

УДК 539.194.01

УСЛОВИЯ ОПТИЧЕСКОГО ОХЛАЖДЕНИЯ.
ЧЕТЫРЕХУРОВНЕВАЯ МОДЕЛЬ

Хапалюк А. П.

На четырехуровневой модели теоретически изучаются условия оптического охлаждения вещества. Показано, что они зависят от вероятностей переходов, расположения уровней и начальной температуры.

Настоящая статья является продолжением работы [1]. В ней теоретически изучаются необходимые условия оптического охлаждения на четырехуровневой квантовой модели вещества, которая дает возможность изучить ряд особенностей, не имеющих места в трехуровневых моделях.

Энергия системы запишется в виде

$$W = n_2 \varepsilon_2 + n_3 \varepsilon_3 + n_4 \varepsilon_4, \quad (1)$$

где $\varepsilon_j = h\nu_{j1}$ — энергия соответствующего уровня относительно первого (основного). В дальнейшем равновесная населенность будет отмечаться индексом 0. Число всех частиц $N = n_1 + n_2 + n_3 + n_4$ считается постоянным.

При дополнительном внешнем облучении населенность уровней изменяется и меняется энергия системы. Если при этом энергия системы увеличивается, будем считать, что такое облучение приводит к нагреванию вещества, в противном случае — к его охлаждению. Цель настоящей работы — изучить возможность и условия, при которых под воздействием внешнего стационарного резонансного облучения энергия системы (1) уменьшится по сравнению с той, которую она имела до облучения в равновесном состоянии.

В четырехуровневой системе имеется довольно большое число вариантов выбора резонансных частот. Начнем с исследования возбуждения интенсивностью S_{12} и частотой ν_{12} . Это возбуждение изменит населенность уровней и их энергию. Разность между энергией системы при облучении W и прежней равновесной W_0 можно записать

$$\Delta W = W - W_0 = (n_2 - n_2^0) \varepsilon_2 + (n_3 - n_3^0) \varepsilon_3 + (n_4 - n_4^0) \varepsilon_4. \quad (2)$$

Правая часть в (2) может быть, как известно (см., например, [2]), выражена через вероятности суммарных (оптических и неоптических) переходов, включая вынужденные переходы за счет дополнительного облучения S_{12} .

Если ΔW отрицательно, энергия системы уменьшилась и это означает ее охлаждение. Исследование показывает, что знак этого выражения не зависит от интенсивности облучения и определяется только через параметры самой системы: вероятностями переходов p_{ij} , значениями энергетических уровней ε_j и начальной (равновесной) температурой T . От интенсивности облучения зависит величина охлаждения; она монотонно, но нелинейно увеличивается от нуля при $S_{12} = 0$ до некоторого предельного значения при $S_{12} \rightarrow \infty$. Предельно возможная величина охлаждения также определяется параметрами системы.

Условие, которое обеспечивает отрицательное значение выражения (2), через вероятности p_{ij} запишется

$$\begin{aligned} \varepsilon_4 [(p_{14} - p_{24})(p_{31} + p_{32} + p_{34}) + p_{34}(p_{13} - p_{23}) + p_{14}p_{23} - p_{13}p_{24}] + \varepsilon_3 [p_{43}(p_{14} - p_{24}) + p_{13} \times \\ \times (p_{41} + p_{42} + p_{43} + p_{24}) - p_{23}(p_{41} + p_{42} + p_{43} + p_{14})] > \varepsilon_2 [p_{14}(p_{41} + p_{42} + p_{43} + p_{34}) + \\ + p_{43}(p_{14} + p_{31} + p_{32}) + (p_{14} + p_{41} + p_{42})(p_{31} + p_{32} + p_{34})]. \end{aligned} \quad (3)$$

Правая часть (3) будет малой, если мало ε_2 . При этом значительное увеличение населенности второго уровня не приведет к существенному увеличению энергии системы. Левая часть (3) увеличится, если уменьшится вероятность переходов со второго на третий и четвертый уровни ($p_{42}, p_{32} \rightarrow 0$); малые вероятности этих переходов препятствуют крайне нежелательному в данном случае подселению верхних, третьего и четвертого, уровней за счет второго. Эти два требования являются основными.

Для сред, удовлетворяющих этим требованиям, можно пренебречь малыми значениями вероятностей переходов. Если еще учесть соотношение $p_{ji} = p_{ij} \exp(h\nu_{ij}/kT)$ ($j > i$), то неравенство (3) значительно упростится и может быть записано

$$(\varepsilon_4 - \varepsilon_2) e^{-\frac{\varepsilon_4}{kT}} + (\varepsilon_3 - \varepsilon_2) e^{-\frac{\varepsilon_3}{kT}} - \varepsilon_2 > 0. \quad (4)$$

При достаточно низкой температуре оно выполняться не может. Только при дополнительном условии $\varepsilon_4 + \varepsilon_3 > 3\varepsilon_2$ и достаточно высокой температуре (выше пороговой) неравенство (4) выполняется. При низких температурах очень мало частиц на верхних уровнях, и число переходов с верхних на обедненный нижний оказывается слишком малым: уменьшение энергии системы за их счет не может компенсировать увеличение ее за счет подселения второго уровня. Этот вывод совпадает с аналогичными результатами для трехуровневой системы.

Если все эти довольно жесткие условия выполняются, то процесс охлаждения сводится к следующему. Облучение резонансной частотой ν_{12} обедняет первый и подселяет второй энергетические уровни, за счет чего энергия системы увеличивается. Увеличение населенности второго уровня из-за малых значений вероятностей соответствующих переходов не приводит к подселению верхних уровней. Зато обедненный первый уровень дополнительно принимает часть частиц с третьего и четвертого уровней. За счет этих переходов верхние уровни обедняются, и тем самым уменьшается энергия системы. Если число последних переходов достаточно велико, а их число увеличивается с ростом температуры, система в целом окажется с меньшей энергией, чем была до облучения.

Совершенно аналогичным образом рассматриваются остальные варианты облучения. При облучении резонансной частотой ν_{13} с интенсивностью S_{13} пренебрежимо малыми должны быть вероятности переходов с третьего уровня на четвертый и второй ($p_{34}, p_{32} \rightarrow 0$). В этом случае одновременно уменьшается населенность четвертого и второго уровней. Баланс энергии в пользу охлаждения возможен при условии

$$(\varepsilon_4 - \varepsilon_3) - (\varepsilon_3 - \varepsilon_2) e^{\frac{h\nu_{24}}{kT}} > 0. \quad (5)$$

При дополнительном условии $\varepsilon_2 + \varepsilon_4 > 2\varepsilon_3$ и достаточно высокой температуре (выше пороговой, но другой, чем в первом случае) неравенство (5) выполняется.

Исследования показывают, что облучение резонансной частотой ν_{14} не может привести к охлаждению. Энергия кванта возбуждения слишком велика и увеличение энергии системы с увеличением населенности верхнего уровня не может быть скомпенсировано за счет обеднения более низких второго и третьего уровней.

Таким образом, условия охлаждения четырехуровневой системы при возбуждении резонансной частотой с нижнего уровня качественно остаются теми же, что и трехуровневой системы. Специфические особенности четырехуровневой системы проявляются при возбуждении со второго и третьего уровней.

При возбуждении с интенсивностью S_{23} и частотой ν_{23} наиболее выраженным требованием является пренебрежимо малое значение вероятности перехода между третьим и четвертым уровнями. Оно хотя и способствует обеднению второго уровня, но существенно подселяет четвертый, и баланс энергии оказывается невыгодным. Влияние переходов с первого на второй уровень меньше, но, как правило, они приводят к увеличению энергии системы и также нежелательны. Пренебрегая этими малыми значениями вероятностей, условие охлаждения запишется в виде

$$\varepsilon_4 [p_{24} (p_{13} + p_{31} + p_{14}) - p_{31} p_{14}] + \varepsilon_2 [p_{31} (p_{41} + p_{42} + p_{14}) + p_{42} (p_{13} + p_{14}) + p_{41} p_{13}] > \varepsilon_3 [p_{24} (p_{13} + p_{14} + p_{41}) + p_{42} (p_{13} + p_{14}) + p_{13} p_{41}]. \quad (6)$$

Выполнение неравенства (6), особенно когда четвертый и второй уровни высокие, а третий низкий (ν_{23} мала), вполне возможно. Наиболее важными переходами, вероятности которых должны быть максимальными, следует считать переходы с четвертого уровня на второй и с третьего на первый. В некоторых специфических случаях способствуют охлаждению переходы между четвертым и первым уровнями. При малых вероятностях переходов с первого на второй уровень число частиц на первом уровне увеличивается по сравнению с равновесным за счет переходов с третьего уровня. В этой ситуации переходы с четвертого уровня на первый затруднительны и этот уровень не может за счет их обедняться.

В целом процесс охлаждения протекает следующим образом. Частицы с четвертого уровня переходят на обедненный второй, затем со второго под действием внешнего возбуждающего облучения перебрасываются на третий и далее с третьего переходят на первый. В результате на первом и третьем уровнях число частиц оказывается большим, чем в равновесном состоянии, а на четвертом и втором уровнях меньшим. Увеличение энергии за счет подселения третьего уровня компенсируется за счет обеднения второго и четвертого уровней. Влияние температуры оказывается маловыраженным.

При возбуждении резонансной частотой ν_{24} решающую роль играет большое обеднение третьего уровня и подселение первого, поэтому вероятности переходов с первого и четвертого уровней на третий должны быть пренебрежимо малыми. Вероятности переходов с четвертого уровня на первый и с третьего уровня на второй должны быть большими. Так как обеднение третьего уровня происходит за счет переходов на второй, то подселение его с первого уровня нежелательно. Оказывается, что в этом случае понижение температуры ухудшает условия охлаждения.

При возбуждении частотой ν_{34} охлаждение также возможно. Здесь необходимо, чтобы третий уровень не заселялся за счет переходов с нижних, первого и второго, уровней. Иначе третий уровень окажется промежуточным и через него сильно увеличится населенность четвертого уровня, что крайне нежелательно, поэтому будем считать, что вероятности переходов с первого и второго уровней на третий пренебрежимо малы. При этом оказываются второй и четвертый уровни перенаселенными, а третий сильно обедненным, поэтому второй уровень энергетически должен быть низок, а третий — высок. Охлаждение реализуется при выполнении условия

$$\varepsilon_3 \left(1 + e^{\frac{h\nu_{24}}{kT}} + e^{\frac{h\nu_{14}}{kT}} \right) - \varepsilon_4 - \varepsilon_2 e^{\frac{h\nu_{24}}{kT}} > 0. \quad (7)$$

Условие (7) не является слишком жестким и при наших предположениях выполняется при любой температуре, хотя при ее понижении условия охлаждения улучшаются.

При возбуждении частотой ν_{34} может реализоваться другой вариант охлаждения, когда обедняются второй и третий уровни одновременно. Для этого нужно, чтобы вероятности переходов с первого и четвертого уровней на второй и с третьего уровня на первый были пренебрежимо малы. Основными являются переходы со второго уровня на третий и с четвертого на первый. Частицы со второго уровня переходят на третий, с которого под действием возбуждающего облучения перебрасываются на четвертый, а затем с четвертого переходят на первый, где и накапливаются, что в результате приводит к уменьшению энергии системы.

Дополнительное исследование показывает, что получить охлаждение системы при одновременном возбуждении двумя или тремя резонансными частотами менее вероятно. Для этого необходимо, чтобы действие каждой частоты по отдельности приводило к охлаждению. Одновременно же выполнение условий охлаждения для двух или трех каких-либо резонансных частот затруднительно.

При более детальном исследовании формул типа (3) вытекают следующие характерные для многоуровневых систем общие выводы.

Для реализации оптического охлаждения требуется выполнение ряда довольно жестких условий. Они касаются фактически всех определяющих пара-

метров системы: значений вероятностей переходов между уровнями, расположения самих уровней и температуры. Начальная температура вещества играет важную роль. Как правило, для любого вещества имеется только одна частота, при возбуждении которой достигается нужный результат.

Если возбуждение ведется с нижнего, наиболее заселенного уровня, то охлаждение оказывается возможным при достаточно высокой (выше пороговой) температуре. В этом случае имеется оптимальная начальная температура, при которой можно получить максимальное охлаждение, которое однако не может быть большим, так как процесс сопровождается обеднением нижнего энергетического уровня.

При возбуждении с верхнего энергетического уровня условия охлаждения, как правило, улучшаются с понижением начальной температуры. При низкой начальной температуре охлаждение может оказаться весьма большим, так как процесс протекает при накоплении частиц на нижнем уровне. Отметим, в частности, что накопление частиц на нижнем уровне приводит также к появлению отрицательной люминесценции.

Наиболее выраженные требования к вероятностям переходов сводятся к следующему. При возбуждении верхний резонансный уровень всегда будет перенаселен, поэтому вероятности переходов с него на более высокие уровни должны быть пренебрежимо малы, а на нижние уровни — велики. Нижний резонансный уровень будет всегда обедненным, поэтому вероятность переходов на него с более высоких уровней должна быть велика, а подселение его из нижележащих уровней должно быть пренебрежимо малым. При этом процесс охлаждения происходит в основном по следующей схеме. Из-за больших вероятностей переходов частицы с уровней, расположенных выше верхнего резонансного, переходят на нижний резонансный. Далее за счет возбуждающего облучения они перебрасываются на верхний резонансный уровень, с которого опускаются на самые нижние энергетические уровни.

Энергия возбуждающих квантов всегда должна быть малой. Нужно обеспечить, чтобы поглощенные кванты малой энергии вызывали затем излучение квантов большой энергии. При этом часть уровней будет обедняться, другая часть подсеяться. Те уровни, которые обедняются, должны быть энергетически высокими, те, которые подсеются, — низкими.

Литература

- [1] Хапалюк А. П. — Опт. и спектр., 1984, т. 56, в. 5, с. 889.
[2] Методы расчета оптических квантовых генераторов / Под ред. Б. И. Степанова. Минск, 1966.

Поступило в Редакцию 16 октября 1985 г.