

扫频场作用下原子多步级联共振光电离

王 扬 刘 敏 胡企铨 林福成

(中国科学院上海光机所, 201800)

提要: 通过对薛定谔方程的数值解, 给出了扫频脉冲光场对四能级原子系统作用的结果, 说明了扫频脉冲光场应用于高斯分布的多普勒加宽原子统计系统, 在适当的扫频条件和激光功率下能得到比单色或调幅脉冲光场更有效的三步光电离。

关键词: 扫频场, 共振, 光电离

Effects of pulse frequency modulation on three-step resonance laser ionization

Wang Yang, Liu Min, Hu Qiquan, Lin Fucheng

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Shanghai)

Abstract: Through numerical solution of the Schrödinger equation we illustrate the effects of frequency modulation laser upon the excitation of a four-level system irradiated by simultaneous laser pulse. When the laser power is sufficiently great and the frequency modulation parameters are suitable, it shows that the frequency modulation excitation applied to a Gaussian statistical distribution of detunings can obtain more effective three-step photoionization than monochromatic or amplitude modulation excitation does.

Key words: frequency modulation, on resonance, laser ionization

J. R. Ackerhalt、J. H. Eberly 等人曾在相干极限近似下讨论了三能级多普勒加宽自电离原子系统的三步级联共振光电离动力学问题^[1], A. Goldberg 和 B. W. Shove 提出了用振幅调制的光场激发多普勒加宽原子系统, 在统计线型中形成多个“烧孔”的办法来提高光电离效率^[2], 给出了数值计算的结果。

本文引入了调频光场, 在相干极限近似下, 用数值模拟的方法研究了四能级的统计加宽原子系统光电离动力学问题。与振幅调制光场比较, 调频光场能更有效地克服“烧孔”效应。文中讨论了调频参数的选择, 在双光子消多普勒激发条件下, 对单个光场扫频的光电离动力学过程也作了探讨。

一、基本理论

本文采用的扫频光场假定是对单色光场经频率调制后给出的, 忽略了光场本身的涨落。因

此, 它可解析地表示为

$$E = E_0 \cos[\omega_0 t + \varphi(t)] \quad (1)$$

式中, E_0 为光场振幅, $\varphi(t)$ 是调制函数, 光场的即时频率可写成:

$$\omega(t) = \omega_0 + d\varphi(t)/dt = \omega_0 + \Delta\omega(t) \quad (2)$$

ω_0 是被调制单色光场的频率。

当激光强度相对原子内电场仍是很弱, 但由它引起的受激辐射和跃迁与原子能级的自发辐射速率相比足够大, 以至可以忽略后者时, 原子和光场相互作用体系就过渡到相干极限近似情况, 可用薛定谔方程描写。

在旋波表象中^[2], 原子态的波函数可用原子能级本征态矢 ψ_n 为基矢写出:

$$\begin{cases} \psi(t) = \sum_{n=1}^N C_n(t) \psi_n \exp[i\beta_n(t)] \\ d\beta_n(t)/dt = \sum_{i=1}^{n-1} \omega_i(t) \quad n=2, 3, \dots \end{cases} \quad (3)$$

式中 $\beta_n(t)$ 的导数为级联泵浦光场的即时频率之和。基态 $\beta_1(t) = 0$ 。N 能级系统的薛定谔方程为

$$\begin{cases} i \frac{d}{dt} C_n(t) = \sum_{m=1}^N H_{nm}(t) C_m(t) \\ H_{nn} = D_n + \sum_{i=1}^{n-1} d\varphi_i(t)/dt - i\gamma\delta_n N/2 \\ H_{n,n+1} = \Omega_n/2 \end{cases} \quad (4)$$

式中, γ 为自电离能级的自电离速率; D_n 为被调制的单色光频与能级的失谐 ($D_n = \sum_{i=1}^{n-1} \omega_i^0 - \nu_n$, ν_n 为第 n 个能级与基态的能量差); Ω_n 为激发光的拉比频率^[3]; $H_{n,n+1}$ 为常数, 是利用了旋波近似。

考虑到气态原子热运动造成的多普勒频移, 公式(4)中的失谐应写成:

$$\begin{cases} D_n = \sum_{i=1}^{n-1} \omega_i^0 - \nu_n + (n-1)\Delta \\ \Delta = \omega_0 v/C \end{cases} \quad (5)$$

v 为原子热运动速度。并假定了光谱变化范围远小于被调制光的频率, 且这些光频相等。后一步近似仅是为了计算方便。

由此我们可得到具有某种热运动速度的原子的电离几率:

$$P_{ion}(t, \Delta) = 1 - \sum_{n=1}^N |C_n(t, \Delta)|^2 \quad (6)$$

为了得到原子运动统计分布情况下的结果, 我们假定它为热平衡时的高斯分布, 最后给出总的光电离几率:

$$\begin{aligned} \overline{P_{ion}}(t) &= \int_{-\infty}^{\infty} P_{ion}(t, \Delta) \exp[-\Delta^2/\Delta_0^2] d\Delta / \int_{-\infty}^{\infty} \exp[-\Delta^2/\Delta_0^2] d\Delta \\ &= 1 - \int_{-\infty}^{\infty} \sum_{n=1}^N P_n(t, \Delta) \exp[-\Delta^2/\Delta_0^2] d\Delta / \int_{-\infty}^{\infty} \exp[-\Delta^2/\Delta_0^2] d\Delta \end{aligned} \quad (7)$$

Δ_0 为多普勒加宽半宽度。

计算中考虑的参数为: 激光脉冲时间 20 ns, 自电离速率 $\nu \cong 10^2$ MHz, 拉比频率 $\Omega \sim \nu$, $\Delta_0 \cong 1 \times 10^3$ MHz. 计算中还假定了各光场的拉比频率相同:

$$\Omega_n \equiv \Omega \quad (8)$$

这种条件下光能量的利用比较充分, 且光电离效率对 Ω_n 的相对变化不太敏感^[4]. 在以后的计算将用 ns 作为时间的基本单位, 以它的倒数 GHz 作为频率的基本单位.

二、光场扫频

我们选择了较简单的三角函数为调制函数. 由于能级的统计加宽假定是高斯分布, 因此要求扫频函数是偶函数(这对其它偶对称线型也适用):

$$\begin{cases} \varphi(t) = y \left\{ 1 - \cos \left[\left(t - \frac{T}{2} \right) x \right] \right\} / \sin [x \cdot T/2] x \\ x = \lambda \pi / T \end{cases} \quad (9)$$

式中 $\varphi(t)$ 是关于 $t = T/2$ 为中心对称的; y 为扫频半宽度; λ 为波形调制参数; T 为激光脉冲时间. 我们仅考虑单次扫频, 所以 λ 的取值范围为

$$0 \leq \lambda \leq 1 \quad (10)$$

当 $\lambda = 0$ 时, (9) 式表示为

$$\lim_{\lambda \rightarrow 0} \varphi(t) = y(t - T/2)^2 / T \quad (11)$$

频率随时间的改变值:

$$\Delta\omega(t) = d\varphi(t)/dt = y(t - T/2) / (T/2). \quad (12)$$

是线性函数.

仅考虑共振且调频函数相同的情况. 由公式(4)和(6)可得

$$H_{n,n} = (n-1) [d\varphi(t)/dt + \Delta] - \frac{i\gamma}{2} \delta_n N \quad (13)$$

具体的数值计算方法请参阅文献[2]的索引.

图1给出了单色、振幅调制和扫频光场光电离的结果. 在拉比频率和自电离速率皆相同的情况下, 扫频光场的结果最好. 它比调幅光场更能使原子在多普勒线宽内达到充分且均匀的电离.

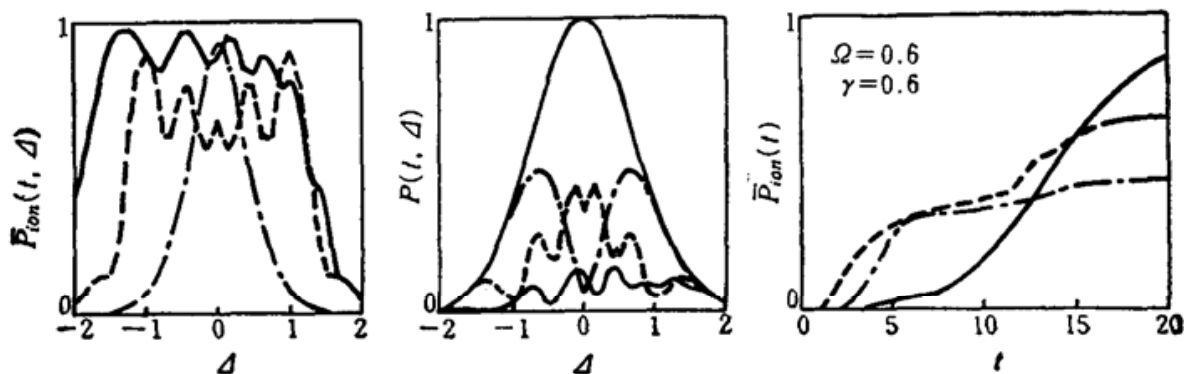


Fig. 1 Solid line: frequency modulation, $y=2$, $\lambda=0$; Dash line: three-step amplitude modulation, reference[2]; Dot-dash line: monofrequency light

图 2 给出了不同 y 和 λ 值时光电离几率变化曲线, 可以看出扫频参数选择对光电离效率的影响, 当扫频半宽度 $y=2\Delta_0$ 时, 线性扫频 ($\lambda=0$) 效果最好。图 1 中给出了这时的光电离几率轮廓, 它的宽度近似等于扫频宽度。随 λ 的增加, 电离几率轮廓宽度也增大。但这种增大对光电离没什么贡献, 相反, 由于扫频场没有完全消除光电离轮廓的不均匀性, 这时轮廓中凹陷部分增大, 降低了总的光电离几率, 见图 3(a)。对扫频半宽度 $y=\Delta_0$ 的曲线, 它随波形参数 λ 的增加而增大。 $\lambda=1$ 时, 电离几率轮廓最宽。 $y=1.5\Delta_0$ 时, 图 2 中曲线在 $\lambda=0.75$ 附近出现一个极大值, 光电离几率轮廓宽度近似为 4Δ , 见图 3(b), 这说明影响总的光电离几率的因素主要是光电离轮廓的宽度。如轮廓宽度相同, 又以线性扫频为佳。

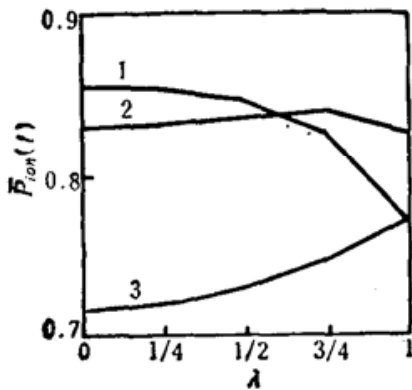


Fig. 2 1. $y=2$; 2. $y=1.5$; 3. $y=1$
other parameters are $\Omega=\gamma=0.6$,
 $T=20$

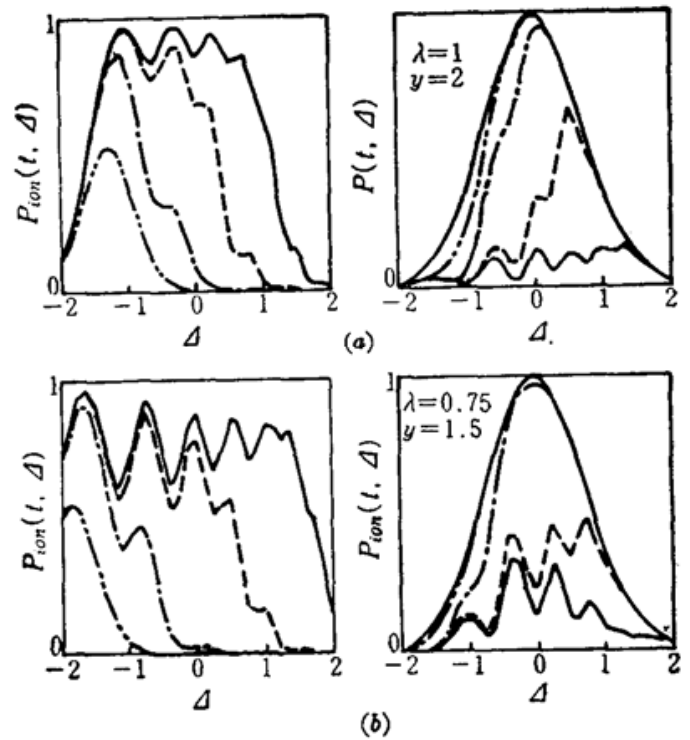


Fig. 3 Outer solid line of $P(t, \Delta)$ curve represents the Gaussian distribution ($\Omega=0.6$, $\gamma=0.6$), whereas all others—from left to right—represent different time curves. The time of double dot-dash line is 5, others are 10, 15, 20 respectively

光电离几率轮廓的不均匀性是限制快速扫频的主要因素。这种不均匀性产生的机制比较复杂。图 4 分别给出了总的光电离几率变化曲线, 它们说明总光电离几率对光强的改变比较敏感。

在光频率固定时, γ 的增加能提高光电离速率, 但光强超过饱和强度时, 饱和效应将抑制光电离几率的增加。如将扫频看成是光场对原子逐步变频泵浦, 近似地可将引起功率加宽的扫频时间作为有效泵浦时间。图 4(a) 表现出明显的类似饱和曲线的结果, 我们认为这是由于对扫频光场而言, 有效作用时间远小于光脉冲时间, 因此相应的饱和和光强比单色光激发时要大。当光强很弱以至在有效作用时间内光电离过程尚未达到饱和, 这时由图 4(a) 给出的扫频结果比单色光场作用的总光电离几率还低。这说明扫频光场的优越性仅在光强达到饱和时才能体现出来。这与调幅情况下有所不同。原子自电离能级均匀线宽为 $A\gamma_0$ 。应要求扫频速度能满足

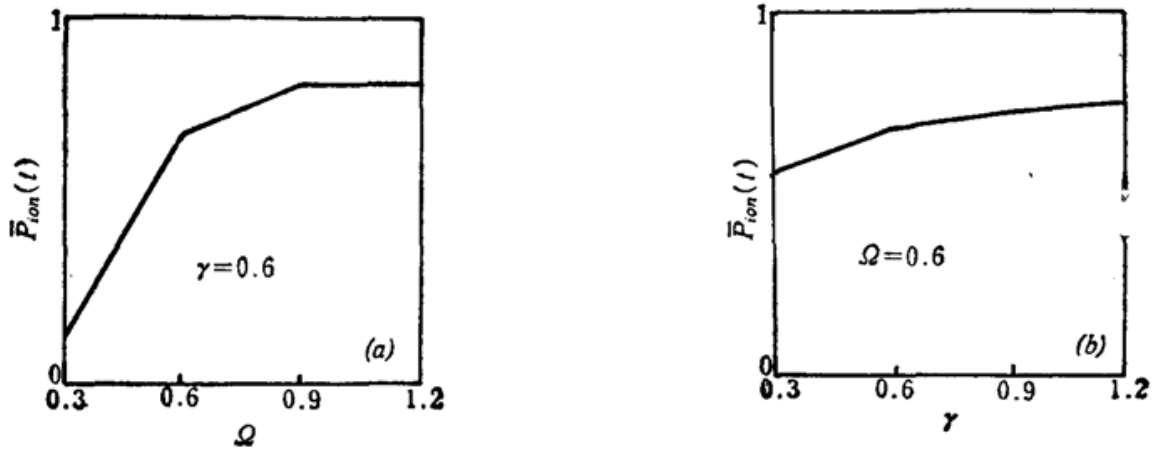


Fig. 4 Variation curves of the overall photoionization probability vs the light intensity ($\lambda=1$, $\gamma=2$, $T=20$)

$$\left| \sum_{t=1}^{N-1} d\varphi(t')/dt' \right| \Big|_{t'=t}^{T+t} \lesssim A_v \quad (14)$$

在线性扫频时,如要求在激光脉冲时间内扫过 $4\Delta_0$ 的频率范围并得到高的光电离效果。根据(14)、(11)式得

$$T_s/T \leq A_\gamma/4\Delta_0 \quad (15)$$

它近似地给出了扫频光的利用能否得到高的总光电离几率的判据。

三、单光场扫频

当相继激发光场的传播方向相反时,可部分消去多普勒频移的影响,在这种条件下,四能级原子仅自电离态和第一激发态上的失谐不为零。

$$D_n = \Delta\delta_{n, 2k+1} \quad k=0, 1 \quad (16)$$

图5(a)给出了单色光场三步级联共振光电离几率轮廓,它比同向传播时得到的光电离几率轮廓能部分提高光电离效率。但还不能使多普勒线型边缘的原子得到充分的光电离。三光场扫频的 $H_{n,n}$ 被写成

$$H_{n,n} = (d\varphi(t)/dt + \Delta)\delta_{n, 2k+1} - i\frac{\gamma}{2}\delta_{n,N} \quad (17)$$

它的光电离几率与轮廓与同向传播时非常相似,因此仅讨论单一光场扫频的结果。

图5给出了三个光场分别扫频的结果,它表明仅到自电离态的激发光场扫频能达到提高总光电离几率的效果,并且这时总光电离几率接近三光场扫频的结果。其它两步的扫频不但不能提高总光电离几率,反而破坏了双光子共振条件,使光电离效率降低,扫频参数选择,与第三部分类似。

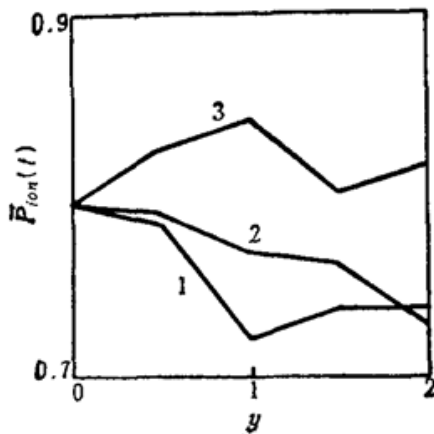


Fig. 5 ($\lambda=1$, $\Omega=0.6$, $\gamma=0.6$, $T=20$)
Curves 1, 2 and 3 represent the frequency modulation of first, second and third laser separately

四、同位素分离效率

同位素原子相互之间存在着另一种能级位移,被称为同位移移。实际情况下,各能级的位移量在数量级上很近似。本文为了计算方便,假定各能级位移满足类似多普勒位移的关系:

$$\Delta_n^d = (n-1) \Delta^d \quad (17)$$

Δ^d 为第一激发能级的同位素位移。对三光场扫频的情况。可简单地将第三部分中的电离几率轮廓函数 $P_{ion}(t, \Delta)$ 与高斯分布函数卷积给出分离选择因子 α 随同位素位移改变的曲线(图 6):

$$\bar{P}_{ion}(\Delta d) = \int_{-\infty}^{\infty} P_{ion}(t, \Delta + \Delta d) \exp[-\Delta^2/\Delta_0^2] d\Delta \quad (18)$$

$$\alpha(\Delta d) = \bar{P}_{ion}(\Delta d) / \bar{P}_{ion}(0) \quad (19)$$

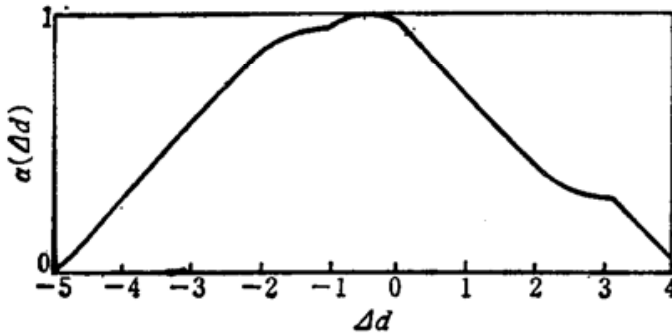


Fig. 6

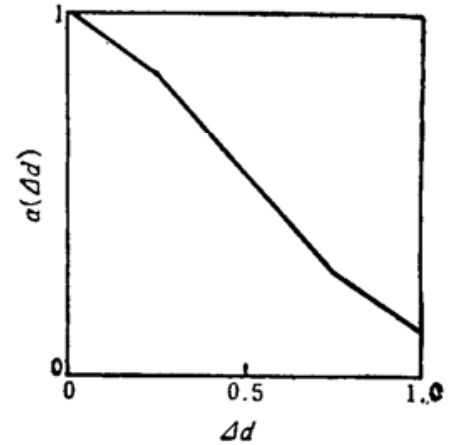


Fig. 7

第三步激发光场单一扫频的结果不能如三光场扫频那样由公式(18)、(19)直接给出,我们仍假定同位素位移满足公式(17),直接数值计算给出了 $\bar{P}_{ion}(\Delta d) / \bar{P}_{ion}(0)$ 的变化曲线(图 7)。

两种情况比较,图 6 中当 $\Delta^d > 5\Delta_0$ 时同位素分离因子才为零。中间是个缓变过程,图 7 中当 $\Delta^d > \Delta_0$ 时,分离因子 α 就近似为零。这种扫频光电离方式即能提高光电离效率,也同时保持了单色光场光电离具有的选择性高的特点。

在足够大的光强和自电离速率的条件下,扫频光激发能使存在非均匀加宽的原子系统得到比同样光强和自电离速率的单色光场或振幅调制光场激发更高的总光电离几率。扫频函数和扫频参数的选择应使光电离几率轮廓正好覆盖多普勒加宽线型轮廓。三光场扫频时,以(10)式为扫频函数,取 $y = 2\Delta_0$ 、 $\lambda = 0$ 的选择最佳。单光场扫频时,参数选择与上述近似。

从同位素分离选择性要求和减少调频光场的要求来看,消多普勒位移的第三步光场单一扫频方式比较可取,它即有效地提高了光电离几率,又保持了单色光电离时良好的选择性。

参 考 文 献

- 1 J. R. Ackorhalt, J. H. Eberly, *Phys. Rev.*, **A19**, 248(1979)
- 2 A. Goldberg, B. W. Shore, *Opt. and Quant. Electr.*, **10**(4), 331(1978)
- 3 A. Yariv, 量子电子学, 刘颂豪等译, 科学出版社, 1982, 176
- 4 B. W. Shore, J. Acherhalt, *J. Phys.*, **A15**, 176(1977)