

三能级原子的激发动力学行为 及对共振电离的影响

蒋孟衡 林福成

(中国科学院上海光机所, 201800)

摘要: 从密度矩阵出发, 在适当的近似条件下, 导出了三能级原子在双脉冲光场驱动下的类似两能级 Bloch 方程形式的动力学方程组, 并利用数值求解, 建立了一套处理程序, 考查了双 Gauss 脉冲作用下三能级原子布居数的时间依赖关系, 着重分析了脉冲强度、相对延迟、频率失谐、电离速率等动力学参数对离子产额的影响。

关键词: 共振激发, 离子产额

Dynamics of three-level atoms excited by optical pulses and its influence on resonant ionization

Jiang Mengheng, Lin Fucheng

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

Abstract: Based on the density matrix, we derived the Bloch-like dynamic equations of three-level atoms driven by two optical pulses, then analyzed them with numerical solutions. We have also examined the time dependences of the atomic populations and ion production. Particular attention has been paid to the relationships between the ion production and the dynamic parameters, such as pulse amplitude, relatively retarded time, frequency detuning and ionization rate.

Key words: resonant excitation, ion production

一、引 言

近十多年来,原子的多步共振激发技术得到迅速发展,并在高能态研究、微量元素检测、激光同位素分离等领域得到了广泛应用。迄今为止,处理这一问题的理论工具主要是唯像性的速率方程^[1]和量子力学的 Schrödinger 方程和密度矩阵理论^[2]。在毫微秒量级脉冲作用下,光能密度超过饱和值,速率方程给出的值与真实结果相差甚远。B. W. Shore^[3]等人从 Schrödinger 方程出发,着重研究了三能级原子在连续器双光场稳态作用下的动力学行为,并给出了有效激发的参数匹配条件。在实际工作中,激发光场经常采用的是脉冲形式,稳态连续光场的结果对此已失去意义。本文即针对这一问题,从三能级原子密度矩阵方程出发,推得了类似二能级系统的级联 Bloch 方程组,并利用数值求解,考查了脉冲强度、相对延迟、频率失

谱、电离速率等参数对原子行为和离子产额的影响,给出了脉冲光场作用下的参数选取条件。

二、理论模型及方程

考虑原子为串联(Cascade)三能级系统,能级 $|1\rangle$ 、 $|2\rangle$ 、 $|3\rangle$ 本征能量为 E_1^A 、 E_2^A 、 E_3^A , 频率为 ω_1 、 ω_2 的两束光脉冲分别与 $|1\rangle$ 和 $|2\rangle$ 、 $|2\rangle$ 和 $|3\rangle$ 能级近共振作用,能级 $|2\rangle$ 、 $|3\rangle$ 各自存在着到 $|1\rangle$ 、 $|2\rangle$ 的自发辐射 A_{21} 、 A_{32} , 同时能级 $|3\rangle$ 存在到连续态的电离速率 F 。如图 1 所示。

我们将光场视作中心载频 ω_i ($i=1, 2$) 上叠加上脉冲包络 $s_i(z, t)$:

$$\mathbf{E}_i(z, t) = \frac{1}{2} s_i(z, t) \cdot \mathbf{e}_i \cdot \exp[-i(\omega_i t + \phi_i)] + \text{c.c.} \quad (1)$$

其中 \mathbf{e}_i 为空间单位方向矢量, ϕ_i 为随机位相因子。又密度矩阵 ρ 的时间演化行为由方程

$$i\hbar\dot{\rho} = [H, \rho] - i\hat{\beta} \cdot \rho \quad (2)$$

给出,其中 $\hat{\beta}$ 为电离、自发辐射、碰撞解相等所引起的弛豫损失算符。假定光场与原子的作用仅为偶极相互作用:

$$H_I = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}(z, t) \quad (3)$$

其中偶极矩阵元为

$$\langle 1 | \boldsymbol{\mu} | 2 \rangle = \mu_1 \neq 0 \quad (4)$$

$$\langle 2 | \boldsymbol{\mu} | 3 \rangle = \mu_2 \neq 0 \quad (5)$$

$$\langle 1 | \boldsymbol{\mu} | 3 \rangle = 0 \quad (6)$$

则原子 Hamilton 量为

$$H = \begin{pmatrix} E_1^A & -\mu_1 E_1 & 0 \\ -\mu_1^* E_1^* & E_2^A & -\mu_2 E_2 \\ 0 & -\mu_2^* E_2^* & E_3^A \end{pmatrix} \quad (7)$$

在密度矩阵方程中,对非对角元去除随时间快变部份,即设

$$\rho_{21} = \bar{\rho}_{21} \cdot \exp[-i(\omega_1 t + \phi_1)] \quad (8)$$

$$\rho_{32} = \bar{\rho}_{32} \cdot \exp[-i(\omega_2 t + \phi_2)] \quad (9)$$

$$\rho_{31} = \bar{\rho}_{31} \cdot \exp\{-i[(\omega_1 + \omega_2)t + (\phi_1 + \phi_2)]\} \quad (10)$$

另外,我们定义原子能级与光频失谐量:

$$\Delta_{21} = (E_2^A - E_1^A)/\hbar - \omega_1 \quad (11)$$

$$\Delta_{32} = (E_3^A - E_2^A)/\hbar - \omega_2 \quad (12)$$

$$\Delta_{31} = (E_3^A - E_1^A)/\hbar - (\omega_1 + \omega_2) \quad (13)$$

将以上定义代入到方程(2)中,并引入

$$\Omega_1 = \mu_1 E_1 / \hbar \quad (14)$$

$$\Omega_2 = \mu_2 E_2 / \hbar \quad (15)$$

从而我们得到密度矩阵元方程

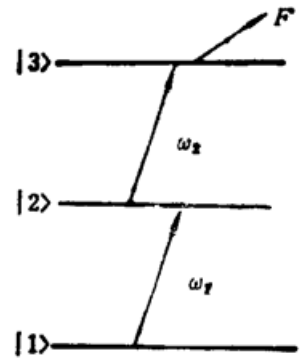


Fig. 1 Model of three-level atom

$$\partial \bar{\rho}_{21} / \partial t = i \Delta_{21} \bar{\rho}_{21} + \frac{1}{2} i [(\rho_{22} - \rho_{11}) \Omega_1 - \bar{\rho}_{31} \Omega_2^*] \quad (16)$$

$$\partial \bar{\rho}_{12} / \partial t = -i \Delta_{21} \bar{\rho}_{12} - \frac{1}{2} i [(\rho_{22} - \rho_{11}) \Omega_1^* - \bar{\rho}_{13} \Omega_2] \quad (17)$$

$$\partial \bar{\rho}_{32} / \partial t = i \Delta_{32} \bar{\rho}_{32} + \frac{1}{2} i [(\rho_{33} - \rho_{22}) \Omega_2 + \bar{\rho}_{31} \Omega_1^*] \quad (18)$$

$$\partial \bar{\rho}_{23} / \partial t = -i \Delta_{32} \bar{\rho}_{23} - \frac{1}{2} i [(\rho_{33} - \rho_{22}) \Omega_2^* + \bar{\rho}_{13} \Omega_1] \quad (19)$$

$$\partial \bar{\rho}_{31} / \partial t = i \Delta_{31} \bar{\rho}_{31} + \frac{1}{2} i [\bar{\rho}_{32} \Omega_1 - \bar{\rho}_{21} \Omega_2] \quad (20)$$

$$\partial \bar{\rho}_{13} / \partial t = -i \Delta_{31} \bar{\rho}_{13} - \frac{1}{2} i [\bar{\rho}_{23} \Omega_1^* - \bar{\rho}_{12} \Omega_2^*] \quad (21)$$

$$\partial \rho_{11} / \partial t = \frac{1}{2} i [\bar{\rho}_{12} \Omega_1 - \bar{\rho}_{21} \Omega_1^*] \quad (22)$$

$$\partial \rho_{22} / \partial t = \frac{1}{2} i [-\bar{\rho}_{12} \Omega_1 + \bar{\rho}_{21} \Omega_1^* + \bar{\rho}_{13} \Omega_2 - \bar{\rho}_{32} \Omega_2^*] \quad (23)$$

$$\partial \rho_{33} / \partial t = \frac{1}{2} i [-\bar{\rho}_{13} \Omega_2 + \bar{\rho}_{23} \Omega_2^*] \quad (24)$$

类似两能级原子的方法, 我们定义

$$u_{ij} = \bar{\rho}_{ij} + \bar{\rho}_{ji} \quad (25)$$

$$v_{ij} = -i(\bar{\rho}_{ij} - \bar{\rho}_{ji}) \quad (26)$$

将 u_{ij} 、 v_{ij} 代入方程(16)~(24)中, 并引入电离率 F 及自发弛豫的影响, 最后得到

$$\partial u_{21} / \partial t = -\Delta_{21} v_{21} + \frac{1}{2} v_{31} \Omega_2 - \frac{1}{2} A_{21} u_{21} \quad (27)$$

$$\partial v_{21} / \partial t = \Delta_{21} u_{21} - \frac{1}{2} u_{31} \Omega_2 + (\rho_{22} - \rho_{11}) \Omega_1 - \frac{1}{2} A_{21} v_{21} \quad (28)$$

$$\partial u_{32} / \partial t = -\Delta_{32} v_{32} - \frac{1}{2} v_{31} \Omega_1 - \frac{1}{2} (A_{32} + A_{21} + F) u_{32} \quad (29)$$

$$\partial v_{32} / \partial t = \Delta_{32} u_{32} + \frac{1}{2} u_{31} \Omega_1 + (\rho_{33} - \rho_{22}) \Omega_2 - \frac{1}{2} (A_{32} + A_{21} + F) v_{32} \quad (30)$$

$$\partial u_{31} / \partial t = -\Delta_{31} v_{31} - \frac{1}{2} v_{32} \Omega_1 + \frac{1}{2} v_{21} \Omega_2 - \frac{1}{2} (A_{32} + F) u_{31} \quad (31)$$

$$\partial v_{31} / \partial t = \Delta_{31} u_{31} + \frac{1}{2} u_{32} \Omega_1 - \frac{1}{2} u_{21} \Omega_2 - \frac{1}{2} (A_{32} + F) v_{31} \quad (32)$$

$$\partial \rho_{11} / \partial t = \frac{1}{2} v_{21} \Omega_1 + A_{21} \rho_{22} \quad (33)$$

$$\partial \rho_{22} / \partial t = -\frac{1}{2} v_{21} \Omega_1 + \frac{1}{2} v_{32} \Omega_2 - A_{21} \rho_{22} + A_{32} \rho_{33} \quad (34)$$

$$\partial \rho_{33} / \partial t = -\frac{1}{2} v_{32} \Omega_2 - (A_{32} + F) \rho_{33} \quad (35)$$

三、数值计算结果

以上我们推得了三能级原子在双脉冲场驱动下的级联 Bloch 方程组, 从它出发即可考查

原子的激发动力学行为。

一般脉冲激光器的输出波形多为 Gauss 型, 这里取定双脉冲均为 Gauss 型, 脉宽 10 ns。在此条件下, 我们考察脉冲强度、相对延迟、失谐、电离速率等因素对于原子激发及离子产额的影响关系。文中所有结论均是在计算了大量参数情况下得出, 限于篇幅, 这里只给出几组有代表性的参数曲线, 以使能证实我们的结论。

1. 脉冲强度的影响

对于三能级原子, 如何选取两束激光的强度, 使其达到最佳配合, 这是首先关注的问题。为使结果具有通用性, 我们引入脉冲面积 A 作为衡量光强度的标志:

$$\begin{aligned} A &= \frac{\mu}{\hbar} \int \left\{ \varepsilon \left[\exp \left[- (t-t_0)^2 / \left(\frac{T_p}{2} \right)^2 \right] \right] \right\} dt \\ &= \frac{\mu}{\hbar} \varepsilon \cdot \left(\frac{\sqrt{\pi}}{2} T_p \right) \end{aligned} \quad (36)$$

显然, 在脉冲形状 (Gauss 型)、脉冲时间 T_p 一定情况下, 脉冲面积与脉冲强度之间存在一一对应关系。

图 2 中, 我们给出了脉冲时间同步情况下不同面积配合时原子的激发行为。就原子在各

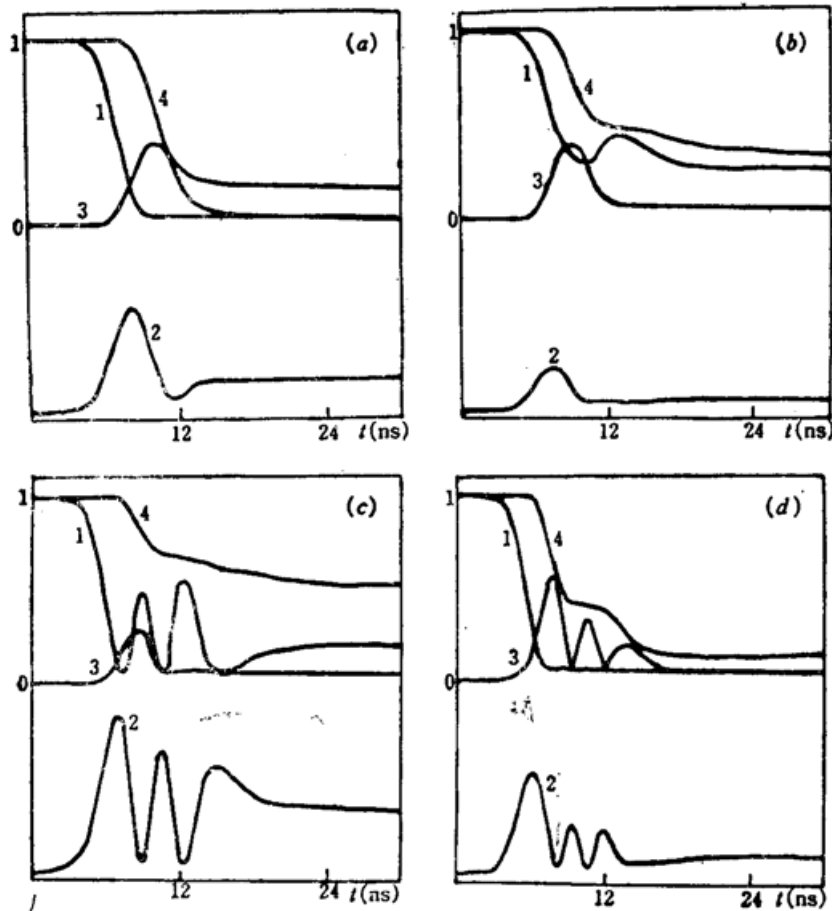


Fig. 2 Level populations and ion production as a function of time. Line 1, 2, 3 are populations on $|1\rangle$, $|2\rangle$, $|3\rangle$ respectively. Line 4 is the total population T on the three level

The ion production $\eta=1-T$, $F=0.5$; (a) $A_1=A_2=2.5\pi$; (b) $A_1=2.5\pi$, $A_2=5\pi$; (c) $A_1=5\pi$, $A_2=2.5\pi$; (d) $A_1=A_2=5\pi$.

能态上占有数而言,呈现出近周期行为,而且中间能级的周期比上、下能级快将近一倍。从对电离产额的影响看,相同面积情况下,脉冲面积的增大对电离率提高。但是,增加速度愈来愈慢,即呈现出饱和行为。另外,在双脉冲面积不相等情况下,第二束面积取较大值相对要有利得多,但它仍比两束光都取相同的较小值电离率要低。

以上关于离子产额的三个结论:(1)应设法取双脉冲面积相等;(2)如不能保证双脉冲面积相等,就应使第二脉冲面积大于第一脉冲;(3)电离率随脉冲面积增加呈现出饱和效应,对实验参数选取具有指导意义。让我们考虑一下实际情况。当脉冲在原子蒸气中传输时,能量不断被吸收降低,一般而言两束脉冲波长不相同,故面积降低速度不一样,这样即便开始面积相等,逐渐也会产生差别。这些结论告诉我们应怎样选取适当脉冲面积值,以保证获得相应能量利用率与离子产额。

2. 脉冲相对延迟的影响

双脉冲在时间上的顺序对激发过程影响甚大。很明显的一个激发条件是第二束光不应超前于第一束光。同前面一样,若考虑到实际存在的光传输效应,光与原子的相干作用将使速度大大降低,而降低速度不一样将造成两束光在时间上分开。为此,我们考虑不同延迟量的情况,如图 3,参数 Δt 均指第二束光相对第一束光的延迟。可以看到,延迟将使离子产额降低。对 $\Delta t=5$ ns, 双 10π 脉冲离子产额从 96% 降至 93%, 而双 2.5π 脉冲却从 90% 降至 72%。可见,大面积脉冲有利于减小因脉冲时间上的不同步而引起的电离率下降。

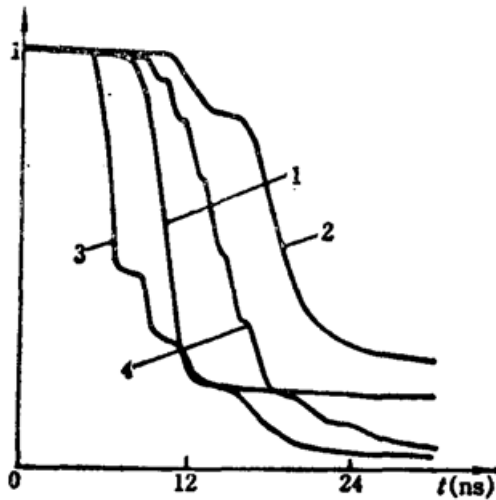


Fig. 3 The effect of pulses delay on the ion production. $F=0.5$

- (1) $A_1=A_2=2.5\pi$, $\Delta t=0$;
- (2) $A_1=A_2=2.5\pi$, $\Delta t=5$ ns;
- (3) $A_1=A_2=10\pi$, $\Delta t=0$;
- (4) $A_1=A_2=10\pi$, $\Delta t=5$ ns

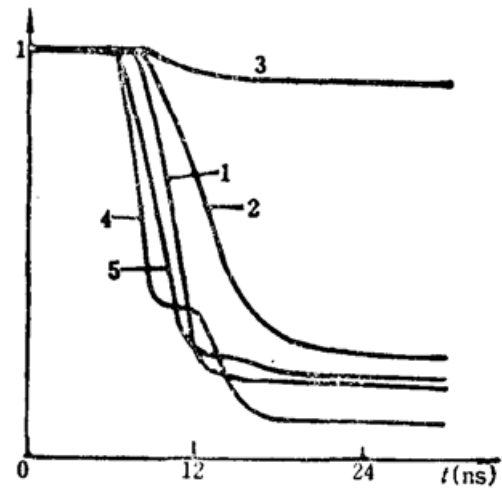


Fig. 4 The effect of frequency detuning on the ion production. $F=0.5$

- (1) $A_1=A_2=2.5\pi$, $\Delta_{21}=\Delta_{32}=0$;
- (2) $A_1=A_2=2.5\pi$, $\Delta_{21}=0.1$, $\Delta_{32}=-0.1$;
- (3) $A_1=A_2=2.5\pi$, $\Delta_{21}=\Delta_{32}=0.1$;
- (4) $A_1=A_2=5\pi$, $\Delta_{21}=\Delta_{32}=0$;
- (5) $A_1=A_2=5\pi$, $\Delta_{21}=0.1$, $\Delta_{32}=-0.1$

3. 频率失谐的影响

由于 Doppler 效应,原子与光场存在着一定失谐量,这对离子产额将有不容忽视的影响。假定两脉冲场均严格调谐到原子共振频率,失谐仅由 Doppler 频移引起。下面给出了两束光相向传输和同向传输情况下一定失谐粒子电离率的变化(图 4)。相向传输的光束感受到原子频移符号相反,总失谐 Δ_{31} 近似为零,最终对电离率影响较小,而同向光束由于失谐的累积而使

激发效果降低甚大。同样,相同失谐时大面积脉冲因失谐导致的电离率降低相对较小。

4. 不同电离速率以及非相干弛豫的影响

当第三能级上的电离速率变化时,原子在三能态间布居情况差别较大,电离率越高, $|3\rangle$ 态上占有数越少,中间态 $|2\rangle$ 上占有数越高,同时电离率增大。而电离率随电离速率的增加也呈现出饱和的趋势。我们发现,适宜的电离速率在 $\mu E_0/\hbar$ 的 $1/2$ 到 $1/4$ 之间,其中 E_0 为脉冲峰值处的电场强度。

非相干过程降低了高能态布居和粒子电离几率,但在短脉冲、强电离情况下,计算表明它的影响较小。

四、总 结

三能级原子与脉冲场的作用将表现出复杂的动力学行为。在实际工作中,为达到一定的光能利用率、离子产额等指标,就必须仔细挑选有关动力学及脉冲参量方能实现。密度矩阵分析的理论表明,为保证光强的有效利用,光脉冲面积值不宜取得过大;同时,为克服 Doppler 加宽和脉冲不同步引起的电离率下降,穿过样品的剩余光能不能太低;第一束脉冲应先于第二束脉冲进入样品区;两束光应相向行进。这些结论应在提出同位素分离指标时即予考虑,其具体限制可通过方程的数值求解给出。

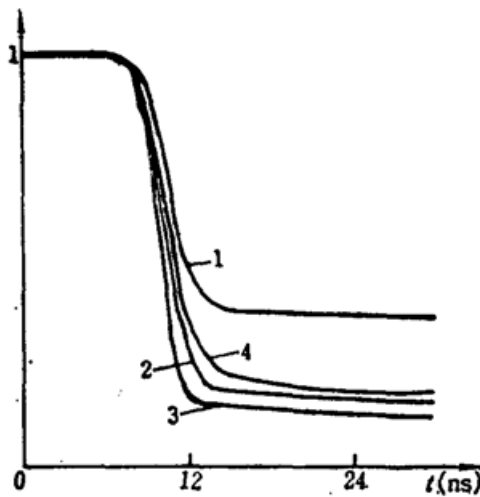


Fig. 5 The effect of ionization rate and incoherent decay on the ion production
 $A_1 = A_2 = 2.5\pi$, (1) $F = 0.25$; (2) $F = 0.5$; (3) $F = 1.0$; (4) $F = 0.5$, $A_{21} = A_{32} = 0.05$.

参 考 文 献

- 1 厚美英,张祖仁 *et al.*, 光学学报, **5**, 691(1985)
- 2 Bruce W. Shore, Michael A. Johnson, *J. Chem. Phys.*, **68**, 5631(1978)
- 3 Bruce W. Shore, Jay Ackerhalt, *Phys. Rev.*, **15**, 1640(1977)