

# 光脉冲在三能级介质中的传播和短脉冲的同位素选择性激发

匡一中 (四川大学物理系)      戴特力 (重庆师范学院物理系)

## 提 要

本文在时域内处理三能级量子系统(稀薄气体的分子振动能级)和红外激光场之间的相互作用。指出 Bloch-Maxwell 半经典方程在转动波近似下可化简成等价的实函数微分方程。本文研究了速率方程在长脉冲和短脉冲条件下的近似解,证明了相干短脉冲在等间隔三能级系统中传播的面积定理。作为实际应用,本文导出了分离同位素时分离系数的计算公式和用短脉冲的选择性激发同位素必须满足的条件以及激发速率的计算方法。

## 一、引 言

相干光脉冲在二能级介质中传播的问题已经讨论得较多<sup>[1~3]</sup>,并预言短脉冲可以提高分离系数。Herma 和 Marling 用短脉冲获得很高的浓缩系数<sup>[4,5]</sup>,例如用~2 ns 的短脉冲多光子离解 CF<sub>3</sub>H 的分离系数在 100 torr 的气压下可达 1.15×10<sup>4</sup>。四川大学的一些同志也得到过类似的实验结果<sup>[6]</sup>。这些多光子离解的实验结果一般不能用二能级介质模型的短脉冲激发理论来解释,因为多光子离解的选择性主要决定于头几个分离能级与光脉冲的相互作用。所以有必要把相干光脉冲的传播理论推广到三能级系统。

## 二、三能级系统的 Bloch-Maxwell 方程组

设介质如图 1 所示,其波函数为  $|\psi\rangle = C_1(t)|1\rangle + C_2(t)|2\rangle + C_3(t)|3\rangle$ 。由于从  $|3\rangle$  “漏逸”到更高能级的速率相对地很小<sup>[7]</sup>,可以认为  $|C_1(t)|^2 + |C_2(t)|^2 + |C_3(t)|^2 = 1$ 。 $|1\rangle$ ,  $|2\rangle$  和  $|3\rangle$  为分子激发振动模的能态波函数,如

$$|3\rangle = \left(\frac{M\omega}{\hbar\sqrt{\pi}} \cdot \frac{1}{24}\right)^{1/4} H_3(\xi) \exp\left(-\frac{1}{2}\xi^2\right), \quad (1)$$

式中  $x$  为振动位移,  $M$  为简正振动的折合质量,  $\omega$  为振动模基频以及  $H_n(\xi)$  为厄密多项式,  $\xi = \left(\frac{M\omega}{\hbar}\right)^{1/2} x$ 。

在介质中沿  $z$  轴传播的光脉冲表示为

$$E = \frac{1}{2} \epsilon(z, t) \exp\{-i[\Omega t + \phi(z, t) - kz]\} + \text{c.c.} \quad (2)$$

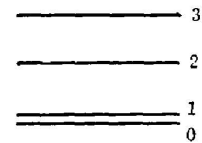


图 1 分子振动的 1, 2, 3 三个能级构成一个量子系统  
Fig. 1 A quantum system formed by molecular vibrational levels 1, 2, 3

$\Omega$  为圆频率,  $\lambda = 2\pi/k$  为线偏振波的波长。振幅  $s(z, t)$  和位相  $\phi(z, t)$  都是慢变包络, 即

$$\begin{aligned} \partial s(z, t) / \Omega \partial t \ll s(z, t), \quad \partial s(z, t) / k \partial z \ll s(z, t), \\ \partial \phi(z, t) / \Omega \partial t \ll \phi(z, t), \quad \partial \phi(z, t) / k \partial z \ll \phi(z, t). \end{aligned}$$

波函数  $|\psi\rangle$  满足薛定谔方程  $i\hbar \partial |\psi\rangle / \partial t = (H_A + V) |\psi\rangle$ , 其中  $H_A$  为无外场时系统的哈密顿量,  $V = -exE$  是系统与电磁场的相互作用能量。相应的密度矩阵元所满足的 Bloch 方程为

$$\left. \begin{aligned} \dot{\rho}_{11} &= -\gamma_1 \rho_{11} + i\hbar^{-1} k_{21} p E (\rho_{21} - \rho_{12}), \\ \dot{\rho}_{22} &= -\gamma_2 \rho_{22} + i\hbar^{-1} k_{21} p E (\rho_{12} - \rho_{21}) + i\hbar^{-1} k_{32} p E (\rho_{32} - \rho_{23}), \\ \dot{\rho}_{33} &= -\gamma_3 \rho_{33} + i\hbar^{-1} k_{32} p E (\rho_{23} - \rho_{32}), \\ \dot{\rho}_{12} &= (-\gamma + i\omega_{21}) \rho_{12} + i\hbar^{-1} k_{21} p E (\rho_{22} - \rho_{11}) - i\hbar^{-1} k_{32} p E \rho_{13}, \\ \dot{\rho}_{32} &= (-\gamma + i\omega_{32}) \rho_{32} + i\hbar^{-1} k_{32} p E (\rho_{22} - \rho_{33}) - i\hbar^{-1} k_{21} p E \rho_{31}, \\ \dot{\rho}_{13} &= (-\gamma + i\omega_{31}) \rho_{13} + i\hbar^{-1} k_{21} p E \rho_{23} - i\hbar^{-1} k_{32} p E \rho_{12}, \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

其中

$$p = (e^2 \hbar / M \omega)^{1/2}, \quad k_{mn} = (\pi 2^{mn} m! n!)^{-1/4} \int_{-\infty}^{\infty} \xi H_m(\xi) \cdot H_n(\xi) \exp(-\xi^2) d\xi, \quad (4)$$

$\omega_{ij} = \omega_i - \omega_j$ ,  $\gamma_1, \gamma_2, \gamma_3$  是引入的唯象衰减系数,  $\gamma, \gamma'$  是相干矩阵元  $\rho_{12}, \rho_{32}, \rho_{13}$  的位相衰减系数。能级间电偶矩  $p_{mn}$  可表示为  $p_{mn} = \langle m | ex | n \rangle = k_{mn} p$ 。

电场  $E$  在介质中感生的宏观极化矢量  $P(z, t)$  以及与之相对应的复极化矢量  $\mathcal{P}(z, t)$ , 按定义可表述为

$$P(z, t) = N \langle \psi | ex | \psi \rangle = \text{Tr}(N p \rho) = N [(p_{32} \rho_{32} + p_{21} \rho_{21}) + \text{c.c.}], \quad (5)$$

$$\mathcal{P}(z, t) = 2N (p_{32} \rho_{32} + p_{21} \rho_{21}) \exp\{i[\Omega t + \phi(z, t) - kz]\}. \quad (6)$$

$\mathcal{P}(z, t)$  也受慢变包络条件限制。由于我们研究的气体没有被电场击穿, 所以波传播方程具有如下的形式:

$$\left. \begin{aligned} (\partial_t \partial t + \partial / C \partial z) s(z, t) &= -\Omega \text{Im} \mathcal{P}(z, t) / 2\epsilon_0, \\ s(z, t) (\partial_t \partial t + \partial / C \partial z) \phi(z, t) &= -\Omega \text{Re} \mathcal{P}(z, t) / 2\epsilon_0 C. \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

式(3)和式(7)组成 Bloch-Maxwell 方程组。

### 三、Bloch-Maxwell 方程组的简化 以及长脉冲情况下的稳定解

求 Bloch-Maxwell 方程组的精确解既不可能也没有必要, 而只能根据各种特定条件求近似解。如果把变量写成  $\rho_{ij} = \tilde{\rho}_{ij} \exp[\pm i(\Omega t + \phi - kz)]$ , 其中  $i \neq j$ , 当  $i > j$ , 取负, 当  $i < j$  取正。利用  $u_{ij} = \tilde{\rho}_{ij} + \tilde{\rho}_{ji}$ ,  $iv_{ij} = \tilde{\rho}_{ij} - \tilde{\rho}_{ji}$ ,  $W_{ij} = \rho_{ii} - \rho_{jj}$ ,  $M_{ij} = \rho_{ij} + \rho_{ji}$  等变换式把复数的实部和虚部分开, 便可得到实变函数微分方程。

既然讨论的是相干波, 那么就应在共振和离共振的条件下求解, 能级与光频的失谐度如图 2 所示。其中  $\Delta = [\Omega + \dot{\phi}_t(z, t)] - (\omega_{310} + \delta)$ ,  $\Delta' = [\Omega + \dot{\phi}_t(z, t)] + (\omega_{320} + \delta)$ 。图 3 和图 4 表示双光子共振和离共振的能级关系。在慢变包络近似下,  $\dot{\phi}_t(z, t) = 0$ ,  $\Delta' = -\Delta$  代表双光子共振,  $\Delta' = \Delta$  代表双光子离共振。

如果令  $k = 2p/\hbar$ ,  $2\gamma_{ij} = \gamma_i \pm \gamma_j$ , 便可得到双光子共振方程组

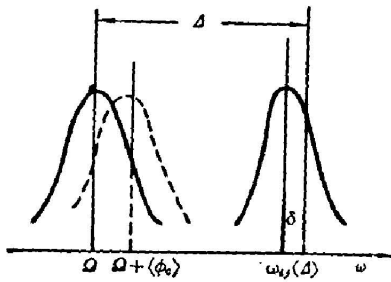


图 2 失谐度的含义

$$\langle \phi \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} \epsilon^2 \phi dt / \int_{-\infty}^{\infty} \epsilon^2 dt$$

Fig. 2 Implication of off-resonance degree

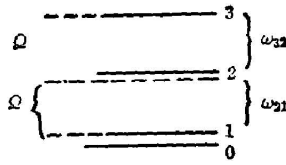


图 3 双光子共振情况  $\Delta' = -\Delta$

Fig. 3 Double-photon resonance  $\Delta' = -\Delta$

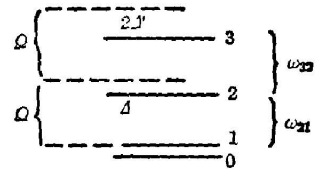


图 4 离共振情况  $\Delta' = \Delta$

Fig. 4 Off-resonance  $\Delta' = \Delta$

$$\left. \begin{aligned} \dot{u}_{12} &= -\gamma u_{12} + \Delta v_{12} + (k_{32}/4) k \epsilon(z, t) v_{13}, & \dot{u}_{32} &= -\gamma u_{32} + \Delta v_{32} - (k_{21}/4) k \epsilon(z, t) v_{13}, \\ \dot{u}_{13} &= -\gamma' u_{13} + (k_{21}/4) k \epsilon(z, t) v_{32} + (k_{32}/4) k \epsilon(z, t) v_{13}, \\ \dot{v}_{12} &= -\gamma v_{12} - \Delta u_{12} + (k_{21}/2) k \epsilon(z, t) W_{21} - (k_{21}/4) k \epsilon(z, t) u_{13}, \\ \dot{v}_{32} &= -\gamma v_{32} - \Delta u_{32} + (k_{32}/2) k \epsilon(z, t) W_{23} - (k_{21}/4) k \epsilon(z, t) u_{13}, \\ \dot{v}_{13} &= -\gamma' v_{13} + (k_{21}/4) k \epsilon(z, t) u_{32} - (k_{32}/4) k \epsilon(z, t) u_{12}, \\ \dot{W}_{21} &= -\gamma_{21}^- M_{21} - \gamma_{21}^+ W_{21} - (k_{21}/2) k \epsilon(z, t) v_{12} - (k_{32}/4) k \epsilon(z, t) v_{32}, \\ \dot{W}_{23} &= -\gamma_{23}^- M_{23} - \gamma_{23}^+ W_{23} - (k_{21}/4) k \epsilon(z, t) v_{12} - (k_{32}/2) k \epsilon(z, t) v_{32}, \\ \dot{M}_{21} &= -\gamma_{21}^+ M_{21} - \gamma_{21}^- W_{21} - (k_{32}/4) k \epsilon(z, t) v_{32}, \\ \dot{M}_{23} &= -\gamma_{23}^+ M_{23} - \gamma_{23}^- W_{23} - (k_{21}/4) \epsilon k(z, t) v_{21} \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

在双光子离共振情况下,前六个方程为

$$\left. \begin{aligned} \dot{u}_{12} &= -\gamma u_{12} + \Delta' v_{12} + (k_{32}/4) k \epsilon(z, t) v_{13}, \\ \dot{u}_{32} &= -\gamma u_{32} - \Delta' v_{32} - (k_{21}/4) k \epsilon(z, t) v_{13}, \\ \dot{u}_{13} &= -\gamma' u_{13} - 2\Delta' v_{13} + (k_{21}/4) k \epsilon(z, t) v_{32} + (k_{32}/4) k \epsilon(z, t) v_{12}, \\ \dot{v}_{12} &= -\gamma v_{12} - \Delta' u_{12} + (k_{21}/2) k \epsilon(z, t) W_{21} - (k_{32}/4) k \epsilon(z, t) u_{13}, \\ \dot{v}_{32} &= -\gamma v_{32} + \Delta' u_{32} + (k_{32}/2) k \epsilon(z, t) W_{23} - (k_{21}/4) k \epsilon(z, t) u_{13}, \\ \dot{v}_{13} &= -\gamma' v_{13} + 2\Delta' u_{13} + (k_{21}/4) k \epsilon(z, t) u_{32} - (k_{32}/4) k \epsilon(z, t) u_{12}, \end{aligned} \right\} \quad (9)$$

其余方程相同。考虑到线宽, (7)式有如下形式:

$$\left. \begin{aligned} \left( \frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{C} \frac{\partial}{\partial t} \right) k \epsilon(z, t) &= -\frac{\hbar \Omega N k^2}{4 \epsilon_0 C} \int_{-\infty}^{\infty} g(\delta) (k_{32} v_{32} - k_{21} v_{21}) d\delta, \\ k \epsilon(z, t) \left( \frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{C} \frac{\partial}{\partial t} \right) \phi(z, t) &= -\frac{\hbar \Omega N k^2}{4 \epsilon_0 C} \int_{-\infty}^{\infty} g(\delta) (k_{32} u_{32} - k_{21} u_{21}) d\delta. \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

在解方程时,考虑到按波耳兹曼分布的初始布居数分配以及介质的边界条件,并假定脉冲通过后布居数差  $NW_{21}$  和  $NW_{23}$  向热平衡值弛豫,常数项要作适当修改等,可以用特征线法解方程组,并由电子计算机完成计算。图 5 表明长脉冲的传播情况。可以看出脉冲随吸收长度衰减的规律。在长脉冲情况下,脉冲宽度  $\tau_p \gg 1/\gamma_1 \gg 1/\gamma$ , 这样便可得到共振与离共振时的粒子数反转密度  $NW_{31}$ 。可以说明长脉冲用来分离同位素(一种与激光共振,另一种以同位素位移作失谐度处于离共振)时,激发速率随脉冲强度的增大而迅速减少。

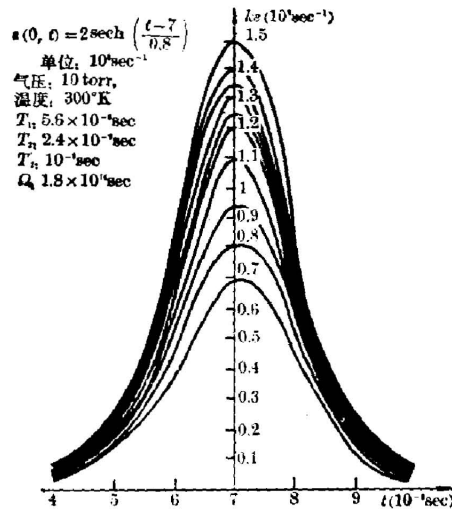


图5 长脉冲在三能级吸收介质中的传播

(1, 2, 3...代表脉冲传播了1个, 2个, 3个...吸收长度的距离之后的脉冲形状)

Fig. 5 Propagation of long pulse in three-level absorbing medium

#### 四、双光子共振时速率方程的近似解

在实际工作中, 脉冲持续时间一般小于能量弛豫时间  $T_1$ , 而大于位相弛豫时间  $T_2$ , 即  $T_2 \ll \tau_p \ll T_1 (\gamma \gg 1/\tau_p \gg \gamma_0)$ 。相对来说, 能级展宽或能量弛豫速率  $\gamma_0$  可以忽略, 讨论双光子共振时相于脉冲的失谐度  $|\Delta| = |\Delta'| = [\Delta + (-\Delta')] = \omega_{32} - \omega_{21}$  也可以忽略, 于是得到方程

$$\begin{cases}
 \dot{u}_{12} = -\gamma u_{12} + (k_{32}/4) k_s(z, t) v_{13}, & \dot{u}_{32} = -\gamma v_{32} - (k_{21}/4) k_s(z, t) v_{13}, \\
 \dot{v}_{13} = -\gamma' v_{13} + (k_{21}/4) k_s(z, t) v_{32} + (k_{33}/4) k_s(z, t) v_{13}, \\
 \dot{v}_{12} = -\gamma v_{12} + (k_{32}/2) k_s(z, t) W_{21} - (k_{32}/4) k_s(z, t) u_{13}, \\
 \dot{v}_{32} = -\gamma v_{32} + (k_{32}/2) k_s(z, t) W_{23} - (k_{21}/4) k_s(z, t) u_{13}, \\
 \dot{v}_{13} = -\gamma' v_{13} + (k_{21}/4) k_s(z, t) u_{32} - (k_{32}/4) k_s(z, t) u_{12}, \\
 \dot{W}_{21} = -(k_{21}/2) k_s(z, t) v_{12} - (k_{32}/4) k_s(z, t) v_{32}, \\
 \dot{W}_{23} = -(k_{31}/2) k_s(z, t) v_{13} - (k_{32}/4) k_s(z, t) v_{32}.
 \end{cases} \quad (11)$$

在弱场强衰减  $[k_s(z, t) \ll \gamma]$ , 强场弱衰减  $[k_s(z, t) \gg \gamma]$  和电场与衰减速率  $\gamma$  同量级情况下  $[\gamma^2 \approx (k_{32}^2 + k_{21}^2) k_s(z, t) / 16]$  得到了积分强度  $\mathcal{I} = \int_{-\infty}^t I(z, t') dt'$ , (其中  $I(z, t') = k_s(z, t') / 16$ ) 的显式表达。这些由微分方程积分的结果表示了物质对光吸收的能力随光强变化的规律。弱场下与 Beer 定律相符合

$$\frac{d\mathcal{I}(z, \tau)}{dz} = -\frac{\hbar\Omega N k^2}{2\varepsilon_0 C} (D_1 + D_2) \mathcal{I}(z, \tau), \quad (12)$$

其中  $\tau = t - (z/C)$ ,  $D_1, D_2$  是系数。场强增大后指数项消失, 达到饱和, 其“线性吸收系数”  $d\mathcal{I}(z, \tau)/dz = -(\hbar\Omega N k^2 / 2\varepsilon_0 C) [D_1/(\xi - \zeta) - D_2/(\xi + \zeta)]$  与强场有关。第三种过渡情况最重要, 得到

$$I(z, t) = \frac{a_1}{a_2} I(0, \tau) \exp[a_1(\xi - \zeta)z] \times \frac{\exp[(\xi - \zeta) \int_{-\infty}^{\tau} I(0, \tau') d\tau']}{1 + \exp[a_1(\xi - \zeta)z] \left\{ \left[ a_1 \exp(\xi - \zeta) \int_{-\infty}^{\tau} I(0, \tau') d\tau' \right] / a_2 - 1 \right\}}, \quad (13)$$

其中  $a_1 = -\frac{\hbar\Omega N k^2}{2\varepsilon_0 C} \left( \frac{D_1}{\xi - \zeta} + \frac{D_2}{\xi + \zeta} \right)$ ,  $a_2 = -\frac{\hbar\Omega N k^2}{2\varepsilon_0 C} \cdot \frac{D_1}{\xi - \zeta}$ 。图 6 是这个公式通过电子计算机计算所得的曲线。

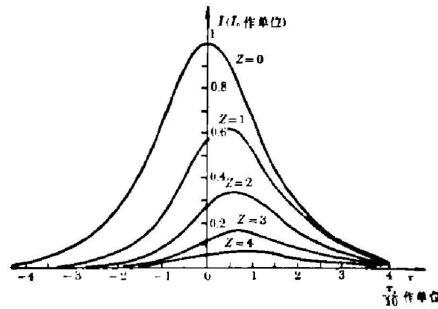


图 6 在速率方程近似下, 脉冲在三能级介质中强度随传播距离  $z$  的变化(以吸收长度为单位)

Fig. 6 Dependence of pulse intensity on propagation length  $z$  in three-level medium under rate equation approximation

## 五、短脉冲情况下的解

短脉冲与物质相互作用有很多特点, 当  $\tau_p \ll T_2 \ll T_1 (1/\tau_p \gg \gamma \gg \gamma_0)$  时, 在持续时间内, 衰减的影响, 能级的展宽均可忽略, 相当于宽带辐射与物质相互作用。

### 1. 双光子共振方程

持续时间 ( $0 \leq t \leq \tau_p$ ) 内双光子共振方程组为 (8) 式中等号右边与  $\gamma$ ,  $\gamma'$ ,  $\gamma_0'$  有关的项均为零的各方程式。当脉冲通过后方程组就简化为

$$\left. \begin{aligned} \dot{u}_{12} = \Delta v_{12}, \quad \dot{u}_{32} = \Delta v_{32}, \quad \dot{v}_{12} = -\Delta u_{12}, \quad \dot{v}_{32} = -\Delta u_{32}, \\ \dot{u}_{13} = 0, \quad \dot{v}_{13} = 0, \quad \dot{W}_{21} = 0, \quad \dot{W}_{23} = 0. \end{aligned} \right\} \quad (14)$$

### 2. 离共振方程组

持续时间 ( $0 \leq t \leq \tau_p$ ) 内的离共振方程组为 (9) 式中在等号右边与  $\gamma$ ,  $\gamma'$  有关的项均为零的各方程式

$$\left. \begin{aligned} \dot{u}_{12} = \Delta' v_{12} + (k_{32}/4) k \varepsilon(z, t) v_{13}, \quad \dot{u}_{32} = -\Delta' v_{32} - (k_{21}/4) k \varepsilon(z, t) v_{13}, \\ \dot{v}_{12} = -\Delta' u_{12} + (k_{12}/2) k \varepsilon(z, t) W_{21} - (k_{32}/4) k \varepsilon(z, t) u_{13}, \\ \dot{v}_{32} = \Delta' u_{32} + (k_{32}/2) k \varepsilon(z, t) W_{23} - (k_{21}/4) k \varepsilon(z, t) u_{13}, \\ \dot{u}_{13} = -2\Delta' v_{13} + (k_{21}/4) k \varepsilon(z, t) v_{32} + (k_{32}/4) k \varepsilon(z, t) v_{12}, \\ \dot{v}_{13} = 2\Delta' u_{13} + (k_{21}/4) k \varepsilon(z, t) u_{32} - (k_{32}/4) k \varepsilon(z, t) u_{12}, \end{aligned} \right\} \quad (15)$$

其余方程相同。

按习惯, 定义  $\theta(z, t) = \int_{-\infty}^t k_s(z, t') dt'$  为脉冲面积变量, 再令

$$\eta = \frac{4A}{k_s(z, t)} \approx \frac{4A}{k_s}, \quad \eta' = \frac{4A}{k_s(z, t)} \approx \frac{4A}{k_s}, \quad (16)$$

其中  $\bar{\varepsilon} = \int_{-\infty}^{\infty} \varepsilon(z, t) dt / \tau_p$ ,  $\eta$  表示失谐度与场振幅之比。

根据(10)式求解, 得出了四种情况下  $k_{21}v_{21} - k_{32}v_{32}$  与脉冲面积  $\theta$  的关系:

(1) 共振脉冲内:

$$k_{21}v_{21} - k_{32}v_{32} = \frac{W_-(0)}{\sqrt{4k_+^2 + \eta^2}} \sin(\theta \sqrt{4k_+^2 + \eta^2}). \quad (17)$$

(2) 在频率中心处:

$$k_{21}v_{21} - k_{32}v_{32} = \frac{W_-(0)}{2k_+} \sin(2k_+\theta). \quad (18)$$

(3)  $t > \tau_p$ , 共振后:

$$\begin{aligned} k_{21}v_{21} - k_{32}v_{32} = & \frac{W_-(0)}{\sqrt{4k_+^2 + \eta^2}} \sin(\theta_{\tau_p} \sqrt{4k_+^2 + \eta^2}) \cos[\eta(\theta - \theta_{\tau_p})] \\ & + \frac{W_-(0)\eta}{4k_+^2 + \eta^2} [1 - \cos(\theta_{\tau_p} \sqrt{4k_+^2 + \eta^2})] \sin[\eta(\theta - \theta_{\tau_p})]. \end{aligned} \quad (19)$$

(4) 在离共振脉冲内:

$$k_{21}v_{21} - k_{32}v_{32} = \frac{W_-(0)}{\sqrt{4k_+^2 + \eta^2}} \sin(\theta \sqrt{4k_+^2 + \eta^2}). \quad (20)$$

以上各式中  $W_-(0) = 2[W_{21}(0)k_{21}^2 - W_{33}(0)k_{33}^2]$  由初始值决定,  $k_+ = k_{21}^2 + k_{33}^2$ 。从方程中解出  $W_{21}$  和  $W_{33}$  后, 还可得到

$$W_{31} = - \int_0^\theta (k_{21}v_{21} - k_{32}v_{32}) d\theta + W_{31}(0). \quad (21)$$

从(10)式和(17)~(20)式还可证明三能级系统的脉冲传播的面积定理

$$dA/dz = a \sin A, \quad (22)$$

其中,  $a = (\hbar\Omega N k^2 / 16\varepsilon_0 C) W_-(0) \pi g(0)$ ,  $A = 2k_+ \left(\frac{1}{4}\right) \int_{-\infty}^{\infty} k_s(z, t') dt$ 。这是二能级系统中面积定理的推广。

## 六、短脉冲激发速率的计算公式

利用(10)式与(18)式(忽略线型), 可以得到在  $\tau_p \ll T_1$  条件下的表达式:

$$dk_s(z, t)/dz = (\hbar\Omega N k^2 / 4\varepsilon_0 C) (k_{32}v_{32} - k_{21}v_{21}). \quad (23)$$

将它代入电磁波能量随路程损耗的表达式, 并利用式(21)的时间微分便可得到

$$\partial \mathcal{H} / \partial z = 2\hbar\Omega N [W_{31}(\tau_p) - W_{31}(0)], \quad (24)$$

其中  $N[W_{31}(\tau_p) - W_{31}(0)]$  是单个脉冲使单位体积分子激发到第三振动能级的数目, 亦即单脉冲激发速率

$$e = - \frac{\varepsilon_0 C}{\hbar\Omega} \int_{-\infty}^{\infty} \varepsilon(z, t) \frac{\partial \varepsilon(z, t)}{\partial z} dt. \quad (25)$$

## 七、短脉冲同位素选择激发及分离系数计算

激光分离同位素是一个双组分系综与辐射场相互作用问题, 与辐射场共振的同位素将被选择激发, 并可采用某种适当的方法将其分离, 而另一种同位素不被激发仍残留在样品中, 同位素分离的宏观效果的浓缩系数和分离系数为

$$\mathcal{N}\left(\frac{A}{B}\right) = \frac{R(A/B)}{R_0(A/B)} = \frac{\text{照射后同位素比}}{\text{照射前同位素比}}, \quad S\left(\frac{A}{B}\right) = \frac{dn_A/A}{dn_B/A} = \frac{A \text{ 的激发分数}}{B \text{ 的激发分数}}, \quad (26)$$

式中  $R(A/B)$  表示  $A$  的克分子数与  $B$  的克分子数之比。激发分数可以用单个脉冲作用后激发分子数与原有分子数之比来度量, 即

$$\frac{dn}{n} = e_r = \left| \frac{W_{31}(\tau_p) - W_{31}(0)}{W_{31}(0)} \right|. \quad (27)$$

利用(21)、(27)两式分别计算两种同位素  $A$  和  $B$  的激发分数。对于共振的同位素, 忽略小的失谐度  $\Delta$ , 其激发分数为

$$e_r = \frac{W_-(0)}{4k_+^2 W_{31}(0)} [\cos(2k_+ \theta_{\tau_p}) - 1]. \quad (28)$$

对于离共振的同位素

$$e'_r = \frac{W'_-(0)}{(4k_+^2 + \eta'^2) W'_{31}(0)} [\cos(\theta_{\tau_p} \sqrt{4k_+^2 + \eta'^2}) - 1], \quad (29)$$

从而得到分离系数的计算公式

$$S\left(\frac{A}{B}\right) = \frac{W_-(0) [\cos(2k_+ \theta_{\tau_p}) - 1] / 4k_+^2 W_{31}(0)}{W'_-(0) [\cos(\theta_{\tau_p} \sqrt{4k_+^2 + \eta'^2}) - 1] / (4k_+^2 + \eta'^2) W'_{31}(0)}. \quad (30)$$

从上式可以明显看出, 为了获得最大的分离系数, 要求

$$\cos(2k_+ \theta_{\tau_p}) = -1, \quad \cos(\theta_{\tau_p} \sqrt{4k_+^2 + \eta'^2}) = 1,$$

即只有当脉冲面积  $\theta_{\tau_p}$  同时满足以下两个条件

$$\left. \begin{aligned} 2k_+ \theta_{\tau_p} &= (2n+1)\pi, & (n=0, \pm 1, \pm 2, \dots) \\ \theta_{\tau_p} \sqrt{4k_+^2 + \eta'^2} &= 2n\pi, & (n=0, \pm 1, \pm 2, \dots) \end{aligned} \right\} \quad (31)$$

才有可能。为了进一步看清这几个条件的含义, 假设脉冲形状为矩形, 高  $k\bar{\varepsilon}$ , 宽  $\tau_p$  均为常数。此时完成  $\theta_{\tau_p}$  的积分, 便有

$$\tau_p k_+ k\bar{\varepsilon} / 2 = (2n+1)\pi \quad (n=0, \pm 1, \pm 2, \dots), \quad (32)$$

$$(\tau_p / 4) \sqrt{4k_+^2 k_+^2 \bar{\varepsilon}^2 + (4d_s)^2} = 2n\pi \quad (n=0, \pm 1, \pm 2, \dots), \quad (33)$$

其中  $d_s$  系同位素位移。将(32)、(33)两式平方相减可得

$$d_s \tau_p = \pi \sqrt{4n+3}, \quad k\bar{\varepsilon} = \frac{2(2n+1)}{\sqrt{4n+3}} \cdot \frac{d_s}{k_+}, \quad (34)$$

(34)式是获得最大分离系数所需满足的激光脉宽条件和能量条件。

利用横向弛豫时间的表达式<sup>[8]</sup>, 可以把短脉冲条件  $\tau_p \ll T_2$  表示为

$$\tau_p \ll T_2 = \left[ \frac{1}{T_1} + \frac{32\sqrt{\pi} \sigma^2 P_0}{(MKT)^{1/2}} \right]^{-1}, \quad (35)$$

其中  $P_0$  为样品气压,  $\sigma$  是分子直径,  $M$  是分子质量,  $K$  为波耳兹曼常数,  $T$  为绝对温度, 当脉宽由(34)式选定后, 则由(35)式就确定了高分离系数所能允许的工作气压的上限。

以上导出的方程(31)和(35)两式,再加上双光子共振条件

$$\Delta_r = -\Delta_r \ll k\bar{e}, \quad (36)$$

是一组使分离系数达到最大值的条件。它对于激光分离同位素的重要参数为激光频率、脉宽及形状、能量密度、工作气压等的最佳选择提供了理论的依据。当然,这些结果是在等能级间隔条件下得到的。实际上,多原子分子由于非谐振子势的作用,能级都不是等间隔的,所以,采用单频场不能使双光子共振条件(36)式得到满足。但如果用可调谐的双频场作同位素选择激发,使一个激光频率调谐到 $\omega_{21}$ ,另一个激光频率调谐到 $\omega_{32}$ ,这样的双频场就可以使同位素分子从 $E_1$ 能态激发到第二振动能级,这种逐级激发过程显然满足双光子共振条件(36)式。假定选用的双频场是弱场,我们可以忽略由同位素分子从 $E_1$ 能态直接将双光子激发至第三振动能级的这种非线性过程。那末,由上面导出的获得最大分离系数的条件(31)、(35)和(36)式对于多频场多光子离解分离同位素的情况更具有实际意义的,比如说,根据(36)式选择可调谐的弱的双频场实现同位素分子的选择激发(逐级激发),然后再选择一个红外场或紫外场作分子的离解场,这种多频场光离解分离同位素的方法与单频场多光子离解方法比较,前者具有更多的优点,不但选择性高、产额高、能量利用率高,且可适用于同位素位移小的重同位素的分离。

本文有关数值计算语言都经四川大学计算机科学系张陆楷老师检查修改,特表示感谢。

#### 参 考 文 献

- [1] A. Issevergi *et al.*; *Phys. Rev.*, 1969, **185**, No. 7 (10 Sep), 517.
- [2] J. C. Diels *et al.*; *Phys. Rev.*, 1973, **8**, No. 2 (Aug), 1084.
- [3] J. C. Diels; *Phys. Rev.*, 1976, **13**, No. 4 (Apr), 1520.
- [4] I. P. Herman *et al.*; *Chem. Phys. Lett.*, 1979, **64**, No. 1 (15 Jun), 75.
- [5] J. B. Marling; *J. Chem. Phys.*, 1980, **72**, No. 10 (15 May), 5603.
- [6] 私人通讯
- [7] Yitzhak Rabin *et al.*; *Phys. Rev. (A)*, 1979, **19**, No. 4 (Apr), 1697.
- [8] J. M. Stone; *«Radiation and Optics»*, (McGraw-Hill, New York, 1963).



## Propagation of light pulses through a three-level medium and selective optical excitation for isotope separation using a short laser pulse

KUAN YIZHONG

(Department of Physics, Sichuan University, Chengdu)

DAI TELI

(Department of Physics, Chongqing Teachers' College)

(Received 21 September 1981, revised 7 June 1982)

### Abstract

By the time-domain method this article deals with the interaction between a three-level quantum system (vibrational energy level of the molecule of a dilute gas) and the infrared electric field of CO<sub>2</sub> laser. The semiclassical Bloch-Maxwell's equations have been changed into the equivalent differential equations of real function using the rotating wave approximation. This article studies their solutions of the rate-equations approach under the condition of long pulse and short pulse. The area theorem of coherent short pulses which is propagating through a three-level system of equal spacing is obtained. The article contains the derivations of the formula of separate coefficient, the conditions of the selective optical excitation and the excited rate for isotope separation as an actual application.

### 第一届全国固体光学性质学术讨论会

由中国物理学会主办的全国固体光学性质学术讨论会于1982年11月30日至12月3日在江苏省南京市召开。来自全国11个省市的12所高校和11所科研单位的80名代表参加了会议。

会议在学部委员、江苏省物理学会理事长、南京大学冯端教授主持下开幕，中国科学院技术物理研究所汤定元研究员致开幕词。会议共宣读论文67篇，其中5篇为大会报告。上海交通大学方俊鑫教授在大会上作题为“固体光散射和固体元激发”的报告，概述了当今固体光散射现象的研究动向及其理论探索工作的发展情况。余下的论文分两个小组进行交流。其内容涉及到固体的各种光学性质(包括光散射现象、吸收和反射、双折射、发光和荧光、色散等光谱性质、磁光效应以及非线性光学现象等)及其机理的探索等。研究对象有：各种半导体、非晶态物质和玻璃、晶体、发光材料和磁性材料等。会议于1982年12月3日下午结束。

从这次会议宣读的论文表明，在固体光学性质这一领域中，我国的研究工作尚处于初创阶段，虽然已经有了一个良好的开端，但无论是工作的深度和广度与国外先进水平相比，都有一定差距。与会代表一致认为，开展这一领域的专题学术交流，以达到相互促进与提高很有必要。会议决定委托中国科学院半导体研究所筹备1984年第二届固体光学性质会议。

(黎 风)