

# 两步共振光电离中的动力学过程分析

蒋孟衡 林福成

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

## 提 要

利用密度矩阵方程和麦克斯韦方程耦合, 探讨了光学厚样品中两步共振光电离的物理机制, 利用数值求解分析了有关原子及脉冲参量对分离效率的影响, 给出了优化实验方案的一些限制条件, 并对多脉冲相干类孤立子(Simulton)现象进行了初步讨论。

关键词: 两步共振激发光电离, 光学厚, 平均电离率, 脉冲同步传输。

## 一、引 言

自 1975 年 Hurst 等人提出共振电离谱概念<sup>[1]</sup>, 由于其具有极高的探测灵敏度和选择性以及极高的时间和空间分辨率, 使得它在基础研究和多种实际领域得到广泛应用, 尤其是近年来相继开展、具有巨大经济价值的激光同位素分离技术等等<sup>[2,8]</sup>。极大地促进了共振电离谱学技术的发展。

早期 Hurst 等人对周期表上几乎所有元素都指出了可能的共振多光子激发电离通道<sup>[2]</sup>, 并在相当部分元素中得到实现; Eberly、Shore 等人<sup>[4,5]</sup>利用薛定谔(Schrödinger)方程或密度矩阵方程推出的级联 Bloch 方程形式进行了量子化处理, Ackerhalt<sup>[6]</sup>由此考虑了任意形状的激光脉冲对两能级原子的共振激发电离行为。作者注意到, 所有这些工作都将样品视为光学薄介质, 即没有考虑原子吸收等相干作用过程对光场的影响, 这在少量原子探测等过程中是完全可行而正确的, 但对于另一些工作诸如激光分离同位素, 光学薄样品假设不再成立, 必须将样品视作光学厚介质, 即同时需考虑光场对原子的激发与原子的相干作用过程对光场的影响。本文即针对这一问题, 分析了三能级原子双光子级联共振激发光电离的动力学过程, 目的是寻求光学厚介质中多步共振激发光电离的有利条件。

在喇曼拍<sup>[7]</sup>、多光束共振传输等领域<sup>[8,9]</sup>, 均早已将样品视作光学厚介质, 并利用半经典形式的耦合 Bloch-Maxwell 方程组予以处理, 但却未考虑激发态上能级的电离等损耗存在, 本文在计及自发辐射、电离等损耗项后, 给出了级联开放三能级系统相应的理论处理模式。

## 二、理论模型及方程

具有损耗项的级联开放三能级原子模型如图 1 所示, 能级  $|1\rangle$ 、 $|2\rangle$ 、 $|3\rangle$  本征能量分别为

$E_1^A, E_2^A, E_3^A$ , 频率为  $\omega_1, \omega_2$  的两束光脉冲分别与  $|1\rangle$  和  $|2\rangle$ 、 $|2\rangle$  和  $|3\rangle$  能级跃迁近共振作用, 同时  $\omega_1, \omega_2$  相差足够大足以保证每束光场仅与其中一个跃迁相作用。另外能级  $|2\rangle, |3\rangle$  各自存在着到  $|1\rangle, |2\rangle$  能级的自发辐射速率  $A_{21}, A_{32}$ , 能级  $|3\rangle$  还存在到连续态的电离速率  $F$ 。

两束激发光场均采用脉冲形式, 视作中心载频  $\omega_i (i=1, 2)$  上叠加上脉冲包络  $\varepsilon_i(z, t)$ , 同时脉冲包络  $\varepsilon_i$  也可分为实部  $X_i$  和虚部  $Y_i$ :

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_i(z, t) &= \frac{1}{2} \mathbf{e}_i \varepsilon_i(z, t) \exp[i(k_i z - \omega_i t)] + \text{c.c.} \\ &= \mathbf{e}_i (X_i + iY_i) \exp[i(k_i z - \omega_i t)] + \text{c.c.} \end{aligned} \quad (1)$$

其中  $\mathbf{e}_i$  为光场偏振方向的单位矢量,  $k_i$  为波矢量。在此基础上, 采用偶极作用近似, 利用密度矩阵方程, 推得原子与光场作用的密度矩阵元方程组的类 Bloch 方程形式:

$$\frac{\partial U_{32}}{\partial t} = -\Delta_{32} V_{32} - \frac{1}{2} X_1 V_{31} + \frac{1}{2} Y_1 U_{31} - Y_2 (\rho_{33} - \rho_{22}) - \frac{1}{2} (A_{32} + A_{21} + F) U_{32}, \quad (2)$$

$$\frac{\partial V_{32}}{\partial t} = \Delta_{32} U_{32} + \frac{1}{2} X_1 U_{31} + \frac{1}{2} Y_1 V_{31} + X_2 (\rho_{33} - \rho_{22}) - \frac{1}{2} (A_{32} + A_{21} + F) V_{32}, \quad (3)$$

$$\frac{\partial U_{21}}{\partial t} = -\Delta_{21} V_{21} + \frac{1}{2} X_2 V_{31} - \frac{1}{2} Y_2 U_{31} - Y_1 (\rho_{22} - \rho_{11}) - \frac{1}{2} A_{21} U_{21}, \quad (4)$$

$$\frac{\partial V_{21}}{\partial t} = \Delta_{21} U_{21} - \frac{1}{2} X_2 U_{31} - \frac{1}{2} Y_2 V_{31} + X_1 (\rho_{22} - \rho_{11}) - \frac{1}{2} A_{21} V_{21}, \quad (5)$$

$$\frac{\partial U_{31}}{\partial t} = -\Delta_{31} V_{31} - \frac{1}{2} X_1 V_{32} - \frac{1}{2} Y_1 U_{32} + \frac{1}{2} X_2 V_{21} + \frac{1}{2} Y_2 U_{21} - \frac{1}{2} (A_{32} + F) U_{31}, \quad (6)$$

$$\frac{\partial V_{31}}{\partial t} = \Delta_{31} U_{31} + \frac{1}{2} X_1 U_{32} - \frac{1}{2} Y_1 V_{32} - \frac{1}{2} X_2 U_{21} + \frac{1}{2} Y_2 V_{21} - \frac{1}{2} (A_{32} + F) V_{31}, \quad (7)$$

$$\frac{\partial \rho_{33}}{\partial t} = -\frac{1}{2} X_2 V_{32} + \frac{1}{2} Y_2 U_{32} - (A_{32} + F) \rho_{33}, \quad (8)$$

$$\frac{\partial \rho_{22}}{\partial t} = \frac{1}{2} X_2 V_{32} - \frac{1}{2} Y_2 U_{32} - \frac{1}{2} X_1 V_{21} + \frac{1}{2} Y_1 U_{21} - A_{21} \rho_{22} + A_{32} \rho_{33}, \quad (9)$$

$$\frac{\partial \rho_{11}}{\partial t} = \frac{1}{2} X_1 V_{21} - \frac{1}{2} Y_1 U_{21} + A_{21} \rho_{22}. \quad (10)$$

另外, 光场采用麦克斯韦方程描述, 在旋波近似及仅保留一级项情况下得到:

$$\left. \begin{aligned} \partial X_1 / \partial z + (n_1/c) \partial X_1 / \partial t &= G_1 \langle V_{21} \rangle, \\ \partial Y_1 / \partial z + (n_1/c) \partial Y_1 / \partial t &= -G_1 \langle U_{21} \rangle, \\ \partial X_2 / \partial z + (n_2/c) \partial X_2 / \partial t &= G_2 \langle V_{32} \rangle, \\ \partial Y_2 / \partial z + (n_2/c) \partial Y_2 / \partial t &= -G_2 \langle U_{32} \rangle, \\ G_1 &= \omega_1 c \mu_0 N \mu_{21}^2 / 2\hbar n_1, \\ G_2 &= \omega_2 c \mu_0 N \mu_{32}^2 / 2\hbar n_2, \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

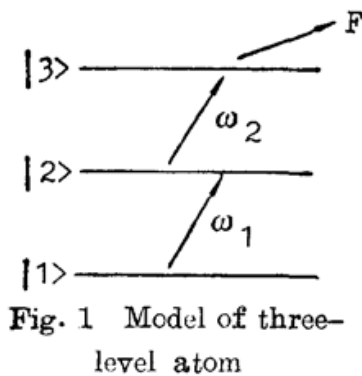


Fig. 1 Model of three-level atom

其中  $n_1, n_2$  分别为原子蒸汽样品对光场  $\omega_1, \omega_2$  的折射率,  $N$  为原子数密度, 又  $U_{ij}, V_{ij}$  的定义为:

$$U_{ij} = \rho_{ij} + \rho_{ji}, \quad V_{ij} = -i(\rho_{ij} - \rho_{ji}). \quad (12)$$

另外, 定义原子与光频失谐:

$$\Delta_{21} = (E_2^A - E_1^A) / \hbar - \omega_1, \quad \Delta_{32} = (E_3^A - E_2^A) / \hbar - \omega_2, \quad \Delta_{31} = (E_3^A - E_1^A) / \hbar - (\omega_1 + \omega_2). \quad (13)$$

方程(2)~(11)即构成了处理三能级原子两步共振激发电离的完整方程形式,由此出发,即可讨论这一过程中各种参量的影响关系。

### 三、数值结果及分析

一般而言,很难求得方程组(2)~(11)的解析解形式,如果有,也是在某些特定的情况之下。为寻求普遍的结论,对三能级原子激发机理的分析必须借助于数值方法。

脉冲激光波形多为高斯型,为与实验一致,这里不妨取定双脉冲均为高斯型,脉宽相等。在此条件下,考察样品源中脉冲的传播行为及由此引起的原子电离率随空间的变化,从而分析最优实验方案的选取条件。因此,通常注意的是定性的结论而非具体的数值结果,可以任选一个样品作为分析对象,然后再把它的结果加以推广,给出具有普遍意义的结论。

#### 1. 脉冲强度的选择

对于两步共振光激发,首先关注的是如何选取两束脉冲激光的强度,使其达到最佳配合,得到最大激发效率。为使结果具有通用性,引入脉冲面积  $A_1$  作为衡量光强度的标志:

$$A_i = \frac{1}{\hbar} \mu_{i+1,i} \int \varepsilon_i(z, t) dt = \frac{1}{\hbar} \mu_{i+1,i} \int [X_i^2 + Y_i^2]^{1/2} dt. \quad (14)$$

显然,在输入脉冲形状(高斯型),脉宽  $T_p$  一定的情况下,脉冲面积与脉冲强度之间存在一一对应关系。

在以下分析中,不妨取定模型原子参数等同于钠原子有关数值,密度  $N=1 \times 10^{11}/\text{cm}^3$ ,能级  $|1\rangle$ 、 $|2\rangle$ 、 $|3\rangle$  分别对应于 Na 原子  $3S_{1/2}$ 、 $3P_{1/2}$ 、 $3D_{1/2}$ , 则相应的激发波长  $\lambda_1=5890 \text{ \AA}$ ,  $\lambda_2=6161 \text{ \AA}$ , 跃迁偶极矩  $\mu_{21}=1.50 \times 10^{-29} \text{ ObM}$ ,  $\mu_{32}=0.464 \times 10^{-29} \text{ ObM}$ , 对应自发辐射速率  $A_{21}=0.622 \times 10^8/\text{s}$ ,  $A_{32}=0.52 \times 10^7/\text{s}$ , 两束脉冲宽度  $T_p=6 \text{ ns}$ , 首先取双脉冲面积均为  $5\pi$ , 考察空间各点上的原子电离率及此点前全空间平均电离率以及两束光场能量的变化,结果如图 2 所示。

在图 2 中可以看到,随着脉冲在介质中传输,两束光能量不断降低,但空间各点上原子的电离率却并不随之单调下降,而是呈现出起伏振荡的行为,这类似于在二能级系统中观察

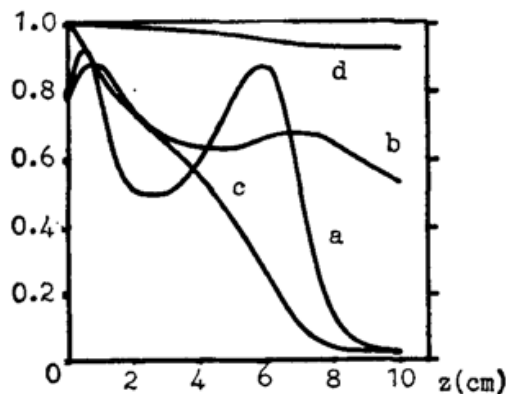


Fig. 2 The evolutions of atomic ionization and pulse energy with the propagation distance. ( $A_1=A_2=5\pi$ )

- Curve a—Atomic ionization at every spatial point.
- Curve b—Average atomic ionization.
- Curve c—The energy of first pulse.
- Curve d—The energy of second pulse.

到的现象<sup>[10]</sup>。当脉冲在介质中传输到一定长度时,第一束激光能量被全部耗尽,虽然第二束激光仍有大量的剩余光能存在,但已不能使原子激发,得到有效利用。

在图3中选取了不同的脉冲面积值,  $A_1=9\pi$ ,  $A_2=5\pi$ , 结果脉冲在介质中传输距离加长,而平均电离率相对等面积情况降低很多。另外,当取  $A_1=5\pi$ ,  $A_2=9\pi$  时,计算结果趋势同于图3,但它的平均电离率却要比图3高一些,虽然仍低于  $A_1=A_2=5\pi$  情况。在  $5\pi$  到  $20\pi$  范围内,选取另外几组参数进行的计算,结果表现出同样性质。

由此得出结论:两束脉冲强度选择最佳条件为输入脉冲面积值相等,即  $A_1=A_2$  则相应光强

$$I_1/I_2 = (A_1/\mu_{21})^2 / (A_2/\mu_{32})^2 = \mu_{32}^2 / \mu_{21}^2. \quad (15)$$

当这一条件满足时,得到的电离率最高。一般可使第二束脉冲强度稍大些,即  $A_2 > A_1$ , 它比  $A_1 > A_2$  时的平均电离率要高。

## 2. 脉冲时间同步及原子参数的选取

当仅考虑原子的共振激发而不计及光束在原子蒸汽中的传输效应时,作者在以前的工作中<sup>[11]</sup>已经证明最佳激发条件是两束光时间同步、面积相等。对于光学厚样品,由于原子与光束的相干作用过程,光束传输将导致两束光产生不同滞后,在时间上错开。图4给出了相应于图3参数情况的脉冲传输线型变化图,我们注意到两个显著的特征,一是脉冲线型的分裂,二是脉冲相对延迟,这两个特征对电离率的影响都非常显著。

脉冲相对延迟对原子的激发非常不利,尤其是当第二束脉冲超前于第一束脉冲时,根本就不能使原子激发,有效激发的最佳条件是两束光始终保持时间上同步前进。从图4中看到,

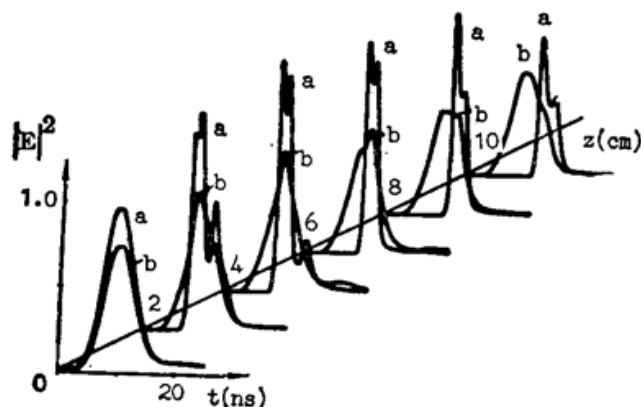


Fig. 4 The evolutions of pulse profiles with the propagation distance. Curve a is the first pulse and curve b is the second one

程,从麦克斯韦方程得知,延迟量  $\Delta\tau$  正比于原子对光场的吸收系数  $\alpha$ <sup>[12]</sup>

$$\alpha = \pi\omega c\mu_0 N\mu^2 g(0)/n\hbar, \quad (16)$$

因此,可引入原子跃迁特征量  $\beta = \omega\mu^2$ , 脉冲延迟时间  $\Delta\tau$  即取决于相应特征量  $\beta$ , 由此推知最佳原子能级参数条件为:

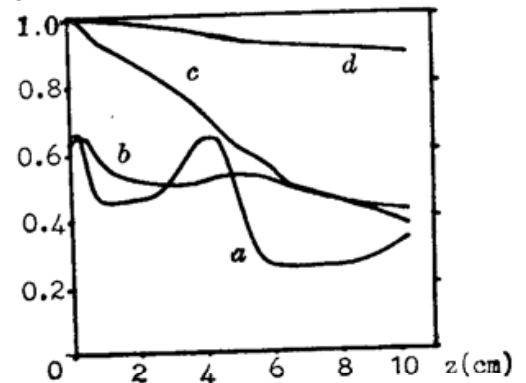


Fig. 3 The evolutions of atomic ionization and pulse energy. ( $A_1=9\pi$ ,  $A_2=5\pi$ ). Curves a, b, c, d are same as Fig. 2

到,由于第一束脉冲延迟量较大,致使其落后于初始同步的第二束脉冲,这正是最糟糕的情况,很大一部分能量无法得到利用。解决的途径之一是根据计算的结果,先于第二束脉冲一定时间将第一束脉冲入射样品,以补偿传输诱发的相对滞后,而这样作必然使介质前部原子电离率降低,以换取中后部脉冲同步后带来的高电离效果。事实上更感兴趣的是脉冲在样品介质中是否始终都能保持同步前进?下面就此作一些分析。

脉冲延迟源于原子对光场的吸收-再辐射过

$$\omega_1\mu_{21}^2 = \omega_2\mu_{32}^2 \quad (17)$$

当满足这一条件时,双脉冲在传输中就有可能保持时间上同步前进。为检验这一结论,在此虚拟了一个原子,其相应参量  $\lambda_1=600\text{ nm}$ ,  $\lambda_2=800\text{ nm}$ , 跃迁偶极矩  $\mu_{21}=0.2598\times 10^{-29}\text{ CbM}$ ,  $\mu_{32}=0.3\times 10^{-29}\text{ CbM}$ , 对应自发辐射速率  $A_{21}=0.1325\times 10^8/\text{s}$ ,  $A_{32}=0.7455\times 10^7/\text{s}$ , 满足条件  $\omega_1\mu_{21}^2 = \omega_2\mu_{32}^2$ , 由于电离的引入将导致脉冲能量快速衰减,为清晰显示脉冲同步特征,在此暂不计及电离的影响,首先考察传输中两步共振激发的有效条件,无疑,这是两步共振光电离的基础。

同于图 2,输入两个脉宽 6 ns、面积  $5\pi$  脉冲,计算求解得到了光场在介质中传输时的波形演化情况,如图 5。正如预期的那样,从图 5 可以看到,两束光场在介质中传输时,绝大部分光能始终裹挟在一起,时间上保持同步前进,这即所谓多脉冲相干类孤立子传输现象。值得注意的是,这里的结果与文献[8]中的报道有所区别,他们忽略了自发辐射的影响,并要求原子系统初始时在激发态上有适当布居,所谓经过‘预处理’,而本文讨论的是纯粹‘自然’状态的原子,存在自发辐射影响,初始粒子布居于基态,同时,关注的是脉冲时间同步而并不要求线型也完全一致,因此,严格地讲这里的结果是广义上的类孤立子现象。

对于真实的原子,严格满足条件(17)的能级很难找到。即便如此,本文讨论可得出:选取  $\beta_2$  略大于  $\beta_1$ ,从而使得第二束脉冲的传输诱发延迟较大,是较为有利的条件,可以使两束光都能得到比较充分的利用。在同位素分离工作中,通常都有数以十计、百计的中间能级存在,相应就有许多可供选择的共振激发通道,以上结论可作为考虑条件之一。

### 3. 脉冲能量的衰减

除了自发辐射等非相干过程引起的少量能量损失外,光能降低主要来源于被电离的原子所吸收。脉冲输入光子数

$$\phi \propto (A/\mu)^2/\omega = A^2/(\omega\mu^2) \quad (18)$$

因此,每电离一个原子各脉冲降低幅度由  $\beta^2/A^2$  决定。在输入等面积脉冲情况下,两束光能降低相对快慢由特征量  $\beta_1/\beta_2$  标志,这样,当  $\beta_1=\beta_2$  时,两束光能量可以同步降低。

在本文所选择的 Na 原子样品中,  $\omega_1\mu_{21}^2$  远大于  $\omega_2\mu_{32}^2$ ,因此第一束脉冲能量消耗速度远大于第二束脉冲(见图 2),经适当距离后,为使剩余第二束光能得到有效利用,就必须设法同步补充第一束光能。

## 四、总 结

在共振电离谱技术中,对于光学薄介质,一般不需考虑光场的利用,总可以通过增大光能密度使原子系统达到饱和电离;对光学厚介质,则必须在保证原子达到相当程度电离的同时考虑光能量的有效利用率,因此,就对实验条件提出了比较苛刻的要求,否则这一目标就难于实现。

在以上工作中,作者对原子的两步共振光电离过程进行了分析,得到了优化实验方案的一些限制条件:(1)原子能级的选取,应尽量使特征量  $\beta_1 \leq \beta_2$  即  $\omega_1\mu_{21}^2$  等于或略小于  $\omega_2\mu_{32}^2$ ;(2)两束脉冲强度的选取,应满足  $I_1/I_2 \leq \mu_{32}^2/\mu_{21}^2$ 。条件(1)保证了在样品中传输时第二束脉冲同步或稍落后于第一束脉冲,同时能量衰减也以大致相同的速度进行,仅需一次同步输

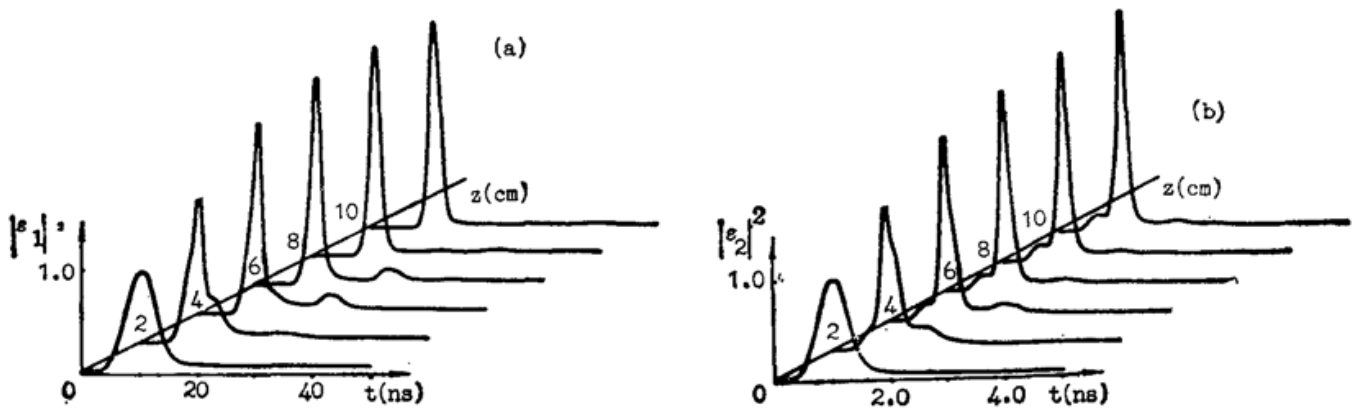


Fig. 5 When  $\omega_1\mu_{21}^2 = \omega_2\mu_{32}^2$ , the simultaneous propagations of two pulses and the formation of simulton.

(a) is the first pulse profiles and (b) is the second one

入就可使两束脉冲能量都得到比较充分的利用; 条件(2)使得两脉冲面积相等, 进而得到最大平均电离率。

从平均电离率随空间的变化曲线看, 对于一定的原子蒸汽密度, 存在一个与输入光强有关的最佳长度, 到此为止的原子平均电离率达到极大。如果第一、二级跃迁特征量  $\omega\mu^2$  比较接近, 则此处两束光能都基本耗尽; 如  $\omega\mu^2$  值相差较大, 则  $\omega\mu^2$  较小一束光剩余能量仍较多, 可以通过同步补充入另一束已耗尽光能, 使其得到继续利用。

另外, 选取更大强度脉冲进行计算时, 结果显示随输入脉冲面积增大, 电离率渐趋于饱和。在以前的工作中<sup>[11]</sup> 得知, 随着脉冲强度增加, 由于光谱的功率加宽和原子非共振激发电离的存在, 相应系统选择性降低, 这是所不希望的。因此, 脉冲强度的选择必须针对电离率和选择性两个指标进行综合考虑, 具体参数范围可通过程序计算给出。

### 参 考 文 献

- [1] G. S. Hurst *et al.*; *Phys. Rev. Lett.*, 1975, **35**, No. 2 (Jul), 82~84.
- [2] G. S. Hurst *et al.*; *Rev. Mod. Phys.*, 1979, **51**, No. 4 (Oct), 767~819.
- [3] «Resonance Ionization Spectroscopy 1984», (Invited papers from the Second International Symposium on Resonance Ionization Spectroscopy and Its Applications held in Knoxville, Tennessee, USA, on 16~20 April 1984), Edited by G. S. Hurst and M. G. Payne, The Institute of Physics, Bristol and Boston.
- [4] J. H. Eberly *et al.*; *Phys. Rev. (A)*, 1977, **A16**, No. 5 (Nov), 2033~2047.
- [5] B. W. Shore *et al.*; *Phys. Rev. (A)*, 1977, **A15**, No. 4 (Apr), 1640~1647.
- [6] J. R. Ackerhalt *et al.*; *Phys. Rev. (A)* 1978, **A17**, No. 1 (Jan), 293~299.
- [7] R. G. Brewer and E. L. Hahn; *Phys. Rev. (A)*, 1973, **A8**, No. 1 (Jun), 464~472.
- [8] M. J. Koumpnicki and J. H. Eberly; *Phys. Rev. (A)*, 1981, **A24**, No. 5 (Nov), 2567~2583.
- [9] J. Y. Bigot and B. Honerlage; *Phys. Rev. (A)*, 1987, **A36**, No. 2 (Jul), 715~723.
- [10] M. H. Jiang and F. C. Lin; *Chinese Phys. Lett.*, 1990, **7**, No. 7 (Jul), 296~299.
- [11] 蒋孟衡, 林福成; «中国激光», 即将发表。
- [12] R. E. Slusher and H. M. Gibbs; *Phys. Rev. (A)*, 1972, **A5**, No. 4 (Apr), 1634~1659.



## Study of dynamical behavior in two-step optical resonant ionization

JIANG MENGHENG AND LIN FUCHENG

(*Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica Shanghai 201800*)

(Received 12 December 1990; revised 28 February 1991)

### Abstract

By means of coupled density matrix and Maxwell equations, we investigate the physical mechanism of two-step optical resonant ionization. Numerical technique is used to analyze the excitation and ionization efficiency affected by the atomic and pulse's parameters. Some optimization conditions are derived and simultaneous different-wavelength optical solitons (simulton), as one of those conditions, are discussed preliminarily.

**Key words:** two-step optical resonant excitation and ionization, optical dense, average ionization ratio, simultaneous propagation of different wavelength pulses.