

# 激光分离同位素过程中的布居囚禁

宁西京 林福成 景春阳

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

**摘 要** 采用缀饰原子模型研究了四光子三步共振离化过程的布居囚禁, 发现了一种与离化速率无关的布居囚禁。通过数值求解裸原子表象的含时薛定谔(Shrodinger)方程发现, 适当选取激光频率与原子跃迁的失谐量, 可以解除这种布居囚禁。

**关键词** 共振光离化, 激光分离同位素, 布居囚禁。

## 1 引 言

激光分离稀土族同位素技术, 通常采用三步共振光离化路线, 即在原子的第一电离阈值以下两束激光与基态及两个激发态耦合, 第三束激光把原子从较高激发态泵浦到自电离态。但多数复杂原子存在低能亚稳态, 热碰撞使得这些亚稳态的布居占有相当比例。例如铀原子存在能量为  $620 \text{ cm}^{-1}$  的亚稳态, 而大量气化铀原子所需的温度不低于  $2800 \text{ K}$ , 这时约 50% 的铀原子处于基态, 30% 的铀原子处于  $620 \text{ cm}^{-1}$  亚稳态。为了提高激光的利用率, 人们建议附加另外一束激光, 耦合亚稳态与较低激发态, 以期利用亚稳态的热布居数。在这样的五能级系统中, 如何把基态布居和亚稳布居最有效地转移到自电离态是人们一直感兴趣的课题。

关于多能级原子与激光场的相干作用, 人们已经作了大量工作<sup>[1, 2]</sup>。布居囚禁态(population trapping state)得到了广泛细致的研究, 布居囚禁现象已被许多实验结果所证实<sup>[3-5]</sup>。然而, 现有工作主要涉及连续串级跃迁的系统并且没有考虑原子态具有很快衰减速率的情形, 因此不能描写上述四光子-五能级系统, 在该系统中基态和亚稳态与同一激发态耦合, 而且最高一个激发态(自电离态)的衰减速率(自电离)很快。文献[6]在裸原子表象中用数值解法研究了该系统的布居动力学, 因为其初始条件假定了基态与亚稳态相干, 结论是没有布居囚禁现象。然而, 在通常的条件下, 初始时刻基态与亚稳态不存在相干。

本文用缀饰原子方法研究了上述四光子-五能级系统, 发现了一个由基态及亚稳态叠加而成的布居囚禁态, 它与自电离态的衰减无关。一旦该囚禁态被布居, 则该布居数将始终被“囚禁”于基态及亚稳态, 激光场的作用不能将该布居数抽运到任何激发态。此外通过求解含时薛定谔方程研究了这种布居囚禁的解除。

## 2 布居囚禁态

与激光分离稀土族同位素相关的五能级系统如图 1 所示。三束单模激光  $L_1$ 、 $L_2$ 、 $L_3$  与基

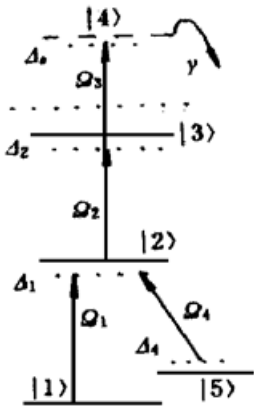


Fig. 1 The system of four-photon three-step ionization

态 $|1\rangle$ 、激发态 $|2\rangle$ 、 $|3\rangle$ 及自电离态 $|4\rangle$ 耦合,形成串级跃迁,相应的失谐量分别为 $\Delta_1$ 、 $\Delta_2$ 、 $\Delta_3$ 。第四束单模激光 $L_4$ 耦合亚稳态 $|5\rangle$ 与激发态 $|2\rangle$ ,相应失谐量为 $\Delta_4$ 。在光离化过程中,通常使用纳秒量级的脉冲激光场,因此各束缚态的自发辐射速率可忽略不计,唯有自电离态 $|4\rangle$ 的衰减速率( $\gamma$ )必须考虑在内。为了把该衰减引入哈密顿(Hamiltonian),用 $(E_4 - i\hbar\gamma/2)$ 取代自电离态 $|4\rangle$ 的本征值 $E_4$ <sup>[7]</sup>。假定四束激光场分别处于福克态 $|n_1\rangle$ 、 $|n_2\rangle$ 、 $|n_3\rangle$ 、 $|n_4\rangle$ ,则在旋转波近似下非耦合态: $|1\rangle|n_1\rangle|n_2\rangle|n_3\rangle|n_4\rangle$ 、 $|2\rangle|n_1 - 1\rangle|n_2\rangle|n_3\rangle|n_4\rangle$ 、 $|3\rangle|n_1 - 1\rangle|n_2 - 1\rangle|n_3\rangle|n_4\rangle$ 、 $|4\rangle|n_1 - 1\rangle|n_2 - 1\rangle|n_3 - 1\rangle|n_4\rangle$ 、 $|5\rangle|n_1 - 1\rangle|n_2\rangle|n_3\rangle|n_4 + 1\rangle$ 组成正交基。在该基矢上系统哈密顿表示为:

$$H = \hbar \begin{pmatrix} 0 & \Omega_1/2 & 0 & 0 & 0 \\ \Omega_1/2 & \Delta_1 & \Omega_2/2 & 0 & \Omega_4/2 \\ 0 & \Omega_2/2 & \Delta_2 & \Omega_3/2 & 0 \\ 0 & 0 & \Omega_3/2 & \Delta_3 - i\gamma/2 & 0 \\ 0 & \Omega_4/2 & 0 & 0 & \Delta_4 \end{pmatrix} \quad (1)$$

式中 $\Omega_i$ ( $i = 1, 2, 3, 4$ )为各相应跃迁的拉比(Rabi)频率,一般情况下均为时间 $t$ 的函数<sup>[2, 4]</sup>。

系统的哈密顿 $H$ 有零本征值,即 $\omega_1 = 0$ ,相应的缀饰本征态为(略去光场态记号 $|i\rangle$ ):

$$|\Phi\rangle = \frac{\Omega_4}{\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_4^2}}|1\rangle - \frac{\Omega_1}{\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_4^2}}|5\rangle \quad (2)$$

式中哈密顿 $H$ 的其它本征值及相应的本征态分别用 $\omega_k$ 、 $|\Phi_k\rangle$ ( $k = 2, 3, 4, 5$ )表示,系统波函数随时间的演化为:

$$|\Phi(t)\rangle = A_1|\Phi\rangle + \sum_2^5 A_k \exp[-i \int_0^t \omega_k(\theta) d\theta] |\Phi_k\rangle \quad (3)$$

注意,  $|\Phi\rangle$ 仅仅由基态 $|1\rangle$ 和亚稳态 $|5\rangle$ 叠加而成,显然与自电离态 $|4\rangle$ 的衰减无关,称 $|\Phi\rangle$ 态为布居囚禁态。根据(2)(3)两式,初态处于基态 $|1\rangle$ 或亚稳态 $|5\rangle$ 的原子分配到 $|\Phi\rangle$ 的几率振幅分别为 $\Omega_4/\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_4^2}$ 、 $\Omega_1/\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_4^2}$ 。在绝热近似条件下<sup>[8]</sup>,  $|\Phi\rangle$ 与 $H$ 的其它本征态之间的非绝热耦合可忽略不计。如果 $L_1$ 、 $L_4$ 激光脉冲的形状相似,以使 $\Omega_1 \propto \Omega_4$ ,那么布居囚禁态 $|\Phi\rangle$ 将不随时间演化,这时,即便绝热条件不成立,  $|\Phi\rangle$ 态的布居也不会转移到 $H$ 的其它本征态。因此初始分配到 $|\Phi\rangle$ 态的布居数将被“囚禁”于裸原子态 $|1\rangle$ 或 $|5\rangle$ ,而与 $L_2$ 、 $L_3$ 光场的作用以及自电离态的衰减无关。假设亚稳态 $|5\rangle$ 的热布居达到极限,即与基态 $|1\rangle$ 的热布居相等,则总共有50%的(基态加亚稳态)布居被抽运到自电离态 $|4\rangle$ ,与不加 $L_4$ 光束的效果相同。一般情况下,亚稳态的热布居比基态布居小,能被泵浦到自电离态 $|4\rangle$ 的最大布居数将更小。所以在三步共振离化原子的过程中以共振方式(使 $\Delta_4 = 0$ )附加 $L_4$ 激光束,并不能提高光离化的效率,完全浪费了 $L_4$ 激光能源。

### 3 布居囚禁的解除

由(1)式可知,当 $\Delta_4 \neq 0$ 时, $H$ 不存在零本征值,因此不存在布居囚禁态 $|\Phi\rangle$ 。为了研究布居囚禁随 $\Delta_4$ 的变化,在裸原子表象 $|1\rangle$ 、 $|2\rangle$ 、 $|3\rangle$ 、 $|4\rangle$ 、 $|5\rangle$ 中数值求解含时薛定谔方程<sup>[9]</sup>:

$$i\hbar \dot{C}_j = \sum_k^5 H_{j,k} C_k \quad (4)$$

式中  $j, k = 1, 2, 3, 4, 5$ ,  $C_j$  为系统处于裸原子态  $|j\rangle$  的几率振幅。假设各激光脉冲同时与原子开始作用, 且各光脉冲波形相似(高斯脉冲), 则各个跃迁对应的拉比频率可表示为:

$$\Omega_i(t) = \Omega^{(0)} \exp(-t^2/\tau^2) \quad (i = 1, 2, 3, 4) \quad (5)$$

取脉冲半宽度  $\tau = 5 \text{ ns}$ ,  $\Omega^{(0)} = 1 \times 10^{10} \text{ rad/s}$ ,  $\Delta_{1,2,3} = 0$ ,  $\gamma = 1 \times 10^{10} \text{ s}^{-1}$ , 则由(3)式求得初始处于基态的原子的布居囚禁程度如图2所示。计算中假定基态初始布居几率为“1”, 亚稳态初始布居几率为“0”。图2中曲线1、2分别代表光脉冲过后总的离化几率  $G_i$  和布居囚禁几率  $G_i(|c_1|^2 + |c_5|^2)$ 。图2表明, 当  $\Delta_4 = 0$  时, 50%的原子(初始处于基态)被囚禁于基态及亚稳态, 离化几率为“0.5”。随着  $L_4$  激光频率失谐量  $\Delta_4$  的增加, 布居囚禁现象趋于消失, 伴随着离化几率趋于“1”。

在同样的条件下可求得初始处于亚稳态的原子的布居囚禁程度随  $\Delta_4$  的变化(如图3所示)。由图3知, 当  $\Delta_4 = 0$  时, 初始处于亚稳态的原子被囚禁于基态或亚稳态的几率为“0.5”, 离化几率为“0.5”, 与图2结果相同。随着  $L_4$  激光频率失谐量  $\Delta_4$  的增加, 被囚禁的布居数  $M_i$  趋于一极小值, 而相应的离化几率  $M_i$  越来越大( $M_i$  与  $M_i$  之和小于“1”, 是因为其它能态有布居)。随着  $|\Delta_4|$  继续增加,  $M_i$  由小变大, 这是因为  $L_4$  激光频率远离共振, 以致亚稳态  $|5\rangle$  的初始布居不能有效被激发。

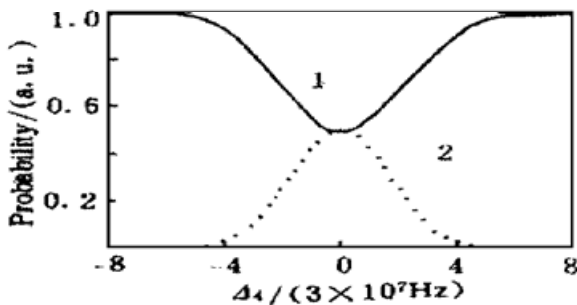


Fig. 2 The probability of the population trapping of the atom initially in ground state changes as  $\Delta_4$  with  $\Omega_{1,2,3,4}^{(0)} = 1 \times 10^{10} \text{ rad/s}$ . The curves 1 and 2 represent  $G_i$  and  $G_p$  respectively

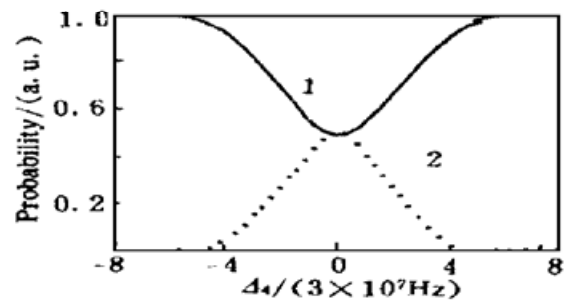


Fig. 3 The probability of the population trapping of the atom initially in metal stable state changes as  $\Delta_4$  with  $\Omega_{1,2,3,4}^{(0)} = 1 \times 10^{10} \text{ rad/s}$ . The curves 1 and 2 represent  $M_i$  and  $M_p$  respectively

由图2和图3可见, 当  $\Delta_4 = 0$  时, 总的布居囚禁数( $G_i + M_i$ ) 占布居总数的50%, 该结果恰好与  $|\Phi\rangle$  确定的布居囚禁几率相同。应当指出, 无论选取怎样的失谐条件( $\Delta_1, \Delta_2, \Delta_3$ ) 及拉比频率  $\Omega_i(t)$ , 光脉冲过后系统中剩余的布居数不会少于相同条件下由  $|\Phi\rangle$  确定的布居囚禁数。例如, 在上面的计算中如果选取  $\Omega^{(0)} = 2 \times 10^9 \text{ rad/s}$ , 那么初始处于基态或亚稳态的原子的布居行为分别如图4和图5所示。当  $\Delta_4 = 0$  时, 剩余布居几率( $G_i + M_i$ ) 占布居总数的57%。图4表明, 随着  $|\Delta_4|$  的增大, 初始处于基态的原子的布居囚禁几率趋于一极小值, 当  $|\Delta_4|$  继续增大时, 布居囚禁几率又有所增加, 呈现一些小峰结构。布居几率随  $|\Delta_4|$  变化的这种起伏以及图5中出现的起伏, 反映了多能级系统中的 Autler-Townes 效应<sup>[10]</sup>。

为了同时把基态及亚稳态布居都高效率地离化, 必须使  $L_4$  激光频率与共振链失谐(使  $|\Delta_4| \neq 0$ ), 以解除布居囚禁。当被分离的各同位素成份的光谱位移远大于解除布居囚禁所需的失谐量时, 这种解除布居囚禁的方法不会损失光离化的选择性。

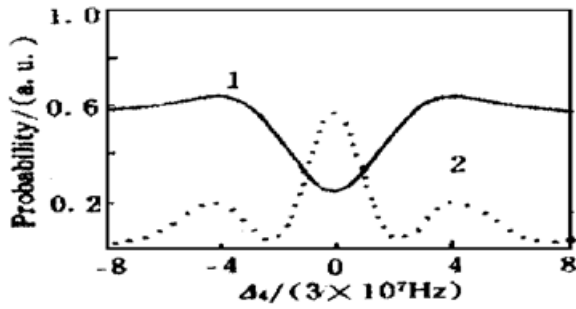


Fig. 4 The probability of the population trapping of the atom initially in ground state changes as  $\Delta_4$  with  $\Omega_{i, 2, 3, 4}^{(0)} = 2 \times 10^9$  rad/s. The curves 1 and 2 represent  $G_i$  and  $G_p$  respectively

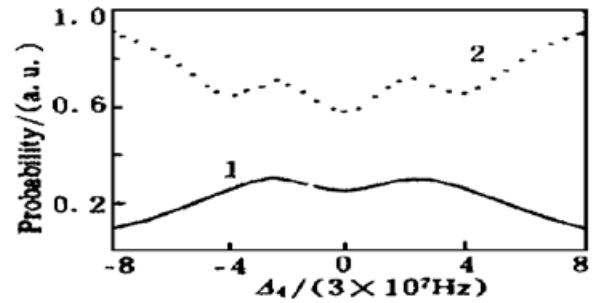


Fig. 5 The probability of the population trapping of the atom initially in meta stable state changes as  $\Delta_4$  with  $\Omega_{i, 2, 3, 4}^{(0)} = 2 \times 10^9$  rad/s. The curves 1 and 2 represent  $M_i$  and  $M_p$  respectively

## 4 例 子

下面以激光分离铀同位素为例说明布居囚禁的解除。选取分离路线为：

$$\begin{array}{l} 0 \text{ cm}^{-1}(J=6) \rightarrow \\ 620 \text{ cm}^{-1}(J=5) \rightarrow \end{array} \left. \begin{array}{l} \\ \\ \end{array} \right\} 17361 \text{ cm}^{-1}(J=6) \rightarrow 34165 \text{ cm}^{-1}(J=5) \rightarrow |\phi\rangle$$

共振链中  $|\phi\rangle$  为一自电离态，可选取为  $f^3 d s n p$  组态的某一能态(如  $50209 \text{ cm}^{-1}$ )，其自电离速率约  $1 \times 10^{10} \text{ s}^{-1}$ 。两束缚态  $17361 \text{ cm}^{-1}(J=6)$  和  $34165 \text{ cm}^{-1}(J=5)$  的寿命分别为  $210 \text{ ns}$ ， $440 \text{ ns}$ <sup>[12]</sup>，远大于常用激光脉冲的脉宽( $\sim 10 \text{ ns}$ )，因此可忽略这两个束缚态的自发辐射弛豫。第一级两个跃迁  $\left[ \begin{array}{l} 0 \text{ cm}^{-1}(J=6) \rightarrow \\ 620 \text{ cm}^{-1}(J=5) \rightarrow \end{array} \right. 17361 \text{ cm}^{-1}(J=6)$  的同位素位移大约为  $-4.8 \times 10^9 \text{ Hz}$ <sup>[13]</sup>。第二级跃迁的同位素光谱位移约  $-9.0 \times 10^9 \text{ Hz}$ <sup>[14]</sup>。第三级跃迁的线宽较大，可忽略同位素光谱位移。

假定  $^{238}\text{U}$ ， $^{235}\text{U}$  原子的初态布居相同，且亚稳态( $620 \text{ cm}^{-1}$ )与基态的占有数相等。调谐两束激光的中心频率使其与  $^{235}\text{U}$  原子的跃迁链  $0 \text{ cm}^{-1}(J=6) \rightarrow 17361 \text{ cm}^{-1}(J=6) \rightarrow 34165 \text{ cm}^{-1}(J=5)$  共振，另一束激光的中心频率高出  $^{235}\text{U}$  的跃迁  $620 \text{ cm}^{-1}(J=6) \rightarrow 17361 \text{ cm}^{-1}$  约  $2 \times 10^8 \text{ Hz}$ 。各跃迁拉比频率的最大值取为  $\Omega_i^{(0)} = 1 \times 10^{10} \text{ rad/s}$  ( $i = 1, 2, 3, 4$ )。在上述条件下，根据薛定谔方程(4)的计算可得，初态布居于基态和亚稳态的  $^{235}\text{U}$  原子被离化的几率分别为  $99\%$ ， $96\%$ ，而初态布居于基态和亚稳态的  $^{238}\text{U}$  原子被离化的几率分别为  $1\%$  和  $6\%$ 。可见利用失谐来解除布居囚禁的方法对于铀的同位素分离是十分有效的。

**结 论** 在图1所示的四光子三步共振光离过程中，如果使  $\Delta_k = 0$  ( $k = 1, 2, 3, 4$ )，便不可避免地产生布居囚禁，该囚禁与自电离态的衰减无关。适当偏调  $L_4$  激光频率与相应玻尔(Bohr)频率的失谐量，则可避免布居囚禁现象。当被分离的各同位素成份的光谱位移远大于解除布居囚禁所需的失谐量时，这种解除布居囚禁的方法不会损失光离化的选择性。

## 参 考 文 献

- [1] A. V. Smith, Numerical studies of adiabatic population inversion in multilevel system. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1992, **9**(9) :1543~ 1551

- [2] B. W. Shore, J. Martin, M. P. Fewell *et al.*, Coherent population transfer in multilevel systems with magnetic sublevels. *I. Numerical studies. Phys. Rev. (A)*, 1995, **52**(1) ·566~ 593
- [3] Satoru Adachi, Hideaki Niki, Yasukazu Izawa *et al.*, Experimental and Numerical studies on population trapping in Gd vapor. *Opt. Commun.*, 1991, **81**(6) ·364~ 368
- [4] U. Gaubatz, P. Rudecki, S. Schiemann *et al.*, Population transfer between molecular vibrational levels by stimulated Raman scattering with partially overlapping laser fields. A new concept and experimental results. *J. Chem. Phys.*, 1990, **92**(9) ·5363~ 5376
- [5] Xijing Ning, Chunyang Jing, Fucheng Lin, The trapped population effect of U in a hollow-cathode discharge tube. *XX IQEC'96 Sydney Australia*, 1996 ·44
- [6] 谢世亮, 王德武, 应纯同, Population dynamics in the four-photon three-step photoionization. *原子与分子物理学报*, 1994, **11**(3) ·129~ 135
- [7] P. M. Radmore, P. L. Knight, Population trapping and dispersion in a three-level system. *J. Phys. (B)*, 1982, **15**(4) ·561~ 573
- [8] A. Messiah, *Quantum Mechanics*, North-Holland, Amsterdam, 1980 ·754
- [9] L. J. Radziemski, R. W. Solarz, J. A. Paisner, *Laser Spectroscopy and Its Applications*. New York, Marcel Dekker, INC. 1987 ·185~ 188
- [10] Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*. New York, John Wiley Sons, Inc. 1984 ·429~ 430  
Y. R. Shen, Atom due to one-and three-photon processes. *Phys. Rev. (A)*, 1984, **29**(6) ·3264~ 3272
- [11] A. Coste, R. Avril, P. Blancard *et al.*, New spectroscopic data on high-lying excited levels of atomic uranium. *J. Opt. Soc. Am.*, 1982, **72**(1) ·103~ 109
- [12] E. Miron, R. David, G. Erez *et al.*, Laser spectroscopy of UI using stepwise excitation and fluorescence detection. *J. Opt. Soc. Am.*, 1979, **69**(2) ·256~ 264
- [13] J. Blaise, L. J. Radziemski, Energy levels of neutral atomic uranium (UI). *J. Opt. Soc. Am.*, 1976, **66**(7) ·644~ 659  
J. Blaise, Energy Level of Neutral Atomic Uranium (UI) and Its Applications, New York, Marcel Dekker, INC. 1987 ·185~ 188
- [14] Jia Liejuan, Jing Chunyang, Lin Fucheng, Hyperfine structure measurement of U high-lying levels using a hollow-cathode lamp. *Chin. Phys. Lett.*, 1991, **8**(4) ·172~ 175

## Population Trapping in Laser Isotopes Separation

Ning Xijing      Lin Fucheng      Jing Chunyang

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, The Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800)

(Received 12 June 1996)

**Abstract** A process of four-photon three-step resonant ionization is investigated in terms of dressed-atom model, and a kind of population trapping is found which is independent to the ionizing rate. Numerical calculation with time-dependent Schrödinger equation shows that the population trapping can be removed by suitably detuning the laser frequency from the corresponding Bohr frequency.

**Key words** resonant photon-ionization, laser isotopes separation, population trapping.