

文章编号: 0253-2239(2003)07-0777-5

亚稳态氦原子束在激光驻波场中聚焦的衍射像差研究*

高洪涛 李展 陈旭南

(中国科学院光电技术研究所微细加工光学技术国家重点实验室, 成都 610209)

摘要: 用量子力学方法研究了一维激光驻波场对亚稳态氦原子束聚焦的衍射像差。建立了半经典模型, 该模型在一定条件下和已有模型一致, 提出了直接计算时间演化算符的数值方法, 这种计算方法速度较快, 收敛性较好, 数值模拟结果表明在一定的激光强度和光束半径等参量下, 亚稳态氦原子束被聚焦, 焦点的半峰全宽为 54 nm, 对比度 16:1, 焦长、焦深与入射原子束的速度有关, 从而与动能有关, 焦点的有限宽度主要是来自衍射效应的影响。

关键词: 物质波; 衍射像差; 时间演化方法; 激光驻波场

中图分类号: O56 文献标识码: A

1 引言

利用激光驻波场聚焦原子束是实现“原子光刻”(atom lithography)的重要方法之一。目前人们已经利用这一方法在实验上实现了特征尺寸为几个纳米到几十个纳米的周期性结构^[1,2], 对于此问题的理论研究也逐渐深入^[3,4]。虽然有多种原子可以被用来实现纳米结构, 如钠^[5]、铝^[6]、铬^[7]等, 但是亚稳态原子有着独特的优势——稳定性好, 内态能量高等, 所以有望采用不同的“曝光”方法^[8], 以克服金属原子“曝光”方法的缺点。

在利用激光驻波场聚焦亚稳态氦原子束的过程中, 像差是不可避免的, 因此研究它们对聚焦效果的影响是原子光刻中的重要课题, 其中色差和球差能够在经典理论中得到较好的研究, 而衍射像差就必须求助于量子理论。尽管原则上需要用全量子理论, 但是当忽略自发辐射或只是利用唯象的方法来考虑它时, 就可以采用半经典的量子理论。这样既不失较好的准确性, 也能够避免全量子理论的复杂性所带来的数学困难。实际上半经典量子模型已经被用来研究电磁场对原子束的散射^[9]、聚焦^[4]等。虽然实验中涉及到的是多粒子系统, 但若忽略原子之间的相互作用, 以及由于全同性带来的量子关联,

则可以将问题归结为求解单粒子薛定谔方程。数值求解薛定谔方程常用到时间传播方法, 特别是当能量不依赖时间时, 这种方法比较简单, 它的核心问题是构造时间传播算符^[10], 通常要用分裂算符法来构造时间传播算符, 但由于我们所研究的系统的特殊性——哈密顿量矩阵元较小, 并且不含时间, 我们可以直接计算它, 这种方法计算速度较快, 收敛性也较好。

2 理论模型

我们所研究的体系如图 1 所示, 一维激光驻波场沿 z 方向分布, 单色亚稳态氦原子束沿 y 方向入射。在驻波场中原子在 y 方向做自由运动, 沿 z 方向受到驻波的调制, 因此密度分布随时间与空间变化, 我们的目的是找出这种变化的规律。

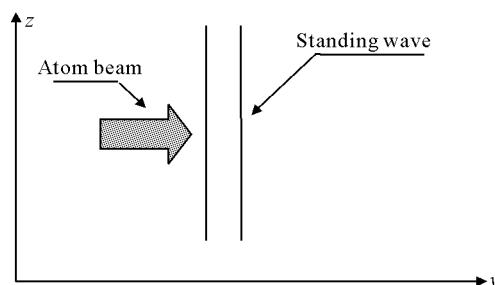


Fig. 1 The sketch map of the system

在半经典理论框架内, 外电磁场是以经典场的形式通过熟知的最小代换引入的, 同时利用了电偶极近似, 原子运动则用薛定谔方程来描述。电偶极近似的前提是: 1) 在原子内部外场的梯度比较小, 当外场为

* 中国科学院创新基金项目、中国科学院光电技术研究所微细加工光学技术国家重点实验室开放课题。

E-mail: ght970201@sohu.com

收稿日期: 2002-04-09; 收到修改稿日期: 2002-08-02

辐射场时,这一条件等价于电磁场波长远大于原子限度;2) 原子电偶极矩不为零。在一般情况下,由于原子能级具有无穷多个,所以薛定谔方程的原子态函数有无限多个分量,但是当外场只有有限多个模时,只有那些能够与这些模发生共振或近共振的能态之间才会发生较大几率跃迁,从而使这些态上的原子布居数发生明显改变,同时影响质心运动,那些不与外场发生共振或近共振的能态所带来的影响便可略去,此时原子态函数只有有限个分量,特别是当外场只有单个模时,态函数便只有两个分量,原子被简化为二能级系统,原子运动的薛定谔方程为

$$i\hbar \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} = -\frac{\hbar^2}{2M} \nabla^2 \mathbf{B} + \begin{bmatrix} \beta & \\ \beta^+ & \end{bmatrix} \mathbf{B}, \quad (1)$$

其中

$$\mathbf{B} = \begin{bmatrix} b_g \\ b_e \end{bmatrix}, \quad (2a)$$

$$\beta = i\omega_0 \mathbf{d} \cdot \mathbf{A} \exp(-i\omega_0 t), \quad (2b)$$

$$\omega_0 = (E_e - E_g)/\hbar, \quad (2c)$$

M 为原子质量, E_e 、 E_g 分别是原子的激发态和基态能级, \mathbf{d} 是电偶极矩, \mathbf{A} 是频率与 ω_0 相等或接近的平面波或驻波的矢势。

在外场为图 1 所示的一维驻波场时,

$$\mathbf{A} = 2\mathbf{A}_0 \cos(\omega t) \cos(kz), \quad (3)$$

从而原子沿着 y 方向做自由运动,可以用经典方法描述^[4],则(1)式中动能项便只含有坐标 z 。

若定义

$$U = \frac{i\omega_0 \mathbf{d} \cdot \mathbf{A}_0}{2\hbar}, \quad (4)$$

通过选取 \mathbf{d} 的相位,可以使 $\mathbf{d} \cdot \mathbf{A}_0$ 为负的纯虚数^[11],从而 U 为正实数,这就是拉比频率。利用(2b)式、(3)式、(4)式并进行旋波近似后

$$\beta = 2U\hbar \cos(kz) \exp(i\Delta t), \quad (5)$$

其中 $\Delta = \omega_0 - \omega$ 为失谐量。将(5)式代入(1)式有

$$i \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} = -\frac{\hbar}{2M} \frac{\partial^2}{\partial z^2} \mathbf{B} + 2U \cos(kz) \begin{bmatrix} \exp(-i\Delta t) \\ \exp(i\Delta t) \end{bmatrix} \mathbf{B}. \quad (6)$$

这样,我们就得到了与文献[9]一致的模型,只不过文献[9]中略去了质心运动项。

在共振时($\Delta = 0$)作表象变换

$$X = (b_e + b_g)/2, \quad (7a)$$

$$Y = (b_e - b_g)/2, \quad (7b)$$

则(6)式成为

$$i \frac{\partial |\Psi\rangle}{\partial \tau} = H |\Psi\rangle, \quad (8a)$$

$$H = -q \frac{\partial^2}{\partial x^2} + 2\cos(x) \begin{bmatrix} 1 & \\ & -1 \end{bmatrix}, \quad (8b)$$

其中 $|\Psi\rangle = [X \ Y]^T$, $q = \frac{\hbar k^2}{2MU}$ 是一个无量纲量, $\tau = Ut$, $x = kz$ 分别是无量纲的等效时间和空间。我们选择初态

$$\mathbf{B}(0) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix}, \quad (9)$$

它描述了 z 向初动量为零,全部处在基态的单色原子束。利用(7)可得 $|\Psi(t)\rangle$ 的初态为

$$|\Psi(0)\rangle = \frac{1}{2\sqrt{2\pi}} \begin{bmatrix} 1 \\ -1 \end{bmatrix}. \quad (10)$$

原子在空间的密度分布为

$$\rho = B^+ B = 2(X^+ X + Y^+ Y). \quad (11)$$

到此完成了半经典模型(8)的建立,值得指出的是,方程(8)对应的本征方程恰好是马丢方程^[12],关于马丢方程的研究结果可以方便地引用。表 1 给出了相关参量。

Table 1 Parameter of atom and laser

Laser power P / W	0.1
Diameter of standing wave R / m	0.005
Ground state	1s2s
Excited state	1s2p
Longitudinal velocity / (m/s)	1000
Wavelength λ / nm	1083
q	0.01
$U / (10^8 \text{ Hz})$	1.17636

这一模型是从基本的物理原理出发而得到的,只是进行了偶极近似和旋波近似。它没有考虑自发辐射以及磁子能级的影响。当原子在光场中的停留时间远大于上能级的寿命,同时远小于光子反冲极限对应的时间 $t_{rec} = 2M/\hbar k^2$ 时,便可以略去自发辐射的影响,通过选取合适的参量能够满足这一条件,而对于磁子能级的影响的研究则需要用多能级模型。

3 数值计算

依据马丢函数理论判断 $|\Psi(t)\rangle$ 的周期性。由(8)式可知它的一般形式为

$$|\Psi(t)\rangle = \sum_v \exp(-iE_v t) D_v |\varphi_v\rangle, \quad (12)$$

其中 $|\varphi_v\rangle$ 、 E_v 分别为 H 的本征函数和本征值。前面提到 $|\varphi_v\rangle$ 的每个分量都满足马丢方程,所以它们分为三类解集,分别是以 2π 为周期、以 4π 为周期、非周期。根据马丢函数的正交性,以 2π 、 4π 为周期的解

集分别构成独立子空间,因此由(12)式可以看出,当初始态 $|\Psi(0)\rangle$ 选择在由全部解构成的空间中时, $|\Psi(0)\rangle$ 以及 $|\Psi(t)\rangle$ 是没有周期性的;当初始态选择在以周期解集构成的子空间中时, $|\Psi(0)\rangle$ 以及 $|\Psi(t)\rangle$ 就都具有周期性。由于我们所选择的初态(10)式即可以看成周期为 2π 的解集构成的独立子空间中的矢量,也可以看成周期为 4π 的解集构成的独立子空间中的矢量,所以 $|\Psi(0)\rangle$ 、 $|\Psi(t)\rangle$ 的周期是 2π 或 4π 。两种情况下计算得到的几率密度是一样的,我们不妨以 2π 作为 $|\Psi(t)\rangle$ 的周期,这时就可以做傅里叶级数展开:

$$|\Psi\rangle = \sum_{n=-\infty}^{\infty} c_n |n\rangle, \quad (13)$$

其中

$$|n\rangle = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp(inx), \quad n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots \quad (14a)$$

$$c_n = \begin{bmatrix} a_n \\ b_n \end{bmatrix} = \langle n | \Psi \rangle, \quad (14b)$$

$$\mathbf{E} = \begin{bmatrix} \cdots & & & & & & & \\ 1 & q(-2)^2 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & q(-1)^2 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & q(0)^2 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & q(1)^2 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & q(2)^2 & 1 \\ & & & & & \cdots & \end{bmatrix},$$

则(16)式的解为

$$\mathbf{A}(\tau + \Delta\tau) = U(\Delta\tau) \mathbf{A}(\tau), \quad (17)$$

其中

$$U(\Delta\tau) = \exp(-iE\Delta\tau) = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-iE\Delta\tau)^n}{n!}. \quad (18)$$

这是时间演化算符,它具有性质

$$U(\tau + \Delta\tau) = U(\tau)U(\Delta\tau) = U(\Delta\tau)U(\tau), \quad (19)$$

$$U^+(\Delta\tau)U(\Delta\tau) = 1. \quad (20)$$

所以只要利用展开(18)式计算出 $U(\Delta\tau)$,便可以利用(17)式以及已知的初条件解出 \mathbf{A} 。

因为 \mathbf{E} 是一个无穷维的矩阵,所以应该在有限大的 n_{\max} 处截断,并加以边界条件 $a_{\pm n_{\max} \pm 1} = 0$ 。为保证展开式(18)可在较低阶下收敛,以及幺正性不被破坏, n_{\max} 与 $\Delta\tau$ 应满足 $qn_{\max}^2 \Delta\tau \approx 1$,本文中取 $n_{\max} = 100, q = 0.01, \Delta\tau = 0.01$ 。如果要想得到较长时刻的解,就需要传播较多步,计算速度会变慢,此时可作如下改进:先计算较短时间间隔的传播子,

则由(8)式有

$$\left. \begin{aligned} i \frac{\partial a_n}{\partial \tau} &= qn^2 a_n + (a_{n+1} + a_{n-1}), \\ i \frac{\partial b_n}{\partial \tau} &= qn^2 b_n - (b_{n+1} + b_{n-1}), \end{aligned} \right\} \quad (15)$$

由(10)式、(14b)式可知初条件为

$$c_0(0) = \frac{1}{2} [1, -1]^T,$$

其它为零。

解(15)式原则上可以通过迭代方法,如采用简单的尤拉方法或精度较好的插值方法,但是这些方法在一定精度内保证幺正性不被破坏是比较困难的,我们采用计算时间演化算符的方法来求解。由于这两个方程具有相似的结构,以后的分析仅以(15)中第一个为例,将它改写为

$$i \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial \tau} = \mathbf{EA}, \quad (16)$$

其中 $\mathbf{A} = [\dots, a_{-1}, a_0, a_1, \dots]^T$, \mathbf{E} 为三对角矩阵

然后利用性质(19)式得出较长时间间隔的传播子,这就可以减少(17)式的迭代次数,大大降低计算量,并得出稳定的结果。由于周期性,只要计算出一个周期的密度分布即可。

研究表明,由于 U 的矩阵元的模小于1,所以每一步传播都会减小误差,因此会得到稳定的收敛结果。这种方法的优点在于:1) 它不需直接解方程而是用传播的办法;2) (17)式的每一步传播都不破坏幺正性,因此能够很好地收敛;3) 计算速度较快,精度较高。局限性主要有:1) 它要求能量不含时间;2) 当用于解其它模型时,如果能量算符中有较大元素,则要求时间间隔很短,会导致矩阵乘法较多,从而增加计算量,甚至不可用。

4 结果与讨论

图2分别给出了 $\tau = 9.0, 8.0, 7.0$ 时原子的几率

密度在两个波长内沿 z 的分布。横轴是以波长为单位的空间坐标,纵轴是几率密度。可见在此时间段内原子的几率密度的空间分布具有周期性,原子束被聚焦,驻波的作用类似于一个微型透镜阵列。这些微透

镜的焦点的间距是半波长,它们的半峰全宽约为 0.05 波长,即为 54 nm。图 2(a)峰值处与最低处的对比度比图 2(b)、图 2(c)要好一些,约为 16:1。

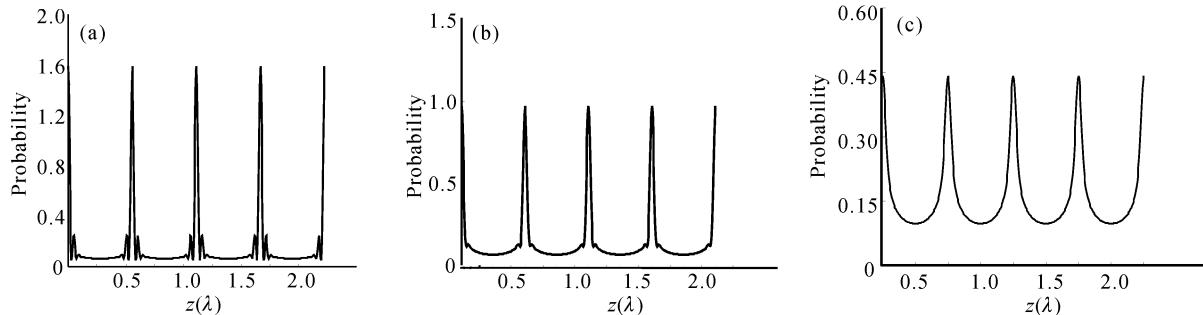


Fig. 2 The distribution of probability. (a) $\tau=9.0$; (b) $\tau=8.0$; (c) $\tau=7.0$

取原子的纵向速度 $v=1000 \text{ m/s}$, $\tau=9.0$, $\delta\tau=1.0$, 则焦长 $f=vt=v \frac{\tau}{U}=0.77 \times 10^5 \text{ nm}$, 焦深 $\Delta f=v\delta t=v \frac{\delta\tau}{U}=0.06 \times 10^5 \text{ nm}$ ($\delta t=\frac{\delta\tau}{U}$ 为发生明显聚焦的时间间隔)。与光学透镜的焦长、焦深和光频率有关类似,原子透镜的焦长、焦深与入射原子束的速度有关,从而与动能也有关。当入射原子束中原子有一定的速度分布时,驻波场可使不同速度的原子的焦点彼此错开,形成色差。消除色差的途径除了提高原子束的单色性外,另一种方法是文献[13]提到的通过用增强腔来提高激光功率实现的。

下面利用经典的图像来理解一下驻波场对原子束有聚焦作用的原因。方程(8)的经典极限对应于势场^[4]

$$V = -4q |\cos(x)| = -4q \left| \cos\left(z \frac{2\pi}{\lambda}\right) \right|, \quad (21)$$

如图 3 所示。出现周期性聚焦的根本原因在于势能 V 每隔半个波长出现极小点,在这些极小点附近,势能近似为简谐势能,且周期为

$$T = \pi / \sqrt{q}, \quad (22)$$

因此聚焦的时刻出现在 $\tau = (n + 1/4)T$, $n = 0, 1, 2, \dots$ 附近。实际上图 2 对应的时间正是四分之一周期附近,即 $n = 0$ 。此外,对应 n 为其它整数,还有多个焦平面,但是由于非谐振效应——球差的影响,更远的焦平面上的聚焦效果是比较差的,而对于 $n = 0$ 的焦平面来说,有研究表明球差的影响是很小的^[13],因此在入射原子束是单色的情况下,没有色差,则图 2 得到的有限宽度主要是衍射效应的影响,

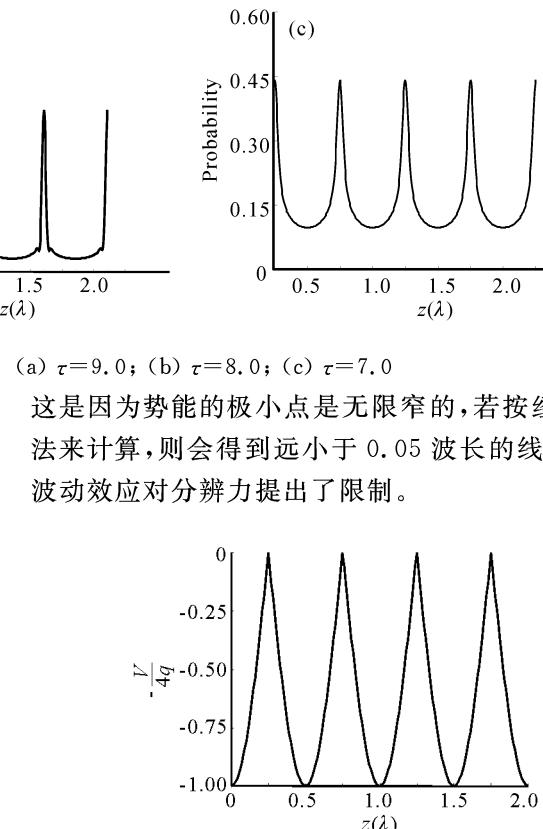


Fig. 3 The potential energy

最后,由(22)式可见, q 越大则发生聚焦的时间越短,但当它足够大时,(8)式近似为自由粒子方程,则不会有聚焦现象; q 越小,则发生聚焦的时间越长,但当它足够小时,(8)式中的动能部分可以忽略,方程可以精确求解,结果证明,也不发生任何聚焦现象,所以 q 应有一个最佳值,使得对比度较大、半峰全宽较小,适当调节表 1 中各种参量,可以取得最佳的效果。

结束语 本文用半经典理论研究了一维激光驻波场对亚稳态氦原子束聚焦的衍射像差。首先从基本原理出发建立了模型,该模型在一定条件下和已有模型一致;其次提出了直接计算时间演化算符的数值方法,这种方法无需直接求解方程,并且计算速度较快,收敛性也较好。同时对模型的适用背景及算法的主要问题做了较为深入的探讨。最后的研究结果

表明在一定的激光强度、光束半径等参量下,亚稳态氦原子束能够被聚焦,焦点的半峰全宽为54 nm,对比度16:1,焦点的有限宽度主要是来自衍射效应的影响,焦长、焦深与入射原子束的速度有关。从聚焦这一环节上来说,亚稳态的氦原子束可以被用来制作特征尺寸约为50 nm的结构。因为原子束中的原子不可避免的会有速度分布,因此会带来色差。对于这一像差的研究可以采用经典方法,若采用本文的模型,会增加数值计算的难度,这是除了前面提到的数值方法的局限性外的另一个局限性。在研究中我们没有考虑自发辐射以及磁子能级的影响,若细致地研究这些问题,将会是有益的。

参考文献

- 1 Timp G, Behringer R E, Tennant D M *et al.*. Using light as lens for submicron neutral—atom lithography. *Phys. Rev. Lett.*, 1992, **69**(11):1636~1639
- 2 McClelland J J, Scholten R E, Palm E C *et al.*. Laser-focused atomic deposition. *Science*, 1993, **262**(5135):877~880
- 3 Anderson W R, Braadley C C, McClelland J J *et al.*. Minimizing feature width in atom optically fabricated chromium nanostructures. *Phys. Rev. (A)*, 1999, **59**(3):2476~2485
- 4 Chang Jae Lee. Quantum-mechanical analysis of atom lithography. *Phys. Rev. (A)*, 2000, **61**(6):063604-1~06364-9
- 5 Behringer R E, Natarajan V, Timp T. Optimal profile for a Gaussian standing-wave atom-optical lens. *Opt. Lett.*, 1997, **22**(2):114~116
- 6 McGowan R W, Giltner D M, Lee S A. Light force cooling, focusing, and nanometer-scale deposition of aluminum atoms. *Opt. Lett.*, 1995, **20**(24):2535~2537
- 7 McClelland J J, Anderson W R, Celotta R J. Nanofabrication via atom optics with chromium. *Proc. SPIE*, **2995**:90~96
- 8 Rehse S J, Glueck A D, Lee S A *et al.*. Nanolithography with metastable neon atoms: Enhanced rate of contamination resist formation for nanostructure fabrication. *Appl. Phys. Lett.*, 1997, **71**(10):1427~1429
- 9 Ishkhanyan A M. Diffraction of atoms by a standing wave at Gaussian initial momentum distribution. *Phys. Rev. (A)*, 2000, **61**(6):063611-1~063611~6
- 10 Yang Benhui, Gao Hongtao, Han Keli. Time-dependent quantum dynamics study of the Cl + H₂ reaction. *J. Chem. Phys.*, 2000, **113**(4):1434~1440
- 11 Peng Jinsheng, Li Gaoxiang. *The Introduction of Modern Quantum Optics* (近代量子光学导论). Beijing: Science Press, 1996. 30 (in Chinese)
- 12 Wang Zhuxi, Guo Dunren. *The Generality of Special Function* (特殊函数概论). Beijing: Science Press, 1979. 680 (in Chinese)
- 13 Zeng Qinglin, Huo Yunsheng, Cai Weiquan *et al.*. Atom-lithography in red far-detuning high-power standing wave. *Acta Optica Sinica* (光学学报), 2001, **21**(8):918~922 (in Chinese)

Diffraction Aberration of Focusing Atom Beam of Metastable Helium in Laser Standing Wave

Gao Hongtao Li Zhan Chen Xu'nan

(State Key Lab of Optical Technologies for Microfabrication, Institute of Optics and Electronics,
The Chinese Academy of Sciences, Chengdu 610209)

(Received 9 April 2002; revised 2 August 2002)

Abstract: The diffraction aberration of focusing atom beam of metastable helium in laser standing wave is studied by using quantum mechanics. A quasi-classical model accordance with the existing model under the particular condition is built. The time-dependent evolution operator method with fast computational speed and convergence is put forward to perform the calculations. Under given parameters of laser power and diameter etc, the simulation results show that atom beam of metastable helium has been focused with a FWHM of 54 nm and contrast of 16:1, the focal length and focal depth related to velocity and energy of atom beam. The diffraction effect contribute to the limited width of focus mostly.

Key words: matter wave; diffraction aberration; time-dependent evolution method; laser standing wave field