

锂原子的光激发和电场电离

马学伟 马小东 戴长建

天津理工大学理学院, 天津 300384

摘要 对处于 25P Rydberg 态的锂原子进行了电场电离的理论研究。采用三步共振激发技术,沿 $2S_{1/2}-2P_{3/2}-3D_{3/2}-25P$ 的激发路径,使锂原子在 25P Rydberg 态上布居,再施加脉冲电场使其电离。针对上述光激发+场电离过程所涉及各个原子态的粒子布居,建立起速率方程组,再通过拉普拉斯变换方法推导出各个态的粒子布居率和电离效率的解析表达式,以便对各个阶段的物理机理和特性进行理论分析。通过用 Matlab 语言自编的计算软件,不但定量分析了不同激光参数对光激发过程的影响,还研究了脉冲电场的参数对原子电离率的影响。研究表明,在本激发路径下,难以显著提高对 25P Rydberg 态的光激发效率,因而限制了电场电离的总体效率。

关键词 光谱学; 速率方程; 拉普拉斯变换; 多步光激发; 电场电离

中图分类号 O433

文献标识码 A

doi: 10.3788/AOS201535.0602004

Electric Field Ionization of Lithium Atom

Ma Xuewei Ma Xiaodong Dai Changjian

School of Science, Tianjin University of Technology, Tianjin 300384, China

Abstract Electric field ionization of the Li 25P Rydberg state is studied theoretically with the three-step resonant excitation, $2S_{1/2}-2P_{3/2}-3D_{3/2}-25P$, and ionized by an external electric-field pulse. The rate equations for the related particle population of different atomic states are set up for the above process, from which the analytic solutions of the particle populations of different states and ionization efficiency are derived with the Laplace transformation. In order to explore the physical mechanism and characteristics of each step during the process, a home-made Matlab programs is written. The impact of both parameters of laser and electric-field pulses used in photoexcitation and electric-field ionization processes on the ionization probability has been analyzed quantitatively. The study indicates that with the present excitation scheme photoexcitation efficiency of the 25P Rydberg state is hard to be improved significantly, leading to the limitation of overall efficiency of the electric-field ionization.

Key words spectroscopy; rate equation; laplace transformation; multi-step photoexcitation; electric field ionization

OCIS codes 020.5780; 300.6210; 020.2649; 070.2465

1 引言

共振光激发和光电离光谱(RIS)已经广泛应用于原子光谱^[1]、化学反应^[2]等研究领域。但是,将原子从激发态直接光电离^[3](PI)的电离截面小于 10^{-18} cm^2 ,因而其效率较低,在诸如激光分离同位素^[4]等重要应用场合,如何能大幅提高电离效率备受关注。其中,人们对原子的自电离(AI)^[5-8]或电场电离(EFI)^[9-10]等先进技术给予了很高的期望,因为 AI 过程的电离截面可达 10^{-15} cm^2 。然而,对于碱金属原子而言,其自电离态的能级位置都很高,比如:对于锂原子,它们都在 50 eV 以上,导致其激发波长远远短于可见波段。所以多采用 PI 或 EFI

收稿日期: 2014-12-17; 收到修改稿日期: 2015-03-01

基金项目: 国家自然科学基金(11174218)

作者简介: 马学伟(1991—),男,本科生,主要从事原子光谱和激发动力学方面的研究。E-mail: 15222238381@126.com

导师简介: 戴长建(1957—),男,教授,博士生导师,主要从事原子光谱和激发动力学方面的研究。

E-mail: daicj@126.com(通信联系人)

过程提高电离效率。众所周知,EFI的电离效率很高,理想情况下可达100%^[11]。但是,由于受到EFI的阈值的限制,通常需要先将其原子多步激发到Rydberg态才能实现EFI。尽管已有大量关于原子EFI的研究报道,但是多关注其应用^[12]、阈值^[13]或Stark效应^[14]等特性的研究,而对于原子EFI的动力学过程或EFI的效率等方面的研究却很少。

显然,无论采用PI或EFI方式,欲提高多步激发而使原子电离的总体效率,不仅要关注最后一步的电离效率,也要提高多步激发的效率。因此,EFI的总体电离效率会受限于Rydberg原子的激发效率,因为其激发截面仅为 10^{-15} cm^2 量级。若用PI方式,则可避开Rydberg态的激发而选择那些较低的高激发态,它们的激发截面在 10^{-12} cm^2 的量级,从而大幅提高其激发效率。可见,采用PI或EFI方式各有利弊,其最终效果会显著不同。然而,迄今为止,尚未见到有关定量比较上述两种过程(光激发+PI和光激发+EFI)的电离效率的报道。所以,针对上述研究现状和存在的问题,本文将定量计算电场电离的总体效率,这不仅具有学术价值也富有工程意义。

本文将以锂原子为研究对象,采用三个激光脉冲场先将其激发到25P Rydberg态,再用EFI方式将其电离。期望能对锂原子的光激发和EFI的动力学行为和与之相关的激光分离同位素工程^[15]提供有价值的信息。

2 速率方程的建立

先建立锂原子的多步光激发和电场电离过程的速率方程组,再利用拉普拉斯变换方法求解方程组,得到各个能级的粒子布居率和电离效率的解析表达式。然后,通过用Matlab编程并进行理论计算,获得锂原子在各态的粒子布居率和电离效率及其随激光参数和电场参数的变化规律。通过对多种计算结果的对比和分析,优化各脉冲激光和脉冲电场的参数。

采用三步激发的方式先制备出处于25P Rydberg态的锂原子样品,再利用EFI方式将其电离,最后通过改变激光和电场参数,研究如何才能提高其总体电离效率。显然,上述过程共涉及锂原子的五个状态,如图1所示。其中,0表示原子的基态 $2S_{1/2}$;1和2分别表示两个中间激发态: $2P_{3/2}$ 和 $3D_{3/2}$;R和 ϵ 则分别表示25P Rydberg态和电离态。

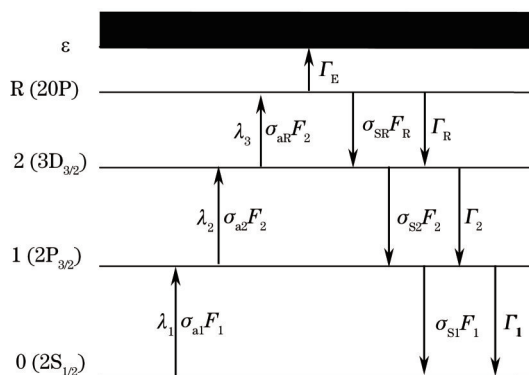


图1 锂原子的三步光激发与EFI过程

Fig.1 Three-step photoexcitation and EFI process of lithium atom

在图1中, λ_1 、 λ_2 和 λ_3 分别为前三步激发光的波长。 F_1 、 F_2 和 F_R 分别为对应的三步激发光的激光强度, σ_{a1} 、 σ_{a2} 和 σ_{ar} 分别表示 $0 \rightarrow 1$ 、 $1 \rightarrow 2$ 和 $2 \rightarrow R$ 这三个跃迁的共振吸收截面; σ_{s1} 、 σ_{s2} 和 σ_{sr} 分别为上述能级跃迁之间的受激辐射截面; Γ_1 、 Γ_2 和 Γ_R 分别为1、2和R态的自发辐射速率; Γ_E 为场电离的速率。

显然,当上述三个激发态的光谱数据为已知,并选用纳秒量级的脉冲激光时,可调谐每一步激发光的波长使锂原子共振激发。需要指出的是,锂原子有 ${}^6\text{Li}$ 和 ${}^7\text{Li}$ 这两种同位素,其2P态具有 0.35 cm^{-1} 的同位素位移^[4],通常脉冲激光器的典型频宽为 0.5 cm^{-1} ,所以脉冲激光无法分辨这两种同位素原子,所以仅考虑同时激发它们的情况。换言之,两种同位素原子的总频宽由两种 ${}^6\text{Li}$ 和 ${}^7\text{Li}$ 原子的频宽之和再加两者的同位素位移,该值大于所用激光的频宽。所以,只考虑共振激发和电离的情况,忽略频率失谐的影响。

应当指出:上述的选择和推理仅限于采用纳秒量级的脉冲激光的情况。若采用超短脉冲激光时,由于其频宽大得多,频率失谐等因素所产生影响必须受到关注^[16]。另一方面,当采用多步激发和光电离方式分离原子的同位素时,也必须考虑频率失谐的影响^[17-18]。最后,为避免可能的Stark效应,经过一段时间延迟之后

外加一个电场脉冲,使锂原子EFI。

另外,为了突出所关心的物理问题,必须对实际问题进行简化,以便建立光脉冲和电脉冲的物理建模。每一个脉冲序列都包括三个激光脉冲和一个电场脉冲,图2给出了相邻两个脉冲序列的示意图。

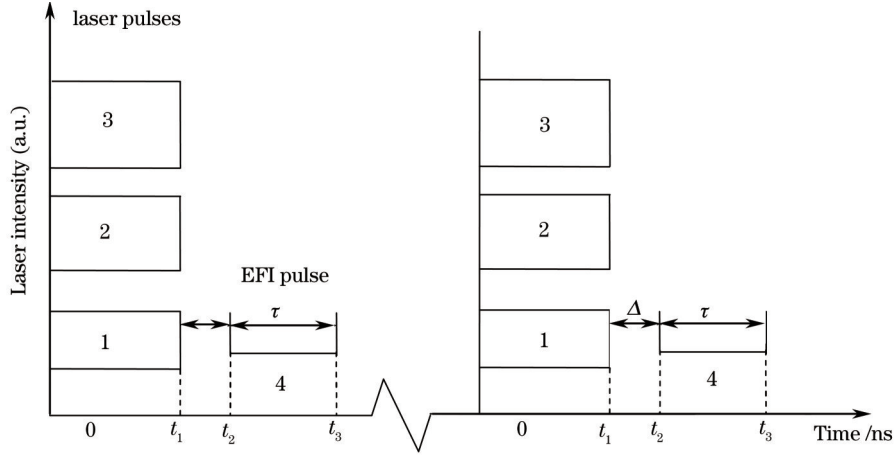


图2 脉冲激光场和脉冲电场的时间和序列模型

Fig.2 Time sequence model for laser and electric field pulses

由图2可知,在此模型中,三个激光脉冲都采用了矩形波,而且同时开与关。这基于两方面的考虑:1) 虽然激光脉冲不是矩形波,但通常可将其等效为一个矩形脉冲,这两种脉冲的包络下的面积基本相当。2) 为了避免Stark效应,会控制电脉冲略迟后于光脉冲。所以电脉冲的上升前沿不会对R态上的原子产生影响,因而可以忽略由此产生的Stark效应。所以,将其简化为矩形波不会产生不利影响。所以,若以序号1~4分别表示三个激光脉冲和电场脉冲,以 t_1 和 $\tau = t_3 - t_2$ 分别表示激光和电场的脉冲宽度,则 $\Delta = t_2 - t_1$ 为电场相对于激光的脉冲延迟时间。

在此之前所开展的三步激发和光电离的研究中,详细比较了四种不同的脉冲时序组合方案。结果表明,当三个激光脉冲的延迟为零时,可获得最大的电离产额。所以,在图2中选用了三步激光同时激发的模式,以期获得最多的Rydberg原子,从而提高EFI的总体效率。

根据图1和图2所示的光激发、场电离过程和脉冲序列模型,结合原子数的守恒原理,便可在上述的各个时段内,建立起反映布居率随时间 t 变化的速率方程组,即:

1) 当 $0 < t < t_1$ 时

$$\begin{cases} \frac{dn_0}{dt} = -\sigma_{a1} F_1 n_0 + (\sigma_{s1} F_1 + \Gamma_1) n_1 \\ \frac{dn_1}{dt} = \sigma_{a1} F_1 n_0 - (\sigma_{a2} F_2 + \sigma_{s1} F_1 + \Gamma_1) n_1 + (\sigma_{s2} F_2 + \Gamma_2) n_2 \\ \frac{dn_2}{dt} = \sigma_{a2} F_2 n_1 - (\sigma_{s2} F_2 + \Gamma_2 + \sigma_{aR} F_R) n_2 + (\sigma_{sR} F_R + \Gamma_R) n_R \\ \frac{dn_R}{dt} = \sigma_{aR} F_R n_2 - (\sigma_{sR} F_R + \Gamma_R) n_R \end{cases}, \quad (1)$$

2) 当 $t_1 < t < t_2$ 时

$$\frac{dn_R}{dt} = -\Gamma_R n_R, \quad (2)$$

3) 当 $t_2 < t < t_3$ 时

$$\begin{cases} \frac{dn_R}{dt} = -(\Gamma_R + \Gamma_E) n_R \\ \frac{dn_i}{dt} = \Gamma_E n_R \end{cases}. \quad (3)$$

若忽略各能级统计权重的影响,则有 $\sigma_{a1} = \sigma_{s1} = \sigma_1$, $\sigma_{a2} = \sigma_{s2} = \sigma_2$, $\sigma_{aR} = \sigma_{sR} = \sigma_R$. 为了便于计算,引入系数: $c_1 = \sigma_1 F_1$, $c_2 = \sigma_2 F_2$, $c_3 = \sigma_R F_R$, 可将速率方程重写为:

当 $0 < t < t_1$ 时

$$\begin{cases} \frac{dn_0}{dt} = -c_1 n_0 + (c_1 + \Gamma_1) n_1 \\ \frac{dn_1}{dt} = c_1 n_0 - (c_1 + c_2 + \Gamma_1) n_1 + (c_2 + \Gamma_2) n_2 \\ \frac{dn_2}{dt} = c_2 n_1 - (c_2 + c_3 + \Gamma_2) n_2 + (c_3 + \Gamma_R) n_R \\ \frac{dn_R}{dt} = c_3 n_2 - (c_3 + \Gamma_R) n_R \end{cases}, \quad (4)$$

当 $t_1 < t < t_2$ 时

$$\frac{dn_R}{dt} = -\Gamma_R n_R, \quad (5)$$

当 $t_2 < t < t_3$ 时

$$\begin{cases} \frac{dn_R}{dt} = -(\Gamma_R + \Gamma_E) n_R \\ \frac{dn_i}{dt} = \Gamma_E n_R \end{cases}, \quad (6)$$

若对(4)~(6)式进行拉普拉斯变换,则可得方程组

当 $0 < t < t_1$ 时

$$\begin{cases} s n_0(s) + c_1 n_0(s) - (c_1 + \Gamma_1) n_1(s) - n_0 = 0 \\ s n_1(s) - c_1 n_0(s) + (c_1 + c_2 + \Gamma_1) n_1(s) - (c_2 + \Gamma_2) n_2(s) = 0 \\ s n_2(s) - c_2 n_1(s) + (c_2 + c_3 + \Gamma_2) n_2(s) - (c_3 + \Gamma_R) n_R(s) = 0 \\ s n_R(s) - c_3 n_2(s) + (c_3 + \Gamma_R) n_R(s) = 0 \end{cases}, \quad (7)$$

当 $t_1 < t < t_2$ 时

$$s n_R(s) + \Gamma_R n_R(s) - n_R(t_1) = 0, \quad (8)$$

当 $t_2 < t < t_3$ 时

$$\begin{cases} s n_R(s) + (\Gamma_R + \Gamma_E) n_R(s) - n_R(t_2) = 0 \\ s n_i(s) - \Gamma_E n_R(s) = 0 \end{cases}, \quad (9)$$

式中 n_0 为初始时刻($t=0$)处于基态的原子数目。通过求解(7)式,可以得到各个态的布居数 $n_i(k=0, 1, 2, R)$ 与 s 的关系,即:

当 $0 < t < t_1$ 时

$$\begin{cases} n_0(s) = k_{00}/s + k_{01}/(s - s_1) + k_{02}/(s - s_2) + k_{03}/(s - s_3) \\ n_1(s) = k_{10}/s + k_{11}/(s - s_1) + k_{12}/(s - s_2) + k_{13}/(s - s_3) \\ n_2(s) = k_{20}/s + k_{21}/(s - s_1) + k_{22}/(s - s_2) + k_{23}/(s - s_3) \\ n_R(s) = k_{R0}/s + k_{R1}/(s - s_1) + k_{R2}/(s - s_2) + k_{R3}/(s - s_3) \end{cases}, \quad (10)$$

式中的各系数可通过求解(1)、(3)和(7)式而得到。对(8)、(9)和(10)式进行拉普拉斯逆变换,便可得到各个态的原子布居率和电离效率,即:

当 $0 < t < t_1$ 时

$$\begin{cases} \eta_0(t) = n_0(t)/n_0 = k_{00} + k_{01} \exp(s_1 t) + k_{02} \exp(s_2 t) + k_{03} \exp(s_3 t) \\ \eta_1(t) = n_1(t)/n_0 = k_{10} + k_{11} \exp(s_1 t) + k_{12} \exp(s_2 t) + k_{13} \exp(s_3 t) \\ \eta_2(t) = n_2(t)/n_0 = k_{20} + k_{21} \exp(s_1 t) + k_{22} \exp(s_2 t) + k_{23} \exp(s_3 t) \\ \eta_R(t) = n_R(t)/n_0 = k_{R0} + k_{R1} \exp(s_1 t) + k_{R2} \exp(s_2 t) + k_{R3} \exp(s_3 t) \end{cases}, \quad (11)$$

当 $t_1 < t < t_2$ 时

$$\eta_R(t) = \eta_R(t_1) \exp[-\Gamma_R(t - t_1)], \quad (12)$$

当 $t_2 < t < t_3$ 时

$$\begin{cases} \eta_R(t) = \eta_R(t_2) \exp[-(\Gamma_R + \Gamma_E)(t - t_2)] \\ \eta_i(t) = \eta_R(t_2) \{1 - \exp[-(\Gamma_R + \Gamma_E)(t - t_2)]\} \Gamma_E / (\Gamma_R + \Gamma_E) \end{cases}, \quad (13)$$

式中的未知系数都可由约束关系求得。尽管(11)~(13)式已经给出了五个原子状态的原子布居率的解析表达式,但由于过于繁杂,不能直接讨论其随时间的变化规律。这也反衬出数值解的必要性,其结果将在下一节给出。

3 计算结果与讨论

为了求解上述的三步光激发和EFI动力学方程,需要首先提供各个态的光谱参数和所用激光的参数值。当选取参数时,则至少要给出其数量级,才能得出有意义的数值计算结果。

由图1所示的激发路径,可确定其对应的三步激发光的波长分别为: 1) $\lambda_1 = 670.79 \text{ nm}$; 2) $\lambda_2 = 610.35 \text{ nm}$; 3) $\lambda_3 = 810 \text{ nm}$ 。其次, $2P_{3/2}$ 、 $3D_{3/2}$ 和 $25P$ 这三个激发态的寿命分别为: 27.3 ns ^[19]、 14.7 ns ^[19]和 40730 ns ^[20]。对应态的自发辐射速率依次为: $\Gamma_1 = 3.663 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ 、 $\Gamma_2 = 6.803 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ 和 $\Gamma_R = 24552 \text{ s}^{-1}$ 。

在计算各态的原子布居率时,还需要了解激光参数和原子参数的关系^[21],即:

$$\begin{cases} \sigma_i = \frac{\lambda_i^2 \Gamma_i}{2\pi \Delta\nu} \\ F_i = 5.0 \times 10^{13} \frac{\lambda_i P_i}{S_i} \\ \Delta\nu = 7.16 \times 10^{-7} \left(\frac{T}{M}\right)^{\frac{1}{2}} \nu_0 \end{cases}, \quad (14)$$

式中 λ 为激发光波长, Γ 为爱因斯坦自发辐射系数, $\Delta\nu$ 为激发激光线宽。 P 是以W为单位的激光功率, ν_0 为共振激发的激光频率, S 是以 mm^2 为单位的激光束的聚焦面积;式中角标 $i=1, 2$ 和 3 分别对应于第 $1, 2$ 和 3 步的激发。如前所述,对于锂原子,脉冲激光无法分辨 ${}^6\text{Li}$ 和 ${}^7\text{Li}$ 这两种同位素原子,所以仅考虑同时激发它们的情况。但是,前者的丰度仅为 7.53% ,而后者占主导地位,所以取 ${}^7\text{Li}$ 原子的质量为 $M=7$,若选取实验参数 $S=3 \text{ mm}^2$ 和 $T=600 \text{ K}$,则由(14)式可以得到系数 c_1 、 c_2 和 c_3 与各激发功率之间的关系,即:

$$\begin{cases} c_1 = 2.678 \times 10^{10} \frac{P_1}{\nu_1} \\ c_2 = 3.772 \times 10^{10} \frac{P_2}{\nu_2} \\ c_3 = 3.158 \times 10^8 \frac{P_3}{\nu_3} \end{cases}. \quad (15)$$

由(15)式可见,由于三步激发光的频率为已知,所以此时的系数 c_1 、 c_2 和 c_3 似乎只与三步激发光的功率相关,但是,若考虑到在导出(4)式之前,引入这三个系数时对其的定义,则可知它们实际上也已经包含了相关原子状态的所有信息。所以,在下面的计算中,将复杂的原子和激光参数的选择问题简化为求解各个态粒子布居率分别随三束激光的作用时间 t_i 和这三个系数的变化规律的问题。

另外,由(15)式还可以看出: c_3 的值比 c_1 、 c_2 低了2个数量级。这是由于第三步跃迁的激发截面比第一和第二步跃迁小得多。若代入三步激发光的功率值和对应跃迁的激发频率值,则可估算出 c_1 、 c_2 和 c_3 的取值范围,通常应在 1 GHz 的量级。由于它们对应于这三步激发的Rabi频率^[22],所以并非越大越好。若太小则无法实现饱和激发,若太大又会导致功率加宽的效应。

因此,在计算中只要根据实验条件选取合理的激发光功率,使对应的 c_1 、 c_2 和 c_3 系数在上述估值左右,则可实现三步跃迁的饱和激发,以便获得更多的Rydberg原子。下面将分三个时间段,分别针对光激发过程、延迟过程和EFI过程的结果进行讨论。

3.1 光激发过程

要提高EFI的总体效率,就必须优化原子的光激发过程。为此,需要研究原子在各态的布居率对各步激发光的依赖关系。图3展示了锂原子的三个相关态随 c_1 、 c_2 、 c_3 和脉冲宽度 t_1 的变化曲线。值得指出的是: c_1 、 c_2 和 c_3 的单位都用 GHz ,但为了避免多次重复,下列各图中只标注了它们的数值。

由图3可见,当固定激光的脉冲宽度 t_1 的值而改变它们的参数 c_1 、 c_2 和 c_3 时,R态的原子布居率最终都分别趋于一个饱和值,其最大值约为 24% 。另一方面,当分别固定参数 c_1 、 c_2 和 c_3 的值时,R态的原子布居率随

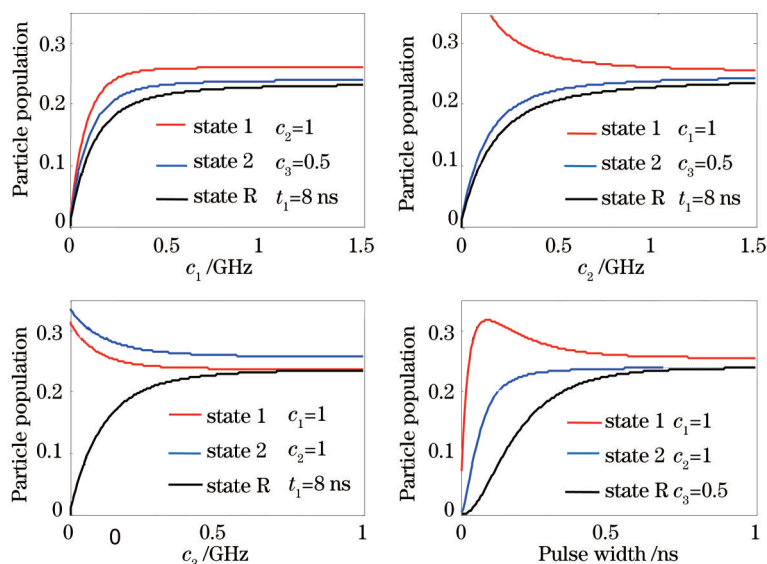


图3 各个原子态的原子布居率随激光参数的变化

Fig.3 Variations of probability of different states with laser parameters

t_1 的变化曲线也都趋于一个饱和值,其最大值接近 25%。这一现象表明:尽管处于 R 态的原子数会随激光的参数改变而提高,但其饱和值基本不变。对此结果的解释是:当原子从基态经过三步激发后处于 Rydberg 态,然后通过两种渠道向下辐射:1)固有的寿命导致的自发辐射;2)激光作用下的受激辐射。这两种过程都无法避免,前者是原子本身决定的,后者则随激光的增大而增强。这些辐射过程不断消耗着 R 态上的原子,最终与激发过程动态平衡。由于 R 态上的原子寿命很长,其自发辐射的消耗远比受激辐射小。当激发光很强时,后者的消耗率将急剧提高。

图 4 展示了当分别固定参数 c_2 和 c_3 时, (c_2 和 c_3 分别固定在 1.0 和 0.5 GHz) R 态的原子布居率随 c_1 和 t_1 的变化曲线。

由图 4 可见,当激光的脉冲宽度 t_1 固定时, R 态的原子布居率都能随 c_1 的增加而趋于一个饱和值,且当 $t_1 = 10$ ns 时该值最大。

同理,也可以观察 R 态的原子布居率随 c_2 和 t_1 的变化规律,如图 5 所示。 (c_1 和 c_3 分别固定在 1.0 和 0.5 GHz)

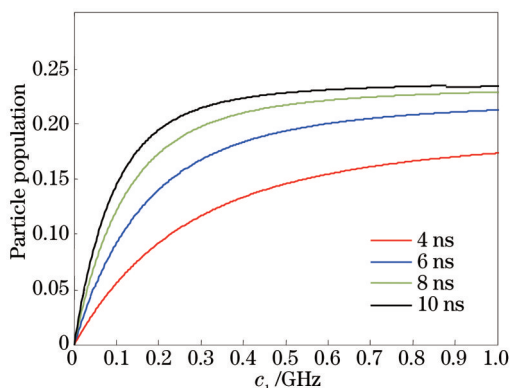


图4 25P 态原子布居率随 c_1 和 t_1 的变化曲线

Fig.4 Variations of probability of the R state with the first-step laser parameters

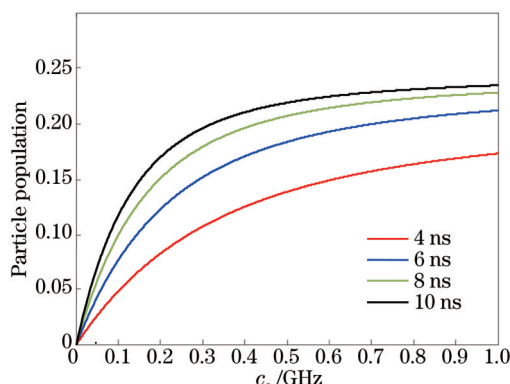


图5 25P 态原子布居率随 c_2 和 t_1 的变化曲线

Fig.5 Variations of probability of the R state with the c_2 and t_1

图 5 与图 4 所呈现的整体变化趋势相似,即在不同的 t_1 值下, R 态原子布居率随着 c_2 的增大而趋向饱和和随各自参数变化的曲率稍有不同。这说明前两步激光具有相同的激发机理,只是激发的原子能级有所不同。

最后,图 6 展示了 R 态的原子布居率随 c_3 和 t_1 的变化规律。

因为只有第三步激发光才能将 2 态上的原子激发到 R 态上,所以与图 4 和图 5 不同,图 6 展示了 c_3 对 R 态

的原子布居率的直接影响。可见,当作用时间分别为8~10 ns时,可得到最大的R态原子的布居率。

在三步激发光都取相同的参数值,即 $c_1=c_2=c_3$ 时,R态的原子布居率随激发光脉冲宽度的变化规律,如图7所示。

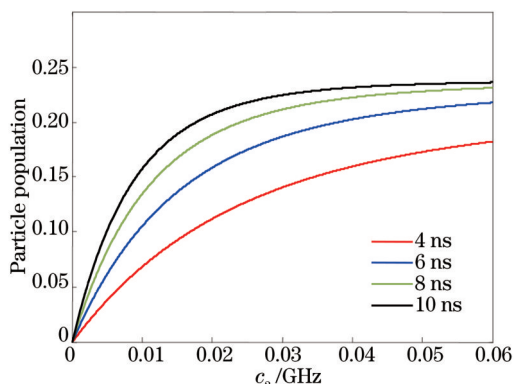


图6 25P态原子布居率随 c_3 和 t_1 的变化曲线

Fig.6 Variations of probability of the R state with the first-step laser parameters

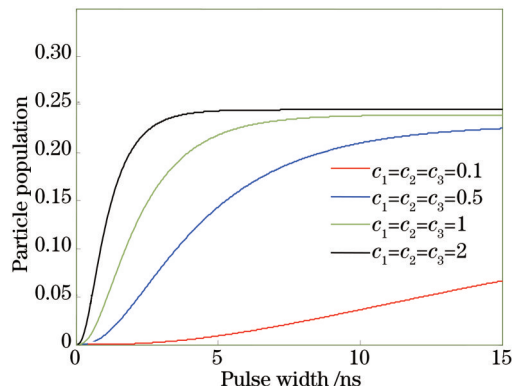


图7 25P态原子布居率随 t_1 的变化曲线

Fig.7 Variations of probability of the R state with laser pulse width

由图7可见,在不同激光参数下,R态原子布居率都先随激发光的脉冲宽度的增大而增大,但最大值仍为25%左右。另一方面,当激光强度增大时,布居率会较快地达到饱和。

3.2 延迟过程

众所周知,在电场中激发原子时,将会出现 Stark 效应,从而影响激发和电离效率。为避免 Stark 效应,必须设置电场脉冲延迟于光场脉冲。在此延迟过程中,既无光场也无电场,处于R态的原子只会通过自发辐射而向下跃迁。鉴于光场的上升前沿和下降后沿与具体的激光有关,通常约为纳秒量级。若取延迟时间为 $\Delta = t_2 - t_1 = 2$ ns,则由(12)式计算可知,电离率 $\eta_R(t_2) = \eta_R(t_1)$ 。这表明:延迟2 ns对R态的布居率几乎没有影响。这是因为R态原子的寿命都很长^[12],一般都不小于微秒量级。

3.3 电场电离过程

现在可以根据前面所给出的物理模型和锂原子25P态的物理性质,讨论如何控制或选择脉冲电源的参数,优化EFI过程,高效率地使锂原子电离。实现EFI的必要条件是电场强度要大于25P态的EFI阈值。为此,需要先分析一下所选25P态的物理特性。

首先,选择该态的原子作为实施EFI过程的对象,有下列优点:1) 其零场下的光谱参数为已知,比如当 $l=1$ 时,其量子亏损为0.047,比S态的0.4小了一个量级,却比D态的0.002大了一个量级。正由于其明显的非类氢性质,使之EFI过程趋向于绝热电离过程,即EFI的电离阈值为经典的电离限,因而最低;2) 由于 $n=25$,即 n 和 l 值都适中,可忽略由于原子束的温度所产生的黑体辐射对其电离过程的影响^[23];3) 对于P态,只要选择合适的偏振组合,即三步激发光都采用 π 偏振,则可以确保其只被激发 $m=0$ 的成分,从而确保它沿绝热电离的通道实现EFI过程。

据此,可以采用经典的EFI的阈值 F_c 。若采用原子单位,则:

$$\begin{cases} F_c = \frac{1}{16n^{*4}} \\ n^* = n - \delta_{25p} \\ \delta_{25p} = 0.0472 \end{cases} \quad (16)$$

由此得出,锂原子25P态的EFI阈值为 $F_c = 822.4$ (V/cm)。显然,实验室内很容易满足该电场强度的要求。

其次,在满足上述基本条件的基础上,还需要根据图1和(3)式,考察电离速率 Γ_e 对电离态的布居率的影响。显然,在相关的实验中,只要控制脉冲电源的参数,便可自如地改变电离速率 Γ_e 的值。当分别选取 $\Gamma_e = 0.01, 0.05, 0.1$ 和 0.3 GHz时,图8分别展示了R态原子的电离几率随电场脉冲的宽度的变化规律。开始于 t_2 时刻,并不断上升的四条蓝色曲线分别表示对应于 Γ_e 为0.01(实线),0.05(短点划线),0.1(长点划线)和0.3 GHz

(虚线)的电离几率结果。为了进行对比,在图中用先上升到最大值,再不断衰减的四条红色曲线分别表示对应上述四条蓝色曲线的结果,以便观察R态原子的布居率在各个时段的演化过程。

由图8可见,从 t_2 开始随着电场脉冲的持续,R态原子的布居率在下降,而电离态的布居率却持续上升。特别当取 $\Gamma_E=0.3$ GHz时,最终可达到饱和值。表明R态原子的布居全部转移到了电离态上。换言之,在此条件下,EFI的电离效率为100%。而对于其他三个 Γ_E 值,在图示的时间内未达到饱和,只要增加EFI的脉冲时间,最终也可实现饱和。需要指出的是,图8展示了很短的时间,而通常EFI脉冲点源的宽度可达微秒量级。

另一方面,图9展示了当固定EFI的脉冲时间时,电离态的布居率随 Γ_E 值的变化规律。

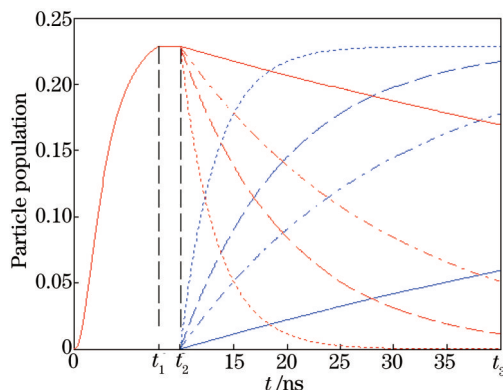


图8 25P态原子和电离态的布居率随EFI的作用时间的演化规律

Fig.8 Variations of probability of the R state and ionization with EFI pulse width

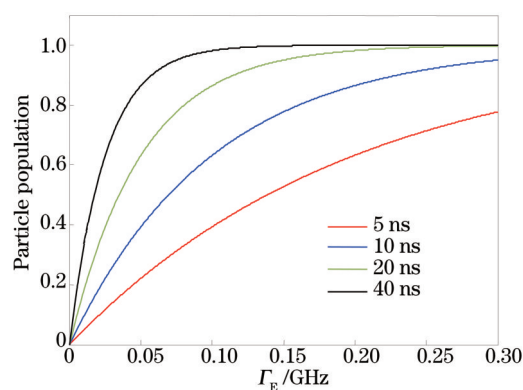


图9 电离几率随 Γ_E 的演化规律

Fig.9 Ionization probability with Γ_E and t

由图9可知:在不同的作用时间 t 下,电离几率随着 Γ_E 增大而趋于饱和的速率不同: t 越长,饱和得越快;若 t 较短,在有限的电离速率下原子不能被完全电离。

上述的结果表明:因为EFI本身的效率可达100%,所以只要能提高R态原子的布居率,则EFI的总体效率就会随之提高。而R态原子的布居率难以提高的原因在于:为了避免Stark效应,电场脉冲要延迟于激光脉冲,而在这段时间内,R态上的原子未能被及时清空,且受激辐射的驱动回流到低激发态。从而使原子数在0、1、2和R态上实现了动态平衡,即原子数在四个态上均分,各占25%的份额。据此提出了几个可能改变EFI效率的方案:1)不在忽略各态的统计权重,并选取该值较大的Rydberg态,如:25f态,作为光激发的终态,从而大幅度提高其布居率;b)取消电场脉冲相对于激光脉冲的延迟,让他们同时作用于原子。此时,虽然引入了Stark效应,但电场脉冲能及时清空处于R态上的原子。虽然Stark效应会导致速率方程的严重复杂化,甚至无法导出解析解,但借助于强大的计算能力,可以先将Stark态的EFI过程分成绝热和非绝热这两种渠道,因为两者的电离效果会迥然不同。

4 结 论

系统研究了锂原子的三步光激发和25P态的电场电离的动力学过程。分别揭示了各态的激发效率和25P态的电离效率随时间、光强等参数的演化规律。讨论了原子参数和光场和电场特性对上述动力学过程的影响。结果表明:由于受激辐射的阻碍和所采用的激发路径以及多个脉冲的时间序列的约束,Rydberg态的布居率很难提高。虽然Rydberg态的电场电离的效率可达100%,但是若考虑到它不能被有效地激发,则总体的电离效率也很难提高。针对上述情况,提出了改进方案,期望能进一步地探索和解决上述困难。

参 考 文 献

- 1 C J Dai. Perturbed 5snd $^{13}\text{D}_2$ Rydberg series of Sr[J]. Phys Rev A, 1995, 52(6): 4416-4424.
- 2 J Keller, J Weiner. Production of Ba^+ in a two-photon radiative collision in crossed Na-Ba beams[J]. Phys Rev A, 1984, 29(4): 2230-2231.
- 3 M Li, C J Dai, J Xie. Photoionization spectra of even-parity states of Sm atom with multistep excitation[J]. Quant Spectro Radiat

- Transfer, 2011, 112(5): 793–799.
- 4 M Saleem, S Hussain, M Rafiq, et al.. Laser isotope separation of lithium by two-step photoionization[J]. J Appl Phys, 2006, 100(5): 053111.
- 5 X Wang, L Shen, C J Dai. Interaction among different Rydberg series of the europium atom[J]. J Phys B, 2012, 45(16): 165001.
- 6 Y H Zhao, C J Dai, S W Ye. Autoionization spectrum of Sm atom[J]. Chinese Phys B, 2013, 22(2): 023203.
- 7 Yang Jinhong, Wang Xi, Shen Li, et al.. Interaction of Eu atom $6p_{1/2}nl$ ($l=0, 2$) autoionizing Rydberg states[J]. Acta Optica Sinica, 2013, 33(10): 1030002.
杨金红, 王 曦, 沈 礼, 等. Eu 原子 $6p_{1/2}nl$ ($l=0,2$) 自电离 Rydberg 态的相互作用[J]. 光学学报, 2013, 33(10): 1030002.
- 8 Dong Cheng, Shen Li, Yang Jinhong, et al.. Angular distribution of ejected electrons from Eu $4f^7 6p_{1/2} 8s$ auto-ionizing state studied by velocity mapping imaging technique[J]. Acta Optica Sinica, 2014, 34(7): 0702001.
董 程, 沈 礼, 杨金红, 等. 用速度影像法研究 Eu 原子 $4f^7 6p_{1/2} 8s$ 自电离态的弹射电子角分布[J]. 光学学报, 2014, 34(7): 0702001.
- 9 Jun Xie, Changjian Dai, Ming Li. Application of electric field ionization method to detect the high-lying Rydberg states of Eu I[J]. Chin Opt Lett, 2011, 9(5): 050201.
- 10 Jie Chen, Hao Zhang, Limei Wang, et al.. State transfer of nS ultracold Rydberg atoms in external electric fields[J]. European Physical Journal D, 2014, 68(9): 265.
- 11 Ye Shiwei, Dai Changjian, Zhao Yanhong. Investigation of even-parity highly excited states of Eu I with electric field ionization method[J]. Acta Optica Sinica, 2012, 32(2): 0230001.
野仕伟, 戴长建, 赵艳红. Eu 原子偶宇称高激发态的电场电离探测[J]. 光学学报, 2012, 32(2): 0230001
- 12 H Jing, S W Ye, C J Dai. Lifetimes of Rydberg states of Eu atoms[J]. Chin Phys B 2015, 24(1): 013203.
- 13 C J Dai, S Zhang, X W Shu, et al.. Pulsed electric-field ionization of Stark states of neutral ytterbium[J]. J Quant Spectro Radia Trans, 1995, 53(2): 179–188.
- 14 S B Li, C J Dai. Saturation effects on Ba $6pnl$ ($l=0, 2$) and $6p_{nk}$ autoionization spectra[J]. Chin Phys B, 2007, 16(2): 382–391.
- 15 A B D'yachkov, S K Kovalevich, A V Labozin, et al.. Selective photoionisation of lutetium isotopes[J]. Quantum Electronics. 2012, 42(10): 953–956.
- 16 C J Dai, Z D Chen. Photoexcitation of atom with ultrashort laser pulses[J]. Chin Phys, 2001, 10(5): 403–406.
- 17 Dai Changjian, Xu Changjiang. Selective photoionization of isotopic atoms with pulsed lasers[J]. Acta Phys Sin, 1994, 43(3): 356–368.
戴长建, 于长江. 脉冲激光场选择性光电离同位素原子[J]. 物理学报, 1994, 43(3): 356–368.
- 18 Fan Fengying, Wang Lijun. Influences of laser bandwidth and intensity on laser ionization of isotope atoms[J]. Acta Phys Sin, 2011, 60(9): 093203.
范凤英, 王立军. 激光线宽和光强对同位素原子选择光电离的影响[J]. 物理学报, 2011, 60(9): 093203.
- 19 A Lindgard, S E Nielsen. Transition probabilities for the alkali isoelectronic sequences LiI, NaI, KI, RbI, CsI, FrI[J]. Atom Data Nucl. Data. 1977, 19(6): 533–633.
- 20 C E Theodosiou. Lifetimes of alkali-metal-atom Rydberg states[J]. Phys Rev A, 1984, 30(6): 2881–2909.
- 21 E B Saloman. A resonance ionization spectroscopy[J]. Spectrochimica Acta B, 1992, 47(4): 517–543.
- 22 R Heidemann, U Raitzsch, V Bendkowsky, et al.. Evidence for coherent collective Rydberg excitation in the strong blockade regime[J]. Phys Rev Lett, 2007, 99(16): 163601.
- 23 I I Beterovm, D B Tretyakov, I I Ryabtsev, et al.. Ionization of sodium and rubidium nS , nP , and nD Rydberg atoms by blackbody radiation[J]. Phys Rev A, 2007, 75(5): 052720.

栏目编辑: 刘丰瑞