

量子统计权重对原子场电离效率的影响

戚晓秋 刘冬丽 戴长建

Influence of quantum statistical weight on efficiency of electric field ionization of atom

Qi Xiao-Qiu Liu Dong-Li Dai Chang-Jian

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, **66**, 073201 (2017) DOI: 10.7498/aps.66.073201

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.073201>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I7>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

原子多光子激发对电离阈值附近谐波发射的影响

The influences of multiphoton excitation on near-threshold Harmonic emission in atoms

物理学报.2016, 65(22): 223202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.223202>

利用“类维格纳分布函数”方法研究阈上电离

Study of above-threshold ionization by “Wigner-distribution-like function” method

物理学报.2016, 65(22): 223203 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.223203>

超快强场下低能光电子的研究进展 -----解析 R 矩阵半经典轨迹理论

Progress in study of low-energy photoelectron in ultra-fast strong fields-analytical R-matrix theory based semiclassical trajectory method

物理学报.2016, 65(22): 223204 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.223204>

中红外激光驱动激发态 Na 原子产生单个短脉冲

A single short pulse produced by the excited state of Na atom exposed to an infrared laser

物理学报.2016, 65(22): 223205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.223205>

双色场控制与测量原子分子超快电子动力学过程的研究进展

Research progress of the control and measurement of the atomic and molecular ultrafast electron dynamics using two-color field

物理学报.2016, 65(22): 223206 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.223206>

## 量子统计权重对原子场电离效率的影响\*

戚晓秋<sup>1)2)</sup> 刘冬丽<sup>1)</sup> 戴长建<sup>1)†</sup>

1)(天津理工大学理学院, 天津 300384)

2)(中国科学院武汉物理与数学研究所, 波谱与原子分子物理国家重点实验室, 武汉 430071)

(2016年12月1日收到; 2017年1月9日收到修改稿)

原子能级的量子统计权重 ( $G$ ) 是原子的重要光谱参数, 但在研究原子的电离过程中通常却为了简化问题而被忽略. 本文在锂原子的三步光激发 (PE)+ 电场电离 (EFI) 过程中计入了其影响, 并发现其对原子 EFI 效率的影响显著. 本文精心设计了一套锂原子的 PE+EFI 方案: 首先, 采用三台不同波长的脉冲激光器分三步将原子从基态激发到某一 Rydberg 态上, 经过一段时间延迟后再施加脉冲电场将其电离. 针对原子所经历的 PE、零场和 EFI 这三个物理过程, 本文对其物理机制进行了分析并建立了服从粒子数守恒的物理模型进而导出了显含  $G$  参数的普适的速率方程组. 其次, 通过 Matlab 编程, 分别针对精心选定的两条激发路径  $2S_{1/2} \rightarrow 2P_{1/2} \rightarrow 3S_{1/2} \rightarrow 25P_{1/2,3/2}$  和  $2S_{1/2} \rightarrow 2P_{3/2} \rightarrow 3D_{5/2} \rightarrow 25F_{5/2,7/2}$  开展了数值计算. 研究发现: PE+EFI 过程的总体效率的上限既与激光参数无关, 也不依赖于  $G$  参数的绝对值, 而是决定于 Rydberg 态的  $G$  参数的分支比. 总之, 通过精选激发路径可以调控 PE 过程各相关态的布居率, 并能适当提高 PE+EFI 过程的总电离效率, 但却因受到 Rydberg 态布居率的限制而很难进一步提高.

**关键词:** 锂原子, 三步光激发, 电场电离, 量子统计权重

**PACS:** 32.80.Rm, 32.80.Ee

**DOI:** 10.7498/aps.66.073201

## 1 引言

随着激光对高科技的日益渗透和对基础研究的强大支撑作用, 光激发 (PE) 和光电离 (PI) 技术的应用受到了广泛关注, 如光化学研究与激光同位素分离工程等<sup>[1,2]</sup>. 但是, 因受到其 PI 截面的限制, 欲提高 PE+PI 过程的电离效率就要求激光具有很高的强度<sup>[3]</sup>. 因此, 自电离 (AI)<sup>[4-6]</sup> 和电场电离 (EFI)<sup>[7,8]</sup> 等不同电离技术受到青睐. 虽然 AI 过程的电离效率远比 PI 过程高, 但由于碱金属原子的 AI 能级过高, 限制了该技术在这类原子上的运用. 虽然 EFI 技术 (包括机理、动力学特性、电离阈值和 Stark 效应等) 一直备受关注<sup>[9,10]</sup>, 但关于 EFI 效率的研究却鲜有报道. 为了降低原子的 EFI 阈值, 通常需要借助原子的高 Rydberg 态才能实现. 为此, 本文关注原子从基态经过 PE+EFI 过程的总电离

效率, 以下简称 EFI 效率. 上述问题源于目前的物理现状: 虽然从高 Rydberg 态进行 EFI 可以获得很高的效率<sup>[11]</sup>, 但原子从基态到高 Rydberg 态的 PE 效率通常很低, 导致 EFI 效率大幅降低, 如锂原子的 EFI 效率仅为 25%<sup>[12]</sup>.

通常, 在计算原子的 PI 效率时都假设各激发能级的  $G$  参数相同, 而忽略其影响<sup>[13-15]</sup>. 但是, 在 EFI 效率的计算中, 显然必须考虑 EFI 的特点, 即需要关注  $G$  参数对 EFI 效率的影响: 为了降低 EFI 阈值需要引入高 Rydberg 态, 并使 EFI 脉冲延迟于 PE 脉冲以避免 Stark 效应. 上述特点的直接后果是: PE 过程使原子在各相关态之间按一定的比例布居并达到动态平衡, 从而使优化 EFI 效率的关键问题变成提高 Rydberg 态的布居率的问题. 为此, 本文将首次在速率方程组中计入各能级的  $G$  参数, 并探讨其对 EFI 效率的影响.

\* 国家自然科学基金 (批准号: 11174218) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: daicj@126.com

## 2 通用的速率方程组

为了直观地理解锂原子的PE+EFI的过程,图1展示了该过程的跃迁示意图.其中,|0⟩是锂原子基态,|1⟩和|2⟩为锂原子的两个激发态,|R⟩是锂原子的高Rydberg态,而ε表示锂原子的电离态.在PE过程中,三个激发光的波长和流强(单位时间通过单位面积的光子数)分别用λ<sub>m</sub>和F<sub>m</sub>(m=1,2和R,下同)表示;用σ<sub>am</sub>和σ<sub>Sm</sub>分别表示各能级之间的共振吸收截面和受激辐射截面;用Γ<sub>m</sub>和Γ<sub>E</sub>分别表示各激发态的自发辐射速率和EFI过程的电离速率.

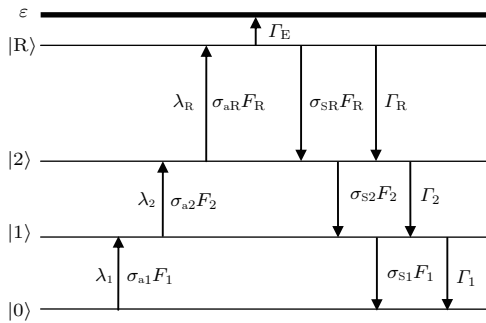


图1 锂原子的三步PE+EFI过程

Fig. 1. Three-step PE+EFI process of lithium atom.

为了精确控制整个物理过程的时间特性,本文选择了脉冲激光场和电场,其时间顺序和延迟方案如图2所示.先同时施加激光场将处于|0⟩态的锂原子分三步激发到|R⟩态,经过适当延迟后再施加电场使其电离,以避免Stark效应的影响.

在图2中,为提高锂原子在|R⟩态的布居率,进而增加EFI过程的电离效率(电离态的布居率),需

要同时施加三步激发光<sup>[14]</sup>.若用1,2和3分别表示三个激光脉冲,t<sub>1</sub>,t<sub>2</sub>和t<sub>3</sub>分别表示光场结束、电场起始和结束的时刻,则τ=t<sub>1</sub>和τ′=t<sub>3</sub>−t<sub>2</sub>分别为光场和电场的脉冲宽度,Δ=t<sub>2</sub>−t<sub>1</sub>为电场与光场之间的时间延迟.

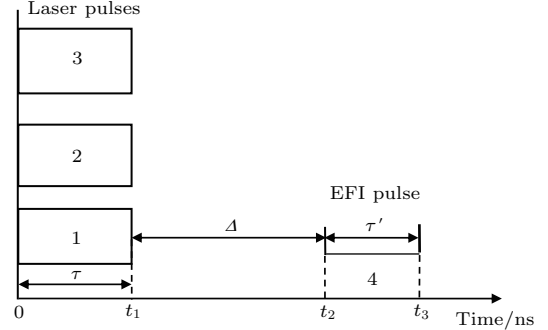


图2 脉冲激光场和脉冲电场的时序示意图

Fig. 2. Time sequence for the pulses of laser and electric fields.

根据图1和图2,在各个时间段内便可分别建立锂原子布居率的速率方程组.在第一个时间段(T<sub>1</sub>:0<t≤t<sub>1</sub>)中,只存在三步激发光与原子之间的相互作用.若选用主量子数较大(n不小于25)的|R⟩态,则处于该态的原子很难再吸收一个第三步激发光的光子到达连续态.因此,本文仅考虑通过共振吸收而发生的跃迁,忽略通过非共振跃迁所导致的原子电离.换言之,在本时间内若仅考虑原子在四能级之间通过激光共振跃迁的方式从|0⟩态到|R⟩态的PE过程,则可认为原子仅在图1所示的四个能级上布居且遵守粒子数守恒律.显然,在上述PE过程中,由于共振吸收、受激辐射和自发辐射之间的博弈,各态的布居数会随时间变化并满足下列速率方程组:

$$\begin{cases} \frac{dn_0(t)}{dt} = -\sigma_{a1}F_1n_0(t) + (\sigma_{s1}F_1 + \Gamma_1)n_1(t), \\ \frac{dn_1(t)}{dt} = \sigma_{a1}F_1n_0(t) - (\sigma_{a2}F_2 + \sigma_{s1}F_1 + \Gamma_1)n_1(t) + (\sigma_{s2}F_2 + \Gamma_2)n_2(t), \\ \frac{dn_2(t)}{dt} = \sigma_{a2}F_2n_1(t) - (\sigma_{s2}F_2 + \Gamma_2 + \sigma_{aR}F_R)n_2(t) + (\sigma_{sR}F_R + \Gamma_R)n_R(t), \\ \frac{dn_R(t)}{dt} = \sigma_{aR}F_Rn_2(t) - (\sigma_{sR}F_R + \Gamma_R)n_R(t), \end{cases} \quad (1)$$

其中,i=0,1,2和R(下同),而n<sub>i</sub>(t)为t时刻i态的布居数.显然,n<sub>0</sub>(0)=N,其中N为粒子总数,而各态的布居率为:η<sub>i</sub>(t)≡n<sub>i</sub>(t)/N;当各态的布居数的变化率为零,即dn<sub>i</sub>(t)/dt=0时,则会出现

布居数的动态平衡.

为了简化(1)式,并凸显其物理意义,令C<sub>m</sub>=σ<sub>am</sub>F<sub>m</sub>,以便综合考虑各态的共振吸收截面和对应跃迁的激光功率的影响.显然,一旦确定了PE的

激发路径, 三个跃迁的激发截面则均为常量. 此时,  $C_m$  仅随激光功率而变且成正比关系. 因其具有频率的量纲, 故在计算中将采用 GHz 为单位<sup>[12]</sup>.

另一方面, 为了在速率方程组中显含  $G$  参数, 需利用各态的共振吸收截面和受激辐射截面之

间的关系, 即  $G_0\sigma_{a1} = G_1\sigma_{S1}$ ,  $G_1\sigma_{a2} = G_2\sigma_{S2}$  和  $G_2\sigma_{aR} = G_R\sigma_{SR}$ . 其中,  $G_i = 2j_i + 1$ ,  $j_i$  为各态的总角动量子数.

将上述信息代入(1)式, 便得到了同时包含  $G_i$  和  $C_m$  参数的形式, 即

$$\begin{cases} \frac{dn_0(t)}{dt} = -C_1n_0(t) + \left(\frac{G_0}{G_1}C_1 + \Gamma_1\right)n_1(t), \\ \frac{dn_1(t)}{dt} = C_1n_0(t) - \left(C_2 + \frac{G_0}{G_1}C_1 + \Gamma_1\right)n_1(t) + \left(\frac{G_1}{G_2}C_2 + \Gamma_2\right)n_2(t), \\ \frac{dn_2(t)}{dt} = C_2n_1(t) - \left(\frac{G_1}{G_2}C_2 + \Gamma_2 + C_R\right)n_2(t) + \left(\frac{G_2}{G_R}C_R + \Gamma_R\right)n_R(t), \\ \frac{dn_R(t)}{dt} = C_Rn_2(t) - \left(\frac{G_2}{G_R}C_R + \Gamma_R\right)n_R(t). \end{cases} \quad (2)$$

由(2)式可见: 在速率方程中, 每一步跃迁的初态和终态的  $G_i$  参数的比值左右着该跃迁的  $C_m$  参数的有效性, 进而对 PE 过程和各态的布居率都会产生影响. 因此, 当选择不同的 PE 路径时会涉及不同的跃迁态, 其  $G_i$  参数的比值也将不同, 最终将导致各态的布居率不同.

在第二个时间段 ( $T_2: t_1 < t \leq t_2$ ) 中, 由于光场不复存在而电场还未开始施加, 即在零外场下, 处于各激发态的原子都会通过自发辐射而向下跃迁. 由于后续的 EFI 过程只涉及  $|R\rangle$  态, 其效率仅依赖于  $|R\rangle$  态的布居率. 因此, 在该延迟过程中, 原子满足如下的速率方程:

$$\frac{dn_R(t)}{dt} = -\Gamma_R n_R(t). \quad (3)$$

由(3)式可见: 自发辐射导致了  $|R\rangle$  态布居数的不断衰减. 为了避免  $|R\rangle$  态原子数目的显著减少和电场所导致的 Stark 效应, 应合理选择电场与光场之间的延迟时间.

在第三个时间段 ( $T_3: t_2 < t \leq t_3$ ) 中, 只要设置电场强度使之超过  $|R\rangle$  态的 EFI 阈值, 则可将那些仍处于  $|R\rangle$  态的原子电离. 由于处于基态和低激发态的原子受该外加电场的影响可忽略, 所以被 EFI 的原子都来源于  $|R\rangle$  态. 因此, 该时段的速率方程组仅涉及  $|R\rangle$  态和  $\varepsilon$  态, 即

$$\begin{cases} \frac{dn_R(t)}{dt} = -(\Gamma_R + \Gamma_E)n_R(t), \\ \frac{dn_\varepsilon(t)}{dt} = \Gamma_E n_R(t), \end{cases} \quad (4)$$

其中,  $n_\varepsilon(t)$  为  $t$  时刻电离态的布居数, 而电离效率

则为  $\eta_\varepsilon(t) \equiv n_\varepsilon(t)/N$ . 由(4)式可见: 在该过程中自发辐射依旧会使  $|R\rangle$  态上的原子不断减少, 但因为该态的寿命很长导致其衰减速率很低, 所以 EFI 过程占主导地位, 即  $\Gamma_E \gg \Gamma_R$ .

如前所述, 上述(2), (3)和(4)式未对激发路径做任何限定, 它们应该适用于各种不同情况. 所以, 欲探讨  $G$  参数对 EFI 效率的定量影响, 只要给出具体的激发路径, 便可对上述方程进行数值求解.

### 3 特定激发路径的 PE+EFI 过程

本节针对给定的激发路径(简称路径一)  $2S_{1/2} \rightarrow 2P_{1/2} \rightarrow 3S_{1/2} \rightarrow 25P_{1/2,3/2}$ , 通过 Matlab 编程进行数值计算, 探讨  $G$  参数对 PE+EFI 过程的影响. 由于  $25P$  态的精细结构很小, 所以在计算过程中将忽略  $25P_{1/2}$  和  $25P_{3/2}$  态的能量差别, 并分别研究三个激发态的布居率随某一参数的变化规律. 在计算过程中, 既要考察 PE 过程所导致的各激发态布居率的变化和  $G$  参数的影响, 又要关注延迟过程中  $|R\rangle$  态布居率的衰减情况, 还要观察  $|R\rangle$  和  $\varepsilon$  态布居率的变化和  $\Gamma_E$  的变化对 EFI 效率的影响.

为了实施相关的计算, 需要同时设定或选取锂原子相关能级的光谱参数和各步激发光的光场参数, 如表 1 所列.

采用表 1 所列的参数, 可通过(2)式计算出各个态的布居率随不同激光参数的变化规律. 图 3 仅给出了三个激发态的布居率的计算结果.

表1 计算PE+EFI过程时所使用的参数  
Table 1. The parameters used in the calculation of the PE+EFI process.

激光参数				锂原子参数*		
$C_1/\text{GHz}$	$C_2/\text{GHz}$	$C_R/\text{GHz}$	$t/\text{ns}$	$\Gamma_1/\text{Hz}$	$\Gamma_2/\text{Hz}$	$\Gamma_R/\text{Hz}$
1	1.5	3	10	$3.663 \times 10^7$	$6.803 \times 10^7$	$2.4552 \times 10^7$

\* 取自文献 [16—18]

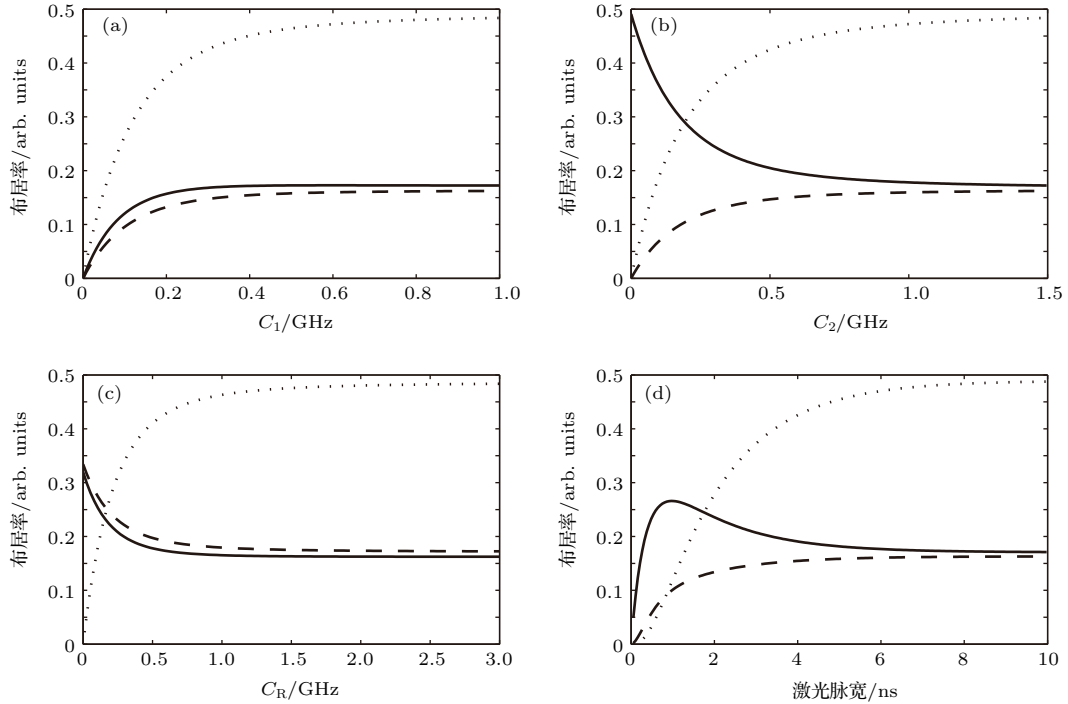


图3 三个激发态的布居率随激光参数的变化. 其中, 分别用实线、虚线和点线表示  $|1\rangle$ ,  $|2\rangle$  和  $|R\rangle$  态的结果

Fig. 3. Population rates of three excited states varied with the laser parameters. The results corresponding to  $|1\rangle$ ,  $|2\rangle$  and  $|R\rangle$  states are shown with solid, dashed and dotted lines, respectively.

在图3中, 分别用实线、虚线和点线表示  $|1\rangle$ ,  $|2\rangle$  和  $|R\rangle$  态的布居率随激光参数的变化规律. 针对各态的布居率随各步激发光的光强的变化, 可以观察到一些规律. 首先, 在图3(a)中, 三个激发态的布居率均随  $C_1$  持续增加并最终趋于饱和, 这可归咎于受激辐射的退激发作用: 当激光强度足够大时, 由其所产生的激发和辐射形成了博弈, 最终使各激发态的布居率趋于动态平衡. 因此, 激光强度并非越大越好, 而是存在一个饱和强度, 当超过该强度后激发态的布居率并不再提高. 其次, 图3(b)和图3(c)与图3(a)形成了明显的不同: 仅有部分态的布居率随光强的增加而增加, 而其余态的布居率却恰好相反. 例如: 在图3(b)中,  $|1\rangle$  态的布居率随第二步激发光的光强的增加而持续衰减, 因为该激发光使处于  $|1\rangle$  态的原子进一步跃迁到  $|2\rangle$  态, 从

而导致  $|1\rangle$  态的布居率减小. 另一方面, 通过展示各态布居率随激光脉宽的变化, 也能看到一些规律. 首先, 由图3(d)可见:  $|1\rangle$  态的布居率先随激光脉宽的增加而增加, 然后又缓慢减少并趋于稳定. 在PE过程的初期, 原子均处于基态, 第一步激发光起着主导作用, 使  $|1\rangle$  态的布居率迅速增加并达到峰值. 此后, 第二、三步激光逐渐发挥主要作用: 通过衰减  $|1\rangle$  态的布居率而增加  $|2\rangle$  和  $|R\rangle$  态的布居率. 其次,  $|2\rangle$  和  $|R\rangle$  态的布居率的最大值不但迟后于  $|1\rangle$  态布居率的最大值, 而且它们都先后达到其各自的饱和值, 这是因为它们按照自下而上的跃迁顺序并实现了各激发态的布居. 总之, 虽然  $|1\rangle$ ,  $|2\rangle$  和  $|R\rangle$  态的布居率随不同激光参数会展现出不同的变化规律, 但是最终却都会趋于动态平衡. 换言之, 在上述给定的激发路径下, 无论激光参数如何变

化, 这三个激发态的布居率都会依次稳定在 17%, 17% 和 48%.

为了正确理解上述物理现象和规律, 认识上述三个激发态的布居率与相应态的量子统计权重(或  $G$  参数)的关系, 我们认为必须探究其饱和值的必然性和合理性. 受到前一节所建立的速率方程组(2)式的启发, 即量子统计权重的影响是以  $G$  参数的比值来体现的, 本文首次引入了  $G$  参数分支比的概念, 即  $BR_i = G_i / \sum G_i$ . 根据锂原子的  $|0\rangle, |1\rangle, |2\rangle$  和  $|R\rangle$  态的总角动量, 可以算出其各自的  $G$  参数, 进而得到其  $BR_i$  值分别为  $1/6, 1/6, 1/6$  和  $1/2$ . 上述分析表明: 无论随什么激光参数变化, PE 过程都将使各激发态的布居率趋于其各自  $G$  参数的分支比. 显然, 上述  $BR$  值的结果与图 3 中的布居率计算值相一致. 说明各态的布居率的极限值由原子参数决定而与激光参数无关. 换言之, 原子各态的布居率的极限值仅由其各自的  $G$  参数分支比决定.

另一方面, 为了探究上述普适情况与忽略各态的量子统计权重(或  $G$  参数)影响的特例之间的一致性, 可以取  $G_i \equiv 1$ , 即认为四个相关态的  $BR_i$  都相等, 则可得到推论: 原子将在四个相关态之间平均分配, 即最大的 EFI 总体效率仅为 25%, 从而证实了已发表的忽略量子统计权重影响时的计算结果[12]. 总之, 本文用  $G$  参数分支比的概念证明了考虑和忽略量子统计权重这两种情况的一致性, 并分别与普遍情况和特例情况的计算结果相符合.

最后, 需要对电场与激光场的脉冲延迟时间进行分析, 以便通过选择合适的延迟时间, 既可避免电场所导致的 Stark 效应又可达到将  $|R\rangle$  态原子最大限度地 EFI 的目的. 为此, 本文计算了在  $T_1 = 0-10$  ns 和  $T_2 > 10$  ns 这两个时段内  $|R\rangle$  态的布居率随时间的变化规律, 如图 4 所示. 其中, 采用虚线对两个时间段做了区分, 凸显了光场和零场的时间划分; 同时, 图 4 也采用了时间的对数坐标来体现延迟时间的数量级变化, 以便关注在超长的延迟期间中  $|R\rangle$  态的布居率的衰减规律.

由图 4 可知: 若将延迟时间控制在  $10^3$  ns 之内,  $|R\rangle$  态的布居率并未发生显著的衰减, 这当然源于  $|R\rangle$  态的超长寿命. 因此, 在实验中为了完全避免 Stark 效应, 可以选择较长的时间延迟(如: 500 ns).

另一方面, 为了考察  $\Gamma_E$  对 PE+EFI 过程的影响, 分别计算了当  $\Gamma_E$  取不同值时,  $|R\rangle$  态和  $\epsilon$  态的布居率随时间的变化规律, 如图 5 所示.

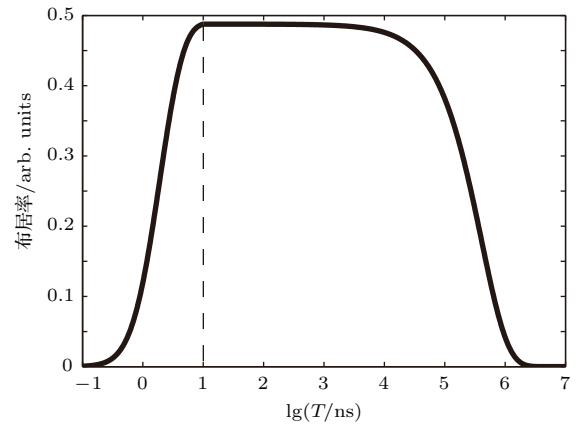


图 4 Rydberg 态的布居率随时间对数的变化  
Fig. 4. Population rate of Rydberg state varied with the logarithm of time.

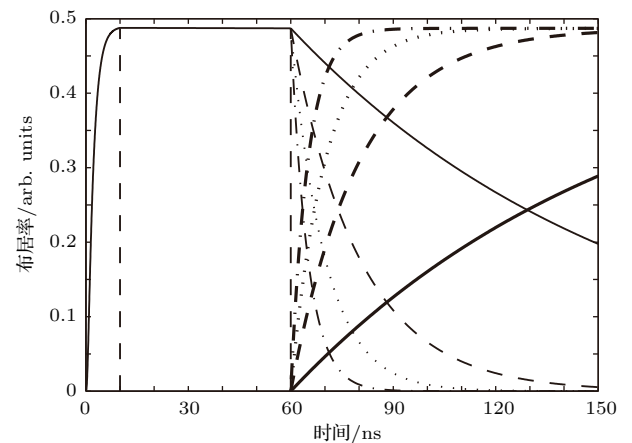


图 5 Rydberg 态的布居率(细线)和电离效率(粗线)随时间的变化分别用实线、虚线、点线和点划线表示  $\Gamma_E = 0.01, 0.05, 0.1$  和  $0.2$  GHz 的结果  
Fig. 5. Population rates of Rydberg state(fine line) and ionization efficiency(bold line) varied with the time. The results corresponding to  $\Gamma_E = 0.01, 0.05, 0.1$  and  $0.2$  GHz are shown with solid, dashed, dotted and chain lines, respectively.

当取  $T_1 = 0-10$  ns,  $T_2 = 10-60$  ns 和  $T_3 > 60$  ns 时, 在图 5 中分别用实线、虚线、点线和点划线展示了对应于  $\Gamma_E = 0.01, 0.05, 0.1$  和  $0.2$  GHz 的  $|R\rangle$  态和  $\epsilon$  态的布居率随时间的变化规律. 其中, 分别用细线和粗线表示  $|R\rangle$  态和  $\epsilon$  态的布居率在这三个时段内随时间的变化规律. 由图 5 可知: 1) 在  $T_1$  期间, 在适当的光场作用下,  $|R\rangle$  态布居率迅速增加直至饱和, 且在电场与光场的延迟时间( $T_2$  期间)内无明显衰减; 2) 在  $T_3$  期间, 电场电离起到了主导的作用, 处于  $|R\rangle$  态的原子被全部电离;  $\Gamma_E$  对  $|R\rangle$  态和  $\epsilon$  态的布居率产生了显著的影响, 且  $|R\rangle$  态布居率的减少与电离效率的增加呈现同步和互补的关

系. 另外, 随  $\Gamma_E$  的增大EFI过程缩短, 但是只要满足  $\Gamma_E \gg \Gamma_R$  的条件,  $|R\rangle$  态上的原子最终都会被全部电离.

综上所述, 在PE+EFI过程中,  $G$  参数的分支比约束着  $|R\rangle$  态的布居率, 而后者又决定了PE+EFI过程的总体电离效率.

#### 4 两条激发路径的比较

为了进一步考察  $G$  值对PE+EFI过程的总体电离效率的影响, 本节精心设计了具有更大  $G$  值的激发路径(简称路径二), 即  $2S_{1/2} \rightarrow 2P_{3/2} \rightarrow 3D_{5/2} \rightarrow 25F_{5/2,7/2}$ . 通过将它与路径一进行比较, 可以体现各态的  $G$  值对EFI效率的影响. 在路径二中,  $|R\rangle$  态的自发辐射速率比表1中的数值提高了一倍多, 即  $\Gamma'_R = 6.5244 \times 10^4$  Hz, 而其余参数的值

均保持不变. 图6展示了采用两条不同的激发路径时,  $|R\rangle$  态布居率随激光参数的变化曲线.

在图6中, 实线和虚线分别表示在采用激发路径一和路径二时  $|R\rangle$  态布居率的变化曲线. 在图6中, 两条不同激发路径的  $|R\rangle$  态布居率具有相似的变化趋势, 即先随激光脉宽或激光功率而上升, 然后再趋于饱和. 但路径二的布居率始终高于路径一, 且与变量的选取无关, 这主要归咎于其  $G$  参数分支比相对于路径一略高. 总之, 从图6可得如下三点结论: 1) 当采用不同的激发路径时,  $|R\rangle$  态的布居率的变化规律类似, 且各自的饱和值并不随激光参数而变; 2) 当采用不同激发路径时,  $|R\rangle$  布居率的差异主要源于其  $G$  参数分支比的不同; 3) 当采用路径二时,  $|R\rangle$  布居率最终趋近于53%左右 ( $BR = 7/13$ ), 也再次印证了3节所给出的解释.

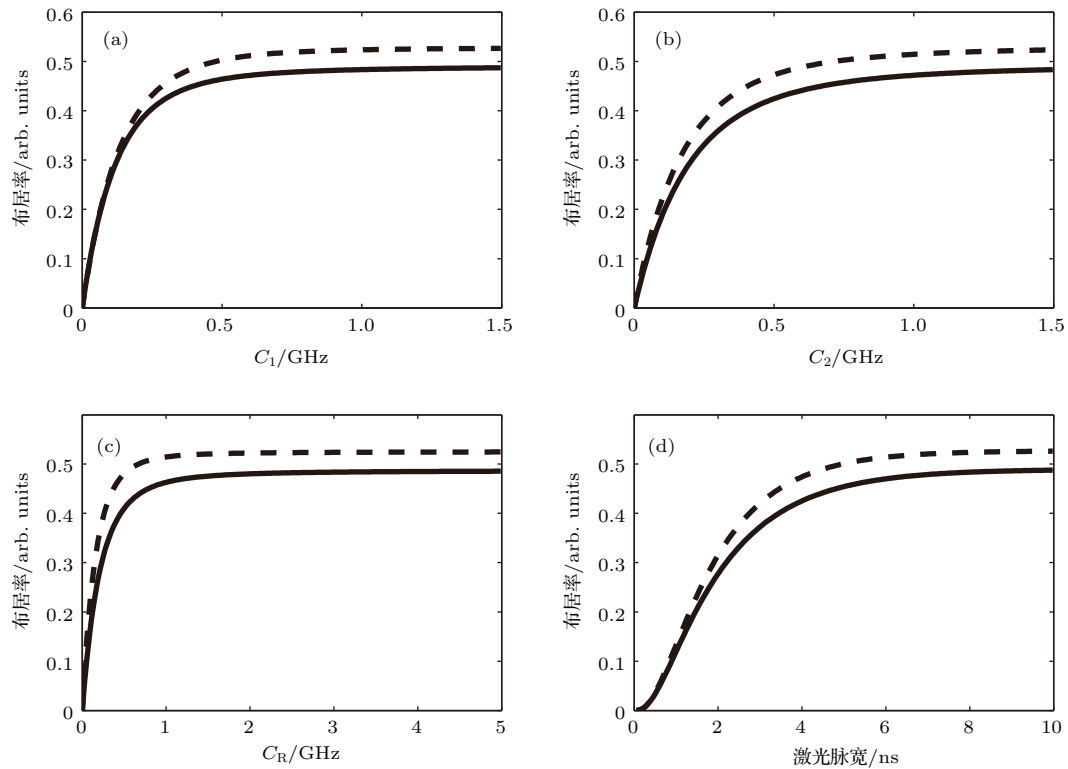


图6 Rydberg 态的布居率随激光参数的变化 实线和虚线分别代表两种激发路径的结果

Fig. 6. Population rates of Rydberg states varied with the laser parameters. The results corresponding to the two excitation schemes are shown with solid and dashed lines, respectively.

总之, 选择具有较大  $G$  参数的分支比的  $|R\rangle$  态的确可以改善总体电离效率, 但因为存在一个无法超越的上限, 导致不能进一步提高总体电离效率.

最后, 有必要将本文的PE+EFI过程与我们所报道的PE+PI过程<sup>[14]</sup>进行对比. 首先, 在

PE+EFI过程中, 为避免Stark效应, 电场必须延迟于PE过程, 从而导致PE过程处于封闭循环的状态. 换言之, 受激辐射和自发辐射的共同作用导致  $|R\rangle$  态的布居率大幅降低, 并无法突破由其  $G$  参数的分支比所确定的布居率上限. 与上述过程形成

鲜明对照的是, 在PE+PI过程中, PE与PI过程是同步进行的, 所有被PE过程激发的原子都被PI过程立即电离并永久脱离了原子体系, 因而属于开放体系, 从而可达到100%的效率<sup>[14]</sup>.

总之, PE+EFI过程无法达到100%的电离效率可归咎于其系统的封闭性, 而PE+PI过程的高效率得益于其开放状态. 当然, PI过程由于电离截面很小, 需要足够强的光电离功率作为保证. 换言之, 若PI过程的光强无法提高或成本过大, 那么PE+EFI和PE+PI这两种过程的效率就可以比拟了. 因此, 实现原子的电离到底选择PI还是EFI过程应视具体的实验条件或成本等因素而定.

## 5 结论与展望

本文揭示了原子各态的量子统计权重对PE+EFI过程和电离效率的影响. 研究表明: 在三步PE过程中, 各态的布居率都以其各自的 $G$ 参数分支比为极限, 所以当计入各态的 $G$ 参数时, 将显著提高Rydberg态的布居率, 从而使PE+EFI过程的总电离效率加倍, 但却无法像PI过程那样可实现100%的光电离效率. 通过精选光激发的路径, 虽然可以改善PE+EFI过程的总体效率, 但增量不会超过10%.

针对如何进一步增强PE+EFI过程的电离效率问题, 本文提出两种可能的努力方向: 1) 考虑PE过程的Rabi振荡效应, 精准控制各个激发光脉冲和电场脉冲的时间, 使电离效率达到最佳; 2) 将PE场和EFI场同时施加, 使整个原子系统变成开放系统, 此时, 问题将会显著复杂化, 因为既要考虑

Stark效应的影响, 又要熟知绝热和非绝热这两种电离通道的特性.

## 参考文献

- [1] Dai C J 1995 *Phys. Rev. A* **52** 4416
- [2] Keller J, Weiner J 1984 *Phys. Rev. A* **29** 2230
- [3] Li M, Dai C J, Xie J 2011 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **112** 793
- [4] D'Yachkov A B, Kovalevich S K, Labozin V P, Mironov S M, Panchenko V Y, Firsov V A, Tsvetkov G O, Shatalova G G 2012 *Quantum Electron.* **42** A16
- [5] Wang X, Shen L, Dai C J 2012 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **45** 165001
- [6] Zhao Y H, Dai C J, Ye S W 2013 *Chin. Phys. B* **22** 023203
- [7] Robicheaux F, Wesdorp C, Noordam L D 2000 *Phys. Rev. A* **62** 523
- [8] Xie J, Dai C J, Li M 2011 *Chin. Opt. Lett.* **9** 050201
- [9] Dai C J, Zhang S, Shu X W, Fang D W, Li J 1995 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **53** 179
- [10] Li S B, Dai C J 2007 *Chin. Phys. B* **16** 382
- [11] Jing H, Ye S W, Dai C J 2015 *Chin. Phys. B* **24** 221
- [12] Ma X W, Ma X D, Dai C J 2015 *Acta Opt. Sin.* **35** 0602004 (in Chinese) [马学伟, 马小东, 戴长建 2015 光学学报 **35** 0602004]
- [13] Dai C J, Chen Z D 2001 *Chin. Phys.* **10** 403
- [14] Qi X Q, Wang F, Dai C J 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 133201 (in Chinese) [戚晓秋, 汪峰, 戴长建 2015 物理学报 **64** 133201]
- [15] Zhang L, Shang R C, Xu S D 1992 *Acta Phys. Sin.* **41** 379 (in Chinese) [张力, 尚仁成, 徐四大 1992 物理学报 **41** 379]
- [16] Beterov I I, Tretyakov D B, Ryabtsev I I, Ekers A, Bezuglov N N 2007 *Phys. Rev. A* **75** 497
- [17] Saloman E B 1993 *Spectrochim. Acta Part B* **48** 1139
- [18] Theodosiou C E 1984 *Phys. Rev. A* **30** 2881



# Influence of quantum statistical weight on efficiency of electric field ionization of atom\*

Qi Xiao-Qiu<sup>1)2)</sup> Liu Dong-Li<sup>1)</sup> Dai Chang-Jian<sup>1)†</sup>

1) (College of Science, Tianjin University of Technology, Tianjin 300384, China )

2) (State Key Laboratory of Magnetic Resonance and Atomic and Molecular Physics, Wuhan Institute of Physics and Mathematics, Chinese Academy of Sciences, Wuhan 430071, China )

( Received 1 December 2016; revised manuscript received 9 January 2017 )

## Abstract

The quantum statistical weight ( $G$ ) of an atomic energy level is an important spectroscopic parameter, its effect on the atomic ionization process is, however, usually neglected for simplicity. In this work, the influences of the  $G$  parameters of the lithium atomic energy levels are taken into account explicitly for the first time in the study on the process of three-step photo-excitation (PE) + electric field ionization (EFI), which yields a significant effect on overall EFI efficiency of the PE+EFI process. With a set of specially designed PE+EFI schemes, the expected results are obtained. First, with a three-step PE scheme, the Li atom is excited by three pulsed lasers with different wavelengths, which are fired simultaneously, to one of the Rydberg states from its ground state, from which the Li atom is ionized by an electric-field pulse with a time delay in order to avoid the Stark effect. Based on the three physical processes the atom experiences the PE, none field, and the EFI processes, and a set of universal rate equations are established according to the conservation law of particle number with the knowledge of physical mechanism of the three different processes and the physical model set up for them, respectively. The  $G$  parameters of the four relevant bound energy states are displayed explicitly in the rate equations for the PE process to offer a clear view about their effect on the overall EFI efficiency of the PE+EFI process. Secondly, the overall efficiencies of PE+EFI process are calculated with the Matlab programming for the two specified excitation schemes,  $2S_{1/2} \rightarrow 2P_{1/2} \rightarrow 3S_{1/2} \rightarrow 25P_{1/2,3/2}$  and  $2S_{1/2} \rightarrow 2P_{3/2} \rightarrow 3D_{5/2} \rightarrow 25F_{5/2,7/2}$ . The overall EFI efficiency of PE+EFI process is investigated not only by adjusting the laser parameters but also by comparing the results between the two different excitation schemes. In order to establish the relationship between the overall EFI efficiency and external field quantitatively, the dependence of population rate of the relevant bound states on various factors, such as laser and atomic parameters, is calculated systematically. The role of the  $G$  parameters of the relevant atomic energy levels played in the population rates is observed to determine which excitation scheme is better in terms of the population rate of the Rydberg state. Meanwhile, the spontaneous emission of the Rydberg state during the time delay between the pulses of electric field and laser is also evaluated to make a balance between avoiding the Stark effect and minimizing the spontaneous emission. Based on the analysis of the calculations, some new results are achieved. An enhancement of the overall EFI efficiency can be obtained by making a sophisticated design on the excitation scheme of the PE+EFI process to optimize the  $G$  parameters. The time delay between the pulses of electric field and laser not only lets the atom experience a field-free time period, but also makes an upper limit for the population rate of Rydberg state due to the redistribution of atom among the four relevant bound states in the period. The upper limit is found to be dependent on neither laser parameters nor the absolute values of the  $G$  parameters, while only on the branching ratio of the  $G$  parameters among those bound states. The overall EFI efficiency is dominated by the population rate of Rydberg state, as the EFI process may ionize all Rydberg atoms once the strength of the EFI field reaches the EFI threshold of the Rydberg state. Hence, the key factor for raising the overall EFI efficiency is to enhance the population rate of Rydberg state in the PE process, which is a hard challenge due to the upper limit for the population rate of Rydberg state.

**Keywords:** lithium atom, three-step photo-excitation, electric field ionization, quantum statistical weight

**PACS:** 32.80.Rm, 32.80.Ee

**DOI:** 10.7498/aps.66.073201

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11174218).

† Corresponding author. E-mail: daicj@126.com