

Hg 原子双光子激发截面的理论计算

巫 英 坚

(中国科学院物理研究所)

谢 红

(清华大学物理系)

1985 年 8 月 12 日收到

提 要

以 Hg 原子为例,讨论了在 Hartree-Slater 自洽场近似的基础上,采用有限项近似和求解非齐次薛定谔方程相结合的方法,计算了双光子激发截面。该计算程序可以用于计算任意原子的双光子激发截面。

一、引 言

在微量元素检测、激光同位素分离、原子 Rydberg 态的研究等许多实验领域中,需要大量的原子光激发以及双光子激发截面的数据,而这些数据的理论计算可以为实验研究提供方便。我们曾报道了碱金属原子和惰性气体原子的双光子电离截面的计算程序^[1],在此基础上,本文对原有程序进行了扩充,使之适用于计算任意原子的双光子激发或者电离截面,该程序建立在 Hartree-Slater 自洽场近似^[2]的基础上,将双光子跃迁矩阵元的计算分离为共振项部分和非共振背景部分。对于共振项,我们可以考虑共振项的各种可能的耦合,并采用实验的能级位置来校正自洽场近似计算的能级的误差。对于非共振背景部分,则可以通过求解非齐次薛定谔方程得到,这就是所谓的有限项近似和求解薛定谔方程相结合的方法^[3]。

本文介绍了采用上述理论计算原子双光子激发截面的步骤,关于双光子电离截面在文献[1]中已有介绍。作为一个实例,本文计算了 Hg 原子的双光子激发截面,对结果进行了讨论,由于双光子激发截面的数据缺乏,本文结果未能和实验值比较。

二、双光子激发截面的计算

原子双光子激发截面可以写为^[1]

$$\sigma = (2\pi)^3 (\alpha\hbar\omega)^2 \frac{G}{2L_a + 1} \sum_{M_a} \sum_{M_b} |T^{(2)}|^2 \delta(\omega_{ba} - 2\omega),$$
$$T^{(2)} = \sum_i \frac{\langle a | \hat{e} \cdot \mathbf{r} | i \rangle \langle i | \hat{e} \cdot \mathbf{r} | b \rangle}{\epsilon_i - \epsilon_a - \omega\hbar}. \quad (1)$$

σ 的单位为 $\text{cm}^2 \cdot \text{s}$, 上式中 α 为精细结构常数, G 为光源统计因子^[4], $\omega\hbar$ 为人射光子能量, a, b, j 等代表标志原子组态的一组参数, 它们分别标志初态、末态和中间态。 $|a\rangle, |b\rangle, |i\rangle$ 等为相应的组态波函数, 在本文中原子体系的计算采用 Hartree-Slater 自洽场近似^[2], 在此近似下, 原子中各个电子可以用单电子轨道波函数 $\varphi_{nlm} = (P_{nl}(r)/r)Y_{ln}(\Omega)$ 描述, 而原子所有电子的单电子轨道波函数以及自旋的反对称化乘积构成了原子的具有一定总轨道和自旋角动量 L, S 及其投影 M_L, M_S (即 $L-S$ 耦合) 的组态波函数^[5]。对于 (1) 式中的 δ 函数, 在考虑到能级具有一定的线宽时, 它应该由归一的线型函数代替。但当激光的线宽大于该线性函数的线宽时, 可令线性函数为 1。在计算中采用原子单位, 则有

$$\sigma = A \cdot \left\{ \frac{G\omega^2}{2L_a + 1} \sum_{M_a} \sum_{M_b} |T^{(2)}|^2 \right\}, \quad (1a)$$

其中 $A = 2.5054 \times 10^{-32}$, 括号中各量取原子单位。

(1) 式中 $\hat{\epsilon}$ 为光的单位偏振矢量, 可以在基矢 $\hat{\epsilon}_{\pm}$ 上展开: $\hat{\epsilon} = c_+ \hat{\epsilon}_+ + c_- \hat{\epsilon}_-$, 故

$$\mathbf{r} \cdot \hat{\epsilon} = \sqrt{4\pi/3} \cdot \mathbf{r} \cdot (c_+ \mathbf{Y}_{1,1} + c_- \mathbf{Y}_{1,-1}). \quad (2)$$

利用 Wigner-Eckart 定理, 可以把跃迁矩阵元分解成径向积分部分和角度系数部分

$$\begin{aligned} T^{(2)} &= \sum_j \sum_{\substack{\lambda_1=\pm 1 \\ \lambda_2=\pm 1}} c_{\lambda_1} c_{\lambda_2} \frac{\langle r_a L_a M_a | r Y_{1\lambda_1} | r_i L_i M_i \rangle \langle r_i L_i M_i | r Y_{1\lambda_2} | r_b L_b M_b \rangle}{\epsilon_j - \epsilon_a - \omega} \frac{4\pi}{3} \\ &= \sum_{\substack{\lambda_1=\pm 1 \\ \lambda_2=\pm 1}} c_{\lambda_1} c_{\lambda_2} \sum_{L_i L_j} \left(\sum_{n_j} \frac{\langle p_a | r | p_i \rangle \langle p_i | r | p_b \rangle}{\epsilon_j - \epsilon_a - \omega} \right) \cdot g(a, j, b). \end{aligned} \quad (3)$$

这里 $|p_a\rangle$ 等只代表径向波函数, $g(a, j, b)$ 为角度系数部分, 它包括一系列 $3j, 6j$ 符号、部分根源系数以及角动量再耦合系数等^[6]。它是可以解析计算的, 我们最近也在 Burke 等人计算角动量再耦合系数的程序^[7]的基础上, 建立了对应任意原子的初末组态以及任意秩算符的角系数程序。考虑了任意偏振下的 $c_{\pm}$ 以后, 我们就可以计算任意原子, 任意偏振的双光子吸收截面。目前我们的计算中考虑了线偏振, 圆偏振和自然偏振的情况。

有关径向积分部分的计算在下节讨论。

三、Hg 原子的双光子激发截面

由于原子双光子激发截面数据的缺乏, 本文仅计算了 Hg 原子双光子激发截面, 以此做为理论计算的一个说明, 并期望今后能有较精确的双光子激发实验测量数据, 使理论和实验相互验证。

Hg 原子是高原子序原子, 其相对论效应特别是自旋轨道相互作用不可忽略, 这时在 Hartree-Slater 自洽场近似基础上的双光子跃迁截面的计算存在较大误差。由 (3) 式可知, 那些能量和初态能量之差接近入射光子能量的态 (共振态) 的误差对截面计算的影响最大, 因此我们将共振项的贡献从非共振背景中分离出来进行单独处理。对于 Hg 原子我们将 6P 态分离出来。这时径向积分的无穷求和可以写成

$$\sum_{n_j} \frac{\langle p_a | r | p_i \rangle \langle p_i | r | p_b \rangle}{\epsilon_j - \epsilon_a - \omega}$$

$$= \sum_{n_j \neq 6P} \frac{\langle p_a | r | p_j \rangle \langle p_j | r | p_b \rangle}{\epsilon_j - \epsilon_a - \omega} + \frac{\langle p_a | r | p_{6P} \rangle \langle p_{6P} | r | p_b \rangle}{\epsilon_{6P} - \epsilon_a - \omega}. \quad (4)$$

式中右边第一项相应于非共振背景,它可以改写为

$$\sum_{n_j \neq 6P} \frac{\langle p_a | r | p_j \rangle \langle p_j | r | p_b \rangle}{\epsilon_j - \epsilon_a - \omega} = \langle p | r | p_b \rangle, \quad (5)$$

其中 $|p\rangle = \sum_{n_j \neq 6P} |p_j\rangle \langle p_j | r | p_a \rangle / (\epsilon_j - \epsilon_a - \omega)$ 满足非齐次薛定谔方程

$$\left(-\frac{1}{2} \frac{d^2}{dr^2} + \frac{l_j(l_j+1)}{2r^2} + V_{\text{scr}}(r) - \epsilon_p \right) p(r) = r p_a(r) - \sum_{j'} p_{j'}(r) \cdot \int p_{j'}(r) r p_a(r) dr, \quad (6)$$

式中 $V_{\text{scr}}(r)$ 为 Hartree-Slater 自洽势, $\epsilon_p = \epsilon_a + \omega$. 右边的求和包括已被完全占据的态(即泡利原理限制的态)以及(4)式中分离出的共振态.

(4)式中右边第二项即共振项,考虑到 Hg 原子自旋轨道相互作用的影响, L, S 不再能近似认为是好量子数,故应计入 6^3P_1 态对于双光子跃迁矩阵元的影响,可以近似地将 $6^1P_1, 6^3P_1$ 能级的波函数用纯 $L-S$ 耦合的组态波函数展开:

$$\begin{aligned} |6^3P_1\rangle &= \alpha |6^3P'_1\rangle + \beta |6^1P'_1\rangle, \\ |6^1P_1\rangle &= \alpha |6^1P'_1\rangle - \beta |6^3P'_1\rangle, \end{aligned} \quad (7)$$

其中加一撇的态表示纯 $L-S$ 耦合的态,展开系数 α, β 满足归一化条件,并可以由多种方法得出,人们也作了相当多的实验测量^[8],这里取其值为: $\alpha = 0.9849, \beta = -0.1732$. 对于共振项中相应的能级位置,我们采用实验值来修正 Hartree-Slater 自洽场计算能级的误差. 相应的 $L-S$ 耦合波函数仍采用自洽场近似下的组态波函数,则

$$\begin{aligned} \sum_{n_j} \frac{\langle p_a | r | p_j \rangle \langle p_j | r | p_b \rangle}{\epsilon_j - \epsilon_a - \omega} &= \langle p | r | p_b \rangle \\ + \frac{\alpha^2 \langle p_a | r | p_{6P} \rangle \langle p_{6P} | r | p_b \rangle}{\epsilon_{6P_1} - \epsilon_a - \omega} &+ \frac{\beta^2 \langle p_a | r | p_{6P} \rangle \langle p_{6P} | r | p_b \rangle}{\epsilon_{6^3P_1} - \epsilon_a - \omega}. \end{aligned} \quad (8)$$

表 1 为 Hg 原子双光子激发截面的计算结果,其中 A 组结果为采用有限项近似和求解非齐次薛定谔方程相结合的方法的计算结果, B 组数据为单纯采用求解非齐次薛定谔方程的结果. 表 1 中,对于自然偏振光入射情形,取光源统计因子 $G = 2$.

由计算结果可知,当入射光子能量与共振能量差距较大时,两种方法的差别不大,光子能量和共振能量越接近,则差别越大,例如采用有限项近似以后 $6^1S_0-8^1D_2$ 的双光子激发截面比其它能级的截面小 4 个量级. 这是由于此时入射光子能量介于 $6^1P_1, 6^3P_1$ 共振能量之间,使这两项对于跃迁截面的贡献相消的缘故. 由此还可以看出:理论上对于跃迁截面的估计,可以帮助安排实验时选择合适的能级(例如避免 $6^1S_0-8^1D_2$),这将给实验带来一定的方便.

清华大学物理系马万云等同志曾做过 Hg 原子 $6^1D_2-6^1P_1$ 荧光的测量,以此估计 $6^1S_0-6^1D_2$ 双光子激发截面在 $10^{-20}-10^{-22} \text{ cm}^2$ 之内. 考虑到其实验条件:脉宽 5 ns,线偏振,光能 1 mJ,焦斑直径 0.1 mm. 化成 $\text{cm}^4 \cdot \text{s}$ 单位,则为 $10^{-48}-10^{-50} \text{ cm}^4 \cdot \text{s}$,这和理论计算在量级上符合.

表 1 Hg 原子双光子激发截面

跃迁能级	光波长 (Å)	$A(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$			$B(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$		
		σ_L	σ_C	σ_N	σ_L	σ_C	σ_N
$6^1S_0-6^1D_2$	2804	$2.53 \cdot 10^{-50}$	$3.80 \cdot 10^{-50}$	$4.43 \cdot 10^{-50}$	$2.24 \cdot 10^{-50}$	$3.36 \cdot 10^{-50}$	$3.92 \cdot 10^{-50}$
$6^1S_0-7^1D_2$	2595	$1.73 \cdot 10^{-50}$	$2.60 \cdot 10^{-50}$	$3.03 \cdot 10^{-50}$	$8.62 \cdot 10^{-51}$	$1.29 \cdot 10^{-50}$	$1.51 \cdot 10^{-50}$
$6^1S_0-8^1D_2$	2510	$4.51 \cdot 10^{-54}$	$6.91 \cdot 10^{-54}$	$7.89 \cdot 10^{-54}$	$4.43 \cdot 10^{-51}$	$6.64 \cdot 10^{-51}$	$7.75 \cdot 10^{-51}$
$6^1S_0-7^1S_0$	3128	$1.23 \cdot 10^{-50}$		$1.23 \cdot 10^{-50}$	$1.11 \cdot 10^{-50}$		$1.11 \cdot 10^{-50}$
$6^1S_0-8^1S_0$	2687	$3.46 \cdot 10^{-51}$		$3.46 \cdot 10^{-51}$	$2.71 \cdot 10^{-51}$		$2.71 \cdot 10^{-51}$
$6^1S_0-9^1S_0$	2550	$7.70 \cdot 10^{-51}$		$7.70 \cdot 10^{-51}$	$1.18 \cdot 10^{-51}$		$1.18 \cdot 10^{-51}$

6S—6P 态单光子跃迁波长: $6^1S_0-6^1P_1$ 1849 (Å), $6^1S_0-6^1P_1$ 2537 (Å);

σ_L 为线偏振光双光子激发截面; σ_C 为圆偏振光; σ_N 为自然偏振光.

工作中得到中国科学院物理研究所李家明先生的悉心指导和热情帮助, 清华大学物理系马万云同志提供资料, 中国科学院物理研究所计算技术应用组和中国科学院计算中心的同志们在工作上给予帮助, 在此一并致谢.

参 考 文 献

- [1] 巫英坚、李家明, 物理学报, **34**(1985), 933.
- [2] 李家明、赵中新, 物理学报, **30**(1981), 105.
- [3] T. N. Chang and R. T. Poe, *Phys. Rev.*, **A16** (1977), 606;
M. S. Pindzola, A. B. Chen and B. Ritchie, *J. Phys.*, **B14** (1981), 209.
- [4] F. Sanchez, *Nuovo Cimento*, **B27**(1975), 305.
- [5] 赵中新、李家明, 物理学报, **34**(1985), 1469.
- [6] I. I. Sobel'man, *Atomic Spectra and Radiative Transitions*, (1979), Chap. 5.
- [7] P. G. Burke, *Compat. Phys. Commun.*, **1**(1970), 241.
- [8] A. Lurio, *Phys. Rev.*, **140**(1965), A1505.
F. H. M. Faisal, R. Wallenstein and R. Teets, *J. Phys.*, **B13**(1980), 2027.

THEORETIC CALCULATION OF TWO-PHOTON EXCITATION OF Hg ATOM

WU YING-JIAN

(Institute of Physics, Academia Sinica)

XIE HONG

(Department of Physics, Tsinghua University)

ABSTRACT

Last year we reported the theoretic calculation for two-photon ionization of alkali metal and noble gas atoms on the basis of Hartree-Slater self consistent theory. In this paper, we extend the application of the program to calculate two-photon excitation cross section of any atoms.

In the calculation, we separate the transition matrix element into the resonance term and nonresonant background. For the resonance part, the possible coupling of intermediate states are taken into account and experimental results are used to remove the error of calculated energy level. On the other hand, the nonresonant background term can be obtained by solving an inhomogeneous differential equation.

The two-photon excitation cross sections of Hg atom are calculated as an example, and some discussions is given.