

脉冲激光场选择性光电离同位素原子

戴 长 建

浙江大学物理系, 杭州 310027

于 长 江

核工业物理化学工程研究院, 天津 300180

1993年3月20日收到

对三个脉冲激光场与两种四能级同位素原子选择性相互作用的动力学过程进行了研究, 由旋转波近似下的含时 Schrödinger 方程出发, 利用 Sylvester 定理分别对于近共振和非共振两种激发过程的动力学方程求解, 导出了激发和电离几率的解析表达式。研究结果揭示了窄带强激光激发原子的过程中的相干振荡特性。在近共振激发时, 导出了粒子布居在激发态上反转的条件, 并由此提供了选择性激发和电离过程中所采用的脉冲激光源之基本参数的选择依据。

PACC: 3280; 3110; 2842H

一、引 言

多步光激发和电离技术正被愈来愈广泛地应用于诸如原子光谱^[1], 化学反应^[2]和激光分离同位素^[3]等研究领域。以原子蒸气为分离介质的激光分离同位素方法 (AVLIS), 在经济上远优于传统的分离方法^[4], 其核心是采用多步激发手段选择性地激发某一种同位素原子并使它们电离, 然后用物理方法实现它们与未被激发的其它中性同位素原子的分离。

多步光激发技术所涉及的动力学过程已经引起人们的关注^[5]。但是, 有关激光场同时与两种同位素原子相互作用的动力学过程方面的研究并不多, 这方面的理论研究多局限于两种同位素原子与连续激光场的相互作用^[6,7]。然而, 连续激光场的时间特性不易控制, 激发效率很低, 尤其是分别用于激发和电离的两种激光场同时对原子系统的作用将致使分离介质成为高度非线性介质——等离子体, 分离过程将被严重复杂化。使用脉冲激光源可消除或显著减少这些不利因素, 因而它已成为 AVLIS 研究所必需的设备之一^[8]。因此, 研究脉冲激光场与同位素原子的相互作用已势在必行。

本文研究三个脉冲激光场与两个四能级原子系统的相互作用问题。由旋转波近似 (RWA) 下的含时 Schrödinger 方程出发, 采用半经典处理方法和 Sylvester 定理导出在同一组脉冲激光场的作用下两种同位素原子向各能级跃迁的几率和分离选择性因子的解析表达式, 从而揭示了它们随时间的变化规律。为了突出采用连续光场时的缺陷, 这里只

研究电离光脉冲迟后于激发光脉冲的情形,而暂不讨论两个激发光存在延迟的情况。Scarl 等人采用矩形脉冲模拟实际的激光脉冲波形在二能级原子系统中已获得了满意的效果^[9],因而是可行的。在激光辐照原子期间,只考虑激发过程而忽略自发辐射过程,而在无光照期间只考虑自发衰变过程。本文未考虑激发转移和电荷交换等碰撞效应对于选择性光激发和电离的不利影响,也不计入原子的热分布和超精细结构以及激光线宽等因素的影响。这里也不考虑原子吸收等相干作用对光场的影响,即将原子束近似视为光学薄介质。

二、激光脉冲序列和激发能级模型

光与 N 能级原子系统的相互作用问题自从量子力学诞生起便引起了物理学家们的关注,但通常动力学方程仅仅对于 $N \leq 3$ 的情况才存在解析解。这里将研究三个脉冲单色线偏振光与两个四能级同位素原子系统之间的相互作用问题。首先用两个激光脉冲有选择性地使原子蒸气中的某一种同位素原子激发至某一个激发态,继而用第三个激光场将处于该激发态上的原子光电离。由于两种同位素原子在能级上存在着位移,所以另一种同位素原子未被激发而仍处于电中性。于是在激光场辐照之后,对光作用区施加脉冲电场便可实现两种同位素原子在空间上的分离。本文为方便描述,取铀原子为例,希望只激发和电离 ^{235}U 原子,而不激发 ^{238}U 原子。显然 AVLIS 过程的选择性决定于前两步的激发过程,而后一步的电离光主要决定着电离效率之大小。

显然,控制各个激光场的时间特性(脉冲宽度、时间顺序和光脉冲之间的延迟等)对于分离效果具有重要意义。这里只考虑电离激光相对于两个激发光脉冲有时间延迟的情形。由于 AVLIS 研究中所采用的激光器的脉冲重复率通常为 $\sim 10^4 \text{ Hz}$, 脉冲宽度为 $\sim 100 \text{ ns}$, 因而脉冲占空比很小,故在短暂的脉冲持续期可近似认为激光强度为一常值。这里采用与时间无关的参量 Ω_1, Ω_2 和 Γ 依次表示第一、二激发光和电离光的强度,用 τ_1, τ_2

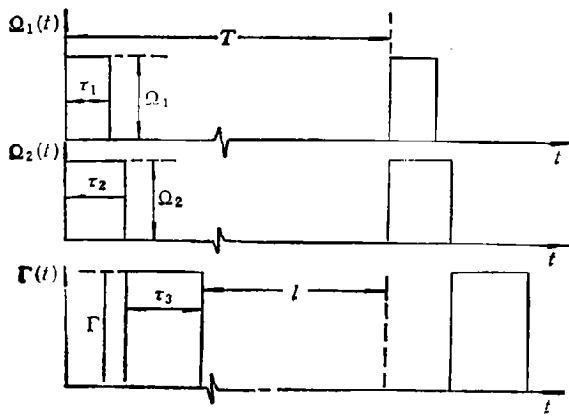


图1 激光脉冲序列模型

和 τ_3 分别表示这三个激光脉冲的宽度,并假设 $\tau_1 \leq \tau_2 < \tau_3$.

当采用含时 Schrödinger 方程描述窄带强光对原子系统的光激发过程时,能够揭示粒子布居在跃迁的上下能级间的振荡特性,即以角频率 $\Omega_m(m=1,2)$ 所表征的 Rabi 振荡.而 Rabi 频率 Ω_m 表征在第 m 步激发过程中激光场与相应跃迁能级间的相互作用强度.这里将把原子光电离过程视为原子由第二激发态的弛豫过程,而用弛豫参数 Γ 表示电离光的强度.显然,参量 Ω_m 和 Γ 都具有角频率的量纲并由铀原子的光谱数据和所采用的激光场参数共同决定.在图 1 所示的激光脉冲序列模型中,三个激光场所构成的脉冲序列为时间 t 的周期函数,其周期为 $T = \tau_2 + \tau_3 + 1$,其中 1 为激光场对原子系统辐照的间歇时间.

两种同位素原子被激发和电离的能级模型由图 2 表示.由于两个激发光之频率与相

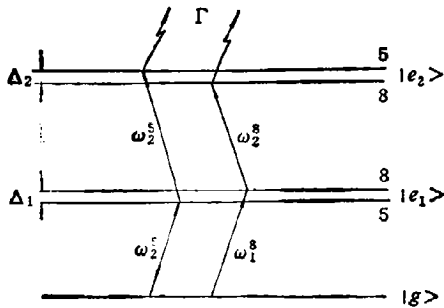


图 2 两种同位素原子的能级模型

应的 ^{235}U 原子能级间的 Bohr 频率共振,它们必然与 ^{238}U 原子的相应能级的跃迁失谐,而且在两个跃迁上的频率失谐量之大小决定于对应的能级上的同位素位移.为此,定义 $\Delta_m(m=1,2)$ 为第一、二激发光频率与 ^{235}U 原子能级的相应 Bohr 频率的失谐量; $\delta_m(m=1,2)$ 分别为两种同位素原子在第一、二激发态上的能量位移.它们之间满足关系:

$$\Delta_m = (\delta_m - \delta_{m-1})/\hbar. \quad (1)$$

其中 $m=1,2, \delta_0=0$.至此,原来与原子特性无关的失谐量 Δ_m 通过同位素位移 δ_m 而与具体原子的光谱数据联系起来,这正是 AVLIS 过程的重要特征之一.另外,对于每一步跃迁两种同位素原子的 Bohr 频率存在微小差别,这种差别相对于 Bohr 频率本身可被忽略不计.因此,在方程的求解过程中,将对两种同位素原子的 Ω_m 和 Γ 值不予区别.

三、动力学方程及其解析解

若忽略原子间的相互作用,则单个原子与激光场的相互作用具有普遍意义.铀原子共有 92 个电子,若将其中的 91 个电子和原子核视为一个等效的原子实,而将铀原子等效为一个单电子与一个原子实的原子模型,则复杂的多电子原子问题被简化成一个单电子原子问题.

有关 N 能级原子与 $N-1$ 个单色线偏振光的相互作用体系的动力学方程可由旋转波近似下的偶极跃迁模型导出^[4].当把光电离作为弛豫过程处理时,三步跃迁所涉及的四能级模式只需取 $N=3$ 即可.于是相应的动力学方程可采用矩阵形式描述,即

$$\frac{d}{dt} [b(t)] = [A][b(t)]. \quad (2)$$

列矩阵 $[b(t)]$ 的三个元素分别为原子处于基态和两个激发态的几率振幅,而复函数方

阵 $[A]$ 为

$$[A] = \begin{bmatrix} 0 & i\frac{\Omega_1}{2} & 0 \\ i\frac{\Omega_1}{2} & -i\Delta_1 & i\frac{\Omega_2}{2} \\ 0 & i\frac{\Omega_2}{2} & -i(\Delta_1 + \Delta_2) + \Gamma \end{bmatrix}. \quad (3)$$

由于光场为时间的分段函数,而在激光脉冲持续期或间歇期,光场分别被认为与时间无关。故在任何给定时间区间内矩阵 $[A]$ 都与时间无关。因此,方程(2)的解应为如下形式:

$$[b(t)] = e^{[A]t} [b(0)]. \quad (4)$$

其中 $[b(0)]$ 由初始条件确定,而指数矩阵 $e^{[A]t}$ 决定了过程的时间特性。

显然,两种同位素原子满足不同的方程和条件,对它们各自的方程必须分别求解。在反应区内若采用适当的光腔设计,可实现同一组原子被光重复照射。显然当原子被重复照射时,所满足的初始条件不同,因而效果也不相同。所以求出原子系统被光重复照射任意次方程的解析解是必要的。为此,推导过程分为无重复照射(即只照射一次)和重复照射几次这两种情形来进行。为便于叙述,采用上角标“5”和“8”来代表 ^{235}U 和 ^{238}U 原子所对应的矩阵和解。另外,在 AVLIS 研究中,铀原子蒸气是在 2600K 的高温下产生的。由于热布居效应,并非所有原子都处于基态。这里忽略这种影响而认为两种同位素原子在未被照射前全部处于基态。

1. 原子在无重复光照射的情形

推导将在不同时间段内分别进行。

1) $0 < t \leq t_1$ 动力学方程的解由(4)式决定,其中 $[A]$ 和初始条件分别为

$$[A]^5 = \begin{bmatrix} 0 & i\frac{\Omega_1}{2} & 0 \\ i\frac{\Omega_1}{2} & 0 & i\frac{\Omega_2}{2} \\ 0 & i\frac{\Omega_2}{2} & 0 \end{bmatrix}; [A]^8 = \begin{bmatrix} 0 & i\frac{\Omega_1}{2} & 0 \\ i\frac{\Omega_1}{2} & -i\Delta_1 & i\frac{\Omega_2}{2} \\ 0 & i\frac{\Omega_2}{2} & -i(\Delta_1 + \Delta_2) \end{bmatrix} \quad (5)$$

和

$$[b(0)]^5 = [b(0)]^8 = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (6)$$

显然,指数矩阵 $e^{[A]t}$ 的求解成为问题的关键,由 Sylvester 定理^[6],若 $[A]$ 的本征值方程无重根,则其指数矩阵可表示为

$$e^{[A]t} = \sum_{k=1}^3 \frac{e^{S_k t} \text{adj}[S_k[I] - [A]]}{\prod_{\substack{l=1 \\ l \neq k}}^3 (S_k - S_l)}. \quad (7)$$

其中 S_k, S_l ($k, l = 1, 2, 3$) 为方阵 $[A]$ 的本征值, $\text{adj}[S_k[I] - [A]]$ 为本征矩阵 $[S[I] - [A]]$ 的伴随矩阵, 于是由(4)–(7)式, 可以得到两种同位素原子在各个态上的几率振幅, 它们是

$$\begin{aligned} b_g^s(t) &= \left(Q_2^2 + Q_1^2 \cos \frac{1}{2} \omega t \right) / \omega^2 \equiv A_1(t); \\ b_{e_1}^s(t) &= \left(i Q_1 \sin \frac{1}{2} \omega t \right) / \omega \equiv A_2(t); \\ b_{e_2}^s(t) &= - \left(2 Q_1 Q_2 \sin^2 \frac{1}{4} \omega t \right) / \omega^2 \equiv A_3(t). \end{aligned} \quad (8)$$

其中 $\omega = \sqrt{Q_1^2 + Q_2^2}$.

$$\begin{aligned} b_g^s(t) &= \sum_{k=1}^3 \frac{(\lambda_k + \Delta_1)(\lambda_k + \Delta_1 + \Delta_2) - \frac{1}{4} Q_2^2}{\prod_{\substack{l=1 \\ l \neq k}}^3 (\lambda_k - \lambda_l)} e^{i \lambda_k t} \equiv A'_1(t); \\ b_{e_1}^s(t) &= i \frac{Q_1}{2} \sum_{k=1}^3 \frac{\lambda_k + \Delta_1 + \Delta_2}{\prod_{\substack{l=1 \\ l \neq k}}^3 (\lambda_k - \lambda_l)} e^{i \lambda_k t} \equiv A'_2(t); \\ b_{e_2}^s(t) &= - \frac{Q_1 Q_2}{4} \sum_{k=1}^3 \frac{1}{\prod_{\substack{l=1 \\ l \neq k}}^3 (\lambda_k - \lambda_l)} e^{i \lambda_k t} \equiv A'_3(t) \end{aligned} \quad (9)$$

其中 $S_k = i \lambda_k, S_l = i \lambda_l$, 而 λ_k 和 λ_l 是三次方程 $\lambda^3 + A \lambda^2 + B \lambda + C = 0$ 的三个根, 系数 A, B 和 C 分别为

$$\begin{aligned} A &= 2\Delta_1 + \Delta_2; \\ B &= \Delta_1(\Delta_1 + \Delta_2) - \frac{1}{4}(Q_1^2 + Q_2^2); \\ C &= -\frac{Q_2^2}{4}(\Delta_1 + \Delta_2). \end{aligned} \quad (10)$$

) $\tau_1 < t \leq \tau_2$ 分别属于 ^{235}U 和 ^{238}U 原子的两个 $[A]$ 矩阵的非零元素为

$$\begin{aligned} A_{33}^s &= A_{32}^s = i \frac{Q_2}{2}; \\ A_{23}^s &= A_{32}^s = i \frac{Q_2}{2}; \end{aligned} \quad (11)$$

$$A_{22}^n = -i\Delta_1;$$

$$A_{33}^n = -i(\Delta_1 + \Delta_2).$$

应用 Sylvester 定理以及关于时间 t 的边界条件不难得到几率振幅为

$$\begin{aligned} b_i^s(t) &= A_i(\tau_1); \\ b_{e_1}^s(t) &= A_2(\tau_1)B_1(t) + iA_3(\tau_1)B_2(t) \equiv D_2(t); \\ b_{e_2}^s(t) &= A_3(\tau_1)B_1(t) + iA_2(\tau_1)B_2(t) \equiv D_3(t). \end{aligned} \quad (12)$$

其中

$$\begin{aligned} B_1(t) &= \cos \left[\frac{\Omega_2}{2} (t - \tau_1) \right]; \\ B_2(t) &= \sin \left[\frac{\Omega_2}{2} (t - \tau_1) \right]. \end{aligned} \quad (13)$$

而 A_1, A_2 和 A_3 由(8)式定义.

$$\begin{aligned} b_i^s(t) &= A'_i(\tau_1); \\ b_{e_1}^s(t) &= A'_2(\tau_1)B'_1(t) + A'_3(\tau_1)B'_2(t) \equiv D'_2(t); \\ b_{e_2}^s(t) &= A'_3(\tau_1)B'_1(t) + A'_2(\tau_1)B'_2(t) \equiv D'_3(t). \end{aligned} \quad (14)$$

其中 A'_1, A'_2 和 A'_3 由(9)式确定. 而 B'_1, B'_2 和 B'_3 则由下式确定:

$$\begin{aligned} B'_1(t) &= [(\Delta_2 + \omega')C'_1(t) - (\Delta_2 - \omega')C'_2(t)]/2\omega'; \\ B'_2(t) &= \Omega_2[C'_1(t) - C'_2(t)]/2\omega'; \\ B'_3(t) &= [(-\Delta_2 + \omega')C'_1(t) + (\Delta_2 + \omega')C'_2(t)]/2\omega'. \end{aligned} \quad (15)$$

其中

$$\begin{aligned} \omega' &= \sqrt{\Delta_2^2 + \Omega_2^2}; \\ C'_1(t) &= e^{i\lambda_1(t-\tau_1)}; \\ C'_2(t) &= e^{i\lambda_2(t-\tau_1)}. \end{aligned} \quad (16)$$

这里

$$\begin{aligned} \lambda_2 &= \frac{1}{2} [\omega' - (2\Delta_1 + \Delta_2)]; \\ \lambda_3 &= -\frac{1}{2} [\omega' + (2\Delta_1 + \Delta_2)]. \end{aligned} \quad (17)$$

3) $\tau_2 < t \leq \tau_2 + \tau$, 在这段时间内, 唯有电离激光的存在, 矩阵 $[A]$ 的非零元素为

$$\begin{aligned} A_{33}^s &= -\Gamma; \\ A_{22}^s &= -i\Delta_1; \\ A_{33}^s &= -[i(\Delta_1 + \Delta_2) + \Gamma]. \end{aligned} \quad (18)$$

此时, 由于 $[A]^s$ 和 $[A]^n$ 的本征值方程分别存在重根而使(7)式失效, 所以必须采用重根时的 Sylvester 定理求解指数矩阵. 最后得原子处于各态的几率振幅为

$$\begin{aligned} b_i^s(t) &= A_i(\tau_1); \\ b_{e_1}^s(t) &= D_2(\tau_1); \\ b_{e_2}^s(t) &= D_3(\tau_1)e^{-\Gamma(t-\tau_1)}. \end{aligned} \quad (19)$$

其中 D_2 和 D_3 由(12)式定义,

$$\begin{aligned} b_i^8(t) &= A_i'(\tau_1); \\ b_{i1}^8(t) &= D_2'(\tau_2); \\ b_{i2}^8(t) &= D_3'(\tau_2)e^{-T(\tau-\tau_2)}. \end{aligned} \quad (20)$$

式中的 D_2' 和 D_3' 由(14)式定义.

可见,在这段时间内,由于两个激发光脉冲终止,使得原子在基态和第一激发态上的几率维持不变,而第二激发态上的粒子布居由于电离光场的作用而呈现指数衰减,并且在电离光脉冲结束时达到最小值,即

$$\begin{aligned} b_{i2}^8(\tau_3) &= D_3(\tau_2)e^{-T\tau_3}; \\ b_{i1}^8(\tau_3) &= D_3'(\tau_2)e^{-T\tau_3}. \end{aligned} \quad (21)$$

显而易见,当选用光强和脉宽足够大的激光源作为电离光源,可以使第二激发态上原子在无需重复照射的情况下而全部被电离. 另一方面,电离光本身对两种同位素原子的电离没有选择性,所有处于第二激发态上的原子均按同一个规律 e^{-Tt} 而减少. 但由于前两步激发过程具有很高的选择性,而因 $D_3(\tau_2) \gg D_3'(\tau_2)$, 即 ^{235}U 原子被光电离的几率远远大于 ^{238}U 原子的光电离几率. 应当注意,尽管选择性决定于两个激发光场,但电离光也并非愈强愈好. 异常高的光强将导致原子从基态通过多光子电离^[11]渠道而电离,从而降低 AVLIS 过程的选择性. 这一限制是 AVLIS 过程的性质所决定的.

当第一个脉冲序列终止后,在时间区间 $\tau_2 + \tau_3 \leq t < \tau_2 + \tau_3 + 1$ 内,原子系统处于无辐照阶段. 由于无激光场的作用,使得自发衰变占主导地位,处于各激发态上的原子通过衰变回到基态. 通常在 AVLIS 研究中所用的激光器的脉冲重复率为 $\sim 10^4\text{Hz}$, 脉宽为 $\sim 100\text{ns}$, 即激光场处于间歇的时间 ($\sim 10^5\text{ns}$) 很长,或者说脉冲占空比 $\tau/1 \ll 1$, 而原子激发态的寿命通常很短 ($\sim 100\text{ns}$). 因此,在第二个脉冲序列到来之前,可以认为原子将由各激发态全部返回到基态(忽略热布居的影响). 另一方面,已经被第一个脉冲序列电离了的原子之数量或电离几率将维持不变. 因此在第二个脉冲序列到达的时刻,原子在各态上的几率只有两个不为零,它们是原子处于基态的几率 P_g 和电离几率 P_i , 即

$$\begin{aligned} P_g^5 &= |b_i^5(\tau_2 + \tau_3 + 1)|^2 \equiv \nu^2; \\ P_i^5 &= 1 - P_g^5 = 1 - \nu^2 \end{aligned} \quad (22)$$

和

$$\begin{aligned} P_g^8 &= |b_i^8(\tau_2 + \tau_3 + 1)|^2 \equiv \sigma^2; \\ P_i^8 &= 1 - P_g^8 = 1 - \sigma^2. \end{aligned} \quad (23)$$

其中

$$\begin{aligned} \nu^2 &= |A_1(\tau_1)|^2 + |D_2(\tau_2)|^2 + |D_3(\tau_2)|^2 e^{-2T\tau_3}; \\ \sigma^2 &= |A_1'(\tau_1)|^2 + |D_2'(\tau_2)|^2 + |D_3'(\tau_2)|^2 e^{-2T\tau_3}. \end{aligned} \quad (24)$$

2. 原子被重复 n 次光照射的情形

在实际的 AVLIS 过程中,为了最大可能地提高 ^{235}U 原子的电离产额,常常需要对同一组原子进行重复光照射. 显然这里指的重复光照射是由不同的脉冲序列对同一组原子的辐照所完成的,而并非指同一个激光脉冲序列对同一组原子的多次辐照. 通常为

了减少 Doppler 效应所导致的谱线加宽,使原子束方向与激光束相垂直。由于激光束直径一般较小。所以它与原子束相交时仅能照射其中的一组原子。若考虑到光速比原子从蒸发源向收集器的运动速度大得多这一事实,则可设计合理的光学腔,使激光束在其中多次错位反射(如图 3),以实现同一个激光脉冲序列对多组原子的一次照射。采取这种手段可避免任何原子未被光照便进入收集电场区域所导致的不利影响,换句话说,任何原子至少被光照一次才允许进入收集区域。另一方面,当光学腔的横向尺寸足够地大(如 50 cm),则同一组原子在穿过光学腔的过程中被分别属于不同脉冲序列的光场重复照射数次便成为可能,以下将研究这种情况。

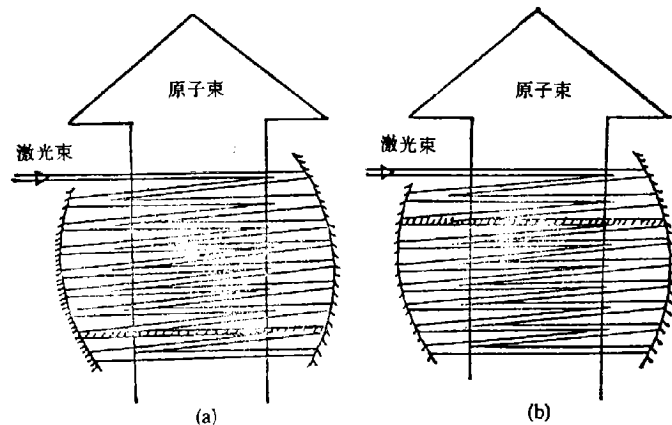


图 3 激光束在反应腔中错位反射示意图。阴影部分的原子束表示同一组原子在不同脉冲序列照射时处于不同位置

当原子被光场重复照射一次时,只需重复(5)一(24)式所表示的步骤,并注意到,此时的初始条件不同于(6)式, ^{235}U 原子和 ^{238}U 原子也将满足不同的初始条件,它们分别由(22)和(23)式决定,即

$$[b(T)]^5 = \begin{pmatrix} \nu \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}; [b(T)]^8 = \begin{pmatrix} \sigma \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (25)$$

其中 $T = \tau_2 + \tau_3 + 1$ 为脉冲光场的周期。于是便可导出原子被重复照射一次后在各态上布居的几率。重复这种推导步骤 n 次,并注意每一次重复时原子的初始条件都不同这一事实,便可导出原子在被脉冲光场重复照射 n 次后,在各个时间区域内原子在各态的上布居的几率之通式,即

$$1) \quad nT < t \leq nT + \tau_1$$

$$\begin{aligned} P_2^1(t) &= \nu^{2n} |A_1(t')|^2; \\ P_{21}^2(t) &= \nu^{2n} |A_2(t')|^2; \\ P_3^3(t) &= \nu^{2n} |A_3(t')|^2. \end{aligned} \quad (26)$$

和

$$\begin{aligned}
P_i^a(t) &= \sigma^{2n} |A_1(t')|^2; \\
P_{i_1}^a(t) &= \sigma^{2n} |A_2(t')|^2; \\
P_{i_2}^a(t) &= \sigma^{2n} |A_3(t')|^2.
\end{aligned}
\quad (27)$$

其中 $t' = t - nT$, 而 $n = 0, 1, 2, \dots$, ν 和 σ 之值由(24)式确定。

2) $nT + \tau_1 < t \leq nT + \tau_2$

$$\begin{aligned}
P_i^b(t) &= \nu^{2n} |A_1(\tau_1)|^2; \\
P_{i_1}^b(t) &= \nu^{2n} |D_2(t')|^2; \\
P_{i_2}^b(t) &= \nu^{2n} |D_3(t')|^2.
\end{aligned}
\quad (28)$$

和

$$\begin{aligned}
P_i^c(t) &= \sigma^{2n} |A_1'(\tau_1)|^2; \\
P_{i_1}^c(t) &= \sigma^{2n} |D_2'(t')|^2; \\
P_{i_2}^c(t) &= \sigma^{2n} |D_3'(t')|^2.
\end{aligned}
\quad (29)$$

3) $nT + \tau_2 < t \leq nT + \tau_2 + \tau_3$

$$\begin{aligned}
P_i^d(t) &= \nu^{2n} |A_1(\tau_1)|^2; \\
P_{i_1}^d(t) &= \nu^{2n} |D_2(\tau_2)|^2; \\
P_{i_2}^d(t) &= \nu^{2n} |D_3(\tau_2)|^2 \beta(t); \\
P_i^d(t) &= 1 - [P_i^d(t') + P_{i_1}^d(t') + P_{i_2}^d(t')]
\end{aligned}
\quad (30)$$

和

$$\begin{aligned}
P_i^e(t) &= \sigma^{2n} |A_1'(\tau_1)|^2; \\
P_{i_1}^e(t) &= \sigma^{2n} |D_2'(\tau_2)|^2; \\
P_{i_2}^e(t) &= \sigma^{2n} |D_3'(\tau_2)|^2 \beta(t); \\
P_i^e(t) &= 1 - [P_i^e(t') + P_{i_1}^e(t') + P_{i_2}^e(t')].
\end{aligned}
\quad (31)$$

其中 $\beta(t) = \exp[-2\Gamma(t - nT - \tau_2)]$

4) $t = (n+1)T$

$$\begin{aligned}
P_i^f(t) &= \nu^{2(n+1)}; \\
P_i^f(t) &= 1 - \nu^{2(n+1)}
\end{aligned}
\quad (32)$$

和

$$\begin{aligned}
P_i^g(t) &= \sigma^{2(n+1)}; \\
P_i^g(t) &= 1 - \sigma^{2(n+1)}.
\end{aligned}
\quad (33)$$

最后,我们利用已经导出的两种同位素原子的电离几率之解析表达式给出 AVLIS 过程中的一个重要参数——分离选择性因子 f 的解析表达式。

由于实际的同位素位移很小,例如,对于由铀原子之基态($f^3d^5s^2, {}^3L_0$)到 16900.38cm^{-1} 能级($f^3d^5p, {}^3M_2'$)之间的跃迁, ^{238}U 原子和 ^{235}U 原子的同位素位移仅为 (-280mk) , 而且作为供料的天然铀,其 ^{235}U 同位素的丰度仅为 7%。因此,即使激发激光的频率与 ^{235}U 原子的相应跃迁的 Bohr 频率近共振,仍不可避免地使一定量的 ^{238}U 原子被激发和电离。为此,必须用数个包含两种同位素原子的电离几率的参数来鉴定 AVLIS 过程之品质的优劣。这里只考虑这些参数中的一个,即分离选择性因子 f 。它与 P_i^f 和 P_i^g 满

足如下关系^[12]:

$$f = P_1^0(1 - P_1^0)/P_1^0(1 - P_1^0). \quad (34)$$

需要说明的是,由于本文未考虑各种碰撞效应和热布居效应以及光场损失和激光线宽等不利影响,由(34)式所定义的 f 因子在实际过程中需加以修正,因此,不妨认为它是一个理想分离选择性因子。

在原子系统被脉冲激光场重复照射 n 次以后,原子与光场之间的多次相互作用导致了两种同位素原子不同程度地被光电离,表征这一过程的分离选择性因子为

$$f = \left(\frac{\sigma}{\nu}\right)^{2(n+1)} \left[\frac{1 - \nu^{2(n+1)}}{1 - \sigma^{2(n+1)}} \right]. \quad (35)$$

应当指出,由方程(34)所表示的分离选择性因子采用了与传统定义的分离系数所不同的定义方式,前者是精料浓度与贫料浓度之比,而后者则为精料浓度与供料浓度之比。这种作法考虑了 AVLIS 方法比传统分离方法所具有的优势,换句话说,欲想提高 f 因子不仅需要提高精料浓度,同时还应降低贫料浓度。

四、讨论和结论

由多步激发光电离的物理过程可见,若想最大限度地提高电离产额,应保证在电离光脉冲到达时,在第二激发态上有足够的原子。实现第二激发态的粒子数的完全反转对电离几率的提高大有益处,为此,激发光脉冲的强度和宽度必须满足适当的条件,称为粒子数反转条件。于是,由(8)式得

$$\begin{aligned} \Omega_1 &= \Omega_2 = \Omega; \\ \Omega t &= \sqrt{2} (2k+1)\pi, k = 0, 1, 2, \dots \end{aligned} \quad (36)$$

这两个条件显示,两个激发光应具有相等的 Rabi 频率,而且两个光脉冲宽度应按(36)式的第二式选择。当选取 $\Omega_1 = \Omega_2 = \Omega$ 时,由(26)式得

$$\begin{aligned} P_1^0(t) &= \nu^{2n} \cos^4 \left[\frac{\Omega}{2\sqrt{2}} (t - nT) \right]; \\ P_{1,1}^0(t) &= \frac{1}{4} \nu^{2n} \sin^2 \left[\frac{1}{\sqrt{2}} (t - nT) \right]; \\ P_{1,1}^0(t) &= \nu^{2n} \sin^4 \left[\frac{\Omega}{2\sqrt{2}} (t - nT) \right]. \end{aligned} \quad (37)$$

上式说明,当无电离光的照射时,原子系统没有原子数的损失,原子数只是周期性地,在基态与激发态上重新分布,即在这些态上原子数布居各自为时间 t 的等幅振荡。这种介于基态和激发态之间的粒子数布居的不衰减振荡是当高强度的单色激光场与无粒子损失(电离)的封闭原子系统相互作用时的一个重要特征^[12,13],被称为相干 Rabi 振荡。这种特征可通过求解含时 Schrödinger 方程或求解 Bloch 方程(密度矩阵方法)^[14]予以揭示。与此形成对照的是,以数学处理简单易行而被广泛采用的速率方程方法却对该特征的表达无能为力。采用类似的处理方法可以显示,²³⁸U 原子也有类似的振荡特性,只是其振荡周期和幅值远比 ²³⁵U 原子的情况为小,这当然是激发光之频率与 ²³⁸U 原子的相应跃

迁的 Bohr 频率失谐的必然结果。因为光与物质的相互作用之强度决定于光场是否与原子跃迁共振。同一强度的光场,在近共振情况下可导致强相互作用,而对于非共振跃迁的情况,可能仍属弱相互作用的范畴。

显然,当电离光脉冲照射原子系统时,由于原子的不断电离而使系统中的原子数目呈减少趋势,故粒子数布居将成为衰减振荡。

需要说明的是,按照(36)式选择的激发光场参数可以称为在由图 1 所描述的光场模型下激发光场的强度和脉冲宽度的最佳选择。而对于其它种类的光场模型(例如两个激发光脉冲存在时间延迟的情形),对它们应有相应的修正。另一方面,(36)式只提供了选择 Q 和 τ 值的依据,对于它们的绝对大小则应视具体条件确定。因为激光光强 I 与 Q 值存在关系 $Q \propto \sqrt{I}$, 并且比例系数由具体跃迁的光谱数据确定。例如,对于 $\lambda = 591.53\text{nm}$ 这一强跃迁线,可以算出, $Q \approx 0.2\sqrt{I}(\text{GHz})$, 其中 I 以 W/cm^2 为单位, Q 值的选取应使相应的跃迁刚好饱和为佳,其值太大会因功率加宽效应而降低 AVLIS 过程的选择性。当激发激光的脉宽 $\tau = \sqrt{2(2k+1)}\pi/Q$ 时,第二激发态上的原子布居最大。因而当 Q 值确定后, τ 值有一系列值可供选取。但是,它的具体数值还要考虑具体跃迁的上能级的寿命,如对应于 $\lambda = 591.53\text{nm}$ 的跃迁上能级之寿命约为 205 ns 。 τ 值的选取应确保它比相应激发态的寿命短,以便在其寿命所限定的时间内,使粒子布居至少完成一个周期 ($\sim 2\pi/Q$) 的 Rabi 振荡,从而获得最佳的电离效果。

电离光场参数的选择可从(32)式得到一些启发。当激发光场满足(36)式时,由(24)式知参数 $\nu \propto e^{-2\Gamma\tau}$, 于是增大 Γ 值和 τ 值对于提高 P_2 值是有利的。由于电离截面通常小于激发截面,当 Γ 值与 Q 值相近时,所对应和电离光强已远比激发光强大,在实际过程中这一条件应予以保证。 τ 值增大有利于电离,若能选取适当的 Γ 值与其组合使原子实现饱和电离,则可避免同一组原子需多次照射才能全部电离所引起的困难。但正如前一节所述, Γ 值并不可以无限制的提高,就目前激光源的水平,实现多光子电离并不困难,而这一过程对 AVLIS 过程的选择性的提高不利。当然这种过程要求激光强度比饱和激发所需要的光强度高得多,因而是很容易避免的。选择性的提高主要决定于前两步的激发过程,因此,选择同位素位移较大的能级作为光激光的中间态对于实际的 AVLIS 过程是举足轻重的。提高电离几率的另一条重要途径是寻找和选择具有很大激发截面的自电离态,关于自电离态的特性的研究^[55]在碱土金属原子中已相当成熟。

应当指出,采用电离光脉冲延迟于激发光脉冲,特别是当第二激发态上的原子布居最大时,再触发电离光脉冲可以获得最佳的电离效果。这种脉冲的时间控制不仅避免了连续场激光与原子系统相互作用时由于电离光与激发光同时存在所导致的各种不利影响,而且准确的延迟所带来的电离几率的显著提高是连续场激光所无法比拟的。另一方面,对于本文所用的激光场模型的进一步改善仍是可能的。改进的方案有多种,这里仅举一例予以说明。若控制两个激发光脉冲,避免它们同时与原子系统的作用,则可避免由双光子共振效应^[66]所导致的基态上的 ^{238}U 原子直接跃迁到第二激发态上而被电离,这种效应在两个激发光场同时存在,而且它们的两个频率失谐满足 $\Delta_1 + \Delta_2 = 0$ 时便得以实现。两个激发光场同时存在的另一种潜在危害是由于铀原子蒸气的非线性所致。两个激光束

将在介质中产生非线性极化强度,从而等效于一个频率为 $\omega = \omega_1 + \omega_2$ 的新辐射源^[17]. 这个频率将把 ^{235}U 原子直接由基态泵浦到第二激发态上去. 这种激发途径与正常的两步激发产生干涉,将抑制在第二激发态上 ^{235}U 原子的几率^[18]. 显然,上述两种过程均对 AVLIS 过程产生不利影响. 然而,控制两个激光场依次而不是同时与原子系统相互作用,则可避免这些影响. 因此,在本工作的基础上进一步研究两个激发光脉冲也存在延迟的情况是有意义的.

- [1] T. F. Gallagher, *J. Opt. Soc. Am.*, **B4** (1987), 794.
- [2] J. Keller and J. Weiner, *Phys. Rev.*, **A29** (1984), 2230.
- [3] P. T. Greenland, *Contemporary Phys.*, **31** (1990), 405.
- [4] J. I. Davis and E. Rockower, *IEEE J. Quant. Electr.*, **QE-18**, (1982), 223.
- [5] 蒋孟衡, 林福成, *光学学报*, **11** (1991), 769.
- [6] N. V. Karlov *et al.*, *Sov. Phys. Tech. Phys.*, **28** (1983), 937.
- [7] 于长江, 王立军, *吉林大学自然科学学报特刊* (3) (1992), 763.
- [8] J. A. Paisner *et al.*, *Appl. Phys.*, **B46** (1988), 253.
- [9] D. Scarl *et al.*, *Phys. Rev.*, **A24** (1981), 883.
- [10] W. L. Brogan, *Modern Control Theory*, Prentice-Hall, Inc., New Jersey, (1985), 224.
- [11] D. Kim *et al.*, *Phys. Rev.*, **A41** (1990), 4966.
- [12] L. J. Rudziemski *et al.* (ed.), *Laser Spectroscopy and Its Applications* Dekker, (New York, 1987), 175.
- [13] P. L. Knight *et al.*, *Concepts of Quantum Optics* Pergamon, (New York, 1983).
- [14] J. R. Ackerhalt and B. W. Shore, *Phys. Rev.*, **A16** (1977), 227.
- [15] C. J. Dai, G. W. Schinn and T. F. Gallagher, *Phys. Rev.*, **A42** (1990), 223.
- [16] C. S. Chang and R. Schlier, *Phys. Rev.*, **A21** (1980), 872.
- [17] Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics* Wiley, (New York, 1984).
- [18] Noriaki Tsukada *et al.*, *Phys. Rev.*, **A21** (1980), 1281.

SELECTIVE PHOTOIONIZATION OF ISOTOPIC ATOMS WITH PULSED LASERS

DAI CHANG-JIAN

Department of Physics, Zhejiang University, Hangzhou 310027

YU CHANG-JIANG

Research Institute of Physical and Chemical Engineering of Nuclear Industry, Tianjin 300180

(Received 20 March 1993)

ABSTRACT

The dynamics of isotopically selective interactions between the radiation of three pulsed lasers and atoms with a four-levels scheme has been studied. Starting from the time-dependent Schrödinger equation with the rotating-wave approximation, we applied Sylvester theorem to the dynamic equations associated with near-and off-resonant excitations, respectively. We obtained the explicit expressions for the four-levels occupation probabilities. The analytic treatment explored the properties of coherent oscillations occurred in the atomic excitation processes with intense monochromatic lasers. The conditions under which the population inversion takes place are derived from near-resonant excitations. The criteria to select the basic parameters of pulsed lasers involved in the process are also provided.

PACC: 3280; 3110; 2842H