

窄带激光与能级具有超精细结构的二能级原子的相干激发

王立军 余慧莹

(清华大学工程物理系, 北京 100084)

(2004 年 3 月 4 日收到, 2004 年 3 月 31 日收到修改稿)

将原子相干激发动力学的半经典理论拓展到了有超精细分裂能级的情形, 并对具体原子能级进行了计算. 研究表明, 当激光功率达到一定水平后, 由于功率加宽的作用, 单频激光也能将有超精细分裂能级的原子有效地激发. 因此, 在这样激光功率条件下, 为提高原子激发效率而增加激光谱线宽度的做法并不是必要的.

关键词: 超精细结构, 二能级原子, Rabi 频率, 钷原子

PACC: 3130G, 3270F, 3280

1. 引 言

当某种物质需要以原子形态与光发生作用时, 该物质通常是以蒸气形式存在的. 由于热运动的存在, 蒸气中的原子会分布于原子的各个能级之上, 这就是所谓的热布居. 在处于热平衡态的原子蒸气中, 处于某个能级上的原子数 N_i 与该能级能量 E_i 的关系为

$$N_i \propto w_i \exp(-E_i/kT),$$

其中 w_i 为统计权重. 从这个关系可以看出, 原子蒸气中处于基态的原子最多, 能级能量越高处于该能级上的原子就越少. 激发态原子数 N_e 与基态原子数 N_g 之比为

$$N_e/N_g = w_e/w_g \cdot \exp[-(E_e - E_g)/kT].$$

一般情况下, 原子第一激发态(亚稳态除外)的能量较高并且有 $(E_e - E_g)/kT \gg 1$ 成立, 而 w_e/w_g 是一个不大的因子, 所以 $N_e/N_g \approx 0$, 即原子蒸气中绝大多数原子都处于基态. 对于这样的原子, 如果需要用激光将蒸气中原子激发到高能态上去, 只需一种频率为 $\nu = (E_e - E_g)/h$ 的激光就可以将原子蒸气中绝大多数原子激发. 与此相比, 另一种较为复杂的情形是原子能级具有超精细分裂, 如图 1 所示. 虽然条件 $(E_{e_i} - E_{g_j})/kT \gg 1$ 可能仍然存在, 使大部分原子处于基态, 但是基态上的原子会分布在基态的各个子能级上, 而且各个子能级上原子数的比为

$$N_{g_i}/N_{g_j} = w_{g_i}/w_{g_j} \cdot \exp[-(E_{g_i} - E_{g_j})/kT].$$

原子能级的超精细分裂一般在 0.001 cm^{-1} 量级^[1]. 比如在图 1 所示的情形中, 最大的能量差为 $E_{g_4} - E_{g_1} = 1.6 \times 10^{-25} \text{ J}$, $w_{g_4}/w_{g_1} = 0.57^{21}$, 即使在室温下也有 $kT \approx 4 \times 10^{-21} \text{ J}$. 所以有 $N_{g_4}/N_{g_1} \approx 0.57$. 对于其他的子能级这个比值也大致在这个水平, 这意味着在原子蒸气中处于基态每个超精细结构子能级上的原子都是不容忽略的. 在这种情况下, 如果激光是单频的(或激光的线宽很窄), 则一束激光只能与上下能级的某两个子能级共振. 在图 1 中, 如果激光与 E_{g_3} 和 E_{e_3} 能级之间的跃迁共振, 则只有处于 E_{g_3} 能级上的原子可以被激发到上能级, 而处于基态其他子能级上的原子不能被激发. 因此, 存在这样

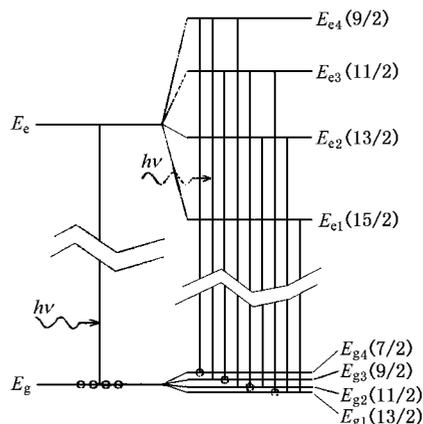


图 1 ^{157}Gd 原子的 9D_3 ($E_g = 999 \text{ cm}^{-1}$) 和 6D_6 ($E_e = 18070 \text{ cm}^{-1}$) 能级的超精细结构图

的观点^[3,4]:对于能级有超精细分裂的原子,为使原子蒸气中的原子被充分激发,激发激光应该具有一定的谱线宽度,该宽度要能覆盖原子光谱中谱线的超精细分裂宽度.

本文在对文献[5]中给出的相干激发动力学方程进一步完善的基础上,对能级有超精细分裂的二能级原子在激光作用下的跃迁性质与激光功率和频率的关系进行了研究. 研究表明,当激光功率达到一定水平后,由于功率展宽的作用,单频(零线宽)激光也可以将分布于基态各个超精细分裂子能级上的原子充分激发到上能级.

2. 有超精细能级分裂的二能级原子相干激发动力学方程

在偶极近似下,理想光场中原子的 Hamiltonian 量取下面的形式:

$$H = H_0 - e\mathbf{r} \cdot \mathbf{E} \cos(\omega t), \quad (1)$$

式中 e 为电子电量, E 为激光的电场振幅矢量, ω 为激光的圆频率, H_0 为孤立原子的 Hamiltonian 量. 在考虑原子能级超精细分裂的情况下,该 Hamiltonian 量应该是包含核磁矩和电子磁矩相互作用的量. 对于能级有超精细分裂的二能级原子,与 H_0 相应的基态和激发态的本征函数可以表示成^[6]

$|F_g, J_g\rangle$ 和 $|F_e, J_e\rangle$. 所以有

$$H_0 |F_g, J_g\rangle = E_{F_g} |F_g, J_g\rangle, \quad (2)$$

$$F_g = |I - J_g|, |I - J_g| + 1, \dots, I + J_g,$$

$$H_0 |F_e, J_e\rangle = E_{F_e} |F_e, J_e\rangle, \quad (3)$$

$$F_e = |I - J_e|, |I - J_e| + 1, \dots, I + J_e,$$

式中 F 为电子角动量(量子数为 J)和核自旋角动量(量子数为 I)耦合后总角动量的量子数.

仿照推导二能级原子相干激发动力学方程的做法^[7],将原子在激光场中的波函数展开成如下形式:

$$|\psi\rangle = \sum_{F_g} c_{F_g}(t) |F_g, J_g\rangle e^{-\frac{iE_{F_g}t}{\hbar}} + \sum_{F_e} c_{F_e}(t) |F_e, J_e\rangle e^{-\frac{iE_{F_e}t}{\hbar}}. \quad (4)$$

这里, $c_{F_g}(t)$, $c_{F_e}(t)$ 为展开系数. 将(1)和(4)式代入 Schrödinger 方程,考虑到波函数的正交关系并利用旋转变近似^[7]可以得到关于 $c_{F_g}(t)$ 和 $c_{F_e}(t)$ 的微分方程组,

$$\frac{dc_{F_g}(t)}{dt} = i \sum_{F_e} F_g, J_g |r| F_e, J_e \cdot \frac{eE}{2\hbar} \times e^{-i(\Delta - \Delta_{F_e F_g})t} c_{F_e}(t), \quad (5)$$

$$\frac{dc_{F_e}(t)}{dt} = i \sum_{F_g} F_e, J_e |r| F_g, J_g \cdot \frac{eE}{2\hbar} \times e^{i(\Delta - \Delta_{F_e F_g})t} c_{F_g}(t). \quad (6)$$

(5)(6)式中的 Δ , $\Delta_{F_e F_g}$ 定义如下:

$$E_{F_g} = E_g + \Delta E_{F_g}, \quad (7a)$$

$$E_{F_e} = E_e + \Delta E_{F_e}; \quad (7b)$$

$$\Delta_{F_e F_g} = (\Delta E_{F_e} - \Delta E_{F_g})/\hbar, \quad (8a)$$

$$\Delta = \omega - \omega_0; \quad (8b)$$

$$\omega_0 = (E_e - E_g)/\hbar. \quad (9)$$

由于空间坐标算符的厄密性质,

$$F_g, J_g |r| F_e, J_e = (F_e, J_e |r| F_g, J_g)^*. \quad (10)$$

上式中的偶极跃迁矩阵元可以进一步化为^[6]

$$K_{F_e F_g} J_g |r| J_e = (K_{F_g F_e} J_e |r| J_g)^*. \quad (11)$$

这里, $J_g |r| J_e$ 和 $J_e |r| J_g$ 是不考虑核自旋时二能级原子偶极跃迁的矩阵元,所以还有关系 $J_g |r| J_e = (J_e |r| J_g)^*$ 成立. 考虑到原子波函数可以有一个任意的初相位,通过选择初相位可以让 $J_g |r| J_e$ 和 $J_e |r| J_g$ 均为实数,所以可以引入称为 Rabi 频率的参量^[7],

$$\Omega = J_e |r| J_g \cdot \frac{eE}{2\hbar} = J_g |r| J_e \cdot \frac{eE}{2\hbar}. \quad (12)$$

另外(11)式中的 $K_{F_g F_e}$ 和 $K_{F_e F_g}$ 是纯几何因子^[6],在(12)式关系成立的条件下,有

$$K_{F_g F_e} = K_{F_e F_g}. \quad (13)$$

所以(5)(6)式可以改写成

$$\frac{dc_{F_g}(t)}{dt} = i\Omega \sum_{F_e} K_{F_g F_e} e^{-i(\Delta - \Delta_{F_e F_g})t} c_{F_e}(t), \quad (14)$$

$$\frac{dc_{F_e}(t)}{dt} = i\Omega \sum_{F_g} K_{F_g F_e} e^{i(\Delta - \Delta_{F_e F_g})t} c_{F_g}(t). \quad (15)$$

3. 原子能级的选择和计算参数的确定

利用方程(14)和(15)可以对任意的能级有超精细分裂的二能级原子进行计算. 在此选定¹⁵⁷Gd 原

子的 9D_5 ($E_g = 999 \text{ cm}^{-1}$)和 9D_6 ($E_e = 18070 \text{ cm}^{-1}$)能级作为一个具体实例进行计算,总角动量子数的取值分别为 $F_g = 7/2, 9/2, 11/2, 13/2$; $F_e = 9/2, 11/2, 13/2, 15/2$. 图 1 是这两个能级的超精细结构情况. 由文献 [8] 给出的能级超精细结构常数可以算出这两个能级的 ΔE_g 和 ΔE_e , 如表 1 所示. 由表 1 中的数据可以计算出参数 $\Delta_{F_e F_g}$.

表 1 ${}^{157}\text{Gd}$ 原子 9D_5 和 9D_6 能级超精细子能级的能量位移值
(以圆频率为单位)

F	7/2	9/2	11/2	13/2	15/2
$\Delta E_g/10^9$	0.979	0.367	-0.210	-0.644	
$\Delta E_e/10^9$		8.64	4.32	-1.07	-7.07

原则上,几何因子 $K_{F_g F_e}$ 可以从角动量耦合理论计算出来^[6],但本文要从实验数据出发来确定它们. 图 2 是文献 [8] 中给出的 ${}^9D_5 \leftrightarrow {}^9D_6$ 跃迁的激光诱导荧光光谱的超精细结构图. 图 2 中谱线的强度正比于自发辐射系数,而自发辐射系数又正比于跃迁矩阵元模的平方,即能级 $E_e \rightarrow E_g$ 之间跃迁的荧光谱线强度 $I_{F_g F_e} \propto |F_g, J_g | \mathbf{r} | F_e, J_e |^2$. 考虑到 (11) 式可得

$$I_{F_g F_e} \propto K_{F_g F_e}^2, \quad (16)$$

$$K_{F_g F_e} \propto \sqrt{I_{F_g F_e}}. \quad (17)$$

因此通过测量图 2 中谱线的高度,可以确定各 $K_{F_g F_e}$ 的相对值 $K'_{F_g F_e}$. $K_{F_g F_e}$ 和 $K'_{F_g F_e}$ 之间有比例关系,

$$K_{F_g F_e} = \kappa K'_{F_g F_e}. \quad (18)$$

表 2 中给出的是各 $K_{F_g F_e}$ 相对于 $K_{13/2, 15/2}$ 的值. 需要注意的是,在图 2 的光谱图中,并不是所有满足跃迁选择定则 ($\Delta F = 0, \pm 1$) 的谱线都出现了,谱线没有出现意味着 $K'_{F_g F_e}$ 很小或为零,而表 2 中只列出了那些不为零的 $K'_{F_g F_e}$.

表 2 $K_{F_g F_e}$ 相对于 $K_{13/2, 15/2}$ 的值

$K'_{13/2, 15/2_g}$	$K'_{11/2, 13/2_g}$	$K'_{9/2, 11/2_g}$	$K'_{7/2, 9/2_g}$	$K'_{13/2, 13/2_g}$	$K'_{11/2, 11/2_g}$	$K'_{9/2, 9/2_g}$
1.0	0.93	0.84	0.75	0.48	0.48	0.4

在确定了上述参数后,为了利用方程 (14) 和 (15) 进行计算,还需给定 Ω , Δ 和 κ 的值. 从定义式可以看出,这些参量与激发激光功率、频率以及原子参数有关,它们可以通过一些实验测量的光谱参数

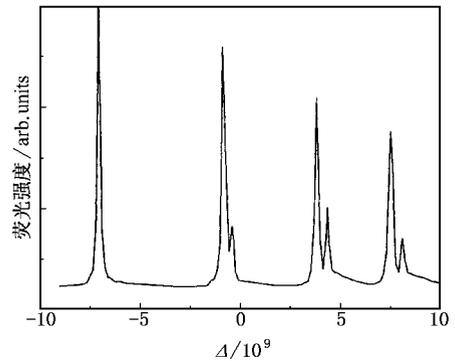


图 2 与图 1 能级系统对应的激光诱导荧光光谱的谱线. 该谱线图是将文献 [5] 中给出的谱线去掉其他同位素谱线后所得

来间接地确定^[5]. 不过,在以下的计算中直接使用 Ω , Δ 作为计算参量,同时将参数 κ 并入 Ω , 亦即本文中下面所涉及的 Ω 实际上是 $\kappa\Omega$. 这样做并没有改变 Ω 正比于激光光波电场强度或激光光强平方根的本质(见 (12) 式).

利用方程 (14) 和 (15) 进行计算时还需给定问题的初始条件. 根据本文引言中的讨论,下面计算采用的初始条件为

$$c_F(0) = 0.5,$$

$$c_{F_c}(0) = 0.0.$$

4. 计算结果

在计算参量和初始条件确定后,可以从方程 (14) (15) 直接得到 $c_F(t)$ 和 $c_{F_c}(t)$ 关系,对它们取模的平方可以得到原子处于上下能级各个子能级上的概率随时间的变化,即 $P_F(t) = |c_F(t)|^2$, $P_{F_c}(t) = |c_{F_c}(t)|^2$. 图 3、图 4 中给出了 $P_F(t)$ 和 $P_{F_c}(t)$ 曲线.

由表 1 中的数据可知,图 2 中 $\Delta = -6.43 \times 10^9$ 意味着激光和 $F_g = 13/2$ 与 $F_e = 15/2$ 的两个能级之间的跃迁是共振的. 因此从图 3、图 4 中可以看到,在激光作用下,初始时刻处于 $F_g = 13/2$ 能级上的原子会在这两个能级之间来回跃迁,并且原子处于这两个能级上的概率随时间变化的方式和一般二能级原子几乎是一样的^[7]. 这说明在图 3、图 4 所对应的计算参数下,考虑能级超精细分裂的多能级相干激发问题“退化”为二能级问题,这从一个侧面说明了本文第 2 节中对能级有超精细分裂时原子相干激发

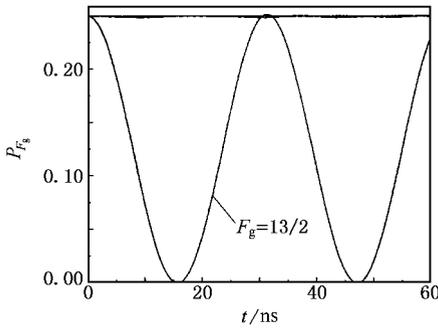


图3 $P_{F_g}(t)-t$ 曲线 计算参数 : $\Omega = 1.0 \times 10^8$, $\Delta = -6.43 \times 10^9$. 图中 $F_g = 7/2, 9/2, 11/2$ 的三条曲线重合成一条平行于横坐标轴的直线

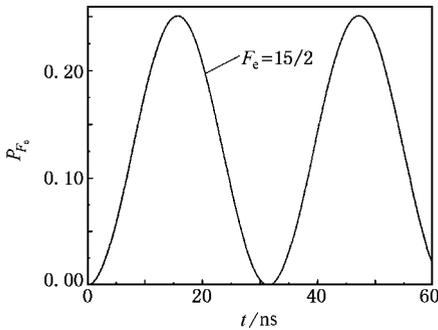


图4 $P_{F_e}(t)-t$ 曲线 计算参数 : $\Omega = 1.0 \times 10^8$, $\Delta = -6.43 \times 10^9$. $F_e = 9/2, 11/2, 13/2$ 的三条曲线与横坐标轴重合

动力学方程的处理是合理的. 从图3还可以看出, 那些初始时刻处于 $F_g = 7/2, 9/2, 11/2$ 能级上的原子没有受到激光的激发作用. 所以如果要在与图3计算参数对应的实验条件下, 将分别处于 $F_g = 7/2, 9/2, 11/2, 13/2$ 能级上的原子激发到上能级, 则至少需要四束单频激光, 它们分别与 $F_g = 7/2, 9/2, 11/2, 13/2$ 能级的一个共振跃迁相对应. 或者也可以使用一束宽频激光, 该激光具有使 $F_g = 7/2, 9/2, 11/2, 13/2$ 能级中每一个都发生共振跃迁的频率成分. 这就是在文献 [3, 4] 中所强调的激发能级有超精细分裂原子要使用宽频激光的原因.

图5、图6中给出了另外一组计算结果. 与图3、图4相比, 图5、图6中计算参数的唯一变化是 Ω 由原来的 1.0×10^8 增加到了 3.0×10^9 .

比较图5、图6和图3、图4的结果可知, 随着参数 Ω 的增大, 原子除了在与激光共振的两个能级 ($F_g = 13/2, F_e = 15/2$) 之间跃迁外, 初始时刻处于其他能级 ($F_g = 7/2, 9/2, 11/2$) 上的原子也开始在激光

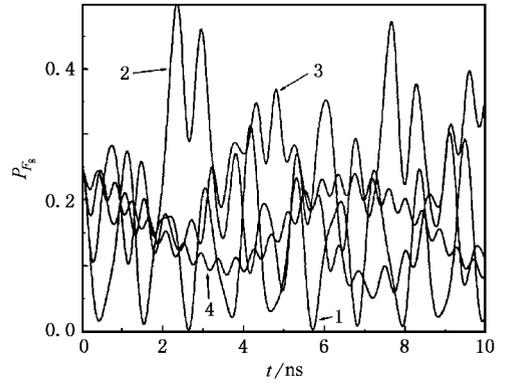


图5 $P_{F_g}(t)-t$ 曲线 计算参数 : $\Omega = 3.0 \times 10^9$, $\Delta = -6.43 \times 10^9$. 曲线1、曲线2、曲线3、曲线4分别对应 $F_g = 7/2, 9/2, 11/2, 13/2$

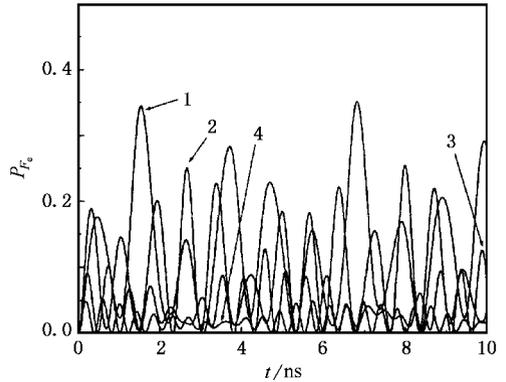


图6 $P_{F_e}(t)-t$ 曲线 计算参数 : $\Omega = 3.0 \times 10^9$, $\Delta = -6.43 \times 10^9$. 曲线1、曲线2、曲线3、曲线4分别对应 $F_e = 9/2, 11/2, 13/2, 15/2$

的作用下向另外能级跃迁. 这是因为原子能级的超精细分裂比较小, 参数 Ω 增大所导致的原子共振吸收谱宽度的增加, 即所谓的功率加宽^[7], 很容易达到原子跃迁谱线超精细分裂的程度. 因此, 从图5、图6可以得出一个重要结论: 只要激光的频率在相应谱线的超精细分裂范围内, 当激光功率(或 Ω) 达到一定程度时, 有超精细分裂的上下能级各子能级之间所有可能的跃迁都可以发生. 由于功率加宽可以使跃迁中心频率不等于激光频率的跃迁发生, 所以某一个子能级上的原子可以同时向多个子能级跃迁. 比如处于 $F_g = 13/2$ 能级上的原子既可以向 $F_e = 15/2$ 能级跃迁, 也可以向 $F_e = 13/2$ 的能级跃迁, 同时 $F_e = 13/2$ 的能级又和 $F_g = 11/2$ 的能级有关. 依此类推, 可以发现功率加宽使超精细分裂后的所

有子能级互相关联了.正是由于能级间这种互相关联,使得图 5、图 6 中原子处于能级上的概率随时间的变化不再具有图 3、图 4 表现出来的明显周期性.

上述计算中选择 $\Delta = -6.43 \times 10^9$ 是非常随意的,那么选择另外一个 Δ 值,也就是选择另外一个激光频率后,单频激光是否仍然可以将分布于各个超精细分裂子能级上的原子激发到上能级去呢?换言之,对于不同的 Δ 值,单频激光对有超精细分裂的二能级原子的激发效率是一样的吗?我们知道,对于普通的二能级原子,无论是经典的速率方程描述还是半经典的旋转波近似描述,在不考虑原子自发辐射的前提下,原子处于上下能级的平均概率都等于 $1/2$.为了与普通二能级原子的激发效率比较,对能级有超精细分裂的原子引入如下的平均概率:

$$\bar{P}_e(\Delta, \Omega) = \frac{1}{T} \int_0^T \left[\sum_{F_e} P_{F_e}(\Delta, \Omega, t) \right] dt, \quad (19)$$

式中 T 为计算平均概率的时间,应该满足 $T \gg 1/\Omega$.图 7、图 8 给出了两条 $\bar{P}_{F_e} - \Delta$ 曲线.

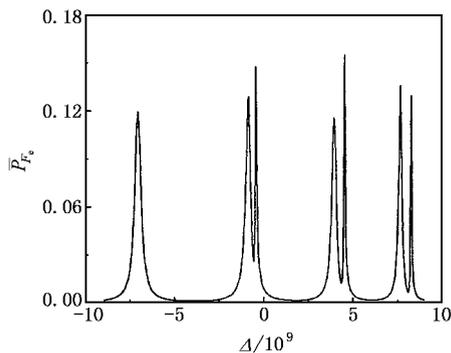


图 7 $\bar{P}_{F_e} - \Delta$ 曲线 曲线对应的 Rabi 频率为 $\Omega = 1.0 \times 10^8$

图 7 中的曲线出现了多个峰值,且这些峰的位置和图 2 中激光诱导光谱图中谱线的位置完全一致.这说明当 Rabi 频率比较小($\Omega = 1.0 \times 10^8$)时,只有在激光的频率等于图 1 中所标出的某一个能级跃迁频率的条件下,原子才会有跃迁到上能级的可

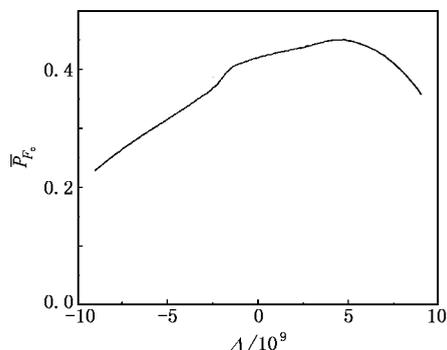


图 8 $\bar{P}_{F_e} - \Delta$ 曲线 曲线对应的 Rabi 频率为 $\Omega = 3.0 \times 10^9$

能.然而图 8 中的曲线表明,当 Rabi 频率较大时,只要激光的频率处于原子荧光谱线的超精细分裂区域内,原子就会被激发到上能级上去.不过激光频率不同,对原子的激发效率是不同的.比如,图 8 中曲线就说明计算图 3、图 4 和图 5、图 6 时所采用的 $\Delta = -6.43 \times 10^9$ 所对应的并不是一个最佳的激光频率.从图 8 曲线看,对于 ^{157}Gd 原子的 $^9D_5 \leftrightarrow ^9D_6$ 跃迁,激发效率最高的激光频率对应着 $\Delta = 4.8 \times 10^9$.值得注意的是,该 Δ 值并不对应着图 1 中所标明的任何一个跃迁的中心频率.从图 8 还可以看出,当 $\Delta = 4.8 \times 10^9$ 时,原子处于上能级的平均概率达到了 0.45.该值和普通二能级原子饱和激发条件下,原子处于上能级的概率(0.5)已经很接近了.

5. 结 论

综上所述,在 Rabi 频率较大的情况下,也就是激光的强度达到一定水平以后,单频(或线宽很窄)的激光不仅可以将分布于基态各超精细分裂子能级上的原子激发到上能级,而且在选择合适激光频率的条件下,可以有相当高的激发效率.所以文献 [3, 4] 中关于需要用具有一定谱线宽度的激光来激发能级有超精细分裂原子的条件并不是必须的.

[1] Ma H L et al 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 566 (in Chinese) [马洪良等 2003 物理学报 **52** 566]

[2] Chu S L 1979 *Atomic Physics* (Beijing: People's Education Press) p 64 (in Chinese) [褚圣麟 1979 原子物理学(北京:人民教育出版社)第 64 页]

[3] Ramakoteswara R P 2003 *Current Science* **85** 615

[4] Xiao X A 1999 *Isotope Separation* (Beijing: Atomic Energy Press) p589 (in Chinese) [肖啸 1999 同位素分离(北京:原子能出版社)第 589 页]

[5] Zhao L M, Wang L J 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 1227 (in Chinese) [赵黎明、王立军 2002 物理学报 **51** 1227]

[6] Greenland P T 1990 *Contem. Phys.* **31** 405

- [7] Sargent M , Scully M , Lamb W Jr 1974 *Laser Physics* [8] Niki H , Miyamoto T , Izawa Y *et al* 1989 *Opt . Commun .* **70** 16
(Massachusetts :Addison-Wesly Publishing Company) p17

The coherent excitation property of a two-level atom with a hyperfine structure in narrow band laser field

Wang Li-Jun Yu Hui-Ying

(*Department of Engineering Physics , Tsinghua University , Beijing 100084 , China*)

(Received 4 March 2004 ; revised manuscript received 31 March 2004)

Abstract

In this paper the semi-classic theory of coherent excitation of a two-level atom was modified and applied to a two-level atom with a hyperfine structure. The important result of calculation is as follows : when the exciting laser power is large enough , due to the power broadening effect , a narrow-band laser can excite a two-level atom with a hyperfine structure effectively . So it is not necessary to use a broad-band laser to guarantee excitation efficiency for an atom with hyperfine split levels .

Keywords : hyperfine structure , two-level atom , Rabi frequency , gadolinium atom

PACC : 3130G , 3270F , 3280