AC Stark 이동이 선택적 공명 이온화에 미치는 영향

남 백일, 강 석찬, 김 영순
(명지대학교 물리학과)

선택적 2광자공명 3광자 이온화과정을 Li 와 Sr 의 동위원소들에 적용시켰을 때, 공명준위의 AC Stark 이동으로 인하여 분리효율과 이온화율은 레이저 파장과 세기에 예민한 함수가 됨을 보이고 동위원소분리의 최적 조건을 검토하였다.

1. 서 론

의학 및 농생물학에서 추적자로 이용되는 방사성 동위원소들이나 연쇄반응에 사용되는 핵연료를 정제하는데 있어서, 레이저를 사용하여 선택적 공명 이온화를 일으키면 경제적이고 효율적으로 동위원소를 분리할 수 있어 최근 많은 관심을 모으고 있다.

두 동위원소는, 각 에너지준위의 대응되는 쌍에 있어서 자연선폭, 다른 준위로의 천이행렬요소, 같은 레이저 강도에서의 ac Stark 이동 등 모든 원자적 파라미터의 차이를 무시할 수 있으며, 단지 준위에너지의 값만이 동위원소 이동만큼 달라져 광학적으로 공명 진동수에 약간의 차이를 보인다. 이 근소한 차이를 이용하여, 선택적으로 공명을 일으키고, 따라서 한 원소에 두 가지 동위원소가 섞여져 있는 시료로 부터 한 가지 동위원소만을 선택적으로 이온화하여 분리해 내고자 하는 것이다.이를 위해, 우리는 최상의 분리효율로 최대량의 순수한 동위원소 이온을 얻는 것을 목표로 삼는다. 동위원소 이동을 Δ_{IS} 라 하고, 선택적 공명을 일으키고자 하는 준위에 대해 레이저가 정확한 공명으로 부터 Δ 만큼의 detuning 을 가지는 경우, 이온화를 원하지 않는 다른 동위원소의 준위에 대한 detuning 은 $\Delta' = \Delta \pm \Delta_{IS}$ 가 된다. 동일한 상태에 대한 두 동위원소 준위 중 높은 준위에서 선택공명을 일으킬 경우 + 부호, 낮은 쪽을 택할 경우 - 부호가 적용된다.

각진동수 ω 인 레이저를 써서 여기에너지 $\hbar\omega_{21}$ 인 준위 $|2\rangle$ 에 선택적 2광자 공명을 일으키고자 하는 경우, 레이저와 원자들의 상호 작용 시간을 t 라 하면 $\Delta = 2\omega - \omega_{21} - 3\delta\omega_{21} \equiv \Delta_0 - 3\delta\omega_{21}$. 여기서 $\Delta_0 = \lim_{I \to 0} \Delta = 2\omega - \omega_{21}$ 이고 $\delta\omega_{21}$ 은 기저상태 $|1\rangle$ 에 대한 여기된 준위 $|2\rangle$ 의 상대적 ac Stark 이동으로 레이저의 세기 I 에 비례하고, 레이저세기의 요동(fluctuation)을 감안할 때 3배가 곱해진다. [1,2] 따라서, 주어진 준위에서 $\Delta = \Delta(\omega, I)$ 가 된다. 이온화비율을 각각 $P(\Delta, t)$, $P(\Delta', t)$ 라 하자. P 는 일반적으로 I 가 세어짐에 따라 증가하며, 주어진 I 에서는 $\Delta=0$ 일 때 극대가 된다. 따라서, P 를 최대로 하기 위해서는 I 를 증가시켜야 하는데, $\delta\omega_{21}$ 을 무시할 수 없을 정도로 I 가 크게되면, I 에 비례하는 양인 $\delta\omega_{21}/2$ 만큼 ω 를 $\omega_0 = \omega_{21}/2$ 으로부터 변화시켜야 $\Delta=0$, 즉, 정확한 공명을 유지할 수 있게 된다. ω_0 는 낮은 I 에서의 선택적 2광자공명 각진동수로서 $\omega = \omega_0$ 에서 $\Delta_0 = 0$, $\Delta_0' = \Delta_{IS}$ 가 된다. 그러나, I 의 증가는 선택하지 않은 쪽의 동위원소 이온화 비율도 높여 주므로, 분리효율의 악화를 가져오리라 예상된다. 또한, 분리효율을 최적으로 하는 ω 가 한 동위원소의 이온화비율 P를 최대로 하는

$$\omega = \frac{\omega_{21} + 3\delta\omega_{21}}{2}$$

즉, $\Delta = 0$ 인 경우와 일치하지 않을 가능성도 있다.

일반적으로 $\Delta_0' = \Delta_0 \pm \Delta_{IS}$ 라 하고, 분리효율을

$$S(\Delta_0; I, t) \equiv \frac{P(\Delta_0'; I, t)}{P(\Delta_0; I, t)}$$

라고 정의하면 S 가 0에 가까울 수록 좋은 분리효율을 얻는 것이 된다.

Δ_{IS} 가 비교적 큰 Li^6 와 Li^7 의 경우(12GHz) 최대의 P 와 최소의 S 를 동시에 얻는 것이 어렵지 않으나 Sr 의 경우(원자량 88과 90) $5p^2\ {}^1S$ 에서 Δ_{IS} 는 불과 700 MHz 정도이며, 도플러효과 억제-2광자 공명성 3광자 이온화로 동위원소 분리에 성공한 실험이 보고되어 있다.[3] 이 경우 S 를 아주 좋게 만드는 것은 쉽지 않을 것이며, S 와 P 는 ω 의 예민한 함수가 되리라 기대된다. Li 와 Sr 의 경우 power broadening 과 레이저선폭(bandwidth) 이 S 와 P 에 미치는 영향은 [2] 에 t 의 함수로 보고되었으나, ac stark 이동의 영향은 언급된 바 없다. 본 연구에서는 $S(\Delta_0; I, t)$와 $P(\Delta_0; I, t)$를 몇개의 서로 다른 I 와 t 에 대해서 Δ_0, 즉, ω 의 함수로 계산하여, 동위원소 분리의 최적조건을 찾는 경우에 관련된 이론적 고찰을 수행하였다.

2. 이 론

— 2광자 공명성 3광자 이온화과정의 밀도 행렬 수식화 체계 [2]

각진동수 ω인 단일 레이저에 의해 2광자 공명성 3광자 이온화를 일으킬 경우, 주어진 원자를 기저상태 $|1\rangle$, 2광자 공명 여기상태 $|2\rangle$, 중간상태 $\{|k\rangle\}$, 이온화 콘지방 등으로 단순화시키면, 가장 일반적인 파동함수의 형태는

$$|\Psi(t)\rangle = a(t)\, e^{-i\omega_1 t}|1\rangle + b(t)\, e^{-i\omega_2 t}|2\rangle$$

이고 초기 조건이 a(0)=1, b(0)=0 일때, 주어진 ω 및 I 에 대해서 이온화 비율 $P(t)=1-(|a(t)|^2 + |b(t)|^2)$ 으로 주어진다. 여기서, 원자가 다른 준위에 존재할 확률은 무시하였다.

확률밀도행렬은 $\rho=|\Psi\rangle\langle\Psi|$ 로 정의되어 $i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t} = [H_0 + H'(t), \rho]$ 를 만족한다. 그 행렬 요소들은 다음과 같고, 아울러 시간에 대해 느리게 변하는 σ 행렬을 정의하면,

$$\rho_{11} = |a|^2 = \sigma_{11}$$

$$\rho_{22} = |b|^2 = \sigma_{22}$$

$$\rho_{12} = \rho_{21}^* = a\, b^* e^{i\omega_{21}t} \equiv \sigma_{12}(t)\, e^{i2\omega t} \quad (1)$$

즉, $\sigma_{12}(t) = a\, b^* e^{-i\Delta o t}$ 이다. 편광 방향이 $\hat{e}$ 인 레이저의 전장을

$\vec{E}(t) = \hat{e}\,[\,\varepsilon(t)\, e^{i\omega t} + \varepsilon^*(t)\, e^{-i\omega t}\,]$ 라고 쓰면, 레이저와 원자간의 상호작용은 쌍극자 근사에서 $H'(t) = -\vec{\mu}\cdot\vec{E}(t)$ 가 되어,

$$\frac{d}{dt}\langle\sigma_{11}(t)\rangle = \Gamma_2\sigma_{22}(t) + 2\mathrm{Im}[\mu_{12}^*\langle\sigma_{12}(t)[\varepsilon^*(t)]^2\rangle]$$

$$\frac{d}{dt}\langle\sigma_{22}(t)\rangle = -(\Gamma_2+\gamma_2)\langle\sigma_{22}(t)\rangle - 2\mathrm{Im}[\mu_{12}^*\langle\sigma_{12}(t)[\varepsilon^*(t)]^2\rangle]$$

$$[\frac{d}{dt} + i\Delta + \frac{1}{2}(\Gamma_2+3\gamma_2+2\gamma_L)]\langle\sigma_{12}(t)[\varepsilon^*(t)]^2\rangle = i\mu_{12}\, 2|\varepsilon|^4[\langle\sigma_{22}(t)\rangle - \langle\sigma_{11}(t)\rangle] \quad (2)$$

Γ_2 는 $|2\rangle$ 의 자발적 방출에 의한 밀도 감소율로 이는 중간상태들을 거쳐 결국 $|1\rangle$ 의 밀도를 증가시킨다. γ_2 는 $|2\rangle$ 의 1광자 이온화 비율로 I 에 비례하고, μ_{12} 는 $|1\rangle$ 과 $|2\rangle$ 사이의 2광자 천이행렬요소이다. Transverse relaxation time 은 낮은 증기압을 가정하여 고려에 넣지 않았다. 레이저의 선폭과 요동을 무시할 수 있다면 $\Gamma_2+3\gamma_2+2\gamma_L$ 대신 $\Gamma_2+\gamma_2$ 을, $2|\varepsilon|^4$ 대신에 $|\varepsilon|^4$, $\Delta=2\omega-\omega_{21}-\delta\omega_{21}$ 을 각각 사용한다. t 의 함수로 나타난 모든 양들의 요동에 대한 시간적 평균을 $\langle\ \rangle$로 표시했다.결국, 시간 t 동안 레이저가 작용했을 때 이온화된 원자들의 비율, 즉, 이온화비율은

$$P(t) = 1 - \langle\sigma_{11}(t)\rangle - \langle\sigma_{22}(t)\rangle \quad (3)$$

여기서는 $\langle\sigma_{11}(t)\rangle + \langle\sigma_{22}(t)\rangle = 1$ 이 성립하는 닫혀진 2준위계에서와는 달리,

$\frac{d}{dt}(\langle\sigma_{11}\rangle+\langle\sigma_{22}\rangle) = -\gamma_2\langle\sigma_{22}\rangle$가 성립하게된다.

2.2 준정상해 (準定常解)와 그 적용 범위

$\langle\sigma_{22}(t)\rangle - \langle\sigma_{11}(t)\rangle \equiv n(t)$, $\Gamma_2+3\gamma_2+2\gamma_L \equiv \gamma$ 라고 간단히 쓰자. (2) 식들 중 마지막 식은

$$[\frac{d}{dt} + i\Delta + \frac{1}{2}\gamma]\langle\sigma_{12}(t)[\varepsilon^*(t)]^2\rangle = i\mu_{12}\, 2|\varepsilon|^4 n(t) \quad (4)$$

n(t) 의 시간적 변화를 거의 무시할 수 있는 경우, (4) 식을 적분하고 $\gamma t\to\infty$ 인 극한을 취하면

$$\sigma_{12}(t)\langle\varepsilon^*(t)\rangle^2 = 2\mu_{12}|\varepsilon|^4 \frac{\Delta + i\frac{1}{2}\gamma}{\Delta^2 + \frac{1}{4}\gamma^2}\, n(t) \quad (5)$$

가 되고, 이를 (2) 의 처음 두 식에 대입,

$W \equiv 4|\mu_{12}|^2|\varepsilon|^4 \frac{\frac{1}{2}\gamma}{\Delta^2 + \frac{1}{4}\gamma^2}$ 라 정의하면

Laplace 변환과 초기조건 $\langle\sigma_{11}(0)\rangle=1$, $\langle\sigma_{22}(0)\rangle = \langle\sigma_{12}(0)\rangle=0$ 로 부터

$$\langle\sigma_{11}(t)\rangle = A\, e^{S_1 t} + (1 - A)\, e^{S_2 t}$$
$$\langle\sigma_{22}(t)\rangle = \frac{W}{S_1 - S_2}(\, e^{S_1 t} - e^{S_2 t}\,) \quad (6)$$

인 형태의 준정상해를 얻으며, 이때,

$$S_{1,2} = (2W + \Gamma_2 + \gamma_2) \times \left[-1 \pm [1 - \frac{4\gamma_2 W}{(2W + \Gamma_2 + \gamma_2)^2}]^{\frac{1}{2}}\right].$$

$$A \equiv -\frac{S_1 + W + \Gamma_2 + \gamma_2}{S_1 - S_2} \quad (7)$$

가 된다.

위에서 얻은 준정상해 (6) 의 적용 범위는 $\frac{\partial}{\partial t}n(t)$ 를 무시할 수 있는 경우로 다음 조건 중 하나와 $\gamma t \gg 1$ 만족하면 된다.[2]

(i) $W \ll \gamma_2$

(ii) $W \gg \Gamma_2 + \gamma_2 + \gamma_L$ (8)

3. ac Stark 이동에 의한 영향

Li 4s 의 경우, ac Stark 이동을 계산하여 $\delta\omega_{21}$ = 102.7 I (Hz) 을 얻었다. <그림 1,2>에서 보는바와 같이, Δ_{1S} 가 비교적 큰 Li의 경우에는, ac Stark 이동이 공명 진동수를 이동시키는 역할만하여, S 의 최저점과 P 의 최대점을 같은 방향으로 이동시키므로, 레이저의 공명진동수를 조절함으로써 좋은 분리효율과 높은 이온화율을 동시에 얻기가 용이함을 알 수 있다. 그러나 Sr의 경우에는 우리가 계산한 ac Stark 이동 $\delta\omega_{21}$ = - 6.212 I (Hz) 에 의해서 P의 최대점은 I 의 증가에 따라 낮은 주파수 쪽으로 이동하는데, S 의 최저점은 <그림 4> 에서는 P 와 반대 방향으로, <그림 3> 에서는 P 와 같은 방향으로 이동함을 볼 수 있다.

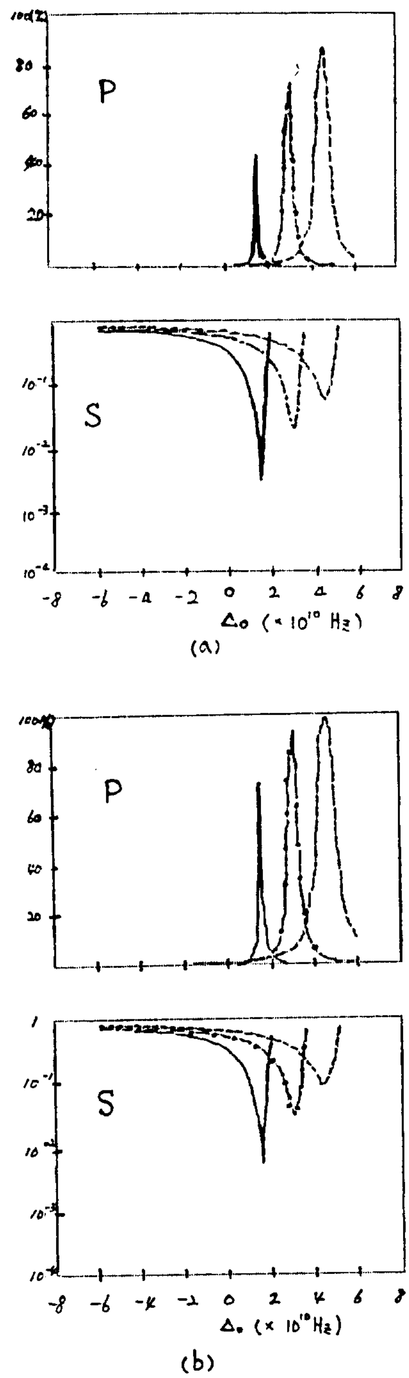

그림1. Li^7와 Li^6의 분리효율(S)및 이온화율(P) (두 동위원소준위중 보다 낮은 준위에 공명을 일으키는 경우). ① —— ($I=5\times10^7$ W/cm²), $\gamma_L = 50$ MHz, ② —·— ($I=1\times10^8$ W/cm²), ③ - - - ($I=1.5\times10^8$ W/cm²)
(a) t=10 ns인 경우, (b) t=20 ns인 경우.

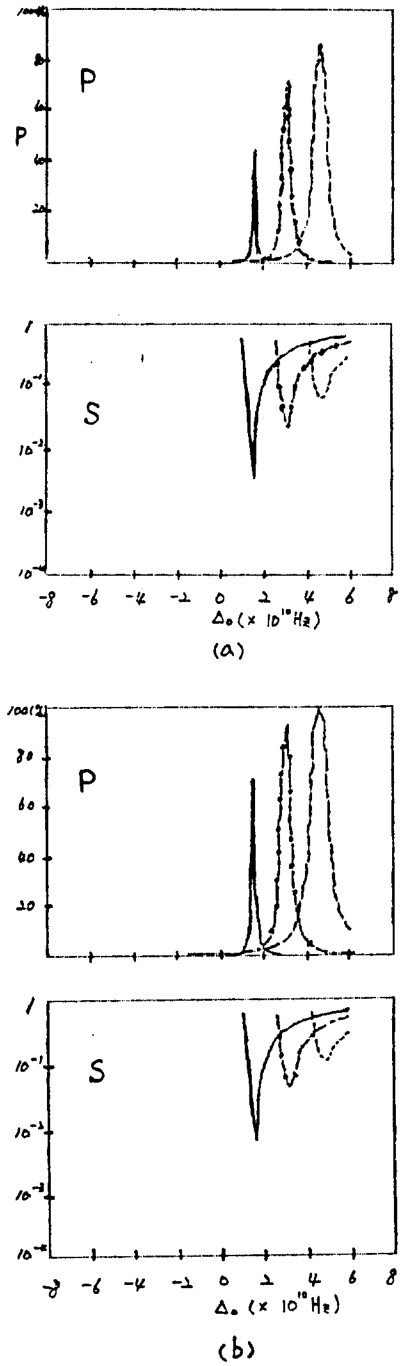

그림2. Li^7와 Li^6의 분리효율(S)및 이온화율(P) (두 동위원소준위중 보다 높은 준위에 공명을 일으키는 경우). ① —— ($I=5\times10^7$ W/cm²), $\gamma_L = 50$ MHz, ② —·— ($I=1\times10^8$ W/cm²), ③ - - - ($I=1.5\times10^8$ W/cm²)
(a) t=10 ns인 경우, (b) t=20 ns인 경우.

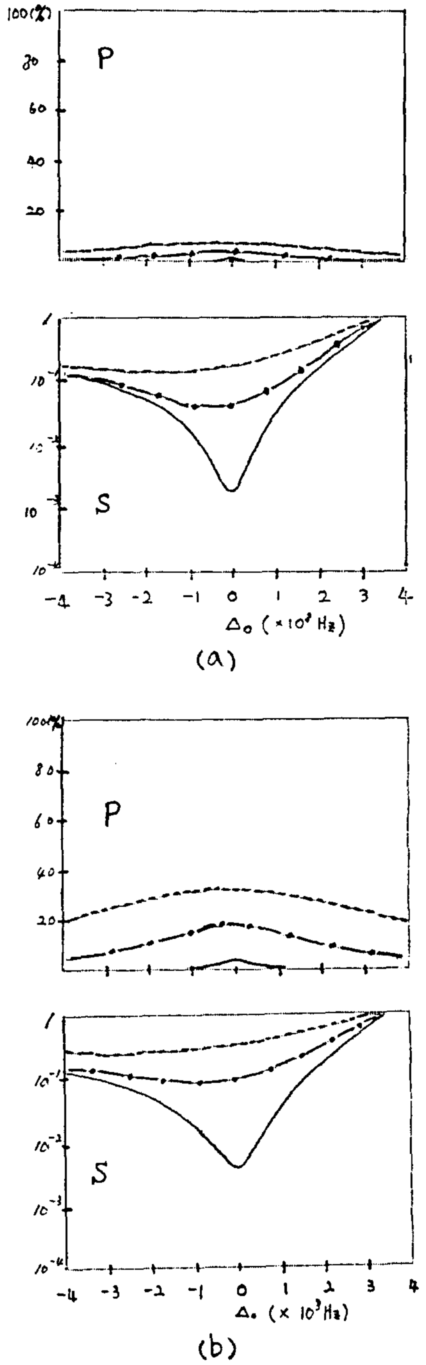

그림3. Sr^{88}와 Sr^{90}의 분리효율(S)및 이온화율(P) (두 동위원소준위중 보다 낮은 준위에 공명을 일으키는 경우). ① —— ($I=1\times10^{5}$ W/cm²), $\gamma_L=7$ MHz, ② —•— ($I=5\times10^{5}$ W/cm²), ③ --- ($I=1\times10^{6}$ W/cm²). (a) t=100 ns인 경우, (b) t=500 ns인 경우.

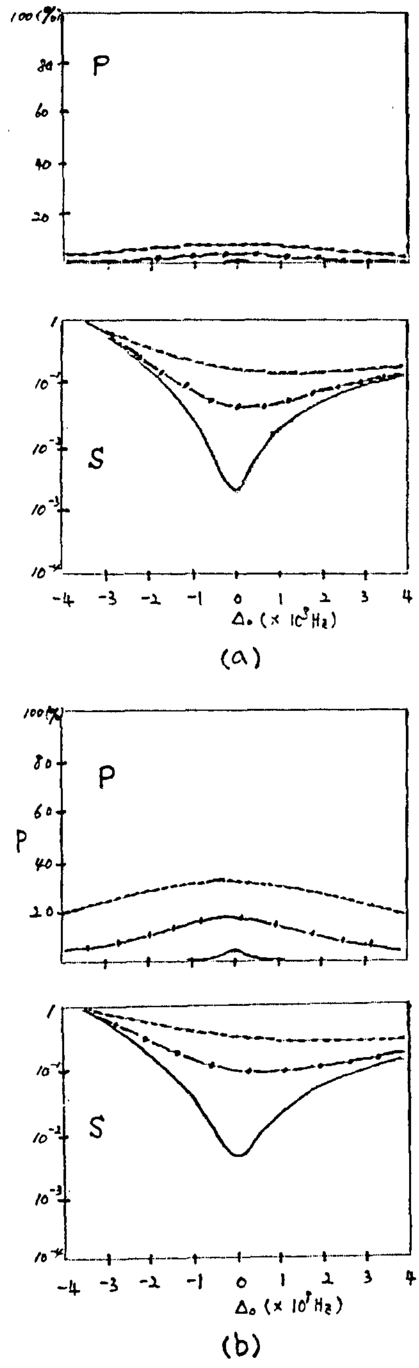

그림4. Sr^{88}와 Sr^{90}의 분리효율(S)및 이온화율(P) (두 동위원소준위중 보다 높은 준위에 공명을 일으키는 경우). ① —— ($I=1\times10^{5}$ W/cm²), $\gamma_L=7$ MHz, ② —•— ($I=5\times10^{5}$ W/cm²), ③ --- ($I=1\times10^{6}$ W/cm²). (a) t=100 ns인 경우, (b) t=500 ns인 경우.

결론적으로, Sr 과 같이 동위원소이동이 작은 경우에는 S 의 최저와 P 의 최대는 일반적으로 다른 ω 에서 일어나지만, $\delta\omega_{21} < 0$ 일 때는 <그림 3>과 같은 경우, 즉, 낮은 동위원소 준위에 선택적 공명을 일으키는 경우가 높은 P 와 좋은 S 를 동시에 추구하는데 더 적합함을 알 수 있다.

본 연구는 한국과학재단의 지원하에 수행하였다.

참 고 문 헌

[1] P. Agostini, A. T. Georges, S. E. Wheatly, P. Lambropoulos, and M. D. Levenson, J.Phys. B 11, 1733 (1978).

[2] B. Dai and P. Lambropoulos, Phys.Rev.A 34, 3955 (1986).

[3] T. B. Lucatorto, C. W. Clark, and J. L. Moore, Opt. Commun, 48, 406 (1984).