

文章编号: 0258-7025(2003)Supplement-0125-03

用激光饱和吸收法测量铀原子激发态吸收截面

史桂珍, 杜海, 田宇, 葛辽海, 黄茂成, 王文韵

(中国科学院长春应用化学研究所, 吉林 长春 130022)

摘要 报道了用一束二倍频 Nd:YAG 激光同步抽运的脉冲染料激光系统, e 型电子枪, 铀原子束装置以及利用在单原子检测技术基础上发展起来的共振电离光谱和飞行时间质谱同时测量的技术, 测量铀原子激发态吸收截面的饱和吸收方法。此法具有相当高灵敏度、高分辨率和强选择性的特点。

关键词 激光技术; 饱和; 铀原子; 吸收截面

中图分类号 O433.5⁺1; O433.5⁺4

文献标识码 A

Measurement of Absorption Cross Sections of Excited States for Atomic Uranium using Laser-Saturation Absorptions-Spectrometry

SHI Gui-zhen, DU Hai, TIAN Yu, GE Liao-hai, HUANG Mao-cheng, WANG Wen-yun
(Changchun Institute of Applied Chemistry, The Chinese Academy of Sciences, Changchun, Jiling, 130022, China)

Abstract This paper described saturation method for determining absorption cross sections by using a setup composed of the pulsed dye lasers system synchronously pumped by a frequency doubled Nd:YAG-Laser, e-type electron gun, apparatus for atomic beam of U, and by using the technique measuring resonant photoionization spectrum and time-of-flight mass spectrum at the same time. This method has very strong selectivity, extremely high sensitivity and resolving power, which is developed on the base of single-atom detection technology.

Key words laser technique; saturation; atomic uranium; absorption cross section

1 引言

铀元素在核电等诸多领域中发挥着独特的作用,因此,铀原子激发态吸收截面等光谱参数的深入研究,对浓缩铀工作和促进铀元素在各方面的和平利用,很有意义。

原子吸收截面常常也被称之为受激跃迁有效截面,它反映了光子在与原子相互作用时,随着光子的增加,原子的上下两个能级之间受激跃迁导致的粒子布居数的分布状况和两个能级之间受激跃迁几率的大小,从而,有助于揭示物质对光的吸收与发射特性的内在规律。

本文所用的系统是在单原子探测技术基础上发展起来的光谱与飞行时间质谱同时测量的二维谱学技术系统。在实验工作中,经过不断地改进,使系统适用范围更广。当共振光电离激光的能量通量大于饱和电离所需要的能量通量时,对于被激光选择激发的同位素的电离效率接近 100%,所以用此技术可

以测量仅占成分为 0.71% 的 ²³⁵U 同位素。用此装置获得了铀原子大量系统、深入的高时间分辨和高光谱分辨激光光谱-飞行时间质谱数据。这些适用的基本性单元技术是扩展本系统,使之在分子和新材料及医、药学领域研究中,实现高灵敏、超灵敏检测的有利条件。我们常用的激光技术、时间门延迟与复合技术可直接应用于皮秒脉冲激光单分子荧光检测;同时可扩展到飞秒激光实验技术及其他光谱实验方面;所用的实验系统又是分子体系的光谱与飞行时间质谱同时测量的二维和三维谱技术的基础。

2 实验装置

实验装置如图 1,用一台二倍频 Nd:YAG 脉冲激光器(532 nm)同步抽运三台染料激光器系统。染料激光器由电控自动寻找与显示激光波长,波长读数准确度标定到 0.001 nm (绝对值);重复频率为 10 Hz,染料激光脉冲宽度为 6ns。铀原子束装置由

不锈钢制成;金属铀块置于石墨坩埚中。因为金属铀耐高温,所以用e型电子枪产生的电子束直接轰击加热铀块,温度约为2300 K时产生铀蒸气。铀蒸气腐蚀性很强,同时铀有放射性,必需采取严格的屏蔽措施。铀蒸气经准直孔形成铀原子束并达到作用区。作用区位于坩埚上部特定的高度处。在作用区,激光束与铀原子束垂直相交。真空室内的静态真空度可达到 6×10^{-5} Pa,工作条件下的动态真空度为 3×10^{-4} Pa。被光电离的铀离子由偏转电场偏转,进入含聚焦

系统的高灵敏、高分辨飞行时间质谱仪的漂移筒,并被电加速定向运动,到达微通道板组合接收器,同时信号被放大。然后这个电信号输入Boxcar积分器,再送入信号接收与输出装置。在高灵敏、高分辨飞行时间质谱仪中,由于不同质量的离子到达接收器的时间不同,所以铀不同的同位素离子的信号在时间上有明显的差别。通过时间门延迟与复合相关最佳参量等,调节Boxcar取样门宽和门位置,只记录 ^{238}U 电离信号。用Ne光电流光谱为激光波长定标。

表1 铀原子激发态吸收截面测量值

Table 1 Measured absorption cross sections of excited states of ^{238}U

Wavelength /nm	Transition information				Cross section /cm ²
	Lower-level (odd)		Upper-level (even)		
	Config. term	Energy level (cm ⁻¹)	Config. term	Energy level (cm ⁻¹)	
567.730	$f^3ds^2 \ ^5L_7^0$	3800.829	$f^3dsp \ ^7L_8$	21409.961	$(4.06\sim 4.29) \times 10^{-14}$
575.814	$f^3ds^2 \ ^5L_6^0$	0	$f^3dsp \ ^7L_6$	17361.895	$(2.49\sim 2.94) \times 10^{-13}$

注:实验中的能级跃迁体现出重原子的j-j耦合占较大比例。

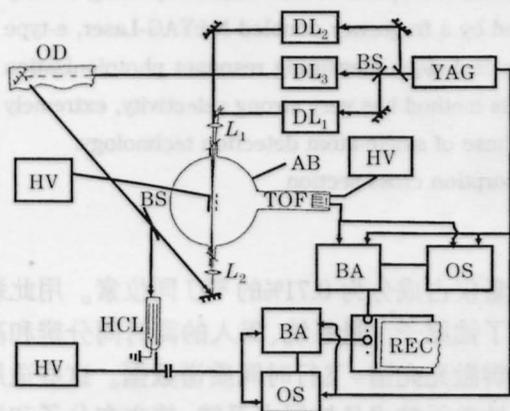


图1 铀原子激发态吸收截面实验装置图

Fig.1 Schematics of the experimental setup for absorption cross sections of excited states of atomic uranium. YAG: second-harmonic of Nd:YAG Laser; DL₁, DL₂, DL₃: dye lasers; OD: optical delay line; BS: beam splitters; L₁, L₂: lenses; AB: atomic beam apparatus; TOF: time-of-flight mass spectrometer; HV: high voltage power supply; HCL: Ne hollow cathode lamp; BA: boxcar integrator; OS: oscilloscope; REC: two-pen chart recorder

3 测量与结果

以第一激发态吸收截面为例:DL₁激光束与铀原子束作用,可以看作激光束与一个由0.000 cm⁻¹能级或低亚稳态能级到第一激发态能级的铀原子作

用。第一激发能级的粒子数分布可用 N_b 表示,最终由探测系统收集到的单色三光子共振光电离的离子数(即离子信号 S)正比于第一激发能级的 N_b 分布。在铀原子束装置中,由于电子枪轰击产生的铀热离子被屏蔽罩屏蔽,且在屏蔽罩内被同时屏蔽的带电线圈作用,按另一特定轨迹偏转而使其无法达到准直孔。因此,探测到的激光光电离的铀离子信号与该能级原子真正的布居数基本一致。

饱和吸收曲线的获得:用单色三光子共振光电离方案,在固定DL₁激发光的波长情况下,通过逐步增加DL₁激发光的强度的同时,依次测得铀离子信号随激光强度的增加而增大时的值……,直到离子信号值达最大为止(即当再增加激发光的强度时,铀离子信号不再增加,称之为信号达到饱和)。对于经Boxcar积分器输出的铀离子电信号可用记录仪绘出,另外也可将通过微通道板组合接收器输出的信号接至多位高精度数字万用表得到信号数据。根据测得的数据,绘出饱和吸收曲线,然后作出饱和吸收曲线通过横轴交点的切线,同时,尤其要注意达到饱和时离子信号的最大强度,并由

$$S/S_{\text{sat}} = 1 - \exp(-\sigma F/h\nu) \quad (1)$$

$$[(1-1/e)S_{\text{sat}}]/S_{\text{sat}} = 1 - \exp(-\sigma F/h\nu) \quad (2)$$

可得到吸收截面 σ 值。式中, F 可由饱和吸收曲线得到。如此获得的 σ 值还应乘以该能级的振子强度。由于第一、第二和第三步跃迁的粒子布居数依次递减,

振子强度越来越小,所以振子强度是截面数量级的直观反映。图2为实验中测得的铀原子 $f^3d s^2 \ ^5L_7 \ 3800.829\text{cm}^{-1} \rightarrow f^3d sp \ ^7L_8 \ 21409.961\text{cm}^{-1}$ 跃迁(激光波长为 567.730 nm)激发态能级的饱和和吸收曲线。测得的铀原子激发态吸收截面数据中的一部分由表 1 给出。

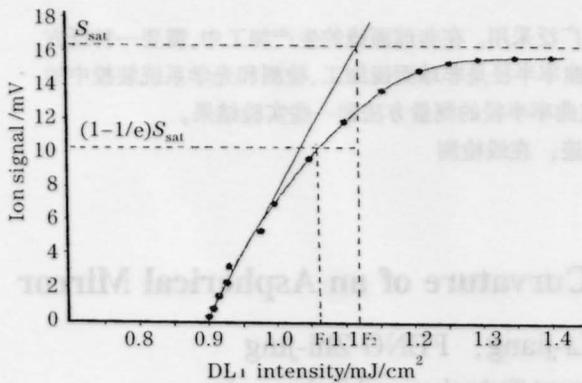


图2 铀原子 3800.829 cm⁻¹ 到 21409.961 cm⁻¹ 跃迁的饱和吸收曲线

Fig.2 Absorption saturation curve measurement for ²⁸⁸U 3800.829 to 21409.961 cm⁻¹ transition [$\sigma=(4.06\sim 4.29) \times 10^{-14} \text{cm}^2$]

用同样方法并且用 DL₁ 与 DL₂ 两束激光的双色三光子共振电离方案,可测得铀原子第二激发态即高激发态的吸收截面值。测量时,DL₁ 激光的强度必需调节到足够大,以致使第一步跃迁达到饱和,这样,第二步跃迁在适当的 DL₂ 激发光强条件下铀粒子布居数才可达最大。类似地,用此系统的三束染料激光 DL₁, DL₂, DL₃ 三步跃迁都达到饱和,进行测量铀原子三步光电离的共振光电离截面值。

参考文献

- 1 Shi Guizhen, Du Hai, Wang Lan *et al.*. The multicolor three-photon resonant ionization spectrum studies in uranium atom[J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2000, 20(1):5~8; International Medical Experts Academic Symposium, Academie Europeenne De Sciences Naturelles, Engelhardt-Ng Verlag, Bonn,Germany Combined Publication. 2002, (6) ISBN 2-9518116-1-6, 85~87
- 2 Shi Guizhen, Du Hai, Wang Shubin *et al.*. New high-lying odd-parity excited levels of atomic uranium[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2000, 17(1):103~106
- 3 B. C. Letokhov. *Laser Photoionization Spectroscopy*[M]. Moscow: Science Press, 1987

... 激光... 激发态... 吸收截面... 饱和... 吸收曲线... 铀原子... 跃迁... 激光波长... 567.730 nm... 激发态能级... 饱和和吸收曲线... 测得的铀原子激发态吸收截面数据... 一部分由表 1 给出。

... 同样方法... 双色三光子共振电离方案... 铀原子第二激发态... 吸收截面值... 测量时... DL₁ 激光的强度必需调节到足够大... 以致使第一步跃迁达到饱和... 这样,第二步跃迁在适当的 DL₂ 激发光强条件下铀粒子布居数才可达最大... 类似地,用此系统的三束染料激光 DL₁, DL₂, DL₃ 三步跃迁都达到饱和,进行测量铀原子三步光电离的共振光电离截面值。