

文章编号: 0258-7025(2007)09-1237-04

Cs(6P)激发态的辐射及与 He 碰撞的能量转移

许 瑾, 王 青, 戴 康, 沈 异 凡

(新疆大学物理科学与技术学院, 新疆 乌鲁木齐 830046)

摘要 利用激光吸收和荧光方法, 测量了 Cs(6P) 态与 He 碰撞的精细结构转移和碰撞猝灭截面。Cs 原子被激光激发到 $6P_{3/2}$ 态, 将与抽运激光束反向平行的检测激光束调到 $6P_J \rightarrow 8S_{1/2}$ 的跃迁, 测量 $6P_J$ 激发态的密度及空间分布, 由此计算了 $6P_J \rightarrow 6S$ 的有效辐射率。 $T = 337$ K, He 密度 N 在 $0.5 \times 10^{18} \sim 4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 范围内测量了 $6P_{1/2} \rightarrow 6S_{1/2}$ (895 nm) 发射的敏化荧光强度 I_{895} 。 N/I_{895} 与 N 有抛物线型的关系, 表明 $6P_J$ 的猝灭是由于与 He 原子的碰撞产生的, 而不是由与 Cs 基态原子碰撞产生的。由最小二乘法确定的二次多项式的系数得到 $6P$ 态与 He 碰撞精细结构转移截面 $\sigma_{3/2 \rightarrow 1/2} = (1.46 \pm 0.51) \times 10^{-19} \text{ cm}^2$, 猝灭截面 $\sigma_D = (2.28 \pm 0.80) \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ 。

关键词 激光物理; 激光光谱; 碰撞能量转移; 荧光; 截面; 铯; 氦气

中图分类号 O 562.5; O 657.38 **文献标识码** A

Radiation and Collision Energy Transfer of Excited Cs(6P) Atoms Mixed with He

XU Jin, WANG Qing, DAI Kang, SHEN Yi-fan

(College of Physics Science and Technology, Xinjiang University, Urumqi, Xinjiang 830046, China)

Abstract By applying the laser absorption and fluorescence method, the cross sections for the fine structure mixing and quenching of the Cs(6P) state, induced by collision with He atoms, have been measured. Cesium atoms were optically excited to the $6P_{3/2}$ state. The excited atom density and spatial distribution were mapped by monitoring the absorption of a counterpropagating single mode laser beam, which was tuned to the $6P_J \rightarrow 8S_{1/2}$ transitions. The effective radiative rates were calculated for the $6P_J \rightarrow 6S$ transitions. The fluorescence intensity I_{895} of the sensitized $6P_{1/2} \rightarrow 6S_{1/2}$ emission was measured as a function of He density in the range $0.5 \times 10^{18} \sim 4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ at constant temperature $T = 337$ K. It was found that the quantity N/I_{895} exhibited a parabolic dependence on N , confirming that the quenching of the $6P_J$ states was due to collision with He atoms, not ground state Cs atoms. The coefficients of the second-order polynomial fitted through the measured data yielded the cross sections $\sigma_{3/2 \rightarrow 1/2} = (1.46 \pm 0.51) \times 10^{-19} \text{ cm}^2$ and $\sigma_D = (2.28 \pm 0.80) \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ for the $6P_J$ fine structure mixing and quenching, respectively, due to collision with He atoms.

Key words laser physics; laser spectroscopy; collision energy transfer; fluorescence; cross sections; cesium; He

1 引 言

多年来,人们对激发态原子与气体分子的碰撞能量转移过程已经进行了广泛的研究^[1~5],该过程在解释气体分子介质的许多现象上起重要作用,在理论研究和实际应用上(如原子滤波器)有很大的意义^[6]。碱原子由于容易得到足够的蒸气压及被激光

激发,且理论处理较简单,故得到很多作者的重视。但至今在理论与实验之间,在不同作者的实验数据之间都存在着较大的差别。激光光谱技术虽对实验方法有很大的改善,测量精度也有很大的提高,但受如辐射陷获效应的复杂性,粒子数密度测量的误差及对碰撞机制理解的不完全等因素的影响。因此在

收稿日期:2007-01-09; 收到修改稿日期:2007-03-29

基金项目:国家自然科学基金(10264004)资助项目。

作者简介:许 瑾(1970—),女,江苏人,讲师,硕士研究生,主要从事激光光谱学研究。E-mail: xjcxz2008@163.com

导师简介:沈异凡(1944—),男,上海人,教授,博士生导师,主要从事原子分子和激光光谱学研究。

E-mail: shenyifan01@xju.edu.cn

这类实验中存在较大的系统误差源,故应进一步进行深入的实验研究。

2 速率方程

Cs($6P$) 原子与 He 原子碰撞的精细结构混合和猝灭过程为

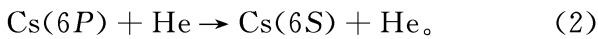
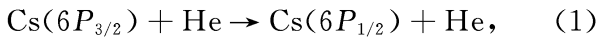


图 1 为 Cs($6P$) 原子能级图。 $6S_{1/2}$, $6P_{1/2}$, $6P_{3/2}$ 能级分别用 0, 1, 2 表示, $6P_J$ 的有效辐射率和碰撞混合率分别用 Γ_{nm}^e 和 R_{nm} 表示 ($m = 1, 2; n = 0, 1, 2$), $6P_J$ 的猝灭率用 Q_m 表示, N_0 为基态 Cs 原子密度, ρ 为激光功率密度。 B_{02} 为 $0 \rightarrow 2$ 抽运跃迁的爱因斯坦吸收系数。 $R_{nm} = V_{\text{Cs-He}} \sigma_{nm} N$, $Q_m = V_{\text{Cs-He}} \sigma_m N$,

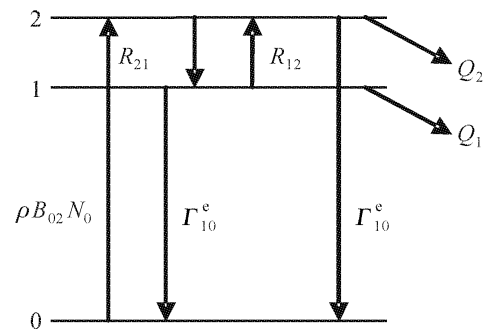


图 1 Cs($6P$) 原子能级图

Fig. 1 Schematic diagram of Cs($6P$) energy levels

$V_{\text{Cs-He}}$ 为 Cs-He 碰撞对的相对速率, σ 为相应的截面, N 为 He 原子密度。

用激光将 Cs 原子激发至 $6P_{3/2}$ 态, 由于碰撞转移使 $6P_{1/2}$ 态也得到布居, 同时发生猝灭。 $6P_J$ 态粒子数的稳态速率方程可表示成矩阵形式

$$\begin{bmatrix} -(\Gamma_{10}^e + R_{12} + Q_1) & R_{21} \\ R_{12} & -(\Gamma_{20}^e + R_{21} + Q_2) \end{bmatrix} \times \begin{bmatrix} N_1 \\ N_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ -\rho B_{02} N_0 \end{bmatrix}. \quad (3)$$

由细致平衡原理 $R_{12}/R_{21} = 0.19$ ($T = 337$ K), 基态 Cs 原子密度从蒸气压公式得到, 再从 $6P_J$ 态原子密度的测量计算出有效辐射率为 $\Gamma_{10}^e = 2.9 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ 和 $\Gamma_{20}^e = 8.5 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$, 设 $Q_1 \approx Q_2 = Q_D$, 由方程(3)得到 $6P_{1/2}$ 态的布居数密度为

$$N_1 = \frac{\rho B_{02} \sigma_{21} V_{\text{Cs-He}} N_0 N}{\Gamma_{10}^e \left(\Gamma_{20}^e + R_{21} + Q_D + \frac{\Gamma_{20}^e}{\Gamma_{10}^e} R_{12} + \frac{R_{12}}{\Gamma_{10}^e} Q_D + \frac{\Gamma_{20}^e}{\Gamma_{10}^e} Q_D + \frac{R_{21}}{\Gamma_{10}^e} Q_D + \frac{Q_D^2}{\Gamma_{10}^e} \right)}, \quad (4)$$

定义 $F = N_0 N / I_{895}$, 这里 I_{895} 表示敏化荧光 $6P_{1/2} \rightarrow 6S_{1/2}$ 强度, F 的单位为 $\text{cm}^{-6}/\text{a. u. i.}$, a. u. i. (arbitrary units of intensity) 表示任意光强单位。因为 $I_{895} \propto h\nu_{10} \Gamma_{10}^e N_1$, 所以由(4)式可得

$$F = N_0 N / I_{895} = K \left(\Gamma_{20}^e + 1.06 R_{21} + 1.31 Q_D + \frac{1.19}{\Gamma_{10}^e} R_{21} Q_D + \frac{1}{\Gamma_{10}^e} Q_D^2 \right), \quad (5)$$

这里 K 是一个比例常数。

(5) 式中, R_{21} 和 Q_D 中都含有因子 N , 故 F 是 N 的一个二次多项式

$$F(N) = a_0 + a_1 N + a_2 N^2, \quad (6)$$

比较(5), (6)式得到

$$a_0 = K \Gamma_{20}^e, \quad (7)$$

$$a_1 = \frac{a_0}{\Gamma_{20}^e} (1.06 \sigma_{21} + 1.31 \sigma_D) V_{\text{Cs-He}}, \quad (8)$$

$$a_2 = \frac{a_0}{\Gamma_{20}^e} (1.19 \sigma_{21} \sigma_D + \sigma_D^2) \frac{V_{\text{Cs-He}}^2}{\Gamma_{10}^e}, \quad (9)$$

这里 a_0 的单位为 $\text{cm}^{-6}/\text{a. u. i.}$, a_1, a_2 的单位分别为 $\text{cm}^{-3}/\text{a. u. i.}$ 和 $(\text{a. u. i.})^{-1}$ 。平均相对速率 $V_{\text{Cs-He}} = \sqrt{8kT/\pi\mu_{\text{Cs-He}}}$, 实验中 $T = 337$ K, 故为 $1.36 \times 10^5 \text{ cm/s}$, Γ_{10}^e 和 Γ_{20}^e 已在前面给出, 从(8), (9)式得到

$$\sigma_D = 7.50 \frac{a_1}{a_0} \left(1 - \sqrt{1 - 5.08 \frac{a_0 a_2}{a_1^2}} \right), \quad (10)$$

$$\sigma_{21} = 9.30 \frac{a_1}{a_0} \left(-0.368 + \sqrt{1 - 5.08 \frac{a_0 a_2}{a_1^2}} \right), \quad (11)$$

式中截面的单位为 cm^2 。

3 实验方法

实验装置如图 2, 玻璃样品池长 15 cm, 内直径 2.5 cm, 高温烘烤。在真空度为 10^{-4} Pa 后充入约 30 mg Cs, 样品池由一根细管和活塞与真空系统连接, 按需要充入不同气压的 He, 置于加热炉中。用电热器加热(加热炉未画出), 池温保持在 337 K, 由热电偶测定。

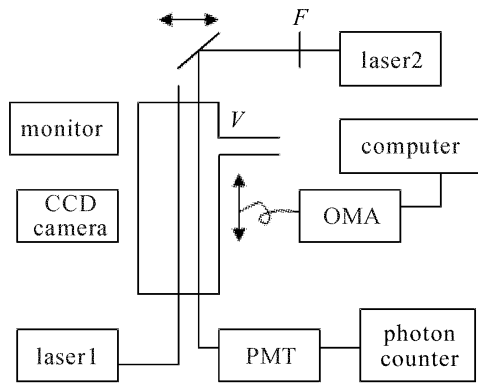


图 2 实验装置图

Fig. 2 Experimental setup

利用调频单模半导体激光器 (Laser1 DL100 型, 50 mW, 线宽 5 MHz, 852 nm) 使 Cs($6S_{1/2}, F = 4$) 原子激发。由于多普勒增宽效应 Cs($6P_{3/2}, F = 5, 4, 3$) 能级均被激发, 改变激光器的电流可以微调激光频率, 激光通过样品池中轴线, 激光束直径为 5 mm。用 CCD 摄像机监视激光的调谐和准直, 当半导体激光器频率调谐到 $6S(F = 4) \rightarrow 6P_{3/2}(F = 5, 4, 3)$ 共振频率时, 在室温下可以在监视器中观察到明亮的激光束(由共振荧光产生)。由观察到的激光束容易调节光束使其沿样品池中轴线传播, 使在与其垂直方向探测转移荧光时杂散光影响降到最低。

利用检测激光(Laser2)探测 $6P_{3/2}$ 原子密度及空间分布, 用滤光片将激光功率减弱到几十个纳瓦。激光波长调至 795 nm ($6P_{3/2} \rightarrow 8S_{1/2}$ 跃迁线), 检测激光的透射强度为

$$I_v(L) = I_v(0) \exp[-k_{8S_{1/2} \leftarrow 6P_{3/2}}(\nu)L], \quad (12)$$

式中 $k_{8S_{1/2} \leftarrow 6P_{3/2}}(\nu)$ 为频率 ν 的吸收系数, L 为样品池长度。入射光强 $I_0(\nu)$ 和透射光强 $I_v(L)$ 用光电倍增管 PMT (后接光子计数器) 测定, PMT 为 RCA31034 型, 带有半导体冷却装置, 当制冷至 -40°C 时, 其暗计数为每秒 30 个, 故有很高的灵敏度和很低的暗电流。

$6P_{3/2}$ 态原子密度与吸收系数的关系由米歇耳 (Mitchell) 和泽门斯基 (Zemansky) 关系给出^[7]

$$\int k_{8S_{1/2} \leftarrow 6P_{3/2}}(\nu) d\nu = \frac{(\lambda_{8S_{1/2} \leftarrow 6P_{3/2}})^2}{8\pi} \frac{g_{8S_{1/2}}}{\gamma_{6P_{3/2}}} N_{6P_{3/2}} \Gamma_{8S_{1/2} \leftarrow 6P_{3/2}}, \quad (13)$$

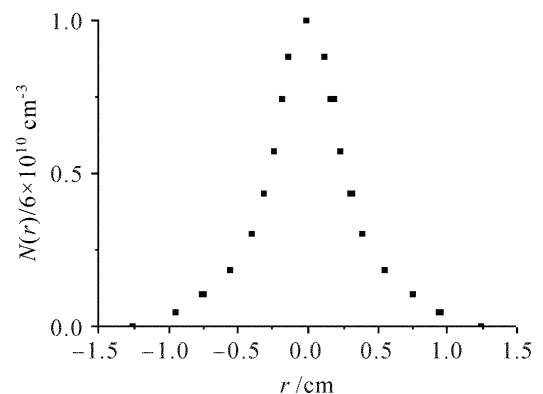
式中 g 为统计权重。移动平面镜 (见图 2) 可以测定 $6P_{3/2}$ 原子沿池半径方向的分布。 $6P_{1/2}$ 态原子密度用类似方法测得。

在与激光束垂直方向用光纤探测荧光, 由光学多道分析仪 (OMA) (INS-300-122B 型) 记录荧光

I_{895} , 光学多道分析仪焦距 300 mm, 1200 线光栅, 500 nm 闪烁波长, 光谱范围 330~900 nm, 线色散倒数 2.7 nm/mm, 一次拍摄宽度 260 nm。内置 CCD 采用半导体冷却至 -20°C 。采集数据时, 狭缝 25 μm , 积分时间 100 ms。记录的是谱线峰值光子数, 其比值即为不同 He 气压下 I_{895} 的相对光强。而杂散光及暗计数已作为背景扣除。扣除方法为: 激光调离 852 nm 几个纳米 (此时不存在 895 nm 转移荧光), 在光学多道分析仪的 895 nm 处仍有光子计数, 此数即为背景 (杂散光及暗计数之和)。用光学多道分析仪“背景扣除”功能键, 在记录荧光时就将背景自动扣除了。这里记录的 895 nm 线的荧光还需做透射率修正, 因为处于基态的 $X^2\Sigma_{1/2}$ 的 CsHe 分子要吸收 895 nm 的荧光。而随 He 原子密度的增加, CsHe 分子也要增加, 因此在不同 He 密度时, 895 nm 荧光的透射率是不同的。激光调离 895 nm (否则会直接激发 Cs 原子), 并将激光衰减至纳瓦级, 固定 Cs-He 样品池温度 (本实验为 337 K), 改变样品池中 He 的气压, 测得激光透射光强可得到不同 He 密度下的相对透射率。

4 结果与讨论

池温固定在 337 K, 由朗缪尔 (Langmuir) 蒸气压公式^[1] 得到基态原子密度为 $N_0 = 1.25 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ 。 $6P_J$ 原子的有效辐射率 $\Gamma_{6P_J}^e = \Gamma_{6P_J} T_{6P_J}$, 其中 Γ_{6P_J} 为自发辐射率。 T_{6P_J} 为平均透射因子, 包括了 $6P_J \rightarrow 6S_{1/2}$ 的所有辐射陷获效应^[8], 与基态原子密度, $6P_J$ 原子密度及其空间分布有关^[8]。图 3 为 $6P_{3/2}$ 态原子密度的径向分布。在激光照射区 ($r = 0$ 附近) 密度最大, 由于辐射陷获效应和原子间的碰撞, 在非照射区也有 $6P_{3/2}$ 态原子分布。

图 3 Cs($6P_{3/2}$) 原子密度 $N(r)$ 的归一化的径向分布Fig. 3 Normalized radial distributions $N(r)$ of Cs($6P_{3/2}$) atoms density

利用文献[9]中的共振增宽速率系数和[10]中的沃伊特 (Voigt) 轮廓的表, 可以计算透射因子 $T_{6P_J-6S_{1/2}}$, 从而得到 $\Gamma_{10}^e = 2.9 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$, $\Gamma_{20}^e = 8.5 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$.

图 4 给出了实测的敏化荧光强度 I_{895} (a. u. i.) 及透射率随 He 密度 N 变化的实验结果。 $F(N) = N_0 N / I_{895}$ (此处的 I_{895} 已做透射率修正) 的计算结果见图 5, 可以看出, $F(N)$ 的确可用 N 的二项式来表示。用最小二乘法拟合实验结果, 得到二项式系数 (误差为标准误差), $a_0 = (1.21 \pm 0.25) \times 10^{34} \text{ (cm}^{-6} / \text{a. u. i.)}$, $a_1 = (6.11 \pm 1.23) \times 10^{15} \text{ (cm}^{-3} / \text{a. u. i.)}$ 和 $a_2 = (5.11 \pm 1.22) \times 10^{-4} \text{ ((a. u. i.)}^{-1})$ 。利用(10), (11)式, 得到截面

$$\sigma_D = (2.28 \pm 0.80) \times 10^{-18} \text{ cm}^2,$$

$$\sigma_{21} = (1.46 \pm 0.51) \times 10^{-19} \text{ cm}^2.$$

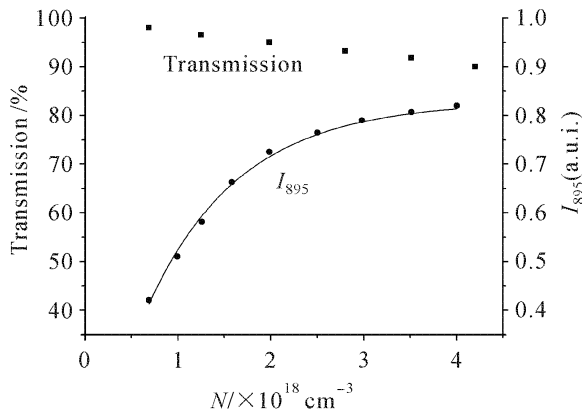


图 4 实测的荧光强度 I_{895} (a. u. i.) 和不同 He 密度时的相对透射率

Fig. 4 Measured fluorescence signal intensity I_{895} (a. u. i.) and the transmissivity as a function of He atom number density N

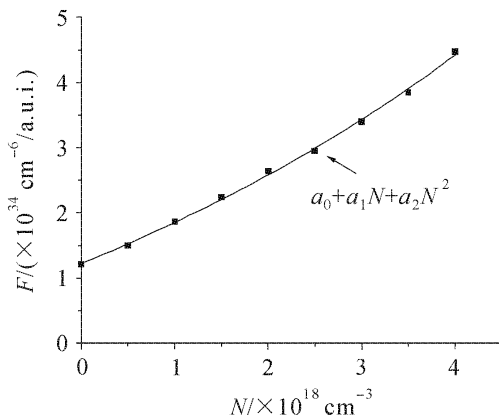


图 5 He 原子密度 N 与 F 之间的关系

Fig. 5 Quantity F as a function of He atom number density N

5 结 论

在 Cs-He 混合蒸气中, 852 nm 激光共振激发 Cs 原子到 $6P_{3/2}$ 态, 研究了 Cs($6P_{3/2}$) 态与 He 的精细结构碰撞转移和猝灭过程。由 $6P_J$ 激发态原子密度的空间分布, 计算了 $6P_J \rightarrow 6S_{1/2}$ 的有效辐射率, 通过在不同 He 气压下 $6P_{1/2} \rightarrow 6S_{1/2}$ (895 nm) 转移荧光的测量, 利用速率方程分析, 得到了 $6P_{3/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ 的碰撞转移截面为 $(1.46 \pm 0.51) \times 10^{-19} \text{ cm}^2$, $6P_J \rightarrow 6S_{1/2}$ 的猝灭碰撞截面为 $(2.28 \pm 0.80) \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ 。因实验测量的是转移荧光光强, 而不是测量共振荧光, 避免了瑞利散射对实验结果的影响。

参 考 文 献

- 1 Cedomil Vacla, Vlasta Horvatic, Kay Niemax. Radiation transport and collisional transfer of excitation energy in Cs vapors mixed with Ar or He [J]. *Spectrochim. Acta*, 2003, **B53**:1235~1277
- 2 M. Movre, C. Vacla, V. Horvatic. Mixing and quenching of the Cs $5D_J$ states induced by collisions with caesium ground-state atoms [J]. *J. Phys. B*, 2000, **33**:3001~3012
- 3 Shen Yifan, Li Wanxing. Dissociation of the NaK(E) state and branching ratio of the Na($3P_J$) fine-structure levels [J]. *Chinese J. Lasers*, 2002, **A29**(10):879~881
沈异凡, 李万兴. NaK(E) 态的离解和 Na($3P_J$) 精细结构分支比[J]. *中国激光*, 2002, **A29**(10):879~881
- 4 Jing Liu, Kang Dai, Yifan Shen. Collisional broadening of some $Z'\Delta_g \leftarrow B'\Pi_u$ lines in Na $_2$ molecules by optical-optical double resonance spectroscopy [J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2006, **4**(7):376~378
- 5 Yifan Shen, Kang Dai, Baoxia Mu *et al.*. Energy-pooling collisions in Rb-Cs vapor mixture Rb($5P_J$) + Cs($6P_{3/2}$) \rightarrow Rb($5S_{1/2}$) + Cs($6P_{3/2}$) [J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2006, **4**(9):501~504
- 6 Tiffany L. Correll, Vlasta Horvatic, Nicoto Omenetto *et al.*. Experimental evaluation of the cross sections for the Cs($6D$) \rightarrow Cs($7P_J$) and Cs($6D_{5/2}$) \rightarrow Cs($6D_{3/2}$) collisional transfer processes induced by He and Ar [J]. *Spectrochim. Acta*, 2006, **B61**:623~633
- 7 R. K. Namiotka, J. Huenehens, M. Allegrini. Energy-pooling collisions in potassium; $4P_J + 4P_J \rightarrow 4S + (nl = 5P, 6S, 4D)$ [J]. *Phys. Rev. A*, 1997, **56**(1):514~520
- 8 Z. J. Jabbour, R. K. Namiotka, J. Huenehens *et al.*. Energy-pooling collisions in cesium; $6P_J + 6P_J \rightarrow 6S + (nl = 7P, 6D, 8S, 4F)$ [J]. *Phys. Rev. A*, 1996, **54**(2):1372~1384
- 9 Z. J. Jabbour, J. Sagle, R. K. Namiotka *et al.*. Measurement of the self-broadening rate coefficients of the cesium resonance lines [J]. *J. Quant. Spectrosc Radiat Transfer*, 1995, **54**(5):767~778
- 10 J. Tudor, J. M. Vaughan. A new tabulation of the Voigt profile [J]. *Astrophysics. J.*, 1963, **137**:1302~1305