

文章编号: 0258-7025(2008)06-0907-04

Rb+(Ar, N₂)混合蒸气中 5P_{3/2}能级 有效辐射率的计算和测量

陈 洁 白振香 赵亿坤 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 计算和测量了 Rb+(Ar, N₂)混合蒸气中 Rb(5P_{3/2})共振能级的有效辐射率。使用单模半导体激光器(抽运激光)将 Rb 原子激发至 5P_{3/2}态,另一调谐到 5P_{3/2}→7S_{1/2}的单模激光束(检测激光)与抽运光束反平行通过样品池,并在池的径向平行移动,通过检测激光束的吸收测定了激发态原子密度及其空间分布。由于辐射陷获存在,有效辐射率为自然辐射率与透射因子(发射的光子在探测区域内没有被吸收的平均概率)的乘积。5P_{3/2}原子密度及其空间分布结合 5P_{3/2}←5S_{1/2}跃迁线的碰撞增宽计算了透射因子,从而得到了不同 Ar 或 N₂气压下, Rb D₂线的有效辐射率。对 5P_{3/2}-Ar 系统,在不同气压下测得的 D₂线强度比值与有效辐射率计算值的比值相符。对于 5P_{3/2}-N₂系统,研究了电子态向振动态的碰撞转移,得到了转移截面。

关键词 激光光谱;有效辐射率;辐射陷获;压力增宽;Rb+(Ar, N₂)混合蒸气

中图分类号 O 562.3 文献标识码 A

Measurement and Evaluation of Rb (5P_{3/2}) Level Effective Radiative Rate in the Vapor Mixed with Ar and N₂

Chen Jie Bai Zhen'ao Zhao Yikun Dai Kang Shen Yifan

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

Abstract The effective radiative rates for Rb (5P_{3/2}) resonance level in the presence of Ar or N₂ have been determined. Rb atoms were excited to the 5P_{3/2} state using a single-mode diode laser (pumping laser). The single-mode laser beam (probing laser) tuned to the 5P_{3/2}→7S_{1/2} transition passes through samples parallel to the pumping laser. The excited-atom density and spatial distribution were mapped by monitoring the absorption of a counter propagating single-mode diode laser beam (probing laser). In the presence of radiation trapping, the effective radiative rate is the product of spontaneous radiation rate and transmission factor, which describes the average probability that photons emitted within the fluorescence detection region can pass through the optically thick vapor without being absorbed. The transmission factor is calculated by combining the 5P_{3/2} atom density and its spatial distribution and collisional broadening of 5P_{3/2}←5S_{1/2} transition line. The effective radiative rates of the Rb D₂ line as a function of the Ar or N₂ pressure *P* are obtained. The fluorescence intensity *I*₇₈₀ of the 5P_{3/2}→5S_{1/2} emission is measured simultaneously. For 5P_{3/2}-Ar system the measured fluorescence ratios determine the ratios of the effective radiative rates at different Ar densities. These ratios are in agreement with theoretical evaluation. For 5P_{3/2}-N₂ system the electronic to vibrational energy transfer has been investigated. The cross section was obtained.

Key words laser spectroscopy; effective radiative rate; radiation trapping; pressure broadening; Rb+(Ar, N₂) mixture

收稿日期:2007-07-05;收到修改稿日期:2007-11-17

基金项目:国家自然科学基金(10664003)资助项目。

作者简介:陈 洁(1982—),女,重庆人,硕士研究生,主要从事原子与分子物理方面的研究。

E-mail:chenjie8201@126.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

1 引 言

碱原子共振能级较低,容易被激光激发,而且在玻璃样品池中可以产生足够的蒸气压,因此,多年来人们对碱和碱-缓冲气体的混合蒸气中激发态能量的辐射传输和碰撞转移过程做了大量的研究^[1~4]。另一方面,碱原子的类氢结构也使对它们的理论研究较为方便。这些研究对理解在激发态原子中的物理及化学过程有重要意义。

在光学厚蒸气中,辐射陷获起十分重要的作用,辐射陷获效应使光子在到达样品池窗口前经过多次吸收和发射,增加了激发态原子的有效寿命,即有效辐射率小于自然辐射率。同时,由于缓冲气体的引入,产生谱线的碰撞增宽又增大了有效抽运率和有效辐射率^[5]。本文研究了圆柱形玻璃样品池 Rb+(Ar, N₂)混合蒸气中在固定温度、不同 Ar 或 N₂ 气压(不同 Ar 或 N₂ 原子密度)下, Rb(5P_{3/2}) 共振能级的有效辐射率。

2 辐射陷获理论

激光共振激发 Rb+(Ar, N₂)混合蒸气,产生 Rb(5P_{3/2}) 激发态原子,由于辐射陷获效应,一是使 5P_{3/2} 态原子在非激光照射区也有布居,二是使 5P_{3/2} 态原子的辐射率要减小,表示为

$$\Gamma_{5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}}^e = T_{5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}} \cdot \Gamma_{5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}}^n, \quad (1)$$

式中 Γ^e 为有效辐射率, Γ^n 为自然辐射率, T 为归一化的透射因子,是光子沿探测方向到逸出窗口没有被吸收的平均概率,它包括了 5P_{3/2} → 5S_{1/2} 跃迁的所有辐射陷获效应^[6]

$$\begin{aligned} T_{5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}} &= \int_{\text{vol}} n_{5P_{3/2}}(\mathbf{r}) P_{5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}}^{\text{escape}}(\mathbf{r}) d^3 \mathbf{r} / \\ &\int_{\text{vol}} n_{5P_{3/2}}(\mathbf{r}) d^3 \mathbf{r} = \\ &\int_{-R}^R n_{5P_{3/2}}(x) P_{5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}}^{\text{escape}}(x) dx / \\ &\int_{-R}^R n_{5P_{3/2}}(x) dx, \quad (2) \end{aligned}$$

式中第二个等式是因为本实验使用圆柱形玻璃样品池,激光沿它的中轴线(z 轴)均匀激发 Rb 原子,激发态原子密度 $n_{5P_{3/2}}$ 只与径向(x 方向)有关, R 为样品池半径, $P_{5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}}^{\text{escape}}$ 是处于 x 位置 5P_{3/2} → 5S_{1/2} 跃迁发射的光子通过($R-x$) 距离没有被吸收的概率

$$\begin{aligned} P_{5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}}^{\text{escape}}(x) &= \\ &\int \sigma_{5P_{3/2} \leftarrow 5S_{1/2}}(\omega) \exp[-\sigma_{5P_{3/2} \leftarrow 5S_{1/2}}(\omega) \times \\ &\int_x^R n_{5S_{1/2}}(x') dx'] d\omega / \int \sigma_{5P_{3/2} \leftarrow 5S_{1/2}}(\omega) d\omega, \quad (3) \end{aligned}$$

式中 $\sigma_{5P_{3/2} \leftarrow 5S_{1/2}}$ 是光子角频率为 ω 时的吸收截面,

$\sigma_{5P_{3/2} \leftarrow 5S_{1/2}}(\omega) / \int \sigma_{5P_{3/2} \leftarrow 5S_{1/2}}(\omega) d\omega$ 为 x 处发射一个光子的归一化概率, $\exp[-\sigma_{5P_{3/2} \leftarrow 5S_{1/2}}(\omega) \int_x^R n_{5S_{1/2}}(x') dx']$ 是在 x 位置发射的角频率为 ω 的光子到达池壁而没有被 5S_{1/2} 基态原子吸收的概率(本实验中,基态原子密度 $n_{5S_{1/2}}$ 可视为均匀分布),考虑到 5S_{1/2} 态的超精细结构,并设在超精细结构能级上粒子按统计权重布居,则有

$$\sigma_{5P_{3/2} \leftarrow 5S_{1/2}}(\omega) = \sum_F \sum_{F'} \sigma_{5P_{3/2}(F) \leftarrow 5S_{1/2}(F')}(\omega) \frac{g(F')}{\sum_{F'} g(F')}, \quad (4)$$

式中 $F = 1, 2, 3, 4$, $F' = 2, 3$ 分别为 5P_{3/2} 和 5S_{1/2} 超精细结构的总角动量量子数,而 $g(F') = 2F' + 1$ 为 5S_{1/2}(F') 能级的统计权重。超精细结构间跃迁的吸收截面由沃伊特(Voigt) 函数给出

$$\begin{aligned} \sigma_{5P_{3/2}(F) \leftarrow 5S_{1/2}(F')}(\omega) &= \\ &\frac{\lambda^2}{8\pi} \frac{g(F)}{g(F')} \frac{\Gamma_{5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}} \Gamma_{5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}}^n}{\pi^{1/2} \Delta} \times \\ &\int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \frac{\exp\{-[\omega' - \omega_{5P_{3/2}(F) \leftarrow 5S_{1/2}(F')}]^2 / \Delta^2\}}{(\omega - \omega')^2 + (\Gamma_{5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}} / 2)^2}, \quad (5) \end{aligned}$$

式中 $\Delta = 1/\lambda \sqrt{2kT/m}$ 为多普勒线宽, $\Gamma_{5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}}$ 为洛伦兹线宽

$$\Gamma_{5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}} = \Gamma_{5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}}^n / 2\pi + \gamma N_0 + 2.2 \times 10^5 P, \quad (6)$$

式中 N_0 为基态 Rb 原子密度, $\gamma = 7.1 \times 10^{-7} \text{ cm}^3/\text{s}$ 为 Rb-Rb 碰撞增宽速率系数^[7], P 为 Ar 或 N₂ 气压(以 Pa 为单位), $2.2 \times 10^5 P$ 为 Rb 与 Ar 或 N₂ 的碰撞增宽^[8]。5P_{3/2} 态的密度分布 $n_{5P_{3/2}}(x)$, 结合 5S_{1/2}, 5P_{3/2} 超精细能级裂距以及碰撞增宽率,从(2) ~ (6) 式计算 $T_{5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}}$, 从而由(1)式得到有效辐射率。

3 实验装置与测量方法

实验装置与文献[3]中相似,玻璃样品池长 10 cm,内直径 2.5 cm,高温烘烤(以除去附在玻璃上的杂质和气体)。真空度 10^{-4} Pa 后充入约 30 mg Rb(⁸⁵Rb 原子数分数为 72.2%),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 Ar 或 N₂,样品池置于一个加热炉中,用电热器加热,池温保持在 385 K,由热电偶测定。

利用调频单模半导体激光器 780 nm 线(Tuioptics 公司产 DL100 型,70 mW,线宽 5 MHz)使 ⁸⁵Rb[5S_{1/2}($F' = 3$)] 原子激发到 5P_{3/2}($F = 4$)

态,改变激光器的电流或温度可以微调激光频率,激光通过样品池中轴线,用 CCD 监视激光的调谐和准直,在室温下可以在监视器中观察到清晰的激光束(由共振荧光产生),激光束直径为 5 mm。

利用检测激光探测 5P_{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纳瓦,利用 5P_{3/2} → 7S_{1/2} (740.8 nm) 跃迁线作为吸收线,用光电倍增管(后接光子计数器)测定吸收系数 $k_{7S_{1/2} \leftarrow 5P_{3/2}}$, 利用米契耳(Mitchell)和泽门斯基(Zemansky)关系^[9]

$$\int k_{7S_{1/2} \leftarrow 5P_{3/2}}(\nu) d\nu = \frac{(\lambda_{7S_{1/2} \leftarrow 5P_{3/2}})^2}{8\pi} \frac{g_{7S_{1/2}}}{g_{5P_{3/2}}} n_{5P_{3/2}} \Gamma_{7S_{1/2} \leftarrow 5P_{3/2}} \quad (7)$$

测量 5P_{3/2} 密度 $n_{5P_{3/2}}$ 。(7) 式中 g 为统计权重。一个平面镜使检测激光沿与抽运光反向平行方向通过样品池。该平面镜可在样品池直径方向平行移动,以测定对检测光束的吸收,从而得到 5P_{3/2} 原子沿半径方向的分布。在与抽运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,焦距 300 mm,半导体制冷至 -20 °C)记录共振荧光 I_{780} 。

4 结果与讨论

先固定 Ar 气压为 90 Pa,池温在 385 K,由蒸气压力公式^[10]得到 Rb 原子密度 N_0 为 $1.0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ 。图 1 为测得的 5P_{3/2} 态原子密度的归一化径向分布。在激光照射区($r=0$ 附近)密度最大, $N_{5P_{3/2}}(r=0) = 8.6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ 。由于辐射陷获效应和原子间的碰撞,在非照射区也有 5P_{3/2} 态原子分布,在本实验条件下(Ar 或 N₂ 气压在 50~230 Pa 之间),不同气压下 Rb(5P_{3/2}) 态密度及空间分布无明显变化。由前面给出的碰撞增宽速率系数,利用(2)~(6)式和

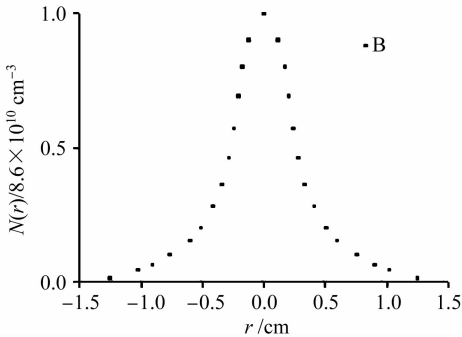


图 1 Rb(5P_{3/2}) 原子的归一化径向分布 $N(r)$
Fig. 1 Normalized radial distribution $N(r)$ of Rb(5P_{3/2}) atoms

文献^[11]中沃伊特轮廓的表,计算得到透射因子 $T_{5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}} = 1.81 \times 10^{-2}$, 故有效辐射率 $\Gamma_{5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}}^e = 6.7 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$, 5P_{3/2} 态的自然辐射率为 $3.7 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ ^[12]。

用类似方法得到不同气压下的有效辐射率,图 2 给出了 Rb 密度 $N_0 = 1.0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ 时 5P_{3/2} 态有效辐射率随 Ar, N₂ 气压变化的情况。因 Ar, N₂ 与 Rb 的碰撞增宽率接近相等^[8], 故相同气压下 Γ^e 也接近相等。(4) 式假设了 5S_{1/2} 的超精细结构能级上粒子按统计权重分布,这可能给计算带来误差^[6], 文献^[13]证明 Rb D₂ 线的 5S_{1/2} ($F' = 3$) → 5P_{3/2} ($F = 2, 3, 4$) 激发引起的 5S_{1/2} 超精细结构能级上布居数偏离统计权重分布仅约 5%, 因此,对 $T_{5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}}$ 的计算结果不会造成大的影响。

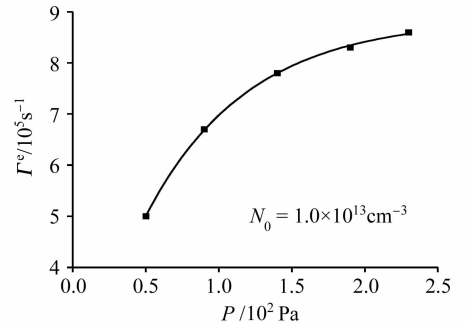


图 2 有效辐射率与 P (Ar 或 N₂) 的关系

Fig. 2 Effective radiation rate curve plotted against P (Ar or N₂)

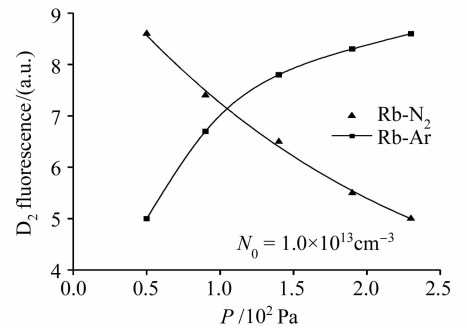


图 3 Rb D₂ 荧光与 P 的关系

Fig. 3 P dependence on Rb D₂ fluorescence intensity

在不同 Ar 或 N₂ 气压下,记录共振荧光强度 I_{780} , 如图 3 所示,而 $I_{780} \propto \Gamma_{5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}}^e n_{5P_{3/2}}$, 对于 5P_{3/2}-Ar 系统,因 $n_{5P_{3/2}}$ 与 Ar 原子碰撞转移截面很小,仅为 $10^{-18} \sim 10^{-19} \text{ cm}^2$ 量级,在本实验 Ar 气压范围内 ($P < 250 \text{ Pa}$),其碰撞转移率不超过 10^3 s^{-1} 量级,与 $\Gamma_{5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}}^e$ 相比可略去,故固定 Rb 密度而改变 Ar 气压时,近似有 $I'_{780}/I''_{780} = \Gamma_{5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}}^e / \Gamma_{5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}}^e$, 即有效辐射率之比近似等于光强之比,图 2 中有效

辐射率随气压的变化确与图 3 中 Rb-Ar 系统的光强变化规律基本一致。

对于 $5P_{3/2}$ - N_2 系统,从图 3 可以看出,随着 N_2 气压的增加, I_{780} 强度减少,这是因为 $5P_{3/2}$ 电子态能级与 $N_2[X^1 \sum_g^+(\nu=5)]$ 的能级很接近,碰撞能量转移容易进行(使 $5P_{3/2}$ 激发态原子猝灭)。用 Γ_{tr} 表示碰撞转移率, N 为 N_2 分子密度, σ_{tr} 为转移截面, $\bar{v} = (8kT/\pi\mu)^{1/2} = 6.2 \times 10^4$ cm/s,其中 k 为玻尔兹曼常数, T 为绝对温度, μ 为 Rb 与 N_2 的折合质量, \bar{v} 为碰撞粒子的相对速率(因 N_2 密度比 Rb 密度 N_0 大 3~4 个量级,略去 Rb-Rb 碰撞效应),共振光强

$$I_{780} = n_{5P_{3/2}} (\Gamma^e - \Gamma_{tr}) h\nu, \quad (8)$$

其中

$$\Gamma_{tr} = \sigma_{tr} \bar{v} N, \quad (9)$$

在本实验低气压条件下,在不同 N_2 气压时 $5P_{3/2}$ 态原子密度 $n_{5P_{3/2}}$ 是相同的,因此有不同 N_2 密度时的共振荧光强度比为

$$\frac{I'_{780}}{I''_{780}} = \frac{\Gamma^e - \sigma_{tr} \bar{v} N'}{\Gamma^e - \sigma_{tr} \bar{v} N''}, \quad (10)$$

由图 3 Rb- N_2 系统荧光强度的实验数据并结合图 2 中相应 N_2 气压的有效辐射率得到 $\sigma_{tr} = (2.3 \pm 0.6) \times 10^{-16}$ cm² (误差为标准差)。

5 结 论

通过 Rb($5P_{3/2}$) 态原子密度及空间分布的测量,计算了不同缓冲气体气压下 $5P_{3/2}$ 态的有效辐射率,它们随气压的增加而增加。在 Rb-Ar 系统中,共振荧光强度随 Ar 气压的增加而增加,与有效辐射率的增加规律一致。在 Rb- N_2 系统中,由于电子共振碰撞转移,共振荧光随 N_2 气压增加而减少,由速率方程分析得到了碰撞转移截面。

参 考 文 献

- 1 Cedomil Vacla, Vlasta Horvatic, Kay Niemax. Radiative transport and collisional transfer of excitation energy in Cs vapors mixed with Ar or He [J]. *Spectrochim. Acta, Part B*, 2003, **58**:1235~1277
- 2 Yifan Shen, Kang Dai, Baoxia Mu *et al.*. Energy-pooling collisions in Rb-Cs vapor mixture $Rb(5P_J) + Cs(6P_{3/2}) \rightarrow Rb(5S_{1/2}) + Cs(nl')$ [J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2006, **4**(9):501~504
- 3 Xu Jin, Wang Qing, Dai Kang *et al.*. Radiative transport and collisional transfer of excitation energy in Cs($6P$) atom mixed with He [J]. *Chinese J. Lasers*, 2007, **34**(9):1237~1240
许 瑾,王 青,戴 康等. Cs($6P$) 激发态的辐射及与 He 碰撞的能量转移[J]. *中国激光*, 2007, **34**(9):1237~1240
- 4 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) 态的解离和 Na($3P_J$) 的精细结构能级分支比[J]. *中国激光*, 2002, **A29**(10):879~881
- 5 Vlasta Horvatic, Tiffany L. Correll, Nicoló Omenetto *et al.*. The effects of saturation and velocity selective population in two-step $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2} \rightarrow 6D_{5/2}$ laser excitation in cesium [J]. *Spectrochim. Acta, Part B*, 2006, **61**:1260~1269
- 6 Z. J. Jabbour, R. K. Namiotka, J. Huennekens *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
- 7 K. Niemax, M. Movre, G. Pichler. Near-wing asymmetries of the self-broadened first Rb and Cs resonance line [J]. *J. Phys. B*, 1979, **12**(21):3503~3509
- 8 M. A. Rosenberry, J. P. Reyes, D. Tupa *et al.*. Radiation trapping in rubidium optical pumping at low buffer-gas pressure [J]. *Phys. Rev. A*, 2007, **75**(2):023401
- 9 R. K. Namiotka, J. Huennekens, 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
- 10 A. Gallagher, E. L. Lewis. Determination of the vapor pressure of rubidium by optical absorption [J]. *J. Opt. Soc. Am.*, 1973, **63**(7):864~869
- 11 J. Tudor Davies, J. M. Vaughan. A new tabulation of the Voigt profile [J]. *Astrophysics J.*, 1963, **137**:1302~1305
- 12 Constantine E. Theodosiou. Lifetimes of alkali-metal-atom Rydberg states [J]. *Phys. Rev. A*, 1984, **30**(6):2881~2909
- 13 David A. Smith, Ifan G. Hughes. The role of hyperfine pumping in multilevel systems exhibiting saturated absorption [J]. *Am. J. Phys.*, 2004, **72**(5):631~637