

Sm 原子偶宇称高激发态偏振光谱

陈枫, 张雪倩, 张小虎, 张文纳, 黄庆, 沈礼*

天津理工大学理学院, 天津 300384

摘要 为了确认偏振光谱技术对复杂 Sm 原子的适用性, 本文采用双色两步共振激发技术和光电离探测技术对 Sm 原子偶宇称高激发态的光谱进行了研究。首先, 通过两步激发将处于基态 $4f^6 6s^2 \ ^7F_0$ 的 Sm 原子激发到偶宇称激发态 (总角动量量子数 $J=0\sim 2$), 并采用光电离技术对其进行探测; 然后, 通过对 $\pi\pi$ 、 $\pi\sigma$ 、 $\sigma^+\sigma^+$ 和 $\sigma^+\sigma^-$ 不同偏振组合下的光谱进行对比分析, 利用偏振选择定则确定了三个偶宇称高激发态的总角动量量子数 J ; 最后, 通过改变两步线偏振激发光振动方向的夹角, 得到了光电离信号与该角度的关系, 从而验证了偏振光谱技术对 Sm 原子的适用性。

关键词 光谱学; 原子光谱; 偏振激发; Sm 原子; 偶宇称; 光电离; 高激发态

中图分类号 O433.1; O433.2

文献标志码 A

doi: 10.3788/LOP202158.1130001

Polarization Spectra of Even-Parity Highly Excited States of Samarium Atom

Chen Feng, Zhang Xueqian, Zhang Xiaohu, Zhang Wenna, Huang Qing, Shen Li*

School of Science, Tianjin University of Technology, Tianjin 300384, China

Abstract To confirm the applicability of polarization spectroscopy to complex Sm atoms, we employed two-color two-step resonance excitation and photoionization detection techniques to study the spectra of even-parity highly excited states of an Sm atom. First, through two-step excitation, an Sm atom in the ground state $4f^6 6s^2 \ ^7F_0$ was excited to the even-parity excited states (angular momentum quantum numbers, $J=0\sim 2$), and photoionization was used for detection. The spectra were compared and analyzed under different polarization combinations, and the total angular momentum quantum numbers J of the three even-parity highly excited states were determined using the polarization selection rule. Finally, by changing the angle of the vibration directions of the two linear polarized lights, we established the relationship between the photoionization signal and the angle, which verifies the applicability of polarization spectroscopy to Sm atoms.

Key words spectroscopy; atomic spectroscopy; polarization excitation; samarium atom; even-parity; photoionization; highly excited state

OCIS codes 300.6210; 260.5430; 300.1030

1 引言

高激发态的研究始终是光谱学中非常重要的

一个分支。原子高激发态的研究在新型激光器研发^[1]、宇宙丰度计算^[2]、原子同位素分离^[3-10]等方面都有重要价值。

收稿日期: 2020-11-02; 修回日期: 2020-11-22; 录用日期: 2020-12-03

基金项目: 国家自然科学基金(11004151)、国家级大学生创新创业训练计划(201810060026)、天津市高等学校创新团队培养计划(TD3-5029)

*E-mail: shenli@tjut.edu.cn

早期,原子高激发态的研究大多集中于最外层有两个价电子的碱土金属原子^[11-13]上,如位于第一电离阈附近的束缚态和自电离态的 Sr、Ba 等原子^[14-16]。近年来,经过越来越多的深入研究,结构更为复杂的稀土原子成为了研究重点。4f 壳层全满填充的稀土 Yb 原子的最外层也有两个价电子,这使得其光谱特征与碱土金属的光谱特征更相近^[17]。然而,对于其他稀土原子,比如镧系轻稀土原子,其最外层有两个价电子,且 4f 壳层没有全满填充。Sm 原子具有 6 个 4f 壳层价电子,导致 Sm 原子在同一电子组态下会存在非常多的原子状态,如最低电子组态 [Xe] 4f⁶6s² 存在 7 个精细子能级 $^7F_J (J=0\sim 6)$ ^[18]; 这 7 个子能级中,能级差最大也仅为 4020.66 cm^{-1} ^[19]。如此小的能级间隔会由于玻尔兹曼分布导致 Sm 原子在这 7 个子能级上都存在一定的布居,从而使得 Sm 原子存在多个可能的跃迁初态。以上两方面导致 Sm 原子的光谱相比其他稀土原子的光谱复杂得多,也更具挑战性和科学意义^[7]。另外,通过不同的偏振组合,可以实现能级的选择性激发与识别;同时,考虑到核自旋下 Sm 原子奇、偶同位素总角动量的不同,通过偏振激发也可以实现同位素的分离^[7-10]。

本文采用双色两步共振激发^[20]将处于基态的 Sm 原子激发至偶宇称高激发态,然后通过光电离^[21]进行探测。先对 Sm 原子在 $29930\sim 30280 \text{ cm}^{-1}$ 能域内总角动量子数 J 取值为 $0\sim 2$ 的偶宇称高激发态进行研究,获得不同偏振组合下的光谱;然后通过偏振跃迁定则确定偶宇称高激发态的 J 值,并通过改变两步激光振动方向的夹角获得跃迁强度

随该角度的变化,进一步确认偏振光谱技术对 Sm 原子光谱的适用性。

2 实验装置与原理

2.1 实验装置

本文采用的实验装置如图 1 所示。实验采用的是 Quanta System 公司的 Nd:YAG 激光器,型号为 GNT 0021-0805/L,其产生的波长为 532 nm、重复频率为 20 Hz、脉冲宽度为 6~8 ns、能量为 100 mJ 的激光经过 1:1 比例分束后分别泵浦两台可调谐染料激光器。染料激光器 1 的输出波长固定为 638.955 nm,染料激光器 2 的输出波长在 683.500~700.000 nm 范围内可调谐,它们输出的激光均为竖直线偏振光,线宽均为 0.1 cm^{-1} 。鉴于 Sm 原子能级的复杂性,为了确保这两步激光按照预设的路径分步激发 Sm 原子,在激光进入真空腔与原子作用之前,通过反射镜等光学元件改变这两步激光的光程,使它们相差 8 ns 依次进入真空腔。由于多次反射,激光已不再是竖直线偏振光,这些光可以通过偏振片和半波片或四分之一波片的组合产生实验所需的线偏振光或圆偏振光。

利用钼加热丝和温控装置保持原子炉温度在 873 K。由于饱和蒸汽压的作用,Sm 原子蒸气从孔径为 1 mm 的小孔中竖直向上喷出,原子束经过准直后与进入真空腔的水平激光束在两竖直放置的平行金属板处正交,这样可以尽量减小光谱的 Doppler 展宽效应,提高能级的分辨率。靠近微通道板的金属板接地,另一端金属板上施加幅值为

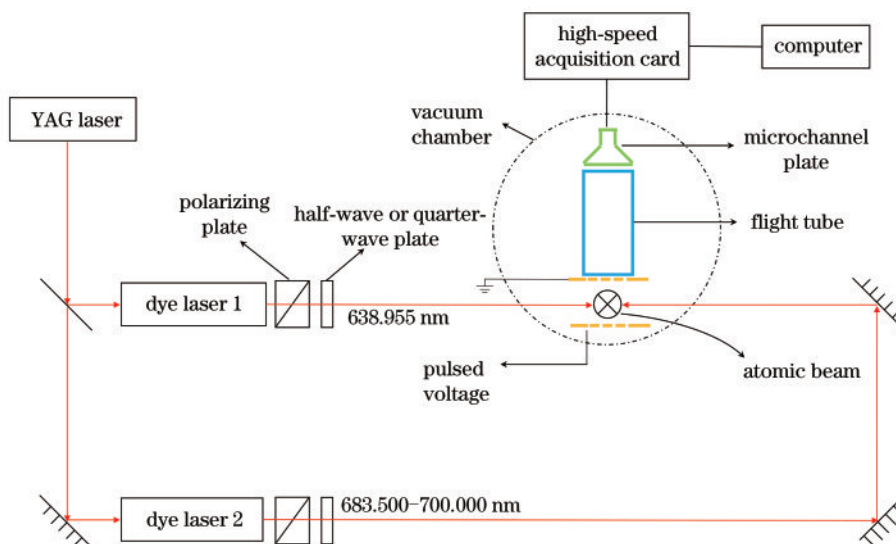


图1 实验装置图

Fig. 1 Experimental setup diagram

100 V 的脉冲电压,该脉冲电压相对于激光与 Sm 原子的相互作用时间延时 0.5 μs,以保证激光与 Sm 原子相互作用时不存在 Stark 效应。两平行金属板间距为 1 cm。金属板中间的栅网既保证了作用区电场的均匀度,又保证了经过光电离后产生的 Sm⁺离子在脉冲电场作用下从靠近微通道板的金属板中间的栅网飞出作用区。飞出作用区的 Sm⁺离子通过飞行管道自由飞行至微通道板。这些实验装置均放置于真空腔中。通过机械泵和分子泵使真空腔中的压强低于 2.0×10⁻⁵ Pa。被增益至 10⁸ 的微通道板的放大信号被输入至高速采集卡(型号为 U1071A)中进行模拟-数字转换,转换后的信号被输入计算机进行进一步的分析和处理。

偶宇称高激发态的能级位置根据文献[19]中 4f⁶s6p⁷G₁ 态的能量与第二步激发光(λ₂)的光子能量之和确定。使用相干公司的 WaveMaster 波长计标定两步激发光的波长,该波长计的测量精度可以达到 0.01 cm⁻¹。另外,为将能量的不确定度降到最小,对同一光谱进行多次测量。本实验获得的偶宇称高激发态的能量总体不确定度是 ±0.1 cm⁻¹,这主要是由两步激发光的线宽决定的。

2.2 实验原理

本文采用双色双光子将 Sm 原子从基态 4f⁶s²7F₀ 依次激发至待探测的偶宇称高激发态(J=0~2),激发路径如图 2 所示。Sm 原子最低电子组态 4f⁶s² 存在 7 个精细子能级 7F_J(J=0~6),并且基态 7F₀ 与其他 6 个亚稳态 7F_J(J=1~6)的能量差在 4020.66 cm⁻¹ 以内,甚至最低仅为 292.58 cm⁻¹[19]。根据玻尔兹曼分布,当温度为 873 K 时,这 7 个精细子能级上都有原子布居,因此这些子能级都有可能成为跃迁初态。为了保证有尽可能多的 Sm 原子被激发,本文

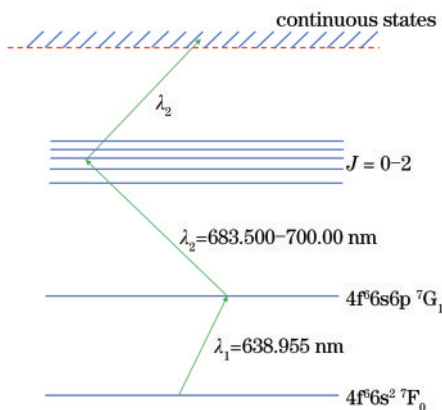


图 2 激发路径示意图

Fig. 2 Schematic of excitation path

首先使用波长为 638.955 nm (λ₁) 的光子将 Sm 原子从基态 4f⁶s²7F₀ 激发到奇宇称激发态 4f⁶s6p⁷G₁,之后再利用 λ₂ 将 Sm 原子从奇宇称激发态 4f⁶s6p⁷G₁ 激发到偶宇称高激发态(J=0~2),再使处于该高激发态的 Sm 原子吸收同一波长值 λ₂ 的光子到达连续态,之后进一步电离为 Sm⁺离子。根据电偶极跃迁选择定则(ΔJ=±1),偶宇称高激发态的总角动量量子数无法唯一确定。为了确定跃迁终态的总角动量量子数,一种方法是选择不同的跃迁路径。由于中间态的总角动量量子数不同,因此每条路径下的终态总角动量量子数有不同的取值范围,对比多条路径就可以唯一确定终态的总角动量量子数[22]。该方法需要改变每一步激发光的波长或调谐范围。另一种方法不需改变激发光的波长或调谐范围,即偏振光谱技术[7-10]。

考虑到激发光偏振态的电偶极跃迁,由总角动量量子数和磁量子数分别为 J₀ 和 M₀ 的初态跃迁至总角动量量子数和磁量子数分别为 J₁ 和 M₁ 的末态的跃迁概率 W 与 Wigner 3J 符号模的平方成正比,即

$$W \propto \left[\begin{matrix} J_1 & 1 & J_0 \\ -M_1 & \varphi & M_0 \end{matrix} \right]^2, \quad (1)$$

式中:φ 为光子的磁量子数。对于线偏振光(π),φ=0,而对于圆偏振光(σ[±]),φ=±1。如果存在多步跃迁(如两步跃迁),总的跃迁概率 W_{all} 应为多步跃迁概率的乘积。其中需要注意的是,在两步光均为线偏振光且光振动方向垂直(πσ 组合)的情况下,因为这两步光的量子化轴垂直,为了保证量子化轴的一致,应将第二步线偏振光分解为右旋与左旋圆偏振光(σ⁺ 和 σ⁻),这样第二步光的磁量子数 φ₂ 应为 ±1 而不是 0。由于零场下总角动量量子数为 J 的原子态共有 2J+1 个简并能级,即磁量子数 M 的取值范围为 -J~J 且间隔为 1,因此从(1)式可以看到,对于确定总角动量量子数的初末态而言,也可能存在有不同磁量子数的跃迁可能。因此两步跃迁情形下,总的跃迁概率为

$$W_{\text{all}} \propto \sum_q \prod_{i=1}^2 \left[\begin{matrix} J_i & 1 & J_{i-1} \\ -M_i & \varphi_i & M_{i-1} \end{matrix} \right]^2, \quad (2)$$

式中:q 表示考虑到跃迁态磁量子数所有的可能的跃迁数目。如本文所选取的总角动量量子数为 0→1→0~2 的激发路径,初态和中间态的能级简并度分别为 1 和 3,而不同终态下的能级简并度分别为 1、3 和 5,所以对于这三种不同终态下可能的

跃迁数目 q 分别为 3、9、15。在两步光跃迁中,对于线偏振组合而言,存在 $\pi\pi$ 、 $\pi\sigma$ 、 $\sigma\pi$ 和 $\sigma\sigma$ 这 4 种可能的组合,但是由于对称性,只有 $\pi\pi$ 和 $\pi\sigma$ 组合是独立的。同样,圆偏振组合下也只有 $\sigma^+\sigma^+$ 和 $\sigma^+\sigma^-$ 这两种组合是独立的。因此,两步光跃迁中共存在 4 种不同的独立的偏振组合。4 种偏振组合在不同跃迁终态下的总的跃迁概率如表 1 所示,其中 a 、 b 、 c 表示与约化跃迁矩阵元成比例的常数,与跃迁各态的径向波函数有关,与角向波函数无关,因此同一跃迁终态不同偏振组合下该值为常数。由表 1 可以看到,有些跃迁是禁戒的,如 $\sigma^+\sigma^+$ 组合下 $J_2=0$ 和 $J_2=1$ 的终态跃迁,以及 $\pi\pi$ 组合下 $J_2=1$ 的终态跃迁和 $\pi\sigma$ 组合下 $J_2=0$ 的终态跃迁。即使是存在跃迁概率的终态,在不同的偏振组合下,跃迁概率也不尽相同,如终态 $J_2=2$ 的跃迁在 $\sigma^+\sigma^+$ 和 $\sigma^+\sigma^-$ 组合下的跃迁概率之比为 6:1。这些跃迁概率的特点为利用不同的偏振组合下的光谱区分跃迁终态的总角动量量子数提供了可能,且无需改变跃迁波长或调谐范围。

表 1 不同偏振组合下 J_2 的相对跃迁强度

Table 1 Relative transition intensity of J_2 under different polarization combinations

Case	Polarization		Normalized transition amplitude		
	φ_1	φ_2	$J_2=0$	$J_2=1$	$J_2=2$
1	σ^+	σ^-	a	b	c
2	σ^+	σ^+	0	0	$6c$
3	π	π	a	0	$4c$
4	π	σ	0	b	$3c$

3 结果与讨论

3.1 偶宇称高激发态光谱

图 3 所示为 4 种不同偏振组合下能域为 29930~30280 cm^{-1} 的 Sm 原子的偶宇称高激发态光谱,4 种组合下的光谱已按照最强峰统一进行了归一化。其中*号表示挡住 λ_1 扫描 λ_2 仍然存在的能级,该能级有可能是从基态 $4f^6 6s^2 \ ^7F_0$ 或其上方的 6 个亚稳态 $4f^6 6s^2 \ ^7F_J$ ($J=1\sim 6$) 吸收一个或两个 λ_2 光子而跃迁的能级,本文不予详细讨论。结合图 3(a)~(d) 可以看到,在该能域内共存在 3 个明显的偶宇称高激发态。能量

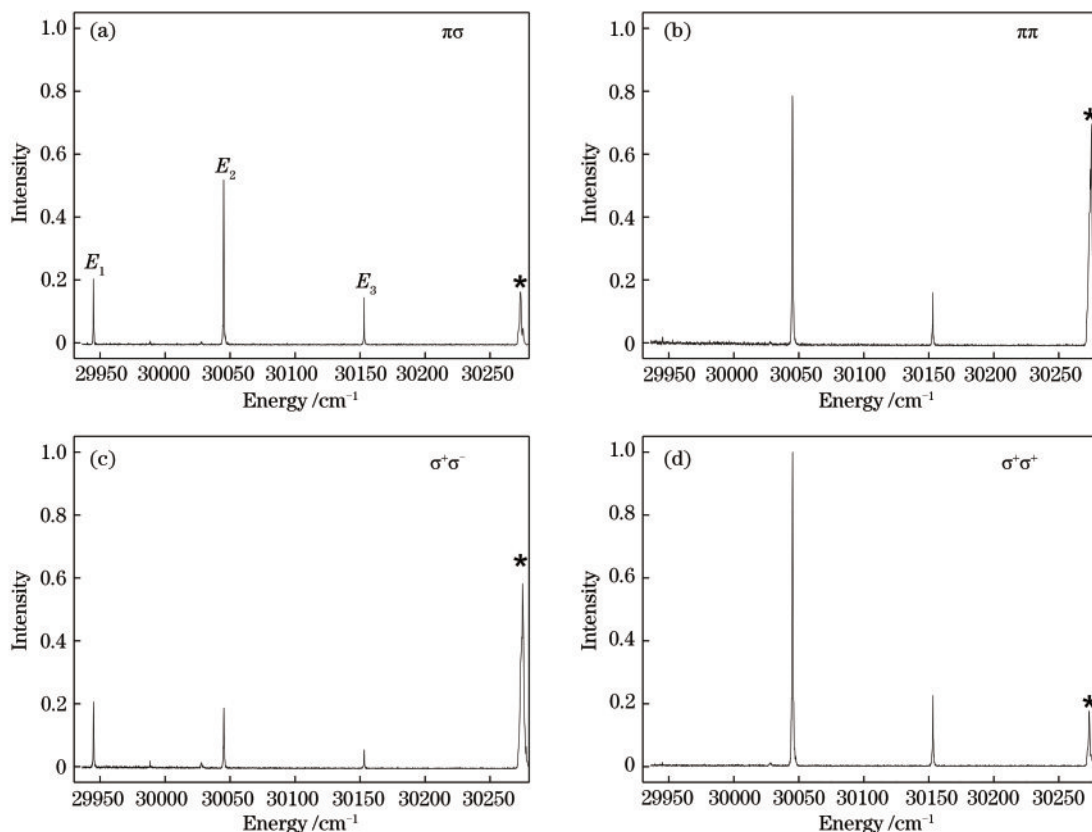


图 3 不同偏振组合下 Sm 原子的偶宇称高激发态光谱。(a) $\pi\sigma$ 组合; (b) $\pi\pi$ 组合; (c) $\sigma^+\sigma^-$ 组合; (d) $\sigma^+\sigma^+$ 组合

Fig. 3 Spectra of even-parity highly excited states of Sm atoms under different polarization combinations. (a) $\pi\sigma$ combination; (b) $\pi\pi$ combination; (c) $\sigma^+\sigma^-$ combination; (d) $\sigma^+\sigma^+$ combination

$E_1=29944.84\text{ cm}^{-1}$ 的能级在 $\pi\pi$ 和 $\sigma^+\sigma^+$ 组合下的跃迁强度基本为0;考虑到信号本身的波动,认为 E_1 能级在 $\pi\sigma$ 和 $\sigma^+\sigma^-$ 组合下的跃迁强度基本相等,结合表1可以判断该能级的总角动量量子数 J 为1。 E_1 能级在 $\pi\pi$ 和 $\sigma^+\sigma^+$ 组合下的信号强度仍然较小,这主要是由偏正度不纯导致的。能量 $E_2=30045.09\text{ cm}^{-1}$ 的能级在4种偏振组合下的跃迁强度均不为0,且在 $\sigma^+\sigma^+$ 组合下的跃迁强度最大,在 $\sigma^+\sigma^-$ 组合下的跃迁强度最小,强度比约为5.4:1。由表1可知该能级的总角动量量子数 J 为2,基本符合 $\sigma^+\sigma^+$ 和 $\sigma^+\sigma^-$ 组合下跃迁强度之比的理论值6:1。同理可以得到能量 $E_3=30153.06\text{ cm}^{-1}$ 的能级的总角动量量子数 J 也为2。

3.2 跃迁强度与两步光光振动方向夹角的关系

当两步光为线偏振光,且它们的光振动方向的夹角为 θ 时,跃迁强度为

$$I = I_1 \cos^2 \theta + I_2 \sin^2 \theta, \quad (3)$$

式中: I_1 为 $\pi\pi$ 组合下的跃迁强度; I_2 为 $\pi\sigma$ 组合下的跃迁强度。当跃迁终态的总角动量量子数为1时, $I_1=0, I_2=b$,跃迁强度遵循 $b(1-\cos^2\theta)$ 的规律变化,即: θ 由0变化到 2π 时,跃迁强度从0变化到 b 。当跃迁终态的总角动量量子数为2时, $I_1=4c, I_2=3c$,跃迁强度遵循 $4c(3/4+\cos^2\theta/4)$ 的规律变化,即: θ 由0变化到 2π 时,跃迁强度从 $3c$ 变化到 $4c$ 。

图4(a)~(c)所示分别为实验获得的3个偶宇称高激发态 E_1, E_2 和 E_3 的跃迁强度与两线偏振光光振动方向夹角 θ 的变化关系,其中每个图中的跃迁强度已经按照信号最大值分别进行了归一化处理。可以看到,实验结果与理论拟合结果吻合得比较好,这充分证明了偏振光谱技术对复杂的Sm原子也是适用的。

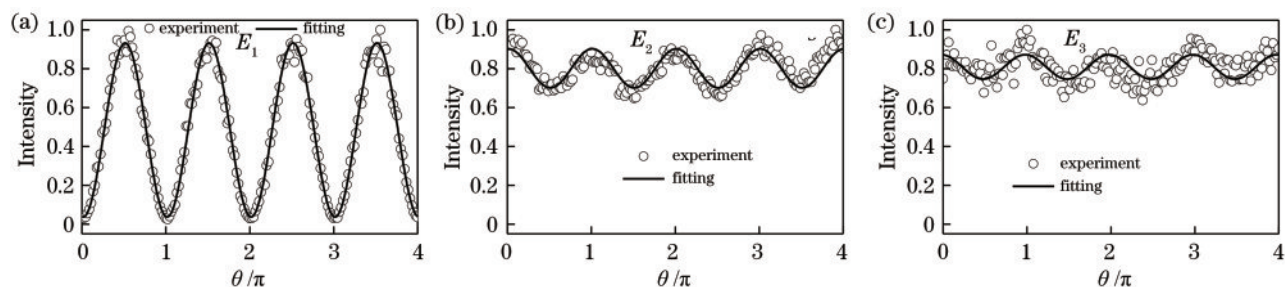


图4 偶宇称高激发态 E_1, E_2, E_3 的跃迁强度与 θ 的关系。(a) E_1 ; (b) E_2 ; (c) E_3

Fig. 4 Relationship between transition intensity of even-parity highly excited states(E_1, E_2 , and E_3) and θ . (a) E_1 ; (b) E_2 ; (c) E_3

4 结 论

本文采用双色两步激发和光电离技术,对Sm原子在 $29930\sim 30280\text{ cm}^{-1}$ 能域内总角动量量子数 J 取值为0、1、2的偶宇称高激发态进行了研究,探测到了3个偶宇称高激发态。通过改变两步光的偏振状态,获得了4种不同偏振组合下的光谱,结合偏振选择定则对其进行对比分析,确定了这些能级总角动量量子数 J 的值,并通过改变两线偏振光光振动方向的夹角,研究了偶宇称高激发态跃迁强度与该角度之间的关系,进一步确认了偏振光谱技术对复杂Sm原子的适用性。这为通过更复杂的三步光偏振激发Sm原子到更高能域甚至自电离能域奠定了良好的基础,也为Sm原子奇偶同位素的选择性激发与识别乃至分离创造了必要条件。

参 考 文 献

[1] Bokor J, Freeman R R, Cooke W E, et al. Autoionization-pumped laser[J]. Physical Review Letters,

1982, 48(18): 1242-1245.

- [2] Zhang Z G, Persson A, Li Z S, et al. Lifetime measurements in Gd II and Gd III using time-resolved laser spectroscopy[J]. The European Physical Journal D, 2001, 13(3): 301-304.
- [3] Beutel V, Krämer H G, Bhale G L, et al. High-resolution isotope selective laser spectroscopy of Ag₂ molecules[J]. The Journal of Chemical Physics, 1993, 98(4): 2699-2708.
- [4] Niki H, Kuroyanagi T, Horiuchi Y, et al. Laser isotope separation of zirconium for nuclear transmutation process[J]. Journal of Nuclear Science and Technology, 2008, 45(6): 101-104.
- [5] Rath A D, Kundu S. Determination of isotope shifts IS (235U, 238U) of odd parity levels of U I at $\sim 4\text{ eV}$ using RIMS[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2019, 234: 20-23.
- [6] Bokhan P A, Fateev N V, Kim V A, et al. Isotope-selective laser excitation and field ionization of the $nF_{5/2}$ Rydberg states in a thallium beam[J]. Laser Physics, 2013, 23(5): 055702.

- [7] Sahoo A C, Mandal P K, Shah M L, et al. Enhancement of photoionization by applying polarization-based common level excitation scheme for the selective photoionization of odd isotopes of samarium[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2019, 235: 7-14.
- [8] Seema A U, Mandal P K, Rath A D, et al. New even-parity high-lying levels of Sm I and measurement of isotope shifts by two-color resonance ionization mass spectrometry[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2014, 145: 197-204.
- [9] Jia L J, Jing C Y, Zhou Z Y, et al. Studies of high-lying even-parity levels of Sm I: energies and isotope shifts[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 1993, 10(8): 1317-1320.
- [10] Rath A D, Kundu S, Ray A K, et al. Total angular momenta of high-lying odd levels of U I at ~ 4 eV using resonance ionization laser polarization spectroscopy[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2018, 206: 328-332.
- [11] Kupliauskienė A, Kerevičius G, Borovik V, et al. The energy structure and decay channels of the $4p^6$ -shell excited states in Sr[J]. *Journal of Physics B*, 2017, 50(22): 225201.
- [12] Zhang W, Palmeri P, Quinet P, et al. Radiative-lifetime measurements and calculations of odd-parity highly excited levels in Ba I[J]. *Physical Review A*, 2010, 82(4): 042507.
- [13] Wang Q, Wang S, Kang Z H, et al. Experimental branching fractions, transition probabilities and oscillator strengths of some levels in Ba I[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2017, 199: 89-92.
- [14] Haq S U, Kalyar M A, Rafiq M, et al. Oscillator strength measurements of the $5s6s\ ^1S_0 \rightarrow 5snp\ ^1P_1$ Rydberg transitions of strontium[J]. *Physical Review A*, 2009, 79(4): 042502.
- [15] Elizarov A Y, Cherepkov N A. Two-photon polarization spectroscopy of autoionizing states[J]. *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, 1989, 69(4): 1224-1230.
- [16] Li C H, Budker D. Polarization-dependent photoionization cross sections and radiative lifetimes of atomic states in Ba I[J]. *Physical Review A*, 2006, 74: 012512.
- [17] Yi J H, Lee J, Kong H J, et al. Autoionizing states of the ytterbium atom by three-photon polarization spectroscopy[J]. *Physical Review A*, 1995, 51(4): 3053-3057.
- [18] Schmitt A, Bushaw B A, Wendt K, et al. Determination of the ^{154}Sm ionization energy by high-precision laser spectroscopy[J]. *Journal of Physics B*, 2004, 37(8): 1633-1644.
- [19] Martin W C, Zalubas R, Hagan L, et al. Atomic energy levels: the rare-earth elements[R]. [S.l.]: National Bureau of Standards, 1978.
- [20] Seema A U, Rath A D, Mandal P K, et al. Polarization-based isotope-selective two-color photoionization of atomic samarium using broadband lasers[J]. *Applied Physics B*, 2015, 118(3): 505-510.
- [21] Sahoo A C, Mandal P K, Shah M L, et al. Effect of magnetic field on isotope-selective photoionization of atomic samarium using polarized lasers[J]. *Journal of Physics Communications*, 2017, 1(5): 055010.
- [22] Zhao H Y, Dai C J, Guan F, et al. Photoionization spectra of an Sm atom with stepwise excitation[J]. *Journal of Physics B*, 2009, 42(6): 065001.