

少数铯原子的选择性激光探测

张祖仁 李兆霖 冯宝华 李士杰
(中国科学院物理研究所)

提 要

本文报道了用激光选择性探测少数铯原子的共振双光子电离实验,铯原子的光电离达到了完全饱和,每一个激光脉冲探测到的原子数为 5.3×10^4 。

使用一台可调频染料激光器完成了铯原子的共振双光子电离,第一个光子使 Cs 原子从基态 $6^2S_{1/2}$ 激发到 $7^2P_{1/2}$ 能级,第二个光子使 Cs 原子电离。

本实验采用自建的消磁灯泵浦的脉冲染料激光强迫振荡器,输出线宽为 0.5 \AA , 波长 4593 \AA , 能量为 300 mJ , 脉宽 $2 \mu\text{s}$, 激光束被聚焦到原子束池中,能量密度始终保持大于 1 J/cm^2 , 电离后的离子电子对由静电计检测。

为了与实验值比较,假设对一个简易的计算模型进行了理论计算,实验值与理论值很好地符合。

一、引 言

利用调频激光技术探测少数原子(以及少数分子或基团)是激光光谱学中近年才形成和发展起来的一个新领域。由于它具有很高的探测灵敏度和选择性以及很高的时间和空间分辨率,使得它在基础研究和应用科学技术研究方面都有着十分广阔的前景^[1]。它可用来研究极少数原子的扩散过程,验证泊松(Poisson)统计的结论,研究诸如核裂变、光化学反应等突发事件中产生的中间产物及其物理性质,以及探测罕见粒子如太阳-中微子(solar-neutrino)和新的超重元素等。另外,在激光光谱学中可以通过少数原子的选择性探测来研究原子能级上的布居、光离化截面、激发截面、谱线线型、多普勒加宽和碰撞加宽等^[2]。

所谓“少数原子”是指浓度极低的原子,甚至低到每立方厘米中只有一个原子。在传统的光谱分析、化学分析和其它分析方法中,传统的光谱分析方法灵敏度是较高的,但也只有 $10^8/\text{cm}^3$ ^[3]。本文报道了使用共振电离光谱(RIS)技术,以较简单的装置选择性地探测少数铯原子的实验结果,灵敏度可达每个激光脉冲探测出 5.3×10^4 个铯原子(相当于 $5.8 \times 10^5/\text{cm}^3$),这样高的探测灵敏度可以开展许多激光光谱学方面的工作。

二、原理及饱和电离条件

本实验使用一台自制的蓝色波段的可调频脉冲染料激光器,调频到铯原子 $6^2S_{1/2} \sim 7^2P_{1/2}$ 跃迁的共振激光波长 4593 \AA 处。激光束的光子把基态铯原子共振激发到 $7^2P_{1/2}$ 能级。该能级的激发能(2.70 eV)大于电离能的一半,因此,同样能量 $h\nu$ 的光子足以使处于激

发态 $7^2P_{1/2}$ 的铯原子发生电离。

为了准确地探测少数原子,要求在激光脉冲作用结束时,在激光束与原子束相互作用区内的全部铯原子都被离化,即达到饱和电离状态。因此饱和离化条件成为我们关注的问题。离化过程与离化所涉及的原子能级的性质有关。从图 1 可以看出,由 $7^2P_{1/2}$ 态所产生的弛豫过程是相当复杂的。

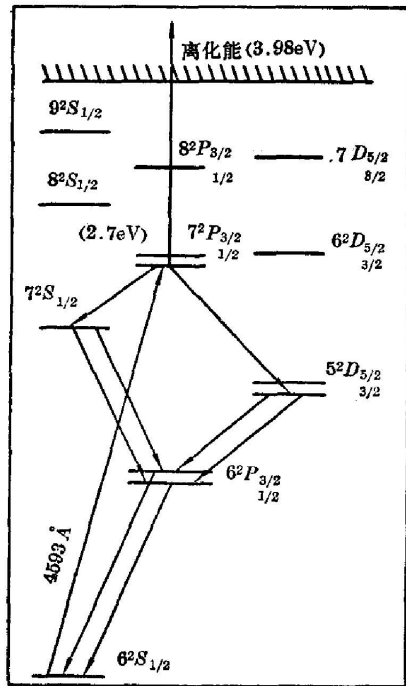


图 1 铯原子能级示意图
Fig. 1 Schematic diagram energy-level of Cs atom

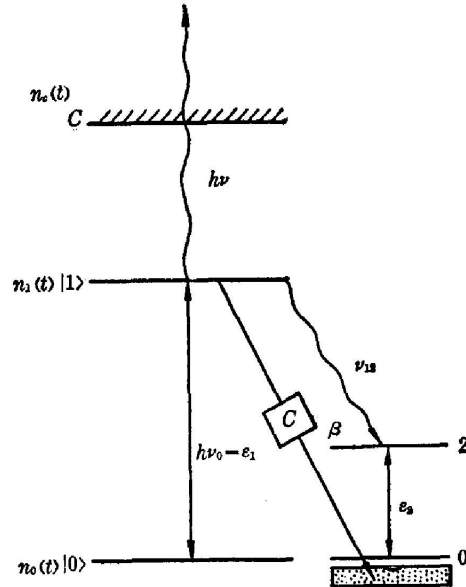


图 2 简化的共振二光子电离过程示意图

图中 $\epsilon_2 + h\nu = \epsilon_c$ 且 $\epsilon_1 + h\nu = \epsilon_c$; γ_{12} 表示自发辐射衰减速率, β 表示态 $|1\rangle$ 由于化学反应引起的衰减速率, $n_0(t)$, $n_1(t)$ 和 $n_c(t)$ 分别表示基态 $|0\rangle$ 激发态 $|1\rangle$ 的原子数以及离子数

Fig. 2 Schematic diagram of the simplified two-photon resonance ionization process

Where $\epsilon_2 + h\nu = \epsilon_c$ and $\epsilon_1 + h\nu = \epsilon_c$; γ_{12} represents the decay rate of spontaneous decay, β represents the decay rate of state $|1\rangle$ due to chemical reaction, $n_0(t)$, $n_1(t)$ and $n_c(t)$ represent the number of atoms in the ground state $|0\rangle$ and the excited state $|1\rangle$ and the number of ions respectively.

为了讨论方便起见,考虑如图 2 所示的简化能级示意图中的电离过程。假定中心频率为 ν_0 , 一定带宽的激光功率足以使 $|0\rangle$ 态和 $|1\rangle$ 态间的吸收和受激发射跃迁的速率远大于 $|1\rangle$ 态的电离速率、由 $|1\rangle$ 态向 $|2\rangle$ 态的自发辐射速率以及 $|1\rangle$ 态原子碰撞衰减的衰减速率的总和(此假定在实验中不难满足)。这样, $|0\rangle$ 态和 $|1\rangle$ 态将处于准平衡状态,并满足关系式 $n_1(t) = (g_1/g_0)n_0(t)$ 。令 $n_{01}(t)$ 表示 $n_0(t) + n_1(t)$, 以 $\sigma_1(\nu)$ 表示 $|1\rangle$ 态在频率 ν 处的光电离截面, 并假定频率为 ν 的激光脉冲在脉宽 τ 的时间内提供恒定的光子通量 $\dot{\phi}$ 。根据图 2 和前述假设可以列出粒子数 $n_{01}(t)$ 的速率方程^[4]为

$$-\frac{dn_{01}(t)}{dt} = \sigma_1(\nu)\dot{\phi}n_1(t) + \gamma_{12}n_1(t) + \beta n_1(t) \tag{1}$$

由此方程可以解出脉冲激光结束时离化的原子数 $n_c(\tau)$ 为

$$n_c(\tau) = \frac{\sigma_1(\nu)\dot{\phi}n_0(t)}{\sigma_1(\nu)\dot{\phi} + \gamma_{12} + \beta} \{1 - \exp[-(\sigma_1(\nu)\dot{\phi} + \gamma_{12} + \beta)g'\tau]\}, \tag{2}$$

其中 n_0 为激光作用前的基态原子数, $g' = g_1/(g_0 + g_1)$, g_0 , g_1 分别为基态 $|0\rangle$ 和激发态 $|1\rangle$ 的统计权重。为了达到饱和和电离必须要求满足下述二条件:

$$\sigma_1(\nu)\phi \gg \gamma_{12} + \beta; \quad g'\sigma_1(\nu)\phi\tau \gg 1, \quad (3)$$

(3) 式表明为了要达到饱和和电离, 不仅要求脉冲激光功率足够高, 还要有相当大的脉宽, 使得其激光能量密度足以将被作用的原子全部电离。对于原子池真空度为 10^{-6} torr, 波长 4593 \AA , 脉宽 $\tau = 2 \mu\text{s}$ 的情况, 算得饱和电离所需的激光能量密度约为 $1 \text{ J}/\text{cm}^2$ 。

三、实验装置及实验结果

实验装置如图 3 所示。饱和和电离条件要求必须具有足够大的能量和功率密度的激光。此外, 为保证第一步共振饱和和激发, 要求此激光可在 4593 \AA 附近调频, 且要有足够窄的激光线宽。实验使用天津试剂所的香豆素-4 染料, 研制了一台蓝色波段的可调频脉冲染料激光器(在图 3 中给出了其主要元件参数), 在染料克分子浓度为 $5 \times 10^4 M$ 时(溶剂为无水乙醇)获得了能量大于 300 mJ 、脉宽 $2 \mu\text{s}$ 、线宽 0.5 \AA 的激光输出, 调频范围 $4550 \text{ \AA} \sim 4620 \text{ \AA}$ 。上述指标很好地满足了实验要求。

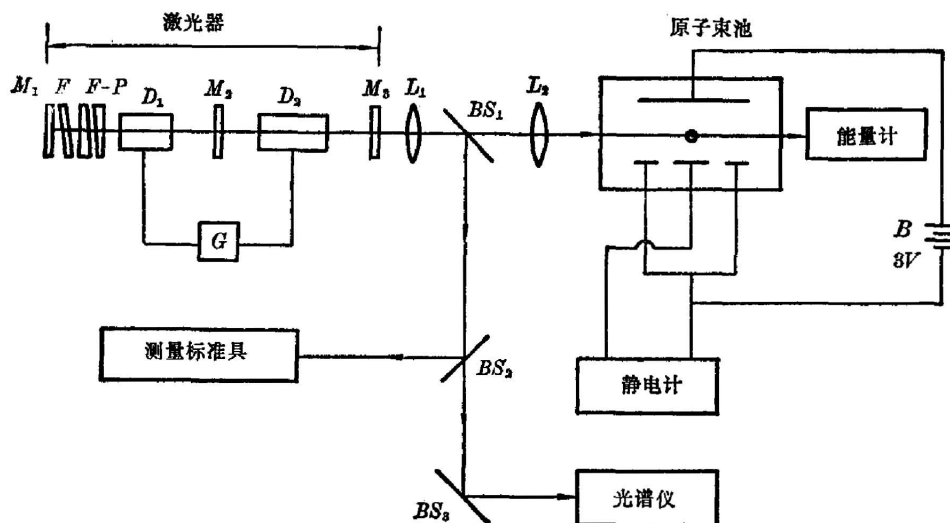


图 3 铯原子探测的实验装置

M_1, M_2, M_3 —平面镜, 反射率分别为 $R_1=100\%$, $R_2=90\%$ 和 $R_3=50\%$; D_1, D_2 —染料池; F —干涉滤光片; $F-P$ —法布里-珀罗标准具; L_1, L_2 —透镜; BS_1, BS_2, BS_3 —分束器; G —触发器

Fig. 3 Experimental setup for Cs atom detection

M_1, M_2, M_3 —plane mirrors, reflectivity $R_1=100\%$, $R_2=90\%$ and $R_3=50\%$ respectively; D_1, D_2 —dye cells; F —interference filter; $F-P$ —Fabry-Perot etalon; L_1, L_2 —lenses; BS_1, BS_2, BS_3 —beam splitters; G —trigger

聚焦到原子束池(如图 4 所示)中的激光束直径为 0.24 cm 。在原子束池后用能量计监测激光能量, 用棱镜光谱仪监视激光波长, 并以铯光谱灯作波长标准, 用标准具测量激光线宽和精确测量激光波长的相对变动, 以 FH-56 型静电计检测电离信号。

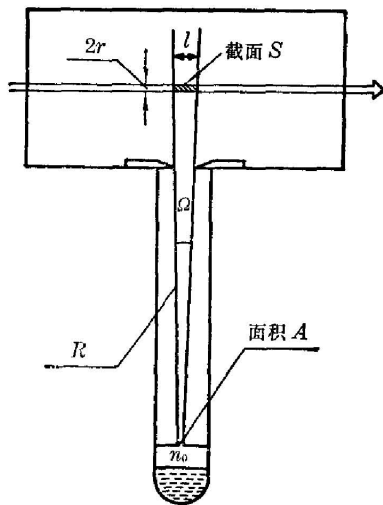


图 4 原子束装置简图

Fig. 4 Schematic diagram of the atomic beam arrangement

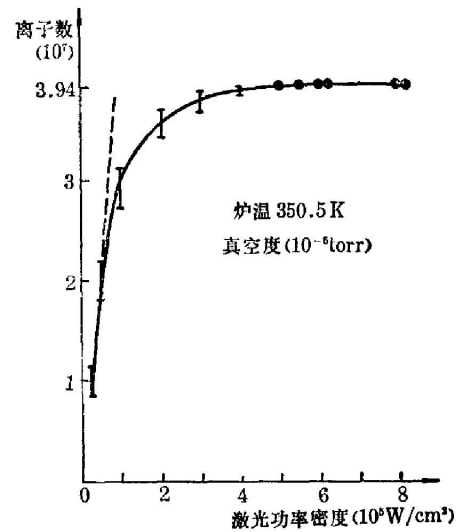


图 5 铯原子共振双光子电离饱和曲线

Fig. 5 Saturation curve of the resonance two-photon ionization of Cs atoms

当激光器调频到 4593 \AA 时, 用上述装置观察到了明显的共振电离信号, 在共振波长处测得的共振双光子电离的饱和曲线示于图 5 中。由图 5 可以看出, 当激光功率密度达到 $5.5 \times 10^5 \text{ W/cm}^2$ 时, 铯原子的光电离信号完全达到饱和。此时, 能量密度为 1 J/cm^2 , 在较低的激光功率密度下, 图形近似为一直线, 整个曲线为指数形状。直线的延长线并不通过坐标原点, 这可解释为在更低的激光功率密度下第一步激发将达不到饱和, 电离的原子数与 ϕ 的关系较复杂, 已不是简单的直线关系。由图 5 还可看到当激光功率密度达到饱和值以后, 测量得到的信号离散性很小, 数据几乎完全一致, 而在未饱和和部分离散性则大得多, 这主要是由于在不饱和的情况下, 脉冲激光器的不稳定性表现出较大的影响所造成。然而, 进一步改善脉冲激光器的不稳定性在目前是比较困难的, 这就是必须在饱和条件下进行测量的原因之一; 而更主要的是, 只有在实验中达到饱和或超过饱和的功率密度和能量密度下测量到的电离信号, 才是代表被作用的真实原子数。因为只有在这样的条件下, 电离的量子产额才接近于 1。少数铯原子探测实验正是在这样的条件下进行的。为了降低原子浓度, 可以把铯源温度降低到 15°C 真空度为 10^{-6} torr (脉宽 $2 \mu\text{s}$) 的条件下, 在共振波长处用静电计进行测量。在该真空原子束池系统中, 当没有原子束射出而只有激光脉冲作用时, 静电计指示为零, 因此可以认为, 在激光与原子束相互作用时, 在原子束系统中电极上所收集到的电荷全部是铯原子电离后的正负离子对, FH-56 静电计的输入电阻为 $10^9 \Omega$, 连接电缆和输入电容之总和 $C = 21 \mu\mu\text{f}$, 电压值为 0.4 mV , 测得的电量 $Q = CV = 8.4 \times 10^{-15} \text{ coulomb}$, 即在每次脉冲作用下探测到的铯原子数 $N_{\text{Cs}} = Q/e = 5.3 \times 10^4$ (e 为电子电量), 这相当于作用区原子浓度为 $5.8 \times 10^5 / \text{cm}^3$, 重复五次测量的结果完全一致。

四、原子数的计算

为了与测得的原子数的实验结果进行比较, 对原子数假设一个简单的计算模型进行理

论计算。在本实验中,不能简单地按照原子束理论计算流量的方式来计算被激光作用的原子数,这是因为激光脉冲很短,在脉冲期间原子移动的距离可能小于光束直径的缘故。例如在 15°C 时饱和原子的平均速度约为 $2 \times 10^4 \text{cm/sec}$, 在 $2 \mu\text{s}$ 的激光脉冲期间,原子只移动 0.04cm , 它小于激光束直径 0.24cm , 为此,应该认为被激光作用的原子数目 N 是作用区(激光束和原子束重合的部分)中的原子数 N_1 和在激光脉冲期间通过作用区的原子数 N_2 的总和。

如图 4 所示,显然它是底圆半径为 r , 高为 l 的圆柱体。设作用区与铯源的距离为 R , $R \gg l$, $R \gg r$ 。铯原子从原子浓度为饱和蒸汽压浓度 n_0 的小室通过面积为 A 的小孔射出,原子速度为与铯源温度 T 相应的平均速度 \bar{v} 。根据原子束理论,在 Δt 的时间间隔内,通过 S 面所张立体角 $\Omega = S/4\pi R^2$ 的任一截面的原子数目可以表示为

$$N_{\bar{v}, \Delta t} = n_0 A \bar{v} \Delta t S / 4\pi R^2, \quad (4)$$

$N_{\bar{v}, \Delta t}$ 也可以理解为被立体角 Ω 所截的厚度为 $\bar{v} \cdot \Delta t$ 的小块球壳内的原子数。因此,在作用区处厚度为 $2r$ 的这样的球壳内的原子数应为

$$N_{2r} = n_0 A 2r S / 4\pi R^2, \quad (5)$$

由于 $R \gg r$ 和 $R \gg l$, 所以 $2rS$ 近似等于这小块球壳的体积, 故作用区处的原子平均浓度为

$$n(R) = n_0 A / 4\pi R^2, \quad (6)$$

由于 $r \ll R$, 且 $2rS$ 很小, 可以认为 $2rS$ 小体积内各处原子浓度相等。作用区圆柱体的体积 $V = \pi r^2 l$, 因此,

$$N_1 = n(R) \cdot V = n_0 A r^2 l / 4R^2. \quad (7)$$

在脉宽 τ 内通过作用区的原子数为

$$N_2 = n_0 A (2r l \bar{v} \tau / 4\pi R^2). \quad (8)$$

由(7)和(8)式我们得到

$$N = \frac{n_0 A l r}{4\pi R^2} (\pi r + 2\bar{v} \tau), \quad (9)$$

其中 $n_0 = P/kT$, $\bar{v} = (8BT/\pi M)^{-1/2}$ 。 P 是铯原子的饱和蒸汽压, T 为铯源的绝对温度, B 为气体常数, M 为铯的克原子量。在实验中, $A = 0.049 \text{cm}^2$, $l = 1.63 \text{cm}$, $r = 0.12 \text{cm}$, $R = 9.5 \text{cm}$, $T = 288 \text{K}$, $P = 4.753 \times 10^{-7} \text{mmHg}$, $\tau = 2 \mu\text{s}$ 。代入(9)式计算结果 N 为 6.2×10^4 /脉冲, 这相当于被测空间原子密度为 $6.9 \times 10^5/\text{cm}^3$ 。计算结果与实验值很好地符合。

五、结 论

从实验中可以看出,满足饱和条件对少数原子的激光探测是十分重要的,它既保证了探测的准确性,又大大减少了测量的离散性。在本实验中完全达到并超过了饱和所需的能量密度 1J/cm^2 , 而 Hurst^[4] 的工作能量密度仅达到 200mJ/cm^2 , 故只有 95% 的原子被离化。

本实验采用的原子探测系统是抽真空的原子束 Stark 池,并用静电计检测电离信号。静电计的探测灵敏度是有限的,实验证明,该装置在探测数量级大于每脉冲 10^4 原子数时是成功的。它有利于克服原子池的窗片的污染,大大减低了噪声,提高了探测灵敏度。

少数原子的激光探测是一个较复杂的过程，特别是对具有较复杂的原子能级的原子更是这样，本实验是国内开展这方面工作的初步尝试，已测得每一激光脉冲 10^4 原子数，这样的探测灵敏度使得开展以少数原子探测为基础的许多激光光谱工作成为可能，并为今后探测单个原子打下了基础。

这项工作是在张志三教授指导下进行的。

参 考 文 献

- [1] В. И. Балыкин, Г. И. Бекон и др.; *УФН*, 1980, **132**, №. 2, 293.
- [2] G. S. Hurst, M. G. Payne *et al.*; *Rev. Mod. Phys.*, 1979, **51**, No. 4 (Oct), 767.
V. S. Letokhov; *Opt. & Laser Technol.*, 1978, **10**, No. 4 (Aug), 175.
- [3] F. C. M. Coolen *et al.*; *J. O. S. A.*, 1974, **64**, No. 4 (Apr), 482.
- [4] G. S. Hurst, M. H. Nayfeh *et al.*; *Phys. Rev. (A)*, 1977, **15**, No. 6 (Jun), 2283.

Selective detection of ultra-low concentration of atomic cesium by laser radiation

ZHANG ZUREN LI ZHAOLIN FENG BAOHUA AND LI SHIJIE

(*Institute of Physics, Academia Sinica, Beijing*)

(Received 22 June 1981, revised 25 February 1982)

Abstract

The two-photon resonance ionization experiment for the detection of ultra-low concentration of atomic cesium is described. Complete saturation of photoionization was achieved. The number of atoms detected with each laser pulse was measured to be 5.3×10^4 .

By using a tunable dye laser we have achieved the two-photon resonance ionizations the first photon excited cesium atom from ground state $6^2S_{1/2}$ to the excited state $7^2P_{1/2}$, and the second photon ionized the excited cesium atom.

In this experiment we have used a home-made ablating-wall flashlamp pumped pulsed dye laser forced oscillator, the output linewidth was 0.5 \AA , wavelength 4593 \AA , pulse energy 300 mJ, and pulse width $2 \mu\text{s}$. The laser beam was focused to the region where atomic beam interacted with it. The energy density in this region was always kept greater than 1 J/cm^2 . The ionized ion-electron pair was detected by the electrometer.

The experimental value was compared with a theoretical calculation which gave a simple calculation model. The experimental results agreed very well with the theoretical calculations.