

钠原子的饱和三步共振光离化

厚美英 张祖仁 冯宝华 余永柏 韩全生 米忠路
(中国科学院物理研究所)

提 要

本文报道了用一个火花隙同时能发两台独立调谐的染料激光器(复合腔式、闪光灯泵浦)实现对钠原子(3S—3P—4D)三步共振饱和和光电离,并对饱和跃迁情况下的系统速率方程进行了近似的解析解,与实验测得的电离曲线很好地符合,同时测量了电离激光束波长为5890Å时的4D态电离截面, $\sigma_{4D} = (1.2 \pm 0.4) \times 10^{-18} \text{cm}^2$,并进行了电离截面的理论估计,与实验值较好地符合。

近年来由于原子束技术与可调谐激光器的发展,使得原子激发态能级有选择的布居成为可能,因而实现原子激发态的多光子电离,测量电离截面等的研究成为越来越感兴趣的课题。这方面的实验一般均局限于测量第一或第二激发态电离截面。或者着重于用一台激光器作多光子离化的研究。用两台以上激光器作多步共振光离化实验的工作,由于在实验技术上比较复杂,报道得较少。M. Lambropoulous 等人^[1]曾用两台闪光灯泵浦的染料激光器观察了钠的 $3S_{1/2}-3P_{3/2}-5S_{1/2}$ 三步共振光离化信号的共振线型。P. B. Hogan 等人^[2]用两台能量密度为 0.7J/cm^2 闪光灯泵浦的染料激光器观察了钠 $3S_{1/2}-3P_{1/2}-4D_{5/2}$ 三步共振光离化过程中的 a. c. Stark 分裂。A. V. Smith 等人^[3]用两台连续稳频单模染料激光器和一台 YAG 激光器对钠原子的 4D 态及 3S 态的电离截面进行了绝对测量。本文报道了用较简单的实验手段,实现钠原子 $3S_{1/2}-3P_{3/2}-4D_{3/2,5/2}$ 三步共振饱和和光离化实验。

一、理论估计

钠原子三步共振光离化的相关能级示于图1。假设激光以 W_1 的速率将原子由基态 $3S_{1/2}$ 激发到 3P 态,以 W_2 的速率将原子由 3P 态激发到 4D 态,由 4D 态电离的速率为 F ,由 4D 态弛豫到 3P 态的弛豫速率为 Γ_2 ,到 4P 态的弛豫速率为 Γ'_2 ,3P 态到基态的弛豫速率为 Γ_1 ,假设由于碰撞或其它化学反应所引起的损耗速率 $\beta \approx 0$,并且由于 $\Gamma'_2 < \Gamma_2 \ll W_2$,4P 态布居可忽略,则系统的速率方程可表为

$$\frac{dn_{3S}}{dt} = -W_1(n_{3S} - [g_0 n_{3P}/g_1]) + \Gamma_1 n_{3P}, \quad (1)$$

$$\frac{dn_{3P}}{dt} = W_1(n_{3S} - [g_0 n_{3P}/g_1]) - W_2(n_{3P} - [g_1 n_{4D}/g_2]) + \Gamma_2 n_{4D} - \Gamma_1 n_{3P}, \quad (2)$$

$$\frac{dn_{4D}}{dt} = W_2(n_{3P} - [g_1 n_{4D}/g_2]) - \Gamma_2 n_{4D} - F n_{4D}, \quad (3)$$

$$\frac{dn_I}{dt} = F n_{4D}, \quad (4)$$

其中 n_i 为离子数密度。在 $W_1 \gg W_2 \gg \Gamma_1, \Gamma_2, F$ 的情况下,3S 态,3P 态与 4D 态的布居数密度为平衡分布,由(1)、(2)和(3)式可得

$$n_{3S} \approx (g_0/g_1) n_{3P}, \quad (5)$$

$$n_{3P} \approx (g_1/g_2) n_{4D}, \tag{6}$$

其中 g_0, g_1 和 g_2 分别表示 $3S, 3P$ 和 $4D$ 态的统计权重。由(5)式和(6)式得总原子数

$$n_0(t) = n_{3S} + n_{3P} + n_{4D} \approx (g_0 + g_1 + g_2) n_{4D} / g_2 \equiv (g')^{-1} n_{4D}. \tag{7}$$

由(1) + (2) + (3)得

$$dn_0(t)/dt = -F n_{4D} = -F g' n_0(t). \tag{8}$$

解(8)式得

$$n_0(t) = n_0(0) \exp(-g' F t). \tag{9}$$

因此离子数密度 n_I 等于

$$n_I(t) = n_0(0) [1 - \exp(-g' F t)]. \tag{10}$$

由(10)式, 在 $g' F T \gg 1$ 时(T 为激光脉冲作用时间), 离子数密度将等于作用区内原子数密度, 饱和电离成为可能。

电离速率 F 等于电离截面 σ 与光子通量 $\dot{\phi}$ 的乘积。欲估计电离速率值, 首先必须对截面 σ 做一理论估计。

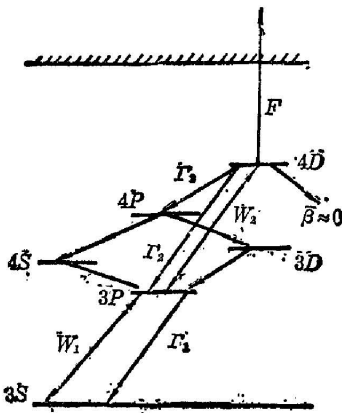


图 1 钠原子相关能级简图

Fig. 1 Diagram of relevant levels of Na atom

由偶极近似公式, 假设 ψ_0 与 ψ_f 为原子在吸收光子 $h\nu$ 之

前和之后的波函数, 初始态和终态除了跃迁电子外, 其余 $(N-1)$ 个电子的波函数完全相同, 而且跃迁电子的波函数为相等于初态的有效中心势的本征函数, 则对于由 nl 能级跃迁, 产生动能为 ϵ 自由电子的电离跃迁截面可简化为^[4]:

$$\sigma_{nl}(\epsilon) = 4\pi\alpha a_0^2 (\epsilon - \epsilon_{nl}) \cdot (C_{l-1} R_{l-1}^2 + C_{l+1} R_{l+1}^2) / 3, \tag{11}$$

其中 $\alpha = 1/137$, 为精细结构常数, $a_0 = 5.29 \times 10^{-9}$ cm, 为玻尔半径, ϵ 为电子动能, ϵ_{nl} 为 nl 能级电子的电离能, $R_{l\pm 1}$ 为径向偶极长度矩阵元

$$R_{l\pm 1} = \int_0^\infty P_{nl}(r) r P_{\epsilon, l\pm 1}(r) dr, \tag{12}$$

其中 $P_{nl}(r)$ 和 $P_{\epsilon, l\pm 1}(r)$ 为初态与终态的径向波函数。式(11)中 $C_{l-1} = l(2l+1)$, $C_{l+1} = (l+1)/(2l+1)$ 。由 G. Peach^[5], 对(12)式直接做数值积分给出的光电离截面一般公式, 我们对钠原子 $4D$ 态的电离截面求近似解, 结果示于图 2。Peach 的一般公式可以使我们在比较大的电子动能范围内对于电离截面的变化有较好的估计。由图 2 的计算结果可得相对于激光波长

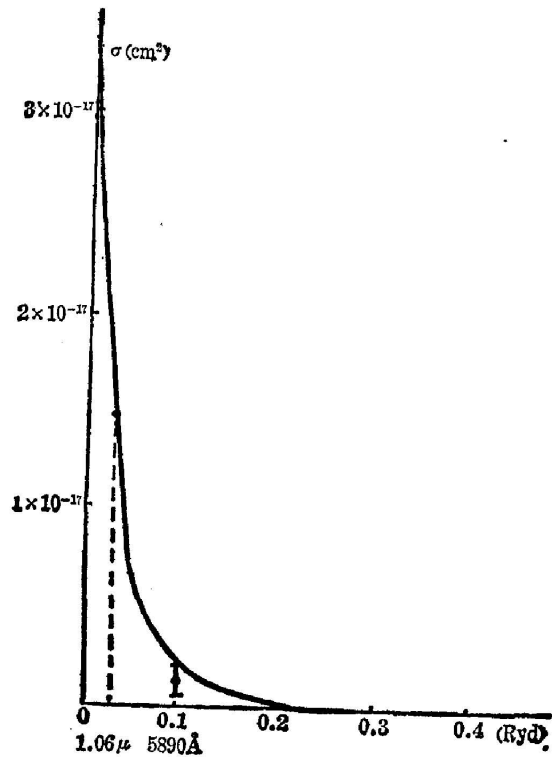


图 2 钠原子 $4D$ 态的电离截面随电子动能变化的理论估计

Fig. 2 Theoretical estimate of the ionization cross-section of Na $4D$ state as a function of the kinetic energy of electron

为 5890 \AA 时的电离截面 $\sigma_{\text{ion}}(5890 \text{ \AA}) \approx 2.1 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ (电子动能 $\epsilon = hc/\lambda - \epsilon_{\text{nl}}$)。曲线中在激光波长为 $1.06 \mu\text{m}$ 处的电离截面约为 $1.5 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$, 与 A. V. Smith^[3] 的计算与实验值均符合得很好。

因此由估计的电离截面, 在脉冲宽度 $T = 2 \mu\text{s}$ 的实验条件下, 欲达到饱和电离, ϕ 必须满足

$$\phi \gg 1/g'\sigma T \approx 4 \times 10^{23} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1} = 1.3 \times 10^5 \text{ W/cm}^2. \quad (13)$$

满足(13)式时, $W_1 = \phi\sigma_1 \gg 10^{12} \text{ sec}^{-1}$, 在图 1 中 $\Gamma_1 \approx 10^8 \text{ sec}^{-1}$, $\Gamma_2 \approx 10^7 \text{ sec}^{-1}$, 所以在达到(13)式条件时, 选择适当的激光光强, 在解(1)~(3)式速率方程中, 很容易满足所作的假设 $W_1 \gg W_2 \gg \Gamma_1, \Gamma_2, F$ 。

二、实验装置

为了达到两台激光器同步输出, 并能具有足以使钠原子饱和和电离的脉冲能量密度, 我们采用了由一个火花隙同时触发的两台独立调谐复合腔式壁消融灯泵浦的染料激光器, 如图 3 所示。 M_1, M_2 和 M_3 分别为输出镜, 复合腔耦合镜和全反镜。使用反射率分别为 50% 和 70% 的耦合镜, 半宽度为 35 \AA , 透射率 65% 的干涉滤光片和反射率为 50%, 间距 0.1 mm 的空气间隙标准具, 在 R6G 和 R560 染料的浓度分别为 8×10^{-5} 和 $1 \times 10^{-4} \text{ mol}$ 浓度时, 得到激光最大输出能量分别为 500 mJ 和 150 mJ , 脉宽分别为 $2.5 \mu\text{s}$ 和 $2 \mu\text{s}$, 线宽分别为 1.2 \AA 和 0.7 \AA 的两束激光脉冲, 输出最大能量与非复合腔调频结构的输出相比增加 3 到 4 倍。使用一个火花隙触发两台闪光灯, 测得两输出激光脉冲之间的时间差不超过 $0.2 \mu\text{s}$, 很好地满足了同步输出的要求。

如图 3 所示, 两激光束由相反方向入射, 由能量计与光谱仪分别监测其输出能量与光波波长。透镜 L_1 与 L_2 分别将两束激光聚焦于原子作用区, 为使激光强度在作用区体积内均匀分布, 在透镜 L_1 后加一光阑, 选取光束中心分布较均匀的部分聚焦, 束 1 光斑直径为 1 mm , 并使束 2 的光斑直径大于束 1。原子束与激光束成直角相交, 作用区体积由束 1 的光束直径与原子束束阑宽度决定, 束阑宽度为 1 mm 时, 作用区体积 V 等于 $8 \times 10^{-4} \text{ cm}^3$ 。原

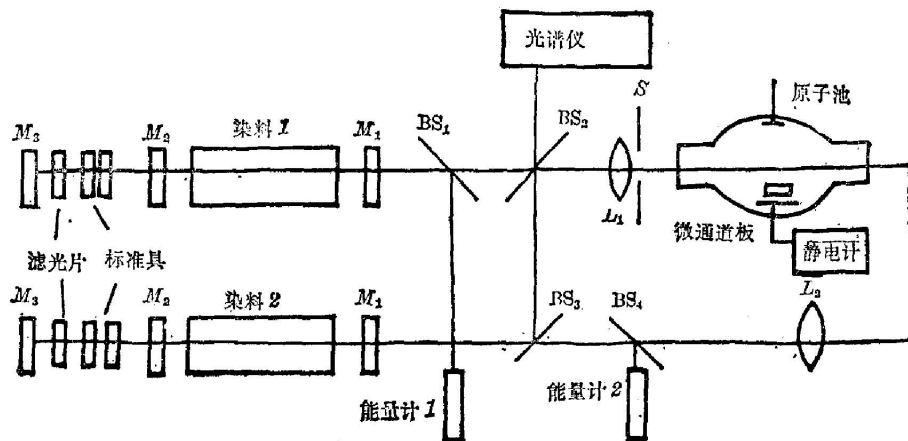


图 3 实验装置简图

Fig. 3 Experimental setup

子束炉温为 350°C , 真空度保持在 10^{-6}Torr , 光电离后的自由电子经电场加速后被微通道板接收。在波长 5890\AA 的光子电离下, 光电子获得的运动速度约为 $6 \times 10^7\text{ cm/sec}$, 实验中电子在垂直电场中加速后到达微通道板的时间不超过 6 ns , 假设光电子初速度完全垂直于加速场, 其逃逸距离 $r \approx 6 \times 10^7\text{ cm/sec} \times 6\text{ ns} \approx 0.4\text{ cm}$ 。微通道极有效直径为 18 mm , 因此可假设所有产生的自由电子均被微通道板接收。经增益 10^8 的放大电流信号, 由收集板收集后经静电计测读。

三、实验结果

在激光束 1 和 2 的能量密度分别为 255 mJ/cm^2 和 35 mJ/cm^2 , 激光线宽分别为 0.7 \AA 和 0.4 \AA 时, 固定其中一束的波长在共振位置上, 对另一束波长扫描时, 分别在 5890 \AA 与 5688 \AA 附近测得共振曲线, 如图 4(a) 和 (b) 所示。从图中可以看出, 共振曲线的半值全宽度都超过相应的扫描激光线宽, 共振线型偏离劳伦兹线型并且为非对称型, 这是由于多光子共振效应、激光功率加宽效应以及激光本身宽度影响所致, 将另文讨论。

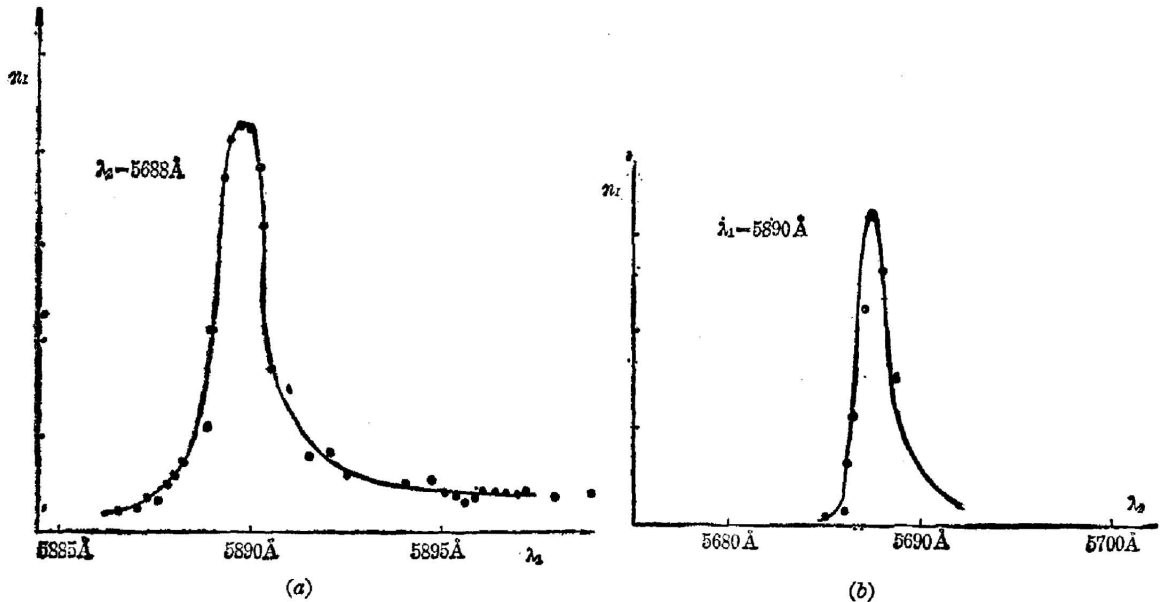


图 4 束 1 和 2 的共振线型

Fig. 4 Resonance profile between beams 1 & 2

图 5 给出了当激光束 2 的能量密度为固定值时的激光束 1 的饱和电离曲线, 由 $4D$ 能级自发辐射所能及的能级除了 $3P$ 态以外, 只有 $4P$ 能级态 $4P$ 原子可经 $4S$ 态或 $3D$ 态回到 $3P$ 能级再参予循环, 由于 $3P$ 以上的相关能级原子均可由吸收束 1 或束 2 的光子被电离, 因此在饱和电离曲线中, 束 1 与束 2 对电离均有贡献, 而且电离信号除了来自 $4D$ 能级的粒子外, 还可来自 $4S$ 、 $3D$ 和 $4P$ 能级。由图 5(a) 与 (b) 的比较, 可以看出在束 1 的饱和电离曲线中束 2 的贡献, 图 5(a) 对应于束 2 能量密度为 280 mJ/cm^2 时电离信号对激光束 1 能量密度的关系, 图 5(b) 对应于束 2 能量密度 27 mJ/cm^2 时信号与束 1 能量密度的关系。曲线 a 在较低的束 1 能量密度下即已达饱和。由于自发辐射速率 (Γ_1 、 Γ_2 、 Γ'_2) 比起受激跃迁和吸收

速率(W_1, W_2)小很多,原子基本上都布居在 $3S$ 、 $3P$ 和 $4D$ 能级,因此来自 $4S$ 、 $3D$ 和 $4P$ 态的电离可以忽略不计。在图 5(b) 的实验条件下, $\phi_1 \gg \phi_2$, 可以进一步假设束 2 对电离的贡献可忽略不计, 此时对应于(10)式的饱和曲线 b 与实验数据点符合得很好, 对应的截面值与取交叉点的方法(即取低能量密度时的直线近似 $n_i(T) \sim n_0(0)g'\sigma\phi T$ 与饱和 $n_i(T) \sim n_0(0)$ 的直线交点求得 $\sigma \sim 1/g'\phi T$) 所得的截面值比较, 误差不大于 10%。由图 5(b) 得 $\sigma_{4D}(5890 \text{ \AA}) = (1.2 \pm 0.4) \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ 。与理论值的比较示于图 2, 实验值与理论值符合得较好。

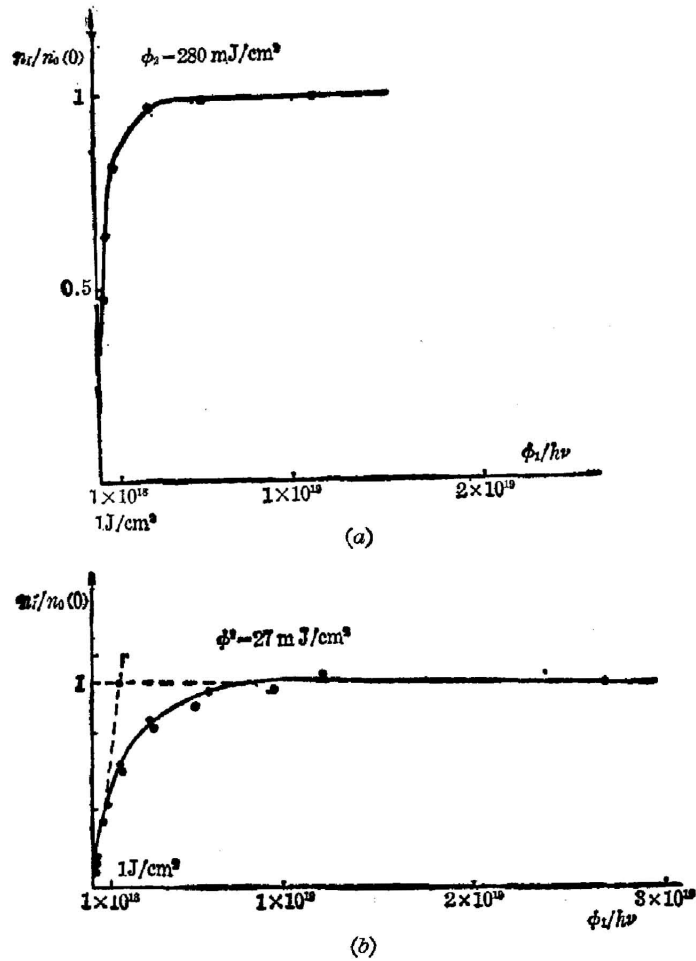


图 5 与束 2 能量密度不同时, 束 1 的饱和电离曲线
 Fig. 5 Saturated ionization curves of beam 1 at different values of energy density of beam 2; (a) 280 mJ/cm²; (b) 27 mJ/cm²

四、讨 论

多步共振光电离实验, 由于激发过程中至少经过一个束缚-束缚态的跃迁, 选择性较高, 同时由于在共振态之间激发态跃迁或电离, 故较易达到饱和, 对于周期表上大部分元素均可适用。因此它可被用来对原子(分子)进行高选择性、高灵敏度的探测^[6, 7], 以及用来测量与研究元素的高激发态或自电离态的能级结构以及电离截面等。

由饱和曲线来测量电离截面的方法比用等离子体或电子碰撞的方法要简便得多,它不需对电离数密度进行绝对定标。实验的误差可能来自激光能量的起伏、能量绝对测量的误差、作用区体积测量的误差以及激光束在空间与时间上的非均匀分布等。改进这些实验条件,可改进实验误差到5%以内^[3]。

参 考 文 献

- [1] M. Lambropoulos, S. E. Moody *et al.*; *Eull. Amer. Phys. Soc.*, 1973, **18**, No. 11 (Nov), 1514.
- [2] P. B. Hogan, S. J. Smith *et al.*; *Phys. Rev. Lett.*, 1978, **41**, No. 4 (Jul), 229.
- [3] A. V. Smith, J. E. M. Goldsmith *et al.*; *Phys. Rev. (A)*, 1980, **22**, No. 2 (Aug), 577.
- [4] M. Aymar, E. Luc-Koenig *et al.*; *J. Phys. (B): Atom. Molec. Phys.*, 1976, **9**, No. 8 (Jun), 1279.
- [5] G. Peach; *Mem, R, Astr. Soc.*, 1967, **71**, No. 1 (Jan), 13.
- [6] 张祖仁等;《光学学报》,1982, **2**, No. 6 (Nov), 535.
- [7] S. Mayo, T. B. Lucatoro *et al.*; *Analy. Chem.*, 1982, **54**, No. 3 (Mar), 553.

Saturated three-photon ionization of Na atoms

HO MEIYING ZHANG ZHURENG FONG BAOHUA SE YONGBO HAN QUANSHENG AND MI ZHONGLU
(*Institute of Physics, Academia Sinica*)

(Received 18 January 1985)

Abstract

Synchronized by being triggered with the same spark gap, two independently tunable flashlamp-pumped dye lasers with compound cavity structure were used to obtain saturated doubly resonant (3S—3P—4D) three-photon ionization of sodium. Rate equations of such a system under the condition of saturated transitions were analytically solved. Comparison of the calculated ionization curve with experimental results gave good correspondence. The ionization cross section of sodium 4D state has been measured from the curve at laser wavelength 5890 Å, $\sigma_{4D}(5890 \text{ Å}) = (1.2 \pm 0.4) \times 10^{-18} \text{ cm}^2$. It is in good agreement with the theoretical calculation, which is also given in this article.