

利用三能级光谱技术研究 ^{235}U 的高激发态超精细结构

熊夏幸 李世芳 沈一菁 景春阳 胡企铨 林福成

(中国科学院上海光学精密机械研究所)

提 要

本文报道用两台连续激光级联共振的方法,测量了 ^{235}U 的 $0 \rightarrow 16900 \rightarrow 33625 \text{ cm}^{-1}$ 跃迁的超精细光谱结构,给出了 33625 cm^{-1} 能级的超精细结构常数 A 、 B , 从而给出一种测量难熔、有毒金属高激发态能级结构的简单且精确的方法。

关键词: 三能级光谱技术, 铀同位素, 高激发态超精细结构, 超精细结构常数。

一、引 言

铀元素的光谱参数,对铀同位素分离工程具有重大意义。为此,许多实验室进行了研究工作,如 Carlson 等^[1]、Blaise 等^[2]和 Miron 等^[3]分别在原子束装置上用脉冲激光对 ^{238}U 的能级位置,包括高激发态能级位置进行了测量。本文改进了铀蒸汽源,并用三能级光谱技术,实现了 ^{235}U 高激发态超精细光谱结构的测量,给出了 33625 cm^{-1} 能级的 A 、 B 常数。

二、原 理

在研究铀光谱时,可以把铀原子看成一个三能级系统,如图 1 所示。对 ^{235}U 而言,由于核自旋 $I=7/2$,每个精细结构能级(如 $|0\rangle$, $|1\rangle$, $|2\rangle$)都有 8 个超精细能级结构^[4]

$$\left. \begin{aligned} E(J, F) &= E_0(J) + \frac{1}{2} A(J)C(F) + B(J)D(F), \\ C(F) &= F(F+1) - I(I+1) - J(J+1), \\ D(F) &= \frac{3C(F)[C(F)+1] - 4I(I+1)J(J+1)}{8I(2I-1)J(2J-1)} \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

式中 $E_0(J)$ 为不计核与电子相互作用时的能级, A 、 B 为该能级的超精细结构常数。一般而论,原子在中间态 $|1\rangle$ 的布居数很小,所以很难用一束激光将原子直接激发到 $|2\rangle$ 。为此, Hackel 等^[5]提出在原子束装置中用宽带激光先将原子从 $|0\rangle$ 激发到所有 $|1\rangle$ 态的子能级,再用另一束窄带激光(ω_2)作选择激发到 $|2\rangle$ 的各子能级。所以当扫描 ω_2 时,就能得到所有 $|1\rangle$ 到 $|2\rangle$ 跃迁的超精细结构谱。此法优点是一次就可获得整个谱线结构,但光谱的标识却

存在极大的困难。

众所周知,三能级光谱是一种超高分辨率光谱学方法^[6]。对类似图 1 的能级结构,若存在两个激光场 ω_1, ω_2 , 当 $\omega_1 \sim \omega_{10}, \omega_2 \sim \omega_{21}$ 时,就会产生 $|0\rangle$ 到 $|2\rangle$ 的跃迁,跃迁强度为^[7]

$$W_{0 \rightarrow 2} = \frac{2|V_{10}V_{21}|^2}{(\gamma_1/2)^2 + \Omega^2} \operatorname{Re} \left\{ \frac{1}{\gamma_2} \frac{1}{[(\gamma_2/2) + i(\Omega' + \Omega)]} + \frac{1}{\gamma_1} \frac{1}{[(\gamma_1 + \gamma_2)/2] + i\Omega'} \right. \\ \left. + \frac{1}{\{[(\gamma_1 + \gamma_2)/2] + i\Omega'\}[(\gamma_2/2) + i(\Omega' + \Omega)]} \right\}, \quad (2)$$

式中 V_{10}, V_{21} 分别为 $|0\rangle \rightarrow |1\rangle, |1\rangle \rightarrow |2\rangle$ 跃迁的矩阵元,

$$\Omega = \delta_1 = \omega_1 - \omega_{10}, \quad \Omega' = \delta_2 = \omega_2 - \omega_{20}$$

分别为两激光场的失谐量, γ_1, γ_2 分别是 $|1\rangle$ 态和 $|2\rangle$ 态的弛豫速率。在多普勒速率分布下,

$$\Omega = \omega_1 - \omega_{10} + k_1 v, \quad \Omega' = \omega_2 - \omega_{20} \pm k_2 v$$

(正号为两光场同向传播,负号为逆向传播)。

不难验证,若两光场在多普勒展宽介质中反向传播,且 $k_1 \cong k_2$ (本实验中此条件存立),则 $W_{0 \rightarrow 2}$ 在所有速度的原子求和后,其在 $\delta_1 + \delta_2 = 0$ 处达到最大,幅度与 $\exp(-\delta_1^2/\Delta\nu_D)$ ($\Delta\nu_D$ 为多普勒频宽)成正比,这是因为 ω_1 只激发了满足 $\delta_1 + k_1 v = 0$ 的速度群的原子,在这些原子的静止坐标系中, ω_2 的有效失谐量为 $\delta_2 - k_2 v = \delta_2 + \delta$, 只有当 $\delta_1 + \delta_2 = 0$ 时才会有有效的跃迁,而 $k_1 v = -\delta_1$ 速度的原子数正比于 $\exp(-\delta_1^2/\Delta\nu_D^2)$ 。

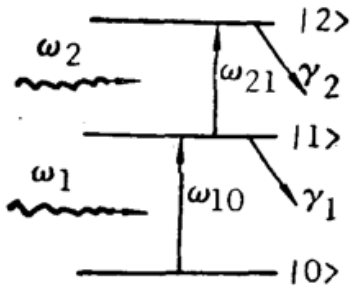


Fig. 1 Three-level model for Uranium atom

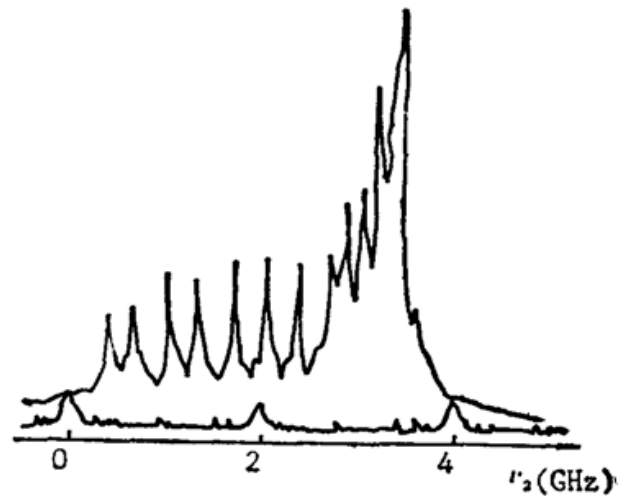


Fig. 2 Hyperfine structure of $0 \rightarrow 17361 \rightarrow 34087 \text{ cm}^{-1}$ transition for ^{235}U with fixed W_1

实验中,固定 ω_1 , 扫描 ω_2 , 对于不同的 $F_0 \rightarrow F_1 \rightarrow F_2$ 的跃迁,只要 ω_1 与第一级跃迁偏离不太大,在 $\omega_1 + \omega_2$ 与某一 $F_0 \rightarrow F_2$ 跃迁共振时就会有光谱出现。因此在同一 ω_1 所作的光谱图中可以有若干条不同 $F_0 \rightarrow F_2$ 的谱线*, 如图 2 所示,这样就可以精确地测量不同跃迁的频率差异,而不受激光 ω_2 扫描重复频率不好的限制;同时,随着 ω_1 的变化,同一 $F_0 \rightarrow F_2$ 的光谱可以出现多次,并在 ω_1 与 $F_0 \rightarrow F_1$ 共振时达到最大,根据这时的 ω_1 值和对第一级跃迁超精细光谱结构的了解,就可以知道 ω_1 所对应的第一级跃迁的 F_0, F_1 值,并进而确定上能级的总角动量量子数 F_2 , 这样就可简化谱线的标识工作。

* 事实上我们曾在同一谱图上测到过 11 条谱线。

三、实验装置

实验装置如图 3 所示, 由铀原子蒸气、激光光源、激光频率检测及荧光信号测量系统等四个部分组成。

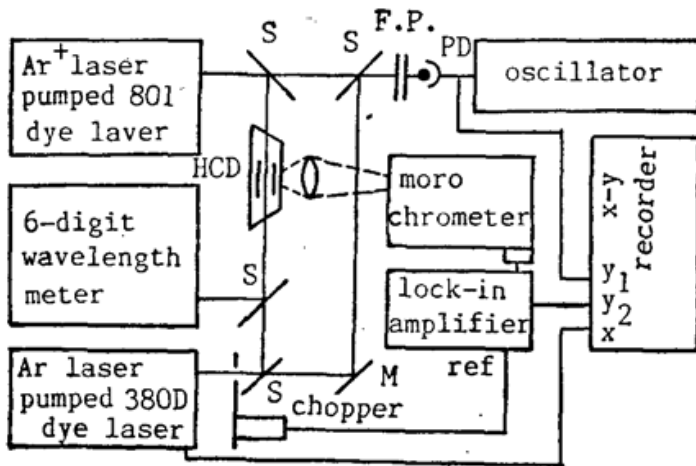


Fig. 3 Experimental setup

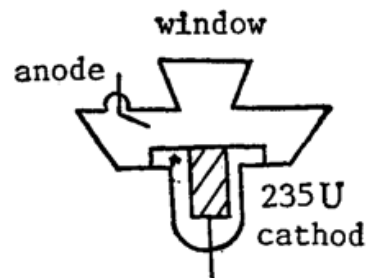


Fig. 4 ^{235}U hollow cathode lamp

铀蒸气由自制的空心阴极灯中放电溅射获得, 空心阴极灯的示意图如图 4 所示。其缓冲气体为 Kr, 气体气压为 1 Torr, 放电电压为 400 V, 电流 10 mA。

激光光源由两台 Ar^+ 激光器泵浦的单纵模环形染料激光器组成。第一级泵浦用 801 B 型染料激光*, 单纵模输出功率为 140 mW, 线宽 10 MHz, 在腔内装有可调谐标准具, 用以选择激光在不同的腔模输出, 腔模间隔 200 MHz。激光频率由自由光谱区为 2 GHz 的扫描干涉仪及第一级荧光监视。第二级激光 ω_2 用 Spectra Physics 公司生产的 380D 型环形染料激光器, 线宽小于 1 MHz, 30 GHz 连续可扫描, 其频率由 Burleigh 公司生产的 6 位数字波长计及法布里-珀罗监视, 并同时输入 x-y 记录仪的 y_1 笔进行频率标定。

实验中 $|0\rangle \rightarrow |2\rangle$ 的跃迁是通过测量 $|2\rangle$ 的感生荧光 ($\lambda_f = 4430 \text{ \AA}$) 完成的, 荧光信号通过单色仪, 由光电倍增管接收并由锁相放大器放大后输入 x-y 记录仪的 y 笔。锁相参考信号由斩波器提供, 其频率约为 160 Hz。

四、结 果

在上述实验装置上, 测量了基态 $0 \rightarrow 16900 \rightarrow 33625 \text{ cm}^{-1}$ 跃迁的高分辨率光谱, 得到如图 5 所示的光谱。其中 a, b, c... 谱分别是第一级泵浦频率 ν_1 (即 $\omega_1/2\pi$), 从低频到高频每次变化两个腔模, 即增加约 400 MHz 所得到的光谱。

从图 5 的谱图中可以看到, 当 ω_1 从低频变到高频时, 从图 5 的 a 谱图开始出现第一个谱峰 A' , 随 ν_1 每增加 400 MHz, A' 出现的位置就向低端移动约 400 MHz 以满足

$$\nu_1 + \nu_2 = (E_2 - E_0)/h_0.$$

据此可以在不同的谱图中找到相同跃迁的谱峰, 也可以确认新的谱峰, 以及谱峰强度随 ν_1

* 中国科学院长春光学精密机械研究所生产。

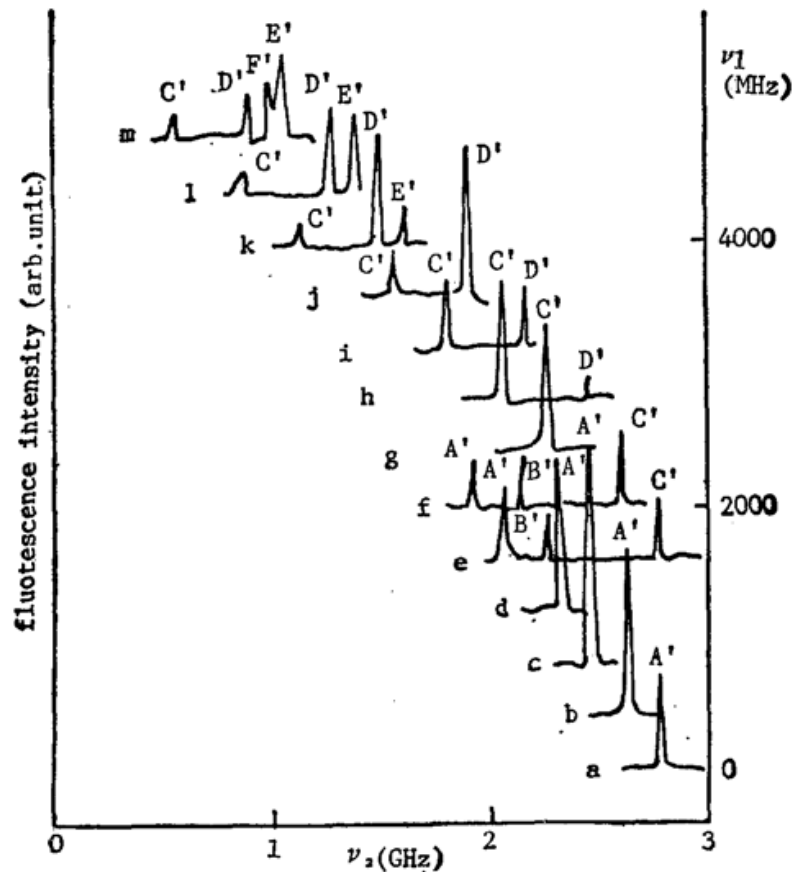


Fig.5 Hyperfine structure spectra of $0 \rightarrow 16900 \rightarrow 33625 \text{ cm}^{-1}$. a, b, c, \dots are spectra for ν_1 increasing with every step of 400 MHz

不同的变化情况。另外, A' 峰在图 5 的 c 谱图达到最大。

由文献[4]知, $0 \rightarrow 16900 \text{ cm}^{-1}$ 跃迁的超精细结构中, 频率最低的是 $(19/2) \rightarrow (21/2)$ 的跃迁(约为真空波长 5916.98 \AA), 频率增加约 800 MHz 后是 $(19/2) \rightarrow (19/2)$ 跃迁增加了 1.6 GHz 后是 $(17/2) \rightarrow (19/2)$ 跃迁, ……等等。

显然图 5 中的 A' 峰对应的第一级跃迁是 $(19/2) \rightarrow (21/2)$, 所以 A' 峰为 $(19/2) \rightarrow (21/2) \rightarrow (19/2)$ 级联共振跃迁。

在图 5 的 e, f 两谱图中, 除了 A' 峰之外, 还出现了 B', C' 峰。 B' 峰在图 5 的 g 谱图中消失, 而 C' 达到最大。因此, 根据相应的 ν_1 值, 可以确定 B' 峰和 C' 峰对应的第一级跃迁为 $(19/2) \rightarrow (19/2)$ 和 $(17/2) \rightarrow (19/2)$ 。

文献[5]可知, 在超精细光谱结构中 $\Delta F = \Delta J$ 的光谱线比较强, 所以可确定 B', C' 所对应的跃迁为 $(19/2) \rightarrow (19/2) \rightarrow (17/2)$ 和 $(17/2) \rightarrow (19/2) \rightarrow (17/2)$, 因为 $0 \rightarrow 16900 \rightarrow 33625 \text{ cm}^{-1}$ 跃迁为 $J=6 \rightarrow J=7 \rightarrow J=6$ 。

用同样的方法还可以标定出 D', E', F' 等谱的上下能级 F 数, 结果见表 1。

表 1 的第三行, 是实验测得的谱线相对频率, 已知 ^{235}U 基态的超精细结构常数

$$A_0 = 59 \text{ MHz}, B_0 = 4.1 \text{ GHz},$$

用(1)式及最小二乘法, 得到 33625 cm^{-1} 能级的 A, B 常数

$$A_2 = -97 \text{ MHz}, B_2 = 1326 \text{ MHz}.$$

为了检验谱线标识的正确性和谱线频率测量的精确度, 用所得到的 A_2, B_2 常数计算了

Table 1 Analysis of Fig. 5

mark	A'	B'	C'	D'	E'	F'
upper level F_2	19/2	17/2	17/2	15/2	13/2	11/2
lower level F_0	19/2	19/2	17/2	15/2	13/2	11/2
measured frequency ν_i (MHz)	0	478	1306	1994	2259	2218
calculated frequency ν_i^i (MHz)	0	469	1298	2000	2258	2208

谱线相对频率,并列于表 1 的第四行,结果是令人满意的。

本文的实验表明,用放电溅射获得难熔金属、有毒金属蒸气源,是一种较为简单且有效的方法。用连续激光的三能级光谱方法,可以进行原子高激发态高分辨率光谱的研究,并对诸如超精细结构的测量等,具有标识方便,测量精确等优点。

参 考 文 献

- [1] L. R. Carlson, J. A. Paisner *et al.*; *J. O. S. A.*, 1976, **66**, No. 8 (Aug), 846.
- [2] J. Blaise, L. J. Radziemski; *J. O. S. A.*, 1976, **66**, No. 7 (Jul), 644.
- [3] E. Miron, R. David; *J. O. S. A.*, 1979, **69**, No.12(Feb), 256.
- [4] S. Gerstenkorn, P. Luc *et al.*; *J. Phys.*, 1973, **34**, No. 3 (Mar), 805.
- [5] L. A. Hackel, C. F. Bender *et al.*; *J. O. S. A.*, 1979, **69**, No. 2 (Jan), 230.
- [6] V. P. Chebotayev; «*High Resolution Laser Spectroscopy*», Topics in Applied Physics, Vol. 13 ed by K. Shimoda (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1976).
- [7] V. S. 莱托霍夫, V. P. 契勃塔耶夫; «非线性激光光谱学», (科学出版社,北京,1984), 第五章。

Hyperfine structure of highly-lying levels of Uranium 235 using TLS method

XIONG XIAXING, LI SHIFANG, SHEN YIQING JING CHUNYANG, HU QIQUAN, AND LIN FUCHENG
(Shanghai Institute of Optics & Fine Mechanics, Sinica Academia)

(Received 8 March 1989; revised 27 March 1990)

Abstract

It is of practical importance for investigating the hyperfine structure of highly-lying energy levels of Uranium 235. We have measured the hyperfine structure of transition 0-16900-33625 $1/\text{cm}$, using double resonance method with two CW lasers. The hyperfine structure constants A and B are also given. Thus a simple and precise method is provided for measuring highly-lying energy level structure of refractore and poisonous metals.

Key words: TLS(Three-Level Spectroscopy) method; Uranium isotope; hyperfine structure of highly-lying levels; hyperfine structure constants.