

用激光感生荧光法测量亚稳态原子寿命*

瞿佳男 周志尧 朱利洲 罗才雁 林福成

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

提 要

本文用激光感生荧光法(LIF)分析了 Gd 原子亚稳态能级 215 cm^{-1} , 533 cm^{-1} , 999 cm^{-1} 在原子束中的速度分布。由原子束轴线上两不同点上的亚稳态原子速度分布的变化得到了亚稳态原子的寿命。理论分析和实验结果表明这是一种简单、灵敏并且有效的亚稳态原子寿命测量方法。

关键词: 激光感生荧光, 能级寿命。

一、引 言

传统的束箔飞行时间(TOF)技术很早就用于测量寿命为 10^{-6} s 以下的亚稳态离子寿命^[1,2],最近发展的离子陷阱技术可通过观察离子的辐射弛豫过程来测量长寿命的亚稳态离子寿命^[3,4]。虽然这些工作仅限于对简单离子的研究,但是实验值与理论值符合得很好。目前对中性原子亚稳态寿命的研究还局限于简单的碱金属和惰性气体,而实验工作大部分是在未消除背景气体的放电灯或热管炉中进行,测量的寿命比实际寿命短(因为存在气体碰撞)^[5~8]。1980年 Posternuck 等人在原子束中用 LIF 法结合 TOF 技术来测量 Ca 原子亚稳态能级的寿命^[9],但是他们工作中的几个基本假设并没有考虑原子束形成中的非热平衡过程,测量区是从原子束喷口开始的,而在喷口附近不能忽略碰撞过程,并且在此区域还不能形成速度分布稳定的准直原子束。本文提出了一种新的亚稳态原子寿命的测量方法,该方法也是基于 LIF 法和 TOF 技术的结合,但是测量区域远离原子束喷口,可以避免碰撞效应,并且这时原子束才可以认为是稳定的。本文也从理论上分析了这种方法的可靠性。

二、原 理

随着可调谐激光器的发展,用 LIF 方法来探测中性原子是一项很方便的技术。K. Bergman 和 I. V. Hertel 在 70 年代中期同时用连续可调谐激光来诊断 Na_2 束的速度分布^[11,12]。用窄带激光扫描测量了 Na_2 束的整个多普勒频移吸收线型,并且获得了 Na_2 束绝大多数参数。这种方法后来又被用于测量 Zr 原子束的速度分布^[13]。

Bergman 和 Hertel 所用的方法,其原理非常简单。当激光束沿原子束轴向传播时,若考虑多普勒效应,能有效激发以速度 v 运动的原子的激光频率为:

$$\nu_L = \nu_0 \left(1 - \frac{v}{c}\right). \quad (1)$$

收稿日期: 1989年8月15日; 收到修改稿日期: 1991年1月8日

* 本课题由国家自然科学基金资助。

式中 ν_0 和 c 是原子跃迁频率和光速。在光与原子束相互作用的 LIF 探测区所收集的 LIF 信号正比于该区域内的原子密度。因此，扫描激光频率并分析所得 LIF 信号线型，再通过 (1) 式就可能测得原子束的速度分布。

在本文所考虑的条件下，用三能级系统来描述被探测原子是一个很好的近似^[14]。当激光不是非常强时，图 1 中所示原子各能级的激发和弛豫可用下列速率方程组来描述：

$$\left. \begin{aligned} \frac{dn_0}{dt} &= n_1 A_{10} + n_2 A_{20}, \\ \frac{dn_1}{dt} &= -n_1 B_{12} D(\nu) I + n_2 [B_{21} D(\nu) I + A_{21}] - n_1 A_{10}, \\ \frac{dn_2}{dt} &= n_1 B_{12} D(\nu) I - n_2 [A_{21} + A_{20} + B_{21} D(\nu) I]. \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

$$D(\nu) = \frac{\sqrt{1 + \frac{I}{I_s} \cdot \gamma / 4\pi^2}}{(\nu - \nu_L)^2 + \left(1 + \frac{I}{I_s}\right) \cdot \gamma^2 / 16\pi^2} \quad (3)$$

$$N_{LIF} = C \int_0^T (A_{21} + A_{20}) n_2(\nu, t) dt, \quad (4)$$

式中 n_i 是能级 $|i\rangle$ 上的布居几率， I 是激光光强， A_{ij} 和 B_{ij} 分别为自发辐射系数和受激辐射或吸收系数， $D(\nu)$ 是洛仑兹线型， N_{LIF} 是原子进入 LIF 信号收集区域后 T 时刻所收集到的信号。这里考虑到了原子在 LIF 信号收集区域内多次吸收和发射过程^[13]， T 就是原子在收集区的滞留时间。

由于光泵效应的影响，当激光束与原子束轴线绝对重合时，图 1 中 $|1\rangle$ 上的原子将会被泵到 $|0\rangle$ 上，从而使所测寿命短于实际寿命。当探测激光与原子束有一夹角 β 时，这种效应是可以消除的^[11]。这时的 (1) 式将为：

$$\nu_L = \nu_0 \left(1 - \frac{v \cos \beta}{c}\right). \quad (5)$$

图 2 所示即为当激光束与原子束有一夹角 β 时的情况。图 2(b) 给出了图 2(a) 中所示 LIF 观测区原子束截面上原子密度由于光泵效应引起的非对称分布。图 3 给出了在这种情况下对公式 (2) 的求解结果。图中当横坐标为 $T = d/v$ 时，这里 d 为 LIF 信号收集区的宽度， T 是以速度 v 运动的原子在该区域的滞留时间^[13]，图中纵坐标为不同光强时可收集到的 LIF

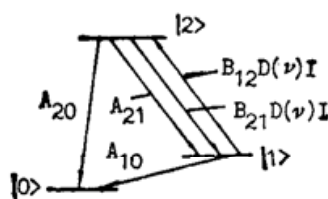


Fig. 1 The exciting scheme of a three-levels atom

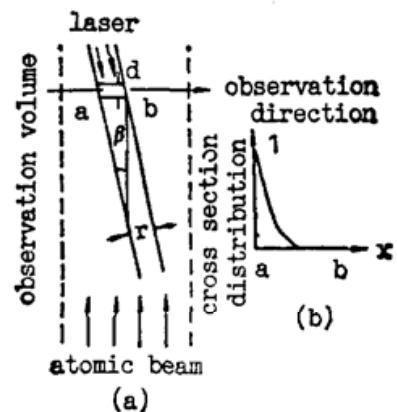


Fig. 2 Principle of LIF signal collecting

信号总和, 即(4)式积分结果。当横坐标为 $T' = \frac{A_{21}X}{\beta v}$ 时, 式 X 中是激光束截面横坐标[见图 2(b)], T' 是描述在 LIF 信号观测区横截面上 X 处以速度 v 运动的原子所受光泵效应的参数。从图 3(a)中可知 X/β 是光泵距离, $X/\beta \cdot v$ 是光泵时间。图 3 给出了由于光泵效应引起的激光束与原子束重叠部分 $|1\rangle$ 原子布居与 T' 的关系。显然, 原子布居在截面上的分布是非对称的。因此, 如果在原子束轴线上相距为 D 的两点同时收集 LIF 信号, 则有:

$$N_{\text{LIF}}^B / N_{\text{LIF}}^A = C' \frac{\int_0^{T'} \int_0^{T_B} \int_{-\infty}^{+\infty} n_2(\nu_L, t) f_B(v) n_1(t') d\nu dt dt'}{\int_0^{T'} \int_0^{T_A} \int_{-\infty}^{+\infty} n_2(\nu_L, t) f_A(v) n_1(t') d\nu dt dt'} \quad (6)$$

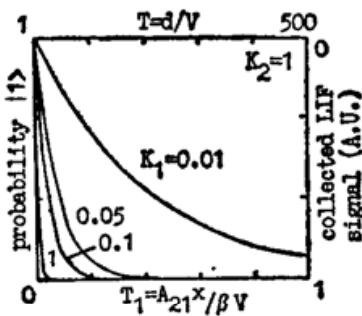


Fig. 3 Calculated results of population distribution in the cross section of laser beam and collected LIF signal of an atom at different residence time in the fluorescence detection area. K_2 and $K_1 = I/I_s$ are branch ratio and saturation coefficient respectively

$$T_{A,B} = d_{A,B}/v, \quad T' = \frac{A_{21}d_L}{\beta \cdot v}.$$

式中 $N_{\text{LIF}}^{A,B}$ 为激光频率为 ν_L 时 A, B 两点收集的 LIF 信号, $f_{A,B}(v)$ 为没有激光作用时 A, B 两点的亚稳态原子速度分布, $d_{A,B}$ 是 A, B 两点收集 LIF 信号区域的宽度, 它取决于收集光学系统。当收集光学系统参数相同(包括成像透镜焦距, 光阑孔径, 及透镜、光阑与原子束相对位置), 则有 $d_A = d_B$ 。即 $T_A = T_B$ 。 d_L 是激光束直径, 多普勒频移线型宽度远大于洛伦茨线型宽度。公式可简化为:

$$G(\nu) = \frac{N_{\text{LIF}}^B}{N_{\text{LIF}}^A} = C' \frac{f_B(v \cos \beta)}{f_A(v \cos \beta)} = C' \exp(-D/\tau \cdot v \cdot \cos \beta). \quad (7)$$

式中 τ 是亚稳态的寿命。由此可见, 只要测得 A, B 两点的 LIF 信号强度, 用(7)式对实验结果拟合, 即可得到亚稳态原子寿命。

三、实 验

实验装置如图 4 所示。实验中原子束是由电子枪加热石墨坩埚中的金属 Gd 样品产生的 Gd 原子蒸气形成的, 原子束由坩埚上方 6 cm 和 8 cm 的两个狭缝准直, 其发散角约 10 mrad, 探测激光与原子束相互作用室的真空度约为 10^{-6} Torr。所用激光光源为一台氙离子激光器泵浦的稳频环形染料激光器(Spectra-Physics Model No. 380 D), 在若丹明 6G 染料可调谐范围内其输出功率为 150~200 mW, 稳频扫描范围和线宽分别为 30 GHz 和 1 MHz。在实验中, 激光束分为与原子束垂直和同轴两束。图 4 中与原子束垂直的激光束产生的 LIF 信号可提供零速度原子共振频率^[11]。另一束激光与原子束成一很小的夹角, 其变化范围由原子束准直孔径和激光束通光光阑决定, 在本实验装置中, 该夹角小于 15 mrad。图 4 中的检偏器和光阑是用于改变探测光强和保持探测光强均匀的, A, B 两点相距为 25 cm, A 点距坩埚为 14 cm, 收集 A, B 两点 LIF 信号的成像系统参数相同。LIF 信号最后进入两只线性响应的光电倍增管, 经两台锁相放大器处理后在三笔记录仪上记录。激光扫描频率

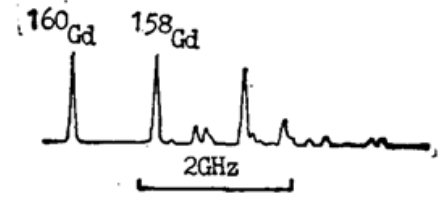
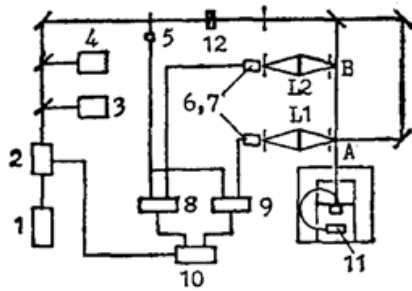


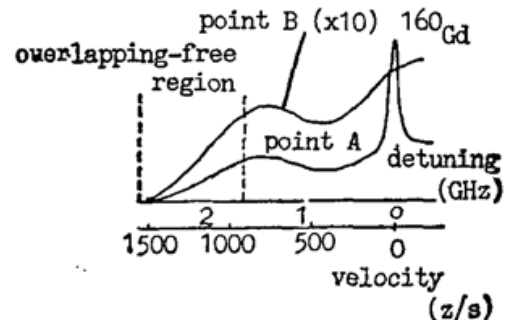
Fig. 4 Experimental set up: 1. Ar ion laser, 2. Single mode frequency stabilized ring dye laser, 3. Wavelength meter, 4. F-P interferometer, 5. Chopper, 6, 7. Photon-multipliers, 8, 9. Lock-in amplifiers, 10. X-Y recorder, 11. Electronic gun, 12. Polarization analyzer

Fig. 5 LIF signal of the probe laser wavelength 57914 nm recorded at point A and B

由 F-P 扫描干涉仪标定,其精度为 10 MHz,绝对波长由波长计确定,精度为 0.001 nm。

天然 Gd 具有 7 个同位素。在原子束装置中已经测量了许多 Gd 原子跃迁在 570~620 nm 范围内的同位素位移和超精细结构^[15,16]。当扫描激光频率时,图 4 中与原子束同轴反向传播的激光束产生的 LIF 信号将是 7 个 Gd 同位素多普勒频率谱的重叠。图 5 是当激光波长在 5791.4 Å 附近扫描所获得的 533~17794 cm⁻¹ 跃迁的高分辨谱图。图 6 给出了 A, B 两点测到的部分该跃迁的多普勒频移谱重叠图。

由于两束激光在 A 点同时与原子束作用,图 6 中 A 点记录的多普勒频移谱是两束激光产生的 LIF 信号的叠加。其中,窄的高分辨峰是垂直于原子束的激光产生的,对应频率是 533~17794 cm⁻¹ 跃迁的固有频率,即零速度原子频率^[11]。从图 5 可知在该跃迁中,¹⁶⁰Gd 和 ¹⁵⁸Gd 同位素位移



为 1.12 GHz,从(1)式可知相应速度为 642.9 m/s。而 ¹⁶⁰Gd 和 ¹⁵⁸Gd 同位素速度比为 0.88:1,因此图 6 中可测量的最大多普勒频移端以内的 1.12 GHz 这一段多普勒频移谱可以忽略其它同位素多普勒频移谱的重叠,认为只是 ¹⁶⁰Gd 产生的。用(1)式转换成速度坐标,即是以 877~1520 m/s 运动的 ¹⁶⁰Gd 533 cm⁻¹ 亚稳态原子产生的多普勒频移谱,不与其他同位素 533 cm⁻¹ 亚稳态原子产生的频移谱重叠。由(7)式对图 6 结果进行最小二乘法拟合,即可得到 533 cm⁻¹ 亚稳态的寿命。同理,将激光调谐至可与亚稳态 215 cm⁻¹ 和 999 cm⁻¹ 相互作用的波长,也可以测得这两个亚稳态的寿命。

Fig. 6 High resolution LIF spectrum of the transition 533 cm⁻¹~17795 cm⁻¹

四、结果分析

图 7 给出了由 A, B 两点测得的多普勒频移 LIF 信号之比和用(7)式对其进行拟合的结果,所得出的 215 cm⁻¹, 533 cm⁻¹ 和 999 cm⁻¹ 三个 ¹⁶⁰Gd 亚稳态寿命是 1.38 ms, 0.70 ms 和 0.28 ms。考虑本文的实验条件,认为以下几个因素可能给实验结果带来误差。

1. 几何光学误差。本文的原子束装置产生的准直原子束发散角为 10 mrad, 探测光束

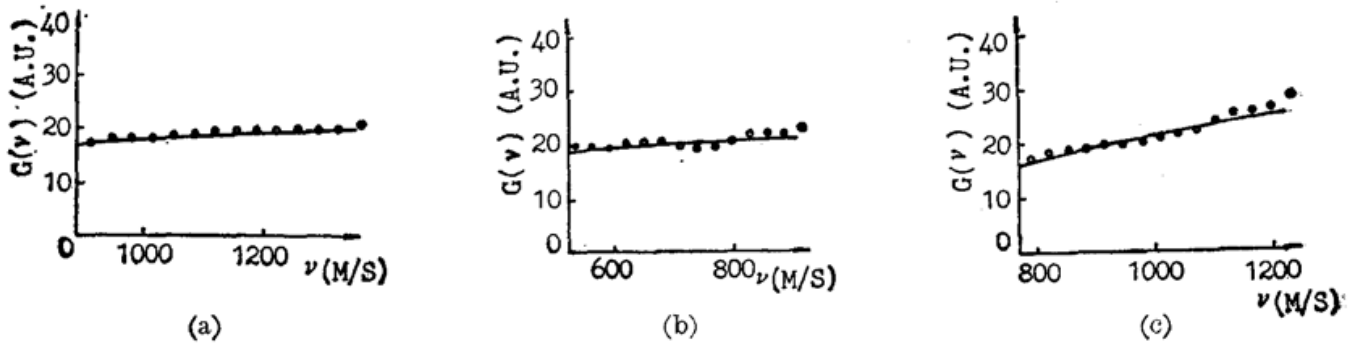


Fig. 7 Curves of $G(v)$ function related to different metastable levels: a. 215 cm^{-1} , b. 533 cm^{-1} , c. 999 cm^{-1} . The full lines represent the fitted results. \circ —experimental results.

与原子束夹角小于 15 mrad , 这两个因素导致的(7)式误差小于 2.5% 。由于 LIF 收集系统产生的从 A 点到 B 点距离误差为 2% , 因此这几项误差总和小于 5% 。

2. 碰撞效应。为检验原子束本身不同飞行速度原子间碰撞引起的测量误差, 在不同原子密度下测量了 533 cm^{-1} 亚稳态的寿命。当改变电子枪加热功率使 LIF 信号增大 6 倍时所测到 533 cm^{-1} 寿命为 0.72 ms , 其误差仅 3% 。因此, 在所用的低密度原子束中碰撞效应是可以忽略的。

3. 拟合误差和功率加宽。由最小二乘法拟合所引起的总体误差小于 5% , 其中对 533 cm^{-1} 亚稳态拟合误差仅 1.7% 。从文献[15]和[16]可知, 当激光强度小于 2 W/cm^2 时所测线宽不超过 50 MHz , 远远小于多普勒频移谱宽度(约 2.5 GHz), 而本文所用探测光强均控制在 500 mW/cm^2 以下。

在本文报道的工作中, 用激光感生荧光法和 TOF 技术相结合测量了 ^{160}Gd 原子 215 cm^{-1} , 533 cm^{-1} 和 999 cm^{-1} 亚稳态的寿命为 1.38 ms , 0.70 ms 和 0.28 ms , 误差小于 10% 。从理论上分析了这种方法的精确性与合理性, 并讨论了各种可能引起的误差。

参 考 文 献

- [1] H. H. Haselton, R. S. Thoe *et al.*; *Phys. Rev. A*, 1975, **11**, No. 2 (Feb), 468.
- [2] S. Schumann, K. S. Gosneveld *et al.*; *Z. Phys. A*, 1979, **239**, No. 3 (Jan), 245.
- [3] M. H. Prior; *Phys. Rev. A*, 1984, **30**, No. 5 (Jun), 3051.
- [4] Oh. Gerz, Th. Hilberath *et al.*; *Z. Phys. D*, 1987, **5**, No. 1 (Jan), 97.
- [5] D. R. Bech, C. A. Nicolaidis; *J. Phys. B*, 1983, **16**, No. 21 (Nov), 627.
- [6] S. M. Galdkov, A. M. Zheltikov *et al.*; *Opt. Spectrosc. (USSR)*, 1989, **65**, No. 6 (Aug), 149.
- [7] V. V. Smirnov, A. A. Mityureva; *Opt. Spectrosc. (USSR)*, 1984, **57**, No. 3 (Sep), 243.
- [8] A. Z. Devdariani, A. L. Zagribin; *Opt. Spectrosc. (USSR)* 1984, **53**, No. 6 (Jun), 752.
- [9] L. Pasternack, D. M. Silver *et al.*; *J. Phys. B*, 1980, **13**, No. 11 (Jun), 2237.
- [10] P. P. Wegener, «*Molecular Beams and Low Density Gasdynamics*», (Marcel Dekker, Inc., New York, 1974).
- [11] K. Bergmann, W. Demtroder *et al.*; *Appl. Phys.*, 1975, **8**, No. 1 (Sep), 65.
- [12] I. V. Hertel, H. Horfmann *et al.*; *J. Phys. E.*, 1975, **8**, No. 7 (May), 65.
- [13] W. Berres, D. Rusbuldt *et al.*; *Appl. Phys.*, 1984, **35**, No. 2 (Oct), 83.
- [14] W. C. Martin, R. Zalubas *et al.*; *Atomic energy levels—the rare earth elements*, Natl. Stand. Ref. Data Ser., Natl. Bur. Stand. (U. S.), Circ. No. 60 (U. S. Gpo, Washington, D. C. 1978).
- [15] H. Niki, T. Miyamoto *et al.*; *Opt. Commun.*, 1989, **70**, No. 1 (Jan), 16.
- [16] 瞿佳男; «博士论文», (中国科学院上海光学精密机械研究所), 1990.

Measurement of Gd atom metastable levels by laser induced fluorescence spectroscopy

QU JIANAN ZHOU ZHIYAO ZHU LIZHOU, LUO CAIYAO AND LIN FUCHENG
(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica 201800)

(Received 15 August 1989; revised 8 January 1991)

Abstract

The atomic beam velocity distribution of Gd atomic metastable levels, 215 cm^{-1} , 533 cm^{-1} and 999 cm^{-1} were measured by means of laser induced fluorescence method. Their lifetimes are deduced from the change of the velocity distributions at two different probe areas along the beam axis. The experimental results show that this is a very simple, sensitive and effective method to measure the lifetime of atomic metastable level.

Key words: laser induced fluorescence; lifetime.

1992 年国际量子电子学会议 (IQEC'92) 预告

第十八届国际量子电子学会议(IQEC'92)将于 1992 年 6 月 14~19 日在奥地利维也纳举行。本次会议的议题为:

1. 激光光谱学; 2. 量子光学; 3. 非线性光学过程; 4. 光与凝聚态物质的相互作用; 5. 超快现象; 6. 激光源物理; 7. 激光应用。

会议要求 35 字摘要和 200~500 字摘要的原件 and 复印件各一份寄: IQEC'92, ICOS Congress Service, Ss Schleifmuhlgasse 1, A-1040 Vienna, Austria-Europe.

截稿日期: 1991 年 12 月 13 日

(守云)