

强磁场下 Cs 原子超精细塞曼能级上的光泵浦研究

吴正华 赵明信 汪盛烈 曾锡之

(中国科学院武汉物理所波谱与原子分子物理重点实验室, 武汉 430071)

摘 要 强磁场中的 Cs 原子有较大的超精细塞曼(Zeeman)分裂, 实验用频率可调谐的窄线宽半导体激光调谐到各超精细塞曼能级上进行光泵浦, 利用稳态吸收谱方法研究了原子的光泵浦。表明基态超精细相互作用的碰撞修正项导致的弛豫跃迁是谱形状和电子自旋极化新特征的根源。同时提出了强场下极化度的一种测量方法。

关键词 超精细塞曼能级光泵浦, 基态碰撞, 电子自旋极化度。

1 引 言

光泵浦方法自从 1950 年 Kastler 首次提出以来, 已在光学和原子分子物理等许多领域得到大量应用。近年来激光光泵浦已成为产生自旋极化的原子样品和自旋极化的离子束的有效方法。产生极化离子束的工作必须在强磁场下进行^[1]。在核磁共振谱仪的磁场中光泵浦 Cs 原子并通过自旋交换产生核自旋极化的惰性气体 ^{129}Xe , 极大地提高了稀薄 ^{129}Xe 的核磁共振信号^[2], 从而为稀薄气体的核磁共振研究提供了有效方法。但强磁场下的激光光泵浦中, 对碱金属原子的研究还局限于平均极化度的测量等少量工作^[3, 4]。作者用窄线宽激光研究了强磁场下铯原子的非热平衡布居分布和自旋极化。与低场下的光泵浦工作和高磁场下宽线宽光源光泵浦工作相比^[11], 作者用扫频吸收谱的方法清楚地表现了粒子数分布, 极化与基态碰撞相互作用及核自旋磁量子数的关系。磁共振谱无疑是测量原子的电子角动量和核角动量之间及外磁场的相互作用的基本方法^[5], 但该方法由于探测效率而受到最小数目($\sim 10^{18}$)原子数的限制, 如对稀薄气体样品, 常规的磁共振谱仪遇到困难, 而光探测的效率高得多^[6], 因而在此情况下可作光泵浦和光探测的方法研究稀薄气体状态的原子能级间的磁偶极跃迁。本文同时介绍了一种测量强磁场下碱金属原子的极化度的简便而较为可靠的方法。

2 实验原理

概括地说, 基态子能级上粒子数非热平衡分布和自旋极化产生于光泵浦速率和弛豫率间的竞争, 前者是电偶极跃迁过程, 后者主要是磁偶极跃迁过程, 两者都同具体能级结构相关。强磁场中原子的能级结构与低场中的结构相比, 有很大的差别, 因而可能有新的现象出现。

处于强磁场中,原子的电子角动量 J 与核角动量 I (对 Cs, $I = 7/2$) 退耦合,能级出现磁塞曼分裂和超精细相互作用塞曼分裂。两种塞曼分裂造成的能级频移可由 Godsmitt-Bacher 给出的公式计算为

$$-X_{M_I+1, M_J-1} \frac{A}{2} (I + M_I + 1)(J - M_J + 1) + X_{M_I, M_J} (E - AM_I M_J - M_J g_J \mu_B B + M_I g_I \mu_B B) - X_{M_I-1, M_J+1} \frac{A}{2} (I - M_I + 1)(J + M_J + 1) = 0$$

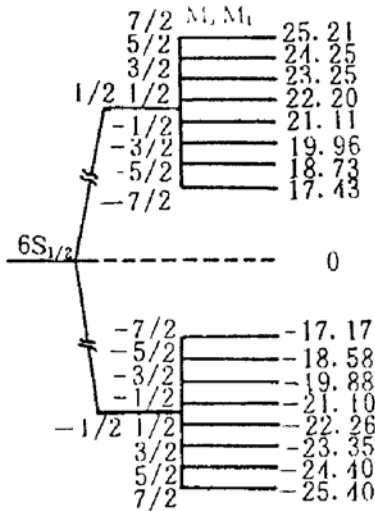


Fig. 1 Hyperfine Zeeman sublevels of the ground state $6S_{1/2}$ of Cs in a high magnetic field of 1.514 T

这是关于变量 $X_{i,j}$ 的一阶齐次线性方程组,非零解的条件为系数行列式为零,从而获得关于 E 的方程, E 为磁塞曼分裂和超精细塞曼分裂移动之和, g_J 为朗道(Lande) g 因子, g_I 为核 g 因子, μ_B 为波尔(Bohr)磁子, M_J 为电子角动量 J 的磁分量, M_I 为核角动量 I 的磁分量, A 为超精细相互作用常数,对 Cs 的 $6S_{1/2}$ 态, $A = 2298.16$ MHz, $g_J = 2.002$; 对 $P_{1/2}$ 态, $A = 292$ MHz, $g_J = 0.6659$; 对 $P_{3/2}$ 态, $A = 50.34$ MHz, $g_J = 1.334$ 。与 g_I 有关的项对能级移动的贡献可忽略。强磁场下 Cs 原子的能级退简并,具有简单的结构和选择定则: $\Delta M_J = 0, \pm 1, \Delta M_I = 0$ 。其 $6S_{1/2}$ 态能级结构如图 1 所示。与实验有关的激发态 $6P_{1/2}, 6P_{3/2}$ 有类似的能级结构。由于基态的 A 比激发态 A 大很多,超精细塞曼分裂吸收峰的间距主要由基态决定。

设 $M_J = 1/2$ 和 $M_J = -1/2$ 能级上的总粒子数分别为 $N_{1/2}$ 和 $N_{-1/2}$, 则根据电子自旋极化度定义,极化度 P 为:

$$P = (N_{-1/2} - N_{1/2}) / (N_{1/2} + N_{-1/2}) \quad (1)$$

强磁场下自旋极化度通常采用偏离共振线处的线偏光的顺磁法拉第旋转效应来测量,这要求用纵向磁场^[3,4],而目前仅有横向强磁场;另外,对于光学薄样品的旋转角度小,此方法不适合。结合强磁场下能级的特点:基态原子按电子自旋角动量 $+1/2, -1/2$ 分为两组(见图 1)。根据极化度的定义(1)式给出一简便可靠的方法。在早期低磁场下的光泵浦工作中,碱金属原子的能级结构由于超精细相互作用和近简并而复杂,该定义只用作原理性说明。迄今为止还没有这类实验报道作参考,故本文给出较详细的推导如下。

由于强磁场下电偶极跃迁满足 $\Delta M_I = 0$,因而扫描激光频率可得如图 3 所示的 8 条超精细塞曼吸收线,且每一吸收线对应一个归一化 Voigt 线形或响应函数 $V(\omega)$ 。考虑到多普勒增宽和缓冲气体碰撞增宽,八条吸收谱总宽度大于 8 GHz。本文采用窄线宽激光对八个子能级共振吸收进行频率扫描,通过探测光的透射强度按频率的分布可知基态能级上的粒子数相对分布。对频率为 ω 的极弱的探测光,被吸收的光强^[7]

$$\Delta I = I_0(\omega) \{1 - \exp[-k(\omega)L]\} \quad (2)$$

式中 $I_0(\omega)$ 为入射光强, L 为吸收长度, $k(\omega)$ 为吸收系数,且

$$k(\omega) = (\hbar\omega/4\pi) B_{ik} N_i [1 - g_i N_k / (g_k N_i)] V(\omega) \quad (3)$$

式中 B_{ik} 为爱因基坦系数, N_i, N_k 为共振态的下能级和上能级粒子数, $V(\omega)$ 为线型函数或响应函数。对强磁场, $g_i = 1, g_k = 1$, 对光学薄样品(在本实验中, Cs 泡的温度为 $30 \sim 60$ °C, 对应的饱和蒸气密度为 $7.4 \times 10^{11} \sim 9.4 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$, $L \approx 2 \text{ cm}$), $k(\omega)L \ll 1, N_k \ll N_i$, 利用 $V(\omega)$ 的

归一化性质, 扫频得到总吸收 ΔI , ΔI 与对应基态能级上的粒子数 N_i 成正比。很明显, N_i 决定于光泵浦的效率。设 ΔI^0 为无泵浦光时, 扫描探测光的总吸收, ΔI 为有泵浦光时且达到稳态后的总吸收, 则可推得极化度

$$P = (\Delta I^0 - \Delta I) / \Delta I^0 \quad (4)$$

3 实验装置

本实验装置如图 2 所示。磁场强度为 1.514 T 由电磁铁提供。泵浦光和探测光均为半导体激光, 线宽分别为 100 MHz 和 75 MHz, 中心波长分别为 852.1 nm (D_2) 和 894.4 nm (D_1)。可处于固定或扫描频率工作状态, 次模与主模的间隔为约 0.31 nm (~ 140 GHz), 强度比为 1:100, 因而不构成对光泵浦和探测的影响。泵浦光功率为 5 mW, 探测光为几微瓦。半导体激光器采用温度控制稳频, 控温精度优于 $5 \times 10^{-3} \text{ }^\circ\text{C}$, 激光工作电流稳定优于 1×10^{-2} mA。半导体激光器的频率对工作电流变化有很快的响应和很好的重复性, 在较小的电流扫频范围内 (< 2 mA), 电流的变化与光功率的变化成正比, 便于修正功率变化对实验结果的影响。泵浦光的调谐从超精细塞曼吸收谱上峰的缺失位置确定。频率综合器为探测光提供扫描电压并同步信号平均器。弱探测光信号被多次平均, 以提高信噪比, 同时吸收谱的多次平均可以消除由于有限大小的光束 (5 mm 直径, 半圆) 而造成的渡越时间效应。制泡时在抽高真空 (1.33×10^{-4} Pa) 的 Pyrex 球形玻璃泡 (20 mm 直径) 中充入少量 Cs 和不同压力的高纯氮气。控温样品加热炉采用电流加热, 电阻丝反向缠绕以减小加热电流的磁场, 且离样品泡较远而用铜板导热至吸收泡。

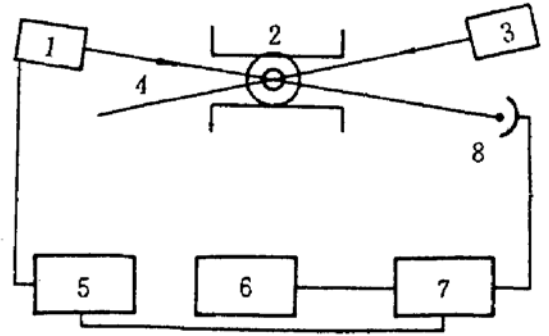


Fig. 2 Experimental setup

- 1: detecting laser, 2: electromagnet, 3: pumping laser, 4: oven and Cs cell, 5: frequency synthesizer, 6: microcomputer, 7: signal averager, 8: photocell

4 实验结果

图 3 给出了样品 $\text{Cs} + \text{N}_2$ (6.7×10^2 Pa) 的一组探测光的扫频吸收曲线。锯齿形吸收峰反映了强磁场下铯原子 8 个超精细塞曼分裂吸收, 而泵浦光的调谐位置可从吸收峰上缺失变形位置看出, 这表明了所用激光器的频率特性满足超精细塞曼能级光泵浦的要求。

图 4 中给出在 $\text{Cs} + \text{N}_2$ (8×10^3 Pa) 中超精细塞曼能级光泵浦的扫频吸收线, 其中箭头所指位置为泵浦光对准的频率。第一条吸收谱中无光泵浦, 是热平衡布居分布的扫频光吸收 ΔI^0 。图中一个有趣的现象是, 在第二条至第六条吸收谱中, 每一吸收谱中箭头左侧的能级上的粒子被泵浦效果总比右侧的明显大, 相应地探测光被吸收得少, 光泵浦是不对称的, 从而极化度也是不对称的。但在图 3 中这种现象不明显, 表明这一现象与氮气压力有关。

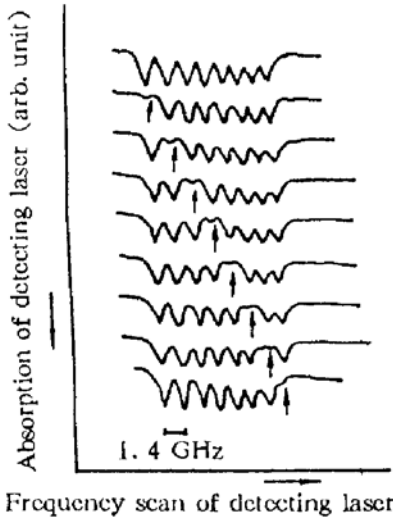


Fig. 3 Frequency-scan absorption spectra for transitions from $6S_{1/2}(M_J = -1/2) \rightarrow 6P_{1/2}(M_J = 1/2)$ of Cs in $N_2(6.7 \times 10^2 \text{ Pa})$,
The arrows indicate the frequency tunings of the pumping laser,
The tunings are on $M_I = -7/2, -5/2, \dots, 7/2$ from the upper to the lower, respectively

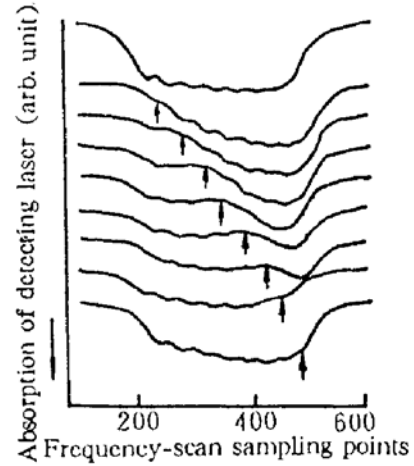


Fig. 4 Frequency-scan absorption spectra of Cs in $N_2(8 \times 10^3 \text{ Pa})$,
The arrows indicate the frequency tunings of the pumping laser,
The tunings are on $M_I = -7/2, -5/2, \dots, 7/2$ from the upper to the lower, respectively

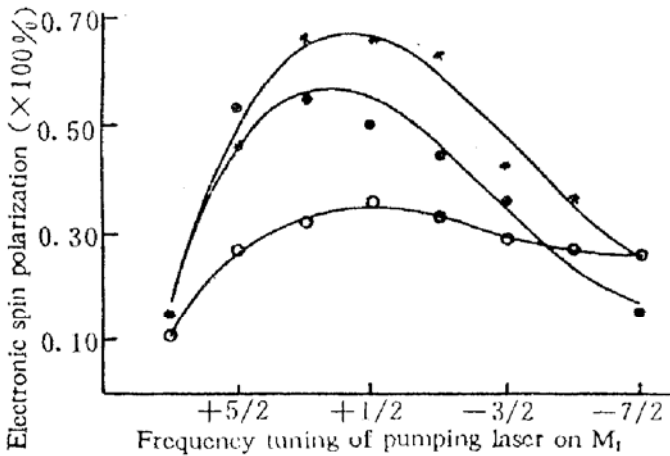


Fig. 5 Relations between the pumping frequency tunings on M_I and the measured degrees of electronic-spin polarization in three cells:
* : Cs + $N_2(1.6 \times 10^4 \text{ Pa})$, \cdot : Cs + $N_2(8 \times 10^3 \text{ Pa})$, \circ : Cs + $N_2(6.7 \times 10^2 \text{ Pa})$

根据这些扫频吸收谱, 可以计算出总的吸收光强 ΔI , 利用(4)式, 可以很简单地求得电子自旋极化度。在图 5 给出了在 54°C 时三样品 Cs + $N_2(6.7 \times 10^2 \text{ Pa})$, Cs + $N_2(8 \times 10^3 \text{ Pa})$ 和 Cs + $N_2(1.6 \times 10^4 \text{ Pa})$ 在不同的泵浦光频率调谐时的极化度曲线, 表明在强磁场下窄线宽激光光泵浦中存在一个极化度最高的调谐频率, 而这个频率并不是处于超精细塞曼分裂吸收的中心位置。这一结果对用有限激光功率光泵浦提高极化度有一定意义。在本文的泵浦能级中, 最佳频率偏向高频端, 考虑到频率调谐的可能误差, 从图 5 判断最佳泵浦能级为 $M_I = +3/2(M_J = -1/2)$ 。

5 超精细塞曼分裂光泵浦的基态速率方程和实验现象的解释

5.1 光吸收响应函数

由于自然线宽, 多普勒增宽和压力增宽的存在, 原子的光吸收(或发射)谱线具有分布线型, 对光吸收来讲, 这也是响应函数, 当线型的中心处共振频率与单色光的频率一样时, 吸收最大。非均匀增宽的高斯线型和均匀增宽的洛伦茨(Lorentzian)线型卷积为 Voigt 线型:

$$V(\omega - \omega_{M_J, M_I}, \Gamma/\Delta) = \int_0^\infty \frac{\Gamma/2\pi}{(\omega - \omega_0')^2 + \Gamma^2/4} \cdot \frac{2}{\Delta \sqrt{\pi}} \cdot \exp\left[-\frac{4(\omega_0' - \omega_{M_J, M_I})^2}{\Delta^2}\right] d\omega_0'$$

其中 ω 为激光频率, ω_{M_J, M_I} 为从静止原子的基态 $\{M_J, M_I\}$ 能级出发的光吸收共振频率。 Γ 为均

匀增宽半宽度, 对铯原子, 当缓冲气体压力超过几百帕时, 压力增宽已超过自然线宽, 后者可忽略不计。本文精细地测量了 Cs 的 $D_1(D_2)$ 线在低压缓冲气体中的压力增宽系数, 对 N_2 , 系数 0.000169 GHz/Pa 。 $(\ln 2)^{1/2} \Delta = 7.16 \times 10^{-7} \omega_0(T/A)^{1/2}$ 为多普勒增宽, 60°C 时, $\Delta = 0.46 \text{ GHz}$ 。至此, 响应函数 $V(\omega, \omega_{M_J, M_I}, \Gamma/\Delta)$ 是可以确定的。当激光频率给定后, 各基态子能级上原子的相对激发跃迁几率可算出。在本文的速率方程中需要知道相对跃迁几率。

5.2 基态子能级上的速率方程

基态十六个子能级 $\{M_J, M_I\}$ 上的粒子数速度方程为^[8]

$$\begin{aligned} (d/dt)P_{\frac{1}{2}, M_I} &= -R_e(P_{\frac{1}{2}, M_I} - P_{-\frac{1}{2}, M_I}) - R_n(P_{\frac{1}{2}, M_I} - P_{\frac{1}{2}, M_I-1}) - R_n(P_{\frac{1}{2}, M_I} - P_{\frac{1}{2}, M_I+1}) \\ &\quad - R_{M_J, M_I}^{(+)}(P_{\frac{1}{2}, M_I} - P_{-\frac{1}{2}, M_I+1}) + R_p(-1/2, M_I)P_{-\frac{1}{2}, M_I} \\ (d/dt)P_{-\frac{1}{2}, M_I} &= -R_e(P_{-\frac{1}{2}, M_I} - P_{\frac{1}{2}, M_I}) - R_n(P_{-\frac{1}{2}, M_I} - P_{-\frac{1}{2}, M_I-1}) - R_n(P_{-\frac{1}{2}, M_I} \\ &\quad - P_{-\frac{1}{2}, M_I+1}) - R_{M_J, M_I}^{(-)}(P_{-\frac{1}{2}, M_I} - P_{\frac{1}{2}, M_I-1}) - R_p(-1/2, M_I)P_{-\frac{1}{2}, M_I} \end{aligned}$$

式中 P_{M_J, M_I} 为相对粒子数, $R_e, R_n, R_{M_J, M_I}^{(\pm)}$ 为基态子能级间的磁偶极跃迁速度, 分别对应于电子自旋跃迁 ($\Delta M_J = \pm 1, \Delta M_I = 0$), 核自旋跃迁 ($\Delta M_I = \pm 1, \Delta M_J = 0$), 联合电子自旋-核自旋跃迁 ($\Delta M_J = \pm 1, \Delta M_I = \pm 1, \Delta M_J + \Delta M_I = 0$)^[9]。 R_e 直接来源于低场光泵浦实验中测量得到的与核自旋无关的电子自旋极化的弛豫率^[10]。 R_n 可认为主要来自壁弛豫; $R_{M_J, M_I}^{(\pm)}$ 来自超精细相互作用 $AI \cdot J$ 的碰撞修正项 $\delta AI \cdot J$ 引起的弛豫跃迁, 与缓冲气体的压力成正比^[11], $R_{M_J, M_I}^{(\pm)} = R_n[I(I+1) - M_I(M_I \pm 1)]$ 。 $R_p(M_J, M_I)$ 为光泵浦速率, 表示单位时间内从能级 $\{-M_J, M_I\}$ 泵浦到能级 $\{M_J, M_I\}$ 上的原子数^[8], $R_p(M_J, M_I) = S \times V(\omega, \omega_{M_J, M_I}, \Gamma/\Delta)$, S 根据不同的泵浦光功率而可调节。不同的超精细塞曼能级上的光泵浦也就是 ω 取各 ω_{M_J, M_I} 。

对样品 $\text{Cs} + \text{N}_2$ ($8 \times 10^3 \text{ Pa}$), $\Gamma = 1.35 \text{ GHz}$, $R_e = 35 \text{ s}^{-1}$ 。对 R_n, R_{en}, S , 只能根据实验图 4 试探值为, $R_n = 140 \text{ s}^{-1}$, $R_{en} = 33 \text{ s}^{-1}$, $S = 1800 \text{ s}^{-1}$ 。令 $(d/dt)P_{M_J, M_I} = 0$, 得到基态各子能级上的非平衡稳态粒子数分布 P_{M_J, M_I} 。将 P_{M_J, M_I} 按线型 $V(\omega, \omega_{M_J, M_I}, \Gamma/\Delta)$ 绘出稳态吸收谱, 如图 6 所示, 与实验结果是定性符合的, 第 9 项吸收谱有明显差别, 这可能是由于此时激光频率调谐不准所致。在实际计算中, 可选取各种 R_n, R_{en} , 结果表明, 只有考虑 R_{en} , 才能解释不对称光抽动的实验现象。作者计算了图 6 中各光泵浦吸收谱对应的电子自旋极化度, 见表 1, 在最佳极化度的泵浦能级上, 实验和计算是一致的。

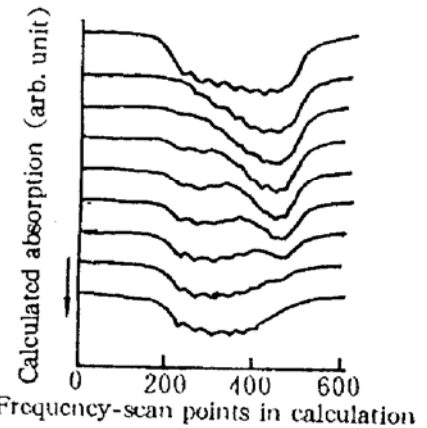


Fig. 6 Calculated frequency-scan absorption spectra of the detecting laser when the pumping is tuned at different hyperfine Zeeman sublevels

Table 1.

tuning energy level	7/2	5/2	3/2	1/2	-1/2	-3/2	-5/2	-7/2
experimental polarization	0.14	0.53	0.55	0.50	0.45	0.37	0.27	0.15
calculated polarization	0.40	0.48	0.52	0.51	0.46	0.41	0.35	0.28

作者将进一步用该方法定量地系统研究铯和其他碱金属原子在不同的缓冲气体中的超精细塞曼分裂光泵浦和超精细弛豫跃迁, 自旋极化的碱金属原子同弱极性的惰性气体原子间的

作用, 形成短寿命的准束缚态分子的可能性, 以及极化原子与不同材料壁表面的原子间的退极化相互作用。

参 考 文 献

- [1] W. D. Cornelius, D. J. Taylor, R. L. York, Optical pumping of dense charge-exchange targets for polarized ion sources. *Phys. Rev. Lett.*, 1982, **49**(12): 870~873
- [2] X. Zeng, C. Wu, M. Zhao *et al.*, Laser enhanced NMR signals of low pressure ^{129}Xe . *Chem. Phys. Lett.*, 1991, **982**(6): 538~541
- [3] C. D. P. Levy, P. W. Schmor, W. M. Law, $\langle S_z \rangle$ wall relaxation measurements of optically pumped sodium atoms at high magnetic field. *J. Appl. Phys.*, 1988, **63**(10): 4819~4822
- [4] Y. Mori, K. Ikegami, A. Takagi *et al.*, Measurement of electron polarization of optically pumped sodium atoms. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1984, **220**(2,3): 264~269
- [5] A. Abragam, *The Principles of Nuclear Magnetism*. (Clarendon, Oxford, 1961): 1~17
- [6] D. Suter, J. Mlynek, Laser Excitation and Detection of Magnetic Resonance, in *Advances in Magnetic and Optical Resonance* Vol. 16, edited by W. S. Warren (academic Press, New York, 1991): 1~6
- [7] A. Corney, *Atomic and Laser Spectroscopy*, Clarendon, Oxford, 1977: 289~292
- [8] Z. Wu, S. Li, M. Zhao *et al.*, Relaxation of populations in hyperfine Zeeman sublevels of the ground state of optically pumped Cs in a high magnetic field, *Chem. Phys. Lett.*, 1994, **223**(1,2): 121~126
- [9] J. H. Freed, Theory of multiple resonance and ESR saturation in liquids and related media, in *Multiple Electron Resonance Spectroscopy*, edited by M. M. Dorio and J. H. Freed. Plenum, New York and London 1979: 99~103
- [10] W. Happer, Optical pumping. *Rev. Mod. Phys.*, 1972, **44**(2): 169~241
- [11] F. A. Franz, A. Sieradzian, Spin relaxation of Rb atoms induced by collisional modification of the Rb hyperfine interaction. *Phys. Rev. A*, 1981, **23**(6): 2841~2850

Optical Pumping on Hyperfine Zeeman Levels of Cs Vapor in High Magnetic Field

Wu Zhenghua Zhao Mingxin Wang Shenglie Zeng Xizhi

(Laboratory of Magnetic Resonance and Atomic and Molecular Physics,

Wuhan Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Wuhan 430071)

(Received 5 March 1994; revised 12 May 1994)

Abstract Cs atoms have large hyperfine Zeeman separations in a high magnetic field. Cs vapor is optically pumped and detected with diode lasers in the high magnetic field. We obtained the steady absorption spectra and used them to investigate the steady population distribution, relaxation transitions, and electronic spin polarizations at different frequency tunings of the pumping laser. It is shown that the collision-induced modification of hyperfine Zeeman interaction has taken part in the process of relaxation and polarization. We also introduced a new method for measurement of electronic spin polarization of alkali atoms in high magnetic fields.

Key words optical pumping on hyperfine Zeeman sublevels, transitions between the ground state sublevels induced by the collisions, electronic spin polarization.