

利用双色激光感生光栅光谱法 测定 ^{127}I 的核自旋*

唐 臻 张培林 赵朔嫣

(清华大学现代应用物理系, 北京 100084)

摘 要 本文利用 Nd:YAG 激光倍频光 532 nm 激光分成强度大致相等的两束激光作为泵浦光以 2.73°交叉于碘分子样品室中, 两束泵浦光发生干涉在碘分子中选择激发形成了空间正弦分布的激光态分子光栅和基态耗尽型光栅。另一束窄线宽染料激光作为探索光射入到激光感生光栅上, 沿着布拉格衍射的方向接收信号光。利用泵浦共振为 32-0 R (55)、探索共振为 13-0 P (55)、R (55)和泵浦共振为 32-0 P (52)、探索共振为 13-0 P (52)、R (52)的碘分子双色激光感生光栅光谱谱线强度测定了 ^{127}I 的核自旋, 测定值为 5/2。

关键词 碘分子, 激光感生光栅光谱, 核自旋。

1 引 言

双色激光感生光栅光谱(TC-LIGS, Two-Color Laser-Induced-Grating Spectroscopy)是近年发展用来研究分子激发态的非线性激光光谱方法, 它具有高灵敏度, 高空间分辨, 零背景, 无多普勒展宽, 双共振以及易于谱线标识的优点^[1]。本文首次研究了同核双原子分子中核自旋对双色激光感生光栅光谱信号光强的影响, 并选择合适的谱线测定了 ^{127}I 的核自旋。

2 原 理

双色激光感生光栅过程是基于介质的 $X^{(3)}$ ($-\omega_2; \omega_2, \omega_1, -\omega_1$)发生的共振四波混频。如图(1)和图(2)所示, 两束频率都为 ω_1 的泵浦光以小角度相交, 在样品中发生干涉, ω_1 与分子能态1和能态2的跃迁共振, 因而感生出激发态分子的布居光栅以及基态分子的耗尽型光栅。频率为 ω_2 的探索光照射在布居光栅上, 当 ω_2 调谐至与能态1或者能态2共振时, 光栅的衍射效率最大, 从而输出频率为 ω_2 的方向性很好的相干信号光, 信号光的方向为探索光在感生光栅上的布拉格衍射方向。对于图2(a)所示的双色激光感生光栅过程能级双共振情形, 由非线性光学的理论知, 信号光峰值强度满足:

$$I_s \propto N^2 (|\mu_{13}|^2)^2 (|\mu_{12}|^2)^2 I_1 I_1 I_2 \frac{L^2 \sin^2(\Delta KL/2)}{(\Delta KL/2)^2} \quad (1)$$

* 清华大学科学基金资助项目。

收稿日期:1995年3月26日

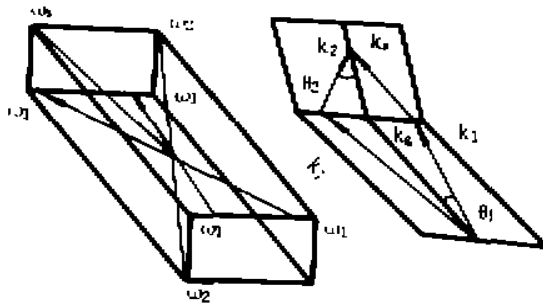


Fig. 1 Schematic of the experimental approach to the TC-LIG spectroscopy

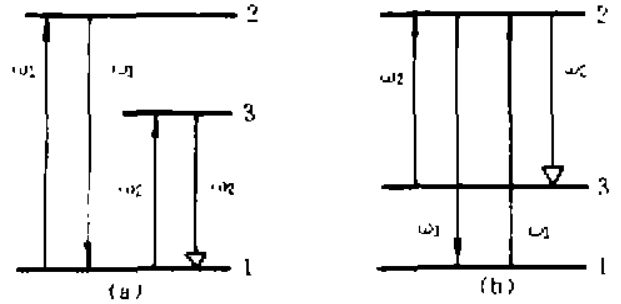


Fig. 2 Energy level diagram describing the TC-LIG scheme

(a) Probe beam is resonant with the depleted ground state, (b) Probe beam is resonant with the populated upper state

式中 N_1 为分子在能态 1 的密度, $|\mu_{13}|^2$ 和 $|\mu_{12}|^2$ 分别为分子从 $3 \rightarrow 1$ 和 $2 \rightarrow 1$ 的分子跃迁偶极矩, 它们正比于 Franck-Condon 因子, I_1, I_2 为两束泵浦光的光强, $\Delta K = K_1 - K_1 + K_2 - K_3$ 为相位失匹配, K_1, K_1, K_2 和 K_3 分别为泵浦光 E_1, E_1 、探索光 E_2 和信号光 E_3 的波矢, L 为沿信号光传播方向的相互作用区的长度。对于同核双原子分子的双色激光感生光栅光谱而言, (1)式严格来讲未考虑核自旋因素的影响, 它只对于双色激光感生光栅谱线的某一个超精细结构才严格成立。

¹²⁷I₂的基态为 $X^1\Sigma_g^-$, 令 J 为基态的转动量子数, I 为¹²⁷I的核自旋, 考察图 2(a)所示的双色激光感生光栅过程能级双共振情形。若原子核是玻色子, J 为偶数时, ¹²⁷I₂ 的双色激光感生光栅谱线将有 $(2I + 1)(I + 1)$ 个超精细分量, J 为奇数时, 谱线将有 $(2I + 1)I$ 个超精细分量。若原子核是费米子, J 为偶数时, ¹²⁷I₂ 的双色激光感生光栅谱线有 $(2I + 1)I$ 个超精细分量, J 为奇数时, 谱线有 $(2I + 1)(I + 1)$ 个超精细分量。根据 J 为偶数和奇数的谱线相对强度, 可以判据原子核为玻色子还是费米子。当 J 为偶数的双色激光感生光栅谱线强度大于 J 为奇数的谱线强度时, 原子核的玻色子, 反之, 则原子核是费米子。

利用¹²⁷I₂的双色激光感生光栅光谱测定其核自旋, 必须保证每一个超精细成分对 TC-LIG 信号峰值强度的贡献是相同的。

3 实验研究和结果

如图 3 所示, 本实验中泵浦光采用重复频率为 10 Hz, 脉宽为 10 ns 的 Nd:YAG 激光的倍频光 532 nm, 其线宽约为 0.03 nm, 两束泵浦光夹角为 2.73°, 泵浦光 E_1, E_1 所张平面与探索光 E_2 , 信号光 E_3 所张平面的夹角也为 2.73°, 采用图 1 所示的空间匹配方式, 探索光采用由 Nd:YAG 激光的倍频光所泵浦的染料激光, 其线宽约为 0.004 nm, 探索光射入到两束泵浦光所感生的布居光栅上, 沿着布拉格衍射的方向接收信号光。泵浦光和探索光的散射背景可以通过一系列的空间滤波器(包括三个光栏和两个透镜)和单色仪加以滤除, 从而使所检测的双色激光感生光栅信号无背景干扰。He-Ne 激光是为了便于调整光路用来做为模拟信号光的。实验中每束泵浦光强约为 800 μJ, 探索光光强为 20~30 μJ。双色激光感生光栅光谱所具有的零背景特点非常有利于用来测定¹²⁷I的核自旋。双色激光感生光栅光谱的标识的利用了其作用过程的双共振特性、 $B-X$ 态的 Franck-Condon 因子^[2]和 Gerstenkorn 与 Luc^[3] 所发表的碘

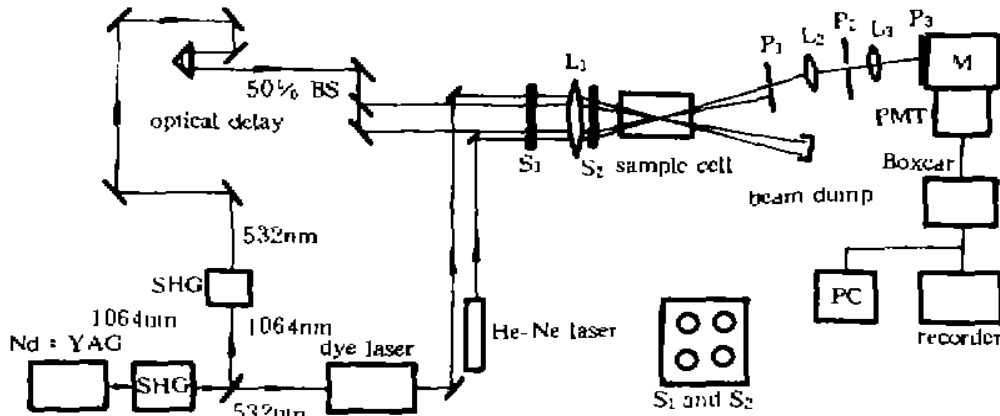


Fig. 3 Experimental apparatus for two-color laser-induced-grating spectroscopy of iodine molecules; L_1, L_2, L_3 : lens ($f = 200$ mm); P_1, P_2, P_3 : Pin Hole; M : Monochromator; S_1, S_2 : Stop Board

分子 B 态和 X 态振转能级常数来进行的。

利用泵浦共振为 $32-0 R(55)$, 探索共振为 $13-0 P(55)$ 和 $R(55)$ 以及泵浦共振为 $32-0 P(52)$, 探索共振为 $13-0 P(52), R(52)$ 的双色激光感生光栅光谱谱线来测定¹²⁷I的核自旋。作者考察了上述四根双色激光感生光栅光谱的每一个超精细成分对谱线强度的贡献。1) 四根谱线都涉及泵浦共振跃迁 $v' = 32$ 至 $v'' = 0$, 探索共振跃迁 $v' = 13$ 至 $v'' = 0$, 谱线中包含相同的分子跃迁偶极矩。2) 基态 $X^1\Sigma_g^-$ 中 $v'' = 0, J'' = 52$ 和 $v'' = 0, J'' = 55$ 的态能级相差仅 12.1 cm^{-1} , 基态的布居数密度可视为相同。3) 泵浦 $B \leftarrow X 32-0 R(55)$ 的 YAG 倍频激光的波长为 532.050 nm , 泵浦 $B \leftarrow X 32-0 P(52)$ 的 YAG 激光的波长为 532.047 nm , 两者波长差仅为 0.003 nm , 且处于 YAG 倍频激光频谱的中心, 从而保证参与泵浦四条双色激光感生光栅谱线的激光强度相等。4) 四条双色激光感生光栅谱线位于 581.6 nm 至 582.0 nm 间, 扫描染料波长时完全可保证激发此四条谱线的探索光强度相等。5) 在实验条件下考察(1)式的相位失匹配因子, 它对四条双色激光感生光栅谱线的贡献相同。

图 4 是一组多次重复扫描记录的用于测定¹²⁷I的双色激光感生光栅光谱图。谱线的标识如

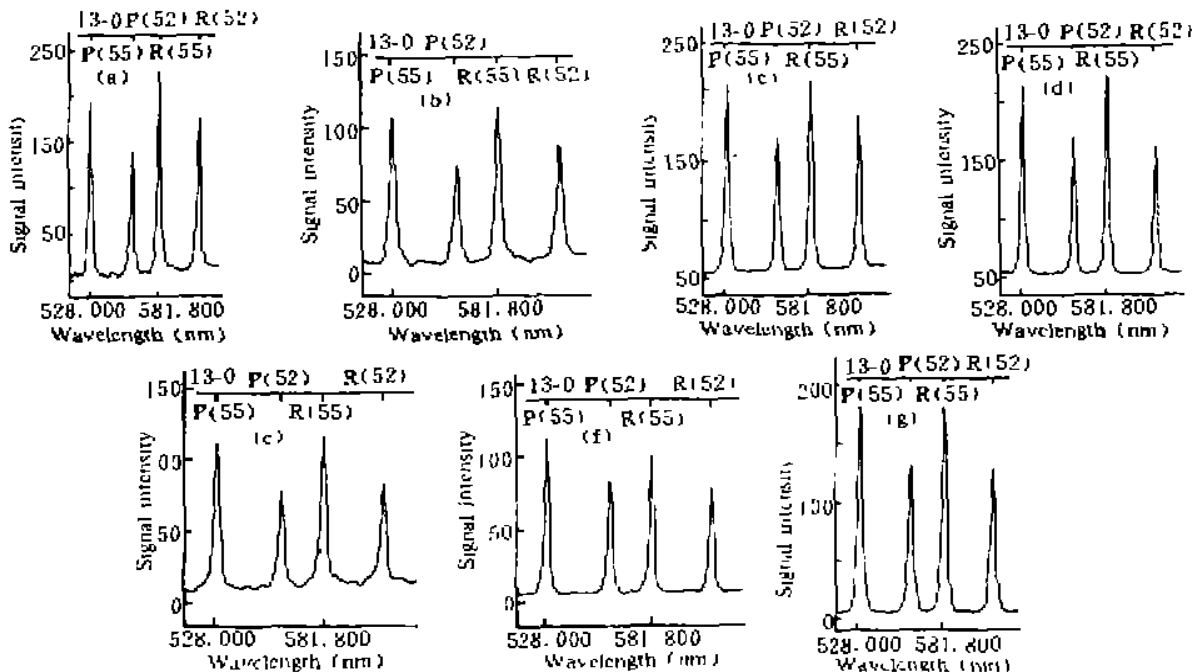


Fig. 4 TC-LIG spectra of I_2 for the determination of the nuclear spin of ¹²⁷I

图所示, 以与探索光相共振的 $B^3\Pi_{1/2}^+$ 至 $X^1\Sigma_g^+$ 态的振转跃迁标识双色激光感生光栅谱线。

在表 1 中, S_1, S_2, S_3 和 S_4 分别为探索共振为 13-0 $P(55), P(52), R(55)$ 和 $R(52)$ 的双色激光感生光栅光谱谱线的峰值强度。

Table 1. Determination of the nuclear spin of ¹²⁷I by the peak intensities of the TC-LIG lines

| Fig. 1 | S_1 | S_2 | S_1/S_2 | S_3 | S_4 | S_3/S_4 |
|--------|-------|-------|-----------|-------|-------|-----------|
| 4(a) | 186 | 132 | 1.409 | 216 | 165 | 1.309 |
| 4(b) | 98 | 65 | 1.508 | 104 | 78 | 1.333 |
| 4(c) | 159 | 113 | 1.407 | 158 | 128 | 1.234 |
| 4(d) | 177 | 126 | 1.405 | 181 | 125 | 1.448 |
| 4(e) | 101 | 67 | 1.507 | 100 | 66 | 1.515 |
| 4(f) | 107 | 77 | 1.390 | 93 | 71 | 1.310 |
| 4(g) | 159 | 115 | 1.383 | 167 | 108 | 1.546 |

基态为 $v'' = 0, J'' = 55$ 的态为自旋反对称态“a”, 且宇称是“-”, 基态为 $v'' = 0, J'' = 52$ 的态自旋对称态“s”, 且宇称是“+”, 在图 3 的双色激光感生光栅谱中, 谱线 1, 3 为 $P(55), R(55)$ 以 $v'' = 0, J'' = 55$ 为基态, 谱线 2, 4 为 $P(52), R(52)$, 以 $v'' = 0, J'' = 52$ 为基态, 由表 1 知 $S_1 > S_2, S_3 > S_4$, 根据前面关于双色激光感生光栅谱线相对强度的讨论知¹²⁷I 是费米子。

在谱线 1 和 2, 谱线 3 和 4 的峰值强度比中由于转动能级 J 造成的简并度和基态布居密度影响的比率为 $\left[\frac{(2J_1 + 1)}{(2J_2 + 1)} \exp \frac{-B[J_1(J_1 + 1) - J_2(J_2 + 1)]}{KT} \right]^2$, 当 $t = 20^\circ\text{C}$ 时, 该比率值为 0.9924, 这说明可以忽略 J 的简并度和基态布居密度的影响。

谱线 1, 3 包括 $(2I + 1)(I + 1)$ 个超精细结构分量, 谱线 2, 4 包括 $(2I + 1)I$ 个超精细结构分量。谱线 1, 2, 3, 4 中的各个超精细分量对于 I_2 双色激光感生光栅光谱谱线强度的贡献相同, $S_1/S_2, S_3/S_4$ 都应等于 $(I + 1)/I$, 其中 I 代表¹²⁷I 的核自旋。

由表 1 可计算得 $S_1/S_2, S_3/S_4$ 双色激光感生光栅光谱谱线的峰值强度比的总平均值为 1.407, 由前面的结果知¹²⁷I 为费米子, I 为半整数且最接近于 $(I + 1)/I = 1.407$ 的 $I = 5/2$, 所以实验测得¹²⁷I 的核自旋为 $5/2$ 。

结 论 本文利用 I_2 双色激光感生光栅光谱中泵浦共振为 32-0 $R(55)$, 探索共振为 13-0 $P(55), R(55)$ 和泵浦共振为 32-0 $P(52)$, 探索共振为 13-0 $P(52), R(52)$ 的双色激光感生光栅谱线强度测定了¹²⁷I 的核自旋, 测定值为 $5/2$ 。实验研究表明, 双色激光感生光栅光谱具有的零背景检测和易于谱线标识的优点非常有利于用来测定同核双原子分子中原子的核自旋, 测量结果准确可靠。

参 考 文 献

- [1] Mark A. Buntine, David W. Chandler, Carl C. Hayden, A two-color laser-induced grating technique for gas-phase excited-stated spectroscopy. *J. Chem. Phys.*, 1992, 97(1): 707~710
- [2] J. Tellinghuisen, Intensity factors for the $I_2 B \rightarrow X$ band system. *J. Quant. Spectrosc. & Radiat. Transfer*, 1978, 19(2): 149~161

- [3] S. Gerstenkorn, P. Luc, Description of the absorption spectrum of iodine recorded by means of Fourier transform spectroscopy; the (B-X) system. *J. Phys.*, 1985, 48(6): 867~881
- [4] 唐 臻, 张培林, 赵朔嫣, 碘分子双色激光感生光栅光谱. *中国激光*, 19(1): 69~74

Determination of the Nuclear Spin of ^{127}I by Two-Color Laser-Induced-Grating Spectroscopy

Tang Zhen Zhang Peilin Zhao Shuoyan

(Department of Modern Applied Physics, Tsinghua University, Beijing 100084)

(Received 26 March 1995)

Abstract The two-color laser-induced-grating spectroscopy (TC-LIGS) technique is used for determination of the nuclear spin of ^{127}I . The second harmonic output (532 nm) from a Nd : YAG laser is split into two pump beams with nearly equal intensity. These beams intersect at an angle of 2.73 degree and are directed into the I_2 sample cell. The interference of these beams produces a sinusoidal distribution of a excited-state laser induced population grating and a ground state laser induced depletion grating in the iodine molecules. A narrow bandwidth dye laser is used as probe beam and directed to the laser induced gratings. The spectroscopic signal is collected along the direction of Bragg diffraction. The nuclear spin of ^{127}I is determined by the pump resonance; 32-0 R (55), probe resonances; 13-0 P(55), R (55) and the pump resonance; 32-0 P (52), probe resonance; 13-0 P(52), R (52) TC-LIGs lines. The result is 5/2.

Key words iodine molecule, laser-induced-grating spectroscopy, nuclear spin.