

用于原子能级结构研究的激光共振电离光谱系统

王文亮, 李志明, 沈小攀, 徐江, 翟利华, 邓虎, 韦冠一

西北核技术研究所, 陕西 西安 710024

摘要 激光共振电离光谱技术是一种利用一路或多路激光将待测原子选择性共振激发与电离, 通过测量离子信号来研究原子能级结构的光谱技术。研建了一套激光共振电离光谱装置, 用于原子高激发态能级结构参数的测量。分别从该装置的总体结构、关键技术和应用实例等方面进行了详细介绍。该套装置主要包括高调谐精度的染料激光器系统、高效的激光离子源系统和高分辨率的飞行时间质量分析器。染料激光器系统包括3台多纵模可调谐染料激光器和1台单纵模可调谐染料激光器, 均为脉冲工作方式, 重复频率为10 kHz, 泵浦源均为532 nm的Nd:YAG固体激光器。激光离子源系统包括原子化源、激光与原子相互作用区和离子光学透镜组三部分, 样品在原子化源中被电加热实现原子化, 喷射出的原子被激光选择性激发、电离, 产生的离子被离子传输透镜整形成能量分散小、束窄的离子束。飞行时间质量分析器采用了反射式结构设计、脉冲垂直推斥技术和偏转板调节技术。利用此装置, 实验测定了U原子的自电离态光谱, 获得了U原子一条较佳的三色三光子共振电离路径, 对应激光的波长分别为591.7, 565.0和632.4 nm。此系统还可用于测量同位素位移和原子超精细结构等参数。另外, 由于此系统中联用了质量分析器, 因此可用于样品多元分析、痕量元素分析、同位素丰度分析。

关键词 激光共振电离光谱; 原子能级; 可调谐染料激光器; 飞行时间质量分析器

中图分类号: TN248.1 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2017)12-3653-05

引言

原子能级结构的研究, 不仅对原子物理学的发展具有重要意义, 而且在许多应用领域有重要的实用价值, 如: 激光同位素分离、同位素示踪、受控核聚变等, 特别是原子高激发态中的自电离态和里德堡态的光谱数据是激光分离同位素、激光共振电离质谱中所必需的参数^[1]。光谱法是原子高激发态研究的常用方法, 通常有原子吸收光谱法、原子发射光谱法、激光共振荧光法、激光共振电离光谱法。20世纪70—80年代, 美国 Argonne, Livermore 国家实验室和法国 LAC(Laboratoire Aime Cotton)的研究者共同合作, 利用9.15 m Paschen-Runge型光谱仪和高分辨率的傅里叶变换光谱仪, 通过测量U^[2], Pu^[3], Np^[4]的原子发射光谱, 获得了这些原子高激发态能级的光谱项参数、同位素位移和超精细结构。1994年, Aly^[5]利用激光共振荧光法对Gd原子的超精细结构和同位素位移进行了测量。2016年, 王崇等^[6]运用时间分辨激光诱导荧光技术和激光诱导等离子体方法获得了Pt原子的15条奇宇称高激发态能级的自发辐射寿命。上述

实例中均采用光谱直接测量技术获取原子高激发态能级特性, 但由于受光谱仪灵敏度与分辨率的影响, 且光谱直接测量存在本底较高、分辨率有限、线性动态范围小等问题, 较难获得高精度的原子高激发态参数。激光共振电离光谱(Laser resonance ionization spectroscopy, LRIS)技术是一种利用多路激光将待测原子选择性共振激发与电离, 通过测量离子信号来分析原子能级特性的光谱技术。与传统的光谱技术相比, LRIS将光谱的探测转换为离子的探测, 具有更高的精度和灵敏度, 且线性动态范围大。LRIS技术是研究原子高激发态, 特别是能级结构复杂的稀土元素和锕系元素时常用的实验技术。1999年, 金昌泰等^[7]利用三步激光共振电离方法, 测量了在49 898~50 880 cm⁻¹能量区间内U原子的若干里德堡态和自电离态的能级位置。2004年, 李志明等^[8]利用三色三光子激光共振电离光谱技术测定了Ce原子偶宇称自电离态参数, 并给出了Ce原子的8条较佳电离路径。近年来, 随着可调谐激光器和离子探测技术的进步, LRIS技术得到快速发展。

实验室自主研发的LRIS系统, 详细阐述了系统中染料激光器、激光离子源和飞行时间质量分析器中所采用的关键

收稿日期: 2017-01-08, 修订日期: 2017-05-06

基金项目: 国家重大科学仪器设备开发专项(2012YQ250003)资助

作者简介: 王文亮, 1986年生, 西北核技术研究所工程师 e-mail: wwl203@sina.cn

技术, 并利用此系统测定了 U 原子的自电离态光谱, 获得了 U 原子一条较佳的三色三光子共振电离路径。

1 LRIS 系统组成及特点

实验室开发的 LRIS 系统结构如图 1 所示, 主要包括以下几个部分: 激光器系统、原子化源和离子源装置、飞行时间质量分析器、信号采集和分析系统、以及辅助系统(真空、同步、供电、监测)等。激光器系统包括的三台可调谐多模染料激光器和一台可调谐单纵模染料激光器, 其泵浦源均为 532 nm Nd: YAG 激光器。多束特定波长的激光经光纤合束器和消色差透镜组传输至激光与原子束作用区。样品置于电加热型腔式原子化源中, 喷射出的原子束被激光选择性激发并电离, 产生的离子经离子传输透镜组拉出、聚焦, 通过飞行时间质量分析器后, 将离子按其质荷比(通常带电量为 1 个单位正电荷)进行分离, 采用微通道板对特定离子进行探测, 通过数据分析系统可获得特定核素的高激发态光谱信息。

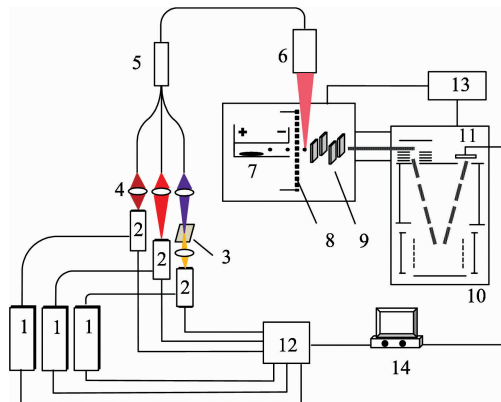


图 1 LRIS 装置的结构示意图

1: Nd: YAG 固体激光器; 2: 染料激光器; 3: BBO 倍频晶体; 4: 耦合透镜; 5: 光纤合束器; 6: 聚焦透镜组; 7: 原子化源; 8: 热离子屏蔽电极; 9: 离子透镜组; 10: 飞行时间质量分析器; 11: 微通道板; 12: 激光器监测与控制系统; 13: 供电与真空; 14: 数据处理系统

Fig. 1 Schematic diagram of the LRIS set-up

1: Nd: YAG laser; 2: Dye laser; 3: BBO crystal; 4: Coupling lens; 5: Fiber combiner; 6: Focusing lens; 7: Atomizer; 8: Thermion shield electrode; 9: Ion lens; 10: Time of flight mass analyzer; 11: Micro channel plate; 12: Monitoring and controlling system of lasers; 13: Power supply and vacuum; 14: Data dealing system

此 LRIS 系统较具有以下特点:

(1) 高元素选择性: 利用多束特定波长的激光将待测原子共振激发、电离, 元素选择性理论上可达 10^{18} 以上, 并通过飞行时间质量分析器筛选待测原子形成的一价正离子, 可进一步提高元素的选择性。

(2) 高灵敏度: 通过优化激光功率、激光与原子相互作用的时间和空间占空比, 可使待测原子被饱和激发、饱和电离, 再结合高效离子传输透镜的运用, 可实现对目标原子的高灵敏度分析。

(3) 高信噪比: 采用同步离子计数法, 可有效抑制仪器本底, 提高系统的信噪比。

下面对上述 LRIS 系统中的各子系统及其关键技术进行具体介绍。

1.1 高调谐精度的染料激光器

可调谐多纵模染料激光器采用 Littman 腔型结构, 如图 2 所示: 激光腔内无扩束器件, 通过掠入射光栅方式, 获得较大的光栅分辨率; 泵浦方式为正逆向双侧纵向泵浦, 通过优化泵浦光在染料池中的光斑大小, 可获得高光束质量的染料激光输出, 从而有利于染料激光高效地耦合进入光纤合束器。脉冲染料激光的重复频率为 10 kHz, 脉宽为 20~30 ns, 波长可调谐范围为 550~850 nm, 通过调节激光在光栅上的掠入射角度可改变输出激光的线宽, 其线宽范围为 1~15 GHz。多纵模染料激光器后置了染料激光放大器, 通过调节放大器中泵浦激光功率以及染料激光器与放大器之间的延时, 可获得 1~10 mJ 的染料激光单脉冲能量, 然后利用倍频晶体可将激光波长拓展到 275~425 nm。可调谐单纵模染料激光器的结构与多模染料激光器类似, 也采用 Littman 腔型结构, 泵浦方式为正向纵向泵浦, 输出脉冲激光的重复频率为 10 kHz, 脉宽约为 20 ns, 线宽约为 90 MHz, 波长可调谐范围为 550~650 nm(经倍频后可拓展到 275~325 nm), 此单纵模染料激光器可用于同位素位移和原子超精细结构的测量。

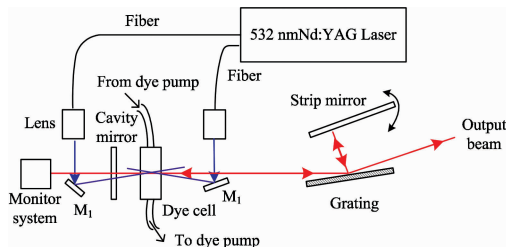


图 2 可调谐多模染料激光器结构示意图

Fig. 2 Schematic diagram of the multimode dye laser

染料激光腔内的各光学元件均固定在同一块殷钢板上, 从而避免各元件间相对机械振动对激光器性能的影响。光栅和长条反射镜固定在具有三维角度微调机构的底座上, 通过转动长条反射镜可实现激光波长的调节, 通过转动光栅改变激光掠入射角度可实现激光线宽的改变。多纵模染料激光器运行过程中采用高精度波长计(WS-7, Angstrom, High Finesse)实时测量激光的波长值, 并反馈给波长调节执行机构进行波长纠正, 实现激光波长的闭环控制和高精度调谐, 调谐精度优于 1 pm。单纵模染料激光器是基于单纵模扫描几何结构进行开发的, 可实现较大范围内无跳模的纯机械扫描, 并采用基于 LM007 波长计的激光模式闭环控制系统和对谐振腔镜的 PZT 调节机构, 可实时保证激光器运行于单模状态。

采用光纤合束器对多路激光进行合束、传输, 可有效克服空间小角度合束时的不稳定性, 同时激光经非保偏光纤传输后, 其偏振态发生混乱, 从而减少激光偏振度对激光离子信号强度的影响。合束器输出的激光经消色差透镜组, 聚焦

于激光与原子束相互作用区域,经优化设计可实现激光与原子束的高空间重叠度,从而提高激光共振电离效率。各路脉冲激光的时序通过数字信号延时器实现的高精度控制,控制精度为 1 ns。通过多路脉冲激光的时间同步或特定延时,不仅可在较低的激光功率下获得较高的电离效率^[8],还可用于原子激发态能级寿命的测量。

各路染料激光器输出光路上均设有可变光强衰减器,通过研究离子信号强度与各路激光功率的关系,可获得待测原子的激发、电离饱和和曲线。各路染料激光器输出光路上还设有电动光闸,可实现若干路激光的有序遮挡,为判别三光子共振电离谱图中所含的单色、双色和三色峰提供有效的方法。

1.2 高效激光离子源

激光离子源包括原子化源、激光与原子作用区和离子光学透镜组三部分组成,如图 1 所示:样品在原子化源中被电加热后实现原子化,喷射出的原子束被激光选择性激发、电离,产生的离子被离子传输透镜组拉出、聚焦,形成能量分散小、束窄的离子束。

原子化源为电加热型腔式设计,采用钽管作为热腔,长度为 10 mm,内径为 1 mm,外径为 1.4 mm。经测试此原子化源可实现高的原子化效率,且喷射出的原子束空间发散角小。原子化源后安装有热离子抑制电极,当电极打开时,可以屏蔽热表面电离产生的热离子,从而避免其对激光离子的干扰。激光光束与原子束垂直相交,可以抑制多普勒加宽效应;另外,通过优化设计原子束与激光束相互作用区的空间参数,实现两者较高的重叠度,从而提高光致电离效率。采用专业离子光学仿真软件优化设计离子光学系统,实现激光离子的高效传输;并对离子束进行整形,获得能量分散小、束径小的离子束。

1.3 高分辨率的飞行时间质量分析器

飞行时间质量分析器采用反射式设计、脉冲垂直推斥技术和偏转板调节机构,如图 1 所示。反射式设计一方面大大缩小了仪器的体积,另一方面反射电场可补偿离子能量、实现二阶空间聚焦,从而提高了仪器的分辨率^[9]。脉冲垂直推斥技术让离子加速方向与其传输方向垂直,使得离子进入飞行腔后在竖直方向上受初始动能分散的影响可以忽略^[10]。飞行轨道上的偏转板用于调节离子的飞行轨迹,使得离子束最大量地投射到离子探测器,实现离子的高效传输与探测。

离子探测器采用高增益、快响应的微通道板(MCP),其直径略大于加速区内孔。探测器包括栅网、分压极片、MCP板、阳极板和分压电阻等。此探测器采用与激光器同步工作的高重复频率门控离子计数和门控积分技术,从而获得高信噪比的离子信号。

此飞行时间质量分析器的质量范围为 1~300 amu,质量分辨率大于 600,丰度灵敏度为 2×10^6 ,线性动态范围为 4 个数量级。在 LRIS 技术中,飞行时间质量分析器一方面可实现不同质量离子的分离,进一步提高元素选择性,便于获得待测元素的原子电离路径;另一方面可实现同一元素不同同位素的分离,通过对比不同同位素的高激发态光谱,可获得同位素位移信息。

2 LRIS 的应用实例

利用上述 LRIS 系统,通过对 U 原子自电离态光谱的测定,获得 U 原子一条较佳的三色三光子共振电离路径。通过查阅 U 原子的光谱数据^[3],确定了 U 原子的激光共振电离方案如图 3 所示:第 1 步吸收一个光子($\lambda_1 \sim 591.7$ nm)从基态(0 cm^{-1})跃迁到第一激发态($16\,900.4 \text{ cm}^{-1}$),第 2 步吸收一个光子($\lambda_2 \sim 565.0$ nm)从第一激发态跃迁到第二激发态($34\,599.7 \text{ cm}^{-1}$),第 3 步吸收一个光子从第二激发态跃迁到自电离态。

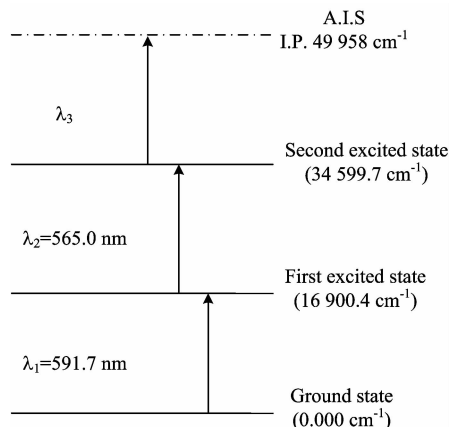


图 3 U 原子的三色三光子共振电离方案
Fig. 3 Three-color-three-photon resonant ionization scheme of uranium atom

第 3 步激光的波长(λ_3)扫描范围为 620~640 nm,扫描步长为 2 pm,实验中利用 WS-7 实时获得激光波长值,同时记录对应 U^+ 的信号强度。

图 4 为实验所得 U 原子的三光子共振电离谱。

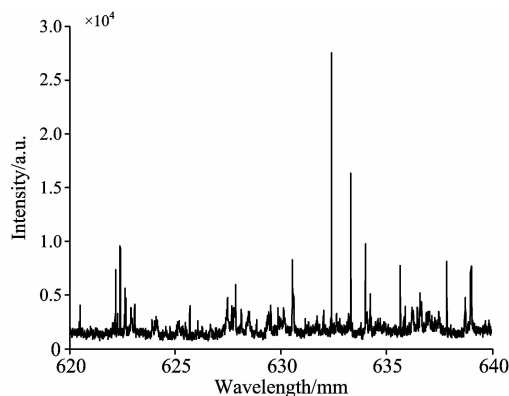


图 4 U 原子的三光子共振电离谱
Fig. 4 The three-photon resonant ionization spectra of uranium

在记录三色三光子共振电离谱时,扫描激光不仅能将处于第二激发态的铀原子电离,也可将处于第一激发态或基态的铀原子激发电离,因此,图 4 中包含单色、双色和三色三光子共振电离峰。实验中通过采用有序遮挡激光的方法,可

识别上图中所含的单色、双色和三色峰,并获得 U 原子的一条较佳三色三光子共振电离路径,此时 $\lambda_3 = 632.4 \text{ nm}$,对应自电离态的跃迁截面最大,从而可获得高效的电离效率。LRIS 系统中可调谐单纵模染料激光器线宽为 90 MHz,利用此单纵模激光器取代图 3 中的任一路多模染料激光器,并在对应激光波长值附近进行扫描,可实现 U 原子不同同位素的选择性激发、电离,通过对比不同同位素的能级光谱图,可进一步获得图 3 中 U 原子的各激发态和自电离态的同位素位移信息。

利用实验室研制的 LRIS 系统除了可用于测量特定原子的高激发态能级位置、寿命和总角动量值外,还可用于测量同位素位移和原子超精细结构等参数,进一步获得原子核的

磁矩参数。另外,由于此系统中采用了飞行时间质量分析器,因此,此系统也可称之为激光共振电离质谱仪,可用于样品多元素分析、痕量元素分析、同位素丰度分析。

3 结 论

介绍了一套 LRIS 系统,此系统主要由高调谐精度的染料激光器、高效的激光离子源和高分辨率的飞行时间质量分析器组成。利用此 LRIS 系统不仅能获得特定原子高激发态能级的位置、寿命和总角动量值,还能用于同位素位移和原子超精细结构等参数的测量,可为原子能级结构的研究提供重要的技术手段。

References

- [1] Xiao Ying, Dai Changjian, Qin Wenjie. Chinese Physics B, 2010, 19(6): 63202.
- [2] Blaise J, Radziemski L J. Journal of the Optical Society of America, 1976, 66(7): 644.
- [3] Blaise J, Fred M, Gutmacher R G. J. Opt. Soc. Am. B: Opt. Phys., 1986, 3: 3(3): 403.
- [4] Fred M, Tomkins F S, Blaise J E, et al. Journal of the Optical Society of America, 1977, 67(67): 7.
- [5] Aly E S. Review of Laser Engineering, 1994, 22(3): 183.
- [6] WANG Chong, TIAN Yan-shan, SHAN Xue, et al(王 崇, 田彦姗, 尚 雪, 等). Journal of Atomic and Molecular Physics(原子与分子物理学报), 2016, 33(3): 433.
- [7] JIN Chang-tai, WANG Xiu-lan(金昌泰, 王秀兰). Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析), 1999, 19(1): 5.
- [8] LI Zhi-ming, ZHU Feng-rong, DENG Hu, et al(李志明, 朱凤蓉, 邓 虎, 等). Journal of Atomic and Molecular Physics(原子与分子物理学报), 2006, 23(2): 185.
- [9] Pilyugin I I. Technical Physics, 2016, 61(3): 446.
- [10] Zhou Z Y, Wang Y, Tang X F, et al. Review of Scientific Instruments, 2013, 84(1): 14101.

A Laser Resonance Ionization Spectroscopy Apparatus for Study on Atomic Energy Level

WANG Wen-liang, LI Zhi-ming, SHEN Xiao-pan, XU Jiang, ZHAI Li-hua, DENG Hu, WEI Guan-yi
Northwest Institute of Nuclear Technology, Xi'an 710024, China

Abstract Laser resonance ionization spectroscopy (LRIS) is one of the element-selective spectroscopy methods, which aims to study the energy level parameters of the atom by measuring the ion signal. The atom is selectively excited and ionized by one or more lasers in LRIS. A set of totally domestic LRIS apparatus was built, which was used for measuring the parameters of the atomic high lying states. The overall structure, main technique and application of the LRIS apparatus were described in detail. The LRIS system was consisted of high precision tunable dye lasers, high efficiency laser ionization system and high resolution time of flight mass analyzer (ToF-MA). There were three sets of multimode dye laser and one set of single longitudinal mode dye laser, which were pumped by 532 nm Nd : YAG laser. The repetition frequency of the dye laser was 10 kHz. The laser ionization system contained atomization source, atom and laser interreaction region and ion lens. The atom sprayed from the atomic source was selectively excited and ionized by lasers, and then was reshaped as ion beam with small divergence angle and narrow beam width by ion lens. The reflecting structural design, pulsing vertical repulsion technique and deflecting plate adjusting method were adopted in the ToF-MA. Based on the laser resonance ionization spectroscopy technique, the auto-ionization spectrum of uranium atom was measured with the aid of this apparatus. An efficient three-color-three-photon resonance ionization scheme of uranium atom was obtained. The center wavelengths of the lasers were 591.7, 565.0 and 632.4 nm, respectively. The isotopic shift and the hyperfine structure also can be analyzed by this apparatus. In addition, as result of the mass analyzer employment, the proposed apparatus can be used to analyze the sample component, trace element concentration, and isotopic abundance.

Keywords Laser resonance ionization spectroscopy; Atomic energy level; Tunable dye laser; Time of flight mass analyzer

(Received Jan. 8, 2017; accepted May 6, 2017)

欢迎投稿

欢迎订阅

欢迎刊登广告

《光谱学与光谱分析》2018年征订启事

国内邮发代码：82-68

国外发行代码：M905

《光谱学与光谱分析》1981年创刊，国内统一刊号：CN 11-2200/O4，国际标准刊号：ISSN 1000-0593，CODEN 码：GYGFED，国内外公开发行人，大 16 开本，332 页，月刊；是中国科协主管，中国光学学会主办，钢铁研究总院、中国科学院物理研究所、北京大学、清华大学共同承办的学术性刊物。北京大学出版社出版，每期售价 65 元，全年 780 元。刊登主要内容：激光光谱测量、红外、拉曼、紫外、可见光谱、发射光谱、吸收光谱、X 射线荧光光谱、激光显微光谱、光谱化学分析、国内外光谱化学分析领域内的最新研究成果、开创性研究论文、学科发展前沿和最新进展、综合评述、研究简报、问题讨论、书刊评述。

《光谱学与光谱分析》适用于冶金、地质、机械、环境保护、国防、天文、医药、农林、化学化工、商检等各领域的科学研究单位、高等院校、制造厂家、从事光谱学与光谱分析的研究人员、高校有关专业的师生、管理干部。

《光谱学与光谱分析》为我国首批自然科学核心期刊，中国科协优秀科技期刊，中国科协择优支持基础性、高科技学术期刊，中国科技论文统计源刊，“中国科学引文数据库”，“中国物理文摘”，“中国学术期刊文摘”，同时被国内外的 CSCD，SCI，AA，CA，Ei，AJ，MEDLINE，Scopus 等文献机构收录。根据国家科技部信息研究所发布信息，中国科技期刊物理类影响因子及引文量《光谱学与光谱分析》都居前几位。欢迎国内外厂商在《光谱学与光谱分析》发布广告（广告经营许可证：京海工商广登字 20170260 号）。

《光谱学与光谱分析》的主编为高松院士。

欢迎新老客户到全国各地邮局订阅，若有漏订者可直接与《光谱学与光谱分析》期刊社联系。

联系地址：北京市海淀区学院南路 76 号（南院），

《光谱学与光谱分析》期刊社

邮政编码：100081

联系电话：010-62181070，62182998

电子信箱：chnghxygpfx@vip.sina.com

修改稿专用邮箱：gp2008@vip.sina.com

网 址：<http://www.gpxygpfx.com>

