

Na 원자의 2광자 공명 3광자 이온화

이종훈 · 노시표 · 김종복 · 김기식 · 이종민

한국원자력연구소

(1990년 2월 3일 받음)

Na 원자 증기에 대한 2광자 공명 3광자 이온화 실험을 실시하여 이온신호의 스펙트럼, 선폭, AC Stark 이동 및 이온화율의 레이저 강도 의존성 등을 측정하였으며, 이때 2광자 공명준위는 4D 준위[과정 I]와 5S 준위[과정 II]였다.

과정 I과 II에서 이온신호 스펙트럼의 반치폭은 레이저의 강도(I)에 비례하였으며, 이온화율은 이론적으로 알려진 바와 같이 낮은 레이저 강도 영역에서 I³에 비례하여 증가하였다. 과정 I의 이온신호는 과정 II에 비해 20~25배 정도 컸으며, 3S → 4D 전이의 AC Stark 이동계수는 174 ± 60 MHz/MW/cm²로 측정되었다.

I. 서 론

원자의 고유한 에너지 준위차가, 원자에 입사되는 광자의 에너지와 같거나 그 배수가 되는 공명상태일 때, 원자가 광자를 흡수하여 여기될 확률은 비공명 전이에 비해 아주 크게 되며, 흡수에 의해 여기상태에 오른 원자는 연속상태와의 에너지 차보다 더 큰 에너지를 가진 광자를 흡수하여 이온화된다. 이러한 현상을 이용하여 원자의 분광학적 특성을 연구하는 공명다광자 이온화(RMPI; Resonant Multi-Photon Ionization) 분광학은 파장 가변 색소레이저의 개발로 인해 급속한 발전이 이루어져 왔다.⁽¹⁾

일반적으로 원자에 공명파장을 가진 강한 레이저가 입사되면, 원자가 여기될 뿐 아니라, 비공명 준위와의 상호작용으로 인해 원자 에너지 준위의 이동(AC Stark shift)이 생기고 연속상태와의 결합으로 인해 broadening이 동시에 일어난다. 또한, 레이저 강도와 선폭의 특성은 RMPI 과정에 심대한 영향을 미치는 것으로 알려져 있다.⁽²⁾

본 연구에서는, Na에서 2광자 공명준위로 5S, 4D 준위들을 선택하여 3광자 이온화 실험을 실시하였으며 AC Stark 이동, 이온 스펙트럼의 선폭변화, 이온화율 등의 계 현상을 측정, 분석하였다.

II. 이 론

2광자 공명 3광자 이온화 과정의 물리적 이해를 위해

밀도 행렬함수를 도입하고 레이저를 고전적 전자기장으로 표현하면, 밀도 행렬함수 σ 의 시간적 변화를 기술하는 미분방정식은 식 (1)과 같은 Liouville의 식으로 표시할 수 있다.

$$i\hbar \frac{d\sigma}{dt} = [H^0 + H', \sigma] \quad (1)$$

위 식에서 H^0 는 레이저로 섭동되기 전의 원자의 Hamiltonian이며 H' 은 시간에 따라 변하는 원자와 레이저간의 상호작용을 나타낸다. 전기 쌍극자 근사에서 H' 은 다음과 같다(이하에서 $\hbar=1$).

$$H' = -\mu \cdot E \quad (2)$$

μ : 전기 쌍극자 작용자,

$E(t) = [\epsilon(t) \exp(i\omega t) + \epsilon^{*(t)} \exp(-i\omega t)] \hat{e}$: 레이저 전기장,

\hat{e} : 편극 vector, ω : 레이저 중심파장

$\epsilon(t)$: 복소함수

식 (1)에 대하여 rotating wave 근사와 slowly-varying amplitude 근사를 사용하여 2광자 공명 3광자 이온화 과정의 밀도 행렬함수 σ 의 운동방정식을 쓰면⁽³⁾ 다음과 같다.

$$\frac{d}{dt} \sigma_{11} = A\sigma_{22} + \Omega_{12} \text{Im}(\sigma_{12}) \quad (3)$$

$$\left[\frac{d}{dt} + A + \gamma_2 \right] \sigma_{22} = -\Omega_{12} \text{Im}(\sigma_{12}) \quad (4)$$

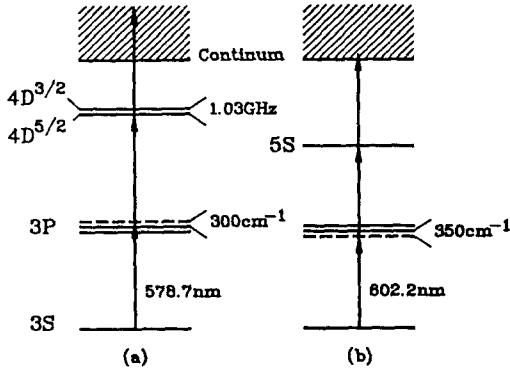


그림 1. Na의 2광자 공명 3광자 이온화 연구에 이용된 에너지준위도. (a) 3S → 4D → continuum[과정 I], (b) 3S → 5S → continuum[과정 II].

$$\left[\frac{d}{dt} + i(2w - w_{21} - S_{21}) + 1/2(A + \gamma_2) \right] \sigma_{12} = i\Omega_{12} [\sigma_{22}(t) - \sigma_{11}(t)] \quad (5)$$

위 식에서 Ω_{12} 는 1준위(3S, 기저준위)와 2준위(4D 혹은 5S, 여기준위) 사이의 2광자 Rabi rate, A 는 2준위의 자연방출률, γ_2 는 2준위에서의 1광자 이온화율, w_{21} 은 2광자 전이 주파수, $S_{21} = S_2 - S_1$ 은 AC Stark 이동이다. 여기서 Ω_{12} 와 $S_{1,2}$ 는 1, 2 준위의 파동함수가 $|1\rangle, |2\rangle$ 일 때 아래식으로 표현된다.

$$\Omega_{12} = \frac{4\pi w}{c} \sum_n \frac{\langle 2 | \sum_{i=1}^N \hat{e} \cdot \vec{r}_i | n \rangle \langle n | \sum_{i=1}^N \hat{e} \cdot \vec{r}_i | 1 \rangle}{E_n - E_1 - w} I \quad (6)$$

$$S_k = \frac{2\pi w}{c} \sum_{m=1}^N \sum_n \frac{|\langle n | \sum_{i=1}^N \hat{e} \cdot \vec{r}_i | k \rangle|^2}{E_k - E_n + mw} I, k=1,2 \quad (7)$$

위 식에서 I 는 광의 세기, N 은 원자내의 전자수이다. 식 (7)에서 \sum_n 은 속박상태와 연속상태의 파동함수에 대한 합에서 실수값을 나타내며 허수값은 γ_2 이다.

3S에서 4D 준위로 가는 전이의 경우, 레이저 선포은 4D의 미세구조보다 넓으므로 식 (3)-(5)의 밀도 행렬함수에서 미세구조는 고려하지 않았다. 이온화 확률은 $P_{ion} = 1 - \sigma_{11} - \sigma_{22}$ 가 되며 이온화 확률을 얻기 위해선 (3)-(5)식을 풀어야 한다. 그 결과, 이온화 확률은 레이저 강도의 복잡한 함수가 되나, 낮은 강도 영역에서는 I^3 에 비례하여 증가한다.⁽²⁾ 또한, 식 (7)에서 AC Stark 이동은 레이저 강도에 비례하여 증가함을 알 수 있다.

그림 1은 본 실험에서 이용된 Na의 에너지 준위들을 나타낸다. 3S 준위에서 4D 혹은 5S 준위로 가는 2광자

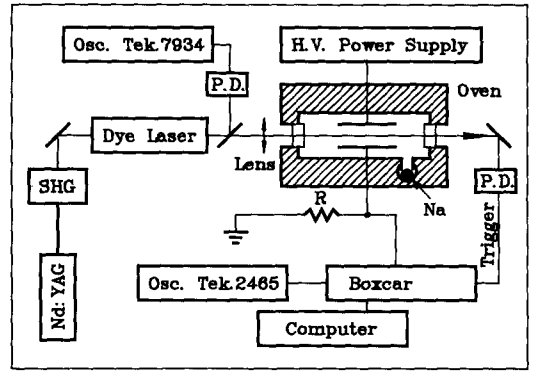


그림 2. Na의 공명 다광자 이온화를 위한 실험장치도 (P.D. : photodiode, R=1 MΩ).

전이에서, 중간 준위들 $|n\rangle$ 중 3P real 준위는 1광자로 오르는 virtual 준위와 근접해 있고, 3S와 5S 혹은 4D 준위들과의 전이 확률이 크기 때문에 식 (6)과 (7)에서 보듯, 3P real 준위는 2광자 전이율과 3S와 4D, 5S 준위들의 AC Stark 이동에 가장 큰 기여를 하게 된다.

III. 실험장치

2광자 공명 3광자 이온화를 위한 레이저 장치는 그림 2와 같다. 자체 제작한 Nd:YAG 레이저의 제2고조파의 펄스당 에너지는 20mJ이며, 이를 이용하여 색소레이저(Lambda Physik FL-3002/E)를 펄핑하였을 때, 색소레이저의 출력 특성은 펄스당 에너지가 3mJ, 선포은 7GHz, 펄스폭은 10ns, 반복률은 10Hz 이었다.

과정 I과 과정 II에서 각각 필요한 578.7nm과 602.2nm의 파장을 갖는 레이저를 발진시키기 위하여 Rh-6G와 Rh-B 색소를 사용하였으며, 레이저 발진시 실험과장에서 ASE(Amplified spontaneous emission)가 최소가 되도록 단색 분광기(0.5m, Shimadzu Co.)로 광의 순도를 살피면서 색소의 농도를 조절하였다. 증폭과정에서 발생된 광속 퍼짐도가 큰 ASE는 이온 신호의 잡음을 증가시키기 때문에, 집속렌즈 앞에 4mm 구경의 aperture를 둬으로써 ASE를 제거하였다. 색소레이저를 분할하여 매 펄스의 에너지를 digital energy meter(Moletron, J3-09)로 측정함으로써 평균치에서 10% 이상의 변동을 보이는 강도에 의한 실험결과는 제거하였다.

이온화 반응셀의 구조는 그림 3과 같으며 석영으로 이루어진 몸체와 window는 고진공하에서 밀봉되었다. 석영 pocket에 담긴 Na에서 발생된 원자 증기는 6mm

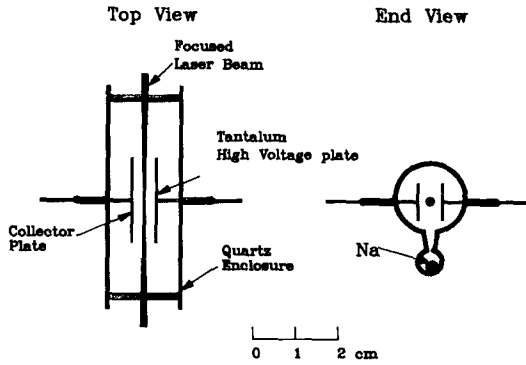


그림 3. Na의 이온화 셀 구조.

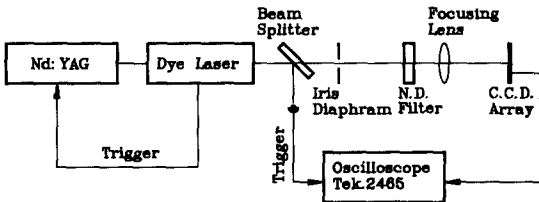


그림 4. 집속된 레이저의 spot size를 측정하기 위한 실험장치도.

직경의 관을 통하여 cell 내로 유입된다. 이온화 반응셀을 둘러싼 oven은 $\pm 0.2^\circ\text{C}$ 범위 내에서 항온이 유지되었으며, 반응셀 내의 증기압은 oven의 온도에 의존한다. 실험은 30-100°C 영역에서 수행되었으며 이 때 Na_2 분자의 구성비는 0.1% 이하로 이로 인한 효과는 무시하였다.⁽⁴⁾

다광자 이온화 과정에서 생성된 이온을 포획하는 전극은 0.2mm 두께의 tantalum 판(20×10mm)이며, 1cm 정도 간격을 두어 산란된 광이 전극에 충돌하여 생성되는 광전자로 인한 영향을 줄였다.

초점에서의 레이저 강도는 실험결과에 큰 영향을 미치므로 정확히 측정되어야 한다. 그림 4는 렌즈로 집속시켰을 때, 초점에서의 spot size를 측정하기 위한 실험장치도이다. C.C.D. array의 공간분해능은 13 μm 이며 N.D. filter를 이용하여 광의 세기를 적절히 조절하였다. 측정결과, spot size의 직경은 200 μm 이었으며 초점위치에 고출력 pin hole을 두어 투과하는 광의 에너지를 측정하여 spot size를 구한 값과 비교하여 재검증하였다.

레이저에 의해 이온화된 Na원자의 전자와 양이온은 전기장에 의해 양쪽의 전극으로 각각 끌려가게 되며, 양극 사이의 전압은 이온과 전자의 재결합이 발생하지 않도록 조절되어야 한다. 이들 유동 전하는 이온포획 전극

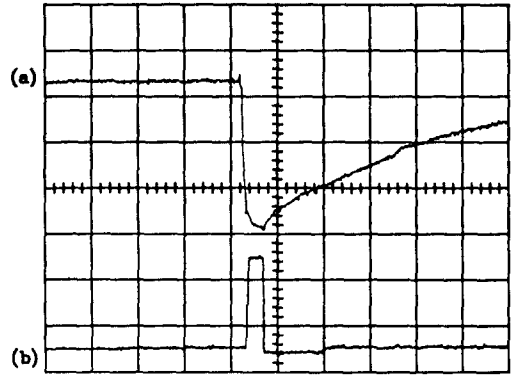


그림 5. 전형적인 이온신호의 시간변화 (a)와 Boxcar gate (b)의 위치(X 축: 20 $\mu\text{sec/div}$).

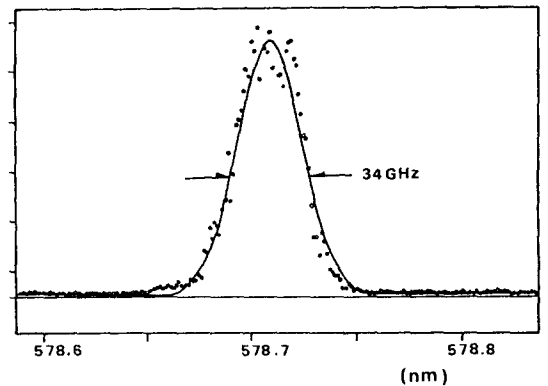


그림 6. 이온화 경로가 $3S \rightarrow 4D \rightarrow \text{continuum}$ 일 때의 이온신호의 스펙트럼.

에 전하를 유도하여 전극 양단에 전압강하를 일으키며, 그 양은 저항 R을 통하여 Boxcar(Stanford, SR 250)로 보내진다.

이온화 셀을 투과한 광은 photodiode에 의해 검출되어 Boxcar를 trigger시킨다. Boxcar의 gate는 이온신호의 최고치를 검출하기 위해 적당한 지연시간을 갖고 열리며 gatewidth는 7 μsec 로 하였다. 그림 5는 digital oscilloscope으로 잡은 이온신호와 Boxcar의 gate 신호이며 이온신호의 최고점이 무딘 이유는 이온화 영역이 어느 정도 부피를 갖는데다 원자의 열운동으로 인해 이온이 전극에 도달하는 시간이 일정하지 않기 때문이다.

그림 6은 이상의 방법으로 파장을 변화시키며 얻은 이온 스펙트럼의 모습이다. 각 점은 10개의 data를 평균하여 얻었으며, 이온 스펙트럼의 최고치 근처에서는 레이저의 출력변동으로 인한 신호의 변화가 크므로 fitting을 하였다.

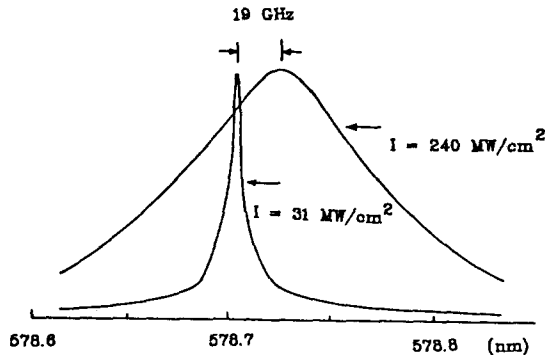


그림 7. 레이저 강도가 (a) 240 MW/cm², (b) 31 MW/cm²일 때의 이온신호 스펙트럼의 변화.

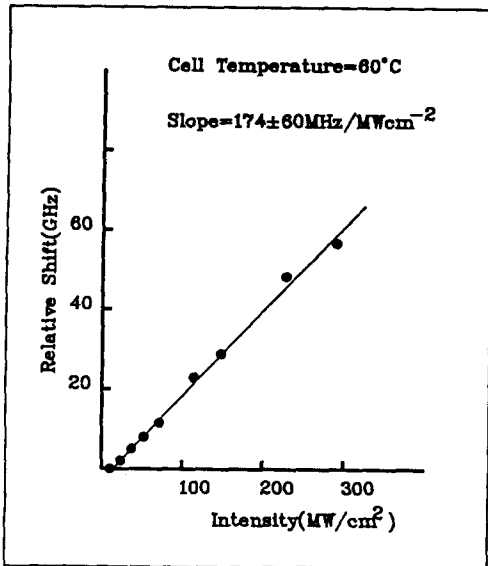


그림 8. 광의 강도변화에 따른 이온신호의 최고치가 관측된 파장의 이동[과정 I].

IV. 실험결과

1. 3S → 4D → 연속상태 이온화[과정 I]

그림 7은 I가 각각 31 MW/cm², 240 MW/cm²일 때의 이온 스펙트럼을 규격화하여 그린 것이며 레이저에 의해 공명 에너지준위가 이동되었음을 보여준다. N.D. 필터를 사용하여 광의 세기를 변화시키면서 에너지준위의 이동 정도를 관측한 결과를 그림 8에 나타내었다. 그림에서 기울기는 AC Stark 이동계수이며 측정값은 174 ± 60 MHz/MW/cm²이었다. 표 1에 4D 준위의 AC Stark 이동계수에 대한 기존의 이론 및 실험치를 수록하

표 1. AC Stark 이동의 이론 및 실험값.

관련 준위	결과[Hz/W/cm ²]	참고문헌
3S-4D	179.1 · I	[2]
(이론값)	178.8 · I	[5]
3S-4D (실험값)	105 ± 50 · I	[6]

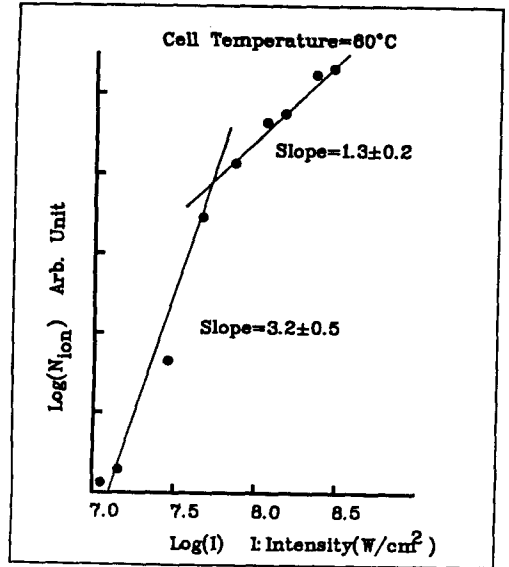


그림 9. 레이저 강도 변화에 따른 이온신호 최고치의 변화[과정 I].

였으며 본 실험의 결과와 잘 일치함을 알 수 있다.

그림 9는 광의 세기에 따른 이온신호의 최고점의 변화를 나타낸 것으로서 30 MW/cm²까지는 I³에 비례하다가, 그 후 I^{1.3}에 비례하며 포화현상을 보인다. 이론적 계산에 의하면, (5) 광의 세기가 세어지면서 이온화 확률은 1에 가까워지므로 그림에서의 기울기는 광의 세기가 세어짐에 따라 0에 가깝게 되어야 하나, 광속 내에서 원자가 포화되는 영역이 증가하는 현상으로 인해 일정 기울기를 보여준다. (7)

그림 10은 이온화 반응셀의 온도가 60°C일 때 레이저의 세기에 따른 이온 스펙트럼의 반치폭의 변화를 나타낸다. 이온 스펙트럼에 영향을 주는 요인으로서는, 1) AC Stark 이동, 2) 레이저 강도의 시간적 및 공간적 비균일성, 3) 레이저의 선폭, 4) pressure broadening, 5) 기저준위와 여기준위 사이의 Rabi oscillation으로 인한 power broadening, 6) 여기준위와 연속상태와의 결합에서 생기는 이온화율 등이 있는데, 1)과 5)는 2)와 결

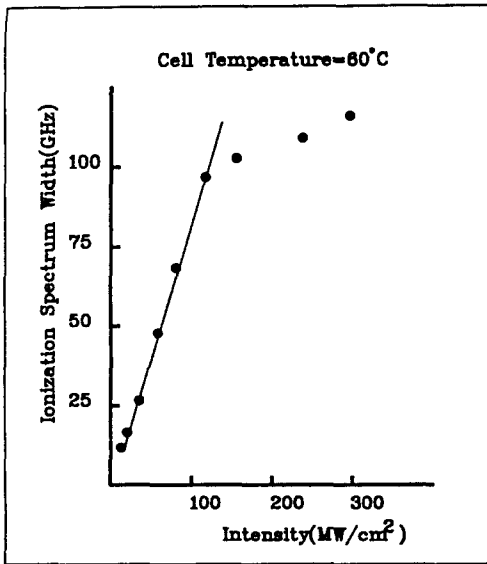


그림 10. 이온화 경로가 과정 I 일 때, 스펙트럼 반치폭의 강도 의존성.

합하여 스펙트럼의 비대칭성과 선폭을 증가시키고, (3) 3)과 4)는 광의 세기에 무관한 양으로서 관측치에 미치는 영향이 작으며, 5)와 6)은 광의 세기에 비례하며 선폭을 증가시킨다.

실험에서 관측된 반치폭은 레이저의 세기 I 가 120 MW/cm^2 근처까지 증가할 때는 $610 \pm 80 \text{ Hz/W/cm}^2$ 의 기울기로 광의 세기에 비례하다가 그 이상일 때 포화현상을 보이기 시작한다. 2광자 전이에서 power broadening에 의한 선폭은 Rabi 주파수와 같으므로⁽⁸⁾ 표 2와 3에 나타난 Rabi 주파수와 이온화율의 계산값을 실험치와 비교하면 선폭이 광의 세기에 비례하는 현상은 주로 power broadening에 의한 것이라 유추되며, 계산값에 비해 선폭이 증가된 결과는 레이저의 시간적, 공간적 비균일성에 따른 AC Stark 이동의 변화와 여기준위의 이온화율로 인한 영향으로 추정되며 레이저의 강도가 커지면서 선폭의 증가가 둔화되는 현상에 대해서는 현재 연구중에 있다.

2. 3S → 5S → 연속상태 이온화[과정 II]

관측된 이온화 스펙트럼의 line shape는 과정 I에 비해 비대칭성이 증가하였다. 이러한 비대칭성은 AC Stark 이동과 Rabi 주파수의 비가 클수록 두드러짐이 알려져 있다.⁽⁹⁾ 그림 11은 셀의 온도가 95°C 일 때, 과정 II에 대한 이온신호 스펙트럼의 반치폭 변화를 나타내

표 2. 3S → 4D 전이의 Rabi 주파수 계산값.

2광자 전이준위	계산치 [Hz/W/cm ²]	참고문헌
3S → 4D	$202 \cdot I$	[2]
	$4D(5/2) = 88 \cdot I$	[5]
	$4D(3/2) = 113 \cdot I$	[5]

표 3. 4D 준위의 1광자 이온화율 계산값.

이온화준위	계산치	참고문헌
4D	$7.3 \cdot I$	[2]
	$4D(5/2) = 1.5 \cdot I$	[5]
	$4D(3/2) = 1.5 \cdot I$	[5]

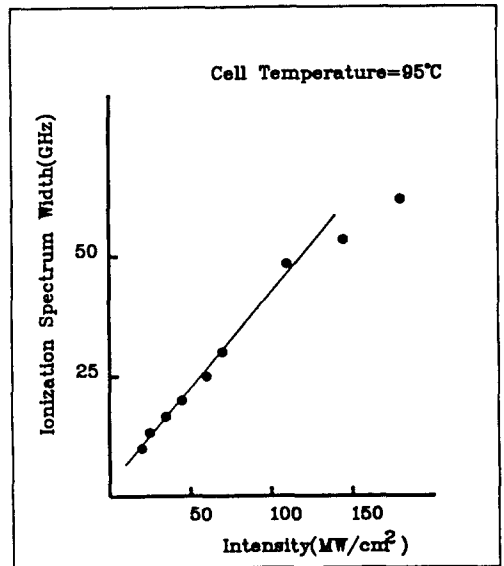


그림 11. 레이저 강도에 따른 이온신호 스펙트럼의 반치폭 변화[과정 II].

며, 이온 스펙트럼의 반치폭은 I 가 110 MW/cm^2 가 될 때까지는 $350 \pm 50 \text{ Hz/W/cm}^2$ 의 기울기로 비례함을 보여준다. 과정 I에 비해 과정 II의 반치폭은 절반 정도로 2광자 Rabi 주파수도 절반 정도임을 알 수 있다. 과정 I과 II에서 power broadening이 크게 나타난 이유는 3P real 준위가 3S 준위에서 1광자로 오르는 virtual 준위와 근접해 있어 2광자 전이율을 상승시킨 결과이며 과정 I에 비해 과정 II의 power broadening이 작게 나타난 이유는 과정 II의 경우 virtual 준위와 3P real 준위와의 에너지차가 더 크고, Na 원자의 준위들 간의 line strength의 계산값을 참조하면⁽⁹⁾ 5S 준위와 3P 준위와의 전기 쌍극자 moment는 3P와 4D 준위

사이의 전기 쌍극자 moment 보다 작기 때문이다.

5S 준위를 경유한 이온화에서 AC Stark 이동은 스펙트럼상에 나타난 최고치 이동의 정도가 작아 정확히 관측할 수 없었다. 레이저 강도의 변화에 따른 line shape의 변화가 두드러짐을 이용하면, AC Stark 이동계수는 식 (3)-(5)를 시간적 및 공간적인 레이저 강도의 변화에 대하여 푼 후 실험에서 얻은 이온 스펙트럼의 line shape을 fitting하여 구함이 더 유리하리라 생각된다.

레이저의 강도에 따른 이온화율의 변화 경향은 과정 I과 비슷하나 포화현상이 일어나는 강도는 70 MW/cm²으로서 과정 I에 비해 크며, 이온신호의 크기는 동일 원자밀도에서 과정 I에 비해 20-25 배 정도 작았다. 이는 3S 준위에서 5S 준위에서의 2광자 전이율이 3S → 4D에 비해 작고, 5S의 이온화 단면적이 4D에 비해 10 배 정도 작음에 기인한다.⁽¹⁰⁾

V. 결 론

다광자 이온신호의 검출을 위한 레이저 장치와 반응셀을 제작하여 Na의 4D와 5S 준위를 경유한 2광자 공명 3광자 이온화 실험을 각각 실시하였다. 레이저의 강도를 변화시키면서 AC Stark 이동, 이온 스펙트럼의 선 폭변화, 이온신호의 크기변화 등을 관측하였으며 이들 실험치를 이론값과 비교 검토하였다.

특히, 이온 스펙트럼의 선폭은 주로 power broadening에 의하여 광의 세기에 비례함을 관측했으며, 이온신호의 크기는 포화 강도 이하에서는 I³에 비례하고 그 이

상에서는 I^{1.3}에 비례하며 포화되었다. 또한, 3S → 4D 전이를 통한 이온화 과정은 3S → 5S 전이를 통한 이온화 과정보다 2광자 Rabi 주파수와 이온화 단면적이 더 큰 결과, 이온신호도 20-25 배 증가하여 보다 효율적인 이온화 경로임을 보였다.

참 고 문 헌

- [1] L. J. Radziemski, R. W. Solarz, and J. A. Paisner, *Laser spectroscopy and It's Applications* (Dekker, 1987).
- [2] P. Agostini, A. T. Georges, S. E. Wheatley, P. Lambropoulos, and M. D. Levenson, *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.* **11**, 1733 (1978).
- [3] M. S. Pindzola, A. H. Glasser, and M. G. Payne, *Phys. Rev.* **A30**, 1800 (1984).
- [4] A. N. Nesmeyanov, *Vapour Pressure of Chemical Elements* (Elsevier Sci. Publ. Co. Inc., 1963).
- [5] S. N. Dixit and P. Lambropoulos, *Phys. Rev.* **A27**, 861 (1983).
- [6] W. Ohnesorge, F. Diedrich, G. Leuchs, D. S. Elliott and H. Walther, *Phys. Rev.* **A29**, 1181 (1984).
- [7] I. Hanazaki, *Appl. Phys.* **B26**, 111 (1981).
- [8] V. S. Letokhov, *Laser Photoionization Spectroscopy* (Academic Press Inc. LTD) Chap. 2.
- [9] 백대현, 오영기, 이종민, 한국원자력연구소 기술보고서, KAERI/TR-132/88(1988).
- [10] A. V. Smith, J. E. M. Goldsmith, D. E. Nitz, and S. J. Smith, *Phys. Rev.* **A22**, 577 (1980).

Two-Photon-Resonant Three-Photon Ionization of Na Atom

Jong-Hoon Yi, Si-Pyo Rho, Jung-Bog Kim, Ki-Sik Kim and Jongmin Lee
Korea Atomic Energy Research Institute, TaeJon

(Received; February 3, 1990)

We studied two-photon-resonant three-photon ionization processes via 4D[channel #1] and 5S[channel #2] intermediate state of Na atom in a quartz ionization cell. For each channel, the bandwidth of ionization spectrum increased linearly with laser intensity and the ionization signal followed I³ dependence at low intensity. Compared with channel #1, ionization signal of channel #2 was enhanced by a factor of 20 - 25. The measured AC Stark shift factor of 3S - 4D transition was 174 ± 60 MHz/MW/cm².