

专题: 少电子原子分子精密谱 • 封面文章

自由电子激光制备高强度亚稳态氦原子和类氦离子*

杜小娇¹⁾ 魏龙¹⁾ 孙羽^{1)†} 胡水明²⁾

1) (深圳综合粒子设施研究院, 深圳 518107)

2) (中国科学技术大学化学物理系, 合肥 230026)

(2024 年 4 月 23 日收到; 2024 年 6 月 3 日收到修改稿)

在少电子原子精密光谱测量中, 产生高强度、单一量子态的氦原子和类氦离子是实验研究的关键, 也是改善实验测量信噪比的决定性因素. 本文提出利用自由电子激光获得高强度亚稳态氦原子和类氦离子的实验方案. 激光的制备效率可以通过求解光和原子相互作用的主方程获得, 根据拟建设的深圳自由电子激光装置的设计参数和实验条件, 计算得到亚稳态 He, Li⁺和 Be²⁺的制备效率分别可达 3%, 6% 和 2% 以上. 与常见的气体放电和电子轰击等制备方法相比, 激光激发产生亚稳态原子/离子不仅可以提高制备产率, 也可以降低放电时产生的电子、离子以及光子等高能杂散粒子的影响. 利用自由电子激光激发制备亚稳态氦原子和类氦离子有望应用于多个研究领域.

关键词: 亚稳态氦原子和类氦离子, 精密光谱, 自由电子激光, 测量信噪比, 制备效率**PACS:** 02.60.Cb, 21.45.-v, 32.30.-r, 41.60.Cr**DOI:** 10.7498/aps.73.20240554

1 引言

氦原子和类氦离子是最简单的少体粒子体系, 其长寿命亚稳态在实验^[1-25]和理论^[26-36]方面已经被广泛研究. 与基态相比, 亚稳态涉及的跃迁大多集中在可见和红外波段, 用商用激光器即可实现. 因此可以将亚稳态作为“等效基态”来开展相关实验研究. 同时, 理论学家认为氦原子或类氦离子亚稳态 2³S 至其他能级的跃迁对量子电动力学 (quantum electrodynamics, QED) 效应比较敏感, 使得精密光谱领域中大量工作集中于亚稳态氦原子或类氦离子精细和超精细能级结构^[1,7-10,14-20,29-35]、Zemach 半径^[19,34]以及核电荷半径^[11,13]等的高精度测量. 其中, Be²⁺精密光谱的研究大多局限于理论工作, 若未来可以实现高精度的实验测量, 将对少体系统中检验相对论效应、高阶 QED 理论和

原子核效应有重要贡献^[19,33]. 氦原子 2³P 精细能级是决定精细结构常数 α 的重要跃迁. 该方案由 Schwartz 于 1964 年提出, 并给出了 10⁻⁶ 量级精度的精细结构常数^[21]. 最近 20 年来, 氦原子 2³P 精细结构实现了高精度测量, 测量精度逐渐由 kHz 提升到亚 kHz 甚至更高水平^[1,7,10,11,14,16-18]. 然而, 这些高精度的实验和理论结果之间显现出分歧, 例如, 2018 年加拿大 York 大学 Hessels 课题组^[7]报道了氦原子精细结构能级 2³P₁ - 2³P₂ (约 2.3 GHz), 该结果的测量不确定度达到 1 × 10⁻⁸, 与修正量子干涉效应后的分离振荡场光谱结果^[15]相符, 但是结果值较目前理论计算结果偏低^[29], 同时比中国科学技术大学课题组 2017 年报道的结果^[11]低 2.9 倍标准差. 对于氦原子 2³P 精细结构能级 ν_{01} (2³P₀ - 2³P₁, 约 29.6 GHz), Heydarizadmotlagh 等^[1]近期报道了 60 Hz 测量精度的最新结果, 不确定度为 2 × 10⁻⁹, 这比该实验室早前报道的结果高约 4.5 倍

* 国家自然科学基金 (批准号: 12304291, 22241301, 91736101, 12393822) 和国家科技部博士后基金 (批准号: 2022M723062) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: sunyu@mail.iasf.ac.cn

标准差^[18], 比中国科学技术大学课题组的结果^[11]高 6.7σ , 由于目前理论计算精度为 1.7 kHz, 所以目前理论和各实验之间的结果均符合^[29]. 这些结果表明, 相关实验工作中可能仍有一些未知的系统效应还未被发现, 需要发展更多的实验测量方法来检验, 进而避免这些系统误差、提高实验测量精度.

此外, 因为 2^3S 亚稳态氦原子或类氦离子自身携带较高的内态能量, 当一个亚稳态氦原子或离子与另一个原子或分子碰撞的电离能量低于该能量时, 会发生电荷转移过程, 即电子从中性原子或分子跳到氦原子或类氦离子的 $1s$ 轨道, 并伴随 $2s$ 轨道电子电离^[22-24]. 而且, 氦原子和类氦离子体系简单, 便于开展高精度电子结构和势能面的理论计算模拟^[25,36]. 在化学反应动力学领域中, 极低温度原子/离子与分子的碰撞研究有助于理解共振量子效应(如 Shape 共振和 Feshbach 共振等)的物理发生机制, 相关数据也可以为理论模型的优化和数据库的建立提供基准^[22,23,25,36]. 无论是精密光谱测量还是碰撞反应动力学, 相关实验研究的关键都是产生高强度、单量子态的氦原子或类氦离子, 这也是本工作关注的重点.

为了获得亚稳态氦原子或类氦离子, 气体放电和电子轰击等是常用的制备方法, 通过带电粒子和靶粒子间的能量交换, 可以获得包括 2^3S 和 2^1S 亚稳态的原子、离子以及高能紫外光子在内的多种粒子^[37,38]. 然而, 这些方法在制备 2^3S 亚稳态原子或离子的同时, 大量杂散粒子的产生会引起背景噪声, 进而影响实验测量信噪比, 而且电子碰撞还会造成亚稳态原子退激或直接电离从而降低亚稳态原子布居数. 此外, 气体放电和电子轰击方法的制备条件苛刻, 对环境的稳定性和粒子持续放电有较高要求, 目前能够实现氦原子 2^3S 态的激发效率约在 10^{-4} — 10^{-5} 量级, Li^+ 和 Be^{2+} 制备效率在 1%—3%^[39,40]. 惰性气体碰撞和激光电荷转移也是制备亚稳态离子的实验技术, 虽然这些方法可以实现高效率制备, 但是实验中所需离子及原子束的能量均比较高, 后一种技术目前还没有实验报道.

除了上述方法之外, 利用光也可以激发制备亚稳态氦原子或离子, 该方法可以克服制备效率低和实验难度大的问题, 同时也可以降低放电时产生的电子、离子以及光子等高能杂散粒子的影响. 一种方案是利用多光子激发, 包含单色多光子和多色多光子跃迁, 这些过程涉及基态-中间态-亚稳态的激发过程^[41,42]. 对于前者, 中间态可能是虚能态, 需

要较高的激光功率密度以增加拉比频率来实现跃迁. 对于多色多光子跃迁, 要求多束激光均与原子跃迁能级共振, 且激光的光强足够高. 另一种方案是通过单束激光直接将原子由基态激发到亚稳态, 然而由于氦原子基态至亚稳态的跃迁属于典型的光学偶极禁戒过程, 只有满足共振波长且强度足够高的光源才有可能实现. 对于简单原子/离子而言, 与基态相关的跃迁大多数集中在真空紫外波段 (vacuum ultraviolet, VUV). 目前产生 VUV 波段激光的主要方法有四波混频、同步辐射和自由电子激光等. 其中, 自由电子激光 (free electron laser, FEL) 具有高重频、高亮度和波长连续可调的突出特征. 近几年国内正在加快建设大科学装置, 高品质自由电子激光的建设为获得高强度氦原子或类氦离子束流提供了极大的优势. 深圳自由电子激光项目已正式启动, 该光源能够产生 VUV 及软 X 射线波段的激光. 其输出激光的设计脉宽 100 fs、发射谱线宽接近傅里叶变换极限, 脉冲重复频率达 1 MHz、单脉冲光子数 10^{12} photons, 激光光斑在亚毫米到 10 mm 范围内可调. 这些激光特性为实现高强度制备亚稳态氦原子和类氦离子奠定坚实基础.

为了获得高强度、单量子态的氦原子和类氦离子, 本文提出了基于自由电子激光制备亚稳态 2^3S He 原子、 Li^+ 和 Be^{2+} 离子的实验方案. 同时, 通过求解光和原子相互作用的主方程, 估计亚稳态氦原子的激发效率可高达 3%—5.5%, 与常见的气体放电和电子轰击等方法相比, 制备效率至少高 1—2 个数量级. 对于亚稳态的 Li^+ 和 Be^{2+} , 该方案制备效率预计也可以达到 2%—6%.

本文介绍亚稳态氦原子和类氦离子的应用领域和常用制备方法, 并给出相应方法的激发效率和局限性, 还提出利用自由电子激光制备高强度亚稳态原子和离子的实验方案, 有望提高亚稳态原子的制备效率. 第 2 节详细描述了亚稳态原子的实验制备方案以及制备效率模拟计算, 并与同步辐射光源进行对比. 最后, 总结了方案成果, 并对未来的工作进行总体展望.

2 实验方案与数值模拟

2.1 亚稳态原子的制备

图 1 给出了自由电子激光激发制备亚稳态氦原子的相关能级和实验装置示意图. 其中, 图 1(a)

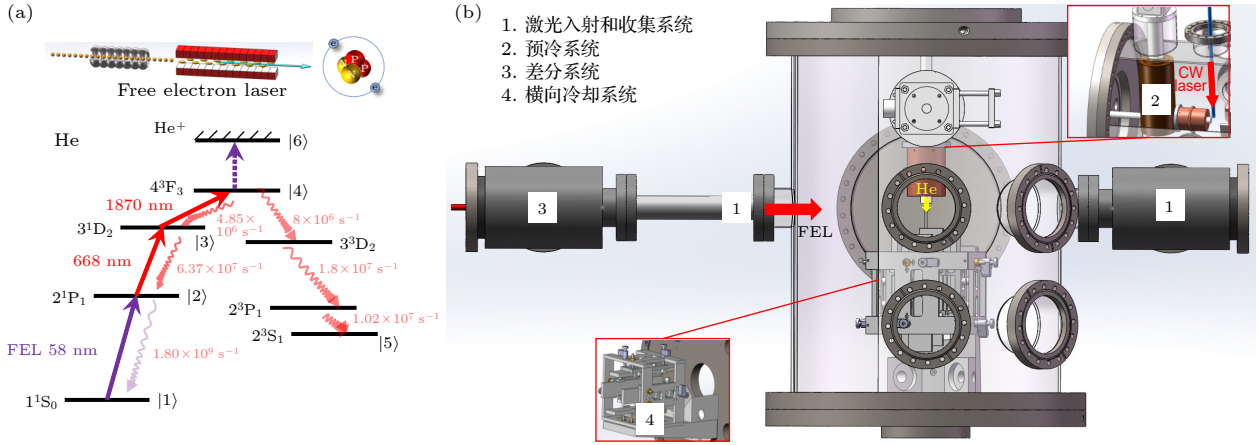


图 1 (a) 制备亚稳态氦原子的相关能级; (b) 制备亚稳态氦原子/类氦离子的装置示意图

Fig. 1. (a) Energy levels for the preparation of metastable helium; (b) schematic of designed apparatus for the preparation of metastable helium/helium-like ions.

显示了亚稳态氦原子的制备路径, 波长为 58 nm 的自由电子激光以及 667 和 1870 nm 的商用激光将氦原子由基态依次激发至 2^1P_1 , 3^1D_2 和 4^3F_3 , 三个激光对应跃迁的散射率系数分别为 $1.80 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$, $6.37 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ 和 $4.85 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$. 随后电子会自发辐射退激至亚稳态 2^3S_1 . 自由电子激光波长连续可调、高亮度且高重复频率等特点能够实现高效率制备亚稳态氦原子. 为了实现自由电子激光激发制备亚稳态氦原子, 图 1(b) 给出了相应的实验装置示意图. 该装置主要包含 FEL 激光入射和收集系统、原子束预冷系统、FEL 光路差分系统和原子束的二维横向冷却系统四部分. 经超导腔和波荡器产生的自由电子激光经过差分系统后由法兰口处入射, 在距离气体管路出口 3 mm 的位置处与氦原子或类氦离子束垂直交叉作用. 其余两束商用激光沿着垂直于 FEL 光和原子束流方向的法兰口入射, 如图 1(b) 中右上角放大区域的红色箭头所示. 这两束光为连续激光, 保证原子和激光的持续作用. 原子束流会由 Cryogenic 冷头 (RDK-408 D2) 预冷 (二级冷却温度可达 4.2 K), 冷却后的原子具有比较窄的速度分布和较低的最概然速度 (约为 160 m/s), 进而减少气体束扩散并增长与激光的相互作用时间. FEL 激光与原子作用后经法兰口出射并由 Beam Dump 收集 (Beam Dump 置于图 1(b) 右侧标记为 1 的收集系统内), 目的是防止激光在束流腔体内随意散射降低激发效率. 激光和原子作用时, 原子不仅会吸收光子能量, 还能传递光子动量, 因此原子会发生横向速度展宽. 为了减少横向

速度发散造成的束流损失, 可以利用激光对原子的散射力作用进行横向冷却, 二维横向冷却装置采用了中国科学技术大学氦原子精密光谱课题组的设计^[6], 这里不再详细介绍. 差分系统的设计是为了减少 FEL 光在传播过程中的光强损耗. 该系统由抽速为 700 L/s 的分子泵、腔室和差分管路组成, 腔室的体积约为 3 L, 差分管路的内径为 20 mm、长为 20 cm, 其流导约为 12.8 L/s, 可以保证氦原子束流腔室和自由电子激光光路间至少存在两个量级的气压差, 能够避免腔室内的气体污染激光光路. 需要说明的是, 制备亚稳态类氦离子时, 图 1(b) 中的实验装置还需要增加离子源产生部分.

2.2 数值计算激发效率

为了评估自由电子激光激发亚稳态氦原子和类氦离子的跃迁效率, 可以求解光和原子/离子相互作用的主方程, 进而探究光激发过程中氦原子/离子各个激发态布居数的时间演化过程. 参考图 1(a) 的制备能级和图 1(b) 的实验设计条件, 首先计算了单个氦原子与自由电子激光单脉冲的相互作用过程. 该体系包含 5 个束缚态, 分别为基态 |1>, 中间态 |2> 和 |3>、激发态 |4> 和亚稳态 |5>, 以及一个连续态 |6>. 其中, |1>—|5> 为电偶极禁戒跃迁, |1>—|2>, |2>—|3> 和 |3>—|4> 均为光学偶极允许跃迁. 三束激光分别与这三条偶极允许跃迁相互耦合, 激光的中心频率分别为 ω_1 , ω_2 和 ω_3 , 激光的耦合作用强度分别用 Ω_1 , Ω_2 和 Ω_3 表示. $2^1P_1 \rightarrow 1^1S_0$, $3^1D_2 \rightarrow 2^1P_1$, $4^3F_3 \rightarrow 3^1D_2$ 和 $4^3F_3 \rightarrow 2^3S_1$

跃迁的辐射速率分别为 Γ_{21} , Γ_{32} , Γ_{43} 和 Γ_{45} , 其中 Γ_{45} 包含了 $4^3F_3 \rightarrow 3^3D_2 \rightarrow 2^3P_1 \rightarrow 2^3S_1$ 多级退激过程. 需要提及的是, 处于 2^1P_1 能级的电子还有一定概率退至单重亚稳态 2^1S_0 , 容易脱离“激发-辐射”循环, 但是该跃迁的散射率量级为 10^6 s^{-1} , 是 $2^1P_1 \rightarrow 1^1S_0$ 跃迁的千分之一, 也就是说当原子经历一个循环后, 会有接近 0.1% 的原子不再参与循环. 因此, 当考虑到 $2^1P_1 \rightarrow 2^1S_0$ 的退激过程, 在光和原子多次循环作用后, 布居到三重亚稳态 2^3S_1 的效率将会比不考虑该退激路径的结果少约 0.1%. 实际计算过程中, 忽略了该退激过程的影响. 短脉冲的自由电子激光能量高且功率密度大, 因此会电离不同激发态的氦原子. 激光光致电离是重要的退相干途径, 电离截面越大退相干影响越严重. 电离截面随激光频率增加而减少, 这里只考虑激光对 4^3F 态的单光子电离效应, 电离速率为 R_i . 偶极近似和旋转波近似下, 原子随时间的演化过程遵循 Lindblad 主方程^[43], 即:

$$\dot{\rho} = -\frac{i}{\hbar} [H_A + H_{AF}, \rho] + \mathcal{D}[G]\rho, \quad (1)$$

其中, $\mathcal{D}[c]\rho \equiv c\rho c^\dagger - 1/2(c^\dagger c\rho + \rho c^\dagger c)$ 为 Lindblad 超算符, H_A 表示自由原子哈密顿量, H_{AF} 表示外场与原子相互作用哈密顿量, G 为自发辐射算符.

对于图 1(a) 所示的制备能级, 系统哈密顿量和自发辐射算符可以表示为

$$\begin{aligned} H_A &= -\hbar\Delta_1|2\rangle\langle 2| - \hbar(\Delta_1 + \Delta_2)|3\rangle\langle 3| \\ &\quad - \hbar(\Delta_1 + \Delta_2 + \Delta_3)|4\rangle\langle 4|, \\ H_{AF} &= \frac{\hbar}{2}(\Omega_1^*|2\rangle\langle 1| + \Omega_2^*|3\rangle\langle 2| + \Omega_3^*|4\rangle\langle 3| + \text{h.c.}), \\ \mathcal{D}[c] &= \sqrt{\Gamma_{21}}|1\rangle\langle 2| + \sqrt{\Gamma_{32}}|2\rangle\langle 3| + \sqrt{\Gamma_{43}}|3\rangle\langle 4| \\ &\quad + \sqrt{\Gamma_{45}}|5\rangle\langle 4| + \sqrt{R_i}|6\rangle\langle 4|, \end{aligned} \quad (2)$$

式中, 对角元 $\rho_{ii} = |i\rangle\langle i|$ 代表原子在 $|i\rangle$ 态的布居数, 非对角元 $\rho_{ij} = |i\rangle\langle j| (i \neq j)$ 代表态 $|i\rangle$ 和态 $|j\rangle$ 之间的量子相干性; Δ_1 , Δ_2 和 Δ_3 表示激光失谐量. 单光子的电离公式为

$$R_i = \xi \frac{I(t)}{2\hbar\omega}, \quad (3)$$

其中, ξ 代表电离截面, $I(t)$ 为激光的光强, ω 是电离激光的频率. 考虑 58 nm 激光对 4^3F 态的单光子电离, 其电离截面约为 $7.5 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$ ^[44].

计算时设置 FEL 光源的脉冲光子数为 10^{12} photons, 重复频率为 1 MHz, 脉宽为 100 fs,

且 FEL 光能够满足傅里叶变换极限. 668 nm 和 1870 nm 连续激光的功率均为 1 W, 所有激光的光斑尺寸均为 $10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$, 相应的饱和功率密度分别为 178 W/cm^2 , 14.0 mW/cm^2 和 $45.4 \text{ }\mu\text{W/cm}^2$. 而且, FEL 激光可以看作宽度为 100 fs 的高斯型脉冲, 当 FEL 光和原子作用时, 其余两束激光同时作用, 一定速度的原子经过 t 时间会穿过激光束, 所以激光的作用强度也随着作用时间变化. 计算时取冷却后原子的飞行速度约为 200 m/s, 原子穿过激光的时间为 $t = 50 \text{ }\mu\text{s}$, 且激光为聚焦的高斯型光束. 假定激光均与跃迁频率近共振, 即 $\Delta_1 = \Delta_2 = \Delta_3 = 0$, 当原子以飞秒量级的时间尺度进行演化时, 可以由 Python 计算得到单个氦原子在 FEL 单脉冲作用下不同能级布居数的时间演化关系, 如图 2 所示. 可以看出, 当时间演化到约 30 ns 时, 亚稳态 2^3S 的布居数趋于稳定, 此时的布居效率约为 0.004%, 如图中紫色实线所示. 激光光致电离产生离子态的布居率只有 10^{-27} , 所以图中并未展示该结果, 在后续的计算中也可以忽略该效应. 其余中间态布居数随演化时间呈现 Rabi 振荡行为, 直到激光和原子作用时间结束. 若考虑每秒内单原子的激发效率, 则需要考虑原子的飞行速度以及 FEL 光的重复频率. 这意味着原子速度越小, 光与原子的作用时间越长, 激光重复频率越高, 光与原子的作用次数也越多, 最终激发亚稳态氦原子的效率就越高. 从图 2 可以看到, 在本文设定的模拟参数条件下, 最终 2^3S 态的激发效率稳定在 0.2%. 由于自由电子激光的平均光子数有限, 若想进一步提高氦原子和类氦离子的亚稳态制备效率, 则需要

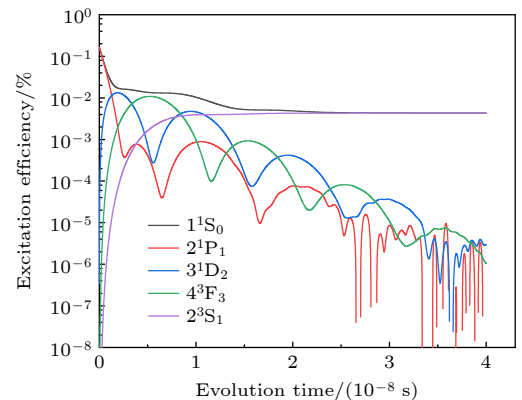


图 2 单脉冲作用时单个氦原子不同能级布居数的时间演化结果

Fig. 2. Time evolution for different energy levels of helium by single-pulse excitation.

压缩激光束斑以提高激光光强. 图 3 给出了 He 原子 2^3S_1 亚稳态制备效率随激光束斑变化的模拟结果. 可以看出, 当激光光斑聚焦到一定数值时, 即当光斑约为 0.4 mm 时, 氦原子的激发制备效率最高, 可达到 5.4%. 当光斑继续缩小后, 由于激光和原子/离子的作用时间剧烈减少, 激发效率逐渐降低. 最终考虑到原子或离子的实际束径问题, 激光光斑大小应该控制在 0.2—0.3 mm 的范围内, 相应的激发效率集中在图 3 的红色虚线框内. 亚稳态氦原子的激发效率维持在 3% 以上, 该结果比传统的气体放电或电子轰击方法得到的制备效率高 1—2 个数量级.

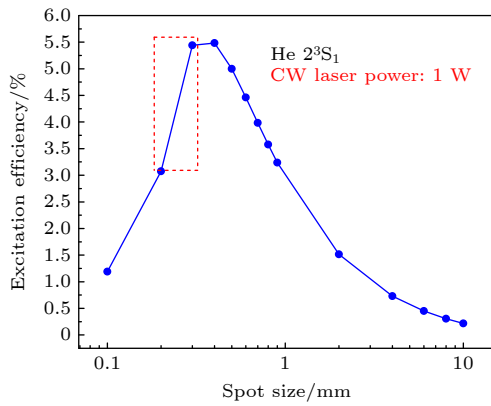


图 3 激光制备亚稳态氦原子的效率随光斑大小的模拟结果

Fig. 3. Simulation results of preparation efficiency of meta-stable helium with respect to spot size.

引言部分已经提到除了自由电子激光, 同步辐射也是具有高光通量和波长连续可调等特点的大型光源. 为了直观地理解激发效率对激光光通量的依赖行为, 图 4 给出了亚稳态氦原子激发效率随光通量的变化趋势. 计算时涉及的光源参数参照了第二代同步辐射光源——合肥光源, 储存环中电子束团的高频注入频率为 500 MHz、束团长度为 20 ps, 光斑尺寸约为 $0.1 \text{ mm} \times 0.1 \text{ mm}$, 而且弯转磁铁产生的电磁辐射通常没有相干性. 可以看出, 随着光通量的增加, 激发效率线性增加, 当光通量达到约 $2.4 \times 10^{19} \text{ phs} \cdot \text{s}^{-1} \cdot (0.1\% \text{ BW})^{-1}$ 时, 效率可以达到约 1%, 该结果和本文报道的自由电子激光制备效率相当. 从 20 世纪 70 年代起, 同步辐射光源便开始了第二代到第三代光源的技术更迭, 近些年第四代光源也逐渐应运而生, 主要目标是提供更高亮度, 电子发射度接近衍射极限的同步辐射光源.

对于目前已有的二代同步辐射 VUV 光源, 例如合肥光源、美国 ALS 和 SLAC 光源等, 所能提供的光通量一般在 $10^{11} \text{—} 10^{13} \text{ phs} \cdot \text{s}^{-1} \cdot (0.1\% \text{ BW})^{-1}$ @22 eV. 而建设数目较多的第三代同步辐射光源能量大多集中在软 X 和硬 X 射线波段. 第四代同步辐射光源目前仅在巴西 (Sirius)、瑞典 (MAX IV) 和欧洲 (ESRF EBS) 三个地区建成, 还有众多光源处于建设阶段, 其中 Sirius 的 SAPÊ 束线能够提供 VUV 波段的光源, 其光通量约为 $10^{12} \text{ phs} \cdot \text{s}^{-1} \cdot (0.1\% \text{ BW})^{-1}$, 与二代光源的参数相当. 如果未来第四代同步辐射能提供更高光通量的真空紫外光源, 则在制备亚稳态氦原子或类氦离子方面也具备重要优势. 本文报道的深圳自由电子激光项目已经明确了建设周期和科学目标, 这将为快速实现高强度亚稳态氦原子或类氦离子束流提供重要保障.

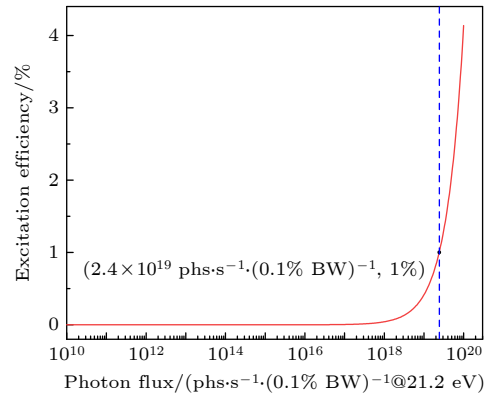


图 4 激发效率随同步辐射光通量的变化

Fig. 4. Excitation efficiency as a function of the photon flux for synchrotron radiation sources.

与氦原子类似, 自由电子激光同样能够高效率激发类氦离子 (Li^+ 和 Be^{2+}). 图 5 展示了制备亚稳态 Li^+ 和 Be^{2+} 的相关能级示意图. 光和离子相互作用的系统哈密顿量与氦原子类似, 但此时没有考虑光致电离的影响. 另外, 对于 Li^+ 和 Be^{2+} , $3^1P_1 \rightarrow 2^1S_0$ 和 $4^1P_1 \rightarrow 2^1S_0$ 跃迁的散射率分别是 $3^1P_1 \rightarrow 1^1S_0$ 和 $4^1P_1 \rightarrow 1^1S_0$ 的 3.6% 和 4.7%, 对亚稳态 2^3S_1 制备效率的影响仍然可以忽略. 当激光制备条件和氦原子一致且光斑大小为 0.3 mm 时, 计算得到亚稳态 Li^+ 的激发效率高于 6%, Be^{2+} 则在 2% 左右. 此外, 对于离子而言, 成熟的离子囚禁技术可以保证离子和激光的长时间作用^[45], 这样激光制备亚稳态离子的效率又可以提高几个数量级.

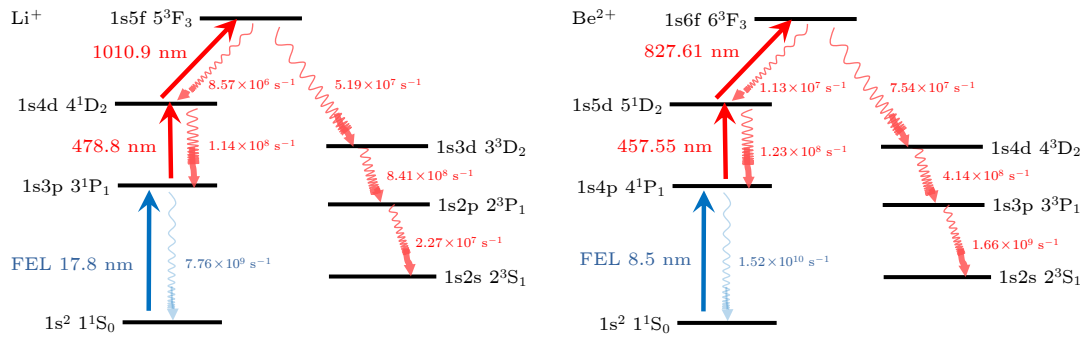


图 5 制备亚稳态 Li^+ 和 Be^{2+} 的相关能级示意图

Fig. 5. Energy levels of metastable Li^+ and Be^{2+} .

3 结 论

本工作提出了制备高强度亚稳态氦原子和类氦离子的新方法,以自由电子激光为激发源,给出了相应的实验设计方案.为了验证方案的可行性,通过计算光和原子相互作用的主方程可以得到亚稳态氦原子和类氦离子的制备效率.在满足自由电子激光脉冲光子数为 10^{12} photons,重复频率为 1 MHz,脉宽为 100 fs 的实验条件下,并用商用连续激光器同步激发,能够获得较高的激发效率.当连续激光的功率为 1 W 时,亚稳态 2^3S He 原子的激发效率最高可接近 5.4%.考虑到实际原子或离子束流直径的限制,当激光光斑大小控制在 0.2—0.3 mm 时,亚稳态氦原子的激发效率维持在 3% 以上,亚稳态 Li^+ 的效率则高于 6%, Be^{2+} 在 2% 左右.与电子轰击和气体放电等制备方法相比,激光激发可以获得制备效率较高的氦原子.而且,利用激光激发制备亚稳态氦原子或类氦离子的实验技术简单且可以降低放电时产生的电子、离子以及光子等高能杂散粒子的影响. Li^+ 和 Be^{2+} 离子有非常成熟的离子囚禁技术,可以保证离子和激光的长时间作用,这样激光制备亚稳态离子的效率可以提高几个数量级.制备高强度亚稳态氦原子/离子束流可以有效提高原子或离子精密光谱的测量精度,这也意味着若在自由电子激光激发制备亚稳态氦原子的基础上发展研究 2^3P 精细结构能级的新方法,将有望获得突破亚百赫兹水平的能级精度,进而能够确定更精确的精细结构常数,为检验 QED 理论提供重要参考.此外,为了获得更高测量精度,还需要发展新的探测技术来减少甚至避免更多的系统效应.例如,近些年提出的量子干涉效应会严

重影响精细结构能级精度,若探测目标能级时可以避免不同激发能级向下辐射的相干效应,则可以避免量子干涉效应对测量精度的影响.对于更高电荷的类氦离子,结合高电荷离子技术,同样可以激发制备到其亚稳态. X 射线自由电子激光波长覆盖范围广,在制备亚稳态高 Z 类氦离子方面同样具有显著优势.除了精密测量领域,在化学反应动力学中使用高强度的亚稳态原子或离子束流,也有助于大幅提高测量的精度和灵敏度.

感谢中国科学技术大学物理化学系董希泽博士的讨论.

参考文献

- [1] Heydarizadmotlagh F, Skinner T D G, Kato K, George M C, Hessels E A 2024 *Phys. Rev. Lett.* **132** 163001
- [2] Wen J L, Tang J D, Dong J F, Du X J, Hu S M, Sun Y R 2023 *Phys. Rev. A* **107** 042811
- [3] Henson B, Ross J, Thomas K, et al. 2022 *Science* **376** 199
- [4] Tiesinga E, Mohr P J, Newell D B, Taylor B N 2021 *J. Phys. Chem. Ref. Data* **50** 033105
- [5] Sun Y R, Hu S M 2020 *Natl. Sci. Rev.* **7** 1818
- [6] Chen J J, Sun Y, Wen J L, Hu S M 2020 *Phys. Rev. A* **101** 053824
- [7] Kato K, Skinner T, Hessels E 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 143002
- [8] Zheng X, Sun Y R, Chen J J, Hu S M 2018 *Acta Phys. Sin.* **67** 164203 (in Chinese) [郑昕, 孙羽, 陈娇娇, 胡水明 2018 物理学报 **67** 164203]
- [9] Zheng X, Sun Y, Chen J J, Jiang W, Pachucki K, Hu S M 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 263002
- [10] Feng G P, Zheng X, Sun Y R, Hu S M 2015 *Phys. Rev. A* **91** 030502
- [11] Zheng X, Sun Y, Chen J J, Jiang W, Pachucki K, Hu S M 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 063001
- [12] Vutha A C, Hessels E A 2015 *Phys. Rev. A* **92** 052504
- [13] Pastor P C, Consolino L, Giusfredi G, De Natale P, Inguscio M, Yerokhin V, Pachucki K 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 143001
- [14] Smiciklas M, Shiner D 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 123001
- [15] Borbely J, George M, Lombardi L, Weel M, Fitzakerley D, Hessels E 2009 *Phys. Rev. A* **79** 060503

- [16] Giusfredi G, Pastor P C, Natale P D, Mazzotti D, Mauro C d, Fallani L, Hagel G, Krachmalnicoff V, Inguscio M 2005 *Can. J. Phys.* **83** 301
- [17] Zelevinsky T, Farkas D, Gabrielse G 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 203001
- [18] George M, Lombardi L, Hessels E 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 173002
- [19] Sun W, Zhang P P, Zhou P P, Chen S L, Zhou Z Q, Huang Y, Qi X Q, Yan Z C, Shi T Y, Drake G W F, Zhong Z X, Guan H, Gao K L 2023 *Phys. Rev. Lett.* **131** 103002
- [20] Scholl T J, Cameron R, Rosner S D, Zhang L, Holt R A, Sansonetti C J, Gillaspay J D 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 2188
- [21] Schwartz C 1964 *Phys. Rev.* **134** A1181
- [22] Paliwal P, Deb N, Reich D M, van der Avoird A, Koch C P, Narevicius E 2021 *Nat. Chem.* **13** 94
- [23] Klein A, Shagam Y, Skomorowski W, Zuchowski P S, Pawlak M, Janssen L M, Moiseyev N, Meerakker S Y V D, Avoird A V D, Koch C P, Narevicius E 2017 *Nat. Phys.* **13** 35
- [24] Henson A B, Gersten S, Shagam Y, Narevicius J, Narevicius E 2012 *Science* **338** 234
- [25] Martin D W, Weiser C, Sperlein R F, Bernfeld D L, Siska P E 1989 *J. Chem. Phys.* **90** 1564
- [26] Pachucki K, Yerokhin V A 2023 *Phys. Rev. Lett.* **130** 053002
- [27] Yerokhin V A, Patkós V, Pachucki K 2023 *Phys. Rev. A* **107** 012810
- [28] Patkós V, Yerokhin V A, Pachucki K 2021 *Phys. Rev. A* **103** 042809
- [29] Pachucki K, Yerokhin V A 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 070403
- [30] Pachucki K, Patkós V C V, Yerokhin V A 2023 *Phys. Rev. A* **108** 052802
- [31] Yerokhin V A, Patkós V, Pachucki K 2022 *Phys. Rev. A* **106** 022815
- [32] Pachucki K 2022 *Phys. Rev. A* **106** 022802
- [33] Qi X Q, Zhang P P, Yan Z C, Shi T Y, Drake G W F, Chen A X, Zhong Z X 2023 *Phys. Rev. A* **107** L010802
- [34] Qi X Q, Zhang P P, Yan Z C, Drake G W F, Zhong Z X, Shi T Y, Chen S L, Huang Y, Guan H, Gao K L 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 183002
- [35] Johnson W R, Cheng K T, Plante D R 1997 *Phys. Rev. A* **55** 2728
- [36] Tang K T, Toennies J P 1984 *J. Chem. Phys.* **80** 3726
- [37] Cheng C F, Jiang W, Yang G M, Sun Y R, Pan H, Gao Y, Liu A W, Hu S M 2010 *Rev. Sci. Instrum.* **81** 123106
- [38] Kponou A, Hughes V W, Johnson C E, Lewis S A, Pichanick F M J 1981 *Phys. Rev. A* **24** 264
- [39] Scholl T J, Holt R A, Rosner S D 1989 *Phys. Rev. A* **39** 1163
- [40] Chen S L, Liang S Y, Sun W, Huang Y, Guan H, Gao K L 2019 *Rev. Sci. Instrum.* **90** 043112
- [41] Bergeson S D, Balakrishnan A, Baldwin K, Lucatorto T B, Marangos J, McIlrath T, O'Brian T R, Rolston S, Sansonetti C J, Wen J 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 3475
- [42] Wang J S, Ritterbusch F, Dong X Z, Gao C, Li H, Jiang W, Liu S Y, Lu Z T, Wang W H, Yang G M, Zhang Y S, Zhang Z Y 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 023201
- [43] Steck D A 2017 *Quantum and Atom Optics* (Eugene: University of Oregon)
- [44] Baig M 2022 *Atoms* **10** 39
- [45] Chen S L, Zhou P P, Liang S Y, Sun W, Sun H Y, Huang Y, Guan H, Gao K L 2020 *Chin. Phys. Lett.* **37** 073201

SPECIAL TOPIC—Precision spectroscopy of few-electron atoms and molecules • COVER ARTICLE

Free electron laser prepared high-intensity metastable helium and helium-like ions*

Du Xiao-Jiao¹⁾ Wei Long¹⁾ Sun Yu^{1)†} Hu Shui-Ming²⁾

1) (Institute of Advanced Science Facilities, Shenzhen 518107, China)

2) (Department of Chemical Physics, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

(Received 23 April 2024; revised manuscript received 3 June 2024)

Abstract

In the precision spectroscopy of few-electron atoms, the generation of high-intensity metastable helium atoms and helium-like ions is crucial for implementing experimental studies as well as a critical factor for improving the signal-to-noise ratio of experimental measurements. With the rapid development of free-electron

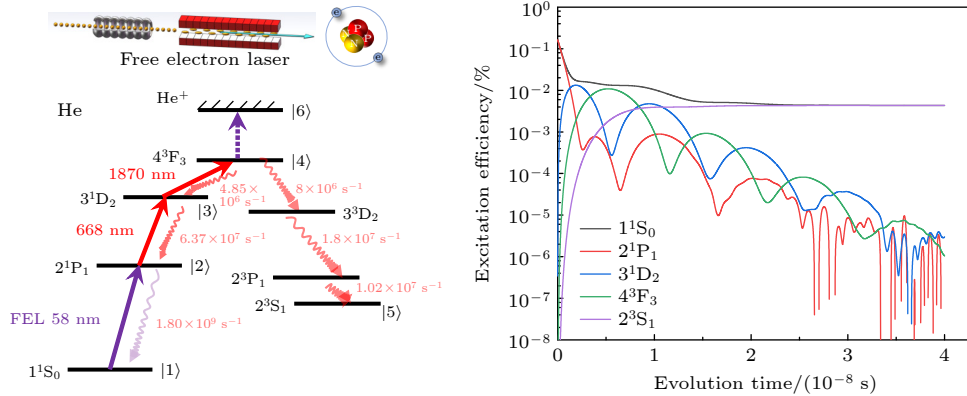
* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12304291, 22241301, 91736101, 12393822) and the Science Foundation for Postdoctoral Research of the Ministry of Science and Technology of China (Grant No. 2022M723062).

† Corresponding author. E-mail: sunyu@mail.iasf.ac.cn

laser (FEL) and technology, FEL wavelengths extend from hard X-rays to soft X-rays and even vacuum ultraviolet bands. Meanwhile, laser pulses with ultra-fast, ultra-intense and high repetition frequencies are realized, thus making it possible for FEL to prepare single-quantum state atoms/ions with high efficiency. In this work, we propose an experimental method for obtaining high-intensity single-quantum state helium atoms and helium-like ions by using FEL.

The preparation efficiency can be calculated by solving the master equation of light-atom interaction. Considering the experimental parameters involved in this work, we predict that the efficiencies of preparing metastable 2^3S He, Li^+ and Be^{2+} are about 3%, 6% and 2%, respectively. Compared with the common preparation methods such as gas discharge and electron bombardment, a state-of-the-art laser excitation method can not only increase the preparation efficiency, but also reduce the effects of high-energy stray particles such as electrons, ions, and photons generated during discharge. Furthermore, combined with the laser preparation technique, the sophisticated ion confinement technique, which can ensure a long interaction time between the ions and laser, increases the efficiency of metastable Li^+ and Be^{2+} by several orders of magnitude. Therefore, the preparation of high-intensity metastable helium and helium-like ions can improve the measurement accuracy of precision spectroscopy of atoms and ions. A new experimental method, based on FEL, to study the fine structure energy levels 2^3P of helium, has the potential to obtain the results with an accuracy exceeding the sub-kHz level. Thus, the high-precision fine structure constants can be determined with the development of high-order quantum electrodynamics theory.

In order to measure energy levels with higher accuracy, a new detection technique, which can reduce or even avoid more systematic effects, must be developed. For example, the quantum interference effect, which has been proposed in recent years, seriously affects the accuracy of fine-structure energy levels. If the interference phenomenon of spontaneous radiation between different excited states can be avoided in the detection process, the measurement accuracy will not be affected by this quantum interference effect. High-intensity metastable atoms or ions in chemical reaction dynamics studies also have better chances to investigate reaction mechanisms. In summary, the FEL preparation of high-intensity metastable helium atoms and helium-like ions proposed in this work will lay an important foundation for developing cold atom physics and chemical reaction dynamics.



Keywords: metastable helium and helium-like ions, precision spectroscopy, free electron laser, signal-to-noise ratio, preparation efficiency

PACS: 02.60.Cb, 21.45.-v, 32.30.-r, 41.60.Cr

DOI: 10.7498/aps.73.20240554

自由电子激光制备高强度亚稳态氦原子和类氦离子

杜小娇 魏龙 孙羽 胡水明

Free electron laser prepared high-intensity metastable helium and helium-like ions

Du Xiao-Jiao Wei Long Sun Yu Hu Shui-Ming

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 150201 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20240554

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240554>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

稳定的高亮度低速亚稳态氦原子束流

A bright and stable beam of slow metastable helium atoms

物理学报. 2021, 70(13): 133201 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201833>

类氦C离子诱发不同金属厚靶原子的K-X射线

K-X rays induced by helium-like C ions in thick target atoms of different metals

物理学报. 2024, 73(4): 043201 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20231477>

基于匀光管的极紫外消相干和光强均匀化仿真研究

Simulation study of decoherence and light intensity uniformization for extreme ultraviolet of uniform light pipe

物理学报. 2024, 73(11): 114201 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240335>

正电子湮没谱学在金属材料氢/氦行为研究中的应用

Research progress of hydrogen/helium effects in metal materials by positron annihilation spectroscopy

物理学报. 2020, 69(17): 177801 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200724>

高重频硬X射线自由电子激光脉冲到达时间诊断方法研究

Arrival time diagnosis method of high refrequency hard X-ray free electron laser

物理学报. 2023, 72(10): 105203 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222424>

上海软X射线自由电子激光单脉冲成像定时的设计与实现

Design and implementation of timing system for single-shot imaging at Shanghai soft X-ray free-electron laser

物理学报. 2024, 73(12): 120701 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240383>