

수은 원자에서의 공명 다광자 이온화 과정의 레이저 강도 의존성

한재민·정도영·차형기·김철중·이종민

한국원자력연구소 기초연구부

(1990년 2월 3일 받음)

수은 원자 증기에 강한 레이저 광(10-120 GW/cm²)을 조사하여 수은 원자의 공명 다광자 이온화 과정을 연구하였다. 파장 560.7nm의 광자 4개를 흡수할 때 공명준위는 6d ¹D₂이다. 수은 증기압(0.1-3.0 Torr)과 레이저 파장(559-569 nm)을 변화시키면서 큰 강도의 광원과 원자가 상호작용하여 생기는 AC Stark 이동과 line broadening의 변화를 조사하였고, 원자 밀도의 증가에 따라 이온화율의 증가가 둔화되다가 감소되는 것도 관측되었다. 이동계수 $\alpha = -0.6 \text{ cm}^{-1}/\text{GW}/\text{cm}^2$ 로 측정되었다. 특히, 이온화율의 레이저 강도 의존성을 나타내는 비선형 차수를 공명 과정에서 측정된 결과 $k=3$ 을 얻었으며, 이론적인 결과와 비교하였다.

I. 서 론

공명 다광자 이온화(RMPI: Resonant Multiphoton Ionization)는 단일광자 과정으로는 관측이 불가능하였던 중간상태들(intermediate states)의 정보들을 얻을 수 있는 특징 때문에 이에 대한 이론적, 실험적 연구가 활발히 진행되어 왔다.

공명 다광자 이온화의 특성을 연구하기 위하여 AC Stark 이동,⁽¹⁻³⁾ line broadening,^(3,4) THG(Third Harmonic Generation)⁽⁵⁾ 및 비선형 차수⁽⁶⁻⁸⁾ 등에 대하여 주로 관심을 가져 왔다. 특히 비선형 차수는 실험하는 레이저의 세기나 관측되는 이온화율의 절대치를 측정함이 없이, 포화 및 AC Stark 이동의 정도를 알 수 있기 때문에 매우 중요하게 다루어져 왔다.

비공명 다광자 이온화의 경우, 레이저 강도를 I , 원자를 이온화시키기 위해 필요로 하는 최소 광자수를 n 이라 하면, 이온화율(W)의 증가는 I^n 에 의존하므로 비선형 차수, $k=(d(\log W)/d(\log I))$ 는 단순히 n 으로 나타난다. 그러나 공명 다광자 이온화의 경우는 훨씬 복잡한 형태로 나타나며, static detuning에 따른 비선형 차수에 대한 실험적, 이론적 연구결과는 이미 많이 발표되어 왔다.

본 연구에서는 수은 원자에서 처음으로, 레이저 강도에 따라 변하는 공명 파장에 dynamic detuning을 하여 비선형 차수를 측정하였고, J. H. Eberly,⁽⁷⁾ M.

Crance⁽⁹⁾ 등의 이론을 알맞게 수정하여 구한 이론결과와 비교하였다. 또한 레이저 강도에 따른 이온화율을 관측하여, 공명준위의 AC Stark 이동과 line broadening의 변화를 조사하였으며, 수은 밀도의 증가에 따른 이온화율도 관측하였다.

II. 실 험

1. 수은 원자의 공명 다광자 이온화

수은은 다른 중금속 원소들에 비해 많은 연구가 수행되어 왔기 때문에 에너지준위들과 분광선들에 대한 분광학적 정보가 잘 알려져 있다.

그림 1은 수은 원자의 주요 에너지준위의 일부와 공명 다광자 이온화가 가능한 몇 개의 경로들을 표시한 것이다. 본 연구에서는 여러 가지 가능한 경로들 중에서 6d ¹D₂ 준위를 경유한 4-광자 공명 5-광자 이온화 과정(그림 1(b))에 대해 실험 분석하였다. 기저상태에 있는 원자가 파장 560.7nm인 광자 4개를 흡수하여 6d ¹D₂ 준위로 여기되어 공명을 이루고, 다시 하나의 광자를 흡수하여 이온화된다. 그러나 원자와 상호작용하는 레이저 광의 강도가 강하기 때문에 AC Stark 효과로 인하여 에너지준위들이 원래의 상태로부터 이동하게 되므로 실제 공명하는 광자의 파장은 변하게 된다.

2. 실험장치

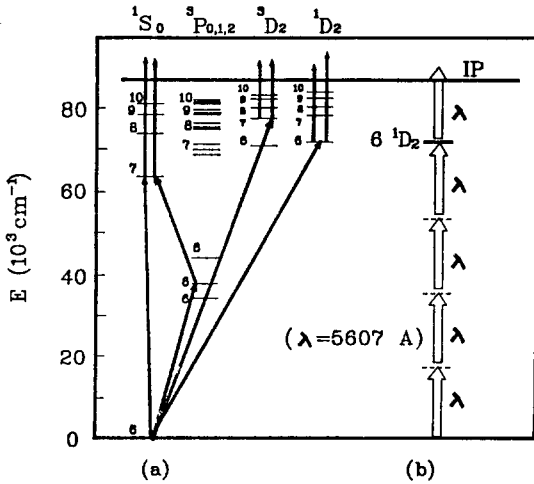


그림 1. (a) 수은 원자 에너지준위의 일부와 공명 다광자 이온화 과정의 예. (b) 실험에서 수행한 이온화 경로(4-광자 공명 5-광자 이온화).

본 연구에서 사용한 실험장치의 전체적인 구성을 그림 2에 나타내었다. 색소레이저(Lambda Physik Co. FL3002E)는 Hansch형 공진기와 두 개의 amplifier로 구성되어 있으며, 자체 제작된 Q-switched Nd:YAG 레이저의 제2조화파에 의하여 펄핑되었다. 560 nm 근처에서 레이저 출력은 최대 12mJ 정도이었고, 펄스 시간폭은 10ns, 선폭은 0.1 Å 정도로 측정되었다. 색소 Rhodamine 6G를 에탄올에 10^{-4} mol/l 로 용해시켰을 때, 발진파장 영역은 550-590nm 이었고, monochromator를 사용하여 0.2 Å 이내의 범위에서 발진파장을 교정하였다.

레이저 광과 수은 증기가 반응하는 영역에서 레이저 광의 단위면적당 에너지 밀도를 높이기 위해서 초점거리 30mm인 렌즈를 셀의 전방에 설치하였다. 수은 증기를 포함하는 셀은 20mm 직경의 석영유리로 만들어졌으며 셀 전체를 온도조절이 가능한 oven 내에 설치하였다. Oven 내의 온도는 열전대를 이용하여 측정하였고, 온도를 80-150°C로 조절함에 의하여 셀 내의 수은 증기압을 0.10-3.0 Torr 까지 변화시킬 수 있게 하였다. 레이저 광에 의하여 생성된 이온신호를 검출하기 위하여 셀 내부에 10mm 간격으로 두 개의 평면 물리브데늄 전극을 설치하고 저항 $1M\Omega$ 을 통하여 전기장을 일정하게 걸어주었다. 생성된 이온은 전극 양단에 걸린 전압에 의하여 전류를 발생시키며 이 전류가 저항을 거치면서 전압 변화를 일으키게 되고, 레이저 파장에 따른 전압 변화를

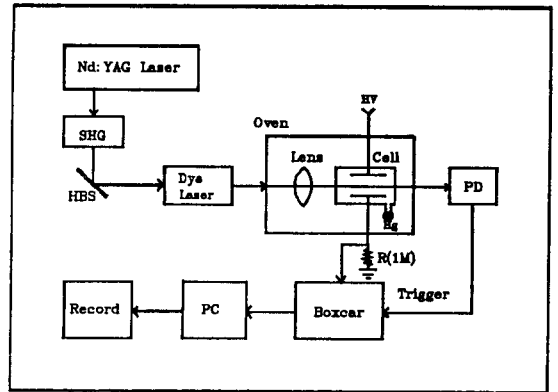


그림 2. 실험 장치의 전체 구성도. (HBS : Harmonic Beam Splitter, SHG : Second Harmonic Generation, PD : Photodiode, PC : Personal Computer).

측정함으로써 RMPI 스펙트럼을 얻을 수 있다. S/N비를 증가시키고 효율적인 데이터 처리를 위하여 microprocessor와 연결된 BOXCAR averager(SRS sr250)를 이용하였다.

본 실험에서 특히 유의한 사항 중의 하나는 색소레이저 펄핑광원의 강도를 일정하게 유지하면서 셀에 입사하는 광의 강도만을 변화시키기 위하여 optical quality가 좋은 ND(neutral density) 필터를 색소레이저 출구에 설치하였다. 펄핑광원의 강도를 조절하지 않은 이유는 색소레이저의 발진 특성(발진 선폭이나 펄스폭 등)을 변하지 않게 하여 MPI 신호에 미치는 영향을 최소화하기 위해서이다. 다음으로 레이저 광의 강도를 정확하게 측정하기 위하여 분해능이 $13\mu\text{m}$ 인 선형 CCD array를 사용하여 집중된 빔의 크기를 측정하였다. 색소레이저 출력 광의 에너지와 펄스폭은 각각 pyroelectric joulemeter(Mollectron Co. J3-09)와 photodiode를 사용하여 측정하였다. 레이저의 최대 출력은 12mJ, 펄스폭은 10nsec로 측정되었으며, 초점에서 측정된 빔의 지름은 약 $35\mu\text{m}$ 이었다. 레이저 빔의 강도는

$$I = \frac{\text{레이저의 펄스당 에너지}}{\text{레이저 빔의 면적} \times \text{펄스폭}}$$

에 의하여 구할 수 있으며, 본 실험에서 얻은 최대 강도는 약 120 GW/cm^2 이었다.

III. 결과 및 논의

색소레이저의 파장을 559-569nm 범위에서 연속적으로

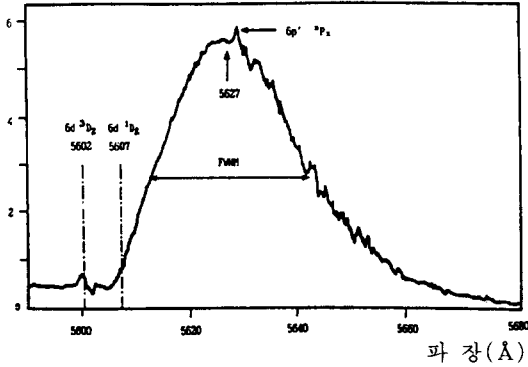


그림 3. 수은 원자의 $6d\ ^1D_2$ 준위를 경유한 4-광자 공명 5-광자 이온화 과정에 의하여 얻어진 스펙트럼. ($P=400\text{ mTorr}$, $I=100\text{ GW/cm}^2$: $6p\ ^3P_1$; 자동 이온화준위).

로 변화시키면서 관측된 수은 원자의 스펙트럼은 그림 3에 나타나 있다.

그림에서 562.7 nm 를 중심으로 큰 선폭(약 3 nm)을 갖는 peak는 $6d\ ^1D_2$ 에 의한 공명 이온화 스펙트럼이고, 560.2 nm 에서의 상대적으로 작은 peak는 $6d\ ^3D_2$ 에 의한 공명 이온화 스펙트럼이다. 레이저 빔이 없을 때 $6d\ ^1D_2$ 의 원래 공명 위치는 560.7 nm 이므로, AC Stark 효과에 의하여 약 2 nm 의 이동이 있음을 알 수 있다. 한편, $6d\ ^1D_2$ 에 의한 이온화 스펙트럼상의 563.3 nm 에서 또 하나의 뾰족한 peak를 볼 수 있는데, 이것은 $6d\ ^1D_2$ 와 $6p\ ^3P_1$ 자동화준위로의 이중공명 효과로 해석된다.^(9,10) 본 연구에서는 AC Stark 이동이 크며 이온화율이 높은 $6d\ ^1D_2$ 준위에 초점을 맞추어 수은 증기압과 레이저 강도 변화에 따른 AC Stark 이동, 이온화율 및 스펙트럼 선폭의 변화에 대한 실험을 하였고, 공명 위치에서의 비선형 차수를 측정하였다.

1. AC Stark 이동과 line broadening

원자가 강한 레이저 광에 놓이게 되면 공명준위의 이동과 line broadening이 레이저 강도에 비례하여 나타나게 되며, 이에 대해서는 이미 잘 알려져 있다.

그림 4는 레이저 광의 강도를 변화시키면서 peak의 위치가 원래의 공명위치로부터 얼마나 이동되는지를 보여주고 있다. 레이저 광의 강도가 커질수록 그에 비례하여 AC Stark 이동이 일어나고 있음을 볼 수 있으며, 그 이동의 강도를 나타내주는 이동계수 α 는 직선의 기울기를 측정함으로써 알 수 있다. 본 실험에서는 $\alpha = -0.6 \pm 0.1(\text{cm}^{-1}/\text{GW}/\text{cm}^2)$ 을 얻었다. 이 값은 이미

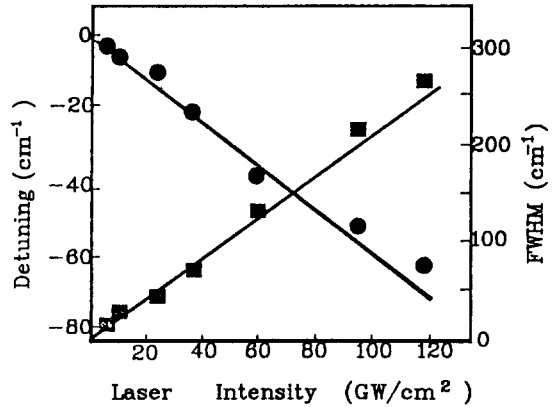


그림 4. 수은 원자의 $6d\ ^1D_2$ 준위의 AC Stark 이동(●표) 및 line broadening(■표). ($P=3.0\text{ Torr}$).

표 1. 수은 원자의 $6d\ ^1D_2$ 준위의 이동계수 비교

이동계수 α ($\text{cm}^{-1}/\text{GW}/\text{cm}^2$)	비 고
-0.53	이론치 [11]
-0.72	실험치 [11]
-1.24	이론치 [12]
-0.39	실험치 [2]
-0.6	실험치(본 실험결과)

발표된 이론적, 실험적으로 얻어진 값들의 범위내에 있음을 표 1로부터 알 수 있다.

그림 4는 레이저 광의 강도 증가에 따른 스펙트럼 선폭의 변화도 함께 보여주고 있다. Line broadening은 공명상태와 연속상태 사이의 coupling에 의한 것으로, 이론적 계산에 의하면 광의 강도에 비례하는 것으로 알려져 있다.⁽¹³⁾ 그림 4에서 본 실험의 결과가 이론과 잘 부합함을 볼 수 있다. 그러나 초점에서 레이저 광의 강도분포가 시간적, 공간적으로 균일하지 않음으로 인하여 레이저 강도에 의한 AC Stark 이동이 다르게 나타날 수 있고, 이것이 스펙트럼의 선폭과 peak의 위치에 영향을 줄 것으로 생각되며,⁽¹⁴⁾ 이에 대한 연구는 계속 진행 중이다.

2. 수은 원자밀도와 이온화율

그림 5는 이온화셀 내부에 있는 수은의 증기압이 변함에 따라 생성되는 이온의 양과 스펙트럼 선폭의 변화를 보여주고 있다. 밀폐된 공간에서 밀도는 증기압에 비례

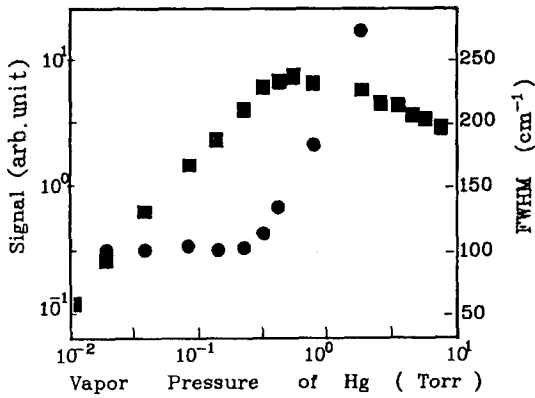


그림 5. 반응셀 내의 수은 원자 밀도 변화에 대한 이온화율(signal; ■표) 및 선평(FWHM; ●표) 변화 ($I=100 \text{ GW/cm}^2$).

하므로 oven의 온도를 측정하여 환산할 수 있다.

수은 증기압이 증가하면 이온화율이 그에 비례하여 증가하다가 포화될 것으로 예상되나, 그림 5에서는 어느 한계의 증기압을 넘으면 오히려 이온화율이 감소하는 것을 볼 수 있다. D. Normand 등은⁽¹⁵⁾ 수은의 1P_1 준위에 대한 실험에서 이러한 현상을 관측하였고, 이러한 현상을 THG(Third Harmonic Generation)의 증가에 의한 것으로 설명하고 있다. 그러나 그들은 1D_2 준위에 대해서는 이러한 감소현상을 관측하지 못하였으며, 본 연구에서는 그들의 실험 조건보다 높은 증기압까지 실험한 결과 1D_2 준위의 경우도 같은 현상이 나타나는 것을 관측할 수 있었다. 또한 증기압의 증가에 따른 스펙트럼의 선평을 측정하였으며, 그 결과 증기압이 증가함에 따라 이온화율이 감소하는 증기압 근처에서부터 스펙트럼 선평이 크게 증가하는 것을 볼 수 있었다. 선평의 증가가 매우 크기 때문에 원자들간의 충돌 효과나, 포화현상에 의한 선평 증가로 만든 설명할 수 없고, THG의 영향이 크게 작용하는 것으로 보여지며, 이에 대한 이론적인 연구가 요망된다.

3. 공명 파장에서의 비선형 차수

그림 6은 공명 파장으로 dynamic detuning 할 때 레이저 강도의 변화에 따른 상대적인 이온화율을 log-log 그래프로 나타낸 것이다. 그림 6에서 직선의 기울기가 비선형 차수를 나타내 주며, 본 실험에서는 $k=3 \pm 0.1$ 로 측정되었다.

4-광자 공명 5-광자 이온화 과정에서 포화상태를 생각하지 않을 때, 정확히 공명상태에서 비선형 차수는 다음과 같이 쓸 수 있다.^(7,8)

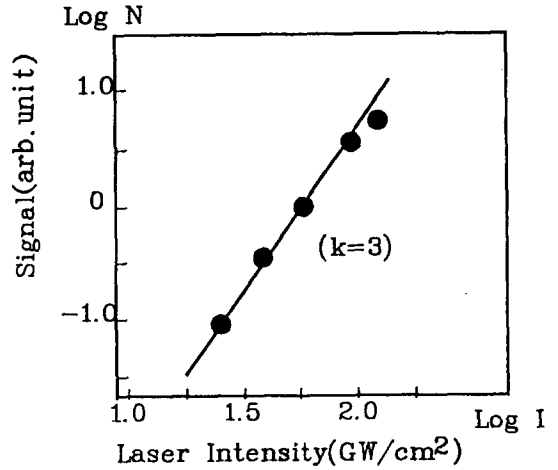


그림 6. AC Stark 효과를 보정한 공명 파장에서 이온 신호의 레이저 강도 의존성.

$$k=5 - \frac{2\gamma I}{A+\gamma I}$$

여기서 γI 는 공명준위의 이온화 선평이며, A 는 자연방출에 대한 Einstein coefficient이다. 이 식으로부터 약한 레이저 광($I < A/\gamma$)의 경우 비선형 차수는 $k=5$ 가 될 것이고, 일반적으로 강한 레이저 광($I > A/\gamma$)을 사용하는 공명 다광자 이온화의 경우는 $k=3$ 의 값을 가질 것으로 예상된다.

본 실험에서는 매우 강한 레이저 광을 사용하였기 때문에 비선형 차수는 $k=3$ 으로 예상되었으며, 측정값이 잘 일치하고 있음을 볼 수 있다.

약한 레이저 광의 경우는 비공명 다광자 이온화의 경우와 같은 이온화율을 갖게 되므로,⁽¹³⁾ 비선형 차수는 $k=5$ 를 얻을 것으로 예상되며, 이에 대한 실험도 준비 중이다.

IV. 결 론

본 연구에서는 레이저 광을 수은 원자증기에 집속시켜 4-광자 공명 5-광자 이온화 실험을 수행하였다. 높은 레이저 강도를 사용함으로 인하여 나타나게 되는 AC Stark 이동과 line broadening이 이론에서와 같이 광의 강도에 비례하여 증가함을 볼 수 있었고, $6d \ ^1D_2$ 준위의 4-광자 공명 5-광자 이온화과정에서의 이동계수는 $\alpha = -0.6 \text{ cm}^{-1}/\text{GW/cm}^2$ 로 측정되었다. 수은 증기압이 증가하게 되면 낮은 증기압에서는 이온화율이 선형적으로 증가하지만 어느 한계를 넘어서면 증가율이 둔화되다

가 오히려 감소하게 되고, 반대로 스펙트럼 선폭이 크게 증가하는 것으로 관측되었으며, 보다 더 정밀한 연구를 위하여 광전자 스펙트럼의 관측과 VUV 광자의 검출이 필요하고, 또한 선폭 증가에 대한 이론적 고찰도 요망된다. 한편, 이온화율의 레이저 강도 의존성을 나타내는 비선형 차수를 공명 파장으로 dynamic detuning 하면서 관측한 결과 $k=3$ 을 얻었으며, 이론치와 잘 일치하였다.

참 고 문 헌

- [1] M. Poirier, J. Reif, D. Normand, and J. Morellec, *J. of Phys.* **B-17**, 4135 (1984).
- [2] J. Reif, M. Poirier, J. Morellec & D. Normand, *J. of Phys.* **B-17**, 4152 (1984).
- [3] P. Lambropoulos, X. Tang, P. Agostini, G. Petite, and Anne L'Huillier, *Phys. Rev. A-38*, 6135 (1988).
- [4] W. R. Ferrell, M. G. Payne, and W. R. Garrett, *Phys. Rev. A-36*, 81 (1987).
- [5] Surya P. Tewari, *J. Phys.* **B-19**, L877 (1986).
- [6] J. Morellec, D. Normand, and G. Petite, *Phys. Rev. A-14*, 300 (1976).
- [7] J. H. Eberly, *Phys. Rev. Lett.* **42**, 1049 (1979).
- [8] Michele Crance, *J. Phys.* **B-13**, 101 (1980).
- [9] J. B. Kim *et al.* to be submitted in *Phys. Rev. Lett.* (1990).
- [10] C. E. Moore, *Atomic Energy Levels*, Vol. III, Circ. NBS 467 (1958).
- [11] P. Jean & M. Martin, *C. R. Acad. Sci.* **264**, 1709 (1967).
- [12] W. Pilz & J. Seehawer, *Proc. 12th Int. Conf. on Phenomena in Ionized Gases, Eindhoven Part I*, 146 (1975).
- [13] P. Lambropoulos, *Adv. At. Mol. Phys.* **54**, 191 (1980).
- [14] P. Kruit, J. Kimman, H. G. Muller & M. J. Van der Wiel, *J. Phys.* **B-16**, 937 (1983).
- [15] D. Normand and J. Morellec, *J. Phys.*, **B-16**, L227 (1983).

Laser Intensity Dependence in Resonant Multiphoton Ionization of Hg Atoms

Jae-Min Han, Do-Young Jeong, Hyung-Ki Cha, Cheol-Jung Kim, Jongmin Lee
Korean Atomic Energy Research Institute, Taejeon 305-353

(Received; February 3, 1990)

Resonant multiphoton ionization (RMPI) of Hg atoms is studied by focusing a high-power laser into the ionization cell. The intermediate resonant state is taken as $6d \ ^1D_2$ with the 4-photon resonance wavelength of 560.7 nm. The ionization signal is measured as Hg vapor pressure (0.1-3.0 Torr), laser intensity (10-120 GW/cm²), and laser wavelength (559-569 nm) vary. AC Stark shift and line broadening of the resonant state ($6d \ ^1D_2$) are observed and the shift factor is measured to be $-0.6 \text{ (cm}^{-1}/\text{GW/cm}^2\text{)}$. It is also observed that the ionization signal increases as the Hg vapor pressure increases up to a certain value of pressure, however, if the pressure further increases, the signal decreases. The order of non-linearity, which describes the laser intensity dependence of ionization rate, is measured to be 3 at the resonance, and compared with the theoretical results.