

Yb 原子 $|m|=0, 1$ 里德伯态 能级 Stark 结构*

方达渭¹⁾ 戴长建 郦菁 王云仙

储晓峰 徐云飞 张森

(浙江大学物理系, 杭州 310027)

(1993年11月8日收到)

用两步激发和光电离方法, 在 $0-1500\text{V/cm}$ 电场范围内, 测定了 Yb 原子 $n=17$ 至 $n=20$ 附近 $m=0$ 和 $|m|=1$ 的 Stark 光谱. 采用数值积分方法对实验研究范围内的 Stark 能级结构作了计算, 理论与实验结果基本符合. 讨论了电场中能级的抗交叉行为及其与量子亏损的关系, 并对 $m=0$ 和 $|m|=1$ 两种 Stark 能级结构的特点作了比较.

PACC: 3260S; 3280; 3150

1 引 言

70年代后期以来, 原子高激发态电场效应的研究一直是原子物理学的一个重要研究前沿. 迄今为止, 对碱金属和碱土金属原子里德伯能级的 Stark 结构已做了较多的理论和实验研究. 结果表明, 对碱金属原子, 在 $F < F_{cr}=1/3n^2$ 的低电场中, 其能级的 Stark 簇是类氢的; 在 $F > F_{cr}$ 的强电场中, Stark 簇与零场非简并能级之间存在抗交叉结构^[1,2]. 对碱土金属, Stark 簇随电场变化的基本规律与碱金属类似. 但由于碱土金属中双电子激发价态的存在, 这一些价态在电场中与邻近的 Stark 簇及零场非简并能态存在着较强的相互作用, 故碱土金属的能级 Stark 结构较碱金属复杂得多^[3-6].

对于稀土元素, 其光谱结构更为复杂. 对稀土元素高激发态在静电场中能级结构的研究, 目前尚未见到有关的报道. 本文对稀土元素 Yb 原子 $n=17$ 至 $n=20$ 附近, $|m|$ 分别为 0 和 1 的里德伯能级 Stark 结构作了实验观测和理论计算, 对两种结果作了对比分析, 讨论了电场中能级抗交叉结构与量子亏损的关系, 并对不同 $|m|$ 值的能级 Stark 结构的不同特点进行了分析.

2 实验方法

实验装置与文献[7]中类似. 由同一台 Nd:YAG 激光器的三倍频光经分束后泵浦

* 国家自然科学基金资助的课题.

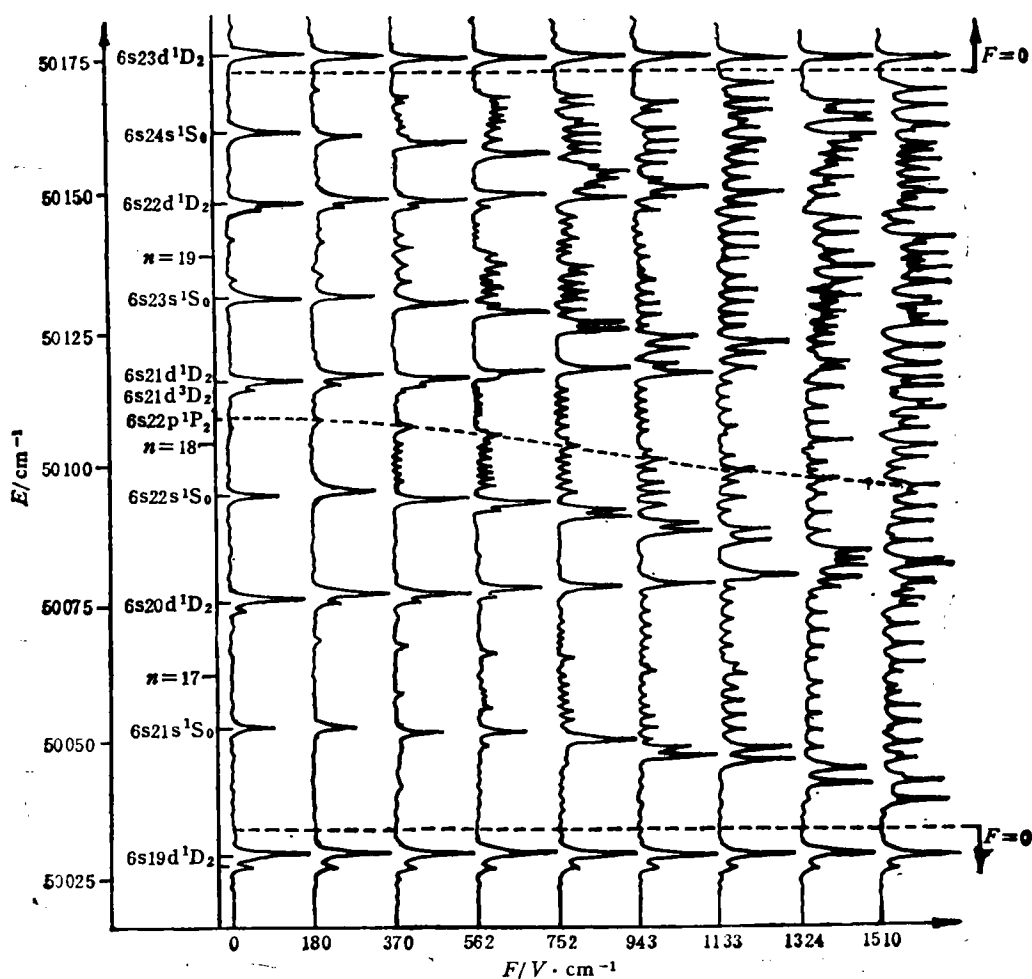
1) 中国计量学院基础部, 杭州 310034.

两台染料激光器。染料均采用 IBOP。静电场由两平行板电极产生。Yb 原子置于 $T=550^{\circ}\text{C}$ 的原子炉中,原子束从直径为 1mm 的小孔水平射出。在静电场中两束激光与原子束垂直相互作用,使 Yb 原子从基态两步激发到里德伯态,然后光电离。对应过程为



其中 λ_1 等于 3989\AA , λ_2 线宽小于 0.2\AA , 在 $4006-3983\text{\AA}$ 波长范围内扫描,使 Yb 原子由 $4f^{14}6s6p^1P_1^0$ 激发至各里德伯态。为了得到终态为确定 $|m|$ 值的 Stark 态,在光路上加偏振片,使两束激光均变为线偏振光。由于 Yb 原子基态 $J=0$, $m=0$, 因此利用 $\pi\pi$ 和 $\pi\sigma$ 偏振组合可分别得到终态为 $m=0$ 和 $|m|=1$ 的激发电子。里德伯态原子吸收两束光中任一光子电离,产生的离子由电子倍增管检测,经 Boxcar-XY 记录仪绘出里德伯态电离光谱图。

实验时从零场开始逐次增加电场值,在各固定的电场下扫描波长 λ_2 而得到各 Stark 光谱。选择零场时里德伯态 $6s19d^1D_2$ 和 $6s23d^1D_2$ 的谱线作为标志峰给 λ_2 定标,这两个



(a) $m=0$; $n=17-20$; $F=0-1510\text{V/cm}$

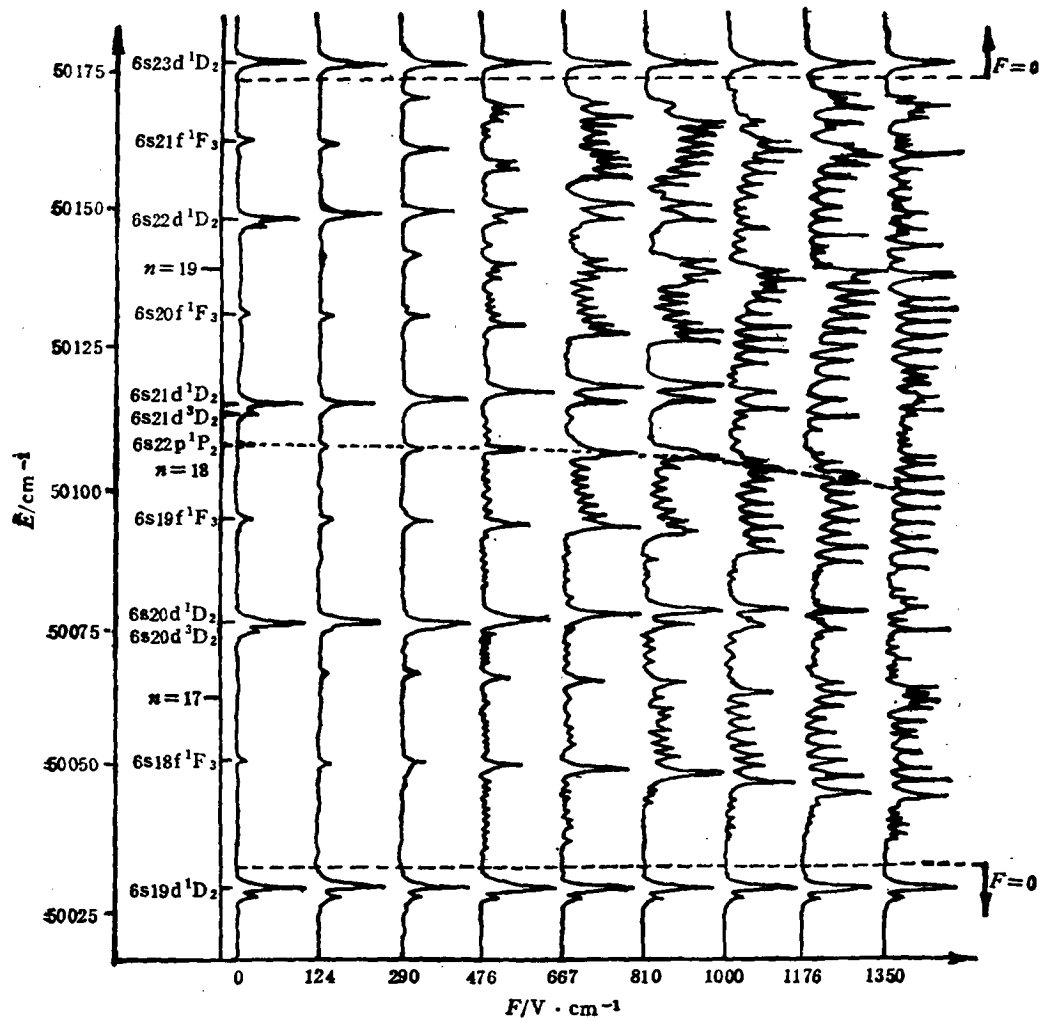
(b) $|m|=1$; $n=17-20$; $F=0-1350\text{V/cm}$

图1 Yb 原子 Stark 图

态的激发波长分别为 4006.1\AA 和 3982.7\AA ^[8]。由于 λ_2 扫描范围较小, 在此范围内认为波长的变化是线性的。当 λ_2 扫描至接近标志峰时, 用一开关使极板上的直流电压切换成比激光脉冲滞后 $0.5\mu\text{s}$ 的脉冲电压, 作为零场离子收集电压, 以保证 $6s19d^1D_2$ 和 $6s23d^1D_2$ 的激发和电离过程在零场中进行。

3 实验结果

图1为不同外电场下扫描得到的Yb原子 $n=17$ 至 $n=20$ 附近的Stark图。图1中分别标明了零场时各里德伯态的位置, 其中 $6s19d^1D_2$ 和 $6s23d^1D_2$ 作为波长标志。零场时禁戒跃迁的P态和F态位置亦同时标于图1上, 以便在外加电场后对这些态的位置

变化进行观察。

图 2 给出电场强度 $F = 820 \text{ V/cm}$ 时 Yb 原子 $m = 0$ 和 $|m| = 1$ 的 Stark 光谱的比较。这一场强值小于按氢原子一阶微扰给出的 $n = 18$ 和 $n = 19$ 两 Stark 簇能级第一次相交处的场强 $F_{cr} = 1/3n^2 \approx 900 \text{ V/cm}$, 但大于 $n = 19$ 与更高的 $n = 20$ 两 Stark 簇第一次相交处的场强 $F_{cr} \approx 690 \text{ V/cm}$ 。图 2 中 $n = 18$ 至 $n = 20$ Stark 簇谱线分别表征了 Yb 原子里德伯态在低电场区 ($F < F_{cr}$) 和强电场区 ($F > F_{cr}$) 的能级特征。

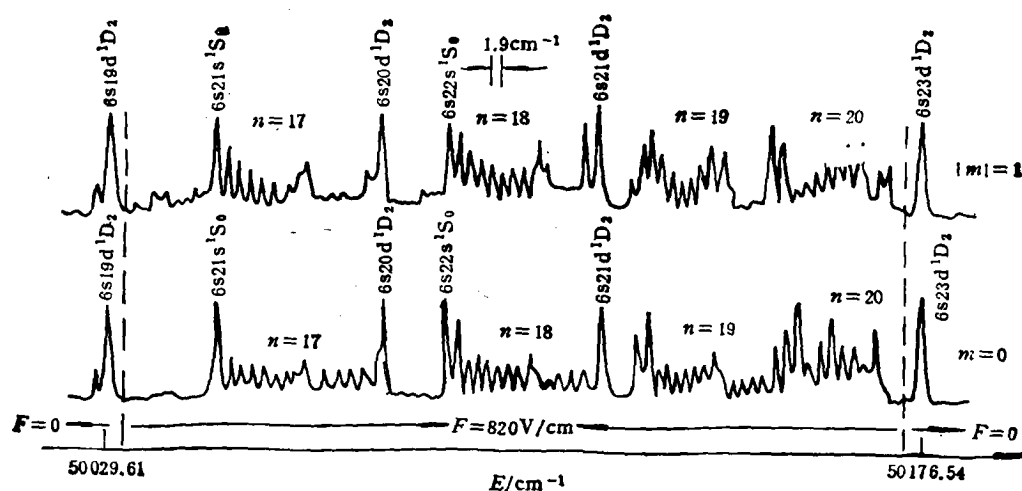


图 2 Yb 原子 $m = 0$ 和 $|m| = 1$ 的 Stark 光谱对照图 $F = 820 \text{ V/cm}$

4 理论计算

处在外电场中的类氢原子, 当外电场较低可视为微扰时, 其 Stark 相互作用矩阵元在球坐标表象中可表为

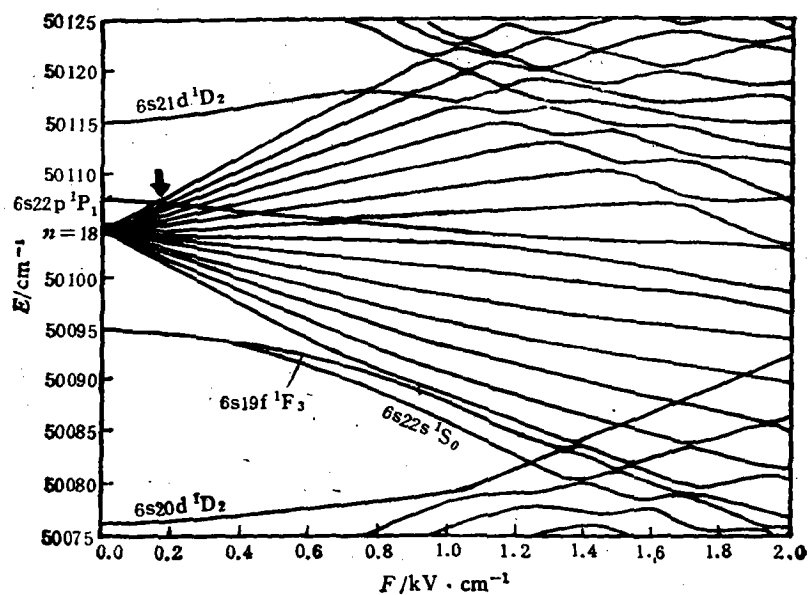
$$\langle Elm | Fz | E'l'm' \rangle = \delta_{mm'} \delta_{l,l\pm 1} F \langle lm | \cos\theta | l'm' \rangle \cdot \langle El | r | E'l' \rangle. \quad (1)$$

式中确定的全部矩阵元构成包含 Stark 相互作用的能量矩阵。如能求得所有的矩阵元, 再将该矩阵进行对角化即可获得相关的能量本征值, 从而可以确定该原子的 Stark 能级结构。由(1)式可见, Stark 矩阵元可化为角度矩阵元 $\langle lm | \cos\theta | l'm' \rangle$ 和径向矩阵元 $\langle El | r | E'l' \rangle$ 的乘积。其中角度矩阵元可利用球谐函数的基本运算获得。

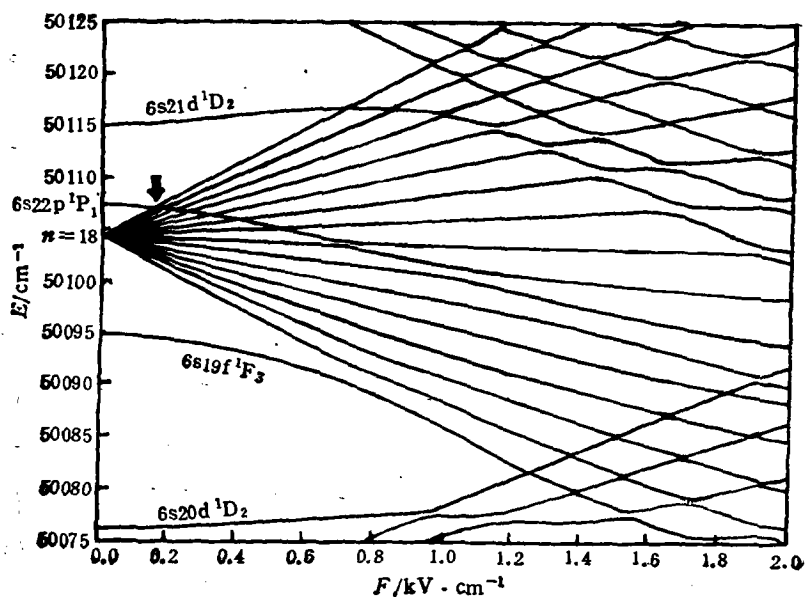
径向矩阵元的求解有着多种方法。通过对径向波函数进行数值积分来求出矩阵元的方法自 70 年代末已被许多研究者所采用。其中有代表性的如 Zimmerman 等人对全部碱金属原子 $n = 15$ 附近能级 Stark 结构的计算^[1]和对碱土金属 Ba 原子 $n = 12$ Stark 簇能级结构的计算^[2], 以及 Bolzinger 等人对 Ba 原子 $n = 17$ Stark 簇能级的计算^[3]等, 这些计算与实验结果均很好符合。这种数值积分方法的基本思路是把所研究的里德伯态原子近似视为单电子原子, 即把外电场中的一个高激发态原子视为一个电子与一个等效原子实在外电场中相互作用。这样, 在远离原子实处, 电子的波函数可采用库仑函数近

似,而在原子实范围内,外电场的影响可忽略.径向波函数的数值积分从原子外部进行,当接近原子实内部时,解开始发散,此时令积分结束.

Yb 原子的基态为 $4f^{14}6s^2 1S_0$, 具有满壳层的 $4f$ 电子,其电子组态和能级结构与碱土



(a) $|m|=0$; $n \sim 18$; $F=0-2000 \text{ V/cm}$



(b) $|m|=1$; $n \sim 18$; $F=0-2000 \text{ V/cm}$

图3 Yb 原子 Stark 图(理论值)

金属相似。当其中一个 6s 价电子被激发到高 n 能级时,可把它等效为一个电子和具有一个未激发 6s 价电子的离子实构成。显然,对于 Yb 原子里德伯态的这种“类氢”结构,应用上述数值积分方法在物理上是合理的。这里,我们尝试把这一方法推广到 Yb 原子里德伯态 Stark 结构的计算。

图 3 给出采用数值积分方法得到的 Yb 原子 $n = 18$ 簇附近 $m = 0$ 和 $|m| = 1$ 的 Stark 图。计算中未考虑精细结构分裂及三重态和价态的影响。计算时所取主要参数说明如下: Yb 原子里德伯常数 $R_{Yb} = 109736.96 \text{cm}^{-1}$; Yb 原子第一电离限 $I_1 = 50443.08 \text{cm}^{-1[9]}$; 各 l 能级的量子亏损由已发表的 Yb 原子里德伯态能级数据^[8-12]得出。为保证计算精度,能量矩阵对角化后非对角元最大上限值设定为 $\epsilon = 0.05 \text{cm}^{-1}$, 此值远小于我们实验的不确定度; 电场强度的计算步长取 2V/cm 。图 3 中每一条曲线由 1000 个能量本征值连接而成。计算时电场的取值范围大于实验所限定的范围,目的是揭示在接近经典电离限 ($F \sim 1/16n^4$) 时 Stark 结构的行为特征。

5 讨 论

5.1 能级的抗交叉结构

静电场中能级的抗交叉结构是类氢原子与氢原子能级 Stark 结构的主要差别。文献[1]中对碱金属得出,当一个态的量子亏损与最邻近的整数之差 δ_i 较大时,在电场中它会受到相邻 Stark 能级的较强排斥。这一规律在碱土金属 Sr 和 Ca 原子的实验中也得到了验证^[5,6]。Yb 原子 $n = 18$ 簇附近各零场态的能量、量子亏损和 δ_i 值列于表 1^[8-12]。由表 1 可见, $^1S_0, ^1D_2, ^1F_3$ 态均具有较大的 δ_i 值, δ_0 约为 0.26, δ_2 约为 0.29, δ_3 在 0.23—0.25 之间。在 $m = 0$ 的 Stark 图中可以看到, 1S_0 态在接近 Stark 簇之前只有很小的二阶位移,但在接近 Stark 簇时受到明显的排斥,转为一阶 Stark 效应且并入扇形的 Stark 簇内; 1F_3 态在 $m = 0$ 和 $|m| = 1$ 的 Stark 图中均表现出与 1S_0 态类似的由二阶 Stark 效应到一阶效应的转变,受 Stark 簇的排斥明显可见。当 $F > F_c$ 时, 1S_0 态和 1F_3 态先后与相邻的 Stark 簇产生抗交叉,形成典型的抗交叉结构。与此相对照的是 δ_i 最大的 1D_2 态在 $m = 0$ 和 $|m| = 1$ 两种 Stark 图中自始至终均未表现出线性 Stark 效应的特征。它被两侧的能级排斥并挤压在两个 Stark 簇之间,在电场加大到约 800V/cm 时与 Stark 簇产生强烈的抗交叉行为,使整个 Stark 结构产生显著的扰动。这种扰动的程度在 $m =$

表 1 Yb 原子 $n = 18$ 附近有关零场态的能量、量子亏损和 δ_i 值

组 态	能量/ cm^{-1}	量子亏损	δ_i	组 态	能量/ cm^{-1}	量子亏损	δ_i
6s22s 1S_0	50094.71	4.256	0.256	6s20d 3D_2	50074.44	2.751	0.249
6s23s 1S_0	50130.76	4.260	0.260	6s21d 1D_2	50115.18	2.711	0.289
6s21p 1P_1	50067.64	3.908	0.092	6s21d 3D_2	50113.67	2.753	0.247
6s22p 1P_1	50107.50	3.922	0.078	6s19f 1F_3	50095.25	1.234	0.234
6s20d 1D_2	50076.05	2.713	0.287	6s20f 1F_3	50131.12	1.250	0.250

0 的情况下比 $|m|=1$ 的情况下更为剧烈, 原因可能与前一种情况下 1D_2 态外侧存在着与其强烈排斥的 1S_0 态有关。

δ_1 小于 0.1 的 1P_1 态在 Stark 图中的走向是十分令人感兴趣的。实验中 1P_1 态在电场很小时即由于 Stark 混合而得到布居。在实验图上从弱场开始按照谱线强度追踪 1P_1 态的走向时, 好象 1P_1 态在低电场区即穿入了 Stark 簇 (图 1 中以点线标出了这一“走向”)。但理论计算的 Stark 图显示 1P_1 态并未穿入 Stark 簇内。在似乎是能级交叉的位置 (图 3 中箭头所指处), 实际上发生了抗交叉, 只不过抗交叉处的能量间隔很小而已 (抗交叉处能级结构的详尽计算我们将另文报道), 这一抗交叉行为引发了 $n=18$ 簇内各子能级之间一系列的抗交叉。从图 1 还可看出, 当 1P_1 态与 Stark 簇产生抗交叉时, 1P_1 态的振子强度似乎“传递”给了与其作用的那个 Stark 能级, 并伴随着与 Stark 簇内其它子能级的一系列抗交叉而一直“传递”下去。这种抗交叉与振子强度传递的特征, 与文献 [13] 中报道的 Ba 原子 $6s82s^1S_0$ 态的情况十分类似。在 $m=0$ 的 Stark 图中, “传递”的振子强度随电场的增加而逐渐减弱, 对附近 Stark 子能级的干扰也不显著; 而在 $|m|=1$ 的 Stark 图中, “传递”的振子强度远比 $m=0$ 时为大, 且随电场加大而异常增高, 并使其短波侧的 Stark 能级近乎消失, 显示了强烈的跃迁矩干涉现象。

5.2 $m=0$ 与 $|m|=1$ 能级 Stark 结构的不同特点

从里德伯原子的类氢结构可以预期 Yb 原子里德伯能级在外电场中应有一定程度的类氢特征。从图 1 和图 3 可见, 在 $F < F_{cr}$ 的低电场区, 无论 $m=0$ 还是 $|m|=1$ 的 Stark 簇, Stark 分裂均随外电场的增加而近线性地增大。除发生抗交叉行为的子能级附近外, 各 Stark 分量的能量间隔基本相等。由图 2 可见, 当 $F=820\text{V/cm}$ 时, $m=0$ 和 $|m|=1$ 两种情况下 $n=18$ Stark 簇内相邻分量的能级间距均约为 1.9cm^{-1} , 与按氢原子一阶微扰得到的 $\Delta E=3nF^2$ 计算的结果一致。对氢原子, 当电场增加到 $F_{cr}=1/3n^3$ 时, 相邻 Stark 簇出现第一次相交, 根据此式求得的 $n=17$ 与 $n=18$ 相交处场强及 $n=18$ 与 $n=19$ 相交处场强分别约为 1190V/cm 和 900V/cm 。在 Yb 原子的实验结果中这两个场强值在 $m=0$ 的情况下约为 1240V/cm 和 960V/cm , 在 $|m|=1$ 的情况下约为 1260V/cm 和 970V/cm 。可见实验结果与氢原子微扰理论的结果较好符合。

但是, 由于 1P_1 态和 1D_2 态均在场强小于 F_{cr} 时即与 Stark 簇发生抗交叉, 它们又分别引起簇内各子能级间的抗交叉, 因此, 即使在低电场时, 抗交叉区域附近的类氢线性结构也已遭到破坏。此外, 激发方式的不同对低电场区的类氢特征有着不同的影响。在 $m=0$ 的激发方式中, 1P_1 态对 Stark 簇的线性结构影响较小, 簇内各能级谱线强度相差不大, 在靠近 1F_3 侧和靠近 1D_2 侧均未见到子能级谱线的异常增高或消失; 而在 $|m|=1$ 的激发方式中, 1P_1 态在 Stark 簇内造成的“振子强度传递”使附近能级的谱线强度显著改变, 另外在 Stark 簇与 1F_3 相邻的一侧, 各子能级谱线异常增高, 显示出在 $|m|=1$ 的激发中 1F_3 态与 Stark 簇相互作用比 $m=0$ 的激发中更为强烈。

在 $F > F_{cr}$ 的强电场区, 各 Stark 簇与邻近的低 l 非简并态及相邻 Stark 簇的相互作用加剧, 各能级间产生不同程度的抗交叉, 使 Stark 结构进一步复杂化。在碱金属

原子 Li 和 Na 的实验结果中,强电场区 $m=0$ 和 $|m|=1$ 的 Stark 结构呈现明显差异,前者已失去类氢性质,后者则仍保留了相当程度的类氢性质^[1,2]. 观察图 1 和图 3,可以看出 Yb 原子在强电场区的 Stark 结构也表现出类似特征. 在 $m=0$ 的 Stark 图中, $n=18$ 簇受到上下两侧相邻的 1D_2 态和 1S_0 态的强烈排斥和挤压,使簇内各能级从两侧向内出现明显的抗交叉结构,类氢特征基本消失. 而在 $|m|=1$ 的 Stark 图中,虽然 $n=18$ 簇靠近 1D_2 的一侧也受到强烈的排斥,使靠近该侧的簇内能级受到干扰而失去类氢特点,但在 Stark 簇与 1F_3 相邻的一侧,由于 1F_3 在场强约为 600V/cm 时逐渐并入 Stark 簇内,成为 Stark 扇形中的一个“线性态”,因此这一侧的 Stark 谱线仍保留较大程度的“线性”特征. 可以看出,强电场区 $m=0$ 和 $|m|=1$ 两种 Stark 结构类氢性的差异主要与 1S_0 态是否被激发有关.

5.3 几点分析

在我们的理论计算中,未考虑精细结构、三重态及价态的影响,同时对 Yb 原子外层电子按纯 LS 耦合处理. 实际上由于包括 Yb 在内的镧系稀土元素原子均不是严格的 LS 耦合,按 LS 耦合确定的选择定则并不严格成立,尤其在外电场干扰下更是如此^[14]. 因此,实验中与上述因素有关的现象在理论结果中难以得到预测. 现将主要的几点分述如下:

1) 由于 Yb 原子激发过程中 $\Delta J=0$ 的选择定则不严格成立,故在实验的两种激发条件下,零场时即已出现三重态 3D_2 . 在 $|m|=1$ 的 Stark 图中,可以看到当电场约为 650V/cm 时, 3D_2 态和 1D_2 态由于 Stark 位移的不同产生明显的分裂,且随着电场增大,单态和三态间组态混合加剧, 3D_2 态的谱线高度比零场时明显增大. 而在 $m=0$ 的 Stark 图中,却没有明显见到 1D_2 态和 3D_2 态的分裂. 这一现象可能与下述因素有关: 在 $m=0$ 的激发方式中,由于与 1D_2 态相邻的 1S_0 态被激发,使 1D_2 态和 3D_2 态受到 1S_0 态强烈的挤压而互相靠拢,导致在实验条件下无法分辨.

2) 根据偏振光激发的规律和 LS 耦合的选择定则,在 $|m|=1$ 的激发方式下零场时不可能布居 1S_0 和 1F_3 态. 但在实验结果中,在 1S_0 和 1F_3 的能级位置,零场时即出现一相对强度较弱的谱线. 从施加电场后这一谱线的变化规律看: 一是该谱线的强度随电场增加而增大,这与可能因激光不完全线偏振导致激发的 1S_0 态的性质不符; 二是该态与 Stark 簇抗交叉行为的特点与图 3 理论计算结果中 1F_3 态的特点一致; 三是当电场增加时,不象 $|m|=0$ 情况下那样出现 1S_0 态与 1F_3 态的分裂,说明该谱线只对应于一个态的跃迁. 根据以上情况,我们认为这一谱线属于 1F_3 态,它可能由第一步激发终态 1P_1 通过电四极跃迁产生. 这一实验事实说明对于 Yb 原子, LS 耦合所禁戒的跃迁可以发生,且跃迁几率随电场增大而增大.

3) Yb 原子里德伯态光谱不但存在着与碱土金属相似的双电子激发价态,而且由于 $4f$ 电子易被激发,出现碱土金属原子所没有的三电子激发的 $4f^{13}n_1n_2l_1l_2e$ 组态,这些组态对收敛于第一电离限的里德伯系列产生强烈的干扰^[15]. 在我们的实验能域内,由于未发现能被光学激发的价态和三电子激发态,因而实验结果与理论结果基本符合. 预期如把研究的能域扩大到价态和三电子激发态所在范围,情况将变得复杂.

6 结 论

本文的研究表明, Yb 原子里德伯能级 Stark 结构的基本特征仍与碱金属和碱土金属相似, 文献[1]中对碱金属原子得出的能级量子亏损与其抗交叉行为之间的关系, 对 Yb 原子仍然适用. 但由于 Yb 原子存在较多的与 Stark 簇相互作用较强的低 l 非简并态, 导致 Stark 结构更大地偏离类氢性质.

采用数值积分和能量矩阵对角化的方法对 Yb 原子 $n = 17$ 至 $n = 19$ 附近的里德伯能级 Stark 结构进行了理论计算, 所得结果与实验基本符合. 预示了把这一方法用于分析更复杂原子 Stark 结构的可能性.

- [1] M. L. Zimmerman, M. G. Littman *et al.*, *Phys. Rev.*, **A20**(1979), 2251.
- [2] C. Fabre, *J. Phys. B*, **17**(1984), 3217.
- [3] M. L. Zimmerman, T. W. Ducas *et al.*, *J. Phys. B*, **11**(1978), L11.
- [4] T. Bolzinger *et al.*, *J. Phys. B*, **22**(1989), 2081.
- [5] 张森、邱济真等, 物理学报, **37**(1988), 983.
- [6] 张森、邱济真、王刚, 物理学报, **38**(1989), 481.
- [7] S. Zhang, J. Z. Qiu, G. Wang, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **42**(1989), 19.
- [8] P. Camus, A. Debarre *et al.*, *J. Phys. B*, **13**(1980), 1073.
- [9] M. Aymar, R. J. Champean *et al.*, *J. Phys. B*, **17**(1984), 3645.
- [10] W. C. Martin *et al.*, Atomic Energy Level—The Rare Earth Element (NSRDS—NBSW, Washington 1978), p. 373.
- [11] J. F. Wyart, P. Camus, *Physica Scripta*, **20**(1979), 43.
- [12] M. Aymar, A. Debarre *et al.*, *J. Phys. B*, **13**(1980), 1089.
- [13] H. Rinneberg, J. Neukammer *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **55**(1985), 382.
- [14] 林美荣、张包铮, 原子光谱学导论(科学出版社1990), 第132页.

STARK STRUCTURES OF NEUTRAL YTTERBIUM RYDBERG STATES WITH $|m| = 0, 1$

FANG DA-WEI DAI ZHANG-JIAN LI JING WANG YUN-XIAN CHU XIAO-FENG

XU YUN-FEI ZHANG SEN

(Department of Physics, Zhejiang University, Hangzhou 310027)

(Received 8 November 1993)

ABSTRACT

The Stark spectra of Yb atom with $m = 0$ and $|m| = 1$ in the vicinity of $n = 17$ to $n = 20$ have been obtained by using two-step excitation and photoionization method in the applied electric field from 0 to 1500V/cm. The Stark splittings and shifts observed in the experiment have been calculated by using numerical integration method. The theoretical results are consistent generally with the experiments. The dependence of the anticrossings of Stark manifolds with quantum defects is investigated. The comparison between the $m = 0$ and $|m| = 1$ Stark structures is furnished.

PACC: 3260S; 3280; 3150