## 物理学报 Acta Physica Sinica



Eu 原子  $4f^7 6p_{1/2} ns$  自电离过程的动力学特性

李琼 沈礼 闫俊刚 戴长建 杨玉娜

Dynamic properties of Eu  $4f^{7}6p_{1/2}ns$  autoionization process

Li Qiong Shen Li Yan Jun-Gang Dai Chang-Jian Yang Yu-Na

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 65, 153202 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.153202 在线阅读 View online: http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.153202 当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I15

### 您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

#### 水溶性 TGA-CdTe 量子点的超快弛豫动力学过程探究

Investigation of ultrafast relaxation dynamic process of water-soluble TGA-CdTe quantum dots 物理学报.2015, 64(11): 113201 http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.113201

用速度影像技术研究 Eu 原子 6p1/28s 的自电离衰变的分支比

The VMI study on branching ratio decay from Eu  $6p_{1/2}$ 8s autoionizing state 物理学报.2014, 63(13): 133202 http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.133202

氦原子精密光谱实验中的精密磁场设计与测量

Design and measurement of a magnetic field for precision spectroscopy of helium 物理学报.2014, 63(12): 123201 http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.123201

锶原子三重态谱线的观测及在光钟中的应用

Observation of transitions in strontium triplet state and its application in optical clock 物理学报.2012, 61(17): 173201 http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.173201

Fe离子M壳层不可分辨跃迁系不透明度研究

Research on the opacity of Fe M-shell unresolved transition array 物理学报.2012, 61(16): 163201 http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.163201

# $Eu原子4f<sup>7</sup>6p_{1/2}ns$ 自电离过程的动力学特性<sup>\*</sup>

李琼<sup>1)2)</sup> 沈礼<sup>1)2)</sup> 闫俊刚<sup>1)2)</sup> 戴长建<sup>1)2)†</sup> 杨玉娜<sup>1)2)</sup>

1)(显示技术与光电器件教育部重点实验室,天津 300384)

2)(天津理工大学理学院,天津 300384)

(2016年3月22日收到;2016年5月18日收到修改稿)

采用孤立实激发与速度影像技术相结合的方法,研究了 Eu 原子 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>ns (n = 7, 9) 自电离过程的动 力学特性,包括弹射电子的角分布和向各离子态衰变的分支比.首先,采用孤立实激发技术将 Eu 原子分步从 基态 4f<sup>7</sup>6s<sup>2</sup> 经中间态 4f<sup>7</sup>6s6p 激发至 4f<sup>7</sup>6sns Rydberg 态,并通过第三步跃迁 4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>→4f<sup>7</sup>6p<sup>+</sup><sub>1/2</sub> 将其激发至 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>ns 自电离态.其次,运用速度影像技术对上述自电离过程进行探测,并通过一系列数学变换计算出该 过程的弹射电子的能量分布和角向分布.本文不仅分析和比较了各个态自电离衰变的分支比和各向异性参数 随光子能量的变化规律,还深入讨论了它们与自电离光谱之间的对应关系.最后,依据自电离衰变的分支比, 探讨了实现 Eu 离子粒子数反转的可能性,为实现自电离激光器提供了有价值的信息.

关键词: Eu 原子, 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>ns 自电离态, 角分布, 分支比 PACS: 32.80.Zb, 32.30.-r, 32.80.Ee

#### **DOI:** 10.7498/aps.65.153202

## 1引言

众所周知, 自电离光谱可以提供自电离总截 面的信息, 而自电离衰变的分支比 (branching ratio, BR)和弹射电子的角分布 (angular distribution, AD)则分别对应于自电离的部分截面和微分 截面, 它们比自电离光谱能够提供更多的原子信 息, 如: 原子向各个离子态衰变的比例大小和原子 波函数的相位信息. 因此, 在自电离光谱的基础 上进一步研究自电离衰变的BR和弹射电子的AD, 不仅可以深化对原子结构和特性的认识, 为发展更 精确的量子理论计算提供实验验证.

对于碱土金属原子,其自电离光谱<sup>[1-3]</sup>和自电 离过程的动力学特性<sup>[4-6]</sup>都已经得到了深入的研 究,并在实验和理论两方面都取得了很好的成果. 近年来,关于稀土金属原子的自电离光谱的研究也 已全面展开.对于Eu原子,尽管已经获得了大量的 自电离光谱信息,如能级位置<sup>[7-9]</sup>、谱线宽度和线 形等<sup>[10,11]</sup>, 但是对其自电离过程的动力学特性还缺乏研究.

通常,人们多采用传统探测方法,即时间飞行 谱(time of flight, TOF)技术,研究原子的自电离 衰变过程[12]. 但是,该方法存在两个缺陷: 1)对弹 射电子的接受立体角很小,导致信噪比较差;2)需 要改变三步激发光的偏振和探测器之间的夹角,导 致实验精度不佳. 近年来, 人们采用速度影像技术 (velocity-map imaging, VMI)研究分子的解离和原 子的电离动力学过程[13,14],并取得了成功. 该技 术的优点是:1)在实验中无需转动探测器或激光 偏振的方向; 2) 直接拍摄弹射电子的速度影像, 既 能显著节省在线测量的时间,也能提高其测量精 度.因此,本课题组已将VMI技术应用到Eu原子  $4f^{7}6p_{1/2}8s$ 态的自电离过程的研究中<sup>[15,16]</sup>. 然而, 对4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>ns自电离系列开展进一步的系统研究 是非常必要的: 1) 若研究该系列的最低 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>7s 态,可进一步检验孤立实激发技术(isolated core

<sup>\*</sup> 国家自然科学基金(批准号: 11174218)资助的课题.

<sup>†</sup>通信作者. E-mail: daicj@126.com

<sup>© 2016</sup> 中国物理学会 Chinese Physical Society

excitation, ICE)<sup>[17]</sup>的有效性; 2)若研究n大于8 的 $4f^{7}6p_{1/2}ns$ 自电离系列态,则可以更系统地观察 它们与 $4f^{7}5dnl$ 自电离系列之间的相互作用及其对  $4f^{7}6p_{1/2}ns$ 态的自电离光谱和动力学特性的影响. 本文选取 $4f^{7}6p_{1/2}ns$  (n = 7, 9)自电离态作为研究 对象,并采用ICE与VMI技术相结合的方法,对其 自电离衰变的BR和弹射电子的AD进行了系统的 研究.

本文的第2部分介绍实验装置与原理; 第3部 分展示结果和讨论; 最后一部分则给出了本文的 结论.

2 实验装置与原理

#### 2.1 实验装置

实验装置如图1所示,主要包括激光系统,原 子束产生系统和信号采集系统三部分.

激光系统主要由一台Nd: YAG 固体激光器和

三台波长可调谐的染料激光器组成.其中,固体激 光器的基频光为1064 nm,脉冲宽度为6—8 ns,重 复频率为20 Hz,线宽优于0.2 cm<sup>-1</sup>,经倍频与和 频后产生532 nm的绿光和355 nm的紫外光,用于 抽运染料激光器.

原子束产生系统包括真空装置和加热装置两部分.利用机械泵-分子泵组合实现和维持10<sup>-5</sup> Pa的真空度.使用直流电源将高纯度的Eu金属加热形成原子蒸气,再将其准直形成原子束.为了减小谱线的多普勒展宽效应,使原子束方向与激光束方向在作用区垂直正交.

信号采集系统主要包括电子透镜、位置敏感 探测器 (position sensitive detector, PSD)、荧光屏 (phosphor screen, PS)和电荷耦合器 (charge coupled device, CCD)等设备. PSD对不同动能的弹 射电子探测和分辨, PS将PSD探测的电信号转换 为光信号, CCD拍摄光信号并转换为数字信号存 储到电脑里,最后通过电脑进行数据处理和分析.



图1 (网刊彩色)实验装置示意图

Fig. 1. (color online) Schematic diagram of experimental setup.

#### 2.2 实验原理

本文首先采用ICE技术,将Eu原子从基态 分三步激发到4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>ns自电离态,然后再测 量其光谱和自电离动力学过程. 其中,使用 了两条激发路径,分别为 I. 4f<sup>7</sup>6s<sup>28</sup>S<sub>7/2</sub>  $\xrightarrow{\lambda_1}$ 4f<sup>7</sup>6s6p<sup>10</sup>P<sub>9/2</sub>  $\xrightarrow{\lambda_2}$  4f<sup>7</sup>6s7s<sup>8</sup>S<sub>7/2</sub>  $\xrightarrow{\text{scan}\lambda_3}$  4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>7s [J = 5/2, 7/2, 9/2]和 II. 4f<sup>7</sup>6s<sup>28</sup>S<sub>7/2</sub>  $\xrightarrow{\lambda_1}$ 4f<sup>7</sup>6s6p<sup>8</sup>P<sub>7/2</sub>  $\xrightarrow{\lambda_2}$  4f<sup>7</sup>6s9s[J = 7/2]  $\xrightarrow{\text{scan}\lambda_3}$  4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>9s[J = 5/2, 7/2, 9/2].在路径II中所使用的4f<sup>7</sup>6s9s Rydberg态为本实验首次确认的态,其能级位置42428.8 cm<sup>-1</sup>和总角动量J = 7/2均与文献[7]一致.经计算得知:其量子亏损为4.30,这与其他n值(n = 7, 8)的4f<sup>7</sup>6s(<sup>7</sup>S) ns态<sup>[18]</sup>的量子亏损值(4.33—4.44)相近,所以确定其电子组态为4f<sup>7</sup>6s9s.但是,由于目前国际上仍缺乏对Eu原子的理论计算,要完全确定其原子状态仍有待于实验和理论方面的进一步研究.

在路径I中,波长为686.64 nm的第一步激 光将Eu原子从基态4f<sup>7</sup>6s<sup>2</sup> <sup>8</sup>S<sub>7/2</sub>激发到4f<sup>7</sup>6s6p <sup>10</sup>P<sub>9/2</sub>态;波长为600.47 nm的第二步激光将其 激发到4f<sup>7</sup>6s7s <sup>8</sup>S<sub>7/2</sub> Rydberg态;而第三步激光 则在4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>→4f<sup>7</sup>6p<sup>+</sup><sub>1/2</sub>跃迁的附近扫描,以便获 得4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>7s态自电离光谱,其原理如图2(a)所 示.同理,在路径II中,波长为462.85 nm的第 一步激光将Eu原子从基态4f<sup>7</sup>6s<sup>2</sup> <sup>8</sup>S<sub>7/2</sub>激发到 4f<sup>7</sup>6s6p <sup>8</sup>P<sub>7/2</sub>态;波长为480.22 nm的第二步激 光将其激发到4f<sup>7</sup>6s9s Rydberg态;而第三步激光 则在4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>→4f<sup>7</sup>6p<sup>+</sup><sub>1/2</sub>跃迁的附近扫描,以便获得 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>9s态自电离光谱,其原理如图2(b)所示.



图 2 激发路径示意图 (a)激发路径 I; (b)激发路径 II Fig. 2. Schematic diagram of two excitation paths: (a) Scheme I; (b) scheme II.

如图2 所示,由于处于4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>7s或4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>9s 自电离态的原子极不稳定,所以它会向能量较低的 4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>(<sup>9</sup>S),4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>(<sup>7</sup>S),4f<sup>7</sup>5d<sup>+</sup>(<sup>9</sup>D)和4f<sup>7</sup>5d<sup>+</sup>(<sup>7</sup>D) 离子态衰变,并弹射出不同能量的电子.此时,既 可测量其自电离光谱,也可运用VMI技术对其自 电离过程进行研究.

在自电离光谱的基础上,若要进一步研究自电 离衰变的BR和弹射电子的AD,则可运用VMI技 术对上述自电离过程进行探测.利用CCD拍摄上 述弹射电子,得到其二维速度影像,如图3(a)所示;利用BASEX软件对二维速度影像进行反Abel 变换<sup>[19]</sup>,得到其三维速度分布,如图3(b)所示;对 三维速度分布进行一系列数学变换,计算出该过程 的弹射电子的能量分布(energy distribution, ED) 和AD,具体结果及其分析将在第3部分展示.



图 3 (网刊彩色) VMI 影像 (a) 二维原始图像; (b) 三 维反 Abel 变换图像

Fig. 3. (color online) The VMI image: (a) The two-dimensional raw image; (b) the three-dimensional Abel-inverted image.

由于在自电离衰变过程中原子系统保持能量 守恒,具有不同动能的弹射电子,代表了原子向不 同离子态的衰变,所以,根据弹射电子的ED光谱, 便可计算出原子向不同离子态衰变的BR.

显然,在实验中需要确保图3(a)能够将具有 不同动能的弹射电子精准定位.为此,需要对实验 参数进行优化和调整,以便使电子透镜和PSD探 测器能够共线.步骤如下:1)对VMI图像进行能 量定标,确保那些具有零动能的弹射电子能被聚焦 到图像的中心;2)对VMI图像进行强度定标,确保 图像具有足够的对比度和分辨率,即亮环和暗环清 晰可辨.经过上述努力,在采用VMI 图像获得AD 和BR的实验中,经估算其不确定度优于5%.

#### 3 结果与讨论

本部分将展示 Eu 原子 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>ns (n = 7, 9) 自电离态的实验结果,并对其进行分析和讨论.显 然,为了研究 Eu 原子向各个离子态衰变的 BR 和 弹射电子的 AD 及其随能量的变化规律,就必须先 了解其对应的自电离光谱的结构与特性.

#### 3.1 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>ns自电离光谱

采用2.2节所述的ICE技术和激发路径,实验测量了多种不同情况下的各态的自电离光

谱. 图4展示了利用激发路径I所得到的Eu原子4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>7s态的自电离光谱.



图4 (网刊彩色) 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>7s [J = 5/2, 7/2, 9/2] 态的 自电离光谱, 对应激发路径 I

Fig. 4. (color online) The experimental spectrum of  $4f^7 6p_{1/2}7s$  [J = 5/2, 7/2, 9/2] autoionizing state, obtained by scheme I.

图4中由"\*"所标示的电离峰是由 $\lambda_1 + 2\lambda_3$ 所 产生的干扰峰.由图4可知,此态的自电离光谱 非常复杂,表现为两种现象:1)具有非对称线形; 2)多个自电离系列叠加到4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>7s态的光谱上. 对于现象1)的解释是:经过前两步激发后,原子 中的2个价电子分别处于6s和7s态上;由于2个电 子的主量子数很接近,它们将产生关联效应;换 言之,当实施第三步激发时,离子实并非孤立,7s Rydberg电子也并非是"旁观者";由于2个电子被 同一个光子同时激发,导致了2个激发路径之间的 干涉,从而使ICE技术的有效性被部分破坏,形成 了偏离Lorentz线形的非对称自电离光谱.

对图 4 中所示的现象 (2) 的解释为:由于 Eu 原 子 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>7s 自电离态与那些 n 值远大于 7 且能级 间隔和宽度都很小的自电离态的简并,导致后者 (收敛于较低离子限, 4f<sup>7</sup>5d<sup>+</sup><sub>3/2</sub>或4f<sup>7</sup>5d<sup>+</sup><sub>5/2</sub>的自电离 态) 叠加到了较宽的 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>7s 自电离光谱之上,从 而形成了上述自电离光谱的多峰结构.这表明:收 敛于不同离子限的各个自电离系列之间的相互作 用非常严重.上述结果与其相邻的 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>8s 自电 离态的光谱形成了鲜明的差别.其主要表现是后者 呈现出很好的对称性<sup>[15]</sup>,从而说明 ICE 技术更适 用于那些 n 值较大的态.

同理, 利用 2.2 节所获得的 Eu 原子 4f<sup>7</sup>6s9s Rydberg 态的信息, 并在 4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>  $\rightarrow$  4f<sup>7</sup>6p<sup>+</sup><sub>1/2</sub> 离子跃迁 附近扫描第三步激光的波长,便可得到4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>9s 态的自电离光谱,如图5所示.



图 5 (网刊彩色) 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>9s [J = 5/2, 7/2, 9/2] 态的 自电离光谱, 对应激发路径 II

Fig. 5. (color online) The experimental spectrum of  $4f^{7}6p_{1/2}9s$  [J = 5/2, 7/2, 9/2] autoionizing state, obtained by scheme II.

由图5可知,自电离峰呈现对称的Lorentz线 形,经过Lorentz线性拟合得到两个自电离双峰 的中心位置为21890.64 cm<sup>-1</sup>和 22311.36 cm<sup>-1</sup>, 半高宽为133.93 cm<sup>-1</sup>和137.91 cm<sup>-1</sup>, 两个主峰 之间的能量间隔420.72 cm<sup>-1</sup>,基本与离子限  $4f^76p_{1/2}^+J = 3 与 4f^76p_{1/2}^+J = 4 的能量差一致.$ 由 于跃迁初态4f<sup>7</sup>6s9s和终态4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>9s的量子亏损 不相同,导致了自电离峰值位置与离子限之间有一 定量的偏移.同时,还可以看到:在自电离光谱上 叠加了一些复杂而尖锐的结构. 该现象不仅证明 了收敛于不同离子限的不同系列间的相互作用,而 且还可以说明这些复杂结构收敛于4f<sup>7</sup>5d<sup>+</sup>离子限. 由于其n 值远大于9. 因此其宽度远比本系列的自 电离态的宽度要小. 这些复杂结构也必将对自电离 过程产生严重影响,为此,在后续的自电离衰变的 BR和弹射电子AD的研究中,也将关注其可能的 影响.

通过比较  $4f^{7}6p_{1/2}ns$  自电离系列中的 n = 7, 8和 9 这三个态的光谱, 可以发现: 当 n 值增大时, 对 应的自电离光谱趋近于对称的 Lorentz 线形. 其物 理解释是: 当 n 值增大时, 电子的轨道半径随其迅 速增大, 此时原子系统更接近于由一个离子实与一 个价电子所构成的两体问题. 因此, 在第三步激发 过程中, 可将 ns Rydberg 电子视为"旁观者"而忽 略它的激发, 从而减弱了两个激发路径之间的干 涉效应.此时,非对称的Fano线形简化为对称的 Lorentz线形,同时也有效地证明了ICE技术更适 用于n值较大的态.

#### 3.2 $4f^76p_{1/2}ns$ 自电离衰变的BR

如上所述, 自电离衰变的BR 对应于自电离的 部分截面, 它比自电离光谱(对应于自电离的总截 面)提供更丰富的信息, 包括向各离子态衰变的比 例.为了研究自电离衰变的BR 随能量的变化, 首 先必须研究弹射电子的ED 光谱.

由于4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>8s[J]自电离态的能级位置高 于4f<sup>7</sup>5d<sup>+</sup>(<sup>9</sup>D)离子态,而低于4f<sup>7</sup>5d<sup>+</sup>(<sup>7</sup>D)离子 态,所以处于4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>8s[J]自电离态的原子可 以向4f<sup>7</sup>5d<sup>+</sup>(<sup>9</sup>D),4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>(<sup>7</sup>S)和4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>(<sup>9</sup>S)三个离 子态衰变,而4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>7s[J]自电离态的能级 位置低于所有的4f<sup>7</sup>5d<sup>+</sup>离子态,因此,处于 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>7s[J]自电离态的原子仅可以向4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>(<sup>7</sup>S) 和4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>(<sup>9</sup>S)两个离子态衰变.两个自电离衰变 的通道:4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>7s→(4f<sup>7</sup>6s<sup>+9</sup>SJ=4)+e<sup>-</sup>(l)和 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>7s→(4f<sup>7</sup>6s<sup>+7</sup>SJ=3)+e<sup>-</sup>(l),其中l代表 弹射电子的轨道角动量.令BR<sub>1</sub>和BR<sub>2</sub>分别代 表衰变到4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>(<sup>7</sup>S)和4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>(<sup>9</sup>S)离子态的分支 比.图6展示了4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>7s自电离态中任一能量点 53610.71 cm<sup>-1</sup>的VMI图像和其对应的ED光谱.

通过对图6(c)所示的ED光谱进行拟合积分 求出其曲面面积,计算可得自电离衰变的BR为 BR<sub>1</sub> = 0.47, BR<sub>2</sub> = 0.53.

为了测量 $4f^{7}6p_{1/2}7s$ 态自电离衰变的BR, 第 三步激光在 $4f^{7}6p_{1/2}7s$ 自电离态能域扫描. 图 7 为  $4f^{7}6p_{1/2}7s$  [J = 5/2, 7/2, 9/2]态的自电离光谱和 其对应的分支比BR<sub>i</sub> (i = 1-2).

由图7可知,  $4f^{7}6p_{1/2}7s$  [*J*]态自电离衰变到  $4f^{7}6s^{+}(^{7}S)$ 和 $4f^{7}6s^{+}(^{9}S)$ 两个离子态的BR在一定 范围内波动,即0.3到0.5和0.5到0.65.由于BR<sub>1</sub> 的最大值都小于0.5,说明衰变后的离子大多数 处于较低离子态 $4f^{7}6s^{+}(^{9}S)$ ,少数处于较高离子态  $4f^{7}6s^{+}(^{7}S)$ ,因此在 $4f^{7}6s^{+}(^{7}S)$ 和 $4f^{7}6s^{+}(^{9}S)$ 两个离 子态之间未能形成粒子数反转.由图7还可知,在  $4f^{7}6p_{1/2}^{+}J = 3$ 离子限左边,BR变化较为平缓,并 且呈现出规律性的变化,在两个离子限之间,BR的 变化则较为剧烈.同时还发现自电离衰变的BR与 自电离光谱之间没有确定的对应关系.造成该现象 的原因为在相同的能域内, $4f^{7}6p_{1/2}7s$ 态与 $4f^{7}5dnl$  自电离态之间存在强烈的相互作用.



图 6 (网刊彩色) 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>7s 自电离态的 VMI 图像和对 应的 ED 光谱 (a) 原始 VMI 图像; (b) 反 Abel 变换后的 图像; (c) 弹射电子的 ED 光谱

Fig. 6. (color online) The VMI image and the ED spectrum of the 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>9s state: (a) The raw image;
(b) the Abel-inverted image; (c) the ED spectrum of ejected electron.

与 $4f^{7}6p_{1/2}ns$  (n = 7, 8)自电离态不同的是,  $4f^{7}6p_{1/2}9s$  [J]自电离态的能级位置高于所有的  $4f^{7}5d^{+}$ 离子态,因此,处于 $4f^{7}6p_{1/2}9s$  [J]自电离态 的原子可以向 $4f^{7}5d^{+}(^{7}D), 4f^{7}5d^{+}(^{9}D), 4f^{7}6s^{+}(^{7}S)$ 和 $4f^{7}6s^{+}(^{9}S)$ 四个离子态衰变.四个自电离衰 变的通道为 $4f^{7}6p_{1/2}9s \rightarrow (4f^{7}6s^{+9}S J = 4) +$  $e^{-}(l), 4f^{7}6p_{1/2}9s \rightarrow (4f^{7}6s^{+7}S J = 3) + e^{-}(l),$  $4f^{7}6p_{1/2}9s \rightarrow (4f^{7}5d^{+9}D) + e^{-}(l)$ 和 $4f^{7}6p_{1/2}9s \rightarrow$  $(4f^{7}5d^{+7}D) + e^{-}(l).$ 令BR<sub>1</sub>,BR<sub>2</sub>,BR<sub>3</sub>和BR<sub>4</sub>分 别代表衰变到 $4f^{7}5d^{+}(^{7}D), 4f^{7}5d^{+}(^{9}D), 4f^{7}6s^{+}(^{7}S)$ 和 $4f^{7}6s^{+}(^{9}S)$ 离子态的分支比.图8展示了  $4f^{7}6p_{1/2}9s$ 自电离态中任一能量点64507.22 cm<sup>-1</sup> 的VMI图像和其对应的ED光谱.

由图8可知,实验中尽管采用了VMI技术,但 对4f<sup>7</sup>5d<sup>+</sup>(<sup>7</sup>D)和4f<sup>7</sup>5d<sup>+</sup>(<sup>9</sup>D)离子态的精细结构仍 未能分辨.同样对图8(c)所示的ED光谱进行拟 合积分,求出其曲面面积,计算可得自电离衰变的 BR,如表1所列.



图 7  $4f^{7}6p_{1/2}7s$  [J = 5/2, 7/2, 9/2] 态的自电离光谱和衰变到各个离子态的BR (a) 自电离光谱; (b) BR<sub>1</sub>; (c) BR<sub>2</sub> Fig. 7. (color online) The spectrum and autoionization BR of  $4f^{7}6p_{1/2}7s$  [J = 5/2, 7/2, 9/2] state: (a) Spectrum; (b) BR<sub>1</sub>; (c) BR<sub>2</sub>.



图 8 (网刊彩色) 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>9s 自电离态的 VMI 图像和对 应的 ED 光谱 (a) 原始 VMI 图像; (b) 反 Abel 变换后的 图像; (c) 弹射电子的 ED 光谱

Fig. 8. (color online) The VMI image and the ED spectrum of the  $4f^{7}6p_{1/2}9s$  state: (a) The raw image; (b) the Abel-inverted image; (c) the ED spectrum of ejected electron.

由表1可知, Eu原子4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>9s态自电离 衰变到4f<sup>7</sup>5d<sup>+</sup>(<sup>7</sup>D), 4f<sup>7</sup>5d<sup>+</sup>(<sup>9</sup>D), 4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>(<sup>7</sup>S)和 4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>(<sup>9</sup>S)四个离子态的BR分别为BR<sub>1</sub> = 0.04, BR<sub>2</sub> = 0.52, BR<sub>3</sub> = 0.27, BR<sub>4</sub> = 0.17.

表 1  $4f^76p_{1/2}$ 9s 态自电离衰变的 BR Table 1. The BR of  $4f^76p_{1/2}$ 9s antoionizing state.

| 能量/cm <sup>-1</sup> | 64507.22        |                 |             |                 |  |
|---------------------|-----------------|-----------------|-------------|-----------------|--|
| 离子态                 | $5d^{+}(^{7}D)$ | $5d^{+}(^{9}D)$ | $6s^+(^7S)$ | $6s^{+}(^{9}S)$ |  |
| 比例                  | 0.04            | 0.52            | 0.27        | 0.17            |  |

为了测量 $4f^{7}6p_{1/2}9s$ 态自电离衰变的BR,实验中第三步激光在 $4f^{7}6p_{1/2}9s$ 自电离能域扫描. 图 9为 $4f^{7}6p_{1/2}9s$  [J = 5/2, 7/2, 9/2]态的自电离光谱和其对应的分支比BR<sub>i</sub> (i = 1—4).

由图9可知,  $4f^{7}6p_{1/2}9s$  [J]态自电离衰变到  $4f^{7}5d^{+}(^{7}D)$ ,  $4f^{7}5d^{+}(^{9}D)$ ,  $4f^{7}6s^{+}(^{7}S)$ 和 $4f^{7}6s^{+}(^{9}S)$ 四个离子态的BR在一定范围内波动,即0到0.15, 0.4到0.7, 0.1到0.25和0.1到0.2.这意味着衰变后 的离子大多数处于较高离子态 $4f^{7}5d^{+}(^{9}D)$ , 少数处 于较低离子态 $4f^{7}6s^{+}(^{7}S)$ 和 $4f^{7}6s^{+}(^{9}S)$ ,表明Eu离 子将会在 $4f^{7}5d^{+}(^{9}D)$ 与 $4f^{7}6s^{+}(^{7}S)$ 或 $4f^{7}5d^{+}(^{9}D)$  与4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>(<sup>9</sup>S)两组离子态之间产生粒子数反转. 利用这一特性,可以将Eu原子从基态4f<sup>7</sup>6s<sup>2</sup>先激 发至4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>9s自电离态,再衰变至4f<sup>7</sup>5d<sup>+</sup>(<sup>9</sup>D)与 4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>(<sup>7</sup>S)或4f<sup>7</sup>5d<sup>+</sup>(<sup>9</sup>D)与4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>(<sup>9</sup>S)亚稳态制成 四能级激光器,正如基于自电离衰变的Ba<sup>+</sup>离子激 光器一样<sup>[20,21]</sup>.



图 9 (网刊彩色)  $4f^{7}6p_{1/2}9s$  [J = 5/2, 7/2, 9/2] 态的自电离光谱和衰变到各个离子态的 BR (a) 自电离光谱; (b) BR<sub>1</sub>; (c) BR<sub>2</sub>; (d) BR<sub>3</sub>; (e) BR<sub>4</sub>

Fig. 9. (color online) The spectrum and autoionization BR of  $4f^76p_{1/2}9s$  [J = 5/2, 7/2, 9/2] state: (a) Spectrum; (b) BR<sub>1</sub>; (c) BR<sub>2</sub>; (d) BR<sub>3</sub>; (e) BR<sub>4</sub>.

与此同时, 发现衰变到各个离子态的BR在  $4f^{7}6p_{1/2}^{+}(J = 3, 4)$ 两个离子限之间有明显的起伏 波动, 在离子限之外, 变化则较为平缓. 从图 9 中还 可以得知, 在自电离峰 1 处, BR<sub>i</sub> 的变化与光谱呈现 相反或相同的变化, 在自电离峰 2 处, BR<sub>i</sub> (i = 2-4) 的变化与光谱也呈现相反或相同的变化, 但 BR<sub>1</sub> 基 本保持不变. 造成上述现象的原因在于自电离峰 处  $4f^{7}6p_{1/2}9s$ 态与  $4f^{7}5dnl$  自电离态之间的相互作 用较弱.

通过比较4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>ns 自电离系列中的n = 7, 8和9这三个态自电离衰变的BR,可以发现:衰变 到各个离子态的BR都在一定范围内波动,但随 光子能量的变化没有规律性,且除少数能量位置 外,自电离衰变的BR与自电离光谱之间没有确 定的对应关系,主要是由于4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>ns态与4f<sup>7</sup>5dnl 自电离态之间强烈的相互作用导致的.此外,在 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>7s态的自电离衰变过程中没有形成粒子数 反转,而在4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>ns (n = 8, 9)态的自电离衰变 过程中都形成了粒子数反转.

#### 3.3 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>ns自电离弹射电子的AD

如上所述, 自电离弹射电子的 AD 对应于自电 离的微分截面, 它比自电离光谱 (对应于自电离的 总截面) 可提供更丰富的信息, 包括波函数的相位 信息. 由于自电离弹射电子的 AD 与第三步跃迁的 初态和终态的特性有关, 如: 对称性、宇称和角动量 等, 所以弹射电子 AD 的通用形式为

$$I(\theta) = \sum_{k} a_k \mathbf{P}_k(\cos\theta), \qquad (1)$$

其中,  $P_k(\cos\theta)$  为*k*阶勒让德函数,  $k = 0, 2, \cdots$ , 而系数  $a_k$  的表达式包含了 4 个 3*j* 符号和一个 6*j* 符 号以及第三步激发的跃迁概率.

对于碱土金属原子,可以通过理论计算得出 (1)式的系数*a<sub>k</sub>*,但是对于稀土金属Eu原子,目前 国际上还没有类似的工作报道.因此,本文仅能先 通过实验确定各向异性参数的取值,再依靠对实验数据的拟合得到Eu原子4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>ns态自电离弹射电子的AD.在拟合的过程中发现高阶勒让德函数对AD的影响无法体现<sup>[16]</sup>,因此,本实验将只展示至6阶勒让德函数对应的各向异性参数,则由(1)式得到AD的具体形式为

$$I\left(\theta\right) = \frac{I_0}{4\pi} \left[ 1 + \frac{a_2}{a_0} \mathbf{P}_2\left(\cos\theta\right) + \frac{a_4}{a_0} \mathbf{P}_4\left(\cos\theta\right) + \frac{a_6}{a_0} \mathbf{P}_6\left(\cos\theta\right) \right], \tag{2}$$

其中 $I_0 = 4\pi a_0$ 代表了自电离总截面,而三个各向 异性参数 $a_2/a_0$ , $a_4/a_0$ ,和 $a_6/a_0$ 随着能量变化而 发生改变,它们共同表征了自电离弹射电子的AD. 由(2)式可见,Eu原子 $4f^76p_{1/2}ns$ 态自电离弹射电 子的AD比Mg原子3pns态和Ba原子6pns态自电 离弹射电子的AD复杂很多.

为了研究自电离弹射电子的AD随能量的 变化,首先必须研究能量变化对各向异性参数 的影响, 令 $\beta = a_2/a_0$ ,  $\gamma = a_4/a_0$ ,  $\varepsilon = a_6/a_0$ . 图 10 和 图 11 分 别 展 示 了 4f<sup>7</sup>6s7s  $\rightarrow$  4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>7s 和 4f<sup>7</sup>6s9s  $\rightarrow$  4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>9s 共振跃迁能量范围内,实验所 测得的各向异性参数  $\beta$ ,  $\gamma$  和 $\varepsilon$ 的变化.

由图 10 和图 11 可知,  $4f^76p_{1/2}ns$  (n = 7, 9)态

自电离弹射电子 AD 的各向异性参数 β, γ 和 ε 随能 量变化在不同范围内波动, 即高阶的各向异性参数 的变化幅度较小. 例如, β 的变化范围是 γ 和 ε 的两 倍左右, 这表明最低阶的拟合系数对 AD 具有较大 的影响力和贡献, 而更高阶的系数则起到补充的作 用. 上述现象同时也合理地解释了只展示至6阶各 向异性参数的原因.

对比图10和图11可以明显地发现, Eu原子 从4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>9s自电离态衰变到4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>(<sup>9</sup>S)离子态对 应的各向异性参数的变化幅度较4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>7s自电 离态的小很多. 值得注意的是 $\gamma$ 的取值范围,在 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>7s自电离态中 $\gamma$ 的取值全是负值,相反在 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>9s自电离态中除去少数几个能量点外 $\gamma$ 的 取值全是正值,这与之前4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>8s自电离态的情 况截然不同.

综上所述,由于各向异性参数 $\beta$ 对AD具有较 大的影响力和贡献,因此,以Eu原子从4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>ns (n = 7, 9)自电离态衰变到各个离子态对应的 各向异性参数 $\beta$ 为例,研究其随光子能量的变化. 图 12展示了Eu原子从4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>7s自电离态衰变到 4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>(<sup>7</sup>S)和4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>(<sup>9</sup>S)离子态对应的各向异性参 数 $\beta$ 随光子能量的变化.



图 10 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>7s [J = 5/2, 7/2, 9/2] 态的自电离光谱和衰变到 4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>(<sup>9</sup>S) 离子态对应的各向异性参数 (a) 自电离光谱; (b)  $\beta$ ; (c)  $\gamma$ ; (d)  $\varepsilon$ 

Fig. 10. The spectrum of  $4f^7 6p_{1/2}7s$  [J = 5/2, 7/2, 9/2] state and spectra of anisotropy parameters relating to the  $4f^7 6s^+({}^9S)$  ionic state: (a) Spectrum; (b)  $\beta$ ; (c)  $\gamma$ ; (d)  $\varepsilon$ .



图 11 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>9s [J = 5/2, 7/2, 9/2] 态的自电离光谱和衰变到 4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>(<sup>9</sup>S) 离子态对应的各向异性参数 (a) 自 电离光谱; (b)  $\beta$ ; (c)  $\gamma$ ; (d)  $\varepsilon$ 

Fig. 11. The spectrum of  $4f^7 6p_{1/2} 9s$  [J = 5/2, 7/2, 9/2] state and spectra of anisotropy parameters relating to the  $4f^7 6s^+({}^9S)$  ionic state: (a) Spectrum; (b)  $\beta$ ; (c)  $\gamma$ ; (d)  $\varepsilon$ .



图 12 (a)  $4f^{7}6p_{1/2}7s$  [J = 5/2, 7/2, 9/2] 态的自电离光谱和衰变到 (b)  $6s^{+}(^{7}S) \pi$  (c)  $6s^{+}(^{9}S)$  离子态对应的各 向异性参数  $\beta$ 

Fig. 12. (a) Spectrum of  $4f^7 6p_{1/2}7s [J = 5/2, 7/2, 9/2]$  state and spectra of anisotropy parameters  $\beta$  relating to the (b)  $6s^+(^7S)$ , (c)  $6s^+(^9S)$  ionic states.

如图 12 所示, 衰变到不同离子态对应的各向 异性参数 $\beta$ 的变化范围虽不同, 但是变化趋势在 4f<sup>7</sup>6p<sup>+</sup><sub>1/2</sub> J = 3离子限的右边非常类似, 而在 4f <sup>7</sup>6p<sup>+</sup><sub>1/2</sub> J = 3离子限的左边有一定的区别. 同时发 现各向异性参数 $\beta$ 的变化与自电离光谱没有确定 的对应关系. 图 13 列举了 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>7s态中具有代表 性的自电离弹射电子的 AD.

如图 13 所示, 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>7s态自电离弹射电子 AD 的形状都相对简单,这与4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>8s态的情况 类似,虽然 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>ns (n = 7, 8)态的初态为非球 对称的 4f<sup>7</sup>6sns,但 AD 并没有表现出复杂的形状.

图 14 展示了 Eu 原子从 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>9s 自电离态衰

变到4f<sup>7</sup>5d<sup>+</sup>(<sup>7</sup>D),4f<sup>7</sup>5d<sup>+</sup>(<sup>9</sup>D),4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>(<sup>7</sup>S)和4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup> (<sup>9</sup>S)离子态对应的各向异性参数 $\beta$ 随光子能量的 变化.

如图 14 所示,各向异性参数 $\beta$ 对能量有很明显的依赖性,当原子衰变到不同的离子态时,对应 着 $\beta$ 参数的不同变化.之前研究 Mg 原子3 pns态 的各向异性参数 $\beta^{[22]}$ 时发现, $\beta$ 的取值范围基本上 接近于常数2,除了一些骤降点 $\beta$ 的取值为-1,但 这些特点在 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>9s态的各向异性参数 $\beta$ 的谱线 中并没有体现.相反,在本实验中发现各向异性参 数 $\beta$ 随能量的变化没有规律性,并且与自电离光谱 也没有确定的对应关系.



图 13  $4f^7 6p_{1/2} 7s [J = 5/2, 7/2, 9/2]$ 自电离态不同能量点的 AD

Fig. 13. The AD of different energy points of the  $4f^{7}6p_{1/2}7s$  [J = 5/2, 7/2, 9/2] autoionizing state.



图 14 (a)  $4f^{7}6p_{1/2}9s$  [J = 5/2, 7/2, 9/2] 态的自电离光谱和衰变到 (b)  $5d^{+}(^{7}D)$ , (c)  $5d^{+}(^{9}D)$ , (d)  $6s^{+}(^{7}S)$  以及 (e)  $6s^{+}(^{9}S)$  离子态对应的各向异性参数  $\beta$ 

Fig. 14. (a) Spectrum of  $4f^76p_{1/2}9s [J = 5/2, 7/2, 9/2]$  state and spectra of anisotropy parameters  $\beta$  relating to the (b)  $5d^+(^7D)$ , (c)  $5d^+(^9D)$ , (d)  $6s^+(^7S)$ , (e)  $6s^+(^9S)$  ionic states.

结合  $4f^7 6p_{1/2}9s$  态的自电离光谱与各向异性参数  $\beta$  随能量的变化,在图 14 中选取了 8 个能量点的 AD 来展示,如图 15 所示.表 2 为图 14 中所标记的 8 个能量点的位置,同时也给出了关键能量点"2,5,6,7"的反 Abel 图像,如图 16 所示.

结合图 14 和图 15 发现,在自电离概率最 大的能量位置处,AD的形状(如标有2和6的 能量点,分别对应4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>→4f<sup>7</sup>6p<sup>+</sup><sub>1/2</sub> *J* = 3 和 4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>→4f<sup>7</sup>6p<sup>+</sup><sub>1/2</sub> *J* = 4的跃迁)较为简单,在自 电离概率上升或下降的区域里,AD的形状(如标有 1,5和7的能量点)较为复杂,在自电离概率最小的 能量位置处,AD的形状(如标有4的能量点)也较 为简单.在4f<sup>7</sup>6p<sup>+</sup><sub>1/2</sub> *J* = 3的离子限处,AD的形状 (如标有3的能量点)较为复杂,而在4f<sup>7</sup>6p<sup>+</sup><sub>1/2</sub> *J* = 4 的离子限处,AD的形状(如标有8的能量点)较为 简单.

对比图13和图16中的AD发现,不同能量点

300

240

300

240

270

270

 $120^{\circ}$ 

 $150^{\circ}$ 

. 150°

 $180^{\circ}$ 1

0

180

 $\mathbf{5}$ 

300

 $240^{\circ}$ 

300

 $240^{\circ}$ 

270

 $210^{\circ}$ 

330

 $210^{\circ}$ 

270

330

210

330

 $210^{\circ}$ 

的 AD 呈现出不同复杂程度的形状.由于目前还缺 乏对 Eu 原子的理论计算,本文仅能从实验方面分 析,同时对上述现象给出了可能的解释.由于自电 离光谱有一定的宽度,自电离峰值处表示自电离概 率最大,上升和下降的区间自电离概率较小,可以

表 2 图 12 中标记的 8 个能量点的位置

| Table 2.   | Energy | positions | of th | e eight | points | labeled |
|------------|--------|-----------|-------|---------|--------|---------|
| in Fig. 12 | 2.     |           |       |         |        |         |

| 序号 | 能级位置 $/cm^{-1}$ |
|----|-----------------|
| 1  | 64236.05        |
| 2  | 64318.21        |
| 3  | 64450.19        |
| 4  | 64541.83        |
| 5  | 64643.67        |
| 6  | 64743.01        |
| 7  | 64871.56        |
| 8  | 64967.77        |



图 15 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>9s [J = 5/2, 7/2, 9/2] 自电离态不同能量点的 AD Fig. 15. The AD of different energy points of the 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>9s [J = 5/2, 7/2, 9/2] autoionizing state.

120

90

150°

150°

 $180^{\circ}$ 

 $\mathbf{2}$ 

0

180

6



图 16 (网刊彩色) (a) 2, (b) 5, (c) 6, (d) 7 能量点的反 Abel 图像

153202 - 11

Fig. 16. (color online) The Abel-inverted image of energy points marked with (a) 2, (b) 5, (c) 6, (d) 7.

和很多连续态发生耦合,跃迁初态与连续态之间的 耦合强度<sup>[23]</sup>可能会影响AD的形状.在自电离概 率最大的能量点,跃迁初态和连续态的耦合作用相 对较弱,导致AD的形状较为简单,而在自电离概 率上升或下降的区域,跃迁初态和连续态的耦合作 用相对较强,使得AD的形状更加多样化.

通过比较4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>ns自电离系列中的n = 7, 8和9这三个态弹射电子AD和各向异性参数的变 化,可以发现:各向异性参数随光子能量的变化 没有规律性,且除少数能量位置外,各向异性参数 的变化与自电离光谱之间也没有确定的对应关系. 4f<sup>7</sup>6p<sub>/2</sub>ns (n = 7, 8)态的弹射电子AD的形状都相 对简单,而4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>9s态的弹射电子AD的形状相 对复杂,呈现出明显的"花瓣"形状.

最后,将碱土金属原子 Mg和Ba自电离弹射电子的AD与稀土金属原子 Eu进行对比,其特征有明显的差别.由于 Mg原子 3 pns 自电离态和Ba原子 6pns 自电离态的初始状态为球对称的 3sns  $^{1}S_{0}$ 和 6sns  $^{1}S_{0}$ ,而对于 Eu原子  $4f^{7}6p_{1/2}ns$  自电离态,其初态  $4f^{7}6sns$ 并非球对称,当 Mg和 Ba原子只需要 1 个各向异性参数对 AD 进行拟合时, Eu原子需要 3 个或更多的各向异性参数,因此两者之间的差别比较明显.

#### 4 结 论

采用ICE与VMI技术相结合的方法,本文系 统地研究了Eu原子4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>ns (n = 7, 9)态自 电离衰变的BR和弹射电子的AD,全面掌握了 Eu原子4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>ns系列的动力学特性.实验中尽 管采用了VMI技术,但是仍未能分辨4f<sup>7</sup>5d<sup>+</sup>(<sup>7</sup>D) 和4f<sup>7</sup>5d<sup>+</sup>(<sup>9</sup>D)离子态的精细结构.同时发现,在 4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>9s自电离衰变过程中,衰变后的离子大 多数处于较高离子态4f<sup>7</sup>5d<sup>+</sup>(<sup>9</sup>D),少数处于较 低离子态4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>(<sup>7</sup>S)和4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>(<sup>9</sup>S),表明Eu离子 将会在4f<sup>7</sup>5d<sup>+</sup>(<sup>9</sup>D)与4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>(<sup>7</sup>S)或4f<sup>7</sup>5d<sup>+</sup>(<sup>9</sup>D)与 4f<sup>7</sup>6s<sup>+</sup>(<sup>9</sup>S)两组离子态之间产生粒子数反转,为实 现自电离激光器提供了有价值的信息.

值得一提的是,由于4f<sup>7</sup>6p<sub>1/2</sub>ns态与4f<sup>7</sup>5dnl 态之间强烈的相互作用,导致自电离衰变的BR和 各向异性参数随能量的变化没有规律性,并且与自 电离光谱也没有确定的对应关系,同时也使得弹射 电子的AD形状更复杂多样化.通过与碱土金属原 子如 Mg或 Ba 原子的对比,发现无论是各向异性参数的变化规律还是 AD 的形状都产生了明显不同,这对于未来开展针对 Eu 原子或其他稀土金属原子更加深入的理论和实验工作提供了参考和支撑.

#### 参考文献

- [1] Jones R R, Dai C J, Gallagher T F 1990 *Phys. Rev. A* 41 316
- [2] Lindsay M D, Dai C J, Lyons B J, Mahon C R, Gallagher T F 1994 *Phys. Rev. A* 50 5058
- [3] Dai C J 1995 Phys. Rev. A 52 4416
- [4] Lindsay M D, Dai C J 1992 Phys. Rev. A 46 3789
- [5] Lü J, Dai C J, Xu Y F, Li S B 2001 Chin. Phys. Lett. 18 516
- [6] Zhang Y, Dai C J 2003 J. Electron Spectrosc. 128 135
- [7] Nakhate S G, Razvi M A N, Connerade J P, Ahmad S A 1996 J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 29 1439
- [8] Bhattacharyya S, D' souza R, Rao P M, Razvi M A N 2003 Spectrochim Acta Part B 58 469
- [9] Bhattacharyya S, Razvi M A N, Cohen S, Nakhate S G 2007 Phys. Rev. A 76 012502
- [10] Xiao Y, Dai C J, Qin W J 2010 Chin. Phys. B 19 063202
- [11] Wang X, Shen L, Dai C J 2012 J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 45 5001
- [12] Kachru R, Tran N H, Pillet P, Gallagher T F 1985 Phys. Rev. A 31 218
- [13] Stodolna A S, Rouzee A, Lepine F, Cohen S, Robicheaux
   F, Gijsbertsen A, Jungmann J H, Bordas C, Vrakking
   M J J 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 3001
- [14] Goto M, Hansen K 2012 Phys. Scr. 86 035303
- [15] Liang H R, Shen L, Jing H, Dai C J 2014 Acta Phys. Sin. 63 133202 (in Chinese) [梁洪瑞, 沈礼, 荆华, 戴长建 2014 物理学报 63 133202]
- [16] Dong C, Shen L, Yang J H, Dai C J 2014 Acta Opt. Sin. **34** 0702001 (in Chinese) [董程, 沈礼, 杨金红, 戴长建 2014 光学学报 **34** 0702001]
- [17] Dai C J, Schinn G W, Gallagher T F 1990 Phys. Rev. A 42 223
- [18] Martin W C, Zalubas Romuald, Hagan Lucy 1978 Atomic Energy Levels (Washington: U.S. Government Printing Office) pp185–198
- [19] Miranda E R, Valdos L R B, Ramirez E G, Lumbreras D A, Anaya T S, Vargas J J R, Hernandez J J V, Argüelles V T, Castano V M 2013 J. Eur. Opt. Soc.-Rapid 8 13036
- [20] Bokor J, Freeman R R, Cooke W E 1982 Phys. Rev. Lett. 48 1242
- [21] Freeman R R, Bokor J, Cooke W E 1982 *Phys. Rev. A* 26 3029
- [22] Lindsay M D, Cai L T, Schinn G W, Dai C J, Gallagher T F 1992 Phys. Rev. A 45 231
- [23] Tauro S, Liu K 2008 J Phys B: At. Mol. Opt. Phys. 41 225001

# Dynamic properties of Eu $4f^{7}6p_{1/2}ns$ autoionization process<sup>\*</sup>

Li Qiong<sup>1)2)</sup> Shen Li<sup>1)2)</sup> Yan Jun-Gang<sup>1)2)</sup> Dai Chang-Jian<sup>1)2)†</sup> Yang Yu-Na<sup>1)2)</sup>

1) (Key Laboratory of Display Materials and Photoelectric Devices, Ministry of Education, Tianjin 300384, China)

2) (School of Science, Tianjin University of Technology, Tianjin 300384, China)

( Received 22 March 2016; revised manuscript received 18 May 2016 )

#### Abstract

To explore the dynamic properties of Eu  $4f^76p_{1/2}ns$  autoionization process, the autoionization branching ratios of ions and the angular distributions of ejected electrons from the Eu  $4f^76p_{1/2}ns$  (n = 7, 9) autoionizing states are systematically investigated with the combination of the three-step isolated-core excitation (ICE) and the velocity-map imaging techniques The Eu  $4f^76sns$  Rydberg states are populated via a two-step laser excitation, from which the Eu  $4f^76p_{1/2}ns$  autoionizing states are excited by the wavelength of the third laser around the Eu  $6s^+ \rightarrow 6p_{1/2}^+$  ionic resonance in order to obtain autoionization spectra and the velocity-map images of ejected electrons from the Eu  $4f^76p_{1/2}ns$ autoionizing states. Once the velocity-map images have been measured, both the energy distribution and angular distribution of ejected electrons can be acquired. Moreover, the spectra of the branching ratios and the anisotropic parameters within the autoionization resonances are also measured to observe their energy dependence and the relation with the autoionization spectra.

Comparisons of the observed spectra of  $4f^{7}6p_{1/2}ns$  autoionizing states with n = 7, 8, and 9 manifest that the ICE technique is more suitable for the higher-*n* members of autoionization series. It is found that the Eu atoms in the  $4f^{7}6p_{1/2}ns$  (n = 8, 9) autoionizing states mainly decay into  $4f^{7}5d^{+}(^{9}D)$  ionic state, leading to the population inversion between  $4f^{7}5d^{+}(^{9}D)$  and  $4f^{7}6s^{+}(^{7}S)$  or  $4f^{7}6s^{+}(^{9}S)$  ionic states, which is significant for developing the autoionization laser.

The angular distributions of the ejected electrons from the Eu  $4f^76p_{1/2}ns$  autoionizing states show simple patterns at the energy points corresponding to the peaks of autoionization spectra, and have complicated patterns in the energy regions off the peaks of autoionization spectra, especially in the regions corresponding to the sharp increase or decrease in the autoionization spectra. The above phenomena can be explained with the strength of configuration interaction among different autoionization series converging to different ionic states, which is fluctuated within the energy region of autoionization spectra. In addition, within the autoionization resonance both the spectra of branching ratios and anisotropic parameters vary irregularly, and no obvious correlation with the spectra of  $4f^76p_{1/2}ns$  autoionizing states can be found.

Keywords: Eu atom,  $4f^7 6p_{1/2}ns$  autoionizing state, angular distribution, branching ratio PACS: 32.80.Zb, 32.30.-r, 32.80.Ee **DOI:** 10.7498/aps.65.153202

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11174218).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: daicj@126.com