

一价镧离子高 n 里德伯态

李晓康 贾凤东 余方晨 李明阳 薛平 许祥源 钟志萍

The study on high n Rydberg state of La II

Li Xiao-Kang Jia Feng-Dong Yu Fang-Chen Li Ming-Yang Xue Ping Xu Xiang-Yuan Zhong Zhi-Ping

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 68, 043201 (2019) DOI: 10.7498/aps.68.20181980

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181980>

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

铯原子 $nP_{3/2}$ ($n = 70-94$)里德伯态的紫外单光子激发及量子亏损测量

Measurement of quantum defect of cesium $nP_{3/2}$ ($n = 70-94$) Rydberg states by using ultraviolet single-photon Rydberg excitation

物理学报. 2019, 68(7): 073201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20182283>

铯原子里德伯态精细结构测量

Measurement of the fine structure of cesium Rydberg state

物理学报. 2017, 66(19): 193701 <https://doi.org/10.7498/aps.66.193701>

铥原子收敛于 $4f13(2F7/2_o)6s(7/2, 1/2)4_o$ 和 $4f13(2F7/2_o)6s(7/2, 1/2)3_o$ 偶宇称里德伯系列能级的电子关联效应

Electron correlation effects in even Rydberg series converging to $4f13(2F7/2_o)6s(7/2, 1/2)4_o$ and $4f13(2F7/2_o)6s(7/2, 1/2)3_o$ of thulium atom

物理学报. 2018, 67(18): 183102 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180797>

稀薄里德伯原子气体中的两体纠缠

Two-body entanglement in a dilute gas of Rydberg atoms

物理学报. 2018, 67(3): 034202 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172052>

49S里德堡态的射频双光子光谱

Two-photon radio frequency spectroscopy of 49S Rydberg state

物理学报. 2015, 64(16): 163201 <https://doi.org/10.7498/aps.64.163201>

一价镧离子高 n 里德伯态*李晓康¹⁾ 贾凤东¹⁾ 余方晨¹⁾ 李明阳¹⁾薛平^{2)†} 许祥源³⁾ 钟志萍^{1)4)‡}

1) (中国科学院大学物理科学学院, 北京 100049)

2) (清华大学物理系, 低维量子物理国家重点实验室, 量子物质科学协同创新中心, 北京 100084)

3) (首都师范大学物理系, 北京 100037)

4) (中国科学院大学, 中国科学院拓扑量子计算卓越创新中心, 北京 100190)

(2018年11月7日收到; 2018年12月4日收到修改稿)

基于五步激光共振激发, 经由中间态 (Xe) $5d6d\ ^3F_2$ 的一价镧离子光谱, 分析了该实验谱, 确定了一价镧离子一强一弱两个自电离里德伯系列. 同时利用多通道量子亏损理论 (MQDT) 框架下的相对论多通道理论 (RMCT) 计算, 标识了这两个自电离里德伯系列, 强的自电离里德伯系列标识为 $5dnp\ \left(\frac{5}{2}, \frac{1}{2}\right)_3$ 和/或 $5dnp\ \left(\frac{5}{2}, \frac{1}{2}\right)_2$, 弱系列标识为 $5dnf\ \left(\frac{5}{2}, \frac{5}{2}\right)_3$ 和/或 $5dnf\ \left(\frac{5}{2}, \frac{5}{2}\right)_2$. 根据实验谱峰数据, 发现有效量子数很高时, 里德伯和自电离里德伯能级量子数亏损随激发能量不平滑变化, 并分析了可能的原因.

关键词: 量子数亏损, 里德伯态, 多通道量子亏损理论**PACS:** 32.80.Rm, 32.80.Ee, 31.15.vj, 31.15.am**DOI:** 10.7498/aps.68.20181980

1 引言

镧元素属于稀土元素, 稀土元素最外层电子结构和碱土金属原子相似, 但稀土金属原子的次外层并未被电子填满, 因此稀土元素的原子及其离子的光谱复杂, 具有一般元素没有的现象和特性. 稀土元素的光谱数据在天体物理中有重要研究价值, 镧及其化合物在材料科学、冶金、化工等领域有重要应用. Xie 等^[1] 采用五步激光共振激发方式将镧原子从基态激发到一价镧离子第一电离阈值附近, 有两种激发方案: 一个是经过一价镧离子中间态 (Xe) $5d6d\ ^3F_2$ 激发; 另一方案是经过一价镧离子中

间态 (Xe) $5d6d\ ^1P_1$ 激发. 文献 [1] 根据经过一价镧离子中间态 (Xe) $5d6d\ ^3F_2$ 激发的光谱, 拟合了 89970—90080 cm^{-1} 能区 15 个里德伯态的能级, 得到一价镧离子第一电离阈值, 该数值被美国国家标准与技术研究院推荐为一价镧离子第一电离阈值^[2]. 在多通道量子亏损理论 (MQDT)^[3–9] 框架下, 利用相对论多通道理论 (RMCT)^[10–16], 文献 [17–20] 计算了一价镧离子的束缚能级和自电离光谱, 对两种方案的一价镧离子实验光谱做了标识. 需要指出的是, 以往关于一价镧离子谱数据研究主要是报道了谱峰位置及标识, 本文研究一价镧离子的里德伯态和自电离里德伯态的量子数亏损随激发能量的变化趋势. 众所周知, 具有至少一个电子处于高激发

* 国家重点研发计划 (批准号: 2017YFA0402300, 2017YFA0304900)、国家自然科学基金 (批准号: 11604334)、中国科学院先导项目 (批准号: XDPB08-3) 和低维量子物理国家重点实验室开放研究基金 (批准号: KF201807) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xuep@tsinghua.edu.cn

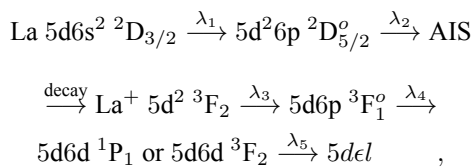
‡ 通信作者. E-mail: zpzhang@ucas.ac.cn

态, 即主量子数很高的里德伯态, 是类氢体系, 具有相似的特性. 并且里德伯原子的偶极矩很大, 对外场很敏感, 因此广泛应用于精密测量, 例如近年来利用里德伯原子测量微波电场^[21,22]. 外场的存在在光谱中的显著体现是能级移动, 破坏里德伯能级的规律性, 这从里德伯系列的量子数亏损光滑性的破坏上可以看出. 事实上, 本文发现有效量子数 n^* 很高时, 一价镧离子里德伯和自电离里德伯能级的量子数亏损随着激发能量不是平滑变化的, 并初步探讨了可能的原因.

2 实验方法和理论方法

2.1 实验方法

采用电热原子化获得镧蒸气^[1]: 镧原子的熔点只有 918 °C, 沸点却高达 3464 °C. 由于熔点和沸点的温差很大, 只需将加热温度控制在熔点以上, 就可获得非常稳定的原子束. 在实验中用 120A 的交流电加热, 使坩埚温度控制在约 1200 °C. 加热后产生的镧原子经过准直孔后形成准直的原子束进入共振激发区域. 在这个区域中, 原子束与激光垂直相交以避免多普勒效应的影响. 采用五步激光共振激发方式将镧原子从基态激发到一价镧离子第一电离阈值附近^[4], 有两种激发方案, 一个是经过一价镧离子中间态 (Xe) 5d6d 3F_2 激发到一价镧离子第一电离阈值附近; 另一方案是经过一价镧离子中间态 (Xe) 5d6d 1P_1 激发到一价镧离子第一电离阈值附近^[4]. 具体激发方案是:



其中第二步光 λ_2 高出原子电离阈值 58.2 cm^{-1} , 将原子激发至自电离态 (autoionization Rydberg series, AIS)^[23].

当激光激发完成后, 一个弱脉冲场将所有离子引导到一个很强的直流场 (50 kV/cm), 弱的脉冲电场不足以将里德伯离子电离, 而强的直流场可以将有效量子数 $n^* > 14$ 的离子里德伯态电离成二价离子, 所有离子经过飞行时间质谱仪后由微通道板 (microchannel plate, MCP) 收集, 离子信号由于 MCP 的倍增效应被放大, MCP 具有很高的时间分辨率 ($< 100 \text{ ps}$), 单片 MCP 的倍增系数可达

约 10^4 , 由此区分镧原子电离产生的 La^+ 和由一价镧离子激发到高激发态电离产生的 La^{2+} 信号, 得到几乎纯净的一价镧离子激发光谱^[24]. 对于不同能区激发谱, 施加的场电离条件有所不同, 因此得到的 MCP 信号有差异, 这就是测量的两段有重叠能区的光谱信号强度有差异的原因, 如图 1 所示. 为了对实验中扫描的激光波长进行定标, 引出少量光利用 F-P 标准具 (自由光谱程约 0.64 cm^{-1}) 作相对定标, 并利用空心阴极灯的光谱线进行绝对定标. 实验时整个装置保持在真空度优于 $6.7 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ 的真空中, 杂散电场小于 0.1 V/cm ^[25], 实验使用的染料激光器的线宽为 0.5 cm^{-1} .

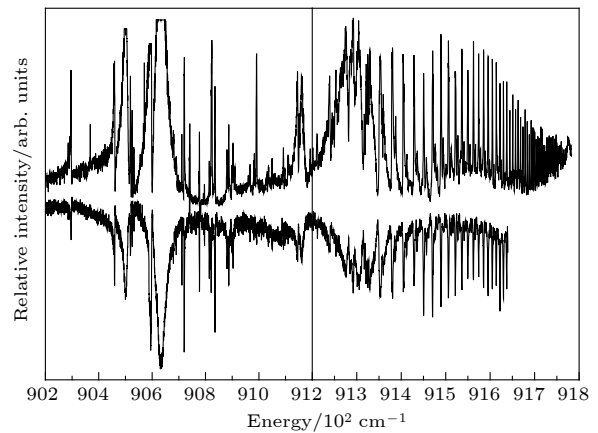


图 1 由中间态 (Xe) 5d6d 3F_2 激发的一价镧离子光谱的能量标定: 以文献^[1]的 89690.4—91639.8 cm^{-1} 光谱 (下图) 为基准, 对 89872.8—91783.2 cm^{-1} 能区光谱 (上图)^[19] 重新标定, 平移了 -10.3 cm^{-1} . 横轴能量以一价镧离子基态能量为零点

Fig. 1. The energy calibration of the excited La^+ spectrum via intermediate state (Xe) 5d6d 3F_2 . We recalibrate the spectrum^[19] in the energy region 89872.8—91783.2 cm^{-1} (upper figure) according to the spectrum^[1] in the energy region 89690.4—91639.8 cm^{-1} (lower figure), and the offset of the recalibration is -10.3 cm^{-1} . The zero point of energy is taken the energy of the ground state of La^+ .

2.2 理论方法

研究电子-电子关联作用是原子分子物理长期以来基本的研究课题之一. 组态相互作用计算是公认的研究电子间关联效应的重要方法, 在多通道量子亏损理论 (MQDT)^[3-9] 框架下的相对论多通道理论 (RMCT)^[10-16], 是把组态相互作用转化为通道间的相互作用. 通道由一系列里德伯态及相应的连续态构成: 原子实处于特定状态, 激发电子角动量以及它与原子实角动量的耦合方式一定, 而激发电子轨道能量不同. 也就是说, 某一通道中的一系

列态, 其原子实处于特定状态, 激发电子角动量以及它与原子实角动量的耦合方式一定, 而激发电子的轨道能量不同.

在多通道量子亏损理论 (MQDT)^[3-9] 框架下, 引入本征通道这个概念. 本征通道的物理图像可以理解为: 在第 α 个本征通道中, 作用域内较强的相互作用, 使得在作用域外所有分解通道的电子径向波函数成为具有共同相移 $\pi\mu_\alpha$ 的库仑驻波, 在各个分解通道中的库仑驻波则以特定的权重 $U_{i\alpha}$ 线性叠加在一起 (下角标 i 表示各分解通道). 因此所有的本征通道能够有效地描述在作用域内复合体的动力学特性, 一个特定的本征通道可用一组紧致的物理参数, 即 MQDT 参数定量地描述: 短程散射矩阵的本征值 (即本征量子数亏损 μ_α) 和其本征矢量 (所有本征矢量组成正交的转换矩阵 $U_{i\alpha}$) 以及偶极跃迁矩阵元 D_α . 在阈值附近这些参数随能量是光滑变化的. 相对论多通道理论 (RMCT)^[10-16] 不仅考虑了有限束缚类组态的相互作用, 而且考虑了无限多的里德伯态和相应的连续态的相互作用, 由此可以计算有限能量点的 MQDT 参数, 从而在 MQDT 框架下得到某一通道的无限多个里德伯态的能级. 通道原则上是无限多的, 但实际计算中只能考虑有限个通道. 首先要考虑价电子和满壳层原子实各个电子的相互作用, 而不考虑原子实内各电子的相互作用, 这就是冻结实近似. 但仅考虑冻结实近似是不够的, 事实上原子实和激发电子之间的相互作用会造成原子实的改变, 这其中比较重要的有动态极化效应^[13] 和伸缩模效应^[26], 分别由激发电子对原子实的极化和贯穿作用引起. 具体地, 动态极化效应是指激发电子围绕原子实运动产生的电场使得原子实的角动量变化, 同时为保持原子总角动量和总宇称的守恒, 激发电子的状态也发生相应的变化. 其中 $|\Delta l| = 1$ (l 是原子实的角动量), 称为偶极极化效应, $|\Delta l| = 2$ 称为四极极化效应等等^[13-27]. 伸缩模效应是指激发电子贯穿到原子实内部, 由于激发电子的屏蔽作用, 原子实中的电子激发到更高能级的轨道, 同时原子实的角动量和宇称保持不变, 即主量子数 n 改变, 而原子实和激发电子角动量以及耦合方式不变^[26,27].

我们已经在多通道量子亏损理论 (MQDT)^[3-9] 框架下, 利用相对论多通道理论 (RMCT)^[10-16] 计算了一价镱离子的里德伯能级和自电离光谱^[17-20]. 其中文献^[17] 只考虑了收敛于一价镱离子的最低两个电离阈值的相关通道, 即仅考虑了冻结实近

似. 而文献^[18] 考虑了冻结实近似、 $|\Delta l| = 1$ 偶极极化效应和 $|\Delta l| = 2$ 四极极化效应, 包括了收敛于一价镱离子最低七个电离阈的所有可能通道, 这七个电离阈分别对应 (Xe) $5d^2D_{3/2,5/2}$, (Xe) $4f^2F_{5/2,7/2}^o$, (Xe) $6s^2S_{1/2}$, (Xe) $6p^2P_{1/2,3/2}^o$. 文献^[19,20] 以文献^[18] 考虑的通道计算为基础, 计算了一价镱离子 $J^\pi = 0^-, 1^-, 2^-, 3^-$ 的光谱 (J 代表电子总角动量, π 表示宇称, $\pi = +, -$ 分别表示偶宇称和奇宇称), 由此标识了两个激发方案得到的实验光谱. 本文采用文献^[19] 的计算结果, 分析和标识能量重新标定的经由中间态 (Xe) $5d6d^3F_2$ 激发的 $89872.8-91783.2 \text{ cm}^{-1}$ 实验光谱. 对于自电离谱峰的标识, 以起主要作用的本征通道谱来标识, 这在组态相互作用不是很强时可以满足标识自电离谱峰的要求. 用此方法, 我们标识了复杂原子铀原子^[28]、铯原子^[29] 和镱原子^[30] 的自电离里德伯能级. 考虑本征通道谱之间的相互作用, 当激发能区远离原子实激发, 散射截面是^[4,6,8,9]

$$\sigma = 2\pi^2 \alpha a_0^2 (df/d\varepsilon) = \sum_{\rho} \left(\sum_{\alpha} D_{\alpha} A_{\alpha}^{\rho} \right)^2, \quad (1)$$

其中 $(df/d\varepsilon)$ 是振子强度, α 是精细结构常数, a_0 是玻尔半径, 系数 A_{α}^{ρ} 是 μ_{α} 和 $U_{i\alpha}$ 的函数, 在自电离能域, 碰撞本征通道 ρ 具有共同的本征相移 $\pi\rho$, D_{α} 是能量的缓变函数.

3 结果与讨论

对经由中间态 (Xe) $5d6d^3F_2$ 激发的一价镱离子光谱, 文献^[1] 给出了 $89690.4-91639.8 \text{ cm}^{-1}$ 光谱, 但是只分析得到一价镱离子的里德伯能级. 而文献^[19] 分析了高于第一电离阈值的光谱, 报道了收敛于一价镱离子第二电离阈值的两个自电离里德伯系列. 值得指出的是, 文献^[19] 所用的实验光谱, 和文献^[1] 的测量方法一样, 但测量能区不同, 为场电离条件略有差别的 $89872.8-91783.2 \text{ cm}^{-1}$ 光谱, 该光谱的能量标定由于工作失误而有偏移. 本文以文献^[1] 光谱的能量标定为标准, 根据这两个光谱重叠能区, 重新标定了文献^[19] 所用的实验光谱, 结果见图 1 所示, 即 $89872.8-91783.2 \text{ cm}^{-1}$ 能区光谱.

根据能量重新标定的 $89872.8-91783.2 \text{ cm}^{-1}$ 实验光谱, 我们重新确定了一强一弱两个自电离里德伯系列的谱峰位置, 如表 1 和表 2 所列. 通过比

表 1 一价镧离子强自电离里德伯系列能级位置实验和理论比较. 理论标识分为两列: (1) 本征通道 $5dep \left(\frac{5}{2}, \frac{1}{2}\right)_3$, (2) 本征通道 $5dep \left(\frac{5}{2}, \frac{1}{2}\right)_2$. 实验能级由中间态 (Xe) 5d6d 3F_2 激发的光谱得到. 实验误差为 0.5 cm^{-1}
 Table 1. Comparison of energy positions (cm^{-1}) between the experimental and the theoretical strong autoionization Rydberg series of La^+ . Theoretical assignments are divided into two columns with the labels: (1) eigenchannel $5dep \left(\frac{5}{2}, \frac{1}{2}\right)_3$, (2) eigenchannel $5dep \left(\frac{5}{2}, \frac{1}{2}\right)_2$. The experimental energy levels are obtained via the intermediate state (Xe) 5d6d 3F_2 . The experimental error is 0.5 cm^{-1} .

$E_{\text{exp.}}$	n^*	$E_{\text{theo.}}$		$E_{\text{exp.}}$	n^*	$E_{\text{theo.}}$	
		(1)	(2)			(1)	(2)
90680.0	19.66	90676.4	90683.3	91678.8	56.56	91679.2	91679.5
90796.0	20.74	90777.4	90789.4	91683.4	57.53	91684.0	91684.1
90887.1	21.74	90865.5	90883.9	91688.0	58.55	91688.4	91688.5
90967.0	22.74	90972.6	90963.6	91692.3	59.56	91692.9	91692.7
91035.9	23.72	91031.5	91033.5	91696.3	60.55	91697.0	91696.8
91092.7	24.63	91095.1	91095.1	91700.1	61.53	91700.5	91700.6
91151.4	25.70	91149.8	91149.8	91703.8	62.54	91704.3	91704.1
91201.3	26.72	91192.8	91199.8	91707.3	63.54	91707.8	91707.8
91244.8	27.72	91244.4	91243.2	91710.7	64.56	91711.1	91711.1
91316.9	29.65	91318.1	91317.2	91713.9	65.56	91714.2	91714.2
91350.9	30.72	91349.9	91349.0	91717.1	66.61	91717.4	91717.3
91379.2	31.70	91379.2	91381.2	91720.0	67.61	91720.3	91720.2
91404.1	32.64	91405.3	91405.4	91722.6	68.54	91723.0	91722.9
91428.5	33.66	91428.9	91429.3	91725.2	69.52	91725.6	91725.6
91450.4	34.65	91451.1	91451.1	91727.7	70.49	91728.2	91728.2
91470.7	35.65	91473.2	91472.4	91730.3	71.55	91730.6	91730.5
91489.4	36.66	91491.0	91489.9	91732.7	72.58	91732.9	91732.9
91506.3	37.65	91507.5	91506.9	91734.7	73.47	91735.2	91735.2
91522.0	38.64	91523.2	91522.6	91737.0	74.53	91737.3	91737.3
91536.2	39.61	91537.5	91537.1	91739.0	75.49	91739.4	91739.3
91550.0	40.62	91551.2	91549.7	91741.0	76.49	91741.4	91741.4
91562.5	41.61	91564.0	91563.7	91742.8	77.42	91743.3	91743.2
91574.3	42.61	91575.3	91576.6	91744.8	78.50	91745.1	91745.0
91585.1	43.60	91585.9	91586.8	91746.5	79.45	91746.8	91746.9
91595.5	44.61	91596.3	91596.5	91748.2	80.44	91748.6	91748.6
91604.9	45.60	91605.6	91605.9	91749.7	81.35	91750.2	91750.2
91613.8	46.59	91614.5	91614.6	91751.4	82.41	91751.8	91751.8
91622.1	47.58	91622.8	91623.1	91752.9	83.39	91753.3	91753.3
91629.9	48.56	91630.8	91630.9	91754.6	84.53	91754.8	91754.8
91637.3	49.56	91638.1	91638.3	91755.8	85.37	91756.2	91756.2
91644.2	50.54	91645.2	91645.2	91757.2	86.38	91757.6	91757.6
91650.9	51.56	91651.7	91651.7	91758.4	87.27	91759.0	91758.9
91657.1	52.55	91657.8	91658.0	91759.8	88.35	91760.2	91760.2
91662.9	53.54	91663.8	91663.8	91761.3	89.56	91761.4	91761.5
91668.4	54.53	91669.2	91669.2	91762.1	90.22	91762.6	91762.6
91673.9	55.57	91674.3	91674.4				

表 2 一价镧离子弱自电离里德伯系列能级位置实验和理论比较. 理论标识分为两列: (1) 本征通道 $5d\epsilon f \left(\frac{5}{2}, \frac{5}{2}\right)_3$, (2) 本征通道 $5d\epsilon f \left(\frac{5}{2}, \frac{5}{2}\right)_2$. 实验能级由中间态 (Xe) $5d6d \ ^3F_2$ 激发的光谱得到. 实验误差为 0.5 cm^{-1}

Table 2. Comparison of energy positions (cm^{-1}) between the experimental and the theoretical weak autoionization Rydberg series of La^+ . Theoretical assignments are divided into two columns with the labels: (1) eigenchannel $5d\epsilon f \left(\frac{5}{2}, \frac{5}{2}\right)_3$, (2) eigenchannel $5d\epsilon f \left(\frac{5}{2}, \frac{5}{2}\right)_2$. The experimental energy levels are obtained via the intermediate state (Xe) $5d6d \ ^3F_2$. The experimental error is 0.5 cm^{-1} .

$E_{\text{exp.}}$	n^*	$E_{\text{theo.}}$		$E_{\text{exp.}}$	n^*	$E_{\text{theo.}}$	
		(1)	(2)			(1)	(2)
90980.9	22.93	90977.0	90981.4	91578.6	43.00	91576.0	91578.3
91317.2	29.66	91318.2	91326.2	91589.1	43.98	91586.1	91591.1
91359.7	31.01	91349.9	91357.1	91598.6	44.93	91596.8	91600.0
91387.7	32.01	91393.1	91386.0	91608.4	45.98	91606.2	91609.2
91412.1	32.97	91417.3	91411.5	91616.7	46.93	91615.2	91617.5
91435.4	33.96	91438.8	91436.8	91625.1	47.95	91623.5	91625.9
91456.7	34.95	91456.1	91457.6	91632.7	48.93	91631.2	91633.2
91474.6	35.86	91475.1	91478.1	91640.0	49.94	91641.5	91640.6
91494.6	36.95	91492.7	91495.9	91646.8	50.93	91645.6	91647.4
91511.1	37.94	91508.9	91512.3	91653.3	51.94	91651.9	91653.9
91526.2	38.92	91523.0	91527.7	91659.3	52.92	91658.2	91660.1
91541.4	39.98	91538.7	91541.6	91665.0	53.91	91664.1	91665.7
91554.8	40.99	91552.1	91554.8	91670.2	54.86	91669.4	91671.1
91567.1	41.99	91564.4	91566.9	91675.5	55.89	91674.7	91676.1

较实验谱和 RMCT 计算得到的本征通道谱, 标识这两个自电离里德伯系列, 其中强的自电离里德伯系列标识为 $5dnp \left(\frac{5}{2}, \frac{1}{2}\right)$ 和/或 $5dnp \left(\frac{5}{2}, \frac{1}{2}\right)_2$, 弱的系列标识为 $5dnf \left(\frac{5}{2}, \frac{3}{2}\right)_3$ 和/或 $5dnf \left(\frac{5}{2}, \frac{3}{2}\right)_2$. 图 2 给出了与强自电离里德伯系列对应的本征通道谱 $5dep \left(\frac{5}{2}, \frac{1}{2}\right)_3$, $J^\pi = 3^-$, 可以看出理论和实验的谱峰位置大致对应, 但强度和谱峰形状有较大差异. 进一步定量比较量子数亏损的差异, 采用一价镧离子的第二电离阈值 91816.03 cm^{-1} , 这是基于美国国家标准与技术研究院 [2] 给出的二价镧离子能级和一价镧离子第一电离阈值推算得到的. 从图 3 可以看出, 当有效量子数 $n^* < 67$ 时, 实验能级得到的量子数亏损与理论计算的量子数亏损之差 $\Delta\mu = \mu_{\text{expt.}} - \mu_{\text{theor.}}$ 普遍小于 0.1. 当 $n^* > 67$ 时, $\Delta\mu$ 随着激发能量增加而急剧增加, 原因见后面分析. 图 1 显示的实验光谱, 有明显的干扰态存在. 文献 [19] 识别了三个干扰态, 对应实验谱的三个宽峰 A, B 和 C, 分别位于 $90600, 91300$ 和 91600 cm^{-1} , 文献 [19] 基于 RMCT 计算, 给出了这三个干扰态的

标识: 峰 A 标识为 $4f_{7/2}10s_{1/2}, J^\pi = 3^-$, 峰 B 标识为 $4f_{5/2}11s_{1/2}, J^\pi = 3^-$ 和 /或 $6p_{3/2}7s_{1/2}, J^\pi = 2^-$, 峰 C 标识为 $4f_{5/2}10d_{3/2}, J^\pi = 3^-$. 这样可以确定对实验谱有主要贡献的本征通道, 考虑这些本征通道谱相互作用. 具体地, 根据 (1) 式, D_α 在感兴趣区取为常数, 通过调整 D_α 值, 可以得到谱峰位置、谱峰强度和谱峰形状均接近实验谱的理论谱, 如图 2 所示. 这个理论谱考虑了 $J^\pi = 3^-$ 的这些本征通道: $5d_{3/2}\epsilon f_{5/2}, 5d_{5/2}\epsilon f_{5/2}, 5d_{5/2}\epsilon p_{1/2}, 4f_{5/2}\epsilon s_{1/2}, 4f_{5/2}\epsilon d_{3/2}, 4f_{7/2}\epsilon s_{1/2}, 4f_{7/2}\epsilon d_{3/2}, 4f_{7/2}\epsilon d_{5/2}$ 和 $6p_{3/2}\epsilon d_{5/2}$, 相应的偶极跃迁矩阵元 D_α 分别为 0.5, 0.01, 10, 0.1, 0.1, 10, -3, 2 和 -10. 注意理论光谱卷积了仪器函数, 该函数为高斯线形, 半高全宽为实验使用的激光线宽 0.5 cm^{-1} . 从图 2 可以看出, 考虑了干扰态影响的理论光谱, 强自电离里德伯系列能级对应的谱峰位置与相应本征通道谱的谱峰位置在谱峰宽度内一致. 因此不再列出考虑了干扰态影响的理论光谱对应的谱峰位置.

图 3 给出了一价镧离子的里德伯态和强自电离里德伯态的量子数亏损随激发能量 (n^*) 的变化

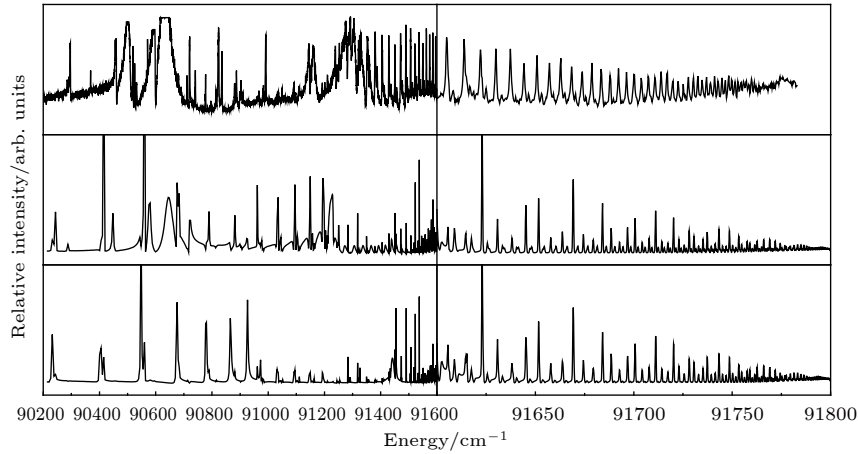


图 2 考虑了对实验谱有主要贡献的本征通道之间相互作用的理论光谱(中间谱)与实验谱(上图)和本征通道谱(下图) $5d_{ep}\left(\frac{5}{2}, \frac{1}{2}\right)_3, J^\pi = 3^-$ 的比较. 中间的理论谱是根据(1)式, 考虑了 $J^\pi = 3^-$ 的这些本征通道的相互作用: $5d_{3/2}\epsilon f_{5/2}, 5d_{5/2}\epsilon f_{5/2}, 5d_{5/2}\epsilon p_{1/2}, 4f_{5/2}\epsilon s_{1/2}, 4f_{5/2}\epsilon d_{3/2}, 4f_{7/2}\epsilon s_{1/2}, 4f_{7/2}\epsilon d_{3/2}, 4f_{7/2}\epsilon d_{5/2}$ 和 $6p_{3/2}\epsilon d_{5/2}$

Fig. 2. Comparison of the experimental spectrum(upper figure), the theoretical spectrum(middle figure) considering interaction among these eigenchannels that give primary contribution to the experimental spectra and the eigenchannel spectrum(lower figure) for $5d_{ep}\left(\frac{5}{2}, \frac{1}{2}\right)_3, J^\pi = 3^-$. The theoretical spectrum shown in middle figure is obtained based on the Eq. (1), and included these eigenchannels with $J^\pi = 3^-$: $5d_{3/2}\epsilon f_{5/2}, 5d_{5/2}\epsilon f_{5/2}, 5d_{5/2}\epsilon p_{1/2}, 4f_{5/2}\epsilon s_{1/2}, 4f_{5/2}\epsilon d_{3/2}, 4f_{7/2}\epsilon s_{1/2}, 4f_{7/2}\epsilon d_{3/2}, 4f_{7/2}\epsilon d_{5/2}$ and $6p_{3/2}\epsilon d_{5/2}$.

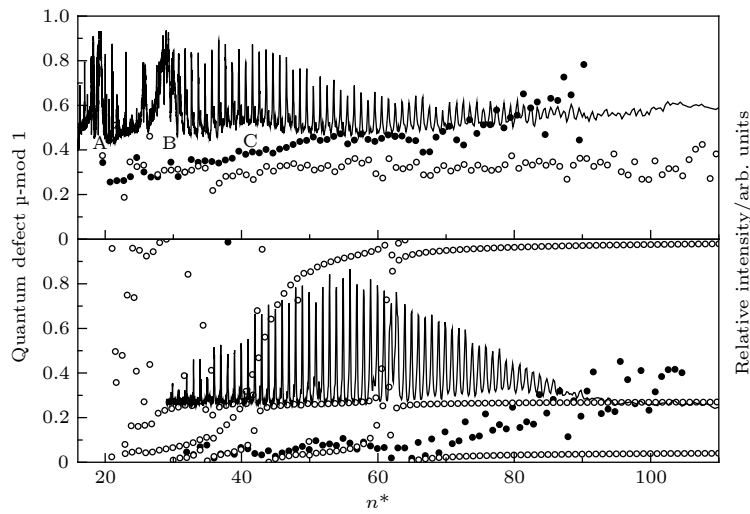


图 3 一价镧离子的里德伯系列(下图)和自电离里德伯系列(上图)对应的模为1的量子数亏损随激发能量的变化关系. 实验值用实心圆点表示, 理论计算给出了 $J^\pi = 3^-$ 的所有可能的束缚态能级和本征通道 $5d_{ep}\left(\frac{5}{2}, \frac{1}{2}\right)_3$ 的谱峰能级对应的模为1的量子数亏损, 用空心圆点表示. 激发能量用有效量子数 n^* 表征, 利用了里德伯关系, $E = E_\infty - \frac{Z^2 Ry}{(n^*)^2}, n^* = n - \mu_{n,l,j}$, 这里 E 是激发能量, n^* 为有效量子数, μ 为量子数亏损, E_∞ 是相应的电离阈值, Z 为离子实的有效正电荷数, Ry 为里德伯常数

Fig. 3. Quantum defect $\mu \text{ mod } 1$ v.s. excited energy for Rydberg series(lower figure) and autoionization Rydberg series(upper figure) of La^+ . ●: Experimental data. ○: theoretical quantum defect mod 1 for all possible bound state energy levels with $J^\pi = 3^-$ symmetry and peak positions of eigenchannel $5d_{ep}\left(\frac{5}{2}, \frac{1}{2}\right)_3$. Excitation energy is represented by the effective quantum number n^* , according to Rydberg formula $E = E_\infty - \frac{Z^2 Ry}{(n^*)^2}, n^* = n - \mu$. Here, E is excitation energy, n^* is effective quantum number, μ is quantum defect, E_∞ is the ionization threshold, Z is the charge of the ionic core, and Ry is Rydberg constant.

规律. 很明显, 实验数据显示这两个里德伯系列在有效量子数很高 ($n^* > 67$) 时, 量子数亏损光滑性被破坏. 具体来说, 无论是一价镧离子的里德伯系列还是强自电离里德伯系列, 有效量子数在 $n^* =$

67—90 这段范围, 量子数亏损变化了约 0.4. 实验光谱在有效量子数很高 ($n^* > 67$) 时的异常还体现在: 离子里德伯态在有效量子数 $n^* > 87$ 时, 自电离里德伯态在 $n^* > 85$ 时, 谱线明显展宽, 相邻谱峰重叠明显. 这一现象并不是激光线宽造成的, 因为只有在 $n^* > 97$, 里德伯能级间隔才小于激光线宽 (0.5 cm^{-1}).

首先排除组态相互作用对里德伯能级规则性破坏的贡献. 考虑组态相互作用的 RMCT 计算显示: 对离子里德伯系列, $n^* < 67$ 时, 实验能级得到的量子数亏损与理论计算的量子数亏损之差 $|\Delta\mu|$ 普遍好于 0.02, 理论与实验符合非常好; 如图 3 所示, 在高的有效量子数 ($n^* > 67$) 时, 无论离子里德伯系列还是自电离里德伯系列, 理论计算的量子数亏损均是平滑变化, 但是实验能级得到的量子数亏损并不是平滑变化, 因此量子数亏损光滑性被破坏并不是组态相互作用造成的.

上述证据强烈暗示外场的存在, 这个外场不可能是杂散电场, 因为它的强度很弱不足以解释实验现象 (可根据文献 [31] 估计能级的斯塔克展宽). 这个外场可能源于第二步激发过程中镧原子光电离产生的等离子体, 是等离子体效应对里德伯能级影响的体现. 处于等离子体环境中离子的能级结构以及动力学性质会受到周围等离子体环境的影响, 其中一个基本现象是电离势降低 (ionization potential depression, IPD). IPD 实验是等离子体物理学中一个长期存在的问题, 而对 IPD 广泛采用的理论解释主要有两种半经典模型, 分别是 Ecker-Kröll (EK) 模型 [32] 和 Stewart-Pyatt (SP) 模型 [33]. 近些年也有很多理论工作细致研究了等离子体环境对其中离子的能级结构以及动力学性质的影响, 例如文献 [34] 通过理论计算研究了德拜等离子体环境中类氢离子束缚-束缚跃迁的性质, 计算结果表明 $\Delta n \neq 0$ 跃迁对应的谱线会发生红移. 而一价镧离子里德伯态量子数亏损光滑性的破坏可能来源于等离子体环境造成的这类影响. 激发能量与量子数亏损的关系由下面的里德伯公式给出:

$$E_n = E_\infty - \frac{Z^2 Ry}{(n - \mu)^2}, \quad (2)$$

其中 E_n 是主量子数为 n 的里德伯态的激发能量, μ 为量子数亏损, E_∞ 是相应的电离阈值, Z 为离子实的有效正电荷数, Ry 为里德伯常数. 在 $n^* > 67$ 时里德伯态的量子数亏损平滑变化前提下, 利用里

德伯公式 (2) 式, 拟合得到一价镧离子的电离阈值为 90212.5 cm^{-1} , 这比文献 [1] 给出的电离阈值 90212.8 cm^{-1} 红移了 0.3 cm^{-1} . 图 4 比较显示了在 $n^* > 67$ 时不同电离阈值得到的一价镧离子里德伯系列量子数亏损随激发能量的变化关系, 实心圆点采用的电离阈值来自文献 [1], 空心圆点采用拟合的电离阈值. 与实心圆点的量子数亏损变化呈上升趋势相比, 空心圆点对应的量子数亏损变化趋于平稳, 这表明 $n^* > 67$ 时里德伯系列量子数亏损平滑性的破坏可以等效为量子数亏损维持平滑性而电离阈值发生降低, 结合等离子体环境下 IPD 现象, 这可能意味着高 n 的里德伯能级受到了第二步激发过程中镧原子光电离产生的等离子体环境的影响.

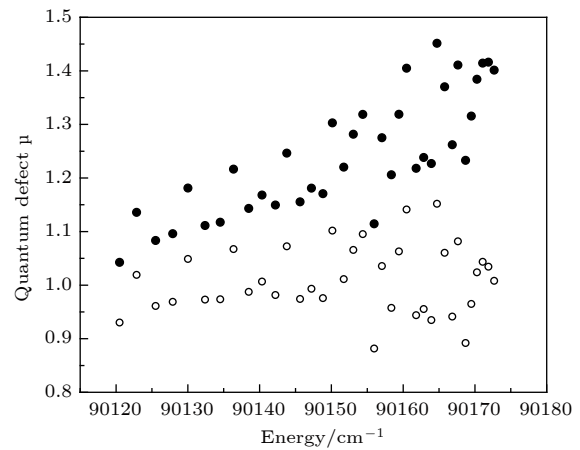


图 4 不同电离阈值得到的一价镧离子里德伯系列 (有效量子数 $n^* > 67$ 时, 对应激发能量范围为 90120 cm^{-1} — 90175 cm^{-1}) 量子数亏损随激发能量的变化关系. 采用文献 [1] 给出的一价镧离子第一电离阈值 90212.8 cm^{-1} , 得出的量子数亏损用实心圆点表示; 采用根据里德伯系列量子数亏损变化光滑性拟合的电离阈值 90212.5 cm^{-1} , 得出的量子数亏损用空心圆点表示

Fig. 4. Quantum defect μ v.s. excited energy for the Rydberg series ($n^* > 67$, in the energy region 90120 cm^{-1} — 90175 cm^{-1}) converging to the different ionization thresholds. ●: quantum defects obtained by the ionization threshold 90212.8 cm^{-1} from Ref. [1]. ○: quantum defects obtained by the ionization threshold 90212.5 cm^{-1} , which is fitted based on the quantum defect regular behavior for a Rydberg series.

事实上, 当电离光能量在电离阈值附近时, 光电离磁光阱的冷原子可以产生强耦合等离子体, 这方面的实验研究已开展了近二十年, 具体参见综述文章 [35]. 文献 [36] 利用里德伯能级微波跃迁, 测量了冷原子光电离产生的等离子体对里德伯能级的移动效应. 进一步工作还在开展中.

4 结 论

本文分析了五步激光共振激发, 经由中间态 (Xe) $5d6d\ 3F_2$ 得到的一价镱离子第一电离阈值以上的光谱, 确定了一价镱离子的两个自电离里德伯系列的能级, 同时利用多通道量子亏损理论 (MQDT) 框架下的相对论多通道理论 (RMCT) 进行计算, 理论和实验结果符合得很好, 如图 2, 表 1 和表 2 所示, 由此标识了这两个自电离里德伯系列, 强的自电离里德伯系列标识为 $5dnp\left(\frac{5}{2}, \frac{1}{2}\right)_3$ 和/或 $5dnp\left(\frac{5}{2}, \frac{1}{2}\right)_2$, 弱的系列一价标识为 $5dnf\left(\frac{5}{2}, \frac{5}{2}\right)_3$ 和/或 $5dnf\left(\frac{5}{2}, \frac{5}{2}\right)_2$. 进一步发现实验光谱显示有效量子数很高 ($n^* > 67$) 时, 里德伯和自电离里德伯能级量子数亏损随激发能量发生明显变化, 有效量子数在 $n^* = 67 - 90$ 这段范围内, 量子数亏损变化了约 0.4, 如图 3 所示. 排除了杂散电场和组态相互作用破坏里德伯系列量子数亏损光滑变化的可能性, 推断可能是第二步激发电离镱原子产生的等离子体的影响.

参考文献

- [1] Xie X P, Xu C B, Sun W, Xue P, Zhong Z P, Huang W, Xu X Y 1999 *J. Opt. Soc. Am. B* **16** 484
- [2] Kramida A, Ralchenko Y, Reader J, Team, NIST A S D url: <https://physics.nist.gov/asd> [2018-12-1]
- [3] Fano U 1970 *Phys. Rev. A* **2** 353
- [4] Lee C M, Lu K T 1973 *Phys. Rev. A* **8** 1241
- [5] Greene C, Fano U, Strinati G 1979 *Phys. Rev. A* **19** 1485
- [6] Johnson W R, Lin C D, Cheng K T, Lee C M 1980 *Phys. Scr.* **21** 409
- [7] Li J M 1980 *Acta Phys. Sin.* **29** 419 (in Chinese) [李家明 1980 物理学报 **29** 419]
- [8] Seaton M J 1983 *Rep. Prog. Phys.* **46** 167
- [9] Li J M 1983 *Acta Phys. Sin.* **32** 84 (in Chinese) [李家明 1983 物理学报 **32** 84]
- [10] Lee C M 1974 *Phys. Rev. A* **10** 584
- [11] Zou Y, Tong X M, Li J M 1995 *Acta Phys. Sin.* **44** 50 (in Chinese) [邹宇, 仝晓民, 李家明 1995 物理学报 **44** 50]
- [12] Huang W, Zou Y, Tong X M, Li J M 1995 *Phys. Rev. A* **52** 2770
- [13] Yan J, Zhang P H, Tong X M, Li J M 1996 *Acta Phys. Sin.* **45** 1978 (in Chinese) [颜君, 张培鸿, 仝晓民, 李家明 1996 物理学报 **45** 1978]
- [14] Li J M, Wu Y J, Pratt R H 1989 *Phys. Rev. A* **40** 3036
- [15] Xia D, Li J M 2001 *Chin. Phys. Lett.* **18** 1334
- [16] Xia D, Zhang S Z, Peng Y L, Li J M 2003 *Chin. Phys. Lett.* **20** 56
- [17] Sun W, Yan J, Zhong Z P, Xie X P, Xue P, Xu X Y 2001 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **34** 369
- [18] Zhang X F, Jia F D, Zhong Z P, Xue P, Xu X Y, Yan J 2007 *Chin. Phys. Lett.* **24** 2808
- [19] Wang J Y, Zhong Z P, Jia F D, Qu Y Z, Zhong Y P 2008 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **41** 085002
- [20] Zhong Y P, Jia F D, Zhong Z P 2009 *Chin. Phys. B* **18** 4242
- [21] Sedlacek J A, Schwetmann A, Kübler H, Löw R, Pfau T, Shaffer J P 2012 *Nat. Phys.* **8** 819
- [22] Huang W, Liang Z T, Du Y X, Yan H, Zhu S L 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 160702 (in Chinese) [黄巍, 梁振涛, 杜炎雄, 颜辉, 朱诗亮 2015 物理学报 **64** 160702]
- [23] Sun W 2001 *Ph. D. Dissertation* (Beijing: Tsinghua University) (in Chinese) [孙玮 2001 博士学位论文 (北京: 清华大学)]
- [24] Huang W, Xu X Y, Xu C B, Xue M, Chen D Y 1995 *J. Opt. Soc. Am. B* **12** 961
- [25] Huang W, Xu X Y, Xu C B, Xue M, Li L Q, Chen D Y 1994 *Phys. Rev. A* **49** R653
- [26] Zhao Z X, Li J M 1985 *Acta Phys. Sin.* **34** 1469 (in Chinese) [赵中新, 李家明 1985 物理学报 **34** 1469]
- [27] Li X M, Ruan Y P, Zhong Z P 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 023104 (in Chinese) [李心梅, 阮亚平, 钟志萍 2012 物理学报 **61** 023104]
- [28] Jia F D, Zhong Z P, Sun W, Xue P, Xu X Y 2009 *Phys. Rev. A* **79** 032505
- [29] Lv S F, Li R, Jia F D, Li X K, Lassen J, Zhong Z P 2017 *Chin. Phys. Lett.* **34** 073101
- [30] Li R, Lassen J, Zhong Z P, Jia F D, Mostamand M, Li X K, Reich B B, Teigelhöfer A, Yan H 2017 *Phys. Rev. A* **95** 052501
- [31] Gallagher T F 1994 *Rydberg Atom* (1st Ed.) (Cambridge: Cambridge University Press) pp 70–102
- [32] Ecker G, Kröll W 1963 *Phys. Fluids* **6** 62
- [33] Stewart J C, Pyatt Jr. K D 1966 *Astrophys. J.* **144** 1203
- [34] Qi Y Y, Wang J G, Janev R K 2008 *Phys. Rev. A* **78** 062511
- [35] Lyon M, Rolston S L 2017 *Rep. Prog. Phys.* **80** 017001
- [36] Park H, Ali R, Gallagher T F 2010 *Phys. Rev. A* **82** 023421

The study on high n Rydberg state of La II*

Li Xiao-Kang¹⁾ Jia Feng-Dong¹⁾ Yu Fang-Chen¹⁾ Li Ming-Yang¹⁾

Xue Ping^{2)†} Xu Xiang-Yuan³⁾ Zhong Zhi-Ping^{1)4)‡}

1) (*College of Physical Sciences, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

2) (*Collaborative Innovation Center of Quantum Matter, State Key Laboratory of Low-Dimensional Quantum Physics, Department of Physics, Tsinghua University, Beijing 100084, China*)

3) (*Department of Physics, Capital Normal University, Beijing 100037, China*)

4) (*CAS Center for Excellence in Topological Quantum Computation, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

(Received 7 November 2018; revised manuscript received 4 December 2018)

Abstract

We analyze ionic spectrum of lanthanum via intermediate state (Xe) $5d6d^3F_2$ in the energy region 89872-91783 cm^{-1} , and the spectrum is obtained using five-laser resonance excitation in combination with a method of sequential ionization by a pulsed electric field and a constant electric field, and has been recalibrate in this work. Both of one strong and one weak autoionization Rydberg series converging to the La^{2+} state are determined. Meanwhile, the two autoionization Rydberg series are assigned by relativistic multichannel theory (RMCT) within the framework of multi-channel quantum defect theory (MQDT). More specifically, the strong autoionization Rydberg series is assigned to $5dnp \left(\frac{5}{2}, \frac{1}{2} \right)_3$ and/or $5dnp \left(\frac{5}{2}, \frac{1}{2} \right)_2$, and the weak autoionization Rydberg series is assigned to $5dnf \left(\frac{5}{2}, \frac{5}{2} \right)_3$ and/or $5dnf \left(\frac{5}{2}, \frac{5}{2} \right)_2$. We focus on the behavior of quantum defect with excitation energy for high n Rydberg states, which are sensitive to the existence of a external field. We find the breakdown of quantum defect regular behavior for a specific Rydberg series and autoionization Rydberg series of La^+ as the effective quantum number $n^* > 67$. Due to that our calculations, which are obtained by relativistic multichannel theory and included configuration interactions, are in basically agreement with that for experimental low n ($n^* < 67$) Rydberg states as well as small stray electric fields, we suggest that plasma formed by photoionization of La atoms in the second excitation step may be responsible for the breakdown of quantum defect regular behavior.

Keywords: quantum defect, Rydberg state, relativistic multi-channel theory

PACS: 32.80.Rm, 32.80.Ee, 31.15.vj, 31.15.am

DOI: 10.7498/aps.68.20181980

* Project supported by the National Key Research and Development Program of China(Grant Nos. 2017YFA0402300 , 2017YFA0304900), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11604334), the Key Teseach Program of the Chinese Academy of Sciences, China (Grant No. XDPB08-3), and the Open Research Fund Program of the State Key Laboratory of Low-Dimensional Quantum Physics, China (Grant No. KF201807).

† Corresponding author. E-mail: xuep@tsinghua.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: zpzong@ucas.ac.cn