

Rb(6^2D) 原子与基态 Rb 原子, H_2 分子 碰撞转移截面

刘子东 孙献平 李森林 刘秩媛 曾小云

中国科学院武汉物理研究所, 武汉, 430071

1990年6月6日收到; 1990年12月10日收到修改稿

本文用荧光法测量 Rb(6^2D) 原子与基态 Rb 原子, H_2 分子碰撞转移截面. 结果表明: Rb(6^2D)—Rb(5^2s) 转移截面为 $\sigma_{is} = 67 \times 10^{-14} \text{cm}^2$, $\sigma_{ii} = 4.3 \times 10^{-14} \text{cm}^2$, Rb(6^2D)— H_2 转移截面为 $\sigma_{is}^* = 0.44 \times 10^{-14} \text{cm}^2$, $\sigma_{ii}^* = 0.01 \times 10^{-14} \text{cm}^2$.

PACC: 3450H; 3250

一、引 言

激发态原子与原子、分子碰撞能量转移过程在研制新型激光器, 化学反应动力学, 等离子体物理中起着非常重要的作用, 所以一直得到人们的高度重视. 但由于受光源限制, 最初人们主要集中于低激发态原子能量转移过程的研究^[1]. 随着可调谐染料激光器的出现, 人们开始对“中间态”或高里德伯态原子能量转移过程进行研究^[2]. 至今为止, 人们已对激发态 Rb 原子与惰性气体原子碰撞能量转移过程进行了系统的研究^[3], 但由于分子具有复杂的振转能级, 所以激发态 Rb 原子与分子碰撞能量转移过程显得更加复杂. 人们至今对激发态 Rb 原子与分子碰撞能量转移机制仍然不大清楚, 近十几年来所发展的一些实验方法包括荧光法、交叉束法所取得的截面数据不但非常贫乏且限于少数几个 Rb 原子能级, 精度一般不高, 数值也有差异, 而且在实际中证实近代几种理论模型仍有很大局限性, 尚待进一步发展和验证.

二、稳态速率方程

我们用两步激发方法将基态 Rb 原子分别激发到 Rb($6^2D_{3/2}$) 和 Rb($6^2D_{5/2}$). 见图 1. Rb($6^2D_{3/2}$) 原子与其它原子或分子碰撞转移到 Rb($6^2D_{5/2}$) 或其它能级. 同理 Rb($6^2D_{5/2}$) 原子也与其它原子或分子碰撞转移到 Rb($6^2D_{3/2}$) 或其它能级, 根据稳态原理, 可得到如下方程:

对于第一种情况, Rb(6^2D) 与 H_2 碰撞稳态速率方程为

$$N_{3/2}^1 N \bar{V} \sigma_{is} + N_{5/2}^1 N^* \bar{V}^* \sigma_{is}^* = N_{3/2}^1 [1/\tau_{3/2} + N \bar{V} \sigma'_{is} + N \bar{V} \sigma_{ii}(3/2) + N^* \bar{V}^* \sigma_{is}^{*'} + N^* \bar{V}^* \sigma_{ii}^{*}(3/2)],$$

$$W_{D(5/2)} + N_{3/2}^1 N \bar{V} \sigma'_{fs} + N_{3/2}^1 N^* \bar{V}^* \sigma_{fs}^* = N_{3/2}^1 [1/\tau_{5/2} + N \bar{V} \sigma_{fs} + N \bar{V} \sigma_{tr(5/2)} + N^* \bar{V}^* \sigma_{fs}^* + N^* \bar{V}^* \sigma_{tr(5/2)}^*].$$

对于第二种情况, Rb(6^2D) 与 H_2 碰撞稳态速率方程为

$$W_{D(3/2)} + N_{3/2}^2 N \bar{V} \sigma_{fs} + N_{3/2}^2 N^* \bar{V}^* \sigma_{fs}^* = N_{3/2}^2 [1/\tau_{3/2} + N \bar{V} \sigma'_{fs} + N \bar{V} \sigma_{tr(3/2)} + N^* \bar{V}^* \sigma_{fs}^* + N^* \bar{V}^* \sigma_{tr(3/2)}^*],$$

$$N_{3/2}^2 N \bar{V} \sigma'_{fs} + N_{3/2}^2 N^* \bar{V}^* \sigma_{fs}^* = N_{3/2}^2 \left[N \bar{V} \sigma_{fs} + N^* \bar{V}^* \sigma_{fs}^* + \frac{1}{\tau_{5/2}} + N \bar{V} \sigma_{tr(5/2)} + N^* \bar{V}^* \sigma_{tr(5/2)}^* \right].$$

总结以上结果, 并作如下近似:

$$\tau_{3/2} \approx \tau_{5/2} \approx \tau; \sigma_{tr(3/2)} \approx \sigma_{tr(5/2)} \approx \sigma_{tr}; \sigma_{tr(3/2)}^* \approx \sigma_{tr(5/2)}^* \approx \sigma_{tr}^*.$$

得到如下结果:

$$\frac{N_{3/2}^1}{N_{3/2}^2} = \frac{W_{D_{3/2}}}{W_{D_{5/2}}} \left[\frac{1 + B_1}{1/N \bar{V} \sigma_{fs} + \sigma_{tr}/\sigma_{fs} + 1 + B_1 + B_2} \right],$$

式中

$$B_1 = N^* \bar{V}^* \sigma_{fs}^* / N \bar{V} \sigma_{fs}; B_2 = N^* \bar{V}^* \sigma_{tr}^* / N \bar{V} \sigma_{fs},$$

$$W_{D_{3/2}}/W_{D_{5/2}} = f_{p \rightarrow D_{3/2}}/f_{p \rightarrow D_{5/2}} = 9,$$

f , N , τ 分别为 Rb 原子振子强度、密度和能级寿命; $\bar{V}$ 为碰撞对 (Rb(6^2D))—Rb(5^2S)) 平均相对速率; $\bar{V}^*$ 为碰撞对 (Rb(6^2D))— H_2 平均相对速率; N^* 为 H_2 分子密度。

同理, 可以得到 Rb(6^2D) 原子与基态 Rb 原子碰撞稳态速率方程

$$\frac{N_{3/2}^1}{N_{3/2}^2} = \frac{f_{p \rightarrow D_{3/2}}}{f_{p \rightarrow D_{5/2}}} \frac{1}{(1/N \bar{V} \sigma_{fs} \tau_{5/2} + 1 + \sigma_{tr(5/2)}/\sigma_{fs})} + Q,$$

式中 Q 为杂质气体修正项, 可以认为它近似为常数。

三、结果与讨论

我们用荧光法测量 Rb(6^2D) 原子与基态 Rb 原子, H_2 分子碰撞转移截面。实验装置如图 2 所示。柱形样品泡 (18mm×60mm) 充有碱金属 Rb 或碱金属 Rb 和 H_2 分子。美国光谱物理公司 171Ar⁺ 激光器抽运的 380A 环形染料激光器, Rb 光谱灯, 单色仪互成直

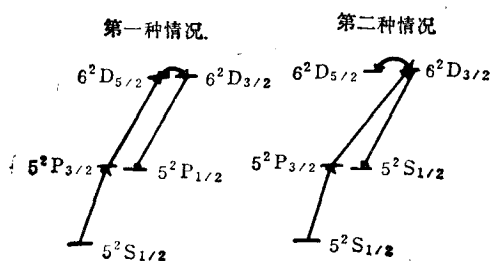


图 1 Rb 原子部分能级图

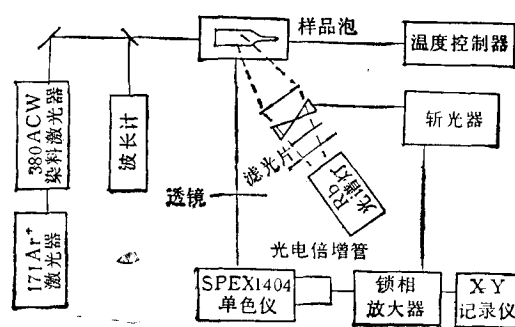


图 2 实验装置图

角放置。Ar⁺ 激光器输出功率为 3W, 染料激光器的输出功率为 40mW, 线宽为 30MHz。染料为 DCM。波长计用来检测激光波长。受斩光器调制的荧光通过单色仪后照射在光电倍增管上并被锁相放大器同步接收信号记录在 X-Y 记录仪上。

Rb(6²D) 原子与 Rb(5²S) 原子碰撞荧光强度比与 Rb 原子密度关系如图 3 所示。通过最小二乘法拟合, 得到如下结果(其中 $\tau = 285 \times 10^{-9}s$ ^[4]):

$$\sigma_{fs} = 67 \times 10^{-14} \text{cm}^2, \sigma_{tr} = 4.3 \times 10^{-14} \text{cm}^2, Q = 2.2.$$

根据细致平衡原理 $\sigma_{fs}/\sigma'_{fs} = \exp(\Delta E/kT)g(^2D_{3/2})/g(^2D_{5/2})$, 其中 ΔE 为精细结构能级间隔,

$$\sigma'_{fs} = 100 \times 10^{-14} \text{cm}^2.$$

Rb(6²D) 原子与 H₂ 分子碰撞荧光强度比与氢气密度关系曲线如图 4 所示。利用已测得的 Rb(6²D) 原子与基态 Rb 原子碰撞截面, 拟合出如下结果:

$$\sigma_{fs}^* = 0.44 \times 10^{-14} \text{cm}^2, \sigma_{tr}^* = 0.01 \times 10^{-14} \text{cm}^2.$$

根据细致平衡原理,

$$\sigma_{fs}^{*'} = 0.66 \times 10^{-14} \text{cm}^2.$$

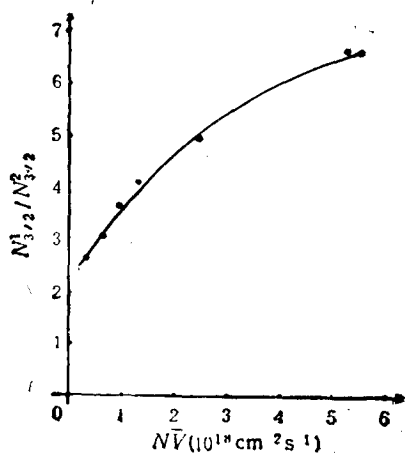


图 3 荧光强度比 ($N_{3/2}/N_{5/2}$) 与 Rb 原子密度关系

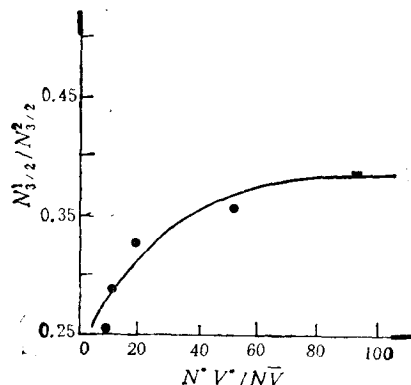


图 4 荧光强度比 ($N_{3/2}/N_{5/2}$) 与氢气密度关系

1. 本文的 Rb(6²D) 原子与基态 Rb 原子碰撞精细结构转移截面 (σ_{fs}) 比 Parker^[5] 和 Hill^[6] 等人的结果分别大 10 倍和 6 倍左右, 但转移到精细结构以外的截面 (σ_{tr}) 比 Hill 等人^[6] 的结果小 9 倍左右, Parker^[5] 的结果没有公布 σ_{tr} 值。本文的总截面值 ($\sigma = \sigma_{fs} + \sigma_{tr} = 7.1 \times 10^{-13} \text{cm}^2$) 与 Hill 的总截面值 ($\sigma = 4.8 \times 10^{-13} \text{cm}^2$) 基本一致。据已有的结果表明^[9], 在 100—200℃ 温度范围内, Rb 精细结构转移截面比转移到精细结构之外的截面值大。这点与本文结果是一致的。

2. Rb(6²D) 原子与基态 Rb 原子, H₂ 分子碰撞精细结构转移截面比非精细结构转移截面至少大一个数量级。这表明 Rb(6²D) 原子与基态 Rb 原子, H₂ 分子碰撞转移到其它能级的概率很小, 主要转移到精细结构能级上。

3. Rb(6²D) 原子与基态 Rb 原子碰撞精细结构转移截面比相应的与 H₂ 分子碰撞转

移截面大两个数量级。这是因为 Rb 原子存在一个未配对电子。Rb(6^2D) 原子与基态 Rb 原子碰撞时强烈的偶极-偶极相互作用导致较大的精细结构转移截面。

4. 至今为止,人们对原子分子碰撞过程仍不太清楚,处理这类非弹性碰撞过程的理论模型仍存在很大的局限性。1970 年 Krause 等人^[6]提出当 H_2 分子转动能级与 Rb 原子精细结构间隔靠近时,精细结构转移截面会明显增大。但对 Rb(6^2D) 原子由于精细结构转移为主要的能量转移过程,并且精细结构间隔远小于 H_2 分子转动能级间隔,所以 H_2 分子转动态不可能参与精细结构碰撞过程。1981 年 Hickman 等人^[7]提出:由于 Rb- H_2 相互作用的各向异性特性引起电子能级的 $^1A''$ 和 $^2A''$ 分裂发生径向耦合,从而导致精细结构之间的碰撞转移。关于这一步的假设尚待作进一步的证实。

- [1] L. Krause, *Appl. Opt.*, 5(1966), 1575.
- [2] F. Gounand, P. R. Fournier and J. Berlande, *Phys. Rev.*, A15(1977), 2212.
- [3] B. G. Zollars, M. A. Schuessler, J. W. Parker and R. H. Hill Jr. *Phys. Rev.*, 28(1983), 1329.
- [4] C. H. Lundberg and S. Svanberg, *Phys. Lett.*, 56(1976), 31.
- [5] J. R. Parker, H. A. Schuessler, R. H. Hill, Jr. and B. G. Zollars, *Phys. Rev.*, 29(1984), 617.
- [6] E. S. Hryciyshyn and L. Krause, *Can. J. Phys.*, 48(1970), 2761.
- [7] A. P. Hickman, *Phys. Rev. Lett.*, 47(1981), 5438.
- [8] R. H. Hill, Jr., H. A. Schuessler and B. G. Zollars, *Phys. Rev.*, A25(1982), 834.
- [9] J. Wolnikowski, J. B. Atkinson, J. Supronowicz and L. Krause, *Phys. Rev.*, A25(1982), 2622.

6D TRANSFER CROSS SECTION IN RUBIDIUM INDUCED IN COLLISIONS WITH GROUND STATE Rb ATOMS AND H_2 MOLECULES

LIU ZI-DONG SUN XIAN-PING LI SEN-LIN

LIU ZHI-YUAN ZENG XIAO-YUN

Wuhan Institute of Physics, Academia Sinica, Wuhan, 430071

(Received 6 June 1990; revised manuscript received 10 December 1990)

ABSTRACT

Cross sections for 6^2D in Rb, induced by collisions with ground state Rb atoms and H_2 molecules, have been measured using fluorescence methods. The results show that transfer cross sections for Rb(6^2D)-Rb(5^2S) are $\sigma_{fs} = 67 \times 10^{-14} \text{cm}^2$, $\sigma_{tr} = 4.3 \times 10^{-14} \text{cm}^2$ and transfer cross section for Rb(6^2D)- H_2 are $\sigma_{fs}^* = 0.44 \times 10^{-14} \text{cm}^2$, $\sigma_{tr}^* = 0.01 \times 10^{-14} \text{cm}^2$.

PACC: 3450H; 3250