

# Yb 原子里德伯态及价态的 场电离阈\*

方达渭<sup>1)</sup> 戴长建 舒晓武 郇菁 张森

(浙江大学物理系, 杭州 310027)

(1994年4月4日收到)

用偏振激光两步激发得到 Yb 原子不同  $|m|$  值的里德伯态和  $4f^{13}5d6s6p$  价态, 采用脉冲场电离方法测定了  $6sns^1S_0 (n=21-28)$ ,  $m=0$  和  $6snd^1D_2 (n=20-27)$ ,  $|m|=0, 1$  各里德伯态及  $4f^{13}5d6s6p$  价态的电离阈值. 引入 Stark 有效量子数  $n^*$ , 对电离阈值作了计算. 对实验和计算结果作了对比分析. 讨论了场电离过程中价态与里德伯态之间的相互作用及其对电离阈值的影响.

PACC: 3260S; 3280K

## 1 引 言

早在六十年代和七十年代初期, 人们对氢原子的场电离规律就进行了理论计算与实验测定<sup>[1]</sup>. 七十年代末以来, 场电离技术作为探测高激发态原子的一种高效手段更受到人们的重视. Gallagher<sup>[2,3]</sup>, Liberman<sup>[4]</sup> 等对 Na, K, Rb 等碱金属原子里德伯态的场电离进行了较全面的实验研究. Littman 等<sup>[5]</sup>利用经典的鞍点势模型给出了类氢原子的场电离阈  $F_c = 1/16n^*$ . Cooke 等<sup>[6]</sup>考虑到电子轨道角动量在电场方向的投影对电离阈值的影响, 推得  $|m|$  不为零时电离阈值  $F_m$  与  $m=0$  时电离阈值  $F_0$  之间的一阶近似关系式. 郇菁等<sup>[7]</sup>在此基础上又推得了二阶近似关系式, 并与碱土金属 Sr 原子的实验结果符合较好.

对价态场电离的研究报道不多. Sandner 等<sup>[8]</sup>对 Ba 原子  $5d7d(^1D)$  双激发价态的场电离规律作了细致的研究, 以“强迫自电离”(forced autoionization) 的概念说明了价态场电离的机制, 对场电离过程中价态作为“自电离态”与里德伯系列的相互作用规律及线型特点作了深入分析, 对实验结果作了较好的说明.

对于稀土元素, 目前尚未见到场电离研究的有关报道. 这方面的研究对探索复杂原子的场电离规律及稀土元素的广泛应用具有理论和实际意义. 本文报道我们对稀土元素 Yb 原子场电离阈值的实验测定和计算结果.

\* 国家自然科学基金资助的课题.

1) 中国计量学院物理教研室, 杭州 310034

## 2 实验方法与结果

实验装置与文献[9]中类似。Yb 原子样品置于  $T = 550^\circ\text{C}$  的原子炉中, 低密度原子束从直径为 1 mm 的小孔水平射出, 进入位于两平行板中央的作用区, 脉冲电场由加在平行板上的脉冲电压产生。由同一台 Nd:YAG 激光器的三倍频光经分束后泵浦两台染料激光器, 两激光束接近同轴进入作用区。激光束、原子束与电场三者互相垂直。作用区保持真空度高于  $2 \times 10^{-3}$  Pa, 以消除碰撞电离。第一束激光调谐在波长  $\lambda_1 = 398.9\text{nm}$ , 使 Yb 原子由基态  $4f^{14}6s^2\ ^1S_0$  共振激发到  $4f^{14}6s6p\ ^1P_1$  态, 第二束激光波长  $\lambda_2$  在 396.0—400.6 nm 范围内扫描, 使 Yb 原子由  $4f^{14}6s6p\ ^1P_1$  激发至各里德伯态及  $4f^{13}5d6s6p$  价

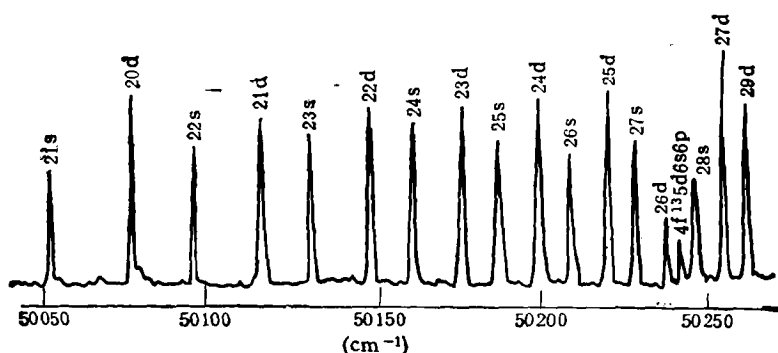


图1 零场时 Yb 原子里德伯态和价态光谱,  $|m| = 0$

态。两束激光通过加偏振片变为偏振方向平行于电场的  $\pi$  线偏光或垂直于电场的  $\sigma$  线偏光, 利用  $\pi\pi$  和  $\pi\sigma$  偏振组合激发分别得到  $|m| = 0, 1$  的激发终态。在光脉冲过后约  $0.1\ \mu\text{s}$ , 由 Velonex Model 360 高压脉冲电源产生一脉宽  $10\ \mu\text{s}$ , 幅度为 0.3—2 kV 可调, 前沿时间为 25 ns 的矩形高压脉冲, 用以场电离里德伯态或价态原子, 同时作为离子搜集电场。

实验时先根据零场条件下扫描得到的里德伯态和价态的光谱图(见图1), 通过调谐  $\lambda_2$  择定待测的里德伯态或价态, 缓慢增加脉冲电压幅值, 直到实现当场电离。脉冲电压的 1000:1 取样信号和经电子倍增管收集与放大的电离信号分别经 Boxcar 的 A, B 通道取样平均

后输入 X-Y 记录仪的 X 轴、Y 轴, 由此给出电离讯号-场强图(见图2)。Boxcar 的 B 通道取样门宽度约为  $1\ \mu\text{s}$ , 起始时间与脉冲电压同步, 即延迟于激光脉冲约  $0.1\ \mu\text{s}$ , 这样测得的离子信号对应的激发态寿命为  $10^{-6}$ — $10^{-7}$  s, 故图2中电离阈值对应的场电离

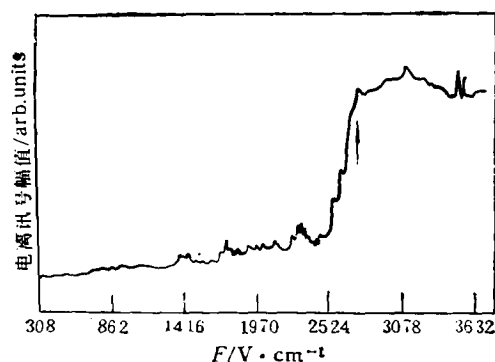


图2 Yb 原子场电离讯号与场强关系 图中箭头指示位置定为电离阈值 ( $6s21d\ ^1D_2$  态,  $|m| = 0$ )

速率为  $10^6-10^7\text{s}^{-1[5]}$ 。脉冲电压的幅值测量系统用直流电压标定, 标定误差小于 2.5%, 两平行板之间相距为 0.5 cm, 距离误差不大于 2%, 因此, 电场测量总的相对误差不大于 5%。

实验得出 Yb 原子  $6sns\ ^1S_0$  ( $n = 21-28$ ),  $m = 0$  和  $6snd\ ^1D_2$  ( $n = 20-27$ ),  $|m| = 0, 1$  各里德伯态及  $4f^{13}5d6s6p$  价态 ( $|m| = 0, 1$ ) 的电离阈值, 列于表 1。

表 1 Yb 原子部分里德伯态及价态的场电离阈值(单位:  $10^3\text{ V} \cdot \text{cm}^{-1}$ )

组 态	$m = 0$			组 态	$m = 0$			$ m  = 1$		
	实验值	计算值			实验值	计算值		实验值	计算值	
		按 $n_r$	按 $n^*$			按 $n_r$	按 $n^*$		按 $n_r$	按 $n^*$
$6s21s\ ^1S_0$	4.37	4.44	4.08	$6s20d\ ^1D_2$	3.48	3.50	3.59	3.56	3.60	3.70
$6s22s\ ^1S_0$	3.39	3.50	3.24	$6s21d\ ^1D_2$	2.74	2.80	2.87	2.77	2.88	2.95
$6s23s\ ^1S_0$	2.72	2.80	2.60	$6s22d\ ^1D_2$	2.27	2.26	2.31	2.34	2.32	2.37
$6s24s\ ^1S_0$	2.24	2.27	2.12	$6s23d\ ^1D_2$	1.80	1.85	1.90	1.82	1.90	1.94
$6s25s\ ^1S_0$	1.81	1.85	1.74	$6s24d\ ^1D_2$	1.55	1.53	1.56	1.57	1.57	1.60
$6s26s\ ^1S_0$	1.49	1.53	1.44	$6s25d\ ^1D_2$	1.27	1.28	1.30	1.28	1.30	1.33
$6s27s\ ^1S_0$ (50230.82 $\text{cm}^{-1}$ )	1.24	1.28	1.20	$6s26d\ ^1D_2$ (50240.19 $\text{cm}^{-1}$ )	1.06	1.07	1.10	1.06	1.09	1.12
$4f^{13}5d6s6p\ ^1D$ (50244.38 $\text{cm}^{-1}$ )					0.99	1.07		0.99	1.09	
$6s28s\ ^1S_0$ (50248.24 $\text{cm}^{-1}$ )	0.95	1.07	1.01	$6s27d\ ^1D_2$ (50257.26 $\text{cm}^{-1}$ )	0.91	0.91	0.92	0.92	0.92	0.94

### 3 经典场电离阈的计算

设外电场沿  $z$  方向, 类氢原子里德伯电子的有效势在原子单位中可表为<sup>[6]</sup>

$$V = -1/r - Fz + m^2/2\rho^2. \quad (1)$$

式中  $\rho^2 = x^2 + y^2$ ,  $m$  为磁量子数。当  $m = 0$  时,  $V$  在  $(0, 0, -\sqrt{1/F})$  处有一鞍点, 对应的极大值为

$$V_{i,p} = -2\sqrt{F}. \quad (2)$$

按经典观点, 当原子里德伯态的能量  $E > E_{i,p} = V_{i,p}$  时, 在外电场作用下原子被电离。与能量  $E_{i,p}$  对应的电场强度  $F_0$  被定义为经典场电离阈, 即

$$F_0 = E_{i,p}^2/4. \quad (3)$$

可见, 对某一给定的原子里德伯态, 只要知道该态在接近电离限时的能级位置, 即可由(3)式求出其场电离阈值。

若不考虑场电离过程中里德伯能级的 Stark 位移, 而以零场里德伯态能量  $E = -1/2n^{*2}$  近似替代  $E_{i,p}$ , 则(3)式为

$$F_0 = 1/16n^{*4}. \quad (4)$$

为计入场电离过程中 Stark 位移对里德伯态电离阈值的影响, 需要进一步了解各里德伯态在电场中 Stark 位移的具体规律, 从而确定各里德伯态在接近电离限时的能级位置. 为此, Gallagher 等<sup>[2]</sup>引入一个 Stark 有效量子数  $n_s$ , 把里德伯态在经典场电离阈附近的能量为  $E = -1/2n_s^2$ , 从而(3)式成为

$$F_0 = 1/16n_s^4. \quad (5)$$

对  $|m|$  不为零的情况, 根据鞍点的特点, 此时(1)式中有效势  $V$  对  $z$  和  $\rho$  的偏导数应分别为零, 根据这一条件可推得  $|m|$  不为零时里德伯态经典场电离阈  $F_m$  与  $F_0$  的关系. 酈菁等<sup>[7]</sup>由这一方法推得的二阶近似表达式为

$$F_m = F_0(1 + m/2n + 19m^2/64n^2). \quad (6)$$

为计入场电离过程中 Stark 位移的影响, 上式中的  $n$  亦应由  $n_s$  替代.

对于价态, 其场电离机制与里德伯态不同. 由(2)式可见, 当存在外电场  $F$  时, 经典电离限高度将降至  $I_c = V_{ip}$ , 它与零场第一电离限  $I_1$  的关系为

$$I_1 - I_c = 2F^{1/2}. \quad (7)$$

当  $F$  增大,  $I_c$  降至价态能级以下时, 该价态即成为一个“自电离态”, 可迅速弹射其中一个电子而自电离. 因此, 价态的场电离实质上是电场作用下“强迫性”的“自电离”. 在研究其电离阈值时, 可忽略自电离态寿命、线型等因素, 而着重考虑从零场到实现自电离过程中价态能级位置的变化.

Yb 原子  $4f^{13}5d6s6p$  价态收敛于  $Yb^+4f^{13}(^2F_{7/2})5d6s(^1,^3D)$  电离限, 其值为  $I_2 = 83967.70\text{cm}^{-1[10]}$ , 高于第一电离限 ( $I_1 = 50443.08\text{cm}^{-1}$ ) 约  $33524\text{cm}^{-1}$ . 因此, 当施加外电场使  $I_c$  降至该价态的能级位置以下时, 价态在性质上仍属深束缚能级, 其波函数是高度定域的, 它的能级位置由下式给出:

$$E = I_2 - R/n^{**2}. \quad (8)$$

式中  $n^{**}$  为收敛于  $I_2$  电离限的里德伯系列能级的有效量子数.

Yb 原子  $4f^{13}5d6s6p$  价态为混合态(零场时该态中  $4f^{13}5d6s6p\ ^3D$  态及  $6snd\ ^1D_2$  态的混合系数分别为 0.83 和 0.16<sup>[10]</sup>). 当外电场增加时, 组态混合进一步加剧, 价态与相邻 Stark 簇及里德伯态的相互作用随之增大, 这种组态相互作用使价态能级在电场中的变化与里德伯能级相类似<sup>[9,11]</sup>. 因此, 在计算价态的电离阈值时, 可以不考虑价态在  $I_2$  系列中的有效量子数  $n^{**}$ , 而直接根据其能级位置在  $I_1$  系列中确定一个“等效里德伯态量子数”, 设为  $n_s'$ . 由  $n_s'$  即可按(5)和(6)式求出该价态在不同  $|m|$  时的电离阈值.

利用(5)和(6)式计算  $F_0$  和  $F_m$  时, 主要的困难在于如何确定各里德伯态或价态的 Stark 有效量子数  $n_s$ , 因为这首先需要确定这些态在接近电离限时的能级位置. 图 3 为我们采用数值积分方法计算得到的 Yb 原子  $n = 19$  附近,  $m = 0$  的 Stark 图 (在  $1600\text{V/cm}$  以下的场强范围内, 该图与我们的实验观察结果基本符合, 在  $1600\text{V/cm}$  以上的场强范围, 实验受分辨率的限制无法得出清晰的结果)<sup>[12]</sup>. 根据图中各里德伯态在经典电离限附近的能级位置, 由定义  $E = -1/2n_s^2$  即可求得相应的  $n_s$ . 由图可见,  $6sns\ ^1S_0$  系列和  $6snd\ ^1D_2$  系列里德伯态的 Stark 有效量子数可分别近似为

$$6sns\ ^1S_0\ \text{系列: } n_s \approx n - 4.60 \quad 6snd\ ^1D_2\ \text{系列: } n_s \approx n - 2.60$$

$4f^{13}5d6s6p$  价态的  $n_i$  近似取上下两相邻里德伯态的平均值,  $n_i \approx 23.40$ . 把上面得到的  $n_i$  或  $n_i^*$  代入(5)和(6)式,对实验测量的里德伯态及价态电离阈值作了计算. 作为

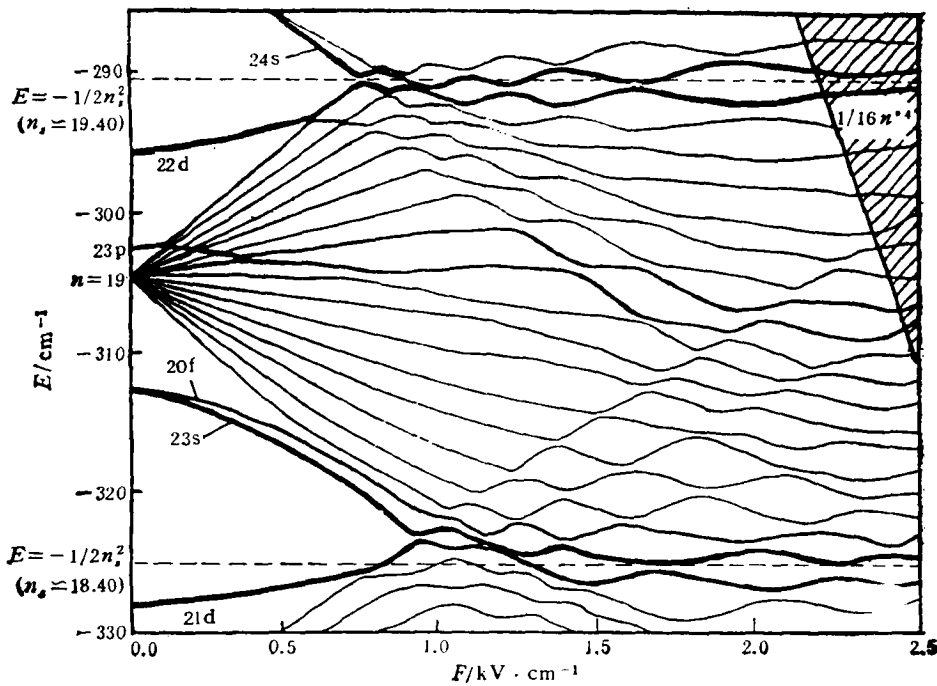


图3 Yb 原子 Stark 图,  $|m|=0, n=19$

比较,还以各里德伯态的  $n^*$  代入作了计算( $n^*$  的数据引自文献[10]). 两种计算结果与实验结果一并列于表1.

#### 4 讨 论

由表1可以看出:在两种计算结果中,按  $n_i$  计算的阈值更接近实验结果;按  $n^*$  计算阈值时,  $6sns\ ^1S_0$  系列的误差显著大于  $6snd\ ^1D_2$  系列的误差. 这可从图3中  $6sns\ ^1S_0$  系列向下的 Stark 位移较大,  $n_i$  与  $n^*(\sim n - 4.30)$  相差较多得到说明.

图4给出了以  $n_i$  及  $n^*$  对  $m=0$  时里德伯态电离阈值的实验结果拟合后与理论电离限的比较情况(未包括价态上方的  $6s28s\ ^1S_0$  态及  $6s27d\ ^1D_2$  态). 由图可见,以  $n_i$  拟合时,  $6sns\ ^1S_0$  系列和  $6snd\ ^1D_2$  系列的实验数据均接近理论曲线;而以  $n^*$  拟合时,  $6sns\ ^1S_0$  系列和  $6snd\ ^1D_2$  系列的数据分别偏离在理论曲线的两侧. 这一情况与图3中显示的  $6sns\ ^1S_0$  和  $6snd\ ^1D_2$  两系列能级在电场中分别具有不同方向的位移相符. 图4还提示人们,对某一里德伯系列,在主量子数改变范围不太大时,其对应的  $n_i$  可通过测量部分能级的电离阈值后对(5)式拟合求得. 并可由  $n_i$  进一步确定各里德伯态接近电离限时的能级位置,从而可较方便地获得该里德伯系列在强电场区的 Stark 结构图象.

表1中,  $4f^{13}5d6s6p$  价态的电离阈值介于相邻的  $6s26d\ ^1D_2$  态和  $6s28s\ ^1S_0$  态的电离

阈值之间,这与我们上节中对价态能级变化规律的分析一致。此外,价态及相邻里德伯态电离阈值的测量结果提供了场电离过程中价态与里德伯态相互作用的信息。由表 1 可见,  $4f^{13}5d6s6p$  态下方的  $6s26d\ ^1D_2$  态测得的阈值与根据  $n$ , 计算的结果相近, 而  $4f^{13}5d6s6p$  态上方紧邻的  $6s28s\ ^1S_0$  态的电离阈值显著变小(约 10%), 说明

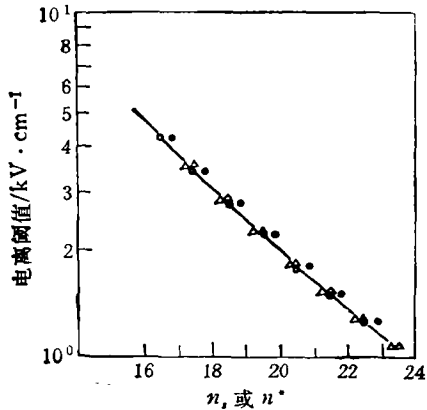


图 4  $n_s$  和  $n^*$  对电离阈测量值的拟合结果与理论曲线的比较 以  $n_s$  拟合:  $^1S_0$  系列( $\circ$ );  $^1D_2$  系列( $\triangle$ ); 以  $n^*$  拟合:  $^1S_0$  系列( $\bullet$ );  $^1D_2$  系列( $\blacktriangle$ )

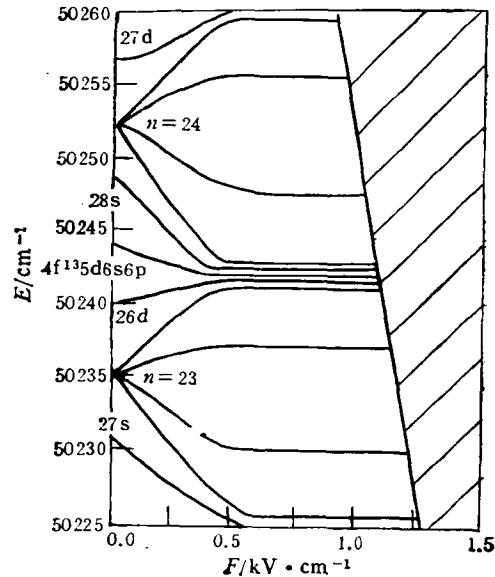


图 5 零场至场电离过程中  $4f^{13}5d6s6p$  价态及相邻里德伯态的绝热路径示意图

在场电离过程中,  $4f^{13}5d6s6p$  态的干扰使  $6s28s\ ^1S_0$  态能级受到排斥而有较大的上移, 而对下方  $6s26d\ ^1D_2$  态能级干扰则较小。由于  $4f^{13}5d6s6p$  态与上下两相邻里德伯态被夹在  $n=23$  和  $n=24$  两 Stark 簇之间, 在强电场区受到两 Stark 簇的强烈挤压(见图 5), 能级位置的移动受到限制, 因此单从这一结果还难以确定  $4f^{13}5d6s6p$  态与上下里德伯态相互作用的强烈程度。

在我们的实验中, 电场的上升速率约为  $10^{10} \text{ V/cm} \cdot \text{S}$ 。对每一待测的里德伯态, 根据这一上升速率及它与相邻里德伯态或 Stark 簇产生抗交叉时的能隙大小, 理论上可由 Landau-Zener 公式估算它非绝热跃迁至邻态的几率<sup>[13]</sup>。由于零场至场电离过程中经过一系列能隙大小不同的抗交叉点, 我们需要的是对整个场电离路径中非绝热跃迁的几率给出估计。对此, 一个直观而又可靠的方法是根据电离阈的测量值与沿绝热路径电离的理论值的比较来作出判断<sup>[2]</sup>。对于我们的实验,  $|m|=1$  的 Stark 结构类氢特性比  $m=0$  的情况更为显著, 因而前者的抗交叉点间隙小于后者<sup>[12]</sup>, 但实验结果表明, 两种情况下里德伯态的场电离主要均沿绝热路径进行。

- [1] D. S. Bailey, I. R. Hishes, A. C. Riviere, *Nucl. Fusion*, **5**(1965), 41. M. H. Rice and R. H. Good, *J. Opt. Soc.*, **A52**(1962), 239.
- [2] T. F. Gallagher, L. M. Humphrey, *Phys. Rev.*, **A16**(1977), 1098.
- [3] T. F. Gallagher, W. E. Cooke, *Phys. Rev.*, **A19**(1979), 694.
- [4] S. Lierman, J. Pinard, *Phys. Rev.*, **A20**(1979), 507.
- [5] M. G. Littman, M. M. Kash, D. Kleppner, *Phys. Rev. Lett.*, **41**(1978), 103.

- [6] W. E. Cooke, T. F. Gallagher, *Phys. Rev.*, **A17**(1978), 1226.  
[7] 郇菁、徐云飞、王云仙、张森, 物理学报, **42**(1993), 231.  
[8] W. Sandner, K. A. Safinya, T. F. Gallagher, *Phys. Rev.*, **A33** (1986), 1008.  
[9] S. Zhang, J. Z. Qiu, G. Wang, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **42**(1989), 19.  
[10] M. Aymar, A. Debarre, O. Robaux, *J. Phys. B*, **13**(1980), 1089.  
[11] M. L. Zimmerman, T. W. Ducas, M. G. Littman, *J. Phys. B*, (1978), L11.  
[12] 方达涓、戴长建、郇菁、王云仙、储晓峰、徐云飞、张森, 44(1995), 待发表.  
[13] C. Bordas, H. Helm, *Phys. Rev.*, **A47**(1993), 1209

## FIELD-IONIZATION THRESHOLDS OF RYDBERG STATES AND VALENCE STATE OF NEUTRAL YTTERBIUM

FANG DA-WEI DAI CHANG-JIAN SHU XIAO-WU LI JING ZHANG SEN

(Departments of Physics, Zhejiang University, Hangzhou 310027)

(Received 4 April 1994)

### ABSTRACT

The Rydberg states and  $4f^{13}5d6s6p$  valence state of neutral ytterbium of different  $|m|$  values are obtained by two-step excitation using polarized lasers. The field-ionization thresholds for  $6sns\ ^1S_0$  ( $n = 21-28, |m| = 0$ ) and  $6snd\ ^1D_2$  ( $n = 20-27, |m| = 0, 1$ ) Rydberg states as well as  $4f^{13}5d6s6p$  valence state are measured. The thresholds are also calculated by introducing a Stark effective quantum number  $n_s$ . The comparison between the experimental and calculated results is furnished. The interaction of valence state with Rydberg states, which affects the thresholds, is discussed.

**PACC:** 3260S;3280K