

Rb 原子激发态碰撞能量转移^{*}

王 谨 胡正发 张登玉

(中国科学院武汉物理与数学研究所波谱与原子分子物理国家重点实验室, 武汉 430071)

(中国科学院安徽光学精密机械研究所激光光谱学开放实验室, 合肥 230031)

詹明生

(中国科学院武汉物理与数学研究所波谱与原子分子物理国家重点实验室, 武汉 430071)

(1997 年 11 月 17 日收到; 1998 年 2 月 16 日收到修改稿)

报道了用连续单模激光激发 Rb 原子至特定的激发态, 从而观察激发态间的碰撞形成更高 Rb 原子激发态的实验结果. 实验观察到 Rb 原子激发态的自发辐射与高激发态的碰撞形成通道之间的明显竞争, 测得了高激发态的形成概率与激发光功率、原子蒸气温度及激光失谐的关系, 所提出的碰撞能量转移机理较好地解释了实验结果.

PACC: 3450H

1 引 言

含激发态原子碰撞过程的研究, 是提供原子结构和原子之间相互作用信息的重要来源, 对于原子分子物理和化学反应过程的理解有重要的意义, 另一方面, 激发态碱金属原子的碰撞是产生短波长辐射的有效手段. 因此, 很早就受到人们的重视. 在碰撞机理研究方面, Allegrini 等^[1]于 70 年代就对碱金属 Na 原子激发态碰撞过程进行了定性研究, 后来人们对其它碱金属原子的激发态碰撞过程也进行了深入的研究^[2-4], 得到了激发态碱金属原子与基态原子及与缓释气体原子间的碰撞截面. 但对于激发态与激发态之间的碰撞机理却注意不够, 本文则报道两 Rb 原子激发态之间碰撞形成更高 Rb 原子激发态的碰撞能量转移过程, 讨论和解释了其中的物理机制.

2 实 验

用连续氩离子激光抽运的钛宝石激光器(美国 Coherent CR-899-29, 线宽小于 0.5 MHz)调谐在 Rb 原子 D₂ 线(780.0 nm), 激发 Rb 蒸气样品. 样品的温度通过加热线圈控制. 后向荧光信号经光纤束传到单色仪, 再由光电倍增管(PMT)接收, 最后经锁相放大器放大并输出到计算机进行记录, 声光调制器(AOM)用以对激光进行振幅调制. 当固定激发激光波长在 5²P_{3/2} ← 5²S 共振峰时, 观察到白色偏蓝肉眼可见的强荧光, 在 400—

^{*} 国家自然科学基金(批准号: 19774069)资助的课题.

900 nm 范围内得到了荧光光谱. 经确认, 这些谱线来源于 Rb 原子的如下跃迁: $5^2P \rightarrow 5^2S$, $6^2P \rightarrow 5^2S$, $7^2S \rightarrow 5^2P$, $8^2S \rightarrow 5^2P$, $5^2D \rightarrow 5^2P$, $6^2D \rightarrow 5^2P$ 和 $7^2D \rightarrow 5^2P$. 由于 Rb 样品中含有少量的 Cs, 实验中还得到了来源于 Cs 原子的如下跃迁的荧光谱线: $6^2P \rightarrow 6^2S$, $7^2P \rightarrow 6^2S$, $8^2S \rightarrow 6^2P$ 和 $7^2D \rightarrow 6^2P$.

改变激光的功率或样品池的温度, 可得到不同的荧光光谱. 实验中, 样品池的温度变化范围为 373—573 K, 激光的功率变化范围为 30—480 mW. 实验结果表明, 随着激光功率增大, 荧光信号强度也相应地增大. 图 1 为一定温度下 Rb 5^2P 双线荧光强度 I_2 随激光功率 P_1 的关系曲线, 图 2 为同样温度下 Rb 两更高激发态 6^2P , 7^2S 分别到低能态跃迁双线的荧光强度 I_i 随激发光功率的变化, 而 I_2 与 I_i 间的关系如图 3 所示.

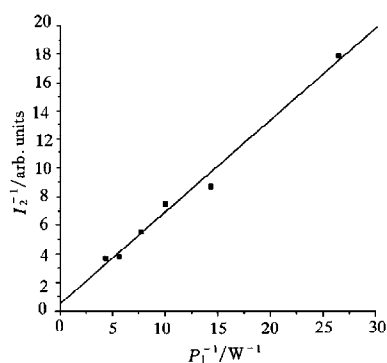


图 1 I_2^{-1} 与 P_1^{-1} 的关系曲线 ■ 为实验数据; — 为拟合曲线

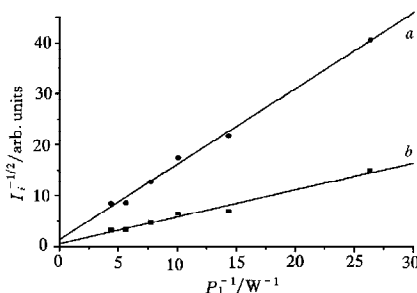


图 2 $I_i^{-1/2}$ 与 P_1^{-1} 关系曲线 ■ 和 ● 为实验数据; — 为拟合曲线; a 为 $6^2P \rightarrow 5^2S$ 的跃迁双线; b 为 $7^2S \rightarrow 5^2P$ 的跃迁双线

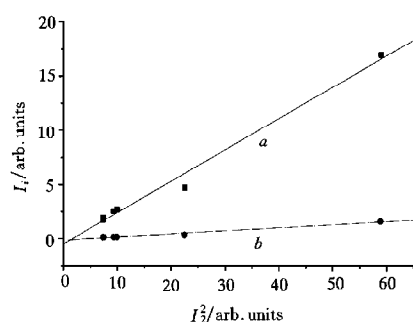


图 3 I_i 与 I_2^2 关系曲线 ● 和 ■ 为实验数据; — 为拟合曲线; a 为 $6^2P \rightarrow 5^2S$ 的跃迁双线; b 为 $7^2S \rightarrow 5^2P$ 的跃迁双线

实验测得了不同激光功率和蒸气温度下各激发态的布居, 如图 4 所示. 其中布居分布 $p(E)$ 定义为高激发态能级的粒子数密度 n_i 与 5^2P 能级的粒子数密度 n_2 之比, 根据自发辐射公式, 测量到的光子数 I_{ij} 与上能级数密度 n_i 及被测跃迁的自发辐射系数 A_{ij} 成正比,

$$I_{ij} = CA_{ij}n_i, \quad (1)$$

其中 C 是测量系统的频率响应函数,在以下讨论的可见光范围内,假定为一常量,当不可忽略时,在 I_{ij} 中修正. $p(E)$ 可表示为

$$p(E) = \frac{n_i}{n_2} = \frac{I_{ij}A_2}{I_2 A_{ij}}. \quad (2)$$

从图 4 可见, $p(E)$ 不随激光功率明显变化. 另外,实验也发现在本实验温度范围内, $p(E)$ 随温度的变化也不明显,表明碰撞已使 Rb 蒸气达到图 4 所示的平衡分布.

当激光波长在 $5^2P_{3/2} \leftarrow 5^2S$ 共振峰附近 25 GHz 的范围内扫描,同时固定被测荧光波长时,得到荧光信号强度随激光频率的变化如图 5 所示. 当激光波长从 780.04 nm 扫

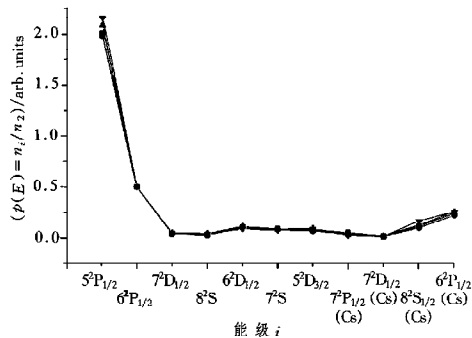


图 4 不同激光功率条件下的布居分布 曲线 a(■), 曲线 b(●), 曲线 c(▲), 曲线 d(▼) 分别是激光功率为 480, 230, 100 和 70 mW 的情况

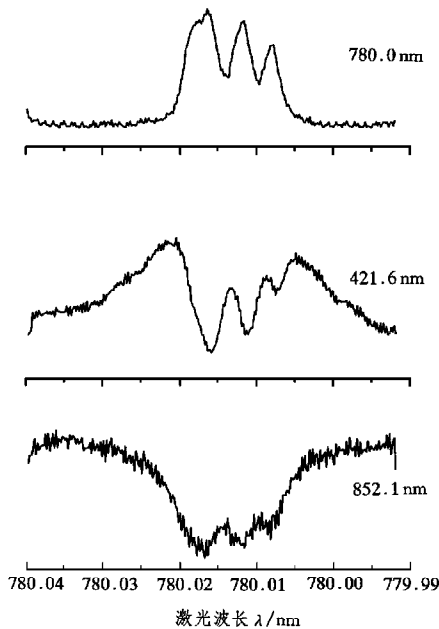


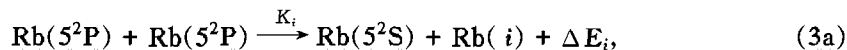
图 5 荧光信号强度随激光频率的变化

描至 779.99 nm, 覆盖 ^{87}Rb , ^{85}Rb 两同位素精细结构跃迁时, 荧光信号的强度发生有规律的变化. 对于 $5^2P_{3/2} \rightarrow 5^2S_{1/2}$ (780.0 nm) 跃迁的荧光信号而言, 其线型总体上是一个大的包络, 这是由于共振激发使得 $5^2P_{3/2}$ 能级上的粒子数增多所致; 包络由四个小峰组成, 分别对应 ^{85}Rb 精细结构跃迁 $5^2P_{3/2} \rightarrow 5^2S_{1/2}$, $F=3$ (780.016 nm) 和 $5^2P_{3/2} \rightarrow 5^2S_{1/2}$, $F=2$ (780.011 nm) 以及 ^{87}Rb 精细结构跃迁 $5^2P_{3/2} \rightarrow 5^2S_{1/2}$, $F=2$ (780.018 nm) 和 $5^2P_{3/2} \rightarrow 5^2S_{1/2}$, $F=1$ (780.006 nm) 的位置. 其它的非共振跃迁荧光信号, 如 $6^2P_{1/2} \rightarrow 5^2S_{1/2}$ (421.6 nm) 和 $\text{Cs}: 6^2P_{3/2} \rightarrow 6^2S_{1/2}$ (852.1 nm), 其线型总体上与 $5^2P_{3/2} \rightarrow 5^2S_{1/2}$ 跃迁荧光信号的位置相反, 是由几个凹陷组成的包络, 凹陷分别对应于 ^{85}Rb 和 ^{87}Rb 精细结构跃迁峰值的位置. 该图清楚表明高激发态的形成与 Rb 5^2P 态的荧光辐射之间存在通道竞争.

以上是用 Rb 的 D_2 线激发的实验结果. 改用 Rb 的 D_1 线 (794.8 nm) 激发时, 可得到类似的结果, 只是各荧光信号的强度分布有所不同.

3 分析与讨论

本实验中激光选择激发的是 Rb 5^2P 双重态中的一个($5^2\text{P}_{3/2}$ 或 $5^2\text{P}_{1/2}$), 但从实验光谱看, 来自 $5^2\text{P}_{1/2}$ 的荧光与来自 $5^2\text{P}_{3/2}$ 的荧光信号强度相当, 说明 $5^2\text{P}_{3/2}$ 和 $5^2\text{P}_{1/2}$ 之间的碰撞转移很快, 暂把这两个能级作为一个能级考虑, 对高激发态双重能级亦作类似处理. 在忽略高激发态之间的二次碰撞后, 可假定高激发态 Rb 及 Cs 原子产生于两个第一激发态原子的碰撞, 即



其中 i 代表高激发态能级中的一个, j 代表基态或第一激发态, K_i 为碰撞转移速率, ΔE_i 为两个第一激发态 Rb 原子的电子能量之和与 i 能级的平均能量之差^[5](见表 1). ΔE_i 来源于或转化为碰撞对的热运动平动能^[1], 其中也可能含有三体碰撞过程的贡献^[4]. 相应

表 1 两个第一激发态(5^2P)原子的电子能级与 i 能级的平均能量之差

	Rb						Cs		
能级 i	6^2P	5^2D	7^2S	6^2D	8^2S	7^2D	7^2P	8^2S	7^2D
$\Delta E_i/\text{cm}^{-1}$	1829	-69	-678	-3055	-3414	-4648	3779	1316	-429

的能级图如图 6 所示. 其中 $|1\rangle$ 态为 Rb 的基态 5^2S 态, $|2\rangle$ 表示 Rb 的第一共振激发态 $5^2\text{P}_{3/2}$ 和 $5^2\text{P}_{1/2}$. 该体系的速率方程可表示为

$$\frac{dn_i}{dt} = K_i n_2 - (A_{i1} + A_{i2}) n_i, \quad (4a)$$

$$\frac{dn_2}{dt} = w(n_1 - n_2) - A_{21} n_2 - \sum_i K_i n_2 + \sum_i A_{i2} n_i, \quad (4b)$$

$$n_1 + n_2 + \sum_i n_i = n, \quad (4c)$$

其中碰撞转移率 K_i 可表示为^[6]

$$K_i = \sigma_i v n_B, \quad (5)$$

n_B 为碰撞伙伴的密度, 此处 n_B 即为 n_2 ; σ_i 为两个第一激发态(5^2P)原子之间碰撞转移到 $|i\rangle$ 能级的碰撞转移截面; v 为原子平均热运动速度($v = \sqrt{3kT/m}$); w 表示单位时间内激光抽运原子的快慢程度; n_1 , n_2 , n_i 分别代表 $|1\rangle$, $|2\rangle$, $|i\rangle$ 能级上的粒子数密度; n 为热平衡条件下 Rb 原子总的粒子数密度, 它可由对应温度的饱和蒸气压得到. 稳态时, 由(4a)式得

$$K_i n_2 = (A_{i1} + A_{i2}) n_i, \quad (6)$$

即

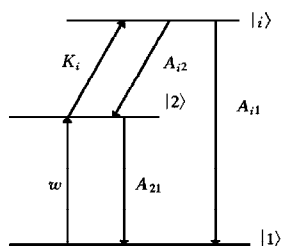


图 6 简化后的跃迁能级图

$$n_i = \sigma_i v(T) n_2^2 / (A_{i1} + A_{i2}), \quad (7)$$

因此有

$$I_i = \sigma_i v(T) I_2^2 / (CA_{21}^2). \quad (8)$$

图 3 正好符合这一依赖关系,证明上述模型是正确的.

另一方面,在考虑共振激发动力学时,我们假定高激发态能级的粒子数密度远小于 $|1\rangle, |2\rangle$ 能级,即 $\sum_i n_i \ll n_1, n_2$, 所以近似地有

$$n_1 + n_2 = n. \quad (9)$$

此时,体系被近似为由 $|1\rangle, |2\rangle$ 组成的二能级体系,其上态稳态粒子数密度为

$$n_2 = \frac{wn}{2w + A_{21}}, \quad (10)$$

而 w 比例于激光功率 P_1 , 即

$$w = DP_1, \quad (11)$$

因此有

$$I_2^{-1} = \alpha + \beta P_1^{-1}, \quad (12)$$

其中 $\alpha = 2(CnA_{21})^{-1}$, $\beta = (CDn)^{-1}$ 为温度的函数. 该结果说明 I_2^{-1} 与 P_1^{-1} 成线性关系, 与图 1 所示实验结果一致, 表明二能级近似是正确的. 同时从该图得到

$$\alpha = 4.72 \times 10^{-6}, \quad \beta = 6.52 \times 10^{-3}.$$

又 $A_{21} = 1/27.5 \text{ ns}$, 由此得

$$Cn = 1.17 \times 10^{-2} \text{ s}, \quad D = 1.31 \times 10^4 \text{ s}^{-1}.$$

由(8)和(12)式知, T 一定时, $I_i^{-1/2}$ 与 P_1^{-1} 成线性关系, 这与图 2 中的实验曲线相符.

另由(1), (5)式得

$$K_i = I_i A_{21} I_2^{-1} \quad (13)$$

或

$$\sigma_i = \frac{I_i CA_{21}^2}{I_2^2 v}. \quad (14)$$

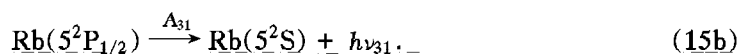
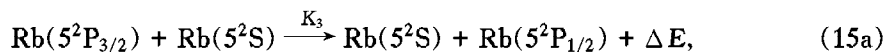
不同功率条件下由实验测得的 I_i, I_2 得到的碰撞转移率 $K_{6^2P_{1/2}}, K_{7^2S}$ 见表 2, 可见碰撞转移速率 K_i 与 I_2 一样随激发光功率增大而增大, σ_i 却为一个与激光功率无关的常量. 温度一定时, 由 Rb 蒸气饱和气压下算出的粒子数密度 n 和速度 v , 可得到激发态原子碰撞转移到 i 能级的碰撞截面.

表 2 碰撞转移率与激光功率的关系 ($T = 533 \text{ K}$)

	激光功率/mW		
	480	250	125
$K_{6^2P_{1/2}}/\text{s}^{-1}$	4.89×10^6	3.03×10^6	1.95×10^6
K_{7^2S}/s^{-1}	3.15×10^5	1.95×10^5	1.25×10^5
$K_{5^2P_{1/2}}/\text{s}^{-1}$	1.21×10^8	7.55×10^7	2.74×10^7

$\text{Rb}(5^2\text{P}_{3/2})$ 原子与基态原子碰撞, 能量转移到 $\text{Rb}(5^2\text{P}_{1/2})$ 原子的碰撞转移率很大, 我们单独加以分析. 这是上述分析过程的特例. 将 $5^2\text{P}_{3/2}$ 看成能级 $|2\rangle$, $5^2\text{P}_{1/2}$ 看成能级 $|3\rangle$, 如图 7 所示.

此时, 碰撞过程可表示为



三能级体系的速率方程为

$$\frac{dn_3}{dt} = K_3 n_2 - A_{31} n_3, \quad (16a)$$

$$\frac{dn_2}{dt} = w(n_1 - n_2) - (A_{21} + K_3) n_2, \quad (16b)$$

$$n_1 + n_2 + n_3 = n. \quad (16c)$$

方程组(16)与方程组(4)的不同在于, (16)式中 n_3 不能忽略, K_3 中的 n_B 为 n_1 . 由(1), (16a)式推得

$$K_3 = I_3 A_{21} I_2^{-1}. \quad (17)$$

由此式及实验数据, 得到碰撞转移率 K_3 (即 $\text{Rb}(5^2\text{P}_{3/2})$ 原子与基态原子碰撞后, 能量转移到 $\text{Rb}(5^2\text{P}_{1/2})$ 原子的碰撞转移率) 如表 2 中 $K_{5^2\text{P}_{1/2}}$ 行所示.

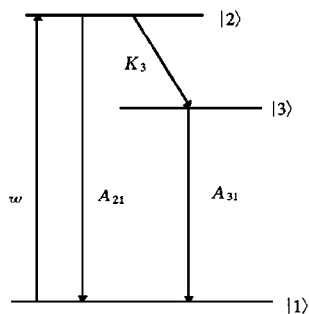


图 7 Rb 原子的基态和第一激发态能级简图

最后, 对图 5 的现象可作如下解释: 处于基态的 Rb 原子被激光抽运到第一激发态, 一部分原子通过自发辐射回到基态, 另一部分原子互相之间发生碰撞后导致能量向高激发态转移. 前一过程产生 780, 795 nm 的荧光, 后一过程则产生其它波长的荧光. 当激光频率变化时, 参与上述两过程的原子比例也发生变化. 激光频率调谐到 ^{87}Rb , ^{85}Rb 两同位素精细结构跃迁频率时, 有较多的原子参与前一过程, 因而在 780 nm 的荧光信号中有极大值, 而在其它高激发态辐射的荧光信号中有极小值; 激光频率失谐时, 有较多的原子参与后一过程, 荧光信号

的大小情况正好相反. 因此, 该结果清楚表明, Rb 原子激发态的自发辐射与高激发态的碰撞形成通道之间存在明显的竞争.

本工作得到了黄青、柳晓军、赵宏太及刘堂昆同志的帮助, 特此感谢.

- [1] M. Allegrini *et al.*, *Opt. Commun.*, **19**(1976), 96.
- [2] C. Vadla, S. Knezovic and M. Movre, *J. Phys.*, **B25**(1992), 1337.
- [3] C. Vadla, M. Movre and V. Horvatic, *J. Phys.*, **B27**(1994), 4611.
- [4] Yi-fan Shen, Wan-xing Li and P. Ahmat, *Nucl. Sci. Tech.*, **7**(1996), 225.
- [5] A. A. Radzig, B. M. Smirnov. *Reference Data on Atoms, Molecules and Ions* (Berlin Heidelberg, New York, Tokyo:

Springer-Verlag, 1985), p. 213.

- [6] W. Demtroder, *Laser Spectroscopy (Basic Concepts and Instrumentation)* (Berlin, Heidelberg, New York: Springer-Verlag, 1981), p. 591.

EXCITATION ENERGY TRANSFER BY COLLISIONS BETWEEN EXCITED RUBIDIUM ATOMS*

WANG JIN HU ZHENG-FA ZHANG DENG-YU

(*State Key Laboratory of Magnetic Resonance and Atomic and Molecular Physics,
Wuhan Institute of Physics and Mathematics, Academia Sinica, Wuhan 430071*)

(*Laser Spectroscopy Laboratory, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics,
Academia Sinica, Hefei 230031*)

ZHAN MING-SHENG

(*State Key Laboratory of Magnetic Resonance and Atomic and Molecular Physics,
Wuhan Institute of Physics and Mathematics, Academia Sinica, Wuhan 430071*)

(Received 17 November 1997; revised manuscript received 16 February 1998)

ABSTRACT

This paper reports the experimental observation of the excitation energy transfer to higher states by collisions between two rubidium atoms excited to a specific state by a CW single mode laser. An obvious competition has been observed between the channel of transition to the ground state by spontaneous emission, and that to higher excited states by collisions of two excited atoms. Formation rates of the high excited states with different laser power, atomic vapor temperature and laser detuning have been measured. A proposed mechanism well explained the experimental result.

PACC: 3450H

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China under the Grant No. 19774069.