

利用自电离探测技术研究 Sm 原子 Rydberg 态光谱*

秦文杰 戴长建† 赵洪英 肖 颖

(天津理工大学理学院, 显示材料与光电器件教育部重点实验室, 天津 300384)

(2008 年 5 月 4 日收到, 2008 年 6 月 8 日收到修改稿)

采用孤立实激发与自电离探测技术相结合的方法对 Sm 原子偶宇称高激发态进行了系统研究. 按照不同的自电离通道将所测数据进行了分类和比较, 并进行了详细讨论. 不仅报道了许多收敛于不同电离限的 Rydberg 态的能级位置和跃迁的相对强度等信息, 而且还把处于同一能域内的 Rydberg 态和价态进行了辨识. 另外, 不但提供了一种有效识别不同类型的高激发态的鉴别技术, 而且还对处于 41800 cm^{-1} 到 43800 cm^{-1} 能域内的 Rydberg 态和价态的光谱特性进行了详细分析和讨论.

关键词: 自电离探测, Rydberg 态, Sm 原子

PACC: 3280, 3270, 3280D

1. 引 言

原子高激发态的研究不仅对天体物理学, 原子物理学的发展具有重要意义, 而且有许多实用价值, 如激光分离同位素、新型激光机理的探索以及受控核聚变反应中高温等离子体的诊断等^[1, 2]. 随着可调谐染料激光器和激光分步激发技术的发展, 在过去的几十年中碱土金属原子的高激发态研究取得了丰硕成果^[3-6].

近年来, 这方面的研究重点已经转移到了能级结构更加复杂的稀土原子上. 其中, 对于重稀土元素的研究比较集中, 比如, 对于 Yb 原子高激发态的研究已有大量的报道^[7-9], 这主要是因为 Yb 原子的基态为 $4f^{14}6s^2\ ^1S_0$, 而且具有填满的 $4f$ 子壳层, 其电子组态和能级结构与碱土金属非常相似. 另一方面, 对于轻稀土元素的相关研究却很少, 这主要是因为它们具有未填满的 $4f$ 子壳层, 其原子结构很不稳定导致其光谱非常复杂, 无论从理论上, 还是从实验角度都很难对其光谱开展深入的研究. 例如, 针对 Sm 原子, 虽然曾有一些研究工作获得了一些束缚激发态的光谱数据^[10-14], 但却都无法把 Rydberg 态与价态区分开来. 我们认为这主要归咎于他们只采用了光电离探测, 因而无法分辨上述两类激发态.

针对上述问题, 本文采用孤立实激发(ICE)技术^[15]和自电离探测技术相结合的方法, 对 Sm 原子在 $41800\text{--}43800\text{ cm}^{-1}$ 能域内的偶宇称激发态光谱进行了系统研究. 自电离探测方法曾被广泛应用于碱土金属高激发束缚 Rydberg 态的探测^[16-19]. 虽然它与光电离、场电离、碰撞电离等探测方法相比具有显著的优势, 但是却从未应用于 Sm 原子束缚 Rydberg 态的光谱研究. 本文采用此方法不但获得了大量束缚偶宇称激发态的光谱数据(如能级位置和相对强度), 而且还把 Rydberg 态与价态区分开来, 从而显著地丰富了 Sm 原子的光谱信息.

2. 实验原理与装置

2.1. 实验原理

本实验利用一台 Nd:YAG 固体脉冲激光器的二倍频或三倍频(基频 1064 nm)同时抽运三台染料激光器, 所输出的三束激光沿同一直线射入真空室中, 并于其中的原子束正交, 以减小 Doppler 展宽效应. 用于分步激发的三个激光脉冲依次延迟 10 ns , 以确保激发过程按给定的顺序进行. 实验中, 激发路线为 $4f^6 6s^2\ ^7F_1 \rightarrow 4f^6 6s 6p^7\ D_2 \rightarrow 4f^6 6s n l \rightarrow 4f^6 6p n l$ ($4f^6 5d 6s n l$) ($l = 0, 2$), 其原理如图 1 所示. 首先用一束固定波长

* 国家自然科学基金(批准号: 310574098, 10674102)和天津市自然科学基金(批准号: 05YFJMJC05200)资助的课题.

† 通讯联系人, E-mail: Daicj@126.com

的激光将其中一个价电子激发到 $6p$ 态,此时 Sm 原子处于 $4f^6 6s 6p^7 D_2$ 态^[20]. 然后,用第二束激光进一步激发该价电子到 nl 态(该电子通常被称为 Rydberg 电子),其中 n 值取决于第二束激光的波长,由于电子的轨道半径与有效量子数 n^*2 成正比,因此当 n 值增大时,处于 Rydberg 态的 Sm 原子的尺寸将迅速增大,Rydberg 电子在离原子实很远的轨道上运动.最后,第三束激光将另一价电子从基态激发到 $6p$ 态或者 $5d$ 态(该电子通常被称为实电子),从而得到原子 $4f^6 6pnl$ 自电离态.由于在激发实电子时,Rydberg 电子已处于大轨道上,可以被认为是“旁观者”,基本上不会受到激光的激发,从而避免了 Beulter-Fano 干涉现象^[21],因此采用 ICE 技术所得的自电离光谱呈现出对称的 Lorentz 线形.这种方法的优点是每步跃迁都是共振跃迁,不需要很高的激光功率,对原子具有高度的选择性.

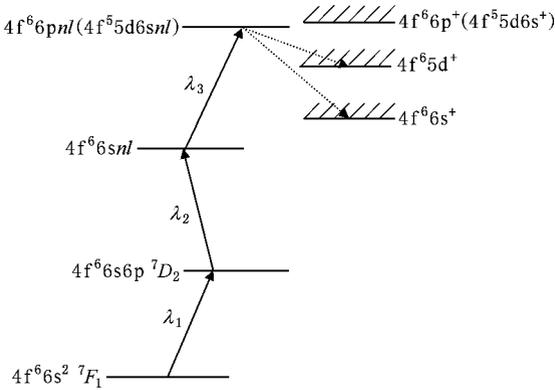


图 1 Sm 原子多步孤立实验激发过程示意图

在实验中,利用空心阴极灯的光电流光谱技术对染料激光的各个波段进行了系统地波长定标,以

确保光谱的频率精度.同时,为了减小测量过程中的随机误差,我们对同一波段进行了多次扫描.经过对所有光谱测量的误差分析,得出本实验中波长的不确定度为 $\pm 0.01 \text{ nm}$.

2.2. 实验装置

本实验装置包括以下三个部分:激光系统,原子束产生系统,信号采集和分析系统,如图 2 所示.激光系统主要包括一台 Nd:YAG 固体激光器和三台波长可调谐的染料激光器.该台固体激光器输出的激光脉冲宽度为 $6-8 \text{ ns}$,重复频率为 20 Hz .将其基频光倍频和和频后,便可产生波长分别为 532 nm 的绿光和 355 nm 的紫外光,用于抽运三台染料激光器,其线宽约为 0.1 cm^{-1} .

在图 2 中的虚线框内的器件都处于真空环境中,利用机械泵和分子泵的组合来维持真空室的真空度优于 10^{-4} Pa .利用直流电源加热装有高纯度 Sm 金属的原子炉,并利用热电偶与温控仪监控原子炉的温度.一般将炉温控制在 800 K 左右,所产生的 Sm 原子的数密度便可满足要求.为了减小谱线的 Doppler 展宽效应,利用准直系统产生原子束,并使其在作用区与激光束方向正交.

本实验还采用了高增益,快响应的微通道板 (MCP) 作为探测器.该 MCP 的倍增效率大约为 10^8 ,因此灵敏度很高.脉冲电离信号由示波器进行同步监测,它经过预放大后输入到 Boxcar 门积分器,以便对脉冲信号进行取样平均和积分并输出直流信号,然后经过模数转换后送入计算机.在计算机控制下,Acquire 数据采集系统可采集数据,并能实时显示光谱图,以便观察实验结果,同时将实验数据储存起

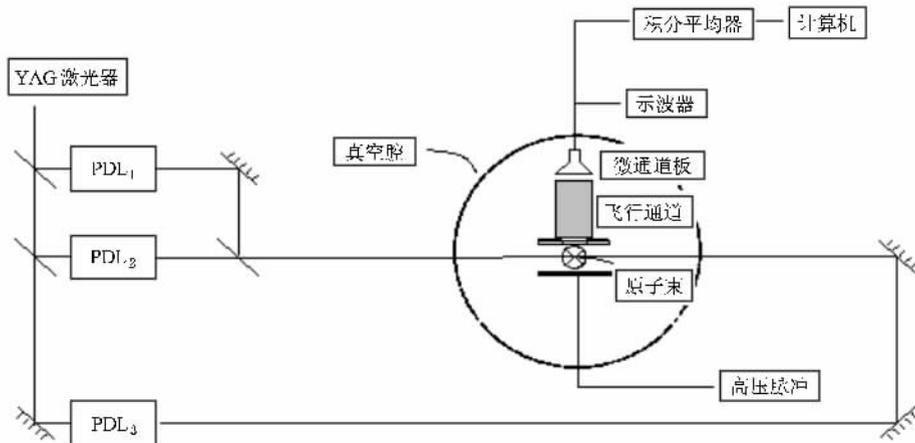


图 2 实验装置示意图(PDL 脉冲染料激光器)

来,便于对其进行进一步地分析和处理。

3. 结果与讨论

由于碱土金属元素最外层只有两个价电子,孤立实激发和自电离探测技术在其光谱研究中得到了充分应用。但是,稀土元素 Sm 不仅具有多种同位素,而且具有未填满的 4f 子壳层,因此无论是束缚 Rydberg 态还是自电离 Rydberg 态,其光谱特性必定比碱土金属元素的更为复杂。图 3 展示了本实验采用孤立实激发和自电离探测技术获得的 Sm 原子自电离 Rydberg 态光谱图。为了获得自电离态光谱,前两束激光选择合适的波长,将原子激发到束缚 Rydberg 态,第三束激光在共振跃迁 $6s^+ \rightarrow 6p^+$ 或 $4f^+ \rightarrow 5d^+$ 的附近扫描。图中横坐标为第三束激光的光子能量,单位为 cm^{-1} ,纵坐标为信号强度,采用任意单位。在扫描范围内出现了三个自电离峰,这种现象可作如下两种解释:第一,由于 Sm 元素结构复杂,在第一电离限之上还存在许多电离限,且相邻电离限之间的能级间隔比较小,对同一 Rydberg 态,第三束激光可以激发实电子到收敛于不同电离限的自电离态。第二,由于离子的基态有精细结构分裂,在实验条件下,实电子可在基态的七个子能级上布居,第三束激光可以激发处在不同子能级上的实电子。

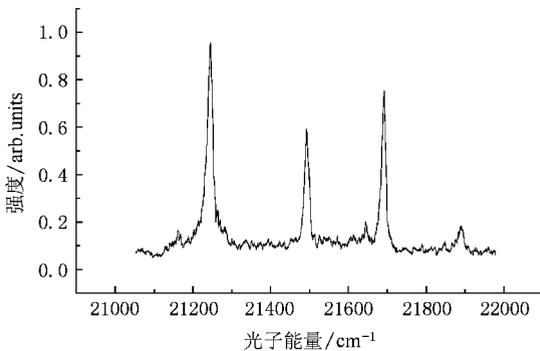


图 3 Sm 原子自电离 Rydberg 态光谱图

从图中可以看到自电离峰呈现对称的 Lorentz 线形,经过 Lorentz 线形拟合得到三个自电离峰的中心位置分别为 470.31 nm、464.85 nm 和 460.56 nm,半高宽分别为 20.302 cm^{-1} , 18.474 cm^{-1} 和 16.699 cm^{-1} 。经过理论分析得到它们分别收敛于 $4f^6(^7F)6p^8G^{\circ}(J=1/2)$, $4f^6(^6H^{\circ})5d6s(J=3/2)$, $4f^6(^7F)6p^8(J=3/2)$ 电离限。

得到自电离 Rydberg 态光谱后,采用自电离探

测技术依次将第三束激光的波长固定在各个自电离峰的峰值位置,然后扫描第二束激光得到束缚 Rydberg 态光谱。图 4 给出了本实验采用自电离探测技术获得的一个束缚 Rydberg 系列的光谱图,图中横坐标为第二束激光的光子能量,单位为 cm^{-1} ,纵坐标为信号强度,采用任意单位。此 Rydberg 系列的第三束激光固定在 470.31 nm,第二束激光进行宽波段扫描。由于每一步都是共振跃迁,所以探测效率极高。

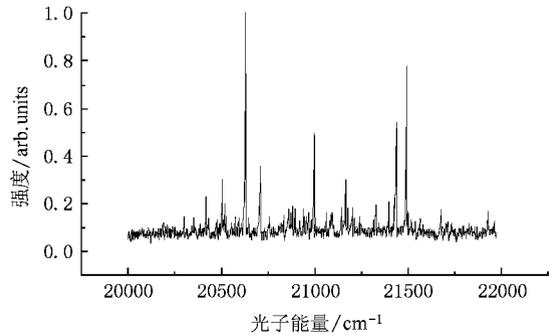


图 4 Sm 原子束缚 Rydberg 态光谱图

从图 4 可以看到除了自电离探测产生的束缚 Rydberg 态信号外还有很多由于光电离所产生的小信号。这些小信号的产生首先是由于基态的电子组态为七重态,在原子束的制备过程中,热布居将使原子分散到基态的七个子能级上,这样不仅大大降低了 $4f^66s^2\ ^7F_1$ 子能级上的原子数,使跃迁信号强度下降,还会使其他子能级上的原子只依赖于第二、三束光而电离,产生光电离干扰信号。其次,由于 Sm 元素有未填满的 4f 子壳层,导致较多的双电子激发的价态位于第一电离限以下。当第三束激光共振激发 Rydberg 态的同时,价态也被激发,产生光电离信号。通过对自电离和光电离所产生的信号进行比较,我们可以得到自电离探测能够大大提高 Rydberg 态的电离截面,使信号明显增强,从而把 Rydberg 态与价态区分开来。

为了确保所激发的光谱都是按照图 1 所规定的路线激发,实验中必须严格控制各个光脉冲的时序和间隔,并且经常确认所获得的信号的确依赖于每一束光。第一步跃迁为 $4f^66s^2\ ^7F_1 \rightarrow 4f^66s6p^7\ D_2$, 终态具有确定的总角动量 $J=2$,根据选择定则,偶宇称的 Rydberg 态可以具有总角动量值为 $J=1, 2, 3$ 。但是,一方面 Sm 原子特殊的电子结构,使得在高激发态时多重态之间的能级间距较小,这些多重态之间

就可能产生组态混合. 另一方面稀土元素均不是严格的 LS 耦合, 按 LS 耦合确定的选择定则并不严格成立. 因此, 在 Sm 原子的激发过程中, 由于自旋量子数 S 不再是好量子数, 所以 $\Delta S = 0$ 的选择定则不严格成立, 导致具有不同重数的多重态之间能够跃迁^[22]. 以上两方面原因加大了对光谱分析的难度. 到目前为止, 仍不能准确地确定这些 Rydberg 态的电子组态和原子状态. 但根据跃迁过程中角动量和宇称的选择定则, 可以推断出 Rydberg 态的电子组态应为 $4f^6 6s n s$ 或 $4f^6 6s n d$. 由于本实验对于波长定标的准确性, 可以根据这些跃迁的波长值得到这些 Rydberg 态的能级位置.

同时, 考虑到跃迁的强度定则, 我们也展示了这些跃迁峰的相对强度值. 通过对强度的归一化, 我们按照它们的强弱划分为 W (强度为 0—0.3), M (强度为 0.3—0.6) 和 S (强度为 0.6 以上). 谱线强度因第三束光的波长不同而略有差别.

通过将第三束激光的波长分别固定在 470.31 nm, 464.85 nm 和 460.56 nm, 我们探测到了大量的 Sm 原子高激发束缚 Rydberg 态, 实验数据分别列于表 1、2、3 中, 所列波长的不确定度为 ± 0.01 nm. 同时, 由文献 [20] 可以得到上述三个波长位置分别对应由 $4f^6(^7F)6s^8F(J=1/2)$ 到 $4f^6(^7F)6p^8G^{\circ}(J=1/2)$, 由 $4f^6(^7F)6s^8F(J=1/2)$ 到 $4f^6(^6H^{\circ})5d6s(J=3/2)$ 和由 $4f^6(^7F)6s^8F(J=1/2)$ 到 $4f^6(^7F)6p^8G^{\circ}(J=3/2)$ 的跃迁.

表 1 当第三束激光的波长固定在 470.31 nm 时, Sm 原子 Rydberg 态的能级位置、跃迁峰所对应的第二束激光的波长值和跃迁谱线的相对强度值

波长/nm	能级/cm ⁻¹	相对强度
484.90	42436.04	S
484.71	42444.12	S
483.05	42515.02 [*]	M
476.96	42779.35 [*]	S
466.32	43257.73	S
466.23	43261.87 [*]	S
465.08	43314.91	S

表 1 所展示的数据对应的跃迁终态为 $4f^6(^7F)6p$ 精细结构分裂子能级中最低的一个, 加之 $4f^6(^7F)6p_{3/2}$ 能级比 $4f^6(^7F)6p_{1/2}$ 能级要高, 经过分析可以推断出此步跃迁应为 $6s_{1/2}^+ \rightarrow 6p_{1/2}^+$, 得到的 Rydberg 系列应收敛于 $4f^6(^7F)6p_{1/2}^8G^{\circ}(J=1/2)$ 电离限.

表 2 当第三束激光的波长固定在 464.85 nm 时, Sm 原子 Rydberg 态的能级位置、跃迁峰所对应的第二束激光的波长值和跃迁谱线的相对强度值

波长/nm	能级/cm ⁻¹	相对强度
484.90	42436.04	S
484.71	42444.12	S
483.04	42515.45	M
474.44	42890.71	M
468.63	43152.03 [*]	M
466.32	43257.73	S
466.23	43261.87	S
463.72	43377.97	M
463.17	43403.57 [*]	M

由表 2 所展示的数据对应的跃迁我们可以得到第三束激光激发了 $4f$ 子壳层上的电子而没有激发 $6s$ 实电子, 这种现象可作如下解释: 首先, Sm 原子有未填满的 $4f$ 子壳层, 使得该子壳层上的电子非常活跃, 很容易被激发跃迁. 其次, Sm 离子具有复杂的精细结构分裂, 导致电子组态为 $4f^6 5d 6s$ 和 $4f^6 6p$ 的能级产生相互交叉, 当第三束激光在 $6s^+ \rightarrow 6p^+$ 跃迁附近扫描时, 扫描区间也包括了由 $4f^+ \rightarrow 5d^+$ 的跃迁. 因此, 当共振激发 $6s^+ \rightarrow 6p^+$ 跃迁的同时也激发了 $4f^+ \rightarrow 5d^+$ 的跃迁, 所以, 表 2 所得到的 Rydberg 系列收敛于 $4f^6(^6H^{\circ})5d6s(J=3/2)$ 电离限. 由此还可以得到图 3 所得到的自电离峰中不仅包括收敛于 $4f^6 6p$ 电离限的自电离态, 同时也包括了收敛于 $4f^6 5d 6s$ 电离限的自电离态.

表 3 当第三束激光固定在 460.56 nm 时, Sm 原子 Rydberg 态的能级位置、跃迁峰所对应的第二束激光的波长值和跃迁谱线的相对强度值

波长/nm	能级/cm ⁻¹	相对强度
484.90	42436.04	S
484.71	42444.12	S
484.34	42459.88	M
483.05	42515.02	M
476.96	42779.35	W
466.32	43257.73	S
466.23	43261.87	S
463.72	43377.97	M

由于 $4f^6(^7F)6p_{1/2}$ 电子组态存在多个精细结构分裂的子能级, 通过分析可以得到表 3 所展示的数据的跃迁终态为 $4f^6(^7F)6p_{1/2}(J=3/2)$, 所得到的

Rydberg 系列收敛于 $4f^6(^7F)6p_{1/2}(J=3/2)$ 电离限. 同时, 还可以得到此 Rydberg 系列的电离限比表 1 所得到的 Rydberg 系列的电离限高出约 450.13 cm^{-1} .

通过对表 1, 2, 3 数据的比较和分析, 可以看到有两对 Rydberg 态能级(能级位置分别为 42436.04 cm^{-1} , 42444.12 cm^{-1} 和 43257.73 cm^{-1} , 43261.87 cm^{-1}) 在三个表中均出现, 且每对的能级间隔都比较小, 可以推断出每一对能级应该对应同一个 n 值. 另外, 在获得表 1, 2, 3 的数据时, 第三束激光的波长分别固定在 $6s^+ \rightarrow 6p^+$ 或 $4f^+ \rightarrow 5d^+$ 跃迁处, 但实验值比理论值分别蓝移了 0.26 nm , 0.1 nm 和 0.22 nm , 说明自电离 Rydberg 态的量子亏损比所对应的束缚 Rydberg 态的量子亏损要略大一些.

最后, 我们将本实验所获得的数据与文献 [23] 进行了比较, 其中有 5 个态的能级位置(在表中用 * 标记)与文献值在误差范围内相符合. 这不仅说明了本实验所用方法的正确性, 而且也证实了所用的技术能够把 Rydberg 态与价态区分开来. 需要说明的是, 无论是本实验所采用的对不同类型的高激发态的鉴别技术, 还是由此技术所获得的新光谱数据都未曾见过报道. 但是, 由于光谱的复杂性, 要完全确

定所测量能级的光谱归属(包括电子组态和原子状态)目前仍是一个国际难题, 也有待于进一步的实验和理论方面的研究工作.

4. 结 论

本文采用孤立实激发和自电离探测技术相结合的方法, 对 Sm 原子在 $41800\text{--}43800 \text{ cm}^{-1}$ 能域内的光谱进行了系统研究. 通过将第三束激光的波长分别固定在不同的自电离态上, 探测到了大量的束缚高激发态的光谱. 按照不同的自电离通道将所测数据进行了分类和比较, 并进行了详细讨论. 本文不仅报道了许多收敛于不同电离限的 Rydberg 态的能级位置和跃迁的相对强度等信息, 而且还把处于同一能域内的 Rydberg 态和价态进行了区分. 这不但提供了一种有效识别不同类型的高激发态的鉴别技术, 而且还显著地丰富了 Sm 原子的光谱信息.

但是, 由于多电子系统存在着强烈的电子关联作用, 使得 Sm 原子的光谱结构十分复杂, 要准确地确定出所测量的能级的光谱归属还有待于进一步的实验和理论方面的研究工作.

- [1] Boker J, Freeman R R, Cooke W E 1982 *Phys. Rev. Lett.* **48** 1242
- [2] Li J M 1983 *Acta Phys. Sin.* **32** 84 (in Chinese) [李家明 1983 物理学报 **32** 84]
- [3] Aymar M, Camus P, Dieulin M, Morillon C 1978 *Phys. Rev. A* **18** 2173
- [4] Camus P, Dieulin M 1982 *Phys. Rev. A* **26** 379
- [5] Esherick P 1977 *Phys. Rev. A* **15** 1920
- [6] Dai C J 1995 *Phys. Rev. A* **52** 4416
- [7] Porsev S G, Rakhlin Y G, Kozlov M G 1999 *J. Phys. B* **32** 1113
- [8] Xu C B, Xu X Y, Huang W, Xue M, Chen D Y 1994 *J. Phys. B* **27** 3905
- [9] Ali R, Yaseen M, Nadeem A, Bhatti S A, Baig M A 1999 *J. Phys. B* **32** 953
- [10] Gomonai A I, Kudelich O I 2002 *Optics and Spectroscopy* **93** 198
- [11] Gomonai A I, Plekan O I 2003 *J. Phys. B* **36** 4155
- [12] Jayasekharan T, Razvi M A N, Bhale G L 2000 *J. Phys. B* **33** 3123
- [13] Hu S F, Qiu J Z, Zhang S, Wang G, Liang Y, Chen X 1989 *Acta Phys. Sin.* **38** 487 (in Chinese) [胡素芬、邱济真、张 森、王刚、梁 宜、陈 星 1989 物理学报 **38** 487]
- [14] Gomonai A, Kelman V, Plekan O 2003 *Radiation Physics and Chemistry* **68** 137
- [15] Cooke W E, Gallagher T F, Edelstein S A, Hill R M 1978 *Phys. Rev. Lett.* **40** 178
- [16] Li S B, Dai C J 2004 *J. Electron Spectroscopy and Related Phenomena* **136** 247
- [17] Dai C J 1996 *Phys. Rev. A* **53** 3237
- [18] Lu J, Dai C J, Li C Q, Xu X H, Liu Z D, Tang J C 1999 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **61** 339
- [19] Lu J, Dai C J, Xu X H, Li S B 2001 *Chin. Phys. Lett.* **18** 516
- [20] Martin W C, Zalubas R, Hagan L 1978 *Atomic Energy Levels-The Rare-Earth Elements*, NSRDS-NBS60 (U.S. GPO, Washington, D. C.,) p162
- [21] Cook W E, Bhatti S A 1982 *Phys. Rev. A* **26** 391
- [22] Fang D W, Dai C J, Li J, Wang Y X 1995 *Acta Phys. Sin.* **44** 365 (in Chinese) [方达渭、戴长建、郇 菁、王云仙 1995 物理学报 **44** 365]
- [23] Jayasekharan T, Razvi M A N, Bhale G L 2000 *J. Opt. Soc. Am. B* **17** 1607

Spectra of Rydberg states of Sm atom measured with autoionization detection method^{*}

Qin Wen-Jie Dai Chang-Jian[†] Zhao Hong-Ying Xiao Ying
(*Key Laboratory of Display Materials and Photoelectric Devices , Ministry of Education ,
School of Science ,Tianjin University of Technology , Tianjin 300384 , China*)
(Received 4 May 2008 ; revised manuscript received 8 June 2008)

Abstract

Isolated-core excitation and autoionization detection method are combined to measure even-parity high-lying excited states of Sm atom. The experimental results are classified and discussed in detail in the light of different autoionization channels. With the information of energy levels and their relative intensities converging to different thresholds, the Rydberg states are identified from the valence states in the same region. In addition, with the effective technique to recognise different types of high-lying states, the spectroscopic properties of Rydberg states and valence states in the region between 41800 cm^{-1} and 43800 cm^{-1} are discussed and analyzed in detail.

Keywords : autoionization detection , Rydberg states , Sm atom

PACC : 3280 , 3270 , 3280D

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10574098 , 10674102) and the Natural Science Foundation of Tianjin (Grant No. 05YFJMJC05200).

[†] Corresponding author. E-mail : Daicj@126.com