

碱金属钾蒸气混合双光子跃迁的研究*

丁大军 张在宣

(吉林大学物理系原子与分子物理研究所)

提 要

利用脉冲染料可调谐激光激发原子密度为 $10^{14}\sim 10^{18}\text{ cm}^{-3}$ 的稠密碱金属钾蒸气, 在 $5780\text{ \AA}\sim 5920\text{ \AA}$ 波段内测量了激光共振电离光谱。结果表明, 除了钾原子 $4s\text{---}nd$ ($n=10\sim 16$)、 $4s\text{---}ns$ ($n=12\sim 18$) 双光子跃迁以外, 还出现了钾 $4p\text{---}7s$ 、 $4p\text{---}5d$ 跃迁。这种跃迁的电离光谱信号是由于在钾蒸气中钾分子-原子混合双光子跃迁而产生的。本文对钾蒸气混合双光子跃迁进行了讨论。

我们利用激光共振电离光谱方法测量了钾蒸气在 $5780\text{ \AA}\sim 5920\text{ \AA}$ 波长范围内的光谱, 结果表明, 除了钾原子 $4s\text{---}nd$ ($n=10\sim 16$)、 $4s\text{---}ns$ ($n=12\sim 18$) 双光子跃迁而产生的共振电离信号以外, 出现了四条钾原子 $4p\text{---}7s$ 、 $4p\text{---}5d$ 跃迁的共振电离光谱信号。如果从一般的原子热布居来解释这些从 $4p$ 态出发而又很强的跃迁光谱信号是很困难的。正如实验结果表明, 它们的形成是归于在稠密的碱金属蒸气中所存在的碱金属双原子分子参与的混合双光子激发过程。

一、实验装置、结果和讨论

1. 实验装置

激光共振电离光谱方法是利用一种电离探测装置测量由于原子、分子体系共振吸收激光光子而受到激发处于激发态后产生的电子离子对的光谱测量方法。这种方法具有其独特的优点, 特别适于高激发态光谱测量。

实验装置包括一台脉冲染料激光器(1), 使用了美国 Chromatix 公司 CMX-4 型闪光灯泵浦可调谐染料激光器, 染料为若丹明 6G, 输出激光的脉宽大约 $1\text{ }\mu\text{s}$, 峰值功率为几千瓦, 线宽约为 3 cm^{-1} 。碱金属蒸气在一个带有钨丝作成的离子探针的热管炉(2)中产生, 通过控制热管的温度, 可以得到原子密度在 $10^{14}\sim 10^{18}\text{ cm}^{-3}$ 的钾蒸气。通过电阻 R 给热管中央的探针提供一定的偏压。探针接收到的激光作用产生的离子(脉冲信号)通过电容 C 送入 Boxcar 积分器(3)处理, 最后在记录仪(4)上绘出光谱。Boxcar 积分器的触发信号取自激光器闪光灯触发信号的同步输出。另外, 也可以用脉冲示波器(5)来监视激光共振电离光谱信号。波长定标使用了一个自由光谱范围 $\text{FSR}=6.40\pm 0.01\text{ cm}^{-1}$ 的空气间隙法布里-珀罗标准具(6), 利用双笔记录仪可以在记录激光共振电离光谱信号的同时记录扫描激光波长所产生的法布里-珀罗标准具的干涉谱, 用它确定波长的相对位置。波长的绝对位置标定是

收稿日期: 1984年5月4日

* 本文曾在 '83 国际激光会议(中国, 广州)上宣读。

通过由于钾中所含有的杂质钠而在钾蒸气中出现的钠原子 D 线的共振电离光谱 (波数为 16956.18 cm^{-1} 和 16973.38 cm^{-1}) 来实现的。

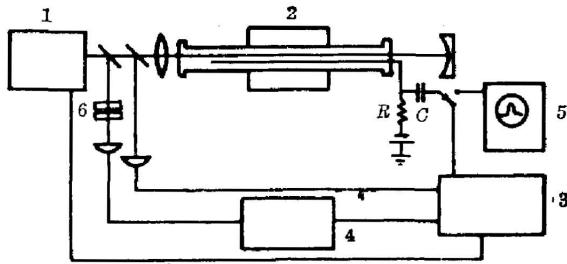


图 1 实验装置

Fig. 1 The experimental arrangement

2. 实验结果和讨论

实验中得到的钾蒸气在 $5780 \sim 5920 \text{ \AA}$ 波长范围内的激光共振电离光谱在图 2 中给出。在激光的峰值功率较低、原子的蒸气密度较稠密的情况下, 我们得到了钾原子双光子跃迁 $4s \rightarrow nd (n=10 \sim 16)$ 、 $4s \rightarrow ns (n=12 \sim 18)$ 的共振电离光谱信号,

但信号的强度较弱。相反地, 在这一波长范围内, 我们还得到了大约在 5784 \AA 、 5803 \AA 、 5814 \AA 和 5833 \AA 处的四条对应于钾原子 $4p \rightarrow 7s$ 、 $4p \rightarrow 5d$ 跃迁的共振电离光谱信号, 其强度远远大于双光子跃迁的共振电离光谱信号。这表明在热管中的钾蒸气有很强的 $4p$ 态原子布居。 $4p$ 态的布居不可能是由于热布居的结果, 因为 $4p$ 态大约在基态 $4s$ 以上 13000 cm^{-1} , 即使在 800 K 温度下也只有大约为基态 $4s$ 原子数目的 10^{-10} 倍的原子处于 $4p$, 这样少量的 $4p$ 原子不能产生测量结果中那样强的电离信号。

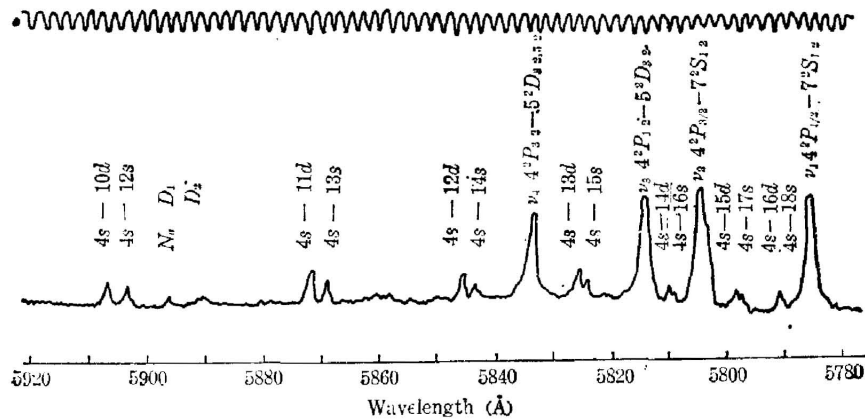


图 2 钾蒸气在 $5780 \sim 5920 \text{ \AA}$ 波长范围内的激光共振电离光谱

Fig. 2 Laser resonant ionization spectrum of potassium vapor in the range of $5780 \sim 5920 \text{ \AA}$

为了说明钾原子 $4p$ 态产生过程, 我们进一步对热管炉内钾蒸气进行了吸收光谱测量和激光激发下的荧光测量。测量结果在图 3、图 4 中给出。结果表明: 第一, $4p$ 态钾原子布居与激光照射钾蒸气有关, 虽然实验中所用激光波长不处于钾原子 $4s \rightarrow 4p$ 跃迁波长附近。在没有激光照射时, 我们没有测量到钾原子 $4p \rightarrow 4s$ 跃迁的荧光信号, 这时 $4p$ 态只有少量的热布居, 跃迁到基态所发出的荧光非常弱以致测量不到。但是当激光照射到钾蒸气中时情况发生变化, 测量到了由钾原子 $4p$ 到基态 $4s$ 跃迁的荧光, 因此可以肯定 $4p$ 态的布居是与激光照射钾蒸气相关的。第二, 吸收光谱中出现了明显的钾分子(二聚物)吸收带, 说明在我们的实验条件下, 钾蒸气中有大量钾分子存在, 因此, 钾原子 $4p$ 态的布居有可能与分子存在有关, 实验正好说明了这一点。

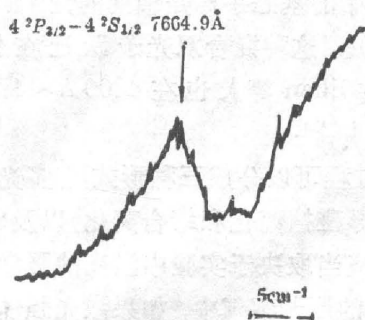


图 3 跃迁 $4^2P_{3/2}-4^2S_{1/2}$ 荧光测量

Fig. 3 Fluorescence measurement of transition $4^2P_{3/2}-4^2S_{1/2}$ (excitation wavelength 5829 Å)

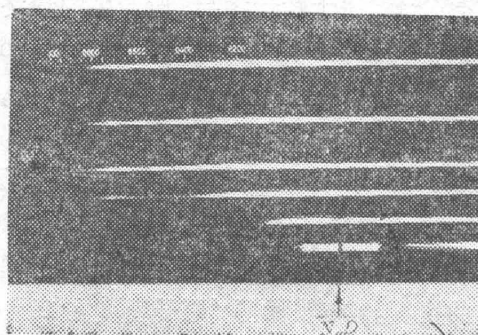


图 4 在各种温度下钾蒸气的吸收光谱

Fig. 4 The spectrogram of potassium vapor absorption at various temperatures

图 5 是钾分子 K_2 的势曲线和钾原子 K 的能级图。对应于分子跃迁 $X^1\Sigma_g^+-A^1\Sigma_u^+$, $X^1\Sigma_g^+-B^1\Pi_u$ 和 $X^1\Sigma_g^+-C^1\Pi_u$, 有三个分子吸收带存在, 分别在 8000 Å、6500 Å 和 4200 Å 附近。其中, 吸收带 $X^1\Sigma_g^+-B^1\Pi_u$ 在我们吸收光谱中已经出现, 另外两个不在我们的吸收光谱测量范围内。除此之外, 在吸收谱中发现了一个在 5700 Å 附近的连续吸收带, 它对应于钾分子中不稳定的三重态之间跃迁。这个吸收带的实验观察最早为 Rebbeck 等人报道^[1], 以后 Kraulinya 等人用测量分子的激光诱导荧光方法也观察到了它的存在^[2], 并且发现在一定温度下, 它可以扩展成为 5300 ~ 5900 Å 宽带吸收。由于关于分子三重态的研究工作较少, Rebbeck 和 Kraulinya 等人都未能确切认定这一吸收所对应的高能位三重态。由于这一宽带吸收的存在, 我们可以对观察到的强的 $4p-7s$ 、 $4p-5d$ 跃迁光谱信号做以下解释: 当染料激光在对应于钾分子吸收的波段内调谐时, 处于热状态的稠密钾蒸气中 $4s$ 钾原子碰撞形成处在 $b^3\Sigma_u^+$ 态的钾分子, 然后吸收激光辐射而被激发到一定的高排斥态(取决于激光辐射波长和分子的两原子核间距离), 出现解离形成激发态 $4p$ 钾原子和基态 $4s$ 钾原子。如果把激光调谐到与 $4p-7s$ 、 $4p-5d$ 跃迁之一共振时, 那么在第一个光子解离钾分子形成钾原子 $4p$ 态布居(大约在 $10^{-9} \sim 10^{-13}$ 秒之内^[3])的“同时”, 第二个光子可能激发解离后产生的 $4p$ 钾原子到 $7s$ 或 $5d$ 态之一, 产生激光共振电离光谱信号。这种激发过程总起来讲是一种两光子过程, 并

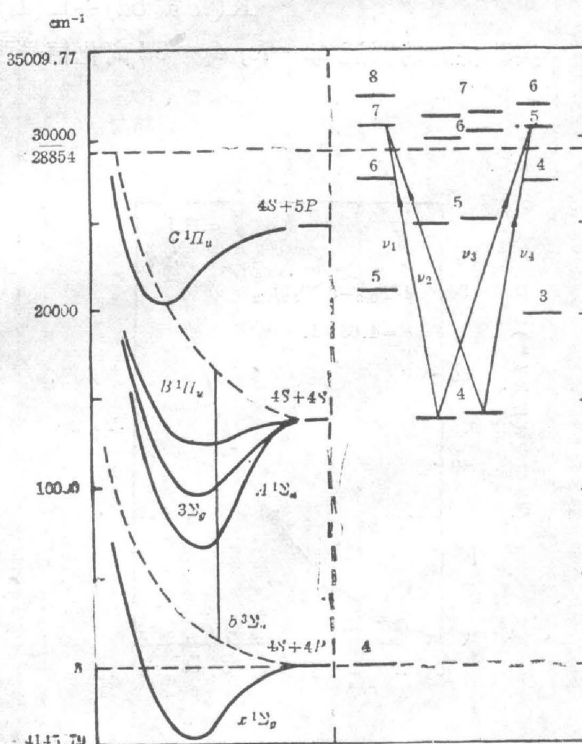
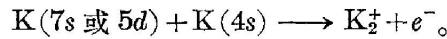


图 5

这种激发过程总起来讲是一种两光子过程, 并

且同时有分子、原子跃迁参与,所产生的最终激发态与起始的基态宇称是相同的,因而常被称为混合双光子跃迁 (Hybrid two-photon transition)。这种混合双光子跃迁在铯^[4]、铷^[5]、铟^[6]、镱^[7]等金属蒸气中都已经观察到,在钾蒸气中 Shen 等人也在 4600 Å~4720 Å 波长范围内观察到了这种激发过程^[8]。

一般认为^[9],在碱金属蒸气中激光激发原子的离化过程可以分成三种形式:多光子离化,原子-原子碰撞离化(包括能量合并碰撞离化、激光诱导碰撞离化和缔合离化)以及电子-原子碰撞离化。究竟激发态原子以何种过程离化,主要应当取决于实验中激光的强度和原子蒸气的密度。在较稀薄(原子密度在 10^{13} cm^{-3} 以下)的原子蒸气中,如果激光强度足够强,多光子离化过程则是主要的;而激光强度不是很强、原子蒸气又较稠密时,原子之间的碰撞离化过程就将成为主要的了。Lee 等人^[10]利用质谱方法分析了在钾蒸气中光激发产生 np 激发态的离化产物,发现当主量子数 $n \geq 6$ 时离化产物主要是钾分子离子 K_2^+ ,而不是钾离子 K^+ 。而只有当钾原子被激发到主量子数 n 很大的激发态时离化产物中钾离子 K^+ 才成为主要的。这也就是说明了在 $n \geq 6$ 时主要离化过程是缔合离化 (associative ionization),这时原子激发态的能量 E_A 满足缔合离化过程的能量条件 $E_A \geq I_A - D_0^+$ (其中 I_A 为原子的离化能, D_0^+ 为分子的解离能)。对于钾, $I_A = 4.341 \text{ eV}$, $D_0^+ = 0.764 \text{ eV}$, 激发态 $7s$ 和 $5d$ 的激发能都大于 $I_A - D_0^+$,因此在实验中较稠密的钾蒸气中通过混合双光子跃迁过程而产生的激发态 $7s$ 或 $5d$ 钾原子在与基态 $4s$ 钾原子碰撞时极易出现缔合离化:



实验得到的跃迁 $4p-7s$, $4p-5d$ 离化信号强度与激发的激光强度的关系如图 6 所示,

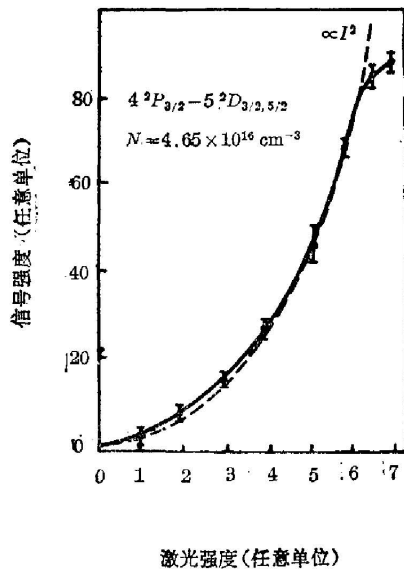
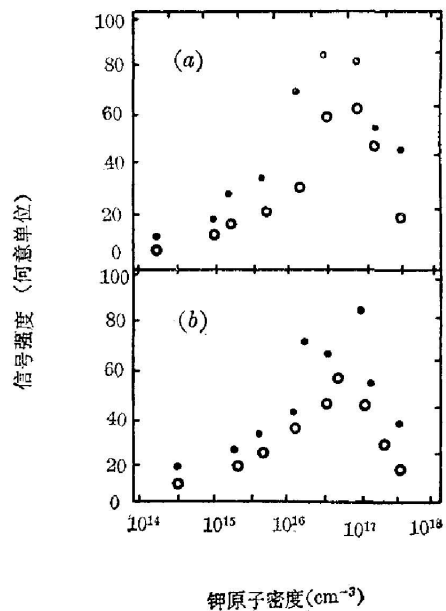


图 6 离化信号强度与激光光强的关系
Fig. 6 Ionization signal intensity as a function of laser intensity



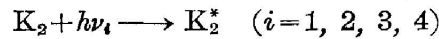
(a) $4 \ ^2P_{3/2} - 5 \ ^2D_{3/2, 5/2}$ (b) $4 \ ^2P_{3/2} - 7 \ ^2S_{1/2}$
 $4 \ ^2P_{1/2} - 5 \ ^2D_{3/2}$ $4 \ ^2P_{1/2} - 7 \ ^2S_{1/2}$

图 7 离化信号强度与原子蒸气密度的关系
Fig. 7 Ionization signal intensity as a function of vapor density

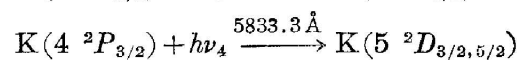
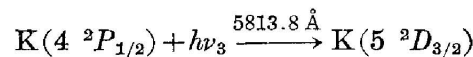
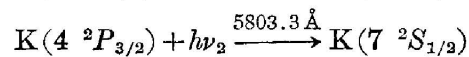
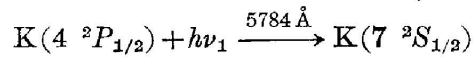
而离化信号强度与钾原子密度的关系在图 7 中给出。从图 6 中可以看到, 这些跃迁 (以 $4^3P_{3/2} - 5^3D_{3/2,5/2}$ 为例) 的离化信号强度与激发的激光强度的平方成正比, 并且在光强较强时呈现饱和趋势。这表明测量到的离化信号的形成与两个光子吸收有关。正如前面所述, 在我们的实验条件下, 原子密度较大激光强度又较弱, 光电离产生离子的几率很小, 激发态 $7s$ 、 $5d$ 的离化主要为缔合离化过程, 因而这种离化信号与光强的关系又进一步表明产生 $7s$ 、 $5d$ 的激发过程是与两个光子吸收有关的, 即通过混合双光子跃迁产生激发态 $7s$ 、 $5d$ 钾原子。

二、结 论

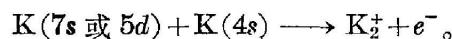
综上所述, 钾蒸汽中 $4p-7s$ 、 $4p-5s$ 跃迁的激光共振电离光谱信号形成是由于在稠密的钾蒸气中处于最低排斥态的钾双原子分子吸收波长对应于钾 $4p-7s$ 、 $4p-5d$ 跃迁之一的激光辐射被激发到一激发排斥态



后解离形成的 $4p$ 态钾原子吸收同一波长的另一个光子而共振激发到 $7s$ 或 $5d$ 态:



最后在与基态 $4s$ 钾原子碰撞中产生缔合离化



我们的工作表明, 在研究稠密的碱金属蒸气中激光产生的激发、离化过程时必须注意考虑可能由于碱金属双原子分子参与而出现的新现象。

作者对美国国立阿贡实验室研究员、吉林大学客座教授陆光祖博士的热情指导表示感谢, 对骆兴业副教授在理论分析上的指导以及袁恹谦、王清文等同志在实验中的帮助表示感谢。

参 考 文 献

- [1] M. M. Rebbeck and J. M. Vaughan; *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.*, 1971, **4**, No. 2 (Feb), 258.
- [2] E. K. Kraulinya and M. L. Yanson; *Opt. Spectrosc. (USSR)*, 1979, **46**, No. 6 (Jun), 629.
- [3] J. I. Steinfeld; *Molecules and Radiation*, (Haper & Row, Publishers, 1974), 141.
- [4] C. B. Collins, B. W. Johnson, D. Popescu, G. Musa, M. L. Pascu and I. Popescu; *Phys. Rev.*, 1973, **A8**, No. 4 (Oct), 2197.
- [5] C. B. Collins, S. M. Curry, B. W. Johnson, M. Y. Mirza, M. A. Chellehmalzadeh, J. A. Anderson, D. Popescu and I. Popescu; *Phys. Rev.*, 1976, **A14**, 5 (Nov), 1662.
- [6] M. Y. Mirza, W. W. Duley; *Proc. R. Soc. London ser.*, 1978, **A364**, 255.
- [7] M. Y. Mirza, W. W. Duley; *Opt. Commun.*, 1979, **28**, No. 2 (Feb), 179.
- [8] N. M. Shen, and S. M. Curry; *Opt. Commun.*, 1977, **20**, No. 3 (Mar), 392
- [9] T. B. Lucatorto, and T. J. Mollrath; *Appl. Opt.*, 1980, **19**, No. 23 (1 Dec), 3948.
- [10] Lee, Yuan-tsen and B. H. Mahan; *J. Chem. Phys.*, 1965, **42**, No. 8 (Apr), 2893.

Hybrid two-photon transitions in alkali-metal potassium vapor*

DING DAJUN AND ZHANG ZAIXUAN

(Department of Physics, Atomic and Molecular Physics Institute, Jilin University)

(Received 4 May 1984)

Abstract

We have measured the resonant ionization spectrum of alkali-metal potassium vapor in the range of $5780 \text{ \AA} \sim 5920 \text{ \AA}$, using a flashlamp pumped tunable dye laser. The results show that the two-photon transitions of atomic potassium $4s \rightarrow ns$ ($n=12 \sim 18$), $4s \rightarrow nd$ ($n=10 \sim 16$) and stronger atomic potassium $4p \rightarrow 7s$, $4p \rightarrow 5d$ transitions have been obtained. These ionization signals of $4p \rightarrow 7s$, $4p \rightarrow 5d$ transitions are produced from potassium dimer-potassium atom hybrid two-photon transitions. We have discussed the results.

* This paper was reported at '83 IOL (Guangzhou, China).