

直流外电场诱导的 MgI 高里德堡态的混合

张景园 金佩* 周海天
(中国科学院研究生院, 北京)

提 要

在直流外电场存在时, 观察到 MgI 的经双光子禁戒跃迁 $3s^2 1S \rightarrow 3snp^1P$ 的多光子电离和倍频效应并解释为外电场引起的里德堡(Rydberg)态之间轨道角动量的混合。实验结果与理论解释一致。

关键词: 禁戒跃迁, 光学二倍频。

一、引 言

关于里德堡原子的研究, 过去半个世纪, 特别是最近十年, 无论是实验或理论工作都一直十分活跃。里德堡态的原子由于轨道半径很大, 束缚能很小, 对外界的扰动非常敏感。外电场对里德堡原子影响的研究已有报道^[1~3]。Mossberg 等人研究了外磁场下 LiI 蒸汽中二次谐波(second harmonic generation)^[3], Jumpei Okada 等人研究了 LiI 蒸汽中无外场下双光子共振跃迁 $2^2S_{1/2} \rightarrow 3^2S_{1/2}$ 的二次谐波, 并将二次谐波的出现解释为激光束周围的光电子与正离子之间的空间分离产生的径向电场与激光场之间的混频^[4]。

本文通过双光子共振多光子电离研究了直流外电场对 MgI 的双光子禁戒跃迁 $3s^2 1S \rightarrow 3snp^1P$ ($n=16 \sim 21$) 的影响, 同时还研究了外电场下 MgI 蒸汽中通过 $3s^2 1S \rightarrow 3snp^1P$ 双光子共振增强的二次谐波并对实验结果加以理论解释。

二、实验装置

图1是测量以里德堡能级作为双光子共振的中间能级的多光子电离的实验装置示意图

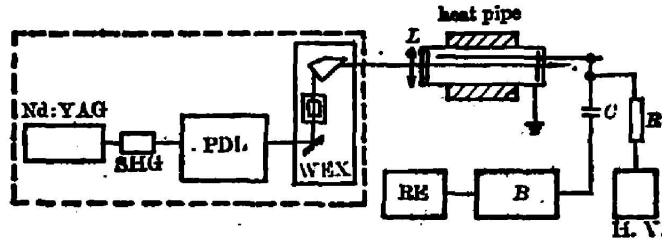


Fig. 1 The experimental set-up for measuring multi-photon ionization in magnesium vapor.
PDL: pulse dye laser, L: lens, B: boxcar averager, RE: recorder, HV: high voltage.

收稿日期: 1987年3月30日; 收到修改稿日期: 1987年5月11日

* 成都科技大学物理系。

图。由一台 YAG 激光器的二倍频泵浦的染料激光器和染料倍频系统 (美国 Quanta-Ray 公司 DCR-2A(10)/PDL-1E/WEX-1 激光系统) 产生的脉冲可调谐紫外激光 (线宽 0.25 cm^{-1} , 脉宽 $4\sim 5 \text{ ns}$, 激光波长的扫描是通过一个由微型计算机控制步进电动机带动光栅的转轴来实现的), 经阿贝棱镜分出的倍频光用一个焦距 25 cm 的石英透镜聚焦到热管炉内, 炉内装有 Mg 和缓冲气体 Ar, 端面法兰用循环水冷却, 炉温由精密温度控制器 (DWT 702) 控制到所需温度。炉的中心悬有一根直径为 1.5 mm 的钨杆作为探测电极, 在钨杆和热管炉壁之间加上直流偏压就可以形成直流的外加电场, 其场强 E 和偏压 V 之间的关系是

$$E = \frac{V}{r \ln(R_2/R_1)}, \quad (1)$$

式中 R_1 为钨杆半径, R_2 为炉的内半径, r 是钨杆中心到激光束的距离, 在本文实验中 $r \approx R_1$ 。整个激光与 Mg 蒸汽相互作用区产生的离子都可被探测到, 所检测的电离信号通过一个取样电阻取出, 并通过一个隔直电容耦合输出, 经 Boxcar 积分器 (PAR 162/165) 处理后记录在记录仪上。

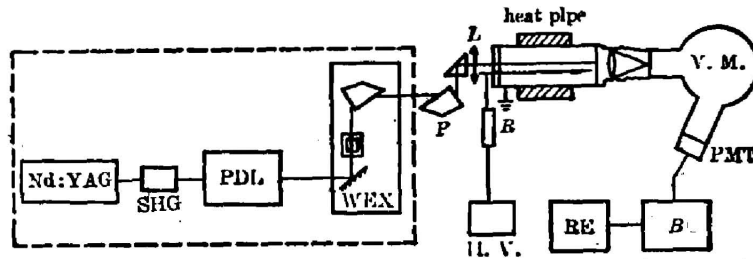


Fig. 2 The experimental set-up for measuring VUV radiation in magnesium vapor.
P: Abel prism, VM: VUV monochromator.

当测量以里德堡能级作为双光子共振能级的二次谐波时, 装置的结构如图 2。两个阿贝棱镜的反向放置是为了减少激光波长大范围扫描时, 由于分光棱镜的色散造成的激光束空间方向的变化, 染料激光的倍频分量聚焦到热管炉内, 产生的前向受激辐射用 MgF_2 透镜聚焦到真空紫外单色仪 (λ -minuteman 350 SNA) 的入射窄缝上。由于产生的紫外辐射波长在 2000 \AA 以下, 因此热管炉的出口和单色仪之间必须真空联结, 整个分光系统和检测系统都必须用真空泵持续抽气, 维持真空度为 10^{-3} Torr , 产生的紫外辐射经真空紫外单色仪分光后, 用太阳盲真空紫外光电倍增管接收。

三、实验结果及讨论

1. 外电场下禁戒跃迁的电离信号

图 3 是镁蒸汽压 $P_{\text{Mg}} = 4 \times 10^{-3} \text{ Torr}$, 氩的压强 $P_{\text{Ar}} = 5 \text{ Torr}$, 激光能量 $250 \mu\text{J}$ 。电场强度为 5.1 V/cm 时的电离谱, 显然当双光子共振到允许态时, 观察到 $[3s^2 \ ^1S \rightarrow 3snd \ ^1D (n = 16 \sim 21)]$ 跃迁的电离信号。因此, 可以认为在低密度、低场强、低激光能量下, 由于外界的扰动很小, 在热二极管的检测灵敏度内没有禁戒跃迁。

图 4 是外电场 $E = 5.1 \times 10^3 \text{ V/cm}$, 其它条件不变下的电离谱。从图中看出, 不仅有正

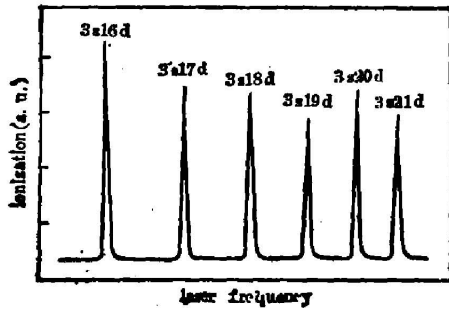


Fig. 3 Ionization spectrum of MgI with $3snl$ states as two-photon resonance state at electric field strength $E=5.1$ V/cm

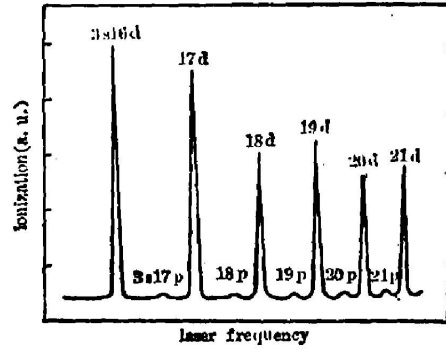


Fig. 4 Ionization spectrum at $E=5.1 \times 10^2$ V/cm showing electric field-induced two-photon forbidden $3s^2^1S-3sn^1P$ ($n=17\sim 21$) transition

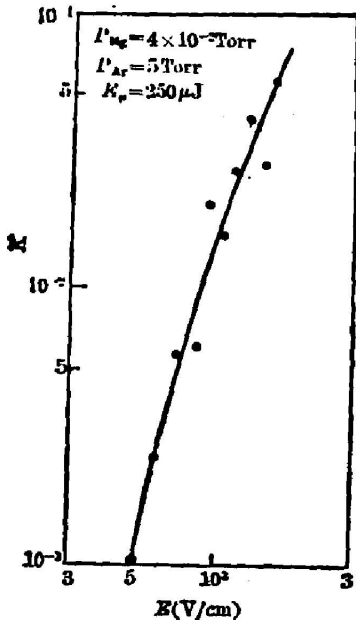


Fig. 5 Intensity ratio K as a function of external electric field E

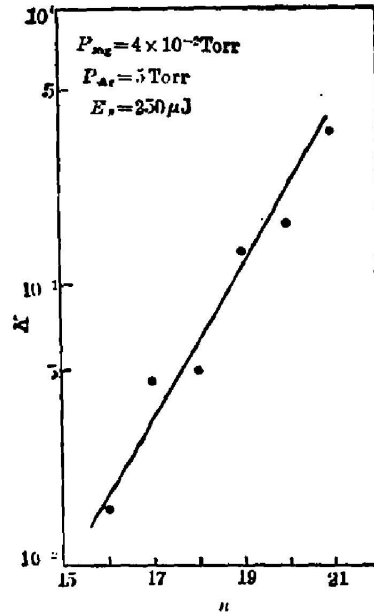


Fig. 6 Intensity ratio K as a function of n at $E=1.0 \times 10^3$ V/cm

常的 $3s^2^1S \rightarrow 3snd^1D$ ($n=16\sim 21$) 的电离信号, 还有一系列小峰, 它们是双光子共振到 $3s^2^1S \rightarrow 3snp^1P$ ($n=17\sim 21$) 的电离信号, 此时外电场引起了双光子禁戒跃迁。

图 5 是实验测得的禁戒跃迁与相邻允许跃迁的电离信号强度比 ($K=I_{3s^2-3p19p}/I_{3s^2-3s16d}$) 随外电场的变化关系曲线。可以看出, 对于一定的 n , 电场越大, K 就越大, 即越有利于双光子禁戒跃迁的出现。

图 6 是在电场强度 $E=1.0 \times 10^3$ V/cm, 其它条件不变时测得的 $K=I_{3s^2-3snp}/I_{3s^2-3snd}$ 随 n 的变化关系曲线。它表明, 当外场一定时, n 越高, K 就越大, 即禁戒跃迁的强度就越大。

上述禁戒跃迁的产生, 可以解释为由于外电场所引起的里德堡能级之间角动量的混合, 即相邻的能态发生混合。在高里德堡态时, 能级相距很近, 在外电场的作用下, 容易发生混

合,例如 $|np\rangle$ 可以和其它的态混合,混合后的 $|\tilde{np}\rangle$ 可表示为

$$|\tilde{np}\rangle \rightarrow a_n |np\rangle + \sum_n b_n |n'l\rangle, \quad (2)$$

这里 b_n 是主量子数为 n' 、角量子数为 l 的能级的混合系数。若只考虑 $|np\rangle$ 态与相邻的较强的 d 态的混合,则

$$|\tilde{np}\rangle \rightarrow a_n |np\rangle + b_n |nd\rangle + b_{n-1} |(n-1)d\rangle. \quad (3)$$

这样,双光子禁戒跃迁 $3s^2\ ^1S \rightarrow 3snp\ ^1P$ 实际上就是外电场作用下混合的 $|n'd\rangle$ ($n'=n, n-1$) 态的允许跃迁 $3s^2\ ^1S \rightarrow 3sn'd\ ^1D$, b_n 越大,混合的几率越大,禁戒跃迁的强度就越大;对于一定的 n ,外电场越强,就越有利于能态的混合,因此禁戒跃迁的强度就越大;对于一定的外电场, n 越大,能级相距越近,且核的束缚越小,因此, $|np\rangle$ 越容易与相邻的 d 态混合,即禁戒跃迁的强度就越大。这与实验结果是一致的。

关于 b_n 的定量计算,在低里德堡态时,核对电子的作用比外电场对电子的作用大得多,可用微扰论来计算 b_n ^[2]。即在电场 $E = E\mathbf{I}_z$ 下,

$$b_n = \frac{\langle n'd | eE_z | np \rangle}{E(np) - E(n'd)} = \frac{\langle n'd | eE_z | np \rangle}{hc\Delta\nu}. \quad (4)$$

而禁戒跃迁与相邻允许跃迁强度之比 K 正比于 $|\sum_n b_n|^2$, 因此 K 应正比于外电场 E 的平方。但本文实验是 MgI 高里德堡态,此时核对电子的作用很小,外电场对电子的作用与核对电子的作用相比已不是一个小量,故微扰法不再适用,图 5 中 $K-E$ 曲线的斜率大于 2,即 K 不是与 E^2 成正比,这就说明了微扰法已不适用了,需寻求新的计算方法,这有待于进一步的理论探讨。

2. 外电场下禁戒跃迁的二次谐波

在均匀原子蒸气中,由于介质的中心对称性及宇称守恒的限制,二阶极化率 $\chi^{(2)} = 0$,因此没有二阶非线性效应(如二次谐波)出现。但是利用外场破坏这些限制,就可以在原子蒸气中产生二次谐波振荡。

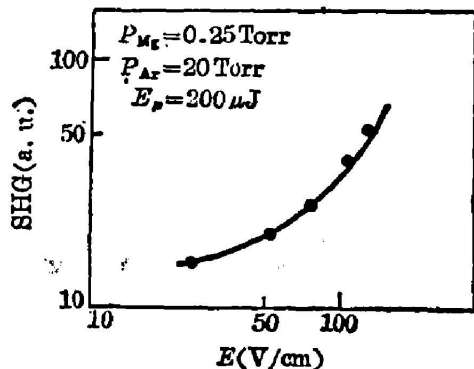


Fig. 7 SHG as a function of external electric field E via two-photon forbidden $3s^2\ ^1S-3s21p\ ^1P$ resonance in magnesium vapor

图 7 是在 $P_{Mg} = 0.25$ Torr, $P_{Ar} = 20$ Torr, 激光能量 $200\ \mu\text{J}$ 条件下,当激光波长调谐到双光子禁戒跃迁 $3s^2\ ^1S \rightarrow 3s21p\ ^1P$ 附近时测量到的二次谐波随外电场的变化关系曲线。从图中可知,外电场越大,倍频信号越强,这说明外电场的增加对与双光子禁戒跃迁相联系的二次谐波有利。

上述实验现象可以解释为外电场作用下原子蒸气的中心对称性的解除和里德堡态轨道角动量的混合的结果。前一种效应是显然的,对于后一

种效应,可以这样理解:无外场情况下,双光子共振到 $|21p\rangle$ 时,二阶极化率为

$$\chi^{(2)} = -\frac{Ne^3}{\hbar^2} \sum_n \frac{\langle 3s | \mathbf{r} | 21p \rangle \langle 21p | \mathbf{r} | mp \rangle \langle mp | \mathbf{r} | 3s \rangle}{(\omega_{21p} - 2\omega_L + i\Gamma_{21p}) (\omega_{mp} - \omega_L + i\Gamma_{mp})}, \quad (5)$$

式中 N 是基态粒子密度, ω_w 是双光子共振到 $|n\rangle$ 能级的共振频率, Γ_n 是相应能级的宽度。在电偶极近似下, $\langle 21p | \mathbf{r} | mp \rangle = 0$, 所以 $x^{(2)} = 0$, 即无二次谐波发生。当外电场存在时, 不同能态发生混合, 考虑 $|21p\rangle$ 与较强 d 态的混合, 即

$$|\widetilde{21p}\rangle \rightarrow a|21p\rangle + \sum_n b_n |n'd\rangle. \quad (6)$$

代入(5)式, 则

$$x^{(2)} = -\frac{Nc^3}{\hbar^2} \sum_n \frac{\langle 3s | \mathbf{r} | 21p \rangle \langle \sum_n b_n n'd | \mathbf{r} | mp \rangle \langle mp | \mathbf{r} | 3s \rangle}{(\omega_{21p} - 2\omega_L + i\Gamma_{21p})(\omega_{mp} - \omega_L + i\Gamma_{mp})}. \quad (7)$$

此时 $x^{(2)} \neq 0$, 倍频信号的强度 I_{SHG} 正比于 $|x^{(2)}|^2$ 。外电场越强, 混合的几率就越大, 即 b_n 越大, 因此 $x^{(2)}$ 也就越大, 即 $3s^2 1S \rightarrow 3s21p^1P$ 的二次谐波越强。实验结果也说明了这一点。

四、结 论

本文研究了外电场下 MgI 的经双光子禁戒跃迁 $3s^2 1S \rightarrow 3snp^1P$ 的多光子电离的倍频效应, 并将双光子禁戒跃迁及倍频效应的出现解释为外电场诱导的不同能态的轨道角动量的混合。理论解释与实验结果具有较好的一致性。外电场下能态的混合引起的禁戒跃迁的研究和定量测量, 对于理解在金属蒸汽中利用二倍频产生真空紫外的物理机制提供了直接的定量的数据。

作者感谢李琼茹同志对本文实验工作的热情帮助。

参 考 文 献

- [1] R. D. Knight, Liang-gou Wang; *Phys. Rev. (A)*, 1985, **32**, No. 2 (Nov), 896.
- [2] R. D. Knight, Liang-gou Wang; *Phys. Rev. (A)*, 1985, **32**, No. 5 (Nov), 2751.
- [3] T. Mossberg *et al.*; *Opt. Commun.*, 1978, **25**, No. 1 (Apr), 121.
- [4] J. Okada *et al.*; *J. Phys. Soc. Jpn.*, 1981, **50**, No. 4 (Apr), 1301.

D. C. Field-induced high Rydberg state mixing in MgI

ZHANG JINGYUAN, JIN PEI* AND ZHOU HAITIAN

(Department of Physics, Graduate School, Academia Sinica, Beijing)

(Received 30 March, 1987; revised 11 May, 1987)

Abstract

Multiphoton ionization and second harmonic generation (SHG) via two-photon forbidden $3s^2 1S - 3snp^1P$ ($n = 16 \sim 21$) resonance in Mg vapor have been observed and studied in the presence of a DC electric field and were interpreted as l-mixing of Rydberg states caused by external electric field. The experimental results are in

agreement with theoretical explanation.

Key words: forbidden transition; second harmonic generation.

* Dept. of Physics, Chengdu University of Science and Technology.

第五届全国激光基本问题讨论会在长春市召开

受中国光学学会激光专业委员会委托,由吉林大学、长春光学精密机械学院和哈尔滨工业大学联合筹备的第五届全国激光基本问题讨论会于1987年7月25~29日在吉林省长春市召开。来自全国15个省、市40多个单位的100多位代表参加了这届讨论会。

这是激光专业委员会主持召开的全国性激光两大系列会议之一——“单”年召开“全国激光基本问题讨论会”;“双”年召开“全国激光学术报告会”。会议共宣讲论文近80篇,其中8篇为大会发言。本届会议在总结了历届讨论会的基础上,注意邀请了一些前沿领域工作的专家就不稳定性和浑沌态、自由电子激光器、短波长化学激光器和色心激光器等进行了较详细的综述评论,受到了与会代表的欢迎。

本届讨论会引人兴趣的议题是激光不稳定性和浑沌态,会议就激光不稳定性及浑沌态产生的条件和特点进行了热烈的讨论。特别注意到浑沌态现象,不仅是激光科学特有的现象,在其他科学中也有类似的现象,例如,浑沌与大脑、经络的联系等,说明它在各学科间的内在关系,同时也讨论了激光不稳定性和浑沌态的可能应用。

激光基本问题讨论会共进行了五届,代表们认为,通过讨论澄清了不少理论问题和认识问题,对一些激光基本概念和原理得到了更深刻的阐述,这对于提高激光教学质量及科技人员的基础理论水平起了一定作用,因此,大家一致认为这样的讨论会形式很好,有必要继续进行。

与会代表对X光激光、短波激光等研究进展以及激光领域中的新技术和新现象也进行了讨论,并望在以后讨论会中作进一步讨论。

会议建议讨论会于1989年在华南地区举行,主要议题可以选为新型激光器和激光新技术中的原理、激光压缩态等;并建议由厦门大学、福建师范大学、福州大学、华侨大学等筹备。

第九届全国激光学术报告会征文通知

第九届全国激光学术报告会将于1988年8月在哈尔滨召开。会议由中国光学学会激光专业委员会和中国电子学会量子电子学与光电子学学会联合主持。哈尔滨工业大学等单位筹办。

征稿范围包括:激光理论,激光元、器件及其各类应用等。

截稿日期:1988年3月10日前(以邮戳为准)挂号投寄哈尔滨工业大学309信箱,高惠德同志收。

(黎 凤)