

激光两步激发镱原子束的荧光光谱

王大地 王成飞 蒋占魁

(吉林大学物理系、吉林大学原子分子所)

提 要

本文用激光两步激发原子束方法,获得了YbI四个里德堡系列的荧光光谱。首次给出了 $6s7s\ ^3S_1$ ($n=15$ 到 $n=22$)及 $6s\ 33s\ ^1S_0$, $6s\ 24s\ ^1S_0$ 能位的实验数据。

关键词: 二步激发; 荧光光谱; 里德堡系列。

一、引 言

稀土元素具有复杂的能级结构。高激发态的稀土原子表现出强的组态相互作用,多电子激发和离化等过程。由于稀土元素镱(Yb)的 $4f$ 壳层已填满,外层只有两个 s 电子,它具有类似碱土金属的光谱性质。但因其 $4f$ 壳层的电子容易被激发,这就使它的光谱性质较碱土元素复杂。早在1937年, Meggers等就对YbI的光谱进行了分析。以后的几十年,他们又对YbI的光谱数据作了补充。但都仅限于低激发态^[1]。1978年 Camus等人^[2]报道了Yb的双光子吸收光谱。之后又在他们的第二篇文章里^[3]利用热离子二极管测定了Yb的三个里德堡系列[$6s7s\ ^1S_0$ ($n=10\sim 22, 25\sim 65$); $6snd\ ^3D_2$ ($n=10\sim 61$); $6snd\ ^1D_2$ ($n=10\sim 80$)]的能级位置。Aymar等人^[4]对这些能位进行了理论分析。

本文报道了用激光与原子束相作用和两步激发方法获得的YbI四个偶宇称的里德堡系列。它们是 $4f^{14}6s7s\ ^1S_0$ ($n=12\sim 25, 27$); $4f^{14}6s7s\ ^3S_1$ ($n=12\sim 24$); $4f^{14}6snd\ ^3D_2$ ($n=10\sim 39$); $4f^{14}6snd\ ^1D_2$ ($n=10\sim 39$); 同时也得到了几条由双电子激发的干扰组态构成的谱线。除了与Camus等给出的数据相符合的部分外,首次给出了 $6s7s\ ^3S_1$ 系列及 $6s23s\ ^1S_0$, $6s24s\ ^1S_0$ 实验数据。

二、实验装置

实验装置如图1所示。一台Quanta Ray DOR-2型Nd:YAG激光器同时泵浦两台可调谐染料激光器,脉冲宽度小于8ns,重复率10pps。染料激光器I,作为第一步激发光源,使用 B_{770} 染料,波长调到由基态到中间能级 $6s6p\ ^3P_1$ 的跃迁。染料激光器II(PDL-1)及连接它的波长扩展系统(WEX-1),产生309~336nm波段的激光。通过双色镜使两束染料激光共线并与原子束交叉,作用区直径约为3.5mm。

原子束装置由三部分组成。高真空系统,原子蒸发炉和原子束腔体,由较大抽气速率的

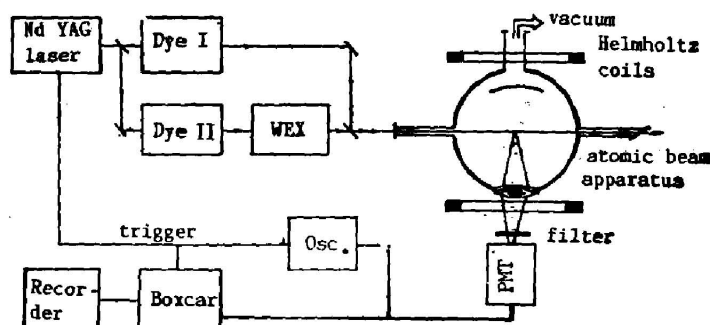


Fig. 1 Experimental set-up

两级泵组成的真空系统可使真空室维持 10^{-6} Torr 以上的真空度。稀土镜在留有喷射孔的钼锅中被蒸发, 加热体是由对绕在高温陶瓷骨架上的钼丝及石英绝缘套组成, 在加热体外还包有钽片保温层, 它可使钼锅温度长时间保持在 800°C 以下任意温度。激光与原子束在腔体中央垂直交叉。腔体包括真空室, 观察窗, 激光入、出射臂, 及荧光收集窗口。如图 1 所示, 激光入、出射长臂中的一组光阑及出射布儒斯特窗, 用于减少激光杂散光。荧光由大口径透射收集。选择适当的滤色片, 可以进一步清除激光杂散光的影响。荧光信号由 EMI9789-QB 型光电倍增管接收, 并送至 Boxcar 积分器, 最后用记录仪记录。图中的亥姆霍兹线圈主要用于测量荧光信号波形时, 消除地磁场所引起的光学量子拍。

三、测量与结果

两步激发过程如图 2 所示。由于镱原子的 3P_1 态不是一个纯 $L-S$ 耦合态, 存在着单、三重态的混合, 因此不严格遵守 $L-S$ 耦合的选择定则, 所以单重态到三重态的跃迁不是禁戒的。又由于 3P_1 具有很长的寿命 (875 ns), 容易在它上面保持较多的粒子数分布, 选择它作为激发的中间能级会提高第二步激光激发的效率。由于原子从基态 ($6s^2\ ^1S_0$) 吸收了两个光子后达到高激发态, 因此所要研究的终态属于偶宇称, 即 $6sns$, $6snd$, $6p^2$ 及 $4f^{13}5d6s6p$ 等。

首先将染料激光器 I 调到 $6s^2\ ^1S_0-6s6p\ ^3P_1$ 共振跃迁, 当达到共振时, 可用肉眼在激光与原子束作用区直接看到共振荧光。为了研究高激发态, 第二步激发采用紫外激光, 使两光子能量复盖 $47840\sim 50360\text{ cm}^{-1}$ 范围, 接近于第一电离限 (50443 cm^{-1})。尽管原子束装置本身采用了一些消除杂散光的措施, 但是由于激光较强, 仍有一些杂散光进入测量系统, 为了压低它的影响, 我们加一透过区在 $390\sim 450\text{ nm}$ 波段的滤色片, 刚好把两个激发线滤掉, 探测的荧光属于: 终态 $\rightarrow 6s6p\ ^1P_1$ 及 $6s6p\ ^1P_1 \rightarrow$ 基态的跃迁。因此获得了很高的信噪比。

根据有关文献^[1,3,5], 作者对绝大部分谱线进行了识别。图 3 给出了部分镱原子两步激发荧光谱, 并标出了这些谱线所对应的跃迁。四个偶宇称里德堡系列分别为: $6sns\ ^1S_0$, $n=12\sim 25$; $276sns\ ^3S_1$, $n=12\sim 24$; $6snd\ ^3D_2$, $n=10\sim 39$; $6snd\ ^1D_2$, $n=10\sim 39$; 其中 $n=26$ 和 $n\geq 28$ 时 3D_2 与 1D_2 态已分辨不清。几条干扰组态的谱线也已识别出, 即 $6p^2$ ($J=0$); 属 $4f^{13}5d6s6p$ 的 5 条谱线 ($J=2$ 两条, $J=0$ 一条, $J=1$ 一条)。另外, 在谱的长波段还得到

了 $6s11d^3D_1$ 态的谱线。

从图 3 中可以看出, 随主量子数的增加, 谱线强度逐渐变弱, $6snd$ 系列比 $6sns$ 系列谱线明显强。 $6snd^1D_2$ 单重态比 $6snd^3D_2$ 三重态系列也强。但在实验中我们发现, 相对强度只对某一个系列有意义。因为采用定点 Boxcar 技术时, 取样点的位置与强度大小有直接关系。真正能反映跃迁线强度的是它的荧光波形, 即它随时间变化的情况。例如, 整个 nd^1D_2 单重态系列表现为上升时间很短, 寿命也短, 而 nd^3D_2 三重态系列, 上升时间较长, 下落也慢。单重态荧光下降到较低时, 三重态荧光才出现它的极大值点, 尽管单重态信号要比三重态的强很多, 但若把 Boxcar 积分门取在三重态荧光的极大值点, 仍可得到三重态谱线强于单重态的结果。图 3 即为此种情况。当然反之亦然。镱荧光波形中的诸多现象, 已在关于寿命的报道中加以讨论^[7]。

本文的测量给出了一个新系列 $6sns^3S_1, n=12 \sim 24$; 其中 $n=15 \sim 22$ 是首次报告。对于这个新系列认定的主要根据: (i) 从测得的谱线的相对强度和位置的变化规律, 可以断定这是来自一个系列能级的跃迁。在这个新谱系附近没有其它未知谱线的干扰; (ii) 在谱系的两端有五条谱线与前人实验测量值相符, 而这些谱线都已被标定属于 $6sns^3S_1$ 系列(见表 1)据此我们认

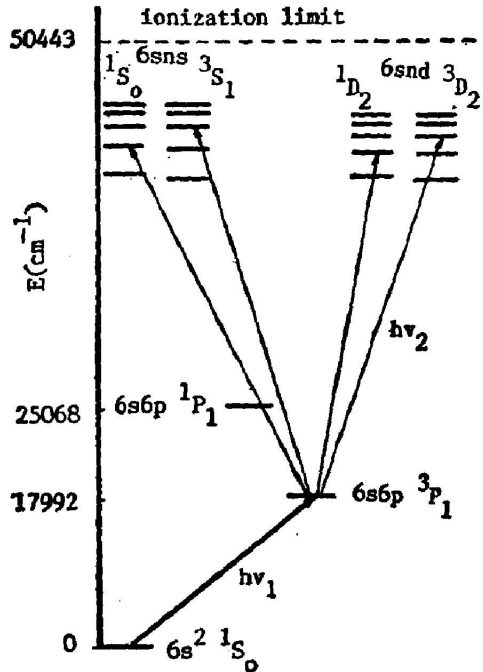


Fig. 2 The scheme of two-step excitation

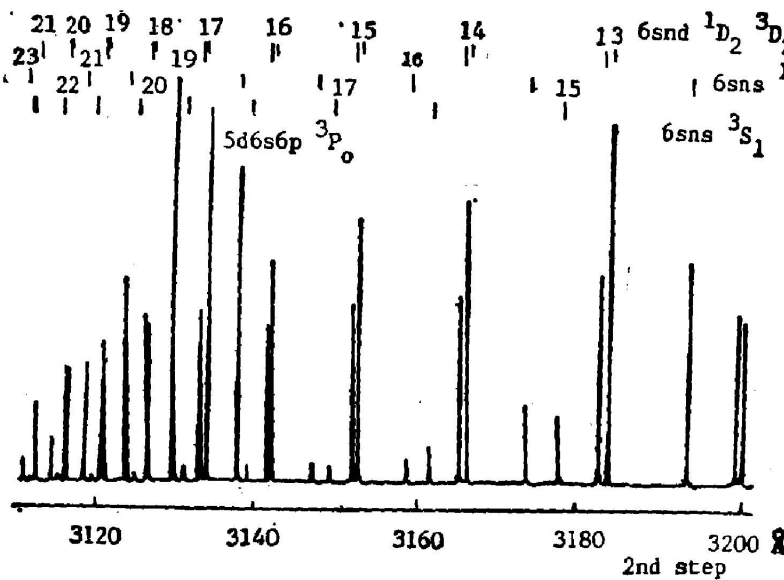


Fig. 3 Typical two-step LRF spectrum of natural ytterbium

为新标的中间八条线刚好是 Martin, Camus 等人所缺少的 3S_1 线系的那些谱线; (iii) 新测到的八条谱线与文献[6]的理论计算值基本一致, 这进一步说明我们的认定是合理的。同时也补充了文献[3]中没有的 $6s\ 23s\ ^1S_0$ 和 $6s\ 24s\ ^1S_0$ 两个态。所有这些结果均列于表 1 和表 2 中。在表中也列出了其它理论计算和实验结果*。考虑到各种因素的影响, 总的误差小于 0.3cm^{-1} 。按此误差, 我们的实验值与已有文献的实验值基本符合, 但与理论计算值相比存在差异。对于三重态系列除了 $12s\ ^3S_1$, $13s\ ^3S_1$ 两个态以外, 我们的实验值与理论值都有一个出共偏差, 约为 4cm^{-1} 。这已经超过了实验本身的测量误差, 我们认为实验测量是可信的。

Table 1 Observed lines in the two-step experiment via the $6s6p\ ^3P_1^o$ level (17992.02cm^{-1}). All lines belong to $6sns\ ^3S_1$ even levels. I is the symbol corresponding to the intensity of the line: w(weak), M(middle) S(strong).

Designation	I	Energy levels $E(\text{cm}^{-1})$		
		This work		Others work
		E_{exp}	E_{th}	$E_{\text{th}}^{[6]}$
$6s12s\ ^3S_1$	S	48520.3	48519.7 ^[1]	48499.7
$6s13s\ ^3S_1$	S	48944.1	48943.4	48932.2
$6s14s\ ^3S_1$	S	49241.2	49241.1 ^[3]	49234.7
$6s15s\ ^3S_1$	S	49457.9		49454.0
$6s16s\ ^3S_1$	S	49621.4		49618.0
$6s17s\ ^3S_1$	M	49747.0		49743.9
$6s18s\ ^3S_1$	M	49846.0		49842.5
$6s19s\ ^3S_1$	M	49924.9		49921.4
$6s20s\ ^3S_1$	M	49988.1		49985.5
$6s21s\ ^3S_1$	w	50042.4		50038.2
$6s22s\ ^3S_1$	w	50086.7		50082.2
$6s23s\ ^3S_1$	w	50124.2	50124.0 ^[3]	50119.3
$6s24s\ ^3S_1$	M	50155.8	50152.7	50151.0

Table 2 New lines, refilled the series P. Camus observed

Designation	E_{exp}	E_{th}	E_{th}
	(cm^{-1})	(cm^{-1})	(cm^{-1})
	this work	M. Aymar ^[4]	E. P. Vidolova ^[6] Angelova
$6s23s\ ^1S_0$	50130.6	50130.76	50140.4
$6s24s\ ^1S_0$	50161.8	50161.52	50169.9

稀土元素能级结构较为复杂, 它可以有几个不同值的一次离化限。而收敛于不同离化限的里德堡系列会出现很强的组态相互作用, 使能级结构, 性质发生变化。从本文的实验结果可以看出, 收敛于第一离化限的里德堡系列受到双电子激发组态 $4f^{12}\ 5d\ 6s\ 6p$, $6p^2$ 构成态的干扰。这些干扰态使得其邻近的态的谱线位置发生变化, 强度明显增强。如图 3 中的 $6s\ 18s$, $6s\ 19s\ ^1S_0$ 附近存在的干扰态 $5d\ 6s\ 6p\ ^3P_0$ 对这个系列的干扰是很明显的。对寿命测量表明^[7], 受干扰的态的寿命变短。

* 本文给出的能位值是按文献[3]测定的已知谱线为基准, 利用内插法而定的。

四、结 论

我们的实验结果给出了镱原子 $6ns^2S_1$ 里德堡系列 8 个能位的新数据, 同时找到了 $6s23s^1S_0$ 和 $6s24s^1S_0$ 两条 Camus 文章中所缺少的谱线。另外, 其它两个 D 态系列与文献 [3] 数据符合得很好。所有这些可以说明, 在原子束装置中利用同步的两台染料激光器作为两步激发并探测荧光方法, 对 YbI 高激发态的研究是可行的。由于原子束方法可以把与原子间相碰撞有关的能量转移等复杂过程减至最小, 因此给分析工作带来很多方便。荧光信号的时间特性反映了上能级的布居情况, 这为能级的寿命测量提供了一个直接的方法, 这部分工作已经发表^[7]。

感谢刘航和杨玉芬同志对本文实验工作的帮助。

参 考 文 献

- [1] W. O. Martin, E. Zalvbas and L. Hagan; *Atomic Energy Levels, the rare earth elements NBS-RS-NBS 60* (Washington, DC: US Govt Printing Office) 1978, 373.
- [2] P. Camus, A. Débarre and C. Morillon; *J. Phys. (B): At. Mol. Phys.*, 1978, 11, No. 13 (Jul), L395.
- [3] P. Camus, A. Débarre and C. Morillon; *J. Phys. (B): At. Mol. Phys.*, 1980, 13, No. 6 (Mar), 1073.
- [4] M. Aymar, A. Débarre and O. Robaux; *J. Phys. (B): At. Mol. Phys.*, 1980, 13, No. 6 (Mar), 1089.
- [5] J. F. Wyatt and P. Camus; *Phys. Scr.*, 1979, 20, No. 1 (Jul), 43.
- [6] E. P. Vidolova-Angalova, L. N. Ivanov and V. S. Letokhov; *J. Opt. Soc. Am.*, 1981, 71, No. 6 (Jun), 699.
- [7] a) Jiang Zhankui, Wang Chengfei, Wang Dadi; *Phys. Rev. (A)*, 1987, 36, No. 7, 3184.
b) Wang Dadi, Wang Chengfei, Jiang Zhankui, *J. Phys. (B): At. Mol. Phys.*, 1987, 20, L555~L558.

Fluorescence spectra of Yb Rydberg states with stepwise excitation in atomic beam

WANG DADI, WANG CHENGFEI AND JIANG ZHANKUI
(Department of Physics, Jilin University)

(Received 16 February 1987; revised 4 January 1988)

Abstract

The fluorescence spectra of four Rydberg series of YbI have been obtained using laser stepwise excitation in atomic beam. The new energy level data of $6ns^2S_1$ ($n=15$ to $n=22$) and $6s23s^1S_0$, $6s24s^1S_0$ are first reported.

Key words: stepwise excitation; fluorescence spectra; Rydberg series.