

# Yb 原子高激发态的斯塔克光谱

王云仙 戴长键 方达谓 储晓峰 郇菁 张森  
(浙江大学物理系, 杭州 310027)

**摘 要** 采用  $\pi\pi$  偏振激光, 通过两步激发和光电离方法, 在  $0 \sim 1514$  V/cm 电场范围内, 测定了 Yb 原子  $n = 18$  附近  $m = 0$  的斯塔克光谱. 首次把包含斯塔克效应的能量矩阵对角化方法推广到 Yb 原子, 所获得的理论斯塔克图与实验结果基本符合. 观察到低场中斯塔克簇随电场增加呈现线性结构以及  $^1P_1$  态与斯塔克簇在抗交叉过程中振子强度发生转移的现象. 讨论了能级结构与量子亏损的关系.

**关键词** 斯塔克光谱, 能级结构.

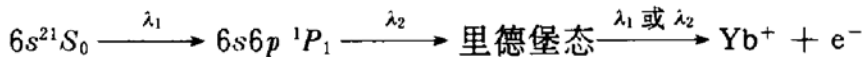
## 1 引 言

70年代后期以来, 对原子里德堡态的外电场效应的研究主要集中在碱金属原子<sup>[1,2]</sup>和碱土金属原子<sup>[3~7]</sup>. 由于稀土元素原子结构更为复杂, 研究其高激发的电场效应对认识复杂原子高激发态在外电场中的性质、稀土元素的广泛应用以及激光分离同位素技术都具有明显意义. 本文报道对 Yb 原子  $n = 18$  附近  $m = 0$  的斯塔克能级的实验测定和理论计算结果.

Zimmerman 等人<sup>[1]</sup>较全面地研究了碱金属原子里德堡态的斯塔克效应, 理论计算与实验结果吻合得很好. Harmin<sup>[8]</sup> 和 Sakimoto<sup>[9]</sup> 分别独立地完全了对 Zimmerman 等人的实验的 MQDT 理论分析, 除了能级位置的预测之外, 并提出了计算相应跃迁的振子强度的新方法. 最近 Bluhm 等人<sup>[10]</sup>利用量子力学超过对称性的原理在计算斯塔克效应方面也取得了相当的成功. 本文将 Zimmerman 的计算方法用到稀土元素 Yb 原子. 通过将斯塔克能量矩阵对角化的方法得到了 Yb 原子的斯塔克图, 其结果与实验基本一致.

## 2 实 验

实验装置与文献[6]类似. 方法与文献[7]相同. Yb 原子从  $T = 550^\circ\text{C}$  的原子炉中射出, 在静电场中使 Yb 原子从基态两步激发到里德堡态, 然后光电离. 其过程为:



其中  $\lambda_1 = 398.91$  nm,  $\lambda_2$  的线宽小于 0.02 nm, 并在 398 nm 至 400.7 nm 范围内扫描, 得到  $n$

\* 国家自然科学基金资助课题.

收稿日期: 1993年11月11日

=17 至 19 附近的斯塔克光谱. 两束激光都经过线偏振器变为偏振方向平行于外电场的线偏振光, 得到  $m = 0$  的光谱. 静电场在  $0 \sim 1514$  V/cm 范围内取值.  $n = 19$  的经典电离限用  $F = 1/16n^4$  (a. u.) 估算值为  $2.45$  kV/cm, 故实验的电场值低于经典电离限.

实验中对每一种固定电场值使  $\lambda_2$  扫描得到各电场值下的斯塔克光谱.  $\lambda_2$  扫描时, 波长用零场的  $6s19d \ ^1D_2$  和  $6s23d \ ^1D_2$  谱线定标, 其激发波长已知为  $\lambda_2 = 400.62$  nm 和  $398.28$  nm<sup>[1]</sup>. 零场时的离子收集电压由一较激光脉冲滞后  $0.5 \mu\text{s}$  的电压脉冲产生, 对每一固定电压值, 当  $\lambda_2$  扫描到  $400.6$  nm 或  $398.3$  nm 附近时, 用一开关使平板电极上的直流电压变换为脉冲电压, 以保证  $6s19d \ ^1D_2$ 、 $6s23d \ ^1D_2$  态的激发和电离过程在零场中进行. 在扫描范围内  $\lambda_2$  的变化近似为线性. 光电离后的  $\text{Yb}^+$  离子由电子倍增器检测, 经 Boxcar 和 X-Y 记录仪绘出光谱图.

### 3 实验结果与讨论

图 1 是实验得到的 Yb 原子  $n = 17$  至 19 附近,  $m = 0$ 、 $F = 943$  V/cm 时的斯塔克光谱图. 图 2 是各电场值下的斯塔克光谱按峰值位置绘出的  $n = 18$  附近的斯塔克图. 峰的高度并不严格按比例描绘. 由图 2 可见, 零场中  $l > 3$  的近简并态在电场中由于与强偶极跃迁态发生斯塔克混合而得到布居, 构成不完全的斯塔克簇. 低电场中斯塔克簇随电场增大呈现线性结构. 除受到  $^1P_1$  态干扰的个别区域以外, 簇内相邻能级间距近似相等, 且满足  $\Delta E \doteq 3nF$  (a. u.), 例如从图 1 中测得  $\Delta E = 2.1 \text{ cm}^{-1}$ , 而由  $3nF$  所得计算值为  $2.2 \text{ cm}^{-1}$ , 两者十分接近. 这显示出 Yb 原子里德堡态在低电场中仍具有类氫性质. 在  $F = 1/3n^5$  (a. u.) 附近,  $n$  与  $n+1$  簇产生了抗交叉. 当  $F > 1/3n^5$  (a. u.) 的高电场时, 簇内能级间距随电场值的增大越来越混乱, 显示出明显的非线性位移.

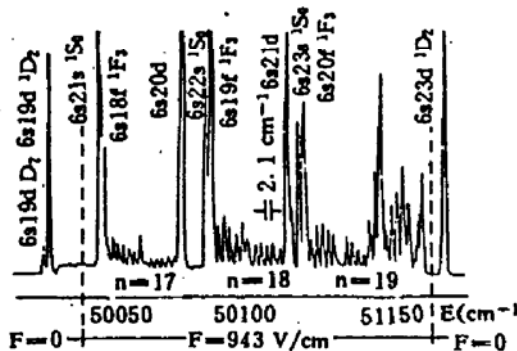


Fig. 1 The stark spectra of Yb atom ( $m = 0$ ,  $F = 943$  V/cm)

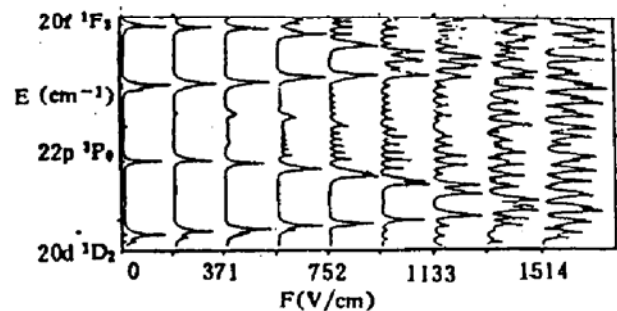


Fig. 2 Yb,  $m = 0$ , experimental Stark map

在图 2 中, 零场态  $^1S_0$ 、 $^1D_2$  和  $^3D_2$  以及零场禁戒的非简并态  $^1P_1$ 、 $^1F_3$  和  $^3P_0$  在零场中的能级位置均已用零场时符号标出. 在外场中  $^1P_1$ 、 $^1F_3$  和  $^3P_0$  态的出现是由于组态的斯塔克混合引起. 低  $l$  态  $^1S_0$ 、 $^1D_2$ 、 $^3D_2$ 、 $^1F_3$ 、 $^1P_1$  都具有不可忽略的量子亏损(见表 1). 文献[1]中对碱金属得出当量子亏损与最邻近整数之差  $\delta_l$  较大时产生较大的能级排斥, 反之亦然. 这种规律在 Yb 原子中也明显存在.

$^1S_0$  与  $^1F_3$  两态的  $\delta_l$  相差不多, 两谱线在弱场中基本重合, 但由于  $\delta_0 > \delta_3$ , 斯塔克簇对  $^1S_0$  的排斥大于对  $^1F_3$  的排斥. 随着电场的增大, 它们的位移量的差别增大, 最终导致明显的分裂. 在电场进一步增大时, 两态均渐由二阶斯塔克效应过渡到一阶效应, 成斯塔克扇形簇中

的子能级.

Table 1 Quantum defects and  $\delta_l$  of configuration

configuration	quantum defect	$\delta_l$
$6s21d\ ^1D_2$	2.706	0.294
$6s22s\ ^1S_0$	4.252	0.252
$6s21d\ ^3D_2$	2.748	0.252
$6s19f\ ^1F_3$	1.238	0.238
$6s22p\ ^1P_1$	3.906	0.094

文献[4]给出的 Ba 原子  $n = 12$  的斯塔克能级结构中表明:单态和三重态属于不同的斯塔克簇,相同  $l$  值的单态和三态属于在电场变化时始终不相交. 在本文的实验中零场  $21d\ ^1D_2$  的能量比  $21d\ ^3D_2$  大  $1.5\text{ cm}^{-1}$ . 两谱线是可分辨的. 在图 2 中看到  $21d$  态对应的谱线随电场的增大由双峰为单峰,直到  $F = 943\text{ V/cm}$  时又变为双峰. 作者认为:Yb 原子  $21d\ ^1D_2$  和  $^3D_2$  态之间相互作用相当小,在一定范围的场值内两态靠得很近,以致于在本文的实验分辨条件下,谱线看起来是单峰. 在  $F = 943\text{ V/cm}$  时,  $^3D_2$  峰比  $^1D_2$  峰更强,这说明它们之间的振子强度发生了转移. 由于  $21d\ ^1D_2$  和  $^3D_2$  态在  $n = 18$  的不完全斯塔克簇和  $23s\ ^1S_0$ 、 $19f\ ^1F_3$  能级之间,而受到两侧能级的排斥,因此始终未表现出线性斯塔克效应的特征,这一点与 Li、Na 原子  $m = 0$  的斯塔克图中  $S$  态的行为有些相似<sup>[1]</sup>.

为了分析  $^1P_1$  态在电场中的行为,把实验所得的图 2 与理论计算所得的图 3、图 4(a) 进行比较,可以认为强峰穿入斯塔克簇的实验现象是由  $^1P_1$  态从高能端接近斯塔克簇时与不完全斯塔克簇的最高子能级产生抗交叉,进而导致一系列的向低级级传递的抗交叉结构,且在每个抗交叉处,强的振子强度都被依次地转移到较低的能级上去. 这种抗交叉特征与 Ba 原子  $n = 17$  的  $^1P_1$  态和斯塔克簇之间的抗交叉特征十分相似<sup>[5]</sup>. Bolzinger 等人对 Ba 原子的研究清楚地表明:在外场中经过一系列的能级抗交叉,  $6s21p\ ^1P_1$  态的大的振子强度被逐次地转移到  $n = 17$  簇的内部能级上. Yb 原子的实验所得斯塔克图中,移动的强峰变宽,并且在其旁伴随出现一个凹陷形状,这种现象是抗交叉和振子强度转移同时存在造成的结果.  $22p\ ^1P_1$  态的  $\delta_l$  很小,所以它与斯塔克簇之间的相互作用很弱,导致它与斯塔克能级抗交叉处的间距非常小,很容易被误认为“交叉”.  $^1P_1$  态在与斯塔克簇相遇之前只有很小的二级位移,在抗交叉后成为扇形斯塔克簇边缘上一个新的子能级.

从图 2 中可见,当电场值  $F \geq 1133\text{ V/cm}$  以上时, Yb 原子的斯塔克能级结构更为复杂. 出现了许多双峰,还有少数三峰结构. 这些新的峰可能来源于以下因素:1) 在强场中有更多的三重态由于斯塔克混合而得到明显布居. 导致在单态的斯塔克簇能域中出现了三重态的斯塔克能级. 这与 Ba 原子  $n = 12$  斯塔克簇的情况类似<sup>[4]</sup>. 2) 精细结构分裂在强场中变得显著,分裂间距大的态被观察到.

#### 4 斯塔克能级结构的理论计算

Yb 原子的基态为  $4f^{14}6s^2\ ^1S_0$ , 在结构上类似于碱土金属原子. 若忽略内层电子的激发, Yb 原子应具有与碱土金属类似的光谱特征. 对 Yb 原子  $6snl$  里德堡(Rydberg)态,当  $n$  足够大时,

作为近似, 可以作为具有一个  $nl$  价电子的碱金属原子处理, 此时  $6s$  价电子与所有内层电子以及原子核一起构成等效原子实. 设沿  $Z$  方向上施加一个强度为  $F$  的均匀电场, 则哈密顿量为:

$$H = -\nabla^2/2 + V(r) + FZ \quad (1)$$

对里德堡原子,  $V(r)$  可用库仑近似, 它相对于第一电离限 ( $I = 50443.08 \text{ cm}^{-1}$ ) 的束缚能为:

$$W = -\frac{1}{2(n - \Delta_l)^2} \quad (2)$$

其中  $\Delta_l$  是量子亏损. 球坐标下的斯塔克相互作用矩阵元为:

$$\langle w, l, m | FZ | w', l', m' \rangle = \delta_{mm'} \delta_{l, l' \pm 1} F \langle l m | \cos \theta | l' m' \rangle \langle w, l | r | w', l' \rangle$$

其中角向矩阵元利用球谐函数的基本运算获得, 对于径向矩阵元采用数值积分法, 积分从原子外部进行, 当接近核内部时, 解开始发散, 此时令积分结束. 矩阵元的值确定后便得到了包含斯塔克效应的能量矩阵. 将该矩阵对角化从而获得相关的能量本征值, 亦即所求的斯塔克能级结构. 它显然是外电场的函数. 计算中所用的量子亏损值是根据已发表的 Yb 原子的能级数据<sup>[11,12]</sup>通过计算得到的. 对于  $l > 3$  的轨道, 由于趋于圆形, 故近似认为这些轨道的各态的量子亏损为零.

为了确保计算精度, 电场强度  $2 \text{ V/cm}$  为计算步长. 当两个相邻能级的量子亏损的小数部分很接近时, 它们之间的抗交叉很弱, 能级间距甚小. 对于这种特殊区域进行了精细的计算. 在使矩阵对角化的过程中, 非对角元素的值并不绝对等于零, 而让它们小于一个预先设置的小数  $\epsilon$ ,  $\epsilon$  的值决定了计算的精度, 本文取  $\epsilon = 0.05 \text{ cm}^{-1}$ , 此值远小于实验的不准确度.

图 3 是计算得到 Yb 原子  $m = 0$ ,  $n = 18$  附近的斯塔克图. 图 4(a) 显示的是  $22p^1P_1$  态与邻近斯塔克能级的抗交叉行为的精细计算结果. 图 4(b) 显示的是  $22s^1S_0$  和  $19f^1F_3$  态与其邻近能级之间的抗交叉行为的精细计算结果. 从图 3、图 4 与图 2 的比较中, 可以看出, 在本文的实验分辨条件下, 理论计算结果与相应的实验结果基本一致. 尤其是对  $22p^1P_1$  态的精细计算, 在实验结果的分析中起到重要的指导作用. 使受实验分辨率限制容易被误认为“交叉”和“穿入”的能级结构展现出其弱抗交叉的实际特征.

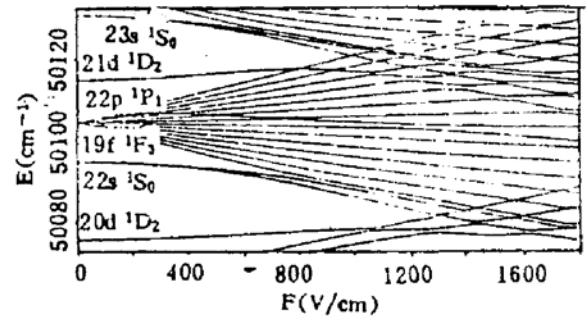


Fig. 3 Yb,  $m=0$ , calculated Stark map

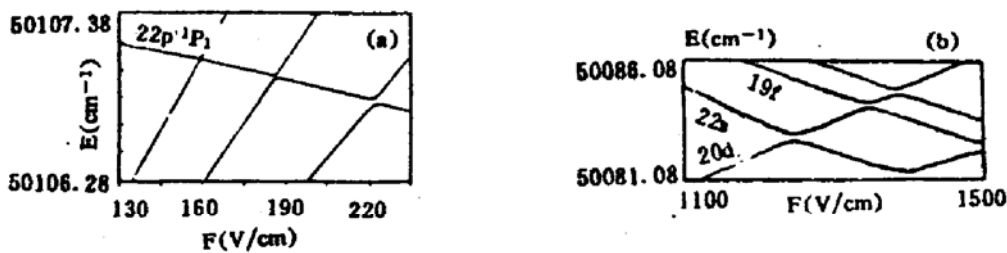


Fig. 4 Level anticrossing in ytterbium. (a) level anticrossing between  $1P_1$  state and Stark manifold (b) level anticrossing between  $22s$ ,  $19f$  and nearby levels

需要说明的是,本文的理论模型没有考虑三重态激发和精细结构的影响,所以还不能预测实验中所观察到的与这些因素有关的能级结构.

### 参 考 文 献

- [1] M. L. Zimmerman, M. G. Littman, M. M. Kash *et al.*, Stark structure of the Rydberg states of alkali-metal atoms. *Phys. Rev. (A)*, 1979, **20**(6): 2251~2271
- [2] R. C. Stoneman, T. F. Gallagher, Anticrossing spectroscopy of Rydberg atoms using blackbody radiation. *Phys. Rev. Lett.*, 1985, **55**(23): 2567~2570
- [3] P. Kulina, R. H. Rinkleff, Fourth-order Stark effect in the  $4s21d\ ^1D_2$  Ca Rydberg states. *J. Phys. (B): Atom & Mol. Phys.*, 1985, **18**(9): L245~250
- [4] M. L. Zimmerman, T. W. Ducas, M. G. Littman *et al.*, Stark structure of barium Rydberg states. *J. Phys. (B): At Mol. Phys.*, 1978, **11**(1): L11~14
- [5] T. Bolzinger, P. Breger, F. Roussel *et al.*, Efficient optical excitation of the highest energy level of the  $N = 17$  Stark manifold in barium. *J. Phys. (B): Atom. & Mol. Phys.*, 1989, **22**(13): 2081~2088
- [6] 吴璧如, 张森, 陆杰等, Sr( $sP_{1/2}nd$ )<sub>3</sub>自由离谱的测定. *物理学报*, 1986, **35**(7): 956~960
- [7] 张森, 邱济真, 胡素芬等 Sr 原子里德堡态的电场效应. *物理学报*, 1988, **37**(6): 983~988
- [8] D. A. Harmin, Analytical study of quasidiscrete Stark levels in Rydberg atoms. *Phys. Rev. (A)*, 1984, **30**(5): 2413~2428
- [9] K. Sakimoto, Multichannel quantum-defect theory of the Stark effect. *J. Phys. (B): Atom. & Mol. Phys.*, 1986, **19**(9): 3011~3025
- [10] R. Bluhm, V. A. Kostelecky, Atomic supersymmetry and Stark effect. *Phys. Rev. (A)*, 1993, **47**(2): 794~808
- [11] P. Camus, A. Debarre, C. Morillon, Highly excited levels of neutral ytterbium I. Two-photon and two-step spectroscopy of even spectra. *J. Phys. (B): Atom. & Mol. Phys.*, 1980, **13**(6): 1073~1087
- [12] M. Aymar, R. J. Champeau, C. Delsart *et al.*, Three-step laser spectroscopy and multichannel quantum defect analysis of odd-parity Rydberg states of neutral ytterbium. *J. Phys. (B): Atom. & Mol. Phys.*, 1984, **17**(18): 3645~3661

## Stark Spectra of Highly Excited Yb Atom

Wang Yunxan      Dai Changjian      Fang Dawei      Chu Xiaofeng  
Li Jing      Zhang Sen

(Department of Physics, Zhejiang University, Hangzhou 310027)

(Received 11 November 1993)

**Abstract** The Stark spectra of Yb atom with  $m = 0$  in the vicinity of  $n = 18$  were obtained by using two-step excitation of  $\pi\pi$  polarized lasers in the applied electric field from 0 V/cm to 1514 V/cm. The method based on diagonalization of the energy matrix with the Stark effect was applied to Yb atom. The theoretical Stark map agrees with experimental Stark map. It is observed that Stark manifold exhibits linear structure with the increase of the electric field in the low-field region. A large oscillator-strength transfer between  $^1P_1$  state and nearby Stark manifold occurs in the course of anticrossing. The dependence of level-structure on quantum effects is discussed.

**Key words** Stark effect, level-structure.