

# 激光诱导镁原子 $S - S$ 、 $S - D$ 禁戒跃迁\*

陈志坚 姚德成 李琼如 金树衡

(中国科学院研究生院, 物理教学部 北京 100039)

**摘 要** 报道在镁金属蒸气中利用两束激光三光子共振激发原子  $3snp\ ^1P$  高里德堡态时, 观察到随泵浦激光功率的增强, 出现  $3s4s\ ^1S_0 - 3sns\ ^1S_0$ 、 $3snd\ ^1D_2$  ( $n \approx 18 \sim 32$ ) 偶宇称态偶极禁戒跃迁增强, 以及  $3sns\ ^1S_0$  能级移动现象, 并解释为光泵过程引起的原子激发态碰撞效应。利用禁戒跃迁首次测定了  $Mg\ 3sns\ ^1S_0$  ( $n = 22 \sim 30$ ) 能级。

**关键词** 镁原子, 高里德堡态, 禁戒跃迁。

## 1 引 言

利用可调谐激光多光子激发, 研究原子高里德堡态, 是近几年原子光谱研究中一个比较活跃的领域。高里德堡原子具有束缚能低、能态密度高、电子轨道半径大等一系列与基态原子不同的特点, 因而对外界扰动十分敏感。对其扰动效应的研究, 可获得丰富的有关原子结构及相互作用的信息。蒸气环境中, 碱土族元素在直流外电场、碰撞扰动下, 导致基态和高里德堡态之间的电偶极禁戒跃迁增强已有不少报道<sup>[1~4]</sup>, 但关于泵浦光强对禁戒跃迁的影响尚未见报道。

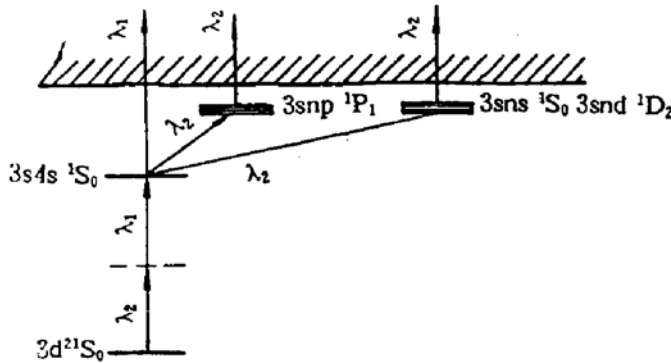


Fig. 1 The mechanism of two laser beams three-photon excited MgI high Rydberg states

本文利用两束脉冲激光分步激发  $Mg$  原子(参见图 1), 光束 I 调谐在  $3s^2\ ^1S_0 - 3s4s\ ^1S_0$  双光子共振波长, 光束 II 波长在  $3s4s\ ^1S_0 - 3snl$  之间扫描。观测到随着泵浦光束 I 功率的增强, 在第二步激发中, 不仅有  $3snp\ ^1P_1$  电偶极允许共振, 还出现了  $3sns\ ^1S_0$ 、 $3snd\ ^1D_2$  偶宇称态电偶极禁戒跃迁, 并观测到  $3s4s\ ^1S_0 - 3sns\ ^1S_0$  禁戒跃迁谱线随光束 I 功率的增强有一微小的红移。

\* 国家自然科学基金资助课题。

收稿日期: 1993年6月14日; 收到修改稿日期: 1994年6月7日

## 2 实验装置

图 2 为实验装置示意图。金属蒸气在十字型热管炉中产生, 炉长 40 cm, 内径 3cm, 温度调节范围  $450^{\circ}\text{C} \sim 700^{\circ}\text{C}$ , 样品纯度高于 99.95%。炉内充适量高纯  $\text{Ar}_2$  作为缓冲气体。炉中心悬一直径 1.5 mm 细钨杆作为电离探针, 探针与炉壁间置 1.5 V 偏压, 构成热二极管<sup>[5]</sup>。探针输出的脉冲信号经 Boxcar 平均后, 记录到 X-Y 记录仪上。激光系统由一台美国 Quanta-Ray 公司 DCR-2A(40)型 YAG 激光器同时泵浦两台染料激光器, 第一台由 YAG 三倍频泵浦, 输出波长固定在 Mg 原子  $3s^2 1S_0 - 3s4s^1 S_0$  双光子共振波长 459.74 nm(真空波长, 下同); 第二台由二倍频泵浦, 波长在  $553.0 \sim 572.0$  nm 之间扫描。激光线宽 0.005 nm, 脉冲宽度 10 ns, 重复频率 10 Hz。两脉冲光束同步, 在热管炉中心重合。光束方向与电离探针方向正交。一台法布里-珀罗标准具用来确定不同实验条件下, 共振电离信号波长的相对移动。

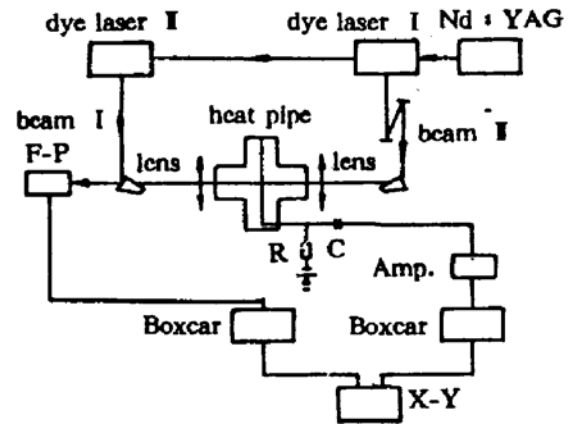


Fig. 2 The experimental set-up for measuring multi-photon ionization of Mg vapour

## 3 实验结果及讨论

### 3.1 激光诱导 $3s4s^1 S_0 - 3sns^1 S_0, 3snd^1 D_2$ 偶宇称态电偶极禁戒跃迁

图 3(a)为  $P_{\text{Mg}} = 10^2$  Pa,  $P_{\text{Ar}} = 10^3$  Pa 时, 光束 II 波长扫描获得的共振电离光谱。光束 I 脉冲能量  $E_1 = 16 \mu\text{J}$ , 未聚焦, 峰值功率约  $10^5$  W/cm<sup>2</sup>, 光束 II 能量  $E_2 = 0.6$  mJ, 经  $f = 25$  cm 透镜聚焦后, 焦点附近峰值功率约  $10^8$  W/cm<sup>2</sup>。图中只出现  $3snp^1 P_1$  奇宇称里德堡态的共振电离谱, 并迭加在一个较弱的电离信号背景上, 该背景是由光束 I  $3s^2 1S_0 - 3s4s^1 S_0$  共振产生的。

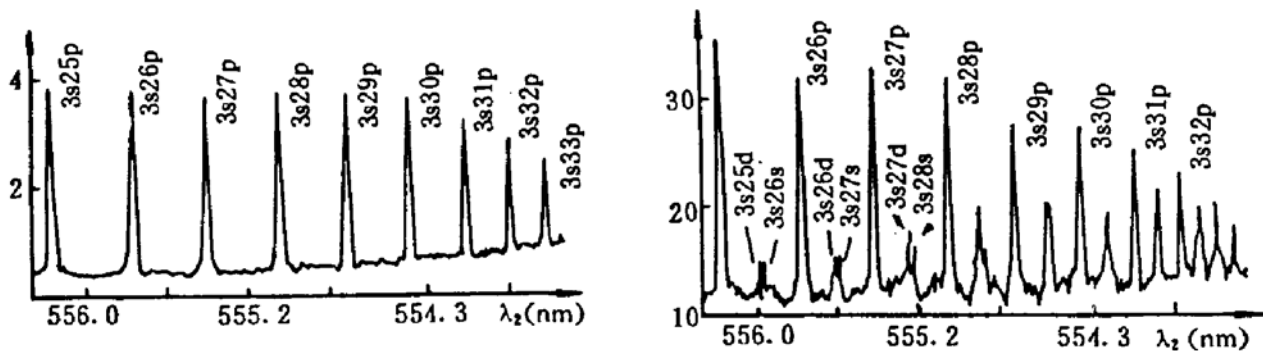


Fig. 3 Ionization spectrum of MgI at: (a)  $E_1 = 16 \mu\text{J}$  (b)  $E_1 = 50 \mu\text{J}$

在其他条件保持不变的情况下, 将光束 I 能量  $E_1$  从  $16 \mu\text{J}$  提高到  $50 \mu\text{J}$ , 共振电离谱如图 3(b)所示, 在每相邻的两个  $3snp^1 P_1$  共振峰之间, 出现了一个新的共振电离信号, 其强度随  $n$  增大而增大。当  $n$  从 24 增加到 32 时, 与相邻  $3snp^1 P_1$  共振电离信号强度之比  $K_n (= i_{nd}/i_{np})$  从 10% 增加到约 70%。在  $n = 25$  附近, 可以清楚地看到新的共振信号是由强度相当, 间隔很小的两个共振峰组成, 其间距随  $n$  增大而减小。利用  $3snp^1 P_1$  能级数据<sup>[6]</sup>, 对新的共振跃迁波长作绝对定标, 发现其与文献[7,8]双光子共振测量的  $3sns^1 S_0, 3snd^1 D_2$  能级符合得很好, 由此认定, 新出现的共振信号为  $3s4s^1 S_0 - 3sns^1 S_0, 3snd^1 D_2$  偶宇称态间的单光子偶极禁戒跃迁, 由于其中  $S$

—  $S$  跃迁还是电四极禁戒的,因而不能认为新的共振信号是由电四极跃迁引起的。

实验表明,尽管两束光强度  $E_1 \ll E_2$ ,禁戒跃迁的出现却基本不受  $E_1$  影响,而与  $E_2$  有非常强的依赖关系,如图 4 所示(取  $K_n = i_{nd}/i_{ns}$ ,  $n = 30$ ,  $P_{Mg} = 10^2$  Pa,  $P_{Ar} = 10^3$  Pa,  $E_1 = 0.6$  mJ),  $E_2 = 50$   $\mu$ J 时,  $K_n \approx 60\%$ ,随着  $E_2$  减弱,  $K_n$  急剧减小,当  $E_2 = 20$   $\mu$ J 时,禁戒跃迁基本消失。 $Mg$  蒸气压  $P_{Mg}$  对禁戒的出现也有影响,在光强一定条件下,观测到  $K_n$  随  $P_{Mg}$  的增大而增大。两个电离信号  $i_{ns}$  与  $i_{nd}$  变化规律是一致的。

### 3.2 $3s3s\ ^1S_0$ 能级随泵浦光强 $E_1$ 的移动

通过  $f = 25$  cm 透镜对光束 1 聚焦,将其在作用区的功率密度再提高约一个量级,用法布里-珀罗标准具仔细标定  $n = 30$  附近里德堡态共振波长时,实验发现,随着  $E_1$  的增大,不仅出现禁戒跃迁增强,而且出现  $3s4s\ ^1S_0 - 3s3s\ ^1S_0$  禁戒跃迁谱线的红移,如图 5 所示,在  $P_{Mg} = 130$  Pa,  $P_{Ar} = 10^3$  Pa,  $E_1 = 0.8$  mJ 条件下,当  $E_2$  从 10  $\mu$ J 增加到 50  $\mu$ J 时,  $3s31s\ ^1S_0$  的谱线向长波方向移动约  $0.5\text{ cm}^{-1}$ ,而此时的  $3snd\ ^1D_2$ 、 $3snp\ ^1P_1$  共振谱线均未观察到明显移动,这表明  $3s3s\ ^1S_0$  能级在  $E_1$  作用下发生移动。图 6 为  $3s31s\ ^1S_0$  能级相对于  $E_1 = 10\ \mu$ J 时位置的移动量  $\Delta$  随  $E_1$  的变化。由图可见,  $\Delta$  与  $E_1$  呈线性关系:  $\Delta \approx \alpha E_1 + 0.1\text{ cm}^{-1}$ ,其中  $\alpha = -(1.3 \pm 0.3) \times 10^{-2}\text{ cm}^{-1}/\mu\text{J}$ ,相当于约  $-0.25 \pm 0.06\text{ cm}^{-1}/\text{MW}$ 。上述能级移动现象随  $n$  的减小而很快消失。

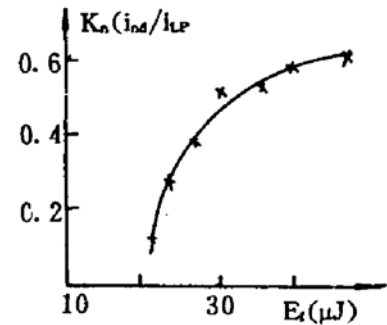


Fig. 4 The forbidden transition intensity  $K_n$  ( $n = 30$ ) as a function of  $E_2$

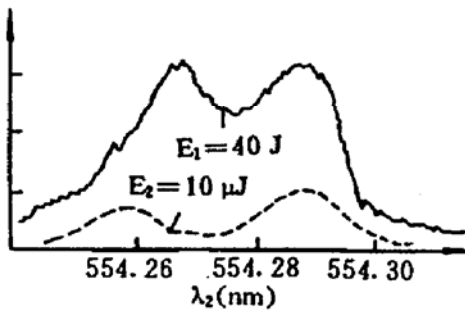


Fig. 5 Laser induce  $3s31s\ ^1S_0$  energy level line shift  
—:  $E_1 = 40\ \mu\text{J}$  --:  $E_1 = 10\ \mu\text{J}$

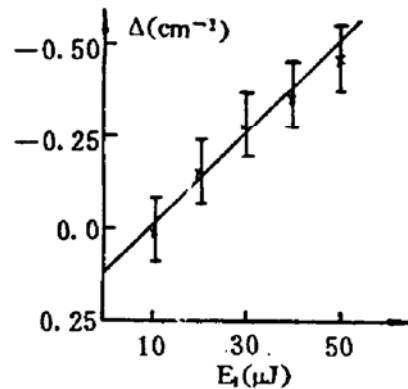


Fig. 6  $3s31s\ ^1S_0$  line shift  $\Delta$  as a function of  $E_1$

### 3.3 外电场及缓冲气体密度对禁戒跃迁的影响。

鉴于在 Nawaz<sup>[1]</sup>、徐雷等人<sup>[9]</sup>的报道中,均认为与惰性气体原子的碰撞或直流外电场是引起原子基态与高里德堡态间偶极禁戒跃迁的主要原因,这两个因素在本实验过程中均存在,因此有必要对其影响加以考虑。外电场主要来源于加在电离探针上的偏压,估计 1.5 V 偏压在双光束作用区产生的直流电场约为 5 V/cm,而张景园等人<sup>[4]</sup>在  $Mg$  蒸气中使用了约 500 V/cm 外电场,才在  $n = 20$  附近观察到明显的  $Mg$  原子  $3s^2 - 3snp\ ^1P_1$  双光子偶极禁戒跃迁。因此有理由认为本实验使用的偏压电场尚不至引起明显的  $Mg$  高里德堡态混合,为了证实这一点,改变探针上的偏压和探针与光作用区的距离,使作用区电场在 0.5~50 V/cm 之

间改变, 观察共振电离谱的变化, 结果表明偏压电场确实对禁戒跃迁的出现无明显影响。

在  $P_{Mg} = 15 \text{ Pa}$  的条件下, 让缓冲气体 Ar 压力在  $2 \times 10^2 \sim 5 \times 10^4 \text{ Pa}$  间大幅度变化, 也未观察到对禁戒的出现有明显影响。因此, 可以认为在本文实验条件下, 直流外电场和惰性气体碰撞都不是引起禁戒跃迁的主要原因。

**讨 论** 金属蒸气中, 由泵浦光引起的原子低激发态与高里德堡态间  $S-S, S-D$  电偶极禁戒跃迁及能级移动现象尚未见有报道。禁戒跃迁的出现, 表明高里德堡原子的对称性已被外界扰动破坏, 扰动来源与第一步激发光强  $E_1$  有关。由于  $E_1 \ll E_2$ , 禁戒跃迁出现在第二步激发中, 且对  $E_1$  不敏感,  $E_1$  光强的扰动显然不能解释为光场直接与原子的强作用过程。考虑到热管炉环境中存在复杂的碰撞及能量转移过程, 作者认为  $E_1$  是通过第一步光泵激发引起的原子激发态碰撞过程间接起作用的。

热管炉中, 热平衡状态下的 Mg 蒸气原子可以认为全部布居在基态  $3s^2S_0$  上 ( $550 \text{ }^\circ\text{C}$  时, 激发态与基态布居之比约  $10^{-12}$ ), 由光束 I 引起  $3s^2S_0 - 3s4s^1S_0$  双光子共振激发后, 布居变化主要为: 光泵形成的  $3s4s^1S_0$  能级上布居  $n^*$ , 多光子共振或碰撞电离产生  $Mg^+$  布居  $n^+$ , 以及基态布居从  $n_0$  减少到  $n'_0$ 。由于使用等频双光子激发,  $n^*, n^+ \ll n_0, n'_0 \approx n_0$ 。高里德堡态的碰撞扰动主要来源于  $Mg^+, Mg^*, Mg$  和 Ar。虽然其中基态 Mg、Ar 原子的碰撞可以导致高里德堡原子对称性的破坏<sup>[3]</sup>, 但其密度在实验过程中基本不受  $E_1$  变化影响, 因此  $E_1$  光泵引起的碰撞效应主要来源于  $Mg^*$  和  $Mg^+$ 。

有关  $Mg^*$  和  $Mg^+$  碰撞诱导禁戒跃迁的机制目前尚不清楚。Mg 金属蒸气中, 已经证明可碰撞形成  $MgMg^*$  一类低激发态稳定的二聚体准分子<sup>[10]</sup>, 有迹象表明, 在高激发态也可形成类似的准分子结构<sup>[3]</sup>, 因此由第一步多光子共振电离形成的  $Mg^+$ , 可能在库仑场作用下, 与  $Mg^*$  形成  $MgMg^+$  准分子, 由于高里德堡原子具有非常低的束缚能, 在  $MgMg^+$  准分子中, 原子的对称性很容易受库仑场作用破坏, 导致原子意义上禁戒跃迁的出现及能级的移动。

#### 4 $3sns^1S_0$ ( $n = 19 \sim 30$ ) 能级标定

Table 1  $3sns^1S_0$  ( $n = 19 - 30$ ) energy levels

$n$	$E_n(A) \text{ cm}^{-1}$	$E_n(B) \text{ cm}^{-1}$	$n^*$
19	61311.5	61311.3	17.466
20	61349.0	61349.1	18.463
21	61381.4	61381.4	19.465
22	61408.9	61409.0	20.465
23		61432.8	21.463
24		61453.8	22.467
25		61471.9	23.475
26		61487.6	24.460
27		61501.8	25.465
28		61514.3	26.465
29		61525.6	27.470
30		61535.7	28.477

原子偶宇称里德堡能级一般可通过双光子共振测量。由于 Mg 原子  $3snd^1D_2$  态受到  $3p^2D_2$  态的强烈扰动, 其相互作用强度大约是  $3sns^1S_0$  与  $3p^2S_0$  态作用强度的 6 倍<sup>[6]</sup>, 因此在双光子激发高里德堡态时,  $3snd^1D_2$  跃迁强度远大于相邻的  $3s(n+1)s^1S_0$  跃迁, 由于这两个能级靠得很近, 以致后者的共振信号往往受前者掩盖而变得难以分辨<sup>[3]</sup>, 文献报道中<sup>[8]</sup>  $3sns^1S_0$  能级的测量最高只到了  $n = 22$ 。在禁戒跃迁中, 由于两者强度相当, 能级的分辨获得很大改善。在光束 I 不聚焦,  $E_1 = 50 \mu\text{J}$ ,  $P_{Mg} = 10^2 \text{ Pa}$ ,  $P_{Ar} = 10^3$  条件下,  $3s4s^1S_0$  能级在  $n = 30$  附近仍可分

辨, 并且能级移动不明显。利用文献[6]给出的  $3snp^1P_1$  能级数据作绝对定标, 本文给出了  $3sns^1S_0$  ( $n = 19 \sim 30$ ) 的能级数据。见表 1, 其中  $E_n(A)$  为 Dai 等人<sup>[8]</sup> 双光子共振测量结果,  $E_n(B)$  为本文测量结果, 二者在  $n = 19 \sim 22$  间相符,  $n > 22$  以后为本文首次测量获得。

## 参 考 文 献

- [1] M. Nawaz, W. A. Farooq, J. P. Connerade, On anomalies in the high Rydberg spectrum of Sr I. *J. Phys. B*, 1992, **25**(6): 1147-1153
- [2] J. F. Kelly, Observations of induced transitions in the UV absorption spectrum of Ba. *Phys. Rev. A*, 1984, **29**(1): 144-151
- [3] Jing-yuan Zhang, K. T. Lu, Collision-induced two-photon forbidden  $3s^21S - 3snp\ ^1P$  transitions and collisional enhancement of  $3s^21S - 3sns\ ^1S$  transitions in Mg I. *J. Phys. B*, 1987, **20**(19): 5065-5877
- [4] 张景园, 金佩, 周海天, 直流外电场诱导的 MgI 高里德堡态的混合. *光学学报*, 1988, **8**(1): 13-18
- [5] 何懋麒, 李浦生, 王国益等, 用于探测 Rydberg 态原子的热二极管-实验观察和理论分析. *光学学报*, 1986, **6**(11): 997-1004
- [6] W. C. Martin, R. Zalubas, Energy Levels of Magnesium, Mg I through Mg XII. *J. Phys. Chem.*, 1980, **9**(1): 1-12
- [7] R. Beigang, D. Schmidt, Two-photon spectroscopy of  $3snd\ ^1D_2$  Rydberg states of Magnesium I. *Phys. Letts.*, 1981, **87A**(1/2): 21-23
- [8] C. J. Dai, G. W. Schinn, T. F. Gallagher, Mg  $3pns$  and  $3pnd(J=1)$  autoionizing series. *Phys. Rev. A*, 1991, **43**(5): 2316-2327
- [9] 徐雷, 赵有源, 王国益等, Al 原子高激发态  $nf\ ^2F$  光谱与 Stark 效应观察. *物理学报*, 1989, **38**(10): 1658-1664
- [10] W. J. Balfour, A. E. Douglas, Absorption spectrum of the  $Mg_2$  molecule. *Canad. J. Phys.*, 1970, **48**: 901-914

Laser Induced MgI  $S - S$ ,  $S - D$  Forbidden transition

Chen Zhijian      Yao Decheng      Li Qongru      Jing Shuheng

(Department of Physics, Graduate School, Academia Sinica, Beijing 100039)

(Received 14 June 1993; revised 7 June 1994)

**Abstract** Via two laser beams three-photon excited MgI high Rydberg states, the  $3s4s\ ^1S_0 - 3sns\ ^1S_0$ ,  $3snd\ ^1D_2$  forbidden transition and  $3sns\ ^1S_0$  line shift induced by laser intensity have been observed in Mg vapour. The results were interpreted as a collision effect of excited state atoms. Mg I  $3sns\ ^1S_0(n = 22 \sim 30)$  energy levels have been measured by forbidden transition.

**Key words** magnesium, high Rydberg State, forbidden, transition.