

Sr 原子高激发态光谱的研究*

戴长建 赵学安

(浙江大学物理系, 杭州 310027)

摘 要 采用三台染料激光器分步激发 Sr 原子, 利用自电离过程产生离子或电子。当固定第一和第三步激发光之波长而扫描第二步激发光之波长时, 便可获得 Sr 原子 $5sns\ S_0$ 和 $5snd\ D_{3/2}^1$ 系列的光谱。用多通道量子数亏损理论分析和描述实验光谱, 不仅成功地证实和预测了已测和未测实验能级及其波函数, 而且能够给出这些高激发态的自发辐射寿命。本文的实验和理论结果符合得很好, 而且与前人的研究相吻合。

关键词 高激发态, 能级位置, 辐射寿命。

1 引 言

自电离过程具有许多直接光电离所无法比拟的优点而受到广泛重视。目前它已被用于激光分离同位素^[1]、开发新型激光源^[2]。最近, 它又被证实可用于无反转光放大^[3]等用途。本文首次报道采用自电离过程探测 Sr 原子高激发态的研究结果。

多通道量子数亏损理论(MQDT)已被证明为一种强有力的工具。它不仅有效地描述原子束缚态, 而且可以揭示诸如组态相互作用等物理现象^[4]。近年来, 它又被用于描述更敏感的物理特性, 如光电子角分布等^[5]。

本文拟采用多通道量子数亏损理论分析所获得的实验光谱, 揭示所涉及的物理现象, 预测未测的能级位置, 计算原子波函数并推测各原子态的辐射寿命。实验和理论的密切配合较全面地描述了 Sr 原子高激发态的光谱特征。

2 实 验

用一台 Nd·YAG 脉冲激光同时泵浦三台染料激光器, 分别用于如下的三步激发过程: $5s^2 \rightarrow 5s5p$, $5s5p \rightarrow 5sns (5snd)$ 和 $5sns (5snd) \rightarrow 5pns (5pnd)$ 。其中第一步激发光之波长固定, 第二步激发光之波长可连续调谐以便使 Sr 原子在不同的里德堡(Rydberg)态上布居。由于 Sr 原子的 $5sns (5snd)$ 系列和 $5pns (5pnd)$ 自电离系列的量子数亏损分别接近于常数^[6], 所以, 第三步激发光之波长也可固定在共振跃迁 $5s \rightarrow 5p_{\text{激}}$ 附近。图 1 给出相关能级示意图。

当扫描第二步激发光之波长时便可获得关于 $5sns$ 和 $(5snd)$ 的光谱。扫描光的线宽由一个

* 国家自然科学基金、国家教委回国留学人员专项科研基金以及浙江大学科研基金资助的项目。

收稿日期: 1995 年 9 月 22 日; 收到修改稿日期: 1996 年 3 月 25 日

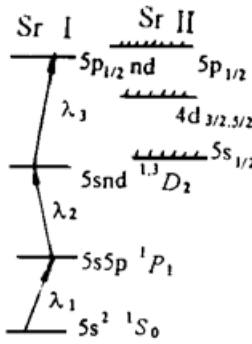


Fig. 1 Energy Levels for Excitation of Sr

标准具检测, 以确保在测量较高能级时具有足够的光谱分辨率。显然, 线宽与激光腔的特性和调整有关, 检测结果表明, 激光线宽优于 0.4 cm^{-1} , 原子束与激光束正交以减小多普勒(Doppler)展宽效应。由于本文采用自电离过程产生离子和电子, 三步激发均为近共振跃迁, 因而无需很强的激光能量, 克服了直接光电离的缺点。另外, 对于不同主量子数 n 的各里德堡态, 第三束光的波长可近乎固定在同一位置, 而调谐第二束光的波长, 因而可探测很低的里德堡系列。本实验所探测的最低态为 $5s7s \text{ } S_0$ 和 $5s6d \text{ } D_2$ 态, 这又克服了通常电场电离探测里德堡态的缺陷。

采用通道板(Channeltron)粒子探测器收集电离产物, 由放大器将信号输入给 Boxcar 进行平均积分后再通过一个 A/D 模数转换器送入计算机中贮存。能级测量误差主要源于光谱的标定过程, 由于驱动激光器扫描的步进电机转动的非线性使绝对定标和相对定标时会产生一定的离散度, 经估算实验误差约为 0.2 cm^{-1} 。图 2 为实验装置图。

由于 Sr 原子为一较重的碱土金属原子, 轨道与自旋相互作用使得它不再是纯 LS 耦合, 故在高激发态跃迁中自旋 S 不再是好量子数。这将导致单重态向三重态的允许跃迁, 并为实验所证实。图 3 是众多实验光谱的一个例子。本实验主要测量了二个里德堡系列, 即 $5sns \text{ } S_0$ 系列($n = 7 \sim 20$) 和 $5snd \text{ } D_2$ 系列($n = 6 \sim 50$)。由于激光线宽和仪器线宽的限制, 本实验不能有效地分辨 $n > 20$ 的 $5sns$ 态和 $n > 50$ 的 $5snd$ 态。实验还发现由于组态相互作用的影响使得某些态很弱或者与另外的态相重合而难以识别和确定。

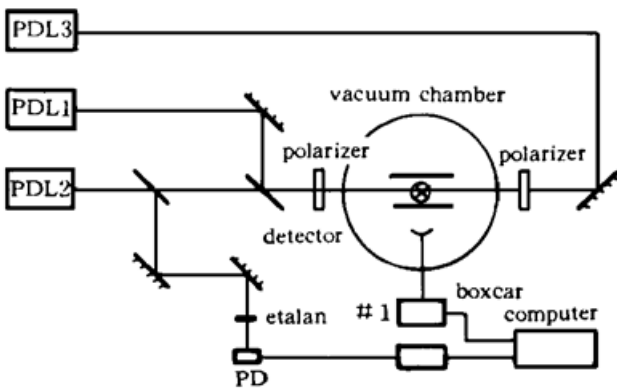


Fig. 2 Diagram of experimental setup

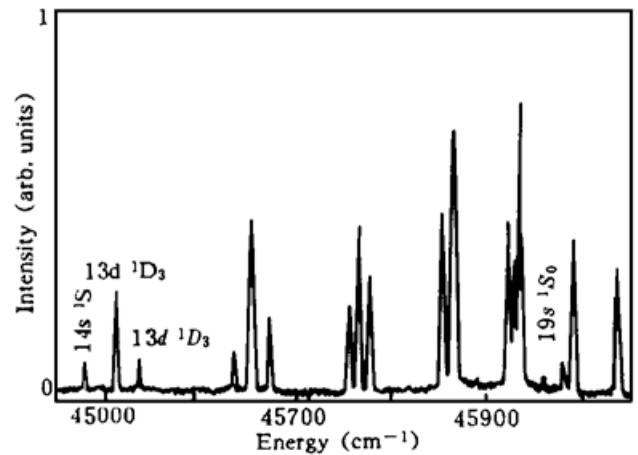


Fig. 3 Spectrum of Sr 5sns and 5snd series

需要指出的是, 本实验用自电离方式探测高激发态原子, 所测数据与早期的双光子方法的测量结果相一致^[7]。早期用连续波激光器曾测量了本实验所不能分辨的更高能级^[8]。本文以本实验的数据为基础, 建立了多通道量子数亏损理论模型, 获得了多通道量子数亏损理论参数, 然后用它们预测了本实验未测的能级并与文献[8]取得相当一致。

3 理 论

多通道量子数亏损理论的主要优点在于它能将收敛于某一电离限的无数个束缚态和连续态进行统一处理。利用通道的概念和少数物理参数使光谱参数化, 并进一步计算未知的态的各种光谱可观测量。多通道量子数亏损理论参数即可通过对实验光谱的拟合获得^[9], 也可由

已知的 K 矩阵变换和对角化推算出来^[10]。这里不再详述多通道量子数亏损理论的过程, 而只简单说明其方法。

根据所关心的里德堡系列, 可选择适当的理论模型, 如合理的通道数目等。本文用两通道 ($5sns$ 和 $5pnp$) 模型描述 $5sns$ 系列, 而用三通道 ($5snd$, $4dns$ 和 $4dnd$) 模型表征和分析 $5snd$ D_2 系列的特性。显然, 一个里德堡态的能级位置对应于下述二个方程的一个公共解, 即:

$$E = I_i - R/v_i^2 \quad (1)$$

和

$$\det \{ U_{i\alpha} \sin [\pi(v_i + \mu_\alpha)] \} = 0 \quad (2)$$

式中 I_i 为 Sr 原子 $5s^+$ 和 $5p^+$ 电离限, v_i 为相对于这两个电离限的某一能级的有效量子数, μ_α 为每一 α 通道的量子数亏损。下标 i 和 α 分别标识碰撞和本征通道, 而矩阵 U 为联系两种通道的变换矩阵。在本文中, 多通道量子数亏损理论参数 μ_α 和 U 均由实验光谱的参数化拟合确定。能级位置和对应的原子波函数均可由多通道量子数亏损理论参数计算或预测^[11]。由于处于高激发态的原子波函数可由已知的碰撞通道的波函数的线性组合而得, 故线性组合系数, 亦称混合系数, A_i 的确定便成为问题的关键, 即

$$A_i^{(n)} = (-1)^{(l_i + 1)} v_i^{\sum \mu_\alpha} \sum_\alpha U_{i\alpha} \cos [\pi(v_i + \mu_\alpha)] B_\alpha^{(n)} / N_n, \quad (3)$$

式中 N_n 为归一化系数, 而 B_α 可由方程(2)的代数余子式确定, 即

$$B_\alpha = \text{cof}(i, \alpha) / [\sum_\alpha \text{cof}^2(i, \alpha)]^{\frac{1}{2}}, \quad (4)$$

一旦确定了波函数, 原子的总辐射速率 Γ_n 便可由下式表征^[12]

$$\Gamma_n = \sum_{i,j} A_i^{(n)} A_j^{(n)} \Gamma_{ij}^{(n)}, \quad (5)$$

其中

$$\Gamma_{ij}^{(n)} = [v_i^{(n)} v_j^{(n)}]^k \Gamma_{ij}, \quad (6)$$

这里假设原子的寿命对于能量的依赖性独立于它对通道的依赖性。方程(6)中引入了未知参量 k 和 Γ_{ij} 。它们可由对实验寿命值的拟合而获得。于是第 n 个激发态的辐射寿命由方程(5)确定,

$$\tau_n = 1/\Gamma_n. \quad (7)$$

在具备了上述理论工具之后, 则可能由有限的光谱测量数据确定出多通道量子数亏损理论参数, 预测更多的实验所不能或不易测量物理量, 确定各态的波函数, 并进一步计算各态的辐射寿命等可观测量, 这可通过拟合寿命实验值, 确定参数 k 和 Γ_{ij} 的值, 进而算出理论值。

4 结果和讨论

为了获得多通道量子数亏损理论参数, 对实验所获得的能级进行了拟合。拟合结果可用相应的 Lu-Fano 图予以说明^[13]。图 4 给出了 Sr $5sns$ 系列的 Lu-Fano 图, 实线和虚线分别对应于(1)式和(2)式。两种曲线的每一个交点对应于一个能级。图中的圆点为本实验的测量结果, 可见两者吻合得很好。

由最佳拟合结果获得三个多通道量子数亏损理论参数, 即 $\mu_1 = 0.291$, $\mu_2 = 0.145$ 和 $\beta = 0.359$, 其中 β 确定 U 矩阵, 因为

$$U = \begin{bmatrix} \cos \beta & \sin \beta \\ -\sin \beta & \cos \beta \end{bmatrix}. \tag{8}$$

另一方面, Sr 5snd 系列的描述较 5sns 系列略为复杂, 主要因为所涉及的通道数较多。由于实验发现, 三重态的混合具有高度的局域性, 因而对于大多数区域, 可忽略这种混合而近似将 5snd D₂ 系列视为孤立的系列, 此时它可用一个三通道模型近似, 并由最佳拟合给出对应的多通道量子数亏损理论参数, 即

$$U = \begin{bmatrix} 0.905 & 0.103 & -0.414 \\ -0.106 & 0.994 & 0.015 \\ 0.413 & 0.030 & 0.910 \end{bmatrix} \tag{9}$$

和

$$\mu_1 = 0.777, \mu_2 = 0.332 \text{ 和 } \mu_3 = 0.289. \tag{10}$$

对应的 Lu-Fano 图如图 5 所示。图中所用的符号与图 4 类似。所不同的是图 5 虚线有三个分支分别代表一个通道。实验能级数据仍用圆点表征。显然, 理论与实验相一致。

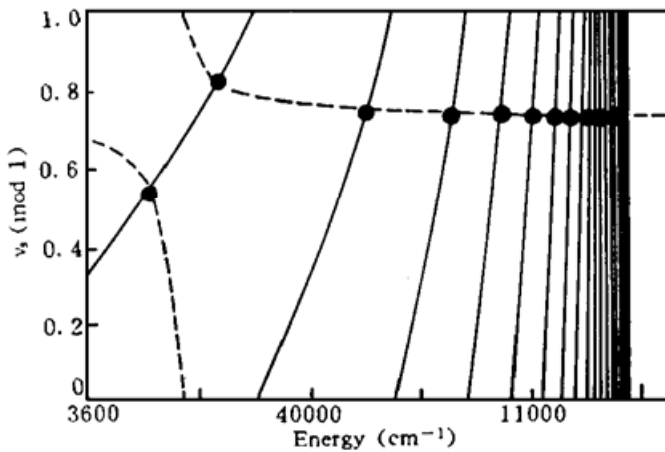


Fig. 4 Lu-Fano plot of Sr 5sns series

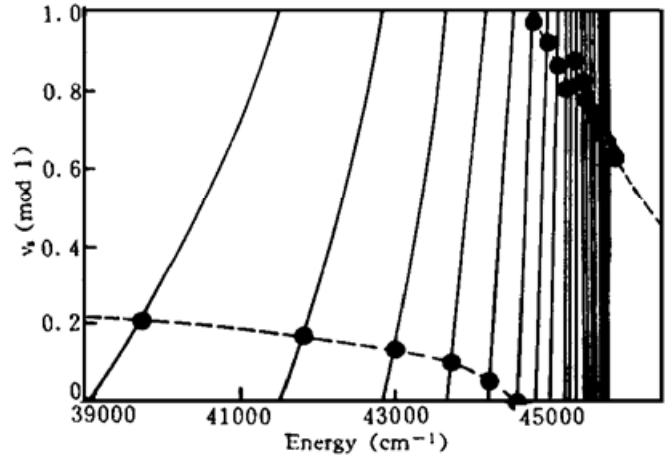


Fig. 5 Lu-Fano plot of Sr 5snd series

为检验实验数据的准确性和所选多通道量子数亏损理论模型的正确性, 利用所获得多通道量子数亏损理论参数, 对 5sns S₀ 和 5snd D₂ 系列的能级进一步作了计算。对 5sns 能级, 计算了从 n = 6 到 n = 80 的所有能级。对 n < 20 能级, 实验和理论相一致。对于 n > 20 的各能级与文献[8]进行了比较。对所测的能级, 本理论给出很好的预测结果。另一方面, 对于 5snd 系列, 本工作计算了从 n = 6 到 n = 85 的所有能级, 对于 n < 50 的各态理论与实验相一致, 而对于更高的能级与文献[8]相当吻合, 另外还给出了一部分未测能级的位置。

在对于 Sr 5snd 系列的分析中忽略了三重态通道的影响, 而实验中此种影响已被观察到。因此, 可以预期在那些单重态与三重态混合严重的区域, 实验与理论必然存在偏差。比较表明, 此偏差的最大值发生在主量子数为 n = 15 附近。这说明在 n = 15 附近组态相互作用最剧烈。同时, 研究还表明, 这种相互作用具有明显的局域性。在 n > 25 以上的能域, 5snd D₂ 可以看为一个孤立的里德堡系列。为了研究通道混合效应和各能级的辐射寿命, 可进一步计算相应能级的波函数。由计算表明, 对于 5sns 系列, 最大的组态混合发生在 5p² 附近。对于 5p² 态, 属 5pnp 和 5sns 的成份分别为 66%、34%, 而对于 5s7s 这个态, 有 65% 的成份属 5sns, 但 5s8s 态则有 97% 成份属 5sns 系列。可见, 组态相互作用的局域性是很明显的。对于 5snd 系列, 也观察到了类似的现象。

关于寿命的计算,除了利用多通道量子数亏损理论波函数之外,还需要一些相关的寿命的实验值。对于 Sr 原子的 $5sns$ 系列,寿命测量值取自文献[14],而对于 Sr $5snd D_2$ 系列,寿命测量值由文献[15]给出。结果分别列于表 1 和表 2。对于 Sr $5sns$ 系列,实验仅有 $n < 12$ 的数据,本文计算了直到 $n = 40$ 的寿命,其中 $n \leq 15$ 以下的结果列于表 1,便于与实验寿命值的比较。表 1 中的计算值是根据(5~7)式拟合实验值而得。

Table 1.

n	calcu. value (ns)	theory value (ns)
7	23.19	18.4 (1.1)
8	69.58	70.9 (5.4)
9	122.70	119 (5.1)
10	302.78	303 (26)
11	377.26	376 (31)
12	460.51	
13	549.41	
14	644.37	
15	745.05	

由表 1 可见, $5s7s$ 态的寿命锐减。这主要是因为该态附近存在一个 $5pnp$ 系列的最低态 $5p^2$, 由于寿命随主量子数 n 的减小而锐减, 因此 $5s7s$ 态寿命的锐减可归因于该态与 $5p^2$ 态的混合。另外, 理论与实验在实验误差内相吻合。

对于 Sr $5snd D_2$ 系列, 情况有些不同。实验来自两个不同的研究结果, 即 $n = 6 \sim 9^{[14]}$ 和 $n = 13 \sim 22^{[15]}$ 。本工作计算了 $n \leq 25$ 的所有态的辐射寿命。具体结果如表 2 所列。括号内的数值为实验误差估算值。

Table 2.

n	calcu. value (ns)	theory value (ns)	n	calcu. value (ns)	theory value (ns)
6	47.0	42.6 (2.2)	16	380.7	365 (15)
7	131.5	114.5 (4)	17	503.6	517 (16)
8	162.7	182 (16)	18	626.3	640 (16)
9	387.4	413 (46)	19	771.2	738 (37)
10	442.0		20	904.2	866 (40)
11	440.6		21	1008.7	1023 (51)
12	438.6		22	1153.3	1190 (60)
13	429.0	410 (20)	23	1378.2	
14	404.2	408 (12)	24	1750.4	
15	336.3	340 (10)	25	1940.3	

由表 2 知, 在实验误差范围内实验与理论相一致。特别对于 $n = 15$ 态, 两者均表明, 其寿命比相邻的态有明显减小。这主要是因为在该态附近存在着强烈的组态相互作用, 这与前述的能级分析结果相一致。

参 考 文 献

- [1] J. A. Paisner, Laser isotope separation. *Proc. SPIE*, 1993, **1859**: 14~ 23
 [2] J. Bokor, P. R. Freeman, W. E. Cooke, Autoionization-pumped laser. *Phys. Rev. Lett.*, 1982, **48**

- (2): 1242~ 1245
- [3] S. E. Harris, Lasers without inversion: interference of lifetime-broadened resonances. *Phys. Rev. Lett.*, 1989, **62**(9): 1033~ 1035
- [4] C. J. Dai, Spectroscopic properties of Mg $3pns$ autoionizing states. *Phys. Rev. (A)*, 1995, **51**(4): 2951~ 2956
- [5] M. D. Lindsay, C. J. Dai, L. T. Cai *et al.*, Angular distribution of ejected electrons from autoionizing $3pns$ states of Mg. *Phys. Rev. (A)*, 1992, **45**(1): 231~ 241
- [6] E. Y. Xu, Y. Zhu, O. C. Mullins *et al.*, Sr $5pns$ and $5pns J = 1$ autoionizing states. *Phys. Rev. (A)*, 1986, **33**(3): 2401~ 2409
- [7] P. Esherick, Bound, even parity $J = 0$ and 2 spectra of Sr. *Phys. Rev. (A)*, 1977, **15**(5): 1920~ 1936
- [8] R. Beigang, K. Lucke, A. Timmermann *et al.*, Energy levels of Sr $5sns$ and $5snd$ Rydberg series. *Opt. Comm.*, 1982, **42**(1): 19~ 23
- [9] C. J. Dai, S. M. Jaffe, T. F. Gallagher, Ba $5dnd_j J = 4$ states and their interaction with the $5dnd J = 4$ continuum. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1989, **6**(8): 1486~ 1491
- [10] C. J. Dai, G. W. Schinn, T. F. Gallagher, Mg $3pnd (J = 3)$ autoionization spectra using isolated-core excitation. *Phys. Rev. (A)*, 1990, **42**(1): 223~ 235
- [11] G. W. Schinn, C. J. Dai, T. F. Gallagher, Mg $3pns$ and $3pnd (J = 1)$ autoionizing series. *Phys. Rev. (A)*, 1991, **43**(5): 2316~ 2317
- [12] X. W. Liu, Z. W. Wang, Multichannel quantum defect theory of lifetimes for Yb $6snd D_{3/2}^3$ Rydberg sequences. *Phys. Rev. (A)*, 1989, **40**(4): 1838~ 1843
- [13] K. T. Lu, U. Fano, Graphical analysis of perturbed Rydberg series. *Phys. Rev. (A)*, 1970, **2**(1): 81~ 88
- [14] W. Gornik, Lifetime measurements of highly excited levels of Sr. *Z. Physik (A)*, 1977, **283**(1): 231~ 234
- [15] P. Grafstrom, Z. K. Jiang, G. Jonsson *et al.*, Natural radiative lifetimes in the interacting $5snd$ sequence in Sr. *Phys. Rev. (A)*, 1983, **27**(2): 947~ 949

Study of Highly-Excited States of Atomic Strontium

Dai Changjian Zhao Xuean

(Department of Physics, Zhejiang University, Hangzhou 310027)

(Received 22 September 1995; revised 25 March 1996)

Abstract Three dye lasers are used to excited Sr atoms to obtain ions and electrons through autoionization process. The wave length of the second laser is scanned when those of the first and third lasers are fixed, through which spectra of Sr $5sns S_0$ and $5snd D_{3/2}^3$ series are measured. Experimental spectra are described and analyzed by multichannel quantum defect theory, which verifies measured data and predicts unmeasured data with their energies and wave-functions. The study also provides radiative lifetimes of highly-excited states. Agreement between the theory and experiment is achieved. This work also agrees well with previons studies.

Key words highly-excited state, level of energy, life of radiation.