

Na 原子高里德堡态的辐射寿命*

谢卫军** 方达渭*** 舒晓武 徐云飞 张 森

(浙江大学物理系, 杭州 310027)

摘 要 用可调谐激光两步激发 Na 原子高激发里德堡态布居, 在光激发后施加脉冲电场测定激发态的场电离阈, 利用阈值电场和延迟场电离方法测定了 $ns(n = 20 \sim 24)$ 和 $nd(n = 19 \sim 23)$ 态的寿命值, 并与计算值进行了比较。对影响寿命的因素作了讨论。

关键词 里德堡态, 寿命, 场电离。

近年来人们对碱金属和碱土金属原子里德堡态的寿命已作了较多的理论计算^[1]和实验测定^[2,3]。其中多数实验工作是对较低 ($n < 20$) 的激发态用测定荧光衰减方法^[4]得出辐射寿命值。由于里德堡态原子寿命随 n^3 增加, 高里德堡态的自发辐射荧光很弱, 因此一般不能用荧光方法测定高里德堡态原子寿命。为了测定原子高激发态寿命, 作者用延迟脉冲场电离法直接测定原子高激发态布居数随时间的衰减, 与理论计算及部分已有的实验值基本一致。

本文报道用延迟脉冲场电离方法对 Na 原子 $ns(n = 20 \sim 24)$ 及 $nd(n = 19 \sim 23)$ 各里德堡态寿命的实验测量, 并用数值积分计算相应态的寿命值, 理论计算与实验结果基本符合。

1 实验方法与结果

在外电场中, 类氢原子里德堡态的经典场电离阈 $F_0 = E_{ep}^2/4$, E_{ep} 为电子势能曲线鞍点处的能量值。不考虑场电离过程的斯塔克位移, 以零场里德堡能量 $E = -1/2(n^*)^2$ 近似替代 E_{ep} , 可把 F_0 表示为 $F_0 = 1/16(n^*)^4$, n^* 为有效量子数。实验中将原子激发到待测定能态后, 施加略大于该态经典电离阈的脉冲电场, 使被测能态及其以上各能态的里德堡原子全部离化。改变原子的光激发与场电离之间的延迟时间, 测得的电离讯号幅值随延迟时间的衰减正比于被测能态及以上各能态上原子布居数随时间的衰减, 由衰减曲线即可求得能态的辐射寿命。

实验装置与文献[5]中类似。脉冲电场由相距 0.6 cm 的平行板上施加的脉冲电压产生。装有金属 Na 的原子炉加热到 350°C, 作用区的原子束密度小于 10^9 cm^{-3} , 原子间的碰撞可以忽略。用一台染料激光器使 Na 原子由基态 $3s \ ^2S_{1/2}$ 共振激发到 $3p \ ^2P_{3/2}$ 态。第二台染料激光器

* 国家自然科学基金资助课题。

** 江西九江师专物理系, 九江 332000

*** 中国计量学院基础部, 杭州 310034

收稿日期:1995年4月24日; 收到修改稿日期:1995年7月7日

使钠原子从 $3p$ 共振态激发到各里德堡 $ns(n = 20 \sim 24)$ 和 $nd(n = 19 \sim 23)$ 态。在光脉冲过后约 $0.1 \mu s$ ，由 Volonex Model 360 高压脉冲电源产生一脉宽 $10 \mu s$ 、幅度为 $0.3 \sim 2 kV$ 可调、上升时间为 $25 ns$ 的矩形高压脉冲，加到作用区上下平行极板上，用以场电离里德堡原子。脉冲电压的 $1000 : 1$ 取样信号和电子倍增管放大的电离信号经 Boxcar 积分平均后，分别输入 X-Y 记录仪的 x 和 y 轴。改变脉冲电压幅值，得出如图 1 所示的电离讯号-场强图。由图可直接得出待测里德堡态的电离阈值^[6]。选取脉冲电压幅值略大于场电离阈值，并由专用的延迟器输出一相对于激光输出时间可调的延迟讯号，用以触发高压脉冲电源和 Boxcar 门积分器，延迟器同时输出一与延迟时间成正比的直流电压，代替 $1000 : 1$ 的取样信号，接到 X-Y 记录仪的 x 轴上。通过延迟器调节高压脉冲电压和 Boxcar 门讯号的延迟时间，直接得出如图 2 所示的场电离讯号-延迟时间图。由图通过曲线拟合可确定各态的寿命。实验测定值见表 1。

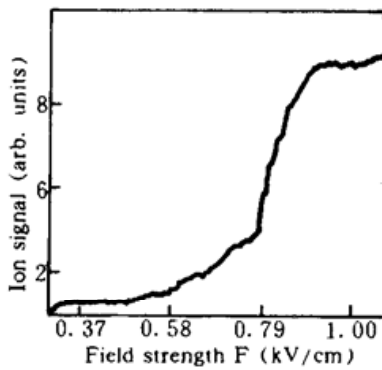


Fig. 1 Ion signal as a function of field strength for Na (23 d)

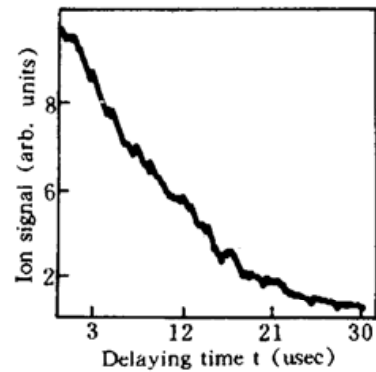


Fig. 2 Ion signal as a function of delaying time for Na (23 d)

Table 1. Experimental and theoretical lifetimes of sodium s and d states

n	s states			d states		
	$\tau_{expt} (\mu s)$	$\tau_{expt}^* (\mu s)$	$\tau_{theor} (\mu s)$	$\tau_{expt} (\mu s)$	$\tau_{expt}^* (\mu s)$	$\tau_{theor} (\mu s)$
19				7.1	6.9	
20	8.7	8.9	10.3	8.3	7.7	7.7
21	10.9	11.3	11.9	10.3	—	8.8
22	12.7	—	13.6	11.7	—	10.2
23	15.0	—	16.2	13.0	—	11.5
24	18.2	—	18.0			

τ_{expt}^* see reference [1]

2 理论计算

设 t 时刻能级 n 上的原子密度为

$$N_n = N_n(0) \exp[-A_n t], \tag{1}$$

则原子平均寿命为

$$\tau_n = 1/A_n = 1/\sum_{n'} A_{nn'}, \tag{2}$$

$A_{nn'}$ 为 n 态到 n' 态的自发跃迁几率，对能量 $E_{n'}$ 低于 n 态能量 E_n 的所有允许跃迁的能级求和，

$$A_{nn'} = (4e^2 \omega_{nn'}^3 / 3\hbar C^3) |\mathbf{r}_{nn'}|^2, \quad \omega_{nn'} = (E_n - E_{n'}) / \hbar, \tag{3}$$

$\mathbf{r}_{nn'}$ 为 n 态和 n' 态之间的径向矩阵元。如果环境温度 $T \neq 0$ ，则背景黑体辐射将产生受激发射

和吸收引起的跃迁^[7], 并将产生一个附加的衰减项:

$$\frac{1}{\tau_n^2} = \sum_{n' \neq n} B_{nn'} \rho_{nn'} + \int B \rho dE. \quad (4)$$

式中 $B_{nn'}$ 为 n 态至 n' 态的受激跃迁系数, $\rho_{nn'}$ 为与跃迁频率对应的黑体辐射能量密度。在方程 (5) 中, 求和应扩展到 n' 能级以上和以下的所有允许跃迁的能级。积分项对电离阈以上的连续态进行。这样总的衰减速率为:

$$1/\tau = 1/\tau_n + 1/\tau_n^2 \quad (5)$$

从前述的实验方法中可以看出, 测量得到的离子信号实际已包括了由于黑体辐射引起的布居到较高能态(包括连续态)的粒子数, 因此忽略碰撞等其它过程引起的布居数衰减, 则信号的衰减仅由向较低能态的自发跃迁和受激跃迁所引起, 即实验观察寿命^[7]

$$\frac{1}{\tau_{exp}} = \sum_{n' < n} \frac{4e^2 \omega_{nn'}^3}{3\hbar C^3} \left[1 + \frac{1}{\exp(\hbar \omega_{nn'}/KT) - 1} \right] |r_{nn'}|^2. \quad (6)$$

对径向矩阵元 $|r_{nn'}|$ 的计算, 采用 Zimmerman 给出的数值积分法^[8] 求出零场矩阵元, 代入 (7) 式即可得里德堡态原子的寿命。计算结果列于表 1。

3 讨 论

1) 从表 1 可以看出, 实验测出的 ns 和 nd 里德堡态的寿命值与计算值基本符合, 两者相差均小于 15%。对于较低能态, 在表 1 中同时给出了 Constantine E. Theodosiou 等^[1] 人的实验测量值, 和作者测得的实验值对比, 亦符合得较好。

忽略环境辐射和碰撞的影响, 原子里德堡态的自发辐射寿命与 $(n^*)^3$ 成比例。图 3 为钠原子 s 态和 d 态寿命的实验值与 n^* 的关系, 以 $\tau = cm^3$ 表示。对于 s 态 α 的实验值为 1.45 ns, 理论值为 1.57 ns; 对于 d 态, α 的实验值为 1.07 ns, 理论值为 0.96 ns。

2) 由于实验样品为定向原子束, 长寿命的激发态原子在电离延迟时间内可能飞离收集区而使电离讯号变小。忽略原子炉喷口处的膨胀冷却效应, 由实验中的原子炉温度按照麦克斯韦速度分布作粗略估算, 在 $t = 20 \mu s$ 时间内, 受激钠原子以平均速度飞行的距离约为 1.5 cm。与本文实验中所采用的直径为 2 cm 的收集孔比较, 已有一小部分钠原子飞离收集区, 使得收集到的离子数变少, 从而使测量的寿命变短。考虑到这一因素, 在数据处理中, 对实验曲线仅取延迟时间小于 $10 \mu s$ 的一段进行拟合, 得出测量的寿命值。

3) 对原子的高里德堡态, 由于能级密度很大, 邻近态间的跃迁频率与室温黑体辐射频率可以相比拟, 此时光谱实验区域背景温度下的黑体辐射将导致激发态的重新布居, 并对原子激发态的实际寿命产生显著的影响。为了观察黑体辐射引起的能级再布居效应, 在实验中分别测定了钠原子 $19d$ 态在光激发后延迟 $0.1 \mu s$ 施加脉冲电场的电离信号-场强图(如图 4 中 a 所示)和光激发后延迟 $3 \mu s$ 的电离信号-场强图(如图 4 中 b 所示)。由图可见, 延迟 $3 \mu s$ 的电离信号在电离阈值以前的幅度明显升高, 这种升高显然对应于一部分 $19d$ 态原子被黑体辐射激发到更高的能态, 并且由于 $19d$ 态原子数相对减少, 电离阈值较为模糊。在本文的实验中,

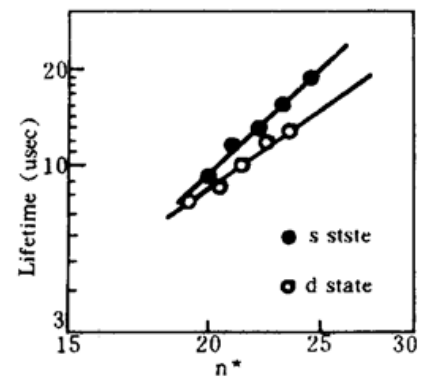


Fig. 3 Lifetimes of s and d states plotted versus effective quantum number

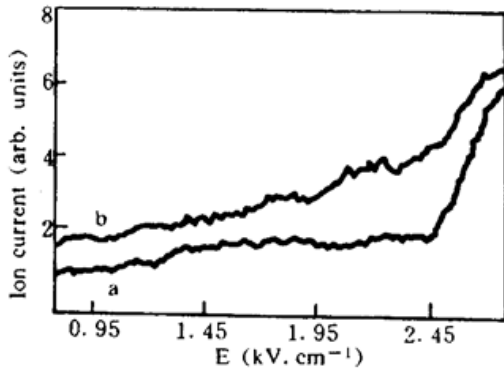


Fig. 4 Ionization signal vs peak ionizing field with the Na $19d$ state is initially populated

(a) ionization pulse delayed $0.1 \mu\text{s}$

(b) ionization pulse delayed by $3 \mu\text{s}$ from the laser excitation

实际测量的是被测态及其以上能态(包括连续态)的原子数随时间的衰减,这种衰减仅由自发辐射和向被测态以下能态的受激跃迁引起。由于原子里德堡态的能级间距与 n^{-3} 成比例,当被测态能级位置不太高时,黑体辐射引起的受激上跃迁总速率应比受激下跃迁的总速率大得多,并且由于环境温度下的黑体辐射谱中与受激下跃迁的相关能级差对应的光子数密度很小,由此引起的受激下跃迁速率通常比自发跃迁速率小很多,所以上述对里德堡态寿命测量值应接近于自发辐射寿命。对于借助自发辐射荧光衰减测定里德堡态寿命的实验,背景辐射引起的受激上跃迁的影响一般应不可忽略。

参 考 文 献

- [1] Constantine, E. Theodosiou, Lifetimes of alkali-atom Rydberg states. *Phys. Rev. (A)*, 1984, **30**(6): 2881~2909
- [2] T. F. Gallagher, W. E. Cooke, Radiative lifetimes of s and d states of potassium. *Phys. Rev. (A)*, 1979, **20**(3): 670~672
- [3] T. F. Gallagher, W. E. Cooke, Interaction of blackbody radiation with atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 1979, **42**(13): 835~839
- [4] John E. Smedley, David F. Marran, Radiative lifetimes of the $6s8p \ ^1P_1$ and near-resonant states in barium. *Phys. Rev. (A)*, 1993, **47**(1): 126~131
- [5] S. Zhang, J. Z. Qiu, G. Wang, Influence of the $3d^{23}P_0$ and $3d^{23}P_2$ valence states on the Stark spectrum of the Rydberg states of Ca. *J. Quant. Spectrosc. & Radiat. Transfer*, 1989, **42**(1): 19~23
- [6] 酃菁, 徐云飞, 王云仙等, Sr 原子里德堡态的 $|m_l|$ 相关场电离阈。物理学报, 1993, **42**(2): 231~236
- [7] 蒋孟衡, 张森, 高激发 Stark 能级寿命的计算。物理学报, 1995, **44**(3): 357~364
- [8] Myron L. Zimmerman, Michael G. Littman, Michael M. Kash *et al.*, Stark structure of the Rydberg states of alkali-metal atoms. *Phys. Rev. (A)*, 1979, **20**(6): 2251~2275

Radiative Lifetimes of the Highly Rydberg States of Sodium Atom

Xie Weijun Fang Dawei Shu Xiaowu Xu Yunfei Zhang Sen

(Department of Physics, Zhejiang University, Hangzhou 310027)

(Received 24 April 1995; revised 7 July 1995)

Abstract We have obtained the population of the highly excited Rydberg states of sodium atom by two-step excitation using tunable lasers. The field-ionization thresholds for excitation states were measured by using a pulse electric field, which applied to interaction region after the laser excitation. Lifetimes for ns ($n = 20 \sim 24$) and nd ($n = 19 \sim 23$) states were measured by delaying field-ionization, and compared with the calculation values. The influence of some factors on lifetime is discussed.

Key words Rydberg states, lifetime, field-ionization.