

这是共性。

也有个性。地球上 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比值约为 10^{-7} ，而铁陨石中比值高达0.315。陨石中 $^6\text{Li}/^7\text{Li}$ 比值比地球上高20倍。研究太阳光谱发现太阳里氢同位素组成和太阳系其他行星不同，太阳中心处D/H是 $1/10^{18}$ ，太阳大气圈中比值是 $1/10^7$ ，而地球上 $1/6000$ ，说明太阳中氘非常少。而太阳气体中含有10%氦，其中主要是 ^4He 。由此人们提出了太阳里存在着“质子-质子循环”或“碳-氮循环”等热核反应的假设。

宇宙天体中碳的两种稳定同位素丰度有很大差别。地球上 $^{12}\text{C}/^{13}\text{C}$ 大约是90，太阳中是36—70，而红巨星中比值大概是1—19，说明红巨星里可能碳-氮循环占主导地位。

关于稳定核素的宇宙丰度的研究，现在仅仅是开始，随着空间技术的发展，将会得到许多更直接的数据。

综上所述，稳定核素既是研究的对象，又是研究的工具。稳定核素也是一种资源，通过某些同位素分离技术而浓缩了的稳定核素是贵重的社会财富，应用的范围越来越广，国外已经可以生产250多种浓缩稳定核素，并建立起“稳定核素库”，国内也已生产过100多种浓缩稳定核

素。

参 考 文 献

- [1] 华明达，稳定核素，科学出版社，(1980)。
- [2] J. Koch, *Electromagnetic Isotope Separators and Applications of Electromagnetically Enriched Isotopes*, North-Holland Pub Co., (1958)。
- [3] C. S. Wu et al., *Annual Rev. Nucl. Science*, **19** (1969), 527.
- [4] *Proceeding of the First International Conference on Stable Isotopes in Chemistry, Biology and Medicine*, AEC CONF-730525, (1973)。
- [5] *Proceeding of the Second International Conference on Stable Isotopes*, ed. by E. R. Klein and P. O. Klein, US ERDA CONF-751027, (1975)。
- [6] T. A. Baillie, *Stable Isotopes Applications in Pharmacology, Toxicology and Clinical Research*, The Macmillan Press Ltd. (1978)。
- [7] *Isotope Effects in Chemical Processes in Advances in Chemistry Series*, ed. by R. F. Gould, American Chemical Society Pub., (1969)。
- [8] M. B. Neiman and D. Gál, *The Kinetic Isotope Method and its Application*, Budapest, Akademiai Kiado, (1971)。
- [9] J. Tölgyessy et al. *Isotope Dilution Analysis*, Tr. by I. Finály, Oxford, Pergamon, (1972)。
- [10] K. Pankama, *Isotope Geology*, London, Pergamon Press. (1954)。
- [11] J. Hoefs, *Stable Isotope Geochemistry*, Springer-Verlag Berlin, (1973)。

高 激 发 态 里 德 堡 原 子

张 绮 香

(中国科学院物理研究所)

一、引 言

在调频激光器和高分辨率激光光谱学迅速发展的过程中，近几年来十分引人注目的研究领域是原子和分子的高激发态光谱学。对原子来说，高激发态是指原子中的电子被激发到主量子数 n 很大的量子态，当只有一个电子被激发到高量子态时，称为里德堡原子。例如在实验室中已制备出 $n \approx 105$ 的氢原子；在星际介

质中已观测到 $n \approx 250$ 的氢原子。里德堡原子在高激发态原子光谱中起着特殊的典型作用。它有很奇特的性质，例如由于其外层电子的轨道半径很大，当别的原子或分子从中穿过，可几乎不受干扰；它很容易被电场离化；而其自然寿命又很长。关于他们的碰撞性质、极化性质、多光子电离性质等都是值得研究的新问题。关于他们的精细结构和超精细结构的研究，更有待于进一步发展。研究里德堡原子的重要性，还在于它们具有许多重要应用，如激光同位素分

离,等离子体诊断,新型激光器件的探索和射电天文学等等。

高激发态的研究在原子光谱中并不是一个新课题。1884年 Balmer 提出关于氢原子波长的经验公式。它不仅能解释氢原子的四个线系,而且能推算和预言一系列较短波长的线。1886年 Cornu 观测到 $n=13$ 的氢原子的 Balmer 线系。1893年 Pickering 通过星际观测得到 $n=31$ 的谱线,建立了里德堡原子与天文学之间的联系。1906年 Woods 通过观测钠原子的吸收光谱,检测到 $n=51$ 的钠的里德堡态;1930年以后进一步研究了里德堡原子的物理性质。Amaldi 和 Segre 测量了由高密度稀有气体(平均原子间距小于里德堡原子外层电子的轨道半径,引起的钠原子和钾原子的高里德堡谱线的移位。Jenkins 和 Segre 测量了钠的高里德堡态在磁场中的吸收光谱。1959年 Kardasher 预言了星际介质的氢原子复合过程引起的能够清楚分辨的光谱。1965年 Hoglund 和 Metzger 观测到由 $n \approx 100$ 的态之间的跃迁引起的微波谱线。1964年 Riviere 和 Sweetman 发现快速质子被交换气体电荷中性化时产生的氢的里德堡态^[4]。

但是由于传统光谱学的方法,在产生和检测高里德堡态方面都有很大困难,所以进展很慢。自从激光技术应用于光谱学之后,特别是有了从近红外到近紫外可连续调频的激光器,它不仅是一种理想的激发光源,而且可以使光谱的分辨率不再受仪器线宽的限制,还提供了许多新的方法,可有效地消除多普勒增宽,提高了光谱的分辨率,给里德堡原子的产生和检测提供了必要的和有利的条件,从而加速了高激发态光谱学的发展。通过更加全面和更加深入的研究,必将进一步加深人们对原子结构和动态弛豫过程的了解,以及原子与其它微观粒子相互作用过程的认识。

二、里德堡原子的物理性质

由于里德堡原子中只有一个外层电子处于

高激发态,因此可以采用类氢模型,即设想原子由一个原子实(原子核加内层电子)及一个外层电子组成,从而可将多体问题简化为单电子问题,利用单电子原子的量子力学方法进行处理。

1. 能级结构

当原子的外层电子主量子数为 n 时,角动量子数为 l 的量子态的能量表达式为

$$E_{nl} = -\frac{\hbar R Z_a^2}{n_{\text{eff}}^2} = -\frac{\hbar R Z_a^2}{(n - \Delta)^2}, \quad (1)$$

其中 $Z_a e$ 为原子实电荷, R 为里德堡常数, n_{eff} 为有效主量子数, Δ 为量子数亏损。 Δ 的表达式为

$$\begin{aligned} \Delta = & \frac{1}{4} \frac{\alpha_d Z_a^2}{a_0^3} \langle [3n^2 - l(l+1)] \rangle / \\ & \left\langle n^2 \left(l - \frac{1}{2} \right) l \left(l + \frac{1}{2} \right) (l+1) \left(l + \frac{3}{2} \right) \right\rangle \\ & + \frac{1}{16} \frac{\alpha_Q Z_a^2}{a_0^3} \langle \{ 35n^4 - 5n^2 [6l(l+1) - 5] \\ & + 3(l-1)l(l+1)(l+2) \} \rangle / \\ & \left\langle n^4 \left(l - \frac{3}{2} \right) (l-1) \left(l - \frac{1}{2} \right) l \left(l + \frac{1}{2} \right) \right. \\ & \cdot (l+1) \left(l + \frac{3}{2} \right) (l+2) \left(l + \frac{5}{2} \right) \rangle, \end{aligned} \quad (2)$$

其中 α_d, α_Q 分别为原子实电偶极矩和电四极矩的极化率, a_0 为玻尔半径。通过光谱测量,可求出量子数亏损,再由(2)式可推算出原子实电偶极矩和电四极矩的极化率。

里德堡原子外层电子的结合能近似有 $E_n^0 \propto \frac{1}{n^2}$, 即随 n 的增加结合能迅速减小。例如,当 $n=30$ 时, $E_n^0 \approx 15 \text{ meV}$; 当 $n=250$ 时, $E_n^0 \approx 0.22 \text{ meV}$ 。

里德堡原子中相邻两个束缚态之间的能量间隔近似有 $\Delta E_n \propto \frac{1}{n^3}$, 即随 n 的增加更迅速地减小。例如,当 $n=30$ 时, $\Delta E_n \approx 1 \text{ meV}$; 当 $n=250$ 时, $\Delta E_n \approx 1.7 \times 10^{-3} \text{ meV}$ 。因此需要高分辨率光谱技术,才有可能分辨和检测出高里德堡态光谱。

2. 轨道半径

主量子数为 n , 角量子数为 l 的里德堡原子外层电子的轨道半径 $\overline{r_{nl}}$ 与 n, l 之间的关系为

$$\overline{r_{nl}} \propto n^2 \left[1 + \frac{1}{2} \left(1 - \frac{l(l+1)}{n^2} \right) \right]. \quad (3)$$

由(3)式可看出当 n 很大时, $\overline{r_n} \propto n^2$, 例如, 当 $n = 30$ 时, $\overline{r_n} \simeq 4.8 \times 10^{-6}$ cm; 当 $n = 250$ 时, $\overline{r_n} \simeq 3.3 \mu\text{m}$, 接近细菌的大小。

3. 辐射寿命

当原子的外层电子角动量子数为一确定的 l 值、主量子数为 n 的态的自发辐射寿命 τ_n 与 n 的关系可以表达为

$$\tau_n \propto n^3. \quad (4)$$

当 n 很大时, 不同的角动量态之间形成组态混合, 计算出给定 n 态的平均寿命为

$$\overline{\tau_n} = \frac{1}{n^2} \left[\sum_{l=0}^{l=n-1} \frac{2l+1}{\tau_{nl}} \right]^{-1}, \quad (5)$$

其中 τ_{nl} 是 (nl) 态的辐射寿命。当 n 很大时, 可以近似得出

$$\overline{\tau_n} \propto n^{4.5}. \quad (6)$$

(5) 和 (6) 式均已得到实验验证^[2,3]。

关于里德堡原子的外层电子处于束缚态和近自由态的理论计算, 近几年来采用了多通道量子亏损理论统一处理^[4,5], 得到了较好的结果。

三、里德堡原子的产生、检测及一些问题的研究

原子在常规条件下处于基态, 必须通过能量交换使原子获得能量, 以补偿由激发态到基态间的能量差, 才可将原子由基态激发到激发态。在激光器应用之前, 通常采用普通光源激励。由于普通光源有很大的局限性, 因此很难将原子激发到特定的高量子态; 此外用传统光谱学的方法检测, 分辨率又很低, 所以系统地研究高里德堡态有很大困难。当调频激光器应用之后, 实现选择性激发就比较容易。再加上可采用分步激发(两步或多步)或多光子吸收(同时

吸收两个或多个相同频率的光子)等方法, 可以比较容易地将原子激发到特定的高里德堡态; 再加上射频场、斯塔克场或碰撞过程的作用(这些作用均不受单光子偶极跃迁选择定则的制约), 可将原子激发到特定的高角动量态。这就进一步提供了研究高角动量态的方法。

关于里德堡态的检测可采用荧光法或电离法。荧光法对高里德堡态不适用; 电离法可以简单、灵敏地检测单个的特定的里德堡态。当有外加电场 E 存在的情况下, 库仑势能

$$V = -\frac{1}{r} - EZ,$$

其最大值 $V_{\max} = -2\sqrt{E}$, 离化发生在 $V_{\max} = E_n^0$ 的情况下, 如果忽略由于斯塔克效应引起的移位, 可近似地推导出阈值场 E_c 的表达式

$$E_c = \frac{1}{16n_{\text{eff}}^4} \text{ (a.u.)}. \quad (7)$$

由此给出阈值场和主量子数之间的关系, 此关系式在实验^[6,7]中得到了证实, 并且符合得很好。

以下通过几个具体例子, 进一步说明实验方法及一些进展情况。

对于碱金属原子 Li, Na, K, Rb, Cs 的高 (nS) 态和高 (nd) 态的研究, 主要通过双光子吸收产生高里德堡态, 用荧光法或电离法进行检测。例如, Harper^[8] 等人利用染料调频激光器, 通过双光子吸收和荧光法检测研究了 K(ns) 和 K(nd) 态。如图 1 所示, 当入射激光频率调到 ω_L 时, K 原子通过双光子吸收由 K($4s$) 态 \rightarrow K($13s$) 态。当 K($13s$) 态上有布居后, 可通过由 K($13s$) 态 \rightarrow K($4p$) 态发射出频率为 ω_f 的荧光进行检测。通过不断增加入射激光的频率 ω_L , 对于 K(ns) 态, 可测到 $13 \leq n \leq 26$ 的范围; 对于 K(nd) 态, 可测到 $11 \leq n \leq 24$ 的范围。对于更高的里德堡态荧光法已分辨不出。Shen 和 Curry^[9] 用电离法进行检测, 对于 K(ns) 态, 可测到 $13 \leq n \leq 41$ 的范围, 对于 K(nd) 态, 可测到 $11 \leq n \leq 39$ 的范围。由以上两个实验比较可看出, 对于高里德堡态, 电离法比荧光法分辨率高。关于碱金属原子的高 (nf) 态的研究进

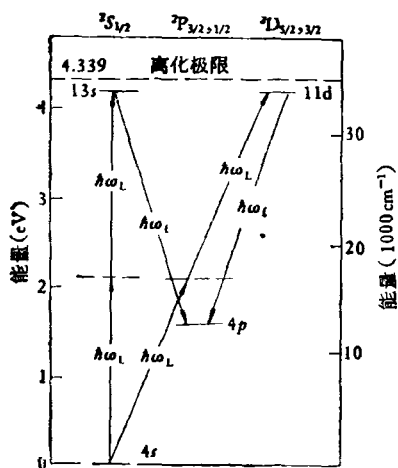


图1 钾原子能级和双光子吸收及荧光检测的示意图

行得较少。Bensoussan 等人^[10]通过双光子吸收使钾原子由 $K(4s)$ 态 $\rightarrow K(3d)$ 态, 再通过单光子吸收, 由 $K(3d)$ 态 $\rightarrow K(nf)$ 态, $K(nf)$ 态可测到 $3 \leq n \leq 14$ 的范围, 对于更高的 (nf) 态的研究进行得很少。

Gallagher^[11] 等人利用射频光谱技术测量了 $n = 16$ 的钠原子的 $l = 2 \sim 5$ 态的精细结构, 如图 2 所示, 利用两台染料调频激光器进行分步激发。第一步, 将一台激光器输出波长调到 5890 \AA , 使钠原子由 $Na(3s) \rightarrow Na(3p)$ 态。第二步, 将另一台激光器输出波长调到 4157 \AA , 使钠原子由 $Na(3p) \rightarrow Na(16d)$ 态。再加射频场使钠原子由 $Na(16d) \rightarrow Na(16f)$ 态产生共振跃迁 (如图 2 右下角所示), 通过检测 $Na(3d) \rightarrow Na(3p)$ 态的波长为 8197 \AA 的荧光, 可知 $Na(16f)$ 态是否有布居。他们还测量

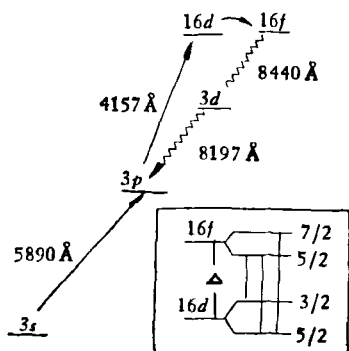


图2 对钠原子进行分步激发, 再加射频场产生 $Na(16d) \rightarrow Na(16f)$ 态共振跃迁示意图

了 g, h 态的精细结构分裂和量子数亏损, 可推出原子实电偶极矩和电四极矩的极化率, $\alpha_d = 1.0015(\text{a.u.})$ 和 $\alpha_Q = 0.48(\text{a.u.})$ 。由于对动态非绝热过程尚未很好了解, 因此原子实极化率的精确测量, 将促进此领域理论工作的进展。

Ducas 和 Zimmerman 用斯塔克光谱技术, 研究了钠原子 $n = 16$ 的高角动量态。当有外加电场 E 作用在里德堡原子上时, 斯塔克效应引起的能级分裂间隔 $\Delta E_s \propto \pm \frac{3}{2} n^2 E$ 。当 n 较大时, 较小的电场 E , 就可使 ΔE_s 超过相邻里德堡态之间的能量间隔, 因此有利于高角动量态的研究。如图 3 所示, 用 CO_2 激光器的 $P(20)$ 线激发 $Na(10s)$ 态, 使其达 $Na(17p)$ 态之上的虚线位置, 逐渐增加电场, 每扫过一个斯塔克子分量, 出现一次共振吸收。 $|m| = 1$ 的斯塔克谱表示在图 4(a) 中, 由于 $|m| = 0$ 和 $|m| = 1$ 的态之间的分裂太小, 每一个 $|m| = 1$ 的态实际上是一对双精细结构, “ $17p$ ” 态的分裂可以清楚的表示在图 4(b) 中, 通过斯塔克光谱技术, 可以求出精细结构分裂和量子数亏损。

Wynne^[12] 等人研究了 Sr 原子里德堡态的塞曼效应。Zimmerman^[13] 等人研究了 Na 原子里德堡态的反磁结构。

最近对于高激发态里德堡原子的非弹性碰撞方面的工作引起了很大的兴趣, 由于它不仅产生和研究高角动量态, 而且能使人们对原子之间的相互作用力有更深入的了解。关于里

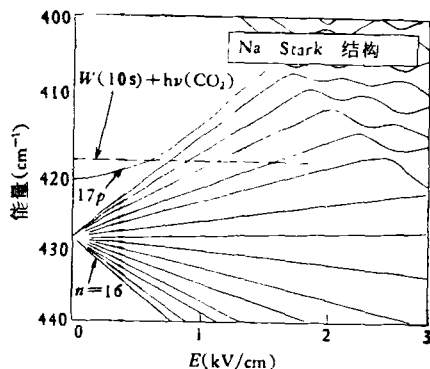


图3 钠原子斯塔克谱的能级图

实线: 计算的能级;
虚线: 由 CO_2 激光器 $P(20)$ 线激发 $Na(10s)$ 态的能级

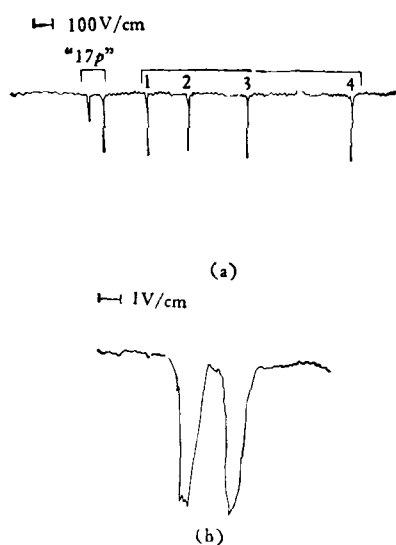


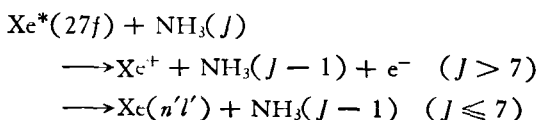
图4 表示图3中能级的斯塔克谱
(a) 全景扫描;
(b) “17p”态精细结构的高分辨率显示

德堡原子和带电粒子之间的碰撞过程的研究, 对于天体物理和等离子体物理有相当的重要性。目前关于里德堡原子的碰撞问题的研究, 在里德堡原子的研究工作中占有相当的比重。

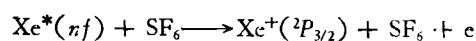
Gallagher^[41] 等人研究了由于惰性气体碰撞效应引起的钠原子的 Na(13f) 态与 Na(13g) 态之间的角动量组态混合, 其过程首先是分步激发使 Na 原子由 Na(3s) → Na(3p) 态, 由 Na(3p) → Na(13d) 态, 加微波场后由 Na(13d) → Na(13f) 态, 再通过惰性气体碰撞使 Na(13f) → Na(13g) 态, 实际上在 Na(13d)-Na(13f)-Na(13g) 态之间形成组态混合, 由寿命测量, 得到 $\tau_n \propto n^{4.5}$ 的关系。

Hertel^[45] 研究了钠原子的激发态与双原子分子(N₂, H₂, O₂)碰撞引起的能量转移过程。由于此三种分子与碱金属原子激发态之间的猝灭截面较大, 因此是猝灭过程; 但也有些情况激发截面较大, 如 Cs 与 H₂ 之间的碰撞激发截面较大, 所以是激发过程。

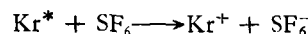
Smith^[46] 等人研究了 Xe*(nf) 与 NH₃ 分子之间的碰撞能量转移过程, 如



West^[47] 等人研究了 Xe*(nf) (25 ≤ n ≤ 40) 与 SF₆ 分子之间的碰撞离化过程, 如



Chupka 研究了 Kr* 与 SF₆ 的碰撞离化过程, 如



Perciel 和 Richards^[48] 曾经评述了各种带电粒子和里德堡原子之间的碰撞过程的理论截面。Kock 和 Bayfield^[49] 测量了高激发态的氢原子(44 ≤ n ≤ 50)和质子之间的碰撞过程的电子损失截面。

关于里德堡原子的研究涉及的面较广, 这里不可能作全面介绍。不过总的说来, 此领域中很多方面的工作还只是刚刚开始, 无论从实验或理论方面都有大量的问题有待于研究, 无疑通过研究工作的不断开展, 必将大大地丰富原子光谱学这一基础研究领域和进一步开拓许多重要的应用。

参 考 文 献

- [1] D. Kleppner, *Atomic Physics*, 5(1976), 269
- [2] J. T. Scott, *Phys. Today*, 28-11(1975), 17.
- [3] T. F. Gallagher et al., *Phys. Rev. Lett.*, 35(1975), 644.
- [4] M. J. Seaton, *Proc. Phys. Soc. Lond.*, 83(1966), 801.
- [5] U. Fano, *Phys. Rev. A*, 2(1970), 353; 15(1977), 817.
- [6] T. W. Ducas et al., *Phys. Rev. Lett.*, 35(1975), 366.
- [7] R. F. Steblings et al., *Phys. Rev. A*, 12(1975), 1453
- [8] C. D. Harper et al., *J. Opt. Soc. Am.*, 67(1977), 579.
- [9] N. M. Shen and S. M. Curry, *Opt. Commun.*, 20(1977), 392.
- [10] P. Bensoussan, *Phys. Rev. A*, 11(1975), 1787.
- [11] T. F. Gallagher et al., *Phys. Rev. A*, 13(1976), 1448.
- [12] J. J. Wynne et al., *Phys. Rev. Lett.* 39(1977), 1520.
- [13] M. L. Zimmerman et al., *Phys. Rev. Lett.*, 40(1978), 1083.
- [14] T. F. Gallagher et al., *Phys. Rev. A*, 17(1978), 904.
- [15] I. V. Hertel, *Phys. Rev. Lett.*, 36(1976), 861.
- [16] K. A. Smith et al., *Phys. Rev. Lett.*, 40(1978), 1362.
- [17] W. P. West et al., *Phys. Rev. Lett.*, 36(1976), 854.
- [18] I. C. Percival and D. Richards, *Advanced in Atomic and Molecular Physics*, 11(1975), 1.
- [19] P. M. Koch et al., *Phys. Rev. Lett.*, 34(1975), 448.