

# 里德堡原子和长波辐射的相互作用

韩全生 罗正纪

(中国科学院物理研究所)

## 一、引言

随着调频激光技术及其它有关技术的发展,近十年来原子物理学也有了很大的发展.在这个领域中所研究的问题是多方面的,其中里德堡原子及其与长波辐射的相互作用就是一个引人注目的新的研究课题.它之所以引人注目,主要有两个方面的原因.第一,很多有关里德堡原子的物理问题,如里德堡原子的能态结构、寿命、角动量混合、能级间的跃迁几率、分支规律、吸收和受激发射、高激发态原子之间的能量交换、合作效应以及原子的离化过程等等,都可通过这一课题的研究得到某种程度的理解.第二,通过里德堡原子和长波辐射相互作用的研究可以导致在微波和远红外区域的高灵敏度探测器,其噪声等效功率可小到  $10^{-10}\text{W}/\text{Hz}^{1/2[1]}$ .这在很多方面,如红外和射电天文学、核聚变中的等离子体诊断、同温层监测以及某些材料研究中有着重要的应用.此外,还可通过实现微波或远红外区域频率可调的新型激光器以及发展其他的新技术.

这里所说的里德堡原子,就是只有一个外层电子处于高激发态而其余电子都处于最低能态的原子.因此,里德堡原子可以看作类氢原子.对于这类原子的研究近年来已经引起了广泛的兴趣<sup>[2]</sup>,因为它有着一系列不同于基态或低激发态原子的性质.除了半径大、结合能低、能级间距小和寿命长等特点外,这里要特别指出的一个重要特点是,在里德堡态之间存在着非常大的电偶极矩阵元,它与  $n^4$  成比例.例如,  $n = 30$  时,电偶极矩  $\sim 2000$  德拜.因此,只要

很小的辐射功率就可以诱导它们之间的跃迁.例如,在氢原子与室温黑体辐射相互作用时,  $22d-23p$  的跃迁速率是  $1300\text{sec}^{-1}$ .这就意味着  $10^{10}$  原子/ $\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$  的原子束对这一辐射就是光性厚的了.

里德堡原子与长波辐射具有很强的耦合作用这一物理性质,使人们有可能利用它们来作长波辐射的高灵敏度探测以及低阈值的长波辐射受激发射.早在十六年前,人们就发现在星际介质中的里德堡原子具有很强的微波发射,近两年来已在实验室中实现了里德堡原子的微波超辐射和微波激射过程<sup>[3,4]</sup>.最近已经有很多人在实验中证实,室温下的黑体辐射对里德堡原子有着显著的作用<sup>[5-8]</sup>.过去一些迷惑不解的问题,如激发态原子的离化、里德堡态的能级位移及寿命减小等都可能得到合理的解释<sup>[9]</sup>.目前,这些研究还只是刚刚开始,但在物理和技术两个方面都已初步显示出它的作用.可以预期,随着研究的深入,在这个领域人们将会陆续得到很有意义的成果.

## 二、黑体辐射对里德堡原子的作用

### 1. 能级的再布居

已经指出,高里德堡态间具有很大的电偶极矩阵元,而且能级之间的能量差很小,因此它与长波辐射有着很强的作用.功率很微弱的黑体辐射就可以使原子的里德堡态产生迅速的再布居.例如,当我们通过二步或双光子选择性激发方法把 Na 原子激发到  $18s$  态时,由于它有比较长的寿命,在黑体辐射作用下,  $18s$  态的粒子有相当一部分很快通过吸收和受激发射而再

布居到各个邻近的  $p$  态以及连续态。图 1 给出这种再布居的示意。

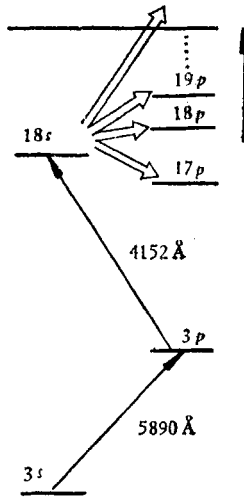


图 1 Na 的  $18s$  态在黑体辐射作用下的再布居

再布居的这一过程可以用选择性场电离<sup>[10]</sup>实验得到证实。当电离场达到  $18s$  态的阈值，改变电离脉冲相对于初始布居  $18s$  态的激光脉冲的延迟时间，就可以观察到  $18s$  态的粒子数的指数衰减，这大致反映了它的辐射衰变速率。但是，减小电离场使其逐步相当于  $18p, 19p, 20p, \dots$  的电离阈值，在与  $18s$  态辐射寿命 ( $\sim 5\mu s$ ) 相比拟的时间内，我们可以观察到  $\geq np$  ( $n = 18, 19, 20, \dots$ ) 态上的粒子数差不多是线性地增加，从 0 到  $18s$  态初始布居的 5% 左右。图 2 给出这一观测结果。

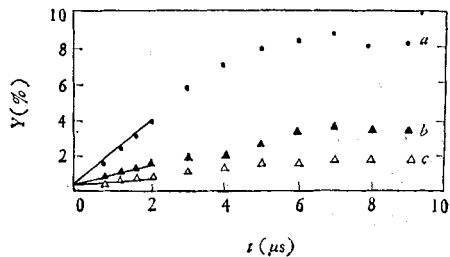


图 2  $\geq np$  态上的粒子数随着  $t$  的变化  
 $t$  是场电离脉冲相对于激发的激光脉冲的延迟时间；  
 $Y$  是相对于  $18s$  态初始布居的百分数；● 为  $n \geq 18$ ；  
 ▲ 为  $n \geq 19$ ；△ 为  $n \geq 20$

图中曲线  $a$  和  $b$  之间的差反映了  $18p$  态的布居， $b$  和  $c$  之差反映了  $19p$  态的布居，而曲线  $c$  反映  $\geq 20p$  各个里德堡态以及连续态的布居。由实验结果可知，再布居的粒子中差不多有一半是跑到最邻近  $18s$  态的  $p$  态上。

为了进一步验证黑体辐射对里德堡原子的作用，并检验里德堡原子作为长波辐射探测器的最终灵敏度，Figger 等人<sup>[1]</sup>做了更深入的

实验。他们是用 CW 染料激光器将 Na 原子分步激发到特定的里德堡态，并将作用区周围冷却到 14K，即基本上屏蔽了外界的热辐射。然后用一特制的悬片开关控制引入给定温度下的热辐射，观测在不同温度下场电离信号的变化。他们的实验装置如图 3 所示。测量结果如图 4 所示。

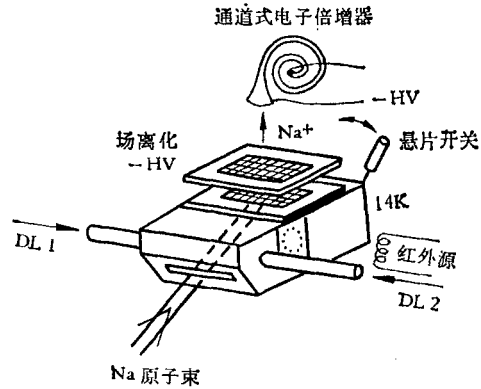


图 3 检测热辐射对里德堡原子作用的实验装置  
 DL1 和 DL2 是两个 CW 染料激光

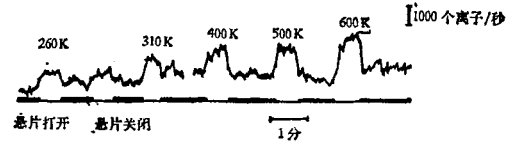


图 4 悬片开关打开和关闭时离子流信号的变化，以及引入不同温度下的热辐射时离子流信号的变化

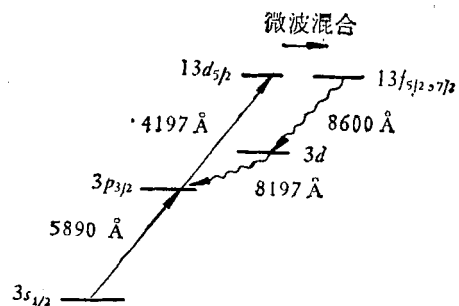


图 5 通过荧光观察里德堡原子态角动量的微波混合

通过特定的荧光的观察来鉴定长波辐射对里德堡原子的作用也是一种有效的实验方法。如图 5 所示，两束激光将 Na 原子分步激发到  $13d_{5/2}$  能级，通过微波作用使其产生角动量混

合,然后观察  $13f-3d$ ,  $3d-3p$  的荧光. 通过此实验可以测出微波混合截面.

### 2. 诱导衰减

与再布居相关的是黑体辐射将使里德堡原子的寿命下降. 在  $n$  态的辐射寿命  $\tau_n$  的一般表达式为

$$\frac{1}{\tau_n} = \sum_{n'} A_{nn'}$$

$A_{nn'}$  是爱因斯坦系数,  $E_n > E_{n'}$ . 如果  $T \approx 0$ , 由于黑体辐射的吸收和受激发射, 初始布居的里德堡态就会发生诱导衰减. 其速率可以表示为

$$\frac{1}{\tau_n^b} = \sum_{n'} \bar{n} A_{nn'} + \sum_{n''} (g_{n''}/g_n) \bar{n} A_{n''n}$$

$\bar{n}$  是黑体辐射在相应跃迁频率的光子密度, 由  $[\exp(h\nu/kT) - 1]^{-1}$  给定,  $E_{n'} < E_n < E_{n''}$ . 因此, 总的速率是

$$\frac{1}{\tau_n^*} = \frac{1}{\tau_n} + \frac{1}{\tau_n^b} = \sum_{n'} (\bar{n} + 1) A_{nn'} + \sum_{n''} (g_{n''}/g_n) \bar{n} A_{n''n}$$

对于  $np$  态, 由于它们有比较大的到邻近的  $s$  态和  $d$  态的分支比, 这种黑体辐射诱导衰减的效应更为明显, 可使能级寿命减小四分之三. 对于 Na 的  $17p$  态和  $18p$  态, 计算和观测的结果如表 1 所示<sup>[5]</sup>.

表 1 Na 的  $17p$  和  $18p$  态的寿命

态	$\tau$ ( $\mu s$ )	$\tau^b$ ( $\mu s$ )	$\tau^*$ 计算 ( $\mu s$ )	$\tau^*$ 观测 ( $\mu s$ )
$17p$	48.4	22.7	15.5	$11.4^{+5.0}_{-1.4}$
$18p$	58.4	25.6	17.9	$13.9^{+8.8}_{-2.9}$

### 3. ac 斯塔克位移

由黑体辐射诱导的 ac 斯塔克效应主要是决定于黑体辐射的近峰值强度的电场. 对于高里德堡态, 其结合能  $W$  要比近峰值的黑体辐射的光子能量  $h\nu_p$  小很多. 在  $W \ll h\nu_p$  近似下, 并忽略远离峰值的辐射产生的次要作用, 可以求出里德堡态在黑体辐射作用下产生的 ac 斯塔克位移的表达式<sup>[9]</sup>

$$\Delta W = \frac{1}{3} \pi \alpha^3 (kT)^2,$$

其中  $\alpha$  是精细结构常数. 可以看出, 它与  $n$ ,  $l$  以及原子的类别无关. 在室温下, 这一位移等于  $2.2\text{kHz}$ . 而对于低激发态就没有这样的位移, 因此可以预期, 从基态到里德堡态的跃迁相应频率的黑体诱导位移应最为明显. 这有待于实验上的进一步研究.

如果将黑体辐射的诱导衰减效应类比于缓冲气体的压力增宽作用, 则黑体辐射诱导的 ac 斯塔克位移就相当于缓冲气体引起压力位移的作用.

### 三、里德堡原子的受激发射

利用里德堡原子可以实现微波或远红外的受激发射<sup>[3,4]</sup>. 由于它与长波辐射有很强的耦合作用, 因此利用里德堡原子实现这些长波辐射的振荡具有很低的阈值. 例如, 当  $n \sim 25$  时, 超辐射的阈值粒子反转数  $N_{nn'} \sim 10^5$ , 而对微波振荡  $N_{nn'} \sim 5 \times 10^2$ . 作为相干辐射源, 它比同波段的其他器件所需要的原子或分子数小几个数量级. 由于里德堡能级的寿命比较长, 且与长波辐射耦合强, 这使得里德堡原子的微波激发具有很小的饱和功率. 例如一个激射脉冲的总能量仅 eV 的量级, 如果脉冲时间是  $1\mu s$ , 峰值功率  $\sim 10^{-13}\text{W}$ . 因此, 它需要极其灵敏的探测技术来探测.

利用里德堡原子实现微波激射的实验示意于图 6. 左边是实验装置的示意, 右边是有关的跃迁能级.

一原子束 (Na 或 Cs) 与两束共线的脉冲激光 ( $\lambda_1$  和  $\lambda_2$ ) 在一个半共焦的 F-P 腔中立交. 激

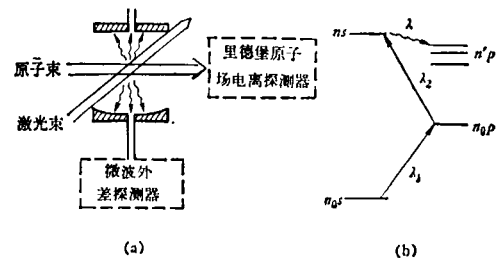


图 6 利用里德堡原子实现微波激射的实验 (a) 为装置的示意图; (b) 为相关的能级

光  $\lambda_1$  将原子从基态激发到第一共振能级  $n_0p$  (对于 Na,  $\lambda_1=5890 \text{ \AA}$ ; 对于 Cs,  $\lambda_1=8523 \text{ \AA}$ ),  $\lambda_2$  的激光再将这些原子激发到里德堡态  $ns$  (若  $n=25$ , 对于 Na 而言,  $\lambda_2=4100 \text{ \AA}$ ; 对于 Cs 而言,  $\lambda_2=5150 \text{ \AA}$ ). 因为初始布居在  $ns$  态与一组  $n'p$  态 ( $n'=n-1, n-2, \dots$ ) 之间实现了粒子数反转, 因此, 里德堡原子可以在多个波长实现受激发射. 在最大增益(即最低阈值)的跃迁可以发生超辐射. 这里, 最大增益的跃迁是  $ns-(n-1)p$ , 对于  $n=25$ ,  $\lambda_{nn'} \sim 1\text{mm}$ . 调节谐振腔间距, 可以选择在不同的跃迁实现微波激射. Gross 等人<sup>[3]</sup> 使用场电离方法监测相关里德堡态上粒子数的变化, 已经观察到很多  $ns-(n-1)p$  跃迁 ( $24 < n < 34$ ) 上实现振荡, 其波长为  $1-3\text{mm}$ . Moi 等人<sup>[4]</sup> 已经用外差接收器直接探测到 Na 原子里德堡态中  $33s-32p$  跃迁的微波激射, 相应波长

$$\lambda = 2.78\text{mm} (107.8\text{GHz}).$$

其信号功率仅是  $10^{-12}\text{W}$  量级. 如果对里德堡原子加上一直流电场, 调节电场的大小, 通过斯塔克位移就可实现微波激射波长的连续调谐.

考虑到黑体辐射的存在, 这里的激发作用实际可以看作是里德堡原子对黑体辐射的选择性放大.

#### 四、微波和远红外辐射的探测

已经指出, 利用里德堡原子作长波辐射的探测具有高灵敏度的特点. 除此之外, 它还具有宽的光谱区、窄的带宽、连续可调、低噪声、大接收角等等优点.

探测的方法是, 用激光分步或一步将原子束激发到特定的里德堡态  $E_a$ , 加一直流电场以通过斯塔克效应调节能级  $E_a$  和其邻近的上能级  $E_b$  之间的距离. 当这间距调到相应于入射光子的能量时, 原子通过吸收从能级  $E_a$  跃迁到能级  $E_b$ . 通过选择性场电离将能级  $E_b$  上的原子电离, 再由电子倍增器或其他电荷灵敏器件来检测, 其离子流的大小就是在跃迁波长所测的

辐射的强度的度量.

图 7 给出利用 Na 原子的里德堡态  $26s$  来探测波长为  $496\mu\text{m}$  的辐射的例子<sup>[11]</sup>. (a) 表示 Na 原子的相关能级  $26s$  和  $26p$  通过直流电场的斯塔克位移的调节而实现与  $496\mu\text{m}$  辐射共振; (b) 表示  $26s-27p$  发生共振跃迁时接收到的离子流信号. 这时, 相应的电场是  $27\text{V/cm}$ . 观察到的线宽是  $1\text{MHz}$ , 这显示了检测的高光谱分辨率.

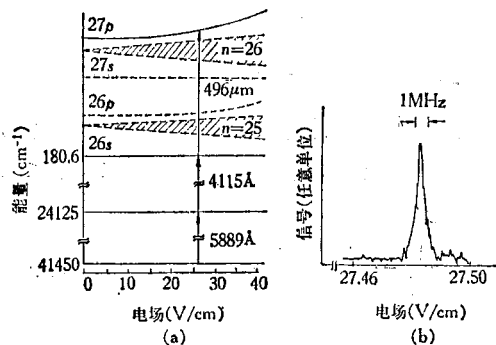


图 7 利用 Na 的里德堡态  $26s$  到  $27p$  的共振吸收来探测波长为  $496\mu\text{m}$  的辐射

(a) 为通过电场斯塔克位移调节能级间距;  
(b) 为共振吸收时的离子流信号

在二能级系统近似的情况下, 可以证明, 功率增宽<sup>[12]</sup>  $\Delta\nu$  与入射光强度  $I$  有如下关系:

$$\Delta\nu_{\text{FWHM}} = \frac{\mu}{\pi h} \left( \frac{4\pi I}{c} \right)^{1/2},$$

$\mu$  是跃迁偶极矩. 因此, 通过共振线增宽的研究可以测量出长波辐射的功率水平.

因为这些里德堡能级的斯塔克效应可以确切地算出, 故被探测辐射的频率对所加电场的校准是容易做到的. 图 6(b) 中的信号是观察到的三个共振信号之一, 这是由于  $27p$  能级的精细结构和斯塔克效应所致. 因为精细结构的斯塔克效应是知道的, 因此几个共振信号的存在可用来作为入射辐射的精确的频率标记.

这一探测技术, 一般的噪声等效功率 (NEP)  $\geq 10^{-15}\text{W/Hz}^{1/2}$ . 为了提高探测的灵敏度, 必须消除黑体辐射所带来的噪声. 经过冷却屏蔽 ( $14\text{K}$ ), 现在实际上已达到的 NEP  $\sim 10^{-17}\text{W/Hz}^{1/2}$ <sup>[11]</sup>. 经过适当的改进之后可以达

到  $\sim 10^{-19} \text{W}/\text{Hz}^{1/2}$ 。表 2 给出了里德堡原子探测器与其他器件的噪声等效功率的比较。从表中可以看出，里德堡原子探测器已经超过了当前各种最灵敏的非相干探测器件，而且还有相当大的潜力可以发挥。

表 2 里德堡原子探测器和其他器件的 NEP

器件类型	$\lambda(\text{mm})$	NEP(W/Hz <sup>1/2</sup> )
辐射热探测器	全波段	$2 \times 10^{-15}$
超导过渡边	亚毫米波	
检波探测器	2.5	$3 \times 10^{-15}$
外差式接收器	3	$2 \times 10^{-16}$
里德堡原子探测器	0.4	$5 \times 10^{-15}$
300K, 脉冲激发		
里德堡原子探测器	3	$10^{-17}$
14K, CW 激发	(作某些改进后 $10^{-19}$ )	

## 五、有关的几个问题

### 1. 合作效应

已知原子处于高里德堡态时外层受激电子的轨道半径很大，这时，在有相当密度的原子系综中，每一个里德堡原子就很难说是一个独立的系统了。例如，当  $n=30$  时， $\langle r \rangle \sim 500 \text{ \AA}$ ，若有  $8 \times 10^{15}$  原子/ $\text{cm}^3$  的密度，原子就相当于一个挨一个地码起来。如果  $n=250$ ， $\langle r \rangle \sim 3.3 \mu\text{m}$ ，只要有  $10^{10}$  原子/ $\text{cm}^3$  的密度，原子与原子就紧挨着了。在这种情况下，每个里德堡原子中的受激电子就不能说是属于那一个原子的了。考虑到原子是不断地运动着，而且电荷作用都是长程的，因此，实际上在密度稀得多的情况下，高里德堡态原子就不能看作是孤立系统了，而必须考虑它们之间的合作效应。也就是说，实际的里德堡态可能会因为原子之间的相互作用而在相当大的程度上发生了畸变。因此上述的全部研究都必须保证有足够稀薄的原子密度才有意义。而在一般情况下，如何考虑原子之间的合作效应是值得研究的。

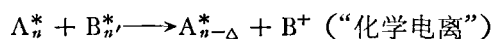
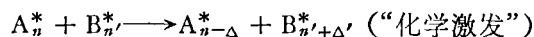
### 2. 单光子多原子过程

与合作效应相关，我们可以考虑单光子多原子过程，即一个光子同时和两个或多个原子

发生作用，而使它们同时改变其外层电子的状态。例如，两个或多个原子合伙吸收一个光子，或同时跃迁到更高的能级，或同时电离，或电离和向更高能级的跃迁相伴。可以预计，这一过程和单原子多光子的非线性过程一样，比起线性作用来其截面当然要小很多，因而在实验中比较难以观察到。但可以断定，在具有相当密度的原子系综中，两个或多个高里德堡态的原子同时与一个光子发生作用的过程是存在的，并将会被人们认识和观察到。

### 3. 碰撞能量转移、“化学”效应

由于里德堡原子有很大的半径和电偶极矩，这必然造成它们之间有很大的碰撞截面。这种碰撞是否会导致里德堡态之间的能量转移，即产生所谓的“化学激发”或“化学电离”是一个很有意义的问题。这两个过程可以表示成如下的形式：



### 4. 微波紫外双发射

由于里德堡能级的寿命都比较长，对于作为激光下能级来说是不利的。因此利用里德堡原子实现长波辐射的受激发射就受到饱和功率的限制。为了减少下能级粒子的寿命，增大反转布居，可以考虑实现微波和紫外的双受激发射。其相应的跃迁和能级如图 8 所示。两束可调谐激光 ( $\lambda_1$  和  $\lambda_2$ ) 将原子分步激发到里德堡态  $n_s$ ，然后发射出长波辐射  $\lambda_3$  和紫外辐射  $\lambda_4$ 。

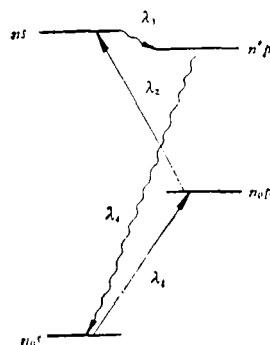


图 8 微波 ( $\lambda_3$ )、紫外 ( $\lambda_4$ ) 双发射的示意

要实现这样的双受激发射, 预计须注入波长为  $\lambda_4$  的紫外光, 以诱导  $n'p-n_0s$  的跃迁。

此文得到张志三先生的有益的指教, 特表示感谢。

### 参 考 文 献

- [1] H. Figger et al., *Opt. Commun.*, **33**(1980), 37.  
[2] 张绮香, 物理, **10** (1981), 273.  
[3] M. Gross et al., *Phys. Rev. Lett.*, **43**(1979), 343.  
[4] L. Moi et al., *Opt. Commun.*, **33**(1980), 47.  
[5] T. F. Gallagher et al., *Phys. Rev. Lett.*, **42** (1979), 835.  
[6] T. F. Gallagher and W. E. Cooke, *Appl. Phys. Lett.*, **34**(1979), 369.  
[7] E. J. Beiting et al., *J. Chem. Phys.*, **70**(1979), 3551.  
[8] P. R. Koch et al., *Phys. Lett.*, **75A**(1980), 273.  
[9] W. E. Cooke and T. F. Gallagher, *Phys. Rev. A*, **21**(1980), 588.  
[10] T. F. Gallagher et al., *Phys. Rev. A*, **16**(1977), 1098.  
[11] T. W. Ducas et al., *Appl. Phys. Lett.*, **35**(1979), 382.  
[12] W. E. Cooke et al., *Phys. Rev. A*, **16**(1977), 2473.

## 金 刚 石 砧 高 压 技 术

徐 济 安    胡 静 竹

(中国科学院物理研究所)

1978年美国 Carnegie 研究所的毛河光和 Bell 采用他们设计的金刚石砧高压容器, 可以达到  $172\text{GPa}^1$  的静压强<sup>[1]</sup>, 这个压强相当于地心压强的一半。在这个压力下, 他们观察到很多有趣的现象, 受到了广泛的注意。

### 一、金刚石砧高压技术的发展概况

Bridgman 容器 (或者是 Drickamer 改进的 Bridgman 容器) 开拓了许多物理现象的高压研究的领域, 但由于硬质合金压砧材料强度的限制, 使更高压强下的现象无法研究, 因此人们自然想到使用最硬的材料——金刚石来作压砧。1950年 Lawson 和 Tang<sup>[2]</sup> 首先使用两个单晶金刚石做成一个高压腔, 利用此装置他们进行了 X 射线衍射研究。后来 Jameison 和 Lawson<sup>[3]</sup> 用金刚石做了类似于 Bridgman 容器的装置, 得到了 Bi 在  $3\text{GPa}$  的 X 射线衍射图。同年, 美国国家标准局 (NBS) 的 Weir 等人设计了一套金刚石砧容器, 以后又作了改进, 在金刚石砧之间达到了近  $16\text{GPa}$  的压强。他们利用这个技术观察到氯化钠、方解石、琥珀酸和冰等材料的

红外、可见和紫外谱的压力效应。

Rochester 大学的 Bassett 等人<sup>[4]</sup> 从 1965 年开始的研究, 对金刚石砧高压容器的发展起了重要作用, 他们设计的容器, 目前已经在很多实验室得到了普遍的应用。图 1 是毛河光 1974 年改进的设计, 这种设计我们称为 Rochester 型, 其核心是把金刚石砧安装在两个互相垂直的半圆柱型的硬质合金摇台上, 摇台可以做平移或倾斜角度调节, 依靠杠杆作用驱动活塞前进, 从而在两砧面之间产生高压。1968年 Bassett<sup>[5]</sup> 等用 X 射线衍射实验观察到在  $30\text{GPa}$  附近 NaCl 从 BI 相变到 BII 相。

除了 X 射线衍射以外, 金刚石砧技术所遇到的一个很大困难是压强值很难测定, 一般只能采用压砧面积除以作用在压砧上的力来估计。而且 X 射线衍射需要的曝光时间又太长 (400—1000 小时), 所以这一技术还不能普遍采用。

1973 年美国 NBS 的 Barnnett, Block 和

1) Pa 为国际压强单位 ( $\text{N}/\text{m}^2$ ), 与国际通用的另一个单位巴 (bar) 的关系为

$$1\text{GPa} = 10^9\text{Pa} = 10^4\text{bar} \approx 10^4\text{atm.}$$