

高激发态原子及其与辐射的相互作用

张 森

(浙江大学物理系)

高激发态原子广泛存在于星球内部、宇宙空间、地球大气、高温等离子体以及各种气体激光器内。航天、激光、受控核聚变、同位素分离等科技事业的发展,以及可调谐激光器和高分辨率光谱技术的应用,促使原子高激发态的研究工作蓬勃开展。高激发态的原子结构,高激发态与辐射的强相互作用及其在外场中呈现的性质,成为原子分子物理学的一个重要研究内容,并在近年来取得了巨大的进展和成就。本文简述这一领域的主要研究内容和发展概况。

原子的高激发态一般包括无数个里德堡态和无数个自电离态,它们分别收敛于相应的阈值,并且各里德堡系之间,各自电离态系及其与相应的连续态之间都可能存在强烈的相互干扰^[1]。70年代以来,利用可调谐激光或同步辐射源实现的单一量子态的选择性布居,为更清晰地研究原子高激发态的电子结构建立了有效的实验手段;高分辨率光谱技术和高准确性测量技术的发展,为原子的超精细结构、同位素移位、更高的激发态($n > 100$)以及电子关联效应的研究提供了精确的实验方法;高激发态原子在外场中的性质,为研究原子-场系统动力学问题以及强场中的原子态和组态相互作用展示了新的实验现象和规律。在理论上,多通道量子数亏损理论提供了一种统一地和定量地描述原子高激发态结构的方法^[2]。近年来,原子的高激发态及其与辐射的相互作用成为原子物理学的一个重要研究内容。这些研究工作不仅深化了对原子自身的认识,而且对天体物理、等离子体物理、光物理、大气物理、凝聚态物理、激光化学等相关学科的发展产生了直接的或深远的影响,并且在航天事业、激光技术、同位素分离以及稀有矿藏探测等众多技术领域获得应用。

一、原子的里德堡态

原子中的一个价电子被激发到主量子数 n 较大的状态为里德堡态。里德堡原子的主要性

质已在文献[2]中作了论述。

里德堡原子的自发辐射首先在星际空间发现,低密度的无碰撞原子束的建立为在实验室中观察和测定里德堡原子的自发辐射提供了条件。

1. 里德堡态的激发和检测

早期对里德堡原子的激发大多利用气体放电或紫外单光子吸收方法。可调谐激光的应用使里德堡原子的研究工作得到了新的发展。利用两束或两束以上可调谐激光分步激发,可以使单一的里德堡态得到布居,这种布居也可以通过激发态向下转移,然后再激发,或通过价态的激发,达到 $l = 4$ 的能级。原子被激发到里德堡态可以再吸收光子而电离。这种激光分步激发和电离的方法在70年代后期形成共振电离光谱学^[3],这一光谱技术不仅广泛用于原子高激发态的实验研究工作,而且在激光分离同位素,少数原子检测等技术上获得重要应用。近年来借助于高强度可调谐激光,对原子里德堡态的激发较多地使用了双光子吸收过程。

对原子里德堡态的检测,可以用光电离和电子倍增方法检测电子或离子。这种方法具有较高的检测灵敏度。但是,对一定波长的激光,原子的光电离截面随 n^{-3} 减小,因此对高里德堡态,光电离方法的灵敏度降低。在热管炉或热离子二极管中,碰撞电离也是检测里德堡原子的一种有效方法。当热离子二极管工作在空间电荷限制区时,其检测灵敏度可接近用倍增

方法检测离子的灵敏度。

检测里德堡原子最有效的方法是场电离方法。原子在外电场强度大于经典场电离限 $F_c = (2n)^{-4}$ 时电离, 在较强的电场中, 电离速率足以使里德堡原子在辐射衰变以前全部离子化。利用脉冲电场使原子电离并用电子倍增方法检测电子或离子, 是近年来广泛使用的一种检测技术。

2. 研究里德堡原子的高分辨率光谱方法

原子里德堡态的能级间距及其精细和超精细结构分裂随 n^{*-1} 减小, 因此高 n 里德堡态的选择性激发及能级精细和超精细结构的测定依赖于高分辨率光谱技术的发展。这些光谱技术主要有:

(1) 原子束技术

低密度的定向原子束不仅可以基本消除碰撞的影响, 而且利用激光束与原子束正交的方法, 可以消除一阶多普勒效应。近年来利用原子束技术和激光分步激发方法, 测定了碱金属、碱土金属、稀土元素及其他一些元素的大量里德堡态能级及其精细和超精细结构, 获得了大量和准确的原子数据。

(2) 无多普勒 (Doppler-free) 双光子吸收

当原子在两束反向传播的频率同为 ν 的激光束中各吸收一个光子跃迁至里德堡态时, 若原子在激光束方向的运动速度分量为 v_L , 则被吸收的两个光子频率分别为 $\nu \left(1 + \frac{v_L}{c}\right)$ 和 $\nu \times \left(1 - \frac{v_L}{c}\right)$, 其多普勒频移相消。双光子吸收与热离子二极管中的碰撞电离方法相结合, 光谱分辨率主要受染料激光线宽的限制。最近有人用双光子吸收方法测量 Ti 原子 $n^2 P_j$ 能级的超精细结构和同位素位移, 测量误差在 1MHz 量级^[4]。

(3) 双共振 (double resonance)

原子被光学共振激发到里德堡态后, 再用微波实现里德堡态间的共振跃迁, 并用场电离方法检测。由于多普勒宽度与原子里德堡态跃迁对应的微波频率成比例地减小, 因此对高里德堡态可实现高分辨率的检测。这一方法用于

Na 原子里德堡态的能级测定, 当微波频率在 75 GHz 附近改变时, 测量精度达到 10^{-6} 以上, 用于量子亏损的测定, 达到了更高的测量精度^[5]。

(4) 量子拍 (quantum beat)

用短脉冲激光使原子急剧激发至能量间距为 ΔW 的里德堡态, 当光脉冲宽度 Δt 满足 $\Delta t^{-1} > \Delta W/h$ 时, 产生邻近态的相干叠加, 然后通过荧光或延迟脉冲场电离方法, 观察衰变信号随时间的变化, 并测量其中叠加的拍频, 这种拍频对应于里德堡态的能量间隔。量子拍方法的光谱分辨率不受激光线宽的限制。最近用这一方法测量 Ti 原子 $n^2 P_j$ ($n = 10-13$) 能级的超精细分裂, 测量误差小于 1MHz^[6]。

近年来利用高分辨率光谱技术, 对原子里德堡态的研究工作在更高的激发态 ($n \sim 300$)、高 l 态、重原子 (特别是稀土元素原子) 里德堡态以及里德堡原子能级的超精细结构和同位素位移等方面已取得新的进展。

3. 里德堡原子与黑体辐射的相互作用

里德堡原子对黑体辐射非常敏感。70 年代末期首次证实室温下的黑体辐射引起原子里德堡能级布居的转移, 并且实验得出里德堡态的上转移原子数随黑体源温度线性地上升。黑体辐射的另一个效应是使原子里德堡态的能级移位, 这时辐射相当于一快速变化场, 它引起的能级交流斯塔克 (Stark) 位移与黑体温度平方成比例, 这一关系曾被建议用于环境绝对温度的测量。有关里德堡原子与黑体辐射相互作用的主要效应及其可能的应用已在文献 [7] 中论述。

近年来利用谐振腔研究原子与辐射场之间相互作用的工作有较多的开展。里德堡原子的辐射寿命与 n^3 成比例, 在原子与场的耦合时间内, 其自身的弛豫可以忽略, 因此里德堡原子在谐振腔内的行为已成为一个很好的量子电动力学试验系统。

在谐振腔内里德堡原子的自发辐射受到抑制的现象在 80 年代中期被多次的实验观察所证实, 与此同时, 也观察到在共振条件下引起的里德堡原子在谐振腔内辐射跃迁几率显著增

大,利用这种共振辐射效应可使少数里德堡原子产生微波受激辐射放大。最近由量子电动力学已得出了关于里德堡原子在谐振腔内行为的一般结果^[8]。

对多数个原子在谐振腔内的群体效应(collective effect),近年来也进行了较多的研究。对一个两能级系统,当里德堡原子处在上能级时,表现出群体振荡和超辐射;当里德堡原子处在下能级时,表现出群体吸收。对中等 Q 值($Q \sim 10^4$)的谐振腔,已用极低的粒子数反转密度($N \sim 10^4$ 原子)产生里德堡原子的受激辐射微波放大;对高 Q 值($Q \sim 10^6$)的谐振腔,观察到空腔与原子间的振荡能量交换。

二、原子的自电离态

原子的一个内层电子被激发,或两个外层电子被同时激发,其总能量大于第一电离限时,原子处在自电离态。原子的自电离态是嵌在一个或几个连续区中的一系列分立态,电子的库仑相互作用使这些态与连续态混合,并具有自电离性质。

原子的自电离态作为一种新颖的原子状态而具有研究价值,并由于和天体物理、受控核聚变等研究工作关系密切,以及可能为激光分离同位素提供有效的途径而受到重视。在理论上,Fano关于自电离态与连续区相互作用的理论给出了自电离态的基本性质及其光谱特征^[9]。近年来,多通道量子数亏损理论对原子自电离态的研究给出了不少定量的结果^[4]。在实验上,对原子自电离态的激发,早期的工作大多使用真空紫外单光子吸收过程,70年代后期以来,可调谐激光和同步辐射源几乎代替了一切其他光源,并促使原子自电离态的研究成为原子高激发态研究工作中的一个重要部分。

原子被激发到自电离态后很快弹射出一个电子并衰变到离子态。较高的自电离态可以分别衰变到几种离子激发态,并且各衰变通道之间具有一定的分支比。因此,利用原子自电离态的衰变可以形成离子态之间的粒子数反转,

产生放大的受激辐射。这种受激辐射已在Ba原子中实现。预期通过自电离态泵浦的离子激光器可能在真空紫外区成为一种新型光源。

1. 双重激发(doubly excited)自电离里德堡态

自电离态的研究工作较多地集中在一个价电子激发至较高 n 态,另一价电子激发至低 n 的双重激发态。这种自电离态相当于具有一个激发离子实的里德堡态。在实验上对双重激发自电离态的研究主要使用孤立实分步激发方法。这一方法是用两束可调谐激光,使基态原子中的一个价电子两步激发到高 n 态,然后再用第三束可调谐激光使离子实中的另一价电子共振激发,由于第三步激发过程中高 n 里德堡电子远离离子实,几乎是一“旁观者”,因此激发过程接近离子的共振激发过程。孤立实分步激发方法的每一步均为单电子偶极激发,只需很小的激光能量,而且第三步实电子的共振激发截面远大于光电离截面,可以避免连续态的干扰。70年代后期以来,利用孤立实分步激发方法和多通道量子数亏损理论,对碱土金属原子双重激发自电离里德堡系列的能级位置、线宽或自电离速率、线型、精细结构,以及不同通道自电离态之间的混合或相互作用等进行了较为系统的研究,对自电离态的认识获得了巨大进展^[9]。

原子的自电离态一般具有很高的衰变速率。但是,近年来陆续发现不少窄线宽的自电离态,它们具有较长的寿命,其中对Ba原子已测得线宽小于6MHz的自电离能级。这种亚稳自电离态的产生与组态相互作用密切相关。亚稳自电离态的存在,为利用激光多步级联激发获得更高能量的自电离态提供了途径,因而利用高能量自电离态选择性衰变的离子终态为产生极紫外激光提供了可能性。

2. 高激发双里德堡态

随着短波长可调谐激光器的发展和应用,原子中的两个价电子同时激发到高 n 态的行星原子(planetary atom)近年来已经实现^[10],并引起人们关注。这是原子高激发态的一个新的研究领域,它为控制和研究电子关联效应提

供了实验条件,并对研究三体量子体系问题具有一定意义。这种高自电离态的选择性衰变,对获得离子态间的真空紫外受激辐射更为有效。

原子的双重激发揭示了两个电子共同分担激发能的状态,促使在原子结构和动力学计算中用电子关联代替传统的电子独立运动模型。对双重激发态的研究,已导致引进相关量子数对原子的激发态进行新的分类和描述新的光谱学规律^[11]。

三、原子高激发态的外场效应

高激发态的原子对外场异常敏感。近十多年来对原子高激发态外场效应的研究,揭示了原子在外场中的一些奇异的效应。这些效应在天体物理、等离子体物理、激光物理、凝聚态物理以及其他与外场中的原子有关的学科中均具有重要意义。

原子高激发态外场效应理论研究中的主要困难在于外场的静电力、洛伦兹力和核的库仑力具有各自不同的对称性。大多数理论计算仍集中在氢原子,或以氢原子为模型的适当修正。在均匀外电场中,氢原子的哈密顿量在抛物坐标中变量是可分离的,因此和电场效应比较,磁场效应的理论计算更为困难。

原子高激发态磁场效应的研究工作,主要集中在强磁场中原子的抗磁性能级结构和在电离阈值附近出现的准朗道共振。电场效应的研究工作主要集中在两个电场区:(1)在经典场电离限以下原子在低电场中的能级 Stark 簇结构及在强电场中非氢原子的能级抗交叉结构;(2)在经典场电离限以上原子光谱呈现的共振结构。

1. 电场效应

氢原子在均匀外电场中的 Stark 光谱的大多数性质已用微扰理论和 WKB 方法近似得出。但是,由于原子在电子势能曲线的鞍点以上电离,以及非氢原子实库仑场的不对称性对能级结构的影响,使里德堡原子在外电场中的

性质异常复杂。

(1) 原子里德堡态的电场效应

在低于鞍点的能域,氢原子里德堡态在外电场中的能级结构已在文献[12]中论述过。对非氢原子的数值计算得出,在外场强度 $F < 1/3n^5$ 的低电场中,近简并的高 l 态混合并分裂成类氢的线性 Stark 簇,非简并的低 l 态只有很小的二阶 Stark 移位。在 $F > 1/3n^5$ 的强电场中,非氢原子能级之间存在明显的抗交叉结构。这种抗交叉结构主要由原子实库仑场的不对称性引起,与量子亏损的大小密切相关。对 Li, Na, Rb, Cs 等碱金属及 Ca, Sr, Ba 等碱土金属里德堡态的实验结果均与计算符合较好,最近对 Na 和 Ba 原子能级 Stark 结构的高分辨率光谱观察结果也与计算一致。

在高于鞍点的能域,原子的准稳定能级叠加在电离连续态上,在零场电离限附近,光谱呈现等能量间距的共振结构。这种共振结构与激发光的偏振方向和场强的大小密切相关,并且一直延伸到正能量区。70 年代末提出的电子在库仑场和外电场共同作用下存在准稳定轨道的半经典强场混合模型^[13]得出这种共振结构决定于跃迁终态的 m_l 值;对氢原子的 WKB 近似计算给出了共振峰能量间距正比于 $F^{3/4}$ 。这一结果与 Rb, Na, Ba 和 Yb 原子的实验结果一致。稍后提出的振子强度补偿量子理论^[14]得出,光电离光谱的共振结构不仅与跃迁振子强度有关,而且与跃迁终态的态密度有关。但是由于能级的精细和超精细结构的影响,对非氢原子的实验结果比对氢原子的计算结果更为复杂。

(2) 原子的场电离

对氢原子或非氢里德堡原子,当外电场强度 $F > (2n^*)^{-4}$ 时,原子电离^[12]。在稳定电场中,原子的电离速率随电场强度按接近指数的规律增大。在脉冲电场中,里德堡原子的电离过程与电场的上升速率有关。近年来对原子场电离的研究工作主要在于用快速的和线性上升的脉冲电场观察电离的非绝热和绝热路径^[15],研究场电离的多重阈值与能级精细结构的关系^[16]。原子的场电离广泛用于里德堡原子的检

测和分析里德堡态布居分布

(3) 原子自电离态的电场效应

自电离态的电场效应在物理上的重要性在于外电场不仅影响分立态之间的耦合,而且改变分立态与连续态之间的耦合。在高温等离子体中,双电子复合过程是影响电离平衡和辐射损耗的重要过程。原子的自电离是双电子复合的逆过程,自电离态的电场效应也由于直接与高温等离子体内微观电场区的双电子复合速率有关而受到重视。

70年代末期,首先发现外电场对Sr原子自电离态谱线线型及宽度的强烈影响,这种影响主要来自电场诱导的组态混合效应。在零场中,原子的自电离态衰变速率随量子数 l 的增大而减小,只有低 l 态具有较大的自电离速率,对高 l 态,辐射衰变可以代替自电离衰变。在电场中,Stark混合使高 l 态的自电离速率加大,衰变速率增大意味着能级加宽。

随着电场的增强,经典场电离限降低,零场中的双电子激发价态可以上升至经典场电离限以上而具有自电离性质。经典场电离限以上的里德堡态具有连续态性质。最近研究了这种强迫自电离(forced autoionization)态与电场诱导的连续态之间的相互作用^[17],得出其组态相互作用参数与零场中的参数相类似。因此,这种强迫自电离态可以作为一种研究组态相互作用的光谱学工具。

2. 磁场效应

在弱磁场中,原子的抗磁性可以忽略,其顺磁性能级分裂是早已熟知的塞曼效应。在强磁场中,外场与原子的相互作用远大于原子自身的自旋-轨道相互作用和超精细相互作用,电子和核的自旋效应可以忽略,原子的抗磁性加强。70年代中期以来,对原子在强磁场中的抗磁性能级分裂做了较多的理论和实验研究,对抗磁性能级结构得出了较好的结果^[12]。

在更强的磁场中,或对更高激发态的原子,外磁场的作用超过库仑场,此时原子在光子能量等于 $\hbar\omega$ 。整倍数的激光作用下,激发电子可以从较低的回旋能级跃迁到较高的回旋能级,

对应地在吸收光谱中呈现周期性的调制,即准朗道共振,共振峰的能量间隔由电子回旋频率 ω 。决定。在通常实验室容易达到的磁场中,准朗道共振主要在电离限附近产生,并且延伸到电离限以上的正能量区。用偏振光激发的实验得出,准朗道共振结构与激发终态的 m_l 值有关。高分辨率光谱实验发现,准朗道共振具有复杂的光谱结构,利用傅里叶变换可以把这种共振表示为几个正弦振荡的叠加^[18]。

对原子在电磁联合场中的研究工作,近年来也已进行。在弱交叉电磁场中,塞曼效应和线性Stark效应对原子能级的影响具有同一量级,能级分裂由回旋加速频率与线性Stark频率决定^[19]。在强平行电磁场中,对氢原子的非微扰量子计算得出,当场强比改变时,同一 n 簇内的能级相互排斥,并且当外场足够强时,不同 n 簇的能级之间出现很窄的抗交叉结构^[20]。

原子高激发态在强电磁场中呈现的异乎寻常的特性和规律,揭示了原子结构和性质的复杂性。对高激发态原子外场效应的研究,正促使人们对诸如原子结构的对称性效应,连续态的性质以及规则运动与混沌运动的关系等问题的认识不断深化。

- [1] 李家明,物理,15(1986),204.
- [2] 张绮香,物理,10(1981),273.
- [3] G. S. Hurst et al., *Rev. Mod. Phys.*, 51(1979), 767.
- [4] M. Grexa et al., *Phys. Rev. A*, 38(1988), 1263.
- [5] P. Goy et al., *J. Phys. B*, 13(1980), L83.
- [6] G. Hermann et al., *Z. Phys. D*, 3(1986), 297.
- [7] 韩全生,罗正纪,物理,11(1982),77.
- [8] A. O. Barut and J. P. Dowling, *Phys. Rev. A*, 36(1987), 649.
- [9] 陈文芹,物理,14(1985),523.
- [10] J. Boulmer et al., *J. Opt. Soc. Am. B*, 4(1987), 805.
- [11] C. D. Lin, *Phys. Rev. A*, 29(1984), 1019.
- [12] 潘少华,物理,14(1985),76
- [13] R. R. Freeman and N. P. Economou, *Phys. Rev. A*, 20(1979), 2356.
- [14] E. Luc-Koenig and A. Bachelier, *Phys. Rev. Lett.*, 43(1979), 921;
T. S. Luk et al., *Phys. Rev. Lett.*, 47(1981), 83.
- [15] T. H. Jey et al., *Phys. Rev. Lett.*, 44(1980), 398.
- [16] T. H. Jey et al., *Phys. Rev. Lett.*, 44(1980), 390.
- [17] W. Sandner et al., *Phys. Rev. A*, 33(1986), 1008.
- [18] M. L. Du and J. B. Deloe, *Phys. Rev. A*, 38(1988), 1896, 1913.
- [19] F. Penent et al., *Opt. Commun.*, 49(1984), 184.
- [20] K. Richter et al., *J. Phys. B*, 20(1987), L627.