



## Sm原子奇宇称Rydberg态光谱

许照锦, 张小虎, 张文纳, 黄朝宏, 沈礼

引用本文:

许照锦, 张小虎, 张文纳, 等. Sm原子奇宇称Rydberg态光谱[J]. *发光学报*, 2020, 41(8): 999–1008.

XU Zhao-jin, ZHANG Xiao-hu, ZHANG Wen-na, et al. Spectra of Odd-parity Rydberg States of Samarium Atom[J]. *Chinese Journal of Luminescence*, 2020, 41(8): 999–1008.

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.37188/fgxb20204108.0999>

## 您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

### 用双光子电离探测技术研究奇宇称的Eu原子光谱

Study of Odd-parity States of Eu Atom with Two-photon Ionization Detection Technique

发光学报. 2019, 40(1): 52–57 <https://doi.org/10.3788/fgxb20194001.0052>

### 镱原子Rydberg态的场电离研究

Field Ionization of Eu Rydberg States

发光学报. 2015(7): 757–762 <https://doi.org/10.3788/fgxb20153607.0757>

### 镱原子4f76p3/2nd自电离态的光谱

Spectra of Eu 4 f76 p3/2 nd Autoionizing States

发光学报. 2017, 38(11): 1461–1468 <https://doi.org/10.3788/fgxb20173811.1461>

### Eu原子4f76p3/2ns自电离态的光谱的研究

Study on Spectra of Eu 4f76p3/2ns Autoionizing States

发光学报. 2017, 38(12): 1611–1616 <https://doi.org/10.3788/fgxb20173812.1611>

### 镱原子4f76pns系列自电离态的光谱和动力学过程

Spectra and Dynamic Properties of Eu 4 f76 pns Autoionizing States

发光学报. 2018, 39(12): 1679–1686 <https://doi.org/10.3788/fgxb20183912.1679>

文章编号: 1000-7032(2020)08-0999-10

## Sm 原子奇宇称 Rydberg 态光谱

许照锦, 张小虎, 张文纳, 黄朝宏, 沈 礼\*

(天津理工大学 理学院, 天津 300384)

**摘要:** 结合共振激发和场电离探测技术, 通过总角动量量子数  $0 \rightarrow 1 \rightarrow 0 \rightarrow 1$  的激发路径, 研究了第一电离阈附近的 Sm 原子奇宇称 Rydberg 态  $4f^6snp (J=1)$ 。首先, 在  $45\,200 \sim 45\,500 \text{ cm}^{-1}$  能量范围内共发现了 94 个奇宇称 Rydberg 能级。其次, 通过对有效量子数和 Rydberg 能级结构特点的分析, 将其中 68 个能级归属为 3 个束缚 Rydberg 系列, 另外 26 个能级也给出了能级位置。然后, 利用 Rydberg-Ritz 公式, 对 3 个 Rydberg 系列分别进行了拟合, 获得了 Sm 原子的电离阈为  $(45\,519.61 \pm 0.79) \text{ cm}^{-1}$ 。最后, 采用 6 种偏振组合激发, 由偏振选择定则, 进一步验证了这些奇宇称 Rydberg 态总角动量量子数为 1。这些结果首次证实了场电离探测技术对 Sm 原子高激发 Rydberg 态的适用性, 并且通过对奇宇称 Rydberg 系列拟合得到的 Sm 原子电离阈与文献中通过偶宇称 Rydberg 系列获得的值  $(45\,519.64 \pm 1.39) \text{ cm}^{-1}$  基本一致。

**关键词:** Sm 原子; 奇宇称; Rydberg 态; 场电离; 偏振光谱

中图分类号: O433.1; O433.2

文献标识码: A

DOI: 10.37188/fgxb20204108.0999

## Spectra of Odd-parity Rydberg States of Samarium Atom

XU Zhao-jin, ZHANG Xiao-hu, ZHANG Wen-na, HUANG Chao-hong, SHEN Li\*

(School of Science, Tianjin University of Technology, Tianjin 300384, China)

\* Corresponding Author, E-mail: shenli@tjut.edu.cn

**Abstract:** With resonance excitation and field ionization detection technology, the samarium atom odd-parity Rydberg states  $4f^6snp (J=1)$  near the first ionization limit were studied *via* the excitation path of the total angular momentum quantum number  $0 \rightarrow 1 \rightarrow 0 \rightarrow 1$ . Firstly, a total of 94 odd-parity Rydberg levels were found in the energy range of  $45\,200 \sim 45\,500 \text{ cm}^{-1}$ . Secondly, 68 of these levels were assigned to three bound Rydberg series through the analysis of effective quantum number and structural characteristics of Rydberg energy levels, and energies of other 26 levels were given. Then, using the Rydberg-Ritz formula, the three series were fitted respectively, and the ionization limit of the samarium atom was  $(45\,519.61 \pm 0.79) \text{ cm}^{-1}$ . Finally, six kinds of polarization combination were used to excite the samarium atom, and the polarization selection rule further verified that the total angular momentum quantum number of the Rydberg states was 1. The results confirm the applicability of the field ionization detection technology to the highly excited Rydberg states of the samarium atom. Meanwhile, ionization limit of the samarium atom obtained by fitting from the odd-parity Rydberg series is corresponded to the value  $(45\,519.64 \pm 1.39) \text{ cm}^{-1}$  obtained by fitting from the even-parity Rydberg series from the reference.

**Key words:** samarium atom; odd-parity; Rydberg state; field ionization; polarization spectra

收稿日期: 2020-05-06; 修订日期: 2020-05-28

基金项目: 国家自然科学基金(11604243); 天津市高等学校创新团队培养计划项目(TD3-5029); 国家级大学生创新创业训练计划(201810060026)资助项目

Supported by National Natural Science Foundation of China(11604243); Program for Innovative Research Team in University of Tianjin(TD3-5029); National Undergraduate Training Programs for Innovation and Entrepreneurship(201810060026)

## 1 引 言

原子的高激发态研究不仅对原子物理学和天体物理学的发展具有十分重要的意义,而且也有许多实用价值,如激光分离同位素、新型激光器机理的探索以及受控核聚变反应中高温等离子体的诊断等<sup>[1-3]</sup>。近几十年来,随着激光器及相关技术的进步,碱土金属原子高激发态的研究已取得了十分丰硕的成果<sup>[4-9]</sup>。

近年来,这方面的研究已转移到能级结构更为复杂的稀土原子上,但研究多集中于 Yb、Tm、Eu 等稀土原子<sup>[10-11]</sup>。对于镧系稀土原子这类重元素而言,大多具有未填满的 4f 次壳层,因可能同时包含最外层电子和 4f 次壳层电子的跃迁,导致其光谱非常复杂<sup>[12-18]</sup>。尤其对于 Sm 原子而言,由于 Sm 原子基态  $4f^6 6s^2 \ ^7F_0$  上方存在着  $4f^6 6s^2 \ ^7F_J (J=1 \sim 6)$  这 6 个亚稳态,当加热 Sm 金属制备原子样品时,这些亚稳态上也会有布居,从而导致 Sm 原子的跃迁初态有多种可能。并且 Sm 原子具有 8 个价电子,这一特点使得在同一电子组态下会存在非常多的原子状态,所以 Sm 原子的能级结构极其复杂。总之,Sm 原子的这些特点会导致其原子光谱相比于其他稀土原子而言更具有挑战性<sup>[19-22]</sup>。

目前,Sm 原子的高激发态的研究主要集中在偶宇称高激发态<sup>[21,23-31]</sup>,仅有少量关于奇宇称高激发态的研究<sup>[32-33]</sup>。这主要是因为 Sm 原子的基态为偶宇称,对于 Sm 原子偶宇称高激发态而言,只需要两步共振跃迁;然而奇宇称高激发态需要三步共振跃迁,不确定因素更多,信号探测更加复杂。尤其对于电离阈附近的 Sm 原子高激发 Rydberg 态光谱,目前只有偶宇称<sup>[23]</sup>和同位素<sup>154</sup>Sm 奇宇称<sup>[32]</sup>的少量研究。

在高激发态光谱的研究中,所采用的电离探测技术一般有光电离<sup>[34-35]</sup>、场电离<sup>[36-37]</sup>和自电离<sup>[38]</sup>。由于光电离属于非共振电离,一般而言,电离光子的能量越接近于高激发态的电离能时电离截面越大。对于电离能只有十几到几百  $\text{cm}^{-1}$  的高激发 Rydberg 态而言,若想获得较高的光电离效率,所需电离光的波长远远超出染料激光器的波长范围。另外,虽然自电离属于共振电离,但是对于具有复杂能级结构的 Sm 原子而言,引入自电离光会产生其他不必要的跃迁,而且也会使得

实验相当复杂,带来更多的不确定性。当高激发 Rydberg 态的有效量子数越高时,所需的电离电场强度越弱。特别是对于电离能只有十几到几百  $\text{cm}^{-1}$  的高激发 Rydberg 态原子而言,3 000  $\text{V} \cdot \text{cm}^{-1}$  的电离电场足以将其电离。所以在接近电离阈的束缚 Rydberg 态原子更多地采用场电离探测方式。然而,目前尚没有利用场电离探测技术研究 Sm 原子高激发 Rydberg 态的报道。

为此,本文结合共振激发和场电离探测技术,对 Sm 原子在 45 200 ~ 45 500  $\text{cm}^{-1}$  范围内的奇宇称高激发 Rydberg 态  $4f^6 6snp (J=1)$  进行了系统的研究。给出了大量从未报道过的高激发态的光谱数据信息,通过量子亏损分析,得到了 3 个束缚 Rydberg 系列,并利用 Rydberg-Ritz 公式拟合得到了 Sm 原子第一电离阈的位置。另外,通过不同偏振组合激发,进一步确认了这些 Rydberg 态的总角动量量子数。

## 2 实 验

### 2.1 实验装置

本文所采用的实验装置由激光系统、原子束制备系统和信号采集与分析系统组成,如图 1 所示。激光系统包括 Quanta System 公司生产的一台 Nd: YAG 固体激光器(型号 GNT 0021-0805/L)和 3 台波长可调谐的染料激光器。其中 YAG 激光器输出激光的脉冲宽度为 6 ~ 8 ns,频率为 20 Hz,基频光波长为 1 064 nm,经过倍频后输出 532 nm 的脉冲激光,用于泵浦 3 台染料激光器。通过调谐,3 台染料激光器分别输出 672. 773 nm、684. 662 nm 和 623. 500 ~ 636. 000 nm 的激光,线宽为 0.1  $\text{cm}^{-1}$ 。三步激光  $\lambda_1$ 、 $\lambda_2$  和  $\lambda_3$  分别通过偏振片和半波片或四分之一波片,确保达到实验所需的偏振状态。因为 Sm 原子的能级密度非常高,通过改变光程使得三步激光依次延时 8 ns 进入真空腔,保证 Sm 原子依次被三步激光激发至选定的 Rydberg 态从而避免不必要的激发。

图 1 中虚线圆部分处于真空腔中,包括原子束产生装置、激光与原子相互作用区、离子探测装置(微通道板)。利用机械泵-分子泵组合,真空腔中的压强维持在  $2.0 \times 10^{-5}$  Pa 以下。通过钽加热丝和温控装置保证原子炉温度在 837 K,产生的 Sm 原子蒸气从原子炉的小孔喷出。喷射出的 Sm 原子束经过准直后基本与激光束正交,这样可以尽量地避免谱线的 Doppler 展宽效应。作

用区的电场通过在两个距离为 1 cm 的平行金属板上施加电压实现, 金属板中间的栅网既保证了作用区的电场为均匀电场又保证了电离后的  $\text{Sm}^+$  离子可以飞出作用区。在远离微通道板的金属板上通过 Avtech 公司生产的型号为 AVRH-3-B-PN 的脉冲电源施加脉冲电压, 产生幅值为

$3\ 000\ \text{V} \cdot \text{cm}^{-1}$  的脉冲电场, 通过使用 AMETEK 公司 9650 型脉冲延时发生器控制脉冲电场与激光  $\lambda_3$  之间的延时为  $0.5\ \mu\text{s}$ , 以避免在光与原子作用时由于电场的存在而产生 Stark 效应。脉冲电场起到电离低于第一电离阈的 Rydberg 态 Sm 原子和收集产生的  $\text{Sm}^+$  离子的作用。

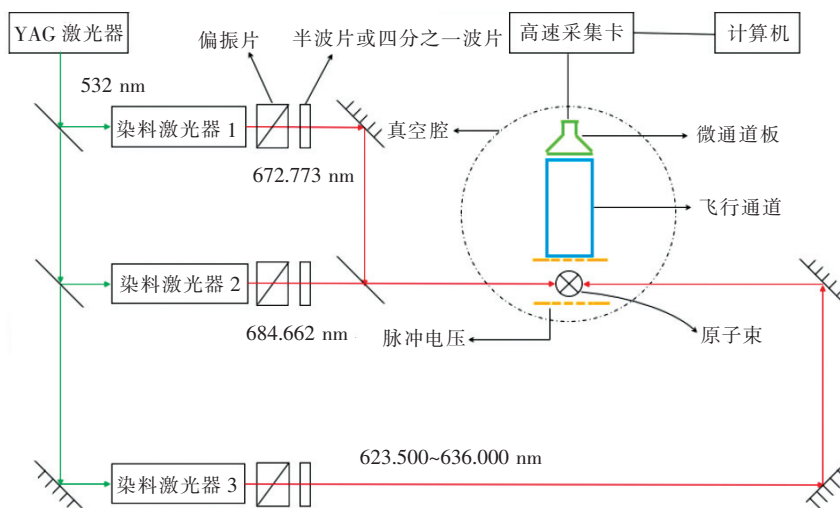


图 1 实验装置图

Fig. 1 Experimental setup diagram

飞出作用区的  $\text{Sm}^+$  离子通过飞行管道自由飞行至高增益(增益约为  $10^8$ )、快响应的微通道板, 再利用 Agilent Technologies 公司生产的高速采集卡(型号 U1071A)对经过微通道板放大的信号进行模拟-数字转换, 转换后的信号输入计算机, 以便进一步分析和处理。

Rydberg 态能级位置由文献[39]中  $4f^6 6s 7s\ ^7F_0$  态的能量与  $\lambda_3$  的光子能量之和确定。其中激光波长使用相干公司的 WaveMaster 波长计测量得到, 精度可以达到  $0.01\ \text{cm}^{-1}$ 。另外, 我们也对同一光谱进行了多次测量, 以便把波长的随机误差减到最小。所以, 本实验获得的 Rydberg 能级不确定度为  $\pm 0.1\ \text{cm}^{-1}$ , 这主要是由激光线宽决定的。

## 2.2 实验原理

在多步共振跃迁中, 从基态到高激发态的总的跃迁几率取决于每步光的偏振状态和所有参与跃迁的原子态。在电偶极跃迁中, 跃迁几率  $W_1$  正比于与跃迁有关的 Wigner  $3J$  符号模的平方<sup>[40]</sup>:

$$W_1 \propto \begin{bmatrix} J_2 & 1 & J_1 \\ -M_2 & \varphi & M_1 \end{bmatrix}^2, \quad (1)$$

其中  $J_1, M_1$  为跃迁初态的总角动量量子数和磁量子数;  $J_2, M_2$  为跃迁末态的总角动量量子数和磁量子数;  $\varphi$  表示光子的磁量子数, 激光为线偏振光( $\pi$ )时,  $\varphi = 0$ , 为圆偏振( $\sigma^\pm$ )时  $\varphi = \pm 1$ 。对于两步及以上跃迁, 总的跃迁几率  $W$  等于每步跃迁几率之积。需要注意的是, 对于垂直线偏振光( $\pi\sigma$ 组合), 由于两步光量子化轴的不同, 需要将第二步线偏振光分解为右旋和左旋圆偏振光两部分( $\sigma^+$ 和 $\sigma^-$ ), 此时  $\varphi_1 = 0$  而  $\varphi_2 = \pm 1$ 。在零场下, 对于总角动量量子数为  $J$  的原子态而言能级简并度为  $2J + 1$ , 磁量子数  $M$  的取值范围为  $-J \sim J$ 。所以总的跃迁几率

$$W \propto \sum_q \prod_{i=1}^k \left| \begin{bmatrix} J_i & 1 & J_{i-1} \\ -M_i & \varphi_i & M_{i-1} \end{bmatrix} \right|^2, \quad (2)$$

其中  $k$  表示跃迁的步数,  $q$  表示考虑到所有参与到跃迁的能级的简并度以后可能跃迁的数目。如文中所采用的  $0 \rightarrow 1 \rightarrow 0 \rightarrow 1$  激发路径, 那么两个总角动量为 0 的能级的简并度为 1, 两个总角动量量子数为 1 的能级的简并度为 3, 所以  $q$  的取值为 9。对于  $k = 3$  的三步跃迁而言, 存在 8 种可能的线偏振组合:  $\pi\pi\pi$ 、 $\pi\pi\sigma$ 、 $\pi\sigma\pi$ 、 $\sigma\pi\pi$ 、 $\pi\sigma\sigma$ 、

$\sigma\pi\sigma$ 、 $\sigma\sigma\pi$  和  $\sigma\sigma\sigma$ , 考虑到对称性, 仅有 3 种组合  $\pi\pi\pi$ 、 $\pi\pi\sigma$  和  $\pi\sigma\pi$  是独立的。同理, 圆偏振组合中也仅有  $\sigma^+\sigma^+\sigma^+$ 、 $\sigma^+\sigma^+\sigma^-$  和  $\sigma^+\sigma^-\sigma^+$  这 3 种组合是独立的。当  $J_0 = 0$ 、 $J_1 = 1$  和  $J_2 = 0$  时, 根据电偶极跃迁选择定则,  $\Delta J = 0, \pm 1$  ( $0 \rightarrow 0$  除外), Rydberg 态总角动量量子数  $J_3$  只能为 1。对于这 6 种偏振组合, 三步跃迁总的跃迁几率列在表 1 中, 其中  $a$  表示与约化跃迁矩阵元成比例的常数。可以看到,  $\pi\sigma\pi$ 、 $\sigma^+\sigma^+\sigma^+$  和  $\sigma^+\sigma^+\sigma^-$  这 3 种偏振组合下总的跃迁几率为 0, 即最终不会将原子布局到 Rydberg 态。而另 3 种组合下总的跃迁几率相等。

表 1 不同偏振组合下的总跃迁几率

Tab. 1 Total transition probability at different polarization combinations

组合	三步光偏振			总跃迁几率
	$\lambda_1$	$\lambda_2$	$\lambda_3$	
1	$\pi$	$\pi$	$\pi$	$a$
2	$\pi$	$\pi$	$\sigma$	$a$
3	$\pi$	$\sigma$	$\pi$	0
4	$\sigma^+$	$\sigma^+$	$\sigma^+$	0
5	$\sigma^+$	$\sigma^+$	$\sigma^-$	0
6	$\sigma^+$	$\sigma^-$	$\sigma^+$	$a$

本文采用三色三光子将 Sm 原子依次激发至第一电离阈附近的  $4f^6 6snp$  Rydberg 态。激发路径如图 2 所示。因为 Sm 原子基态  $4f^6 6s^2 {}^7F_0$  与其上方的 6 个亚稳态  $4f^6 6s^2 {}^7F_J$  ( $J = 1 \sim 6$ ) 的最大能量差仅为  $4\,020.66\text{ cm}^{-1}$ <sup>[39]</sup>, 由于热布居使得基态和这 6 个亚稳态均有原子布居。为了最大比例地激发 Sm 原子和保证 Rydberg 态的总角动量量子数为 1, 我们选择总角动量量子数  $0 \rightarrow 1 \rightarrow 0 \rightarrow 1$  的激发路径。首先, 波长为  $\lambda_1 = 672.773\text{ nm}$  的激光将处于基态  $4f^6 6s^2 {}^7F_0$  的 Sm 原子其中一个 6s 态电子共振激发到 6p 态, 此时 Sm 原子处于  $4f^6 6s6p {}^9F_1$  中间态。然后, 波长为  $\lambda_2 = 684.662\text{ nm}$  的激光进一步激发该价电子到 7s 态, 此时 Sm 原子处于  $4f^6 6s7s {}^7F_0$  态。最后,  $\lambda_3$  在  $623.500 \sim 636.000\text{ nm}$  范围内扫描, 将 Sm 原子激发到  $4f^6 6snp$  ( $J = 1$ ) Rydberg 态。由于 Sm 原子能级结构非常复杂, 因此上述激光中的两束激光也可能使 Sm 原子光电离, 如  $\lambda_1$  和  $\lambda_3$  使得 Sm 原子跃迁到某一束缚态, 再通过吸收一个  $\lambda_3$  光子电离。在本文中, 为了避免这些干扰峰的影响, 通过挡住

$\lambda_1$  或  $\lambda_2$  再扫描  $\lambda_3$  从而将其识别出来, 以确保所分析的能级都是三步光共同作用下得到的 Rydberg 态。

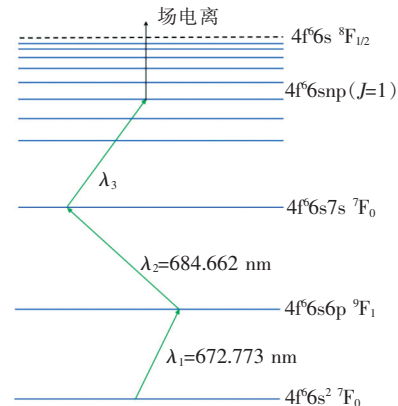


图 2 激发路径示意图

Fig. 2 Schematic diagram of excitation

### 3 结果与讨论

#### 3.1 Rydberg 态光谱

$\pi\pi\pi$  偏振组合下得到的 Sm 原子奇宇称 Rydberg 态光谱如图 3 (a) 所示, 图 3 (b) 为挡住  $\lambda_2$  扫描  $\lambda_3$  获得的光谱图。在图 3 (b) 中发现的能级只依赖于  $\lambda_1$  和  $\lambda_3$ , 而与  $\lambda_2$  无关。这些能级在图 3 (a) 中用 \* 号表示, 在分析 Rydberg 态时需要剔除。另外, 挡住  $\lambda_1$  扫描  $\lambda_3$  没有发现能级。可以看到, 整个光谱范围存在有大量的能级, 并且随着能量的升高, 能级密度逐渐增加, 特别是在第一电离阈附近, 由于能级间隔小于激光线宽, 导致这些能级无法分辨。然而, 由于 Sm 原子能级结构的复杂性, 导致光谱中 Rydberg 能级并不像 Eu 原子一样可以非常清楚地确定主量子数<sup>[37]</sup>, 这需要进一步地分析量子亏损和能级的演化规律来确定。

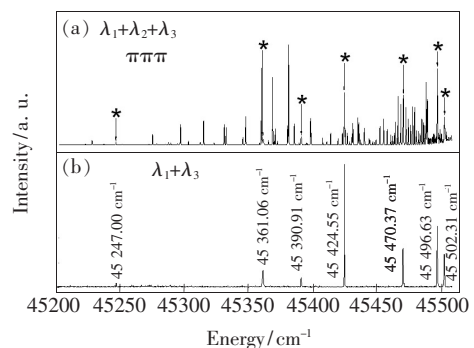


图 3 Sm 原子 Rydberg 态光谱

Fig. 3 Spectra of Rydberg states of the Sm atom

### 3.2 量子亏损和 Rydberg 系列

根据 Rydberg-Ritz 公式,有效量子数

$$n^* = \sqrt{\frac{R_{\text{Sm}}}{I_0 - E_{\text{Ryd}}}}, \quad (3)$$

其中,  $R_{\text{Sm}} = 109\,736.92\text{ cm}^{-1}$  是 Sm 原子 Rydberg 常数,  $E_{\text{Ryd}}$  是 Rydberg 态 Sm 原子的能量,  $I_0 = 45\,519.64\text{ cm}^{-1}$ [23] 是零场下 Sm 原子的第一电离阈。

为了进一步确认图 3 中获得的 Rydberg 态所归属的系列,将图 3 中的 Rydberg 态光谱划分为 3 个能域分析:  $45\,325 \sim 45\,400\text{ cm}^{-1}$ 、 $45\,428 \sim 45\,472\text{ cm}^{-1}$  和  $45\,472 \sim 45\,507\text{ cm}^{-1}$ , 如图 4(a)~(c) 所示。可以看到,在两个较低能域范围内观察到明显的双峰结构,并且两个光谱峰的能量差随着能量的升高而逐渐减小,由于其他干扰能级的影响,导致在有些能域,甚至出现了双峰结构消失的现象。当能量升高至  $45\,472\text{ cm}^{-1}$  以上时,由于两个光谱峰的能量差小于激光线宽,双峰基本上观察不到。随着能量的进一步升高,这些 Rydberg 能级间隔越来越小,直至  $45\,496.63\text{ cm}^{-1}$  以上,相邻 Rydberg 能级间隔小于激光线宽,导致它们无法分辨。通过公式(3)可以计算出这些 Rydberg 能级的有效量子数。由于文献[39]中所报道的奇宇称能级主量子数均小于 7,以及文献[32]中奇宇称能级 Rydberg 电子是 f 电子,所以本文中得到的 Rydberg p 电子的主量子数并没有办法完全确定。不过,根据量子亏损  $\delta = n - n^*$  不为负的特点,我们所得到的  $n$  与真实的 Rydberg 能级主量子数会相差 1 或 2。通过双峰结构随着能量升高的演变规律以及同一系列不同主量子数的能级量子亏损近似为常数的特点,可以将这些 Rydberg 能级分为 3 个系列,能域范围分别为:  $45\,252.00 \sim 45\,444.24\text{ cm}^{-1}$ 、 $45\,243.53 \sim 45\,467.75\text{ cm}^{-1}$  和  $45\,459.54 \sim 45\,495.62\text{ cm}^{-1}$ 。这 3 个 Rydberg 系列所对应的能级位置、主量子数和有效量子数

子数如表 2 所示。

从表 2 中可以看到,每个 Rydberg 系列中都有有一些 Rydberg 能级没有出现在光谱中。这主要

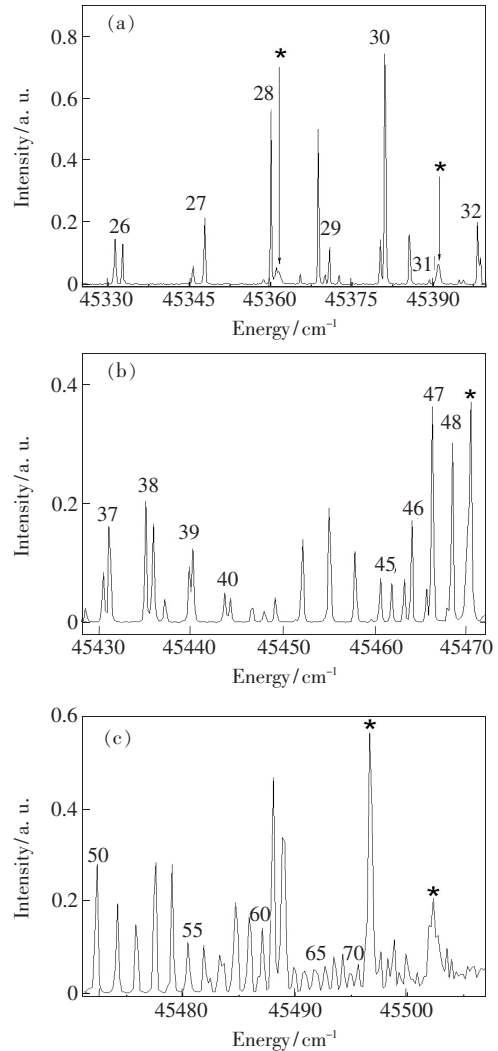


图 4 不同能域范围内的 Sm 原子 Rydberg 态光谱。(a)  $45\,325 \sim 45\,400\text{ cm}^{-1}$ ; (b)  $45\,428 \sim 45\,472\text{ cm}^{-1}$ ; (c)  $45\,472 \sim 45\,507\text{ cm}^{-1}$ 。

Fig. 4 Spectra of Rydberg states of the Sm atom in different energy regions. (a)  $45\,325 - 45\,400\text{ cm}^{-1}$ . (b)  $45\,428 - 45\,472\text{ cm}^{-1}$ . (c)  $45\,472 - 45\,507\text{ cm}^{-1}$ .

表 2 不同 Rydberg 系列的能级位置和有效量子数

Tab. 2 Energy levels and effective quantum numbers of different Rydberg series

序号	$n$	系列 1		系列 2		系列 3	
		$E_{\text{Ryd}}/\text{cm}^{-1}$	$n^*$	$E_{\text{Ryd}}/\text{cm}^{-1}$	$n^*$	$E_{\text{Ryd}}/\text{cm}^{-1}$	$n^*$
1	22	45 252.00	20.25	45 243.53	19.94		
2	23	45 275.44	21.20	45 272.75	21.08		
3	24	45 297.21	22.21	45 294.88	22.10		
4	25	45 315.17	23.17	45 312.63	23.03		

表 2(续)

序号	$n$	系列 1		系列 2		系列 3	
		$E_{\text{Ryd}}/\text{cm}^{-1}$	$n^*$	$E_{\text{Ryd}}/\text{cm}^{-1}$	$n^*$	$E_{\text{Ryd}}/\text{cm}^{-1}$	$n^*$
5	26	45 332.66	24.23	45 331.25	24.14		
6	27	45 347.82	25.27	45 345.68	25.12		
7	28	45 360.06	26.23	45 358.72	26.12		
8	29	45 370.90	27.16	45 370.12	27.09		
9	30	45 381.07	28.14	45 380.29	28.06		
10	31	45 390.90	29.20	45 389.33	29.02		
11	32	45 398.79	30.14	45 398.20	30.06		
12	33	45 407.52	31.29				
13	34	45 413.85	32.21				
14	35	45 419.60	33.12				
15	36	45 425.12	34.08	45 424.53	33.97		
16	37	45 431.03	35.20	45 430.44	35.08		
17	38	45 435.87	36.20	45 435.05	36.02		
18	39	45 440.15	37.16	45 439.75	37.07		
19	40	45 444.24	38.15	45 443.62	38.00		
20	41			45 447.89	39.11		
21	42						
22	43			45 454.94	41.19		
23	44			45 457.75	42.11	45 459.54	42.74
24	45			45 460.56	43.11	45 461.76	43.55
25	46			45 463.14	44.08	45 463.96	44.40
26	47			45 465.55	45.05	45 466.16	45.31
27	48			45 467.75	46.00	45 468.36	46.27
28	49						
29	50					45 472.38	48.20
30	51					45 474.20	49.15
31	52					45 475.81	50.05
32	53					45 477.61	51.11
33	54					45 479.04	52.00
34	55					45 480.45	52.93
35	56					45 481.86	53.91
36	57					45 483.27	54.95
37	58					45 484.68	56.05
38	59					45 485.89	57.04
39	60					45 487.07	58.06
40	61					45 488.07	58.98
41	62					45 488.86	59.73
42	63					45 489.87	60.73
43	64					45 490.84	61.75
44	65					45 491.63	62.62
45	66					45 492.64	63.78
46	67					45 493.43	64.74
47	68					45 494.23	65.74
48	69					45 494.82	66.52
49	70					45 495.62	67.62

有以下三点原因:(1)随着能量的升高,双峰间隔逐渐减小以至于小于激光线宽导致无法分辨。这些无法分辨的双峰能级的系列归属,由该能级与哪个 Rydberg 系列的有效量子数小数部分更接近来确定,如系列 1 中  $n = 33 \sim 35$  能级没有归属到系列 2 中。(2)由于其他干扰能级的影响导致 Rydberg 能级的跃迁强度非常小以至于无法观察到,如系列 2 中  $n = 42$  能级。(3)由于挡住  $\lambda_2$  扫描  $\lambda_3$  仍然存在的能级与 Rydberg 能级重叠使得 Rydberg 能级位置无法准确给出,如系列 3 中  $n = 49$  能级。

除了这些可以确定 Rydberg 系列的能级以外,还有一些能级难以归属到其中任何一个系列,这主要是因为 Sm 原子能级结构非常复杂,这些能级 ( $J = 1$ ) 的能量位置如表 3 所示。

表 3 不归属于 3 个 Rydberg 系列的奇宇称能级

Tab. 3 Even-parity energy levels that do not belong to any of the three Rydberg series

序号	$E_{\text{Ryd}}/\text{cm}^{-1}$	序号	$E_{\text{Ryd}}/\text{cm}^{-1}$	序号	$E_{\text{Ryd}}/\text{cm}^{-1}$
1	45 223.40	10	45 323.25	19	45 426.70
2	45 228.52	11	45 365.47	20	45 428.48
3	45 237.74	12	45 368.75	21	45 437.09
4	45 278.72	13	45 372.65	22	45 446.48
5	45 285.29	14	45 385.58	23	45 449.09
6	45 287.85	15	45 394.83	24	45 452.10
7	45 289.80	16	45 395.62	25	45 482.45
8	45 296.63	17	45 410.88	26	45 483.68
9	45 303.47	18	45 422.96		

### 3.3 跃迁强度

每个 Rydberg 系列中从  $4f^6 6s 7s \ ^7F_0$  中间态跃迁到  $4f^6 6snp (J = 1)$  Rydberg 态的强度随  $n$  的变化如图 5 所示。可以看到,系列 1, 2 中低  $n$  值的能级跃迁强度较弱,这主要是因为  $n$  值越低, Rydberg 能级寿命越短,电离电场相对于光激发延时了  $0.5 \mu\text{s}$ ,在电离电场作用时,这些低  $n$  值的 Rydberg 态 Sm 原子大部分已经衰减到其他能级而没有被探测到。当  $n$  足够大时, Rydberg 能级在没有受到其他能级干扰时,随着  $n$  的增加,跃迁强度应该逐渐减小,在 3 个系列中都观察到这个现象。但是,需要注意的是,有些能级相对于周围的能级,跃迁强度存在突变。这主要是因为基态 Sm 原子 2 个或以上的价电子激发后有可能使 Sm 原

子的能量低于第一电离阈,如  $4f^6 5d 6p$  态,那么这些能级如果处于本文所研究的能域会对束缚 Rydberg 态产生干扰,甚至出现能级消失的现象。

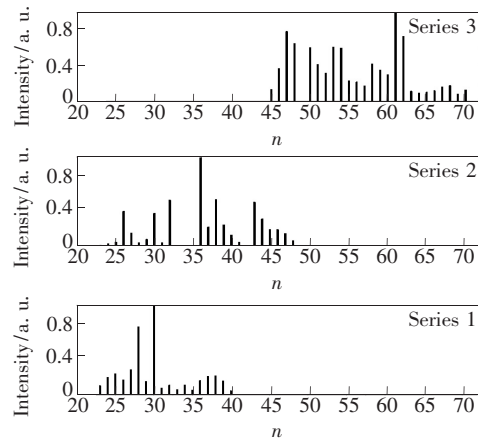


图 5 Rydberg 系列跃迁强度的变化

Fig. 5 Variation in transition intensity of different Rydberg series

### 3.4 第一电离阈

为了通过 Rydberg 系列获得 Sm 原子的第一电离阈,我们利用公式<sup>[23]</sup>:

$$n = n^* + a + b(I_0 - E_{\text{Ryd}}) + c(I_0 - E_{\text{Ryd}})^2, \quad (4)$$

其中  $a, b$  和  $c$  为拟合常数。结合公式(3)和(4),对 3 个 Rydberg 系列拟合结果如图 6 所示。

各拟合常数和每个 Rydberg 系列拟合得到的第一电离阈如表 4 所示。可以看到,每个 Rydberg

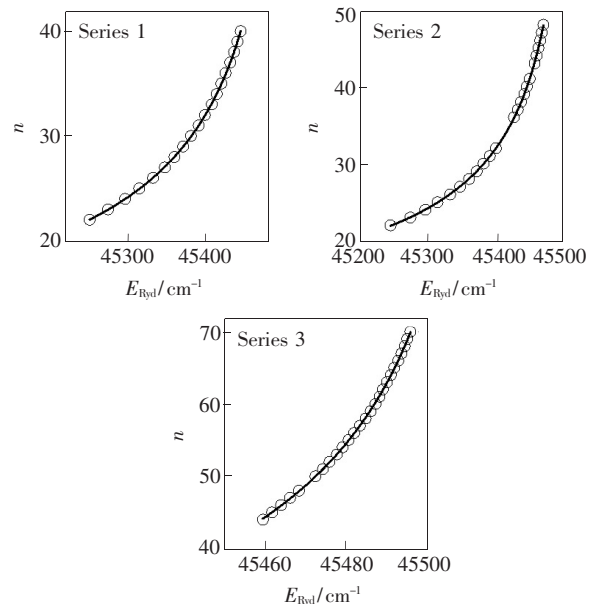


图 6 不同系列 Rydberg 能级与  $n$  的关系

Fig. 6 Rydberg levels versus  $n$  of different series



系列拟合得到的第一电离阈基本接近,取平均值  $45\,519.61\text{ cm}^{-1}$ ,综合误差为  $\pm 0.79\text{ cm}^{-1}$ ,该值与文献[23]中的值  $(45\,519.64 \pm 1.39)\text{ cm}^{-1}$  非常接近,说明了实验数据的可靠性。

表 4 不同 Rydberg 系列的能级位置和有效量子数

Tab. 4 Energy levels and effective quantum numbers of different Rydberg series

	$a$	$b$	$c$	$I_0/\text{cm}^{-1}$
系列 1	1.790	$4.585 \times 10^{-5}$	$-5.694 \times 10^{-7}$	45 519.40
系列 2	1.986	$-9.267 \times 10^{-4}$	$3.373 \times 10^{-5}$	45 519.65
系列 3	3.232	-0.026 9	$-4.172 \times 10^{-5}$	45 519.79

### 3.5 偏振光谱

如图 7 所示为在不同偏振组合下的奇宇称

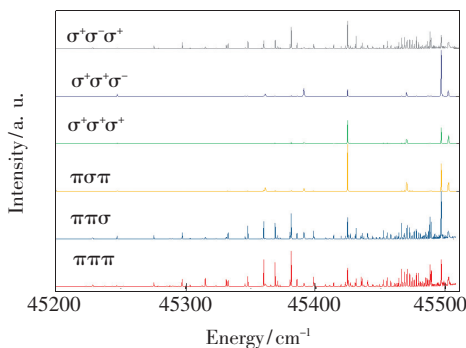


图 7 不同偏振组合下的 Sm 原子 Rydberg 态光谱

Fig. 7 Spectra of Rydberg states of the Sm atom with different polarization combinations

Rydberg 态 Sm 原子光谱。可以看到,在  $\pi\sigma\pi$ 、 $\sigma^+\sigma^+\sigma^+$  和  $\sigma^+\sigma^+\sigma^-$  这 3 种偏振组合下,光谱图中只存在  $\lambda_1 + \lambda_3$  所对应的能级,这说明此时总角动量量子数为 1 的奇宇称 Rydberg 态是禁戒跃迁。而在另 3 种组合下,忽略由于激光强度、原子束强度等造成的信号波动,每个能级的跃迁强度基本一致。这些规律都和表 1 中所列的一致。

## 4 结 论

本文结合共振激发和场电离探测技术,获得了在  $45\,200 \sim 45\,500\text{ cm}^{-1}$  能量范围内的 Sm 原子奇宇称高激发 Rydberg 态  $4f^6 6snp (J=1)$  态光谱,共发现了 94 个奇宇称 Rydberg 能级。通过有效量子数和能级的变化规律,确定了 3 个束缚 Rydberg 系列,也给出了难以归属到某个 Rydberg 系列的 26 个 Rydberg 态的能级位置。分析了组态相互作用对 Rydberg 态跃迁的影响,并通过对 3 个 Rydberg 系列拟合,获得了 Sm 原子的电离阈为  $(45\,519.61 \pm 0.79)\text{ cm}^{-1}$ 。除此之外,采用 6 种偏振组合激发,由偏振选择定则,进一步验证了这些奇宇称 Rydberg 态总角动量为 1。这些结果首次证实了场电离探测技术对 Sm 原子高激发 Rydberg 态的适用性,并且通过对奇宇称 Rydberg 系列拟合得到的 Sm 原子电离阈与文献中通过偶宇称 Rydberg 系列获得的值  $(45\,519.64 \pm 1.39)\text{ cm}^{-1}$  基本一致。

## 参 考 文 献:

- [1] HOLLENSTEIN U, SEILER R, SCHMUTZ H, *et al.*. Selective field ionization of high Rydberg states: application to zero-kinetic-energy photoelectron spectroscopy [J]. *J. Chem. Phys.*, 2001, 115(12):5461-5469.
- [2] RATH A D, KUNDU S, RAY A K. Total angular momenta of high-lying odd levels of U I at  $\sim 4\text{ eV}$  using resonance ionization laser polarization spectroscopy [J]. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, 2018, 206:328-332.
- [3] MATSUOKAL, HASEGAWA S. Two-color resonance ionization spectroscopy of highly excited titanium atoms [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2007, 24(10):2562-2579.
- [4] WANG Q, WANG S, KANG Z H, *et al.*. Experimental branching fractions, transition probabilities and oscillator strengths of some levels in Ba I [J]. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, 2017, 199:89-92.
- [5] FIELDS G, ZHANG X, DUNNING F B, *et al.*. Autoionization of very-high- $n$  strontium Rydberg states [J]. *Phys. Rev. A*, 2018, 97(1):013429-1-11.
- [6] KALAITZIS P, DANAKAS S, BORDAS C, *et al.*. Near-saddle-point-energy photoionization microscopy images of Stark states of the magnesium atom [J]. *Phys. Rev. A*, 2019, 99(2):023428-1-8.
- [7] YANG H F, GAO W, QUAN W, *et al.*. Core effect on the diamagnetic spectrum of barium Rydberg states [J]. *Phys. Rev. A*, 2012, 85(3):032508-1-6.
- [8] VAILLANT C L, JONES M P A, POTVLIERGE R M. Long-range Rydberg-Rydberg interactions in calcium, strontium and ytterbium [J]. *J. Phys. B: Atomic, Mol. Opt. Phys.*, 2012, 45(13):135004-1-12.

- [ 9 ] 袁卫国,戴长建,靳嵩,等. Ba 原子 6pnd ( $J=1,3$ ) 自电离光谱的实验研究 [J]. 物理学报, 2008,57(7):4076-4082.  
YUAN W G,DAI C J,JIN S,*et al.*. Study of Ba 6pnd ( $J=1,3$ ) autoionizing states [J]. *Acta Phys. Sinica*, 2008, 57(7):4076-4082. (in Chinese)
- [ 10 ] ZHU S B,CHEN T,LI X L,*et al.*. Polarization spectroscopy of  $^1S_0-^1P_1$  transition of neutral ytterbium isotopes in hollow cathode lamp [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2014,31(10):2302-2309.
- [ 11 ] O' MALLEY S M,BECK D R. Three long-lived excited states of  $Tm^-$  [J]. *Phys. Rev. A*, 2004,70(2):022502-1-9.
- [ 12 ] SHEN X P,WANG W L,ZHAI L H,*et al.*. New spectroscopic data on high-lying excited even-parity levels of atomic neodymium [J]. *Spectrochim. Acta Part B:At. Spectrosc.*, 2018,145:96-98.
- [ 13 ] WENDT K,GOTTWALD T,MATTOLAT C,*et al.*. Ionization potentials of the lanthanides and actinides-towards atomic spectroscopy of super-heavy elements [J]. *Hyperfine Interact.*, 2014,227(1):55-67.
- [ 14 ] STUDER D,HEINITZ S,HEINKE R,*et al.*. Atomic transitions and the first ionization potential of promethium determined by laser spectroscopy [J]. *Phys. Rev. A*, 2019,99(6):062513-1-8.
- [ 15 ] SHANG X,ZHOU C X,MA L,*et al.*. The determination of radiative lifetime for some Eu I levels by time-resolved laser-induced fluorescence spectroscopy [J]. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, 2019,224:103-106.
- [ 16 ] NIKI H,MOTOKI K,YASUI M,*et al.*. Selectivity and efficiency of laser isotope separation processes of gadolinium [J]. *J. Nucl. Sci. Technol.*, 2006,43(4):427-431.
- [ 17 ] ANG'ONG'AJ,GADWAY B. Polarization spectroscopy of atomic erbium in a hollow cathode lamp [J]. *J. Phys. B:At. Mol. Opt. Phys.*, 2018,51(4):045003-1-12.
- [ 18 ] CHHETRI P,ACKERMANN D,BACKE H,*et al.*. Precision measurement of the first ionization potential of nobelium [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2018,120(26):263003-1-6.
- [ 19 ] GOMONAI A I,REMETA E Y. The effect of field strength on the resonance structure of three-photon ionization spectra of the samarium atom [J]. *Opt. Spectrosc.*, 2013,114(3):329-336.
- [ 20 ] LAWLER J E,FITTANTE A J,DEN HARTOG E A. Atomic transition probabilities of neutral samarium [J]. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 2013,46(21):215004-1-15.
- [ 21 ] SEEMA A U,MANDAL P K,SAHOO A C,*et al.*. Radiative lifetimes of even-parity high-lying levels of Sm I by delayed photoionization measurements [J]. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, 2018,216:1-5.
- [ 22 ] SAHOO A C,MANDAL P K,SHAH M L,*et al.*. Enhancement of photoionization by applying polarization-based common level excitation scheme for the selective photoionization of odd isotopes of samarium [J]. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, 2019,235:7-14.
- [ 23 ] JAYASEKHARAN T,RAZVI M A N,BHALE G L. Even-parity bound and autoionizing Rydberg series of the samarium atom [J]. *J. Phys. B:At. Mol. Opt. Phys.*, 2000,33(16):3123-3136.
- [ 24 ] LI M,DAI C J,XIE J. Even-parity states of the Sm atom with stepwise excitation [J]. *Chin. Phys. B*, 2011, 20(6): 063204-1-9.
- [ 25 ] PULHANI A K,SHAH M L,DEV V,*et al.*. High-lying even-parity excited levels of atomic samarium [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2005,22(5):1117-1122.
- [ 26 ] QIN W J,DAI C J,XIAO Y,*et al.*. Experimental study of highly excited even-parity bound states of the Sm atom [J]. *Chin. Phys. B*, 2009,18(8):3384-3394.
- [ 27 ] ZHAO Y H,DAI C J,YE S W. Study on even-parity highly excited states of the Sm atom [J]. *J. Phys. B:At. Mol. Opt. Phys.*, 2011,44(19):195001-1-7.
- [ 28 ] 赵艳红,戴长建,野仕伟. Sm 原子的偶宇称高激发态的光谱研究 [J]. 物理学报, 2012,61(3):033201-1-7.  
ZHAO Y H,DAI C J,YE S W. Study on spectra of even-parity highly excited states of Sm atom [J]. *Acta Phys. Sinica*, 2012,61(3):033201-1-7. (in Chinese)
- [ 29 ] SEEMA A U,MANDAL P K,RATH A D,*et al.*. New even-parity high-lying levels of Sm I and measurement of isotope shifts by two-color resonance ionization mass spectrometry [J]. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, 2014, 145: 197-204.
- [ 30 ] SHAH M L,SAHOO A C,PULHANI A K,*et al.*. Investigations of high-lying even-parity energy levels of atomic samarium using simultaneous observation of two-color laser-induced fluorescence and photoionization signals [J]. *Eur. Phys. J. D*,

- 2014,68(8):2351-8.
- [31] JAYASEKHARAN T, RAZVI M A N, BHALE G L. Investigations of new high-lying even-parity energy levels of the samarium atom below its first ionization limit [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2000,17(9):1607-1615.
- [32] SCHMITT A, BUSHAW B A, WENDT K. Determination of the  $^{154}\text{Sm}$  ionization energy by high-precision laser spectroscopy [J]. *J. Phys. B:At., Mol. Opt. Phys.*, 2004,37(8):1633-1644.
- [33] 杨騄,戴长建,赵艳红. 用光电离技术探测钐原子的奇宇称束缚激发态的光谱 [J]. *物理学报*, 2013,62(5):53201-1-9.  
YANG L, DAI C J, ZHAO Y H. Photoionization of odd-parity bound excited states of Sm atom [J]. *Acta Phys. Sinica*, 2013,62(5):53201-1-9. (in Chinese)
- [34] SAHOO A C, SHAH M L, MANDAL P K, *et al.*. Measurement of radiative lifetime in atomic samarium using simultaneous detection of laser-induced fluorescence and photoionization signals [J]. *Pramana*, 2014,82(2):403-408.
- [35] ZHENG X F, ZHOU X Y, CHENG Z Q, *et al.*. Photoionization cross section measurements of the excited states of cobalt in the near-threshold region [J]. *AIP Adv.*, 2014,4(10):107120-1-10.
- [36] BOKHAN P A, FATEEV N V, KIM V A, *et al.*. Isotope-selective laser excitation and field ionization of the  $nF_{5/2}$  Rydberg states in a thallium beam [J]. *Laser Phys.*, 2013,23(5):055702-1-9.
- [37] 沈礼,野仕伟,戴长建. 电场中 Eu 原子电离阈移动的实验研究 [J]. *物理学报*, 2012,61(6):063301-1-5.  
SHEN L, YE S W, DAI C J. Experiment study of ionization limit shift of europium atoms in electric fields [J]. *Acta Phys. Sinica*, 2012,61(6):063301-1-5. (in Chinese)
- [38] LOCHEAD G, BODDY D, SADLER D P, *et al.*. Number-resolved imaging of excited-state atoms using a scanning autoionization microscope [J]. *Phys. Rev. A*, 2013,87(5):053409-1-4.
- [39] MARTIN W C, ZALUBAS R, HAGAN L. *Atomic Energy Levels; The Rare-Earth Elements, NSRDS-NBS 60* [M]. Washington: National Bureau of Standards, 1978.
- [40] YI J H, LEE J, KONG H J. Autoionizing states of the ytterbium atom by three-photon polarization spectroscopy [J]. *Phys. Rev. A*, 1995,51(4):3053-3057.



许照锦(1978 -),男,福建闽侯人,硕士,副教授,2005年于南开大学获得硕士学位,主要从事光谱学与应用的研究。  
E-mail: xuzhaojin1234@126.com



沈礼(1982 -),男,湖北武汉人,博士,副教授,2009年于中国科学院武汉物理与数学研究所获得博士学位,主要从事光谱学与应用的研究。  
E-mail: shenli@tjut.edu.cn