

РАДИОСПЕКТРОСКОПИЯ

УДК 539.1.078

А. С. КУЦЕНКО¹, Н. Л. ПОГРЕБНЯК¹, С. Ф. ДЮБКО^{1,2}

¹ Радиоастрономический институт НАН Украины,
ул. Краснознаменная, 4, г. Харьков, 61002, Украина
E-mail: a.kutsenko@rian.kharkov.ua

² Харьковский национальный университет имени В. Н. Каразина,
пл. Свободы, 4, г. Харьков, 61022, Украина

ВОЗБУЖДЕНИЕ АТОМОВ ЦИНКА В РИДБЕРГОВСКИЕ $4snf$ СОСТОЯНИЯ

Приводится описание новой двухступенчатой схемы лазерного возбуждения атомов цинка в ридберговские $4snf$ состояния. Представлена модификация лазерно-микроволнового спектрометра Радиоастрономического института НАН Украины, ориентированного на регистрацию ридберговских спектров атомов цинка.

Ключевые слова: ридберговский атом, цинк, лазерное возбуждение, спектрометр

1. Введение

Цинк является важным элементом для исследований в области астрофизики и космологии. Спектральные линии цинка наблюдаются как в излучении Солнца [1], так и в излучении других звезд [2]. Соотношения распространенностей Zn и Fe или Zn и Cu позволяют сделать вывод о степени металличности звезды и истории ее формирования [3], а также о химическом составе холодных метеоритов. Соотношение Zn/Cr может дать информацию о концентрации космической пыли в межзвездном пространстве [3].

Мы продолжаем серию экспериментов по исследованию ридберговских спектров атомов с двумя валентными электронами, начало которого было положено в ряде работ по спектроскопии атома магния [4, 5]. В этой статье приводится описание эксперимента по возбуждению ридберговских $4snf$ состояний атома цинка. Цинк входит в группу ПВ периодической таблицы Менделеева, имеет два валентных s -электрона на последней орбитали, поэтому в спектре проявляются как синглетные, так и триплетные термы. Сложность возбуждения ридберговских состояний цинка объясняется тем, что он имеет высокий потенциал ионизации, равный 75769.33 см^{-1} [6].

Первый возбужденный синглетный уровень $4s4p^1P_1$ лежит на 46745.4 см^{-1} выше основного состояния $4s^2S_0$, поэтому для его лазерного возбуждения необходимо излучение в ультрафиолетовом диапазоне с длиной волны 213 нм, что в наших условиях трудно реализуемо практически. Основная масса работ по спектроскопии цинка посвящена исследованию триплетных термов. LS -связь в цинке начинает нарушаться [7], поэтому триплетные состояния легко заселяются. Триплетный уровень $4s4p^3P$ лежит на $32501.399 \text{ см}^{-1}$ выше основного состояния, для его возбуждения необходимо лазерное излучение с длиной волны 307.6 нм [3]. Триплетные состояния исследовались методами лазерной спектроскопии в работах [8–10], уровень $4s4p^3P_1$ использовался как промежуточный. Энергии синглетных $4snp^1P_1$ термов до значений $n = 66$ впервые были определены в работе Брауна [7] методом классической абсорбционной спектроскопии. В работе [11] были записаны ридберговские серии $4sns^1S_0$ ($n = 14 \div 31$), $4snp^1D_2$ ($n = 12 \div 35$), $4snf^{1,3}F_J$ ($n = 8 \div 26$) и $4snp^3P_{0,1,2}$ ($n = 10 \div 40$). Синглетные термы возбуждались по двухступенчатой схеме. На первой ступени вследствие двухфотонного перехода заселялся уровень $4s5s^1S_0$, после чего происходили радиационные переходы на нижний уровень $4s4p^1P_1$. С этого уровня атомы переводились в ридберговские $4sns^1S_0$

© А. С. Куценко, Н. Л. Погребняк, С. Ф. Дюбко, 2014

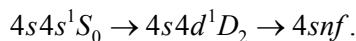
и $4snd^1D_2$ состояния излучением второго лазера. Ридберговская серия $4snf^{1,3}F_J$ возбуждалась при двухфотонных переходах с уровня $4s4p^1P_1$. В работе впервые измерен спектр $4snf^{1,3}F_J$ термов до значений $n = 26$.

Конечной целью нашего эксперимента являются измерение частот переходов между ридберговскими состояниями атома цинка в миллиметровом диапазоне длин волн и вычисление констант для расчета квантового дефекта. Нам не удалось найти информацию о том, что такие измерения когда-либо проводились. Практическая возможность наблюдать спектр в миллиметровом диапазоне длин волн появляется при выполнении трех условий: первое – получение атомного пучка с достаточной для экспериментов концентрацией атомов; второе – селективное возбуждение атомов в пучке в заданные ридберговские состояния; третье – получение четко выраженной пороговой зависимости тока вторично-электронного умножителя (ВЭУ) от напряженности ионизирующего поля для реализации селекции возбужденных атомов.

В представленной статье мы приводим результаты адаптации важнейших узлов спектрометра для исследования атомов Zn, описываем схему селективного лазерного возбуждения атомов цинка в ридберговские $4snf^{1,3}F_J$ состояния и показываем, что все три выше приведенных условия выполняются.

2. Экспериментальная установка

В работе использовался спектрометр, описанный ранее в [4]. Для проведения эксперимента по наблюдению ридберговского спектра атома цинка были модифицированы система лазерного возбуждения и система регистрации, а также источник атомного пучка, что подробно описано ниже. Ридберговские состояния возбуждались по двухступенчатой схеме:



Двухфотонный переход из основного состояния $4s4s^1S_0$ на промежуточный уровень $4s4d^1D_2$ осуществлялся под действием лазерного излучения с длиной волны 320 нм. Излучение было получено путем удвоения в кристалле KDP частоты генерации лазера на красителе DCM, работавшего на длине волны 640 нм. Ридберговские

$4snf$ состояния (вторая ступень) возбуждались под действием излучения лазера на красителе LDS 751, который перестраивался в диапазоне 750 ÷ 760 нм. Оба лазера на красителе возбуждались второй гармоникой импульсного лазера на иттрий-алюминиевом гранате с неодимом с модуляцией добротности, работавшего с частотой повторения импульсов 10 Гц.

Источником атомного пучка служил полый нагреваемый стальной цилиндрический стакан, в который помещались гранулы цинка. Вокруг печи располагался экран из меди, охлаждаемый до комнатной температуры с помощью воды. Для контроля температуры нагрева использовалась термопара, которая имела термический контакт с внешней поверхностью стакана. Атомный пучок формировался, проходя через отверстие в диафрагме диаметром 2 мм. Концентрация паров цинка, достаточная для эксперимента, достигалась при нагреве печи до температуры ~ 350 К.

Атомы цинка взаимодействовали с лазерным излучением в области пространства между двумя пластинами ионизационной ячейки. Регистрация ридберговских атомов проводилась методом полевой ионизации: на одной из пластин формировался импульс напряжения прямоугольной формы определенной амплитуды, в результате чего ридберговские атомы ионизировались в однородном электрическом поле и образовавшиеся электроны ускорялись в направлении ВЭУ. Амплитуда ионизирующего импульса устанавливалась индивидуально для каждого перехода в диапазоне не до значения 1 кВ. Образовавшиеся свободные электроны регистрировались ВЭУ каналового типа (каналотроном). Давление паров остаточных газов в камере, в которой происходило взаимодействие атомов с излучением и полем, не превышало 10^{-6} мм рт. ст.

2.1. Лазерная система возбуждения

Упрощенная схема лазерной системы приведена на рис. 1. Основное излучение YAG : Nd³⁺ лазера (1064 нм) преобразуется во вторую гармонику в первом кристалле ниобата лития и направляется на дихроичное зеркало. Зеркало пропускает излучение второй гармоники (532 нм), но отражает основное излучение, которое, пройдя через формирующую лазерный пучок систему зеркал и линз, поступает на второй преобразователь на кристалле

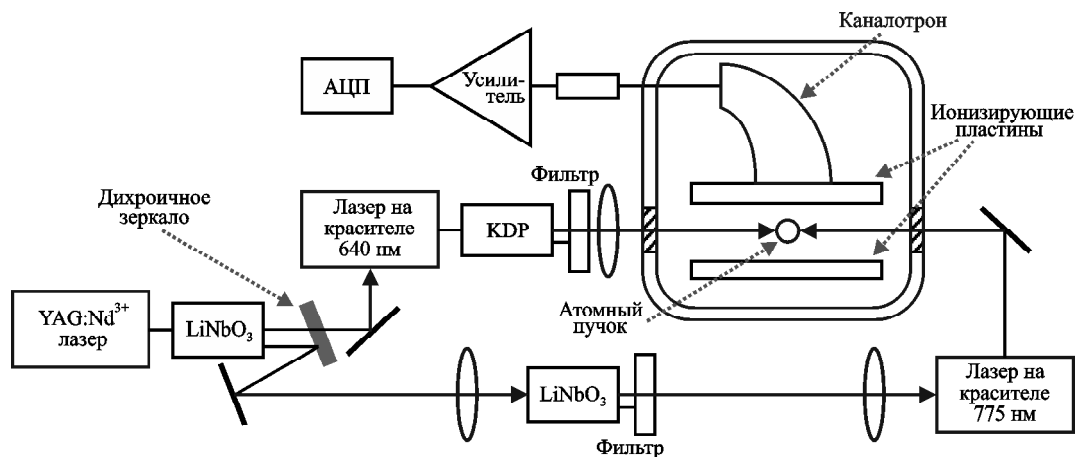


Рис. 1. Структурная схема лазерной системы возбуждения

ниобата лития. Преобразованное во вторую гармонику излучение служит для накачки лазера на красителе второй ступени. Лазер на красителе первой ступени возбуждается второй гармоникой YAG : Nd³⁺ лазера, получаемой в первом преобразователе. Применение такой схемы позволило увеличить суммарную энергию, используемую для накачки лазеров на красителях, приблизительно в 1.5 раза. Энергия импульса излучения второй гармоники YAG : Nd³⁺ лазера составляла 10 мДж, а при использовании приведенной здесь оптической системы первый и второй лазеры на красителе накачивались импульсами с энергией 8 и 6 мДж соответственно. Это позволило получить энергию импульса первого лазера на красителе порядка 0.8 мДж и энергию импульса второй гармоники ультрафиолетового излучения с длиной волны 320 нм порядка 0.1 мДж, что достаточно для осуществления двухфотонного перехода первой ступени. Длительность импульсов лазеров на красителе равняется 15 нс, временная задержка между ними – 4 нс. Время жизни промежуточного $4s4p^1D_2$ уровня составляет 20 нс [5].

2.2. Система регистрации

В качестве нагрузки каналотрона в работе [4] мы использовали интегрирующую цепь с постоянной времени ~15 мкс. В этой работе мы применили преобразователь ток–напряжение с постоянной времени 100 нс. Типичные выходные импульсы каналотрона при наличии сигнала от ридберговских атомов показаны на рис 2. Всплеск тока 1 на рисунке соответствует появлению лазерного им-

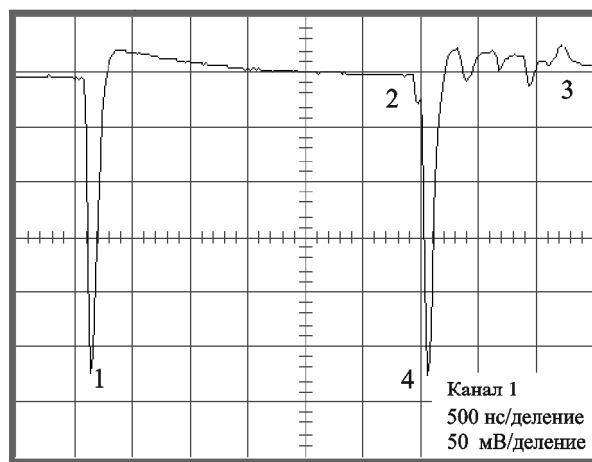


Рис. 2. Выходной импульс каналотрона

пульса. Мощное сфокусированное излучение ультрафиолетового диапазона вызывает нерезонансную фотоионизацию нейтральных атомов цинка, а также, рассеиваясь на входных окнах, вследствие фотоэффекта выбивает из пластин ионизационного конденсатора свободные электроны. Эти причины приводят к росту выходного тока каналотрона сразу после появления лазерного импульса. Ионизирующий импульс включается через 2.8 мкс после лазерного импульса и длится 1.2 мкс. В моменты формирования фронта и спада ионизирующего импульса в выходном сигнале каналотрона появляются наводки 2 и 3, амплитуда которых стабильна от импульса к импульсу и пропорциональна амплитуде ионизирующего поля. При наличии в объеме пространства между пластинами ридберговских атомов после включения

ионизирующего импульса в выходном сигнале каналотрона наблюдается импульс тока 4, вызванный ионизацией атомов.

Сигнал с преобразователя ток–напряжение поступает на вход запоминающей системы с быстрым аналого-цифровым преобразователем (АЦП), подробно описанной в [6]. Система позволяет проводить оцифровку и хранение сигнала с частотой выборки 40 МГц. После появления лазерного импульса срабатывает триггер, запускающий измерения. Каждые 25 нс АЦП измеряет входное напряжение, результат автоматически записывается в буфер – микросхему памяти FIFO, имеющую объем 2 кБ. Такой объем памяти позволяет сохранять реализации длительностью до 50 мкс. При заполнении всей доступной памяти генерируется сигнал, останавливающий преобразования и сигнализирующий об окончании цикла записи. Управляющий контроллер считывает оцифрованную реализацию и проводит интегрирование сигнала в определенных пределах. Полученное значение по запросу передается в управляющий компьютер. Как видно из рис. 2, полезный сигнал 4 и помеха 1 имеют практически одинаковую амплитуду, поэтому интегрирование только области полезного сигнала позволяет получать соотношение сигнал/шум конечных записей спектров лучшее, чем в предыдущей системе регистрации [4].

3. Результаты и их обсуждение

При настройке лазера первой ступени на частоту двухфотонного перехода $4s4p^1S_0 \rightarrow 4s4d^1D_2$ наблюдалось увеличение ионизационного тока, что объясняется лазерной ионизацией уровня $4s4d^1D_2$ по аналогии с атомом магния [12]. Уровень $4s4d^1D_2$ возбуждался при поглощении атомом двух фотонов с длиной волны 320 нм, ионизация происходила при поглощении еще одного фотона с длиной волны 320 нм (вторая гармоника) или 640 нм (излучение лазера на красителе). При наличии в лазерном луче фотонов с длиной волны 640 нм ионизация происходила намного эффективней, чем при одном только излучении с длиной волны 320 нм. Это можно объяснить вероятным наличием автоионизационных состояний чуть выше первого потенциала ионизации. Автоионизационные резонансы цинка, стартующие с уровня $4s4d^1D_2$, пока не были исследованы ни теоретически, ни экспериментально.

3.1. Оптический спектр

Участок спектра с серией $4s4d^1D_2 \rightarrow 4snf$ с идентификацией квантового числа n показан на рис. 3. В работе не ставилась задача точного измерения энергий уровней, энергия, отложенная по шкале абсцисс, рассчитывалась с помощью данных из работы [11]. Ширина линий определяется, в основном, шириной линии лазера последней ступени возбуждения. Перекрытие линий по уровню 0.5 наблюдается уже при $n = 40$, что соответствует энергетическому зазору между уровнями, равному 3 см^{-1} . Как видно из рисунка, в спектре не различаются тонкие компоненты мультиплетта F_J . Согласно [7] синглет-триплетное расщепление самого низколежащего F -терма $4s4f$ составляет 1.5 см^{-1} . Поскольку тонкое расщепление уменьшается с ростом главного квантового числа как n^{-3} , для наблюдаемых значений n оно на два порядка меньше ширины линии и не может быть разрешено.

В спектре не наблюдаются также линии серии $4s4d^1D_2 \rightarrow 4snp^1P_1$. Эта серия может возбуждаться согласно правилам отбора, $\Delta L = \pm 1$, что использовалось в эксперименте по спектроскопии атома магния [4]. Модуль разности квантовых дефектов nP ($\delta_P = 2.1$ [7]) и nF ($\delta_F = 0.024$ [2]) состояний цинка близок к нулю. Это приводит к тому, что, по аналогии с атомом магния, $(n+2)P$ и nF уровни практически вырождены по энергиям, для $n = 23$ разность составляет всего 1.3 см^{-1} , что меньше ширины лазерной линии возбуждения. Линии $4snp^1P_1$ серии должны быть на порядок слабее по интенсивности линий $4snf^1F_J$ серии.

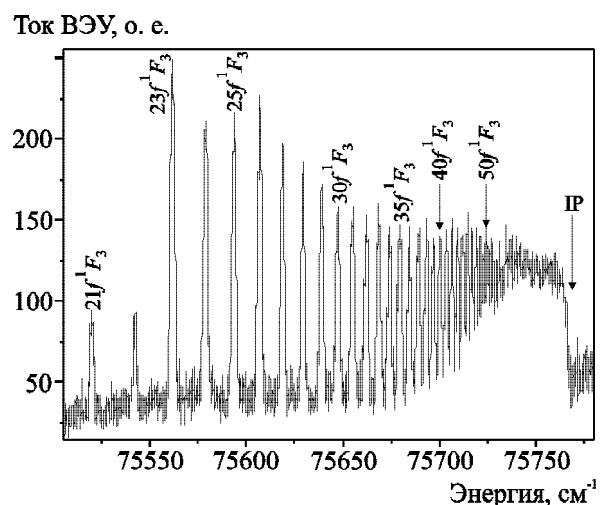


Рис. 3. Участок ридберговского спектра цинка

Многократная запись приведенного участка спектра не показала асимметрии линий, которая может быть вызвана компонентами $4s4d^1D_2 \rightarrow 4snp^1P_1$ серии. Вопрос о том, возбуждаются ли $4snp^1P_1$ состояния, остается открытым.

Уменьшение уровня сигнала для линий с $n < 23$ связано с тем, что амплитуды ионизирующего поля недостаточно для эффективной ионизации уровней с такими значениями n . В этих случаях наблюдается только паразитная ионизация вследствие столкновений, лазерной ионизации ридберговских уровней и других причин.

Резкое уменьшение ионизационного тока при значении энергии ионизации $E = 75766.5 \text{ см}^{-1}$ соответствует достижению порога ионизации. Эта величина на 3 см^{-1} меньше определенного в [7] первого потенциала ионизации цинка. Указанное несоответствие может быть свидетельством наличия в области возбуждения атомов паразитных электрических полей, которые уменьшают эффективный потенциал ионизации (IP). Уменьшение потенциала ионизации атома во внешнем поле может быть оценено с помощью широко используемой в PFI-ZEKE спектроскопии формулы [13]

$$\Delta IP = 4F^{1/2}, \quad (1)$$

где ΔIP измеряется в см^{-1} , F – напряженность внешнего электрического поля, $\text{В} \cdot \text{см}^{-1}$. Для уменьшения потенциала ионизации на 3 см^{-1} , согласно этому выражению, атом должен быть помещен в поле с напряженностью $F = 0.56 \text{ В} \cdot \text{см}^{-1}$. При записи спектров цинка в миллиметровом диапазоне длин волн было установлено, что паразитные поля не превышают значение $0.1 \text{ В} \cdot \text{см}^{-1}$, поэтому не могут вызвать настолько большого изменения IP. В то же время выражение (1) является приближенным. Например, экспериментально установлено, что для атома аргона смещение ионизационного потенциала во внешнем электрическом поле лучше описывается формулой $\Delta IP = 5.98F^{1/2}$ [13].

3.2. Пороговые зависимости тока ВЭУ от напряженности ионизирующего поля

Измерение частот переходов между ридберговскими состояниями атома цинка в миллиметровом диапазоне длин волн становится возможным в случае ярко выраженной пороговой зависимости тока каналотрона как функции амплитуды ионизирующего поля. Пороговая зависимость для уровня $4s34f^1F_3$ атома цинка показана на рис. 4.

Ток ВЭУ, о. е.

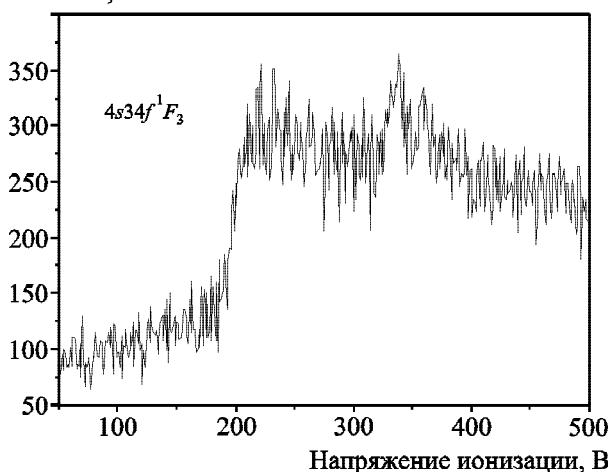


Рис. 4. Пороговая кривая уровня $4s34f^1F_3$

Точка перегиба соответствует напряжению 197 В, увеличение сигнала от 0.1 до 0.9 максимальной амплитуды (ширина порога) происходит при увеличении напряжения на 10 В. Пороги ионизации для соседних уровней $4s35f^1F_3$ и $4s33f^1F_3$ равны 180 и 225 В соответственно, на кривой не видны скачки тока при достижении соответствующих амплитуд ионизирующего импульса. Это говорит о том, что соседние уровни не заселяются. В то же время на кривой отчетливо наблюдается скачок тока при амплитуде импульса 335 В. Такой “второй” порог характерен для всех пороговых зависимостей, его причины выясняются.

4. Заключение

Предложена и реализована двухступенчатая схема возбуждения ридберговских $4snp^1F_J$ состояний атома цинка.

Показана эффективность такой схемы для получения атомов цинка в ридберговских nF состояниях.

Четкие пороговые зависимости значения тока каналотрона как функции амплитуды ионизирующего поля дают основания надеяться на возможность измерения частот переходов между ридберговскими состояниями атома цинка в миллиметровом и субмиллиметровом диапазонах длин волн.

Мы начали измерения частот переходов для трех серий синглетных атомов цинка в диапазоне $70 \div 230$ ГГц. Пример записи микроволнового двухфотонного перехода $4s30f^1F_3 \rightarrow 4s31f^1F_3$ показан на рис. 5 (методика регистрации микро-

Ток ВЭУ, о. е.

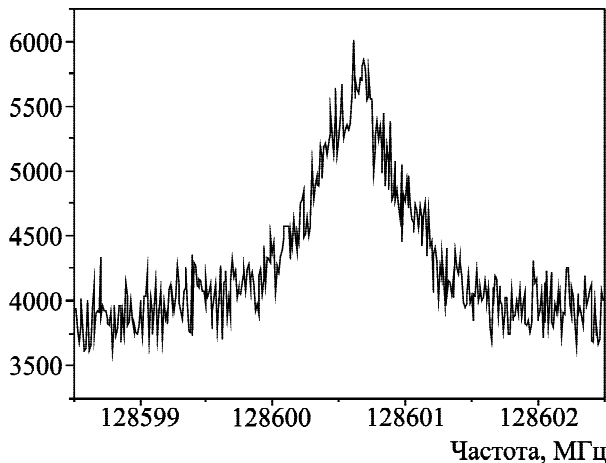


Рис. 5. Запись микроволнового двухфотонного перехода $4s30f^1F_3 \rightarrow 4s31f^1F_3$

волновых переходов описана подробно в [4, 5]). Опираясь на эти экспериментальные результаты, мы надеемся существенно уточнить значения квантового дефекта для исследуемых серий.

Авторы выражают благодарность доктору Мак Адаму (К. В. MacAdam) за постоянный интерес к работе и ряд полезных советов в ходе ее выполнения.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Biemont E. and Godefroid M.* A Reassessment of the Zinc Solar Abundance // *Astron. Astrophys.* – 1980. – Vol. 84, No. 3. – P. 361–363
2. *Snedden C., Gratton R., and Crocker D.* Trends in copper and zinc abundances for disk and halo stars // *Astron. Astrophys.* – 1991. – Vol. 246, No. 2. – P. 354–367.
3. *Gullberg D. and Litzen U.* Accurately measured wavelengths of Zn I and Zn II Lines of Astrophysical interest // *Physica Scripta.* – 2000. – Vol. 61, No. 6. – P. 652–656.
4. *MacAdam K. B., Dyubko S. F., Efremov V. A., Kutsenko A. S., and Pogrebnyak N. L.* Microwave spectroscopy of singlet Mg I in $L=0-4$ Rydberg states // *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* – 2012. – Vol 45, No. 21. – id. 215002.
5. *Kutsenko A. S.* Laser-microwave spectroscopy of singlet F-terms of the Mg I atom // *Radio Physics and Radio Astronomy.* – 2012. – Vol. 3, No. 4. – P. 353–357.
6. *Sugar J. and Musgrove A.* Energy levels of Zinc, Zn I through Zn XXX // *J. Phys. Chem. Ref. Data.* – 1995. – Vol. 24, No. 6. – P. 1803–1872.
7. *Brown C., Tilford S., and Ginter M.* Absorption spectra of ZnI and CdI in the 1300–1750 Å region // *J. Opt. Soc. Am.* – 1975. – Vol. 65, Is. 12. – P. 1404–1409.

8. *Eshkobilov N. B.* Laser spectroscopy of the Rydberg states of atoms group IIB (Zn, Cd, Hg) // *J. Appl. Spectrosc.* – 2000. – Vol. 67, Is. 2. – P. 343–345.
9. *Nadeem A., Nawaz M., Bhatti S. A., and Baig M. A.* Multi-step laser excitation of the highly excited states of zinc // *Opt. Commun.* – 2006. – Vol. 259, Is. 2. – P. 834–839.
10. *Nawaz M., Nadeem A., Bhatti S. A., and Baig M. A.* Two-step laser excitation of $4snd\ ^3D_{1,2,3}$ and $4sns\ ^3S_1$ states from the $4s4p\ ^3P$ levels in zinc // *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* – 2006. – Vol 39, No. 4. – P. 871–881.
11. *Kompitsas M., Baharis C., and Pan Z.* Rydberg states of zinc and measurement of the dipole polarizability of the Zn^+ ion // *J. Opt. Soc. Am. B.* – 1994. – Vol. 11, No. 5. – P. 697–702.
12. *Shao Y., Fotakis C., and Charalambidis D.* Multiphoton ionization of Mg in the wavelength region of 300–214 nm // *Phys. Rev. A.* – 1993. – Vol. 48, Is. 5. – P. 3636–3643.
13. *Merkt F., Oterwalder A., Seiler R., Signorell R., Palm H., Schmutz H., and Gunzinger R.* High Rydberg states of argon: Stark effect and field-ionization properties // *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* – 1998. – Vol. 31, No. 8. – P. 1705–1724.

О. С. Куценко¹, М. Л. Погребняк¹, С. П. Дюбко^{1,2}

¹Радиоастрономічний інститут НАН України, вул. Червонопрапорна, 4, м. Харків, 61002, Україна

²Харківський національний університет імені В. Н. Каразіна, м. Свободи, 4, м. Харків, 61022, Україна

ЗБУДЖЕННЯ АТОМІВ ЦИНКУ В РІДБЕРГІВСЬКІ $4snf$ СТАНИ

Наведено опис нової двоступеневої схеми лазерного збудження атомів цинку в ридбергівські $4snf$ стани. Представлено модифікацію лазерно-мікрохвильового спектрометра Радиоастрономічного інституту НАН України, зорієнтованого на реєстрацію ридбергівських спектрів атомів цинку.

A. S. Kutsenko¹, N. L. Pogrebnyak¹, and S. F. Dyubko^{1,2}

¹Institute of Radio Astronomy, National Academy of Sciences of Ukraine, 4, Chervonopraporna St., Kharkiv, 61002, Ukraine

²V. Kazarin National University of Kharkiv, 4, Svoboda Sq., Kharkiv, 61022, Ukraine

EXCITATION OF Zn ATOMS TO THE $4snf$ RYDBERG STATES

A new two-stage scheme of laser excitation of Zn atoms to the $4snf$ Rydberg states is presented. A modification of the laser-microwave spectrometer of the Institute of Radio Astronomy intended for recording of Rydberg spectra of Zn atoms is described.

Статья поступила в редакцию 18.06.2014