

УДК 539.186.2

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИЗУЧЕНИЕ ВОЗБУЖДЕНИЯ СПЕКТРАЛЬНЫХ ЛИНИЙ АТОМОВ ИТТЕРБИЯ ЭЛЕКТРОННЫМ УДАРОМ

Л. Л. Шимон, Н. В. Головчак, И. И. Гарга и И. В. Курта

Изучены впервые эффективные сечения и функции возбуждения 36 наиболее интенсивных спектральных линий Yb I и Yb II в области спектра 7700–2200 Å и энергий возбуждающих электронов от порогов возбуждения до 300 эВ. Наблюдаемые линии обусловлены одноэлектронным и двухэлектронным возбуждением $6s$ - и $4f$ -электронов атома. Значения сечений в максимуме возбуждения спектральных линий находятся в интервале $10^{-16} \div 10^{-19}$ см².

Настоящая работа является продолжением систематических исследований эффективных сечений возбуждения атомов редкоземельных элементов (РЗЭ), начатых с изучения электронного возбуждения европия [1, 2]. В группе РЗЭ иттербий еще в большей мере, чем европий интересен как с точки зрения возможностей изучения сечений возбуждения, так и практического применения результатов таких исследований (например, для создания лазера на парах иттербия [3, 4]) и благодаря таким его особым свойствам: вследствие полностью заполненной $4f$ -оболочки (конфигурация основного состояния — $4f^{14}6s^2$) иттербий имеет четко выраженный и интенсивный «простой» спектр; атом иттербия, как и атом европия, имеет значительно большие размеры, чем атомы других РЗЭ, что способствует эффективному протеканию процессов электронно-атомных столкновений; наконец, иттербий требует наименьшую температуру нагрева для достижения определенной упругости паров. Несмотря на это, до сих пор отсутствовали какие-либо сведения о таких важнейших атомных характеристиках, как эффективные сечения электронного возбуждения иттербия.

Условия эксперимента

Наши исследования выполнены с применением методики пересекающихся атомного и электронного пучков и фотоэлектрической регистрации интенсивностей спектральных линий. Установка и техника измерений достаточно подробно описаны в [2].

Концентрация атомов в месте пересечения пучков при температуре эффузионной камеры 460° С составляла $6 \cdot 10^{11}$ ат/см³, а плотность электронного тока — $10^{-2} \div 10^{-3}$ А/см² при однородности электронов по энергиям (для 90% электронов) от 0.8 в припороговой области энергий до 1.5 эВ при больших энергиях. Эти условия обеспечили однократность столкновений электронов с атомами и пренебрежимо малую роль вторичных процессов. В качестве спектрального прибора применялся светосильный монохроматор МДР-2.

Погрешность измерений интенсивностей спектральных линий в относительных единицах не превышала 5%, а ошибка в определении абсолютных значений сечений возбуждения составляла около 30% для области

спектра $\lambda > 3800$ Å и не более 40% для участка спектра $\lambda < 3800$ Å.

Энергетические зависимости интенсивностей спектральных линий в относительных единицах (оптические функции возбуждения) изучались в интервале энергий возбуждающих электронов от порогов до 300 эВ. В припороговой области энергий при проявлении структуры на функциях возбуждения, а также в области остро выраженных максимумов возбуждения экспериментальные точки снимались с интервалом 0.1–0.2 эВ по шкале энергий электронов. Для удобства сравнения относительные функции в максимуме возбуждения сведены к одной величине.

Оптические функции и эффективные сечения возбуждения

Из анализа записанных спектров иттербия при различных энергиях возбуждающих электронов следует, что наиболее интенсивные спектральные линии при электронном возбуждении обусловлены следующими процессами:

- 1) возбуждением одного из валентных $6s$ -электронов;
- 2) возбуждением одного из электронов заполненной $4f$ -оболочки;
- 3) двухэлектронным возбуждением $6s$ -электронов или электронов с различных $6s$ - и $4f$ -оболочек;
- 4) возбуждением однократно заряженного иона иттербия в единичном акте соударения электрона с нейтральным атомом.

Принадлежность спектральных линий тому или иному процессу определялась на основе соответствующих спектральных переходов между уровнями, данные для которых взяты из [5–10]. Следует заметить, что в спектре иттербия имеется еще много неидентифицированных спектральных линий. Для таких наблюдаемых нами линий спектральные переходы приведены ниже в обозначениях работы [10].

Наиболее характерные функции возбуждения изучаемых спектральных линий приведены на рис. 1–5. Так как за максимумом возбуждения интенсивности спектральных линий монотонно убывают, то функции возбуждения приведены лишь до 60 эВ. С целью дополнения сведений о функциях возбуждения в области больших энергий в таблице, кроме сечений в максимуме возбуждения, приведены также значения сечений возбуждения при энергиях возбуждающих электронов 100, 200 и 300 эВ. Там же указаны и положения максимумов функций возбуждения и пороги возбуждения спектральных линий.

Проведем анализ возбуждения спектральных линий, разделив их условно по происхождению и идентификации на три группы.

1. Воздействие $6s$ -электронов. Так как $4f$ -оболочка полностью заполнена, возбуждение $6s$ -электрона ведет к образованию состояний, которым отвечают одиночные и триплетные термы — исходные для линий интенсивного «простого» спектра.

Среди синглетных термов наиболее эффективно возбуждаются $n^1P_1^0$ -уровни, исходные для главной серии. На нижней части рис. 1 (кривые 4–7) представлены оптические функции возбуждения первых трех членов этой серии, а также спектральной линии 6118 Å с исходным $8^1P_1^0$ -уровнем. Как и следовало ожидать [11], функции возбуждения спектральных линий 2271 и 6118 Å с общим исходным уровнем (кривые 6 и 7) подобны.

Как видно из таблицы, головная линия главной серии с исходным $6^1P_1^0$ -уровнем возбуждается наиболее эффективно в спектре иттербия.

Так как головные члены резкой и диффузной серий синглетной системы расположены в труднодоступной для регистрации инфракрасной области спектра, а по мере перехода к более высоким членам этих серий сечения возбуждения резко уменьшаются, нам удалось проследить характер возбуждения только спектральных линий разрешенных и интеркомбинационных переходов с 8^1S_0 - и 6^1D_2 -уровней, являющихся исходными для

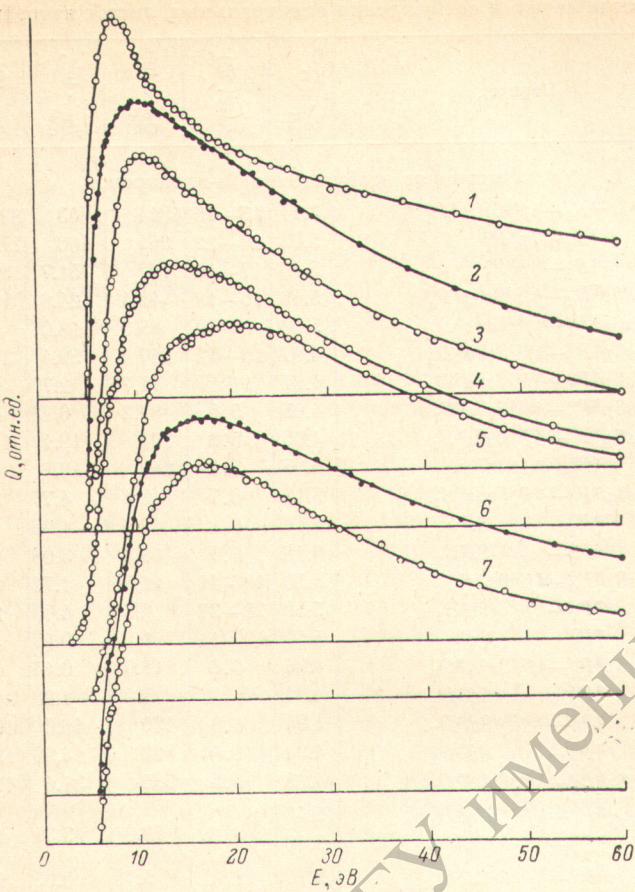


Рис. 1. Функции возбуждения спектральных линий.
 1 — 4175, 2 — 6668, 3 — 4530, 4 — 3988, 5 — 2464, 6 — 6118,
 7 — 2271 Å.

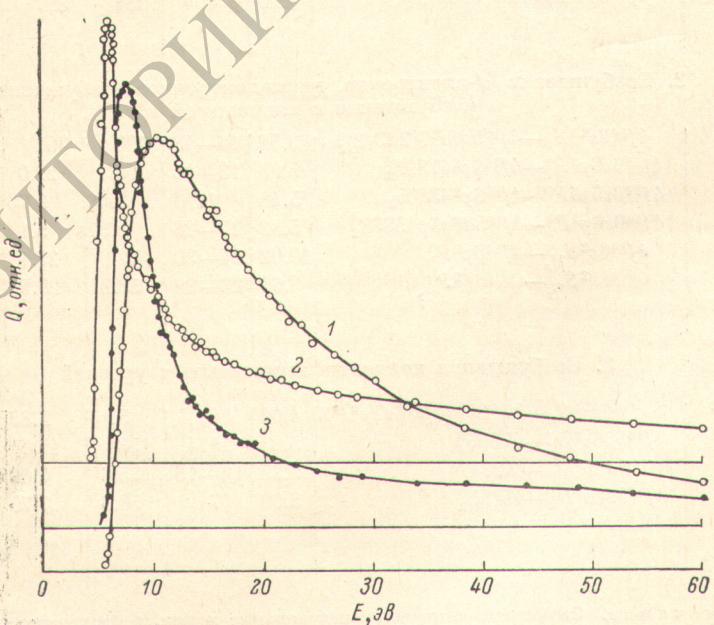


Рис. 2. Функции возбуждения спектральных линий.
 1 — 3592, 2 — 6799, 3 — 4232 Å.

Эффективные сечения возбуждения спектральных линий иттербия

N _{п.} N _{п.}	λ , Å	Переход	$E_{\text{возб.}}$, эВ	E_{max} , эВ	$Q_{\text{max}} \cdot 10^{19}$, см ²	$Q_{\text{150}} \cdot 10^{19}$, см ²	$Q_{\text{250}} \cdot 10^{19}$, см ²	$Q_{\text{350}} \cdot 10^{19}$, см ²
1. Одноэлектронное возбуждение 6s-электронов								
1	3988	$4f^{14}6s^{21}S_0 - 4f^{14}6s6p^1P_1^0$	3.11	13—16	4844	1743	899	580
2	2464	$1S_0 - 7p^1P_1^0$	5.03	20—22	661	400	275	198
3	2271	$1S_0 - 8p^1P_1^0$	5.46	17—19	107	51.7	35.2	28.2
4	6118	$4f^{14}5d6s^1D_2 - 4f^{14}6s8p^1P_1^0$	5.46	15—18	48.4	24.6	19.1	17.2
5	4175	$4f^{14}6s6p^3P_1^0 - 4f^{14}6s8s^1S_0$	5.20	8—10	65.3	18.0	8.80	5.13
6	6668	$4f^{14}6s6p^1P_1^0 - 4f^{14}6s6d^1D_2$	4.97	10—12	257	59.4	32.3	29.7
7	4530	$4f^{14}6s6p^3P_1^0 - 4f^{14}6s6d^1D_2$	4.97	11	11.7	2.75	1.65	1.17
8	6489	$4f^{14}6s6p^3P_0^0 - 4f^{14}6s7s^3S_1$	4.05	5.5	89.2	6.23	4.04	3.55
9	6799	$4f^{14}6s6p^3P_0^0 - 4f^{14}6s7s^3S_1$	4.05	5.8	274	19.1	11.7	10.3
10	7699	$3P_2^0 - 7s^3S_1$	4.05	5.9	642	48.1	31.9	28.6
11	4110	$4f^{14}6s6p^3P_0^0 - 4f^{14}6s8s^3S_1$	5.16	6.7	19.4	4.77	3.11	2.89
12	4232	$3P_1^0 - 8s^3S_1$	5.16	6.8	42.6	1.90	1.02	0.62
13	4564	$3P_2^0 - 8s^3S_1$	5.16	6.7	68.3	3.08	1.68	1.02
14	3592	$4f^{14}6s6p^3E_0^0 - 4f^{14}6s9s^3S_1$	5.59	10—11	12.5	1.72	0.84	0.62
15	3685*	$2P_1^0 - 9s^3S_1$	5.59	28—32	6.60	4.03	2.71	1.98
16	3934	$3P_2^0 - 9s^3S_1$	5.59	13—14	3.52	0.47	—	—
17	4439	$4f^{14}6s6p^3P_0^0 - 4f^{14}6s6d^3D_1$	4.94	6.6	18.0	0.44	0.25	0.18
18	4582*	$3P_1^0 - 6d^3D_1$	4.94	6.9	9.46	1.28	0.58	0.33
19	4576	$3P_1^0 - 6d^3D_2$	4.94	6.0	139	16.0	10.1	8.62
20	4967*	$3P_2^0 - 6d^3D_2$	4.94	6.0	26.8	4.99	3.52	2.75
21	4936	$4f^{14}6s6p^3P_2^0 - 4f^{14}6s6d^3D_3$	4.95	6.5	785	31.4	15.7	11.8
22	{ 3798.40	$4f^{14}6s6p^3P_1^0 - 4f^{14}6s7d^3D_1$	5.49	9	18.0	3.30	1.83	1.46
	3798.2	$3P_1^0 - 7d^3D_2$	5.49					
23	3429*	$4f^{14}6s6p^3P_0^0 - 4f^{14}6s8d^3D_1$	5.76	11	5.13	0.95	0.47	0.33
24	{ 3513	$3P_1^0 - 8d^3D_1$	5.76	9.5	14.7	2.93	1.46	1.10
	3511	$3P_1^0 - 8d^3D_2$	5.76					
25	3736*	$3P_2^0 - 8d^3D_2$	5.76	9—11	13.9	1.83	0.91	0.62
26	5556	$4f^{14}6s^{21}S_0 - 4f^{14}6s6p^3P_1^0$	2.23	4.4	1934	327	191	145
2. Возбуждение 4f-электронов, двухэлектронное возбуждение и возбуждение с ионизацией								
27	3464	$4f^{14}6s^{21}S_0 - 4f^{18}5d6s^{27/2}[3/2]_1^0$	3.58	16—18	793	301	143	80.7
28	4394	$4f^{14}6s6p^1P_1^0 - 4f^{14}6p^247822_3$	5.93	13—15	158	22.0	6.97	3.30
29	3873	$4f^{14}6s6p^3P_1^0 - 4f^{14}6p^243805_1$	5.48	11	3.48	0.73	0.40	0.29
30	4932	$4f^{14}6s6p^1P_1^0 - 4f^{18}5d6s6p^245338_2$	5.82	22—26	8.37	5.1	3.82	3.52
31	3289	$4f^{14}6s^2S_{1/2} - 4f^{14}6p^2P_{3/2}^0$	10.02	24—30	73.0	27.1	15.8	11.4
32	3694	$2S_{1/2} - 2P_{1/2}^0$	9.60	23—28	53.9	20.5	12.5	9.17
3. Возбуждение неидентифицированных уровней								
33	2672*	$4f^{14}6s^{21}S_0 - 374150_1 (4f^{14}6s7p^3P_1^0)$	4.64	6	5.13	2.86	2.12	1.87
34	4482	$4f^{14}5d6s^3D_2 - 470550_2$	5.83	11.4	158	15.0	5.13	2.34
35	5505	$4f^{14}5d6s^3D_1 - 427470_2$	5.29	13—16	35.6	6.60	3.19	1.94
36	5720	$4f^{14}5d6s^3D_2 - 451550_2$	5.60	7	50.6	7.70	3.52	2.27

Примечание. Звездочкой отмечены спектральные линии, эффективные сечения возбуждения которых в той или иной мере искаются частичным наложением интенсивностей близких по длине волн спектральных линий.

вторых членов серий (рис. 1, кривые 1—3). Обращает на себя внимание тот факт, что при общем верхнем уровне 8^1S_0 линия 4175 Å интеркомбинационного перехода $6^3P_1^0 - 8^1S_0$ значительно интенсивнее линии второго члена резкой серии 5925.5 Å ($6^1P_1^0 - 8^1S_0$), которая в условиях нашего эксперимента из-за малой интенсивности вообще не могла быть зафиксирована. В случае же исходного 6^1D_2 -уровня, линия 4530 Å интеркомбинационного перехода $6^3P_1^0 - 6^1D_2$, наоборот, менее интенсивна, чем второй член диффузной серии 6668 Å ($6^1P_1^0 - 6^1D_2$).

Среди спектральных линий триплетной системы наиболее полно изучено возбуждение линий резкой серии. Функция возбуждения составляющих головного члена этой серии 6489, 6799 и 7699 Å с исходным 7^3S_1 -уровнем — идентичны (рис. 2 кривая 2). Максимум возбуждения этих линий наступает непосредственно за порогом возбуждения ($E_{\max} - E_{\text{возб.}} < 2 \text{ эВ}$), а при увеличении энергии возбуждающих электронов интенсивность излучения очень резко уменьшается, что свидетельствует о резонансном характере возбуждения 7^3S_1 -уровня. Этим самым иллюстрируется типичное отличие возбуждения триплетных уровней от синглетных, обусловленное различным механизмом этих процессов: возбуждение триплетных уровней связано с переориентацией направления спинового момента валентного электрона в атоме в результате обмена налетающего и валентного электрона атома и поэтому наиболее вероятно при малых пропорциональных энергиях [12], а возбуждение синглетных уровней происходит без обмена.

Возбуждение следующего 8^3S_1 -уровня происходит аналогично 7^3S_1 -уровню. Однако наблюдается некоторое уширение максимума функции возбуждения (рис. 2, кривая 3). Для линий же третьего члена серии с исходным 9^3S_1 -уровнем наблюдается уже значительное уширение максимума функции возбуждения и его смещение в область больших энергий (рис. 2, кривая 1).

В диффузной серии триплетной системы термов каждый член серии состоит из шести линий. Но из-за близости энергетических уровней, малой интенсивности отдельных составляющих мультиплетов, наложения интенсивностей близких по длине волн линий не представляется возможным отдельное изучение электронного возбуждения составляющих уже для третьего и более высоких членов серии. Функции возбуждения спектральных линий второго члена 4439, 4576 и 4936 Å с исходными 6^3D_1 -, 6^3D_2 - и 6^3D_3 -уровнями соответственно в интервале энергий эффективного возбуждения ($E_s = 5 - 15 \text{ эВ}$) имеют подобный вид (рис. 3, кривая 2), что свидетельствует об одинаковом характере возбуждения 6^3D_j -уровней. У еще двух линий этого мультиплета — 4582 Å ($6^3P_1^0 - 6^3D_1$) и 4967 Å ($6^3P_2^0 - 6^3D_2$) — функции возбуждения искажены совпадающими по длине волны линиями других переходов и, очевидно, случайно имеют подобный вид (кривая 1).

Для составляющих третьего и четвертого члена диффузной серии характерными следует считать функции возбуждения спектральных линий 3798 Å (кривая 6) и 3513/11 (кривая 5) с исходными 7^3D_1 , 2 - и 8^3D_1 , 2 -уровнями. Кривые 3 и 4 (рис. 3) не могут в достаточной мере характеризовать функции возбуждения 8^3D_2 - и 8^3D_1 -уровней, так как в области максимума искажены, очевидно, одновременной регистрацией значительной доли излучения интенсивных близлежащих неидентифицированных атомных линий [6].

Из сравнения типичных функций возбуждения спектральных линий с исходными n^3D_j -уровнями (рис. 3, кривые 2, 6, 5) следует, что по мере роста n наблюдается некоторое смещение максимума возбуждения в сторону больших энергий. Однако это смещение проявляется в меньшей мере, чем в случае исходных n^3S_1 -уровней (рис. 2).

Что же касается возбуждения $n^3P_j^0$ -уровней, то нам не удалось зафиксировать заметно интенсивных линий, соответствующих переходам на n^3S_1 - и n^3D_j -уровни. В то же время в спектре иттербия по эффективности возбуждения второй после резонансной линии 3988 Å следует интеркомбинационная линия 5556 Å ($6^1S_0 - 6^3P_1^0$). Ее функция возбуждения имеет довольно сложный вид (рис. 4) и характеризуется дополнительными максимумами при 3.2, 4.3 и 6.0 эВ.

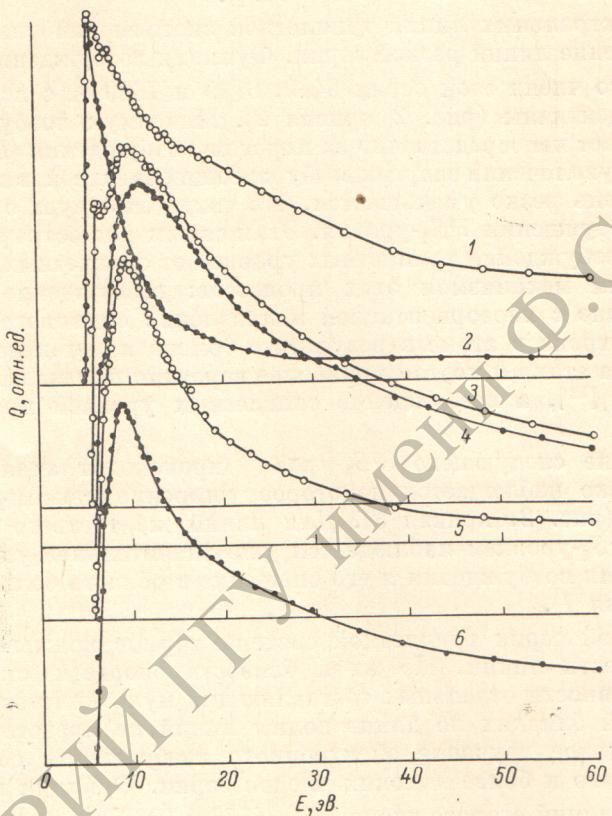


Рис. 3. Функции возбуждения спектральных линий.

1 — 4967, 2 — 3736, 3 — 3429, 4 — 4936, 5 — 3513/11, 6 — 3798 Å.

Наличие интенсивных интеркомбинационных переходов свидетельствует о нарушении LS -связи в атоме иттербия, предсказываемое и теоретическими расчетами [8].

2. Возбуждение $4f$ -электрона, двухэлектронное возбуждение и возбуждение с ионизацией. Возбуждение $4f$ -электрона — характерный процесс для атомов РЗЭ и обусловливает возбуждение «сложного» спектра, линии которого намного менее интенсивны спектральных линий, обусловленных возбуждением $6s$ -электронов. Однако уже на примере европия была показана относительно значительная эффективность возбуждения $4f$ -электрона в $5d$ -состояние при неизменном состоянии внешних $6s$ -электронов. Такой процесс еще более эффективен у иттербия, так как соответствующая ему спектральная линия 3464 Å ($4f^{14}6s^{21}S_0 - 4f^{13}5d6s^{27/2} [{}^3/{}_2]_0$), занимающая третье место по интенсивности в спектре иттербия, характеризуется сечением возбуждения на порядок большим даже суммарного сечения в максимуме возбуждения мультиплета перехода $4f^76s^2a^8S_{7/2}^0 - 4f^65d6s^2{}^8P_{5/2, 7/2, 9/2}$ в атоме европия ($Q_{\max} = 2.57 \cdot 10^{-18} \text{ см}^2$) [2].

Как видно из рис. 4 (кривая 1), возбуждение $4f$ -электронов в отличие от возбуждения $6s$ -электронов более эффективно происходит при больших энергиях за порогом возбуждения.

Одновременное возбуждение двух $6s$ -электронов наиболее эффективно происходит в $6p^2$ -состоянии, о чем свидетельствуют величины сечений возбуждения соответствующих спектральных линий. Заметим, что в исследуемую нами область спектра попадают и линии, соответствующие переходам из низких уровней ($n=6$) конфигурации $4f^{14}5dnp$ ($n=6, 7, 8$) [13]. Однако уже эти линии намного менее интенсивны, чем наблюдаемые

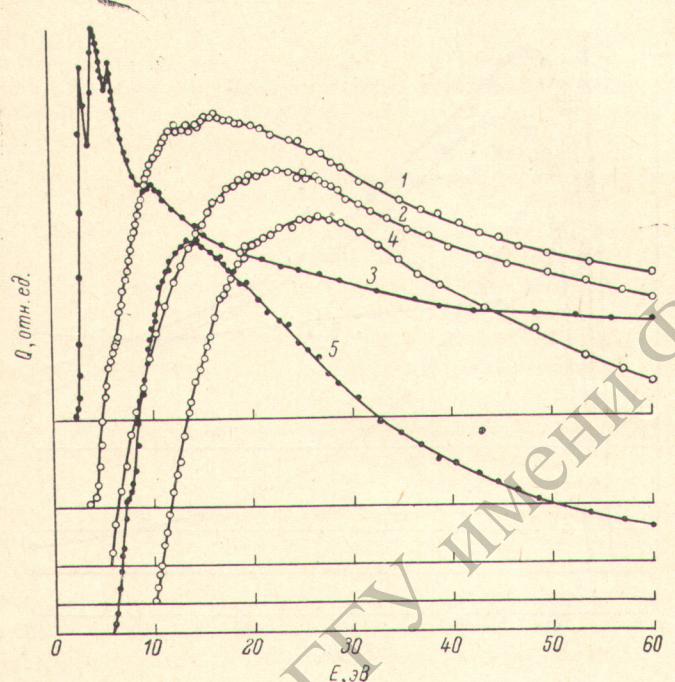


Рис. 4. Функции возбуждения спектральных линий.

1 — 3464, 2 — 4932, 3 — 5566, 4 — 3289, 5 — 4394 Å.

линиях 4394 и 3873 Å, соответствующие переходам с неидентифицированных термов возбужденных $4f^{14}6p^2$ -состояний.

Так как для атомов щелочноземельных элементов Ca, Sr и Ba, характеризующихся также двумя валентными s -электронами, наблюдались интенсивные переходы с $4p^{21}D_2$, $5p^{21}D_2$, $6p^{21}D_2$ -уровней, а функции возбуждения спектральных линий таких переходов подобны функции возбуждения линии иттербия 4394 Å (рис. 4, кривая 5), то направляется вывод о соответствии неизвестного исходного уровня этой линии $6p^2$ 47821 см^{-1} ($j=2$) терму $6p^{21}D_2$.

На рис. 4 изображена функция возбуждения спектральной линии 4932 Å ($4f^{14}6s6p - 4f^{13}5d6s6p$), соответствующая также двухэлектронному возбуждению, но уже с различных $4f$ - и $6s$ -подоболочек. При таком процессе сечение возбуждения в максимуме для наиболее интенсивной линии на порядок величины меньше сечения спектральной линии 4394 Å, обусловленной двухэлектронным возбуждением внешних $6s^2$ -электронов.

Среди ионных линий выделяются своей эффективностью возбуждения только резонансные линии. На рис. 4 (кривая 4) представлена функция возбуждения более интенсивной компоненты 3289 Å резонансного дублета. Функция возбуждения второй составляющей дублета 3694 Å имеет такой же вид. Так как возбуждение и ионизация происходят в одном акте соударе-

ния электронов с атомами, кривые начинаются при энергиях, равных сумме порога ионизации атома и порогов возбуждения резонансных линий Yb II.

3. Воздействие спектральных линий с неидентифицированными исходными уровнями. Функции возбуждения спектральных линий с неидентифицированными исходными уровнями представлены на рис. 5. Как видно, функция возбуждения спектральной линии 2672 Å (кривая 3) напоминает по общему виду функцию возбуждения интеркомбинационной линии 5556 Å (исходный $6^3P_1^0$ -

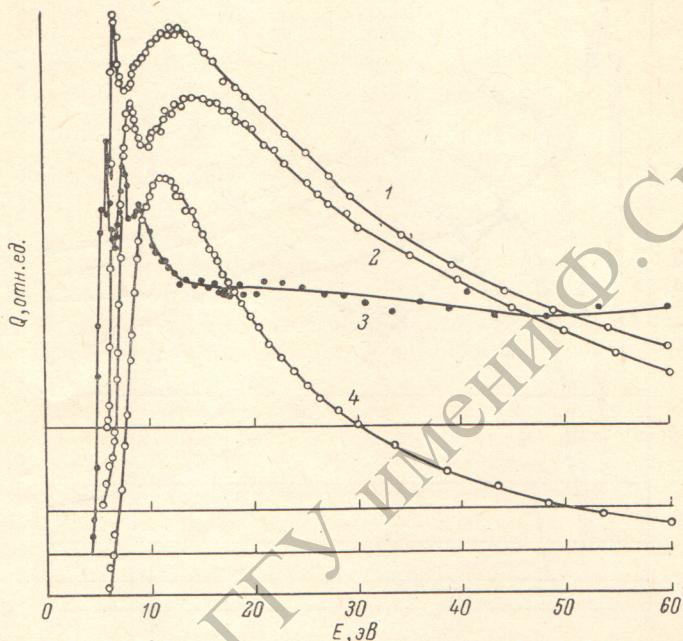


Рис. 5. Функции возбуждения спектральных линий.

1 — 5720, 2 — 5505, 3 — 2672, 4 — 4482 Å.

уровень) с выраженной структурой в максимуме. Это дает основание полагать, что ее исходный уровень 37415 см^{-1} принадлежит следующему $7^3P_1^0$ -уровню с порогом возбуждения 4.64 эВ, который отвечает длине волны 2672 Å, а также началу возбуждения линии в наших экспериментах. Отметим, что измеренная функция возбуждения спектральной линии 2672 Å искажена наложением ионной линии 2672.6 Å [$4f^{13}6s^{22}F_{7/2}^0 - 4f^{13}5d6p(^3F_2)^5/2$]. Однако это искажение происходит только при энергиях электронов, значительно превышающих порог возбуждения ионной линии 13.56 эВ.

Функции возбуждения спектральных линий 5720 и 5505 Å (кривые 1 и 2) имеют два максимума и не могут быть уподоблены с функциями возбуждения линий известных переходов. Функция возбуждения интенсивной спектральной линии 4482 Å (кривая 4), скорее всего напоминает функцию возбуждения линии 4394 Å (рис. 4, кривая 5), обусловленной двухэлектронным возбуждением.

Авторы признательны И. П. Запесочному за оказанную помощь и постоянный интерес к работе.

Литература

- [1] Л. Л. Шимон, И. И. Гарга, Н. В. Головчак. Опт. и спектр., 43, 998, 1977.
- [2] Н. В. Головчак, И. И. Гарга, Л. Л. Шимон. Опт. и спектр., 44, 23, 1978.
- [3] Ph. Cahuzac. Phys. Lett., A27, 473, 1968.
- [4] В. Г. Климкин. Квант. электрон., 2, 579, 1975.
- [5] W. F. Meggers, C. H. Corliss. J. Opt. Soc. Am., 50, 1136A, 1960.
- [6] W. F. Meggers, C. H. Corliss. J. Res. NBS, 70A, 63, 1966.
- [7] P. P. Camus, F. S. Tomkins. J. Physique, 30, 545, 1969.
- [8] S. Nir. J. Opt. Soc. Am., 60, 354, 1970.
- [9] N. Spector. J. Opt. Soc. Am., 61, 1350, 1971.
- [10] G. E. Miller, J. S. Ross. J. Opt. Soc. Am., 66, 585, 1976.
- [11] С. Э. Фриш. Оптические спектры атомов. ГИФМЛ, М.—Л., 1963.
- [12] Н. Мотт, Г. Месси. Теория атомных столкновений. «Мир», М., 1969.
- [13] М. Г. Козлов, С. А. Коточигова. Опт. и спектр., 42, 3, 1977.

Поступило в Редакцию 29 января 1980 г.
В окончательной редакции 15 ноября 1980 г.
