レーザーオリジナル 2

Rb原子高励起状態の2光子吸収分光[†]

加 藤 義 章*

Two-photon absorption spectroscopy of
highly-excited states of Rb atoms

Yoshiaki KATO*

Doppler-free two-photon absorption spectroscopy was applied to study highly-excited D states of Rb atoms. Using a cw dye laser as an excitation source, transitions from the ground 5S state to nd ²D states ($n=11\sim 32$) were observed, the ionization energy of the highest state being only 117cm^{-1} . These D doublets are not inverted. The fine structure splittings of these states do not vary as $(n_{\text{eff}})^{-3}$, nor as n^{-3} . The isotope shift of the ⁸⁵Rb, ⁸⁷Rb ground states is found to be $160\pm 12\text{MHz}$. No pressure broadening was observed for these transitions within the instrumental resolution of 15 MHz.

1. まえがき

電子が大きな主量子数 n に励起された状態を、高励起状態（或いはリードベルグ状態）と呼ぶ。Table 1 に示す様に、電子状態の物理的性質は n に大きく依存する。高励起状態においては、電子の束縛エネルギーは室温エネルギー程度或いはそれ以下であり、平均軌道半径は $\sim 1000\text{\AA}$

Table 1. Some approximate properties of highly excited states of atoms

Ionization energies	$\propto 1/n^2$
Level spacings (for fixed l)	$\propto 1/n^3$
Number of Sublevels (for fixed n)	$\left. \begin{array}{l} \\ \end{array} \right\} \propto n^2$
Electric dipole matrix elements ($\Delta n=0$)	
Mean atomic radii	$\propto \xi^2 n^2$
Stark shifts	$\propto \xi^2 n^2$
Quadrupole Zeeman effects.	$\propto \xi^2 n^4$
Excitation rates	$\propto 1/n^3$
Radiative lifetimes (for fixed l)	$\propto n^3$

或いはそれ以上にも達する。高励起状態のイオン化・生成過程は、宇宙空間及び実験室プラズマのエネルギーバランスに寄与し¹⁾、又化学反応に中間状態として関与する²⁾。高励起状態を利用することにより、レーザーによる同位体分離の効率を上げ得ることも示されている³⁾。又選択的に励起した高励起原子の衝突・反応過程を調べることにより、量子数 (n, l) により記述される低速電子と原子・分子との相互作用に関する理解が得られる⁴⁾。

最近、可変波長色素レーザーを用いて**特定の量子状態**を高い確率で励起し得る様になり、高励起状態に関する研究が飛躍的に発展しつつある。高励起状態の寿命⁵⁾、衝突による量子状態の変化⁶⁾、静電場^{3), 7), 8)}・マイクロ波⁹⁾・光電場¹⁰⁾によるイオン化等が調べられている。又微細構造^{11)~13)}、超微細構造¹⁴⁾の振舞いも活発な研究の対象となっている。

[†] This work was done in collaboration with Dr. B. P. Stoicheff at the University of Toronto in 1975.

Brief report of this work is submitted to J. Opt. Soc. Am. by Y. Kato and B. P. Stoicheff.

* 大阪大学工学部レーザー工学研究施設（大阪府吹田市山田上）

* Institute of Laser Engineering, Osaka University, Suita, Osaka, Japan.

これらの研究の大部分においては、広い発振波長範囲が容易に得られる窒素レーザー励起色素レーザーが用いられている。しかしパルス色素レーザーに比べて、連続発振色素レーザーはスペクトル純度が良く、高分解能分光に適する。2光子吸収法は、可視レーザー光を用いて紫外域のエネルギー準位を広い範囲にわたって測定できる大変有用な方法である。高次の効果の為にその遷移確率は小さいが、Hänsch等は連続発振色素レーザーを用いても、原子系における2光子吸収を十分観測し得ることを示した¹⁵⁾。彼等はNa原子気体をレーザー光定在波中に置くことにより、¹⁶⁾ ドップラー巾の無いNa3s→4d 2光子吸収スペクトルを観測した。

本研究はこの方法をRb原子の高励起D状態の測定に適用したものである。高励起状態への遷移確率は $n^{-3} \sim n^{-4}$ に比例するので、信号強度は非常に小さくなる。しかし検出方法に十分な注意を払うことにより、32D状態迄への遷移を観測することができた。この方法の分解能は主にレーザー光の周波数安定性で決り、本研究では約15MHzであった。しかしこれは50KHz以下に迄し得るので、¹⁷⁾ 本研究により高励起状態の超高分解能分光の可能性が示されたと云えよう。本論文では主にRb原子高励起状態の微細構造及び圧力効果について述べる。

2. 高分解能2光子吸収分光

2-1. スペクトル

Fig. 1に示す様に、レンズと凹面鏡により試料気体中に周波数 ν_L のレーザー光定在波を作る。原子が速度 v で光軸と θ 方向に運動している時、原子系で見ると両方向より伝播してくるレーザー光の周波数は夫々、

Fig. 1 Schematic diagram of an atom placed in a standing-wave laser field.

$$\nu_{\pm} = \nu_L \sqrt{1 - \beta^2} / (1 \mp \beta \cos \theta) \quad (1)$$

($\beta = v/c$) となる。1方向に伝播する光より光子を2個吸収する場合は、1次のドップラー巾 $\Delta\nu^{(1)} = (2\nu_L/c) (2RT \ln 2/M)^{1/2}$ が生じる。しかし両方向のビームより光子を各1個吸収する場合は、原子系におけるエネルギー和が

$$h\nu_L + h\nu_L \cong 2h\nu_L \left(1 + \frac{v_z^2 - v_x^2}{c^2} \right) \quad (2)$$

となるので、1次のドップラー効果は打ち消し合うが、2次のドップラー巾 $\Delta\nu^{(2)} \cong 2\nu_L (\bar{v}/c)^2$ ($\bar{v}$ は原子の平均熱速度)が残る。又Fig. 1の様な配置においては原子とレーザー光の相互作用時間が有限であるため、 $\Delta\nu^{(int)} \cong \bar{v}_x / (4\pi w_0)$ の広がりが生じる。なお、定在波中の2光子吸収においては、光子の運動量が打ち消し合うので反跳による吸収線のシフトは生じない¹⁸⁾。

Rb原子のエネルギー図をFig. 2に、又2光子吸収に関与する準位の拡大図をFig. 3に示す。試料として用いた自然Rbは2つの同位体⁸⁵Rb (72%) 及び⁸⁷Rb (28%) より成る。基底状態 $5s^2S_{1/2}$ の超微細構造は3035.73MHz及び6834.68MHzと知られており、¹⁹⁾ 励起状態 $nd^2D_{3/2, 5/2}$ の微細構造 (Δ 及び Δ') は本実験において決定しようとするものである。又Fig. 3の δ は、⁸⁵Rbと⁸⁷Rbの基底状態の(荷重平均)エネルギーの差であり、イオン化ポテンシャルの同位体シフトを表わす。5s-nd間の2光子吸収遷移は全て許容遷移であり、従って1つのスペクトルが8本の成分(⁸⁵Rbに対してa, b, c, d, ⁸⁷Rbに対してa', b', c', d')より成り、それらの強度比は各準位の多重度より決る(a:b:c:d=1:5/2:3/2:5/4)。従って²D状態が反転していない場合(即ち、 $J=5/2$ 準位が $J=3/2$ 準位より高い場合)は、Fig. 3の下に示した様なスペクトルが観測されると予想される。

2-2. 遷移確率

Fig. 1に示される配置における2光子吸収遷移確率を計算する。^{20), 15)} 出力Pのレーザー光をレンズと凹面鏡により集光し、半径 w_0 のガウス

Fig. 2 Rb 5s-nd two-photon absorptions and subsequent radiative decays.

Fig. 3 Energy level diagram of the 5s $^2S_{1/2}$ and nd $^2D_{3/2}, 5/2$ states of natural Rb, showing the allowed two-photon transitions and expected spectrum.

型強度分布をもつ定在波を作る。焦点を中心とする長さ l の体積 V における2光子吸収遷移確率は、原子数密度 ρ 及びレーザー光強度 $I(r, z)$

の2乗に比例し、

$$\Gamma = \rho \gamma \int_V I^2(r, z) dr$$

$$= \rho \gamma P^2 \left(\frac{2}{\lambda} \tan^{-1} \frac{\lambda l}{4 \pi w_0^2} \right) \quad (3)$$

となる。単位原子、単位レーザー光強度当りの遷移確率 γ は、共鳴状態 $2\omega_L = \omega_{ge}$ において、

$$\gamma = \frac{1}{\Gamma_e} \left(\frac{r_0 \lambda_L^2}{\hbar c} \right)^2 \left(\frac{\omega_L}{\Delta \omega_r} \right)^2 f_{gr} f_{re}$$

$$\times | \langle J'1M'q_1 | j_r m \rangle \langle j_r 1mq_1 | JM \rangle |^2 \quad (4)$$

である。ここに $|g\rangle = |JM\rangle$, $|r\rangle = |j_r m\rangle$, $|e\rangle = |J'M'\rangle$ は夫々、始状態、中間状態、終状態であり、 f_{gr} , f_{re} はそれらの間の遷移の振動子強度、 $\Delta \omega_r = \omega_L - \omega_{gr}$, Γ_e は状態 e の寿命の逆数、 r_0 は古典電子半径であり、右辺の最後の項は Clebsch-Gordan 係数である。

数値例として、 $5s^2S_{F=3} \rightarrow 18d^2D_{J=5/2}$ 遷移 (Fig. 3の成分 c) を考える。中間状態としては、5p状態のみを考えれば良い。この場合 $f_{gr} = 1.09$, $f_{re} = 5.9 \times 10^{-4}$, $\lambda_L = 6007 \text{ \AA}$, $\omega / \Delta \omega_r = 4.21$, $\Gamma_e = 1.5 \times 10^5 \text{ sec}^{-1}$ (Rb原子の振動子強度より求めた計算値) であり、又基底状態 $|3M_F\rangle$ を $|JM\rangle$ で展開することにより $|\langle \dots \rangle \langle \dots \rangle|^2 = 21/5$ となる。これより $\gamma = 3.4 \times 10^{-2} (\text{W/cm}^2)^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ と求められる。 $p = 20 \text{ mW}$, $w_0 = 20 \mu\text{m}$, $l = 1 \text{ cm}$, $\rho = 3.6 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ とすれば、 $\Gamma = 1.4 \times 10^{13} \text{ sec}^{-1}$ となる。実験に用いたレーザー光のスペクトル巾 ($\sim 15 \text{ MHz}$) は Γ_e より大きいので、この場合は $\Gamma = 1.4 \times 10^{11} \text{ sec}^{-1}$ と計算される。これに測定系の効率を含めても、2光子吸収遷移が十分観測可能であることがわかる。

2光子吸収実験用光源として、パルス発振色素レーザーと連続発振色素レーザーの比較を行なう。レーザー光のスペクトル巾 Γ_L が励起状態の線巾 Γ_e より大きい場合、 $\Gamma \propto P^2 / \Gamma_L$ となる。比較を Table 2. に示す。これより、注意深く作られたパルス色素レーザー²²⁾は、市販の連続発振色素レーザーより良い励起効率を持つ。しかし分解能 1 MHz 以下を必要とする様な高分解能分光のためには、連続発振色素レーザーの

方が有用であろう。

Table 2. Comparison of a cw dye laser and a pulsed dye laser for two-photon absorption experiments.

	cw dye laser ^{a)}	N ₂ laser-pumped dye laser ^{b)}
Frequency width Γ_L	10MHz	300MHz
Laser power P	50mW	2KW, 5ns, 50pps
P^2/Γ_L (W ² /MHz)	2.5×10^{-4}	3.3×10^{-3}

a) Ref. 21

b) Ref. 22

3. Rb原子における2光子吸収の実験

実験装置の配置図をFig. 4に示す。連続発振色素レーザー (Spectra Physics Model 580) は、マルチライン発振 2.5Wのアルゴンレーザー (Spectra Physics Model 164) で励起される。ロードミン 6 G を色素とし、単一モード発振で出力40~50mWを実験に使用した。スペク

トルの安定度は10~15MHzである。レーザーの発振周波数は、分光器、スキャニングファブリーペロー (spectral free range 2GHz) 及び Cervit をスペーサーとした安定な共焦点ファブリーペロー (spectral free range 150 MHz) によりモニターされる。偏光子及び $\lambda/4$ 板はアイソレーターとして用いられ、レンズ及び凹面鏡により試料中に定在波が作られる。

本実験においては、2光子吸収遷移は $np \rightarrow 5s$ ($n \geq 6$) の蛍光を観測することにより検出される (Fig. 2 参照)。この蛍光は f/1 石英レンズにより集められ、色ガラスフィルター

(Corning 7-59及び5-56) を通した後、冷却された光電子増倍管 (EMI 6256) により検出される。出力パルスは光子計数回路で処理され、レコーダーに記録される。信号が弱い場合にスペクトル全体を早く見る方法として、Multi-channel Analyzerを用いた。この場合は色素レーザーの波長をくり返し掃引し、これと同期

Fig. 4 Experimental arrangements for the observation of Doppler-free two-photon absorptions in Rb.

して光子計数回路の出力を積算する。しかしこの方法では波長掃引の非線型性及びふらつきにより周波数校正に誤差が生じるため、最終測定にはアナログモードでレコーダーに記録する方式を用いた。

Rb原子は 2×10^{-6} Torrの真空中でパイレックスセル中に蒸溜され封じ切られた。このセルを金属オープン中に置きセルにつけた側管の温度を 135°C に保った。これは原子数密度で $3.6 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ に対応する。この比較的高い蒸気圧は、高励起状態への2光子吸収遷移確率が小さいことのために必要とされた。実験条件に関する幾つかのパラメーターをTable 3.に示す。

2光子吸収遷移は5s-11dより5s-32d迄観測された。(低エネルギー側は色素レーザーの発振波長領域により制限された。)スペクトルの例をFig. 5に示す。試料中にレーザー光の定在波ができた場合にのみ、非常に線巾の鋭い8本の成分が常に観測され、それらの強度はレーザ

Table 3. Some parameters on the experimental conditions.

Temperature of the sample	135°C
Number density of Rb atoms	$3.6 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$
Average thermal velocity	$3.5 \times 10^4 \text{ cm} \cdot \text{sec}^{-1}$
1st order Doppler width: $\Delta\nu^{(1)}$	780MHz
2nd order Doppler width: $\Delta\nu^{(2)}$	140KHz
Width due to interaction time: $\Delta\nu^{(\text{int})}$ ($w_0 = 20 \mu\text{m}$)	1.4MHz

ー光強度の2乗に比例する。成分a-b, c-d及びa'-b', c'-d'の間の周波数差は夫々、 ^{85}Rb 及び ^{87}Rb の基底状態の超微細構造間隔の $\frac{1}{2}$ であり、又これらの成分は予測された強度比をもつ。従って観測されたスペクトルは、5s-nd間の2光子吸収遷移によるものと結論される。

各成分の線巾は装置の分解能で決る $\sim 15\text{MHz}$ であり、高励起状態の場合も、又より高い圧力($\sim 10^{14} \text{ cm}^{-3}$)においても線巾の広がり観測されなかった。又1次のドップラー効果による

Fig. 5 Reproductions of experimental traces of two-photon absorption spectra in natural Rb. (The 5s-12d spectrum is a composite of two separate traces, each having a scanning range of $\sim 4 \text{ GHz}$.)

広がり $\Delta\nu^{(1)}$ が、5s-12dのスペクトルに見られるように、ベースラインの僅かな変化として観測された。

信号光強度は主量子数 n の増加に伴って急速に減少した (Fig. 6 参照)。変化の様子は $\sim n^{-r}$ ($r=4.4 \pm 0.6$) であり、振動子強度²³⁾より予測される値 ($n^{-3.5}$) よりやや強い n 依存性を示した。最も強い成分 (成分 c) の強度は 5s-12d遷移において約3000cpsであったが、5s-32d遷移では僅か ~ 30 cpsとなった。信号光強度は原子数密度 $\sim 2.5 \times 10^{13} \text{cm}^{-3}$ より飽和し始め、又高い圧力では $\text{Rb}_2^{24)}$ によると思われる紫外背景光が急速に増加したため、蒸気圧を高くしても S/N比は向上しなかった。

Fig. 5 に示した様なスペクトルを各遷移に対し少くとも3回測定し、同時に記録した周波数マーカーにより、各成分間の周波数差を $\pm 10 \sim \pm 15 \text{MHz}$ の精度で決定した。

Fig. 6 Relative signal intensities of 5s-nd transitions plotted against the quantum number n .

4. 実験結果の解析

本実験において測定し得た最も高いエネルギー準位32d状態は、束縛エネルギーが 117cm^{-1} ²⁵⁾、電子平均軌道半径は $740 \text{\AA}$ であり、自然放出による寿命は $\sim 40 \mu\text{s}$ である。実験結果の解析よりこの様な高励起状態の微細構造及び圧力効果を理解する手がかりが得られ、同時に基底状態の同位体シフトも求められる。

4-1. 微細構造

アルカリ金属の微細構造が非常に特異な振舞いを示すことは良く知られている。しかしその高励起状態における様子は殆んど測定されていない。本実験の測定結果より、Rb原子の高励起 2D 状態の微細構造を決定できる。先ず観測されたスペクトルと Fig. 3 との比較より、nd 2D 状態 ($n=11 \sim 32$) の微細構造は反転していないことがわかる。又微細構造の同位体シフト

(Δ と Δ' の差)は測定誤差の範囲内で認められない。決定された Δ の値を、従来の分光結果²⁵⁾

Fig. 7 A graph of $(n^*)^3 \Delta$ vs. n^* , showing the dependence of the fine structure intervals Δ of the nd $^2D_{3/2, 5/2}$ states on the effective quantum number n^* .

Table 4. Experimental values of fine structure intervals (Δ) of nd $^2D_{3/2, 5/2}$ states of Rb.

n	n*	Δ (GHz)	n	n*	Δ (GHz)
4	2.767	-13.2 ^a	17	15.67	2.716 (.016)
5	3.706	88.8 ^a	18	16.65	2.268 (.006)
6	4.684	67.8 ^a	19	17.65	1.896 (.016)
7	5.673	45.3 ^a	20	18.65	1.628 (.012)
8	6.667	30.3 ^a	21	19.65	1.392 (.012)
9	7.663	21.0 ^a	22	20.66	1.198 (.006)
10	8.661	14.4 ^a	23	21.66	1.052 (.006)
11	9.659	9.0 ^a	24	22.64	0.918 (.012)
		10.994 (.010)	25	23.65	0.806 (.010)
12	10.66	7.5 ^a	26	24.63	0.706 (.012)
		8.306 (.034)	27	25.63	0.638 (.010)
13	11.66	6.0	28	26.60	_____
		6.456 (.030)	29	27.63	_____
14	12.66	5.068 (.016)	30	28.62	0.454 (.010)
15	13.65	4.076 (.024)	31	29.62	_____
16	14.65	3.296 (.006)	32	30.63	0.382 (.012)

^aRef. ²⁵⁾

と共に Table 4 に示す。1 電子モデルによれば,^{2,6)} 微細構造間隔は、有効量子数 n^* の 3 乗に反比例する。しかし Fig. 7 に示される様に Δ は $(n^*)^3$

にも、又 n^3 にも反比例しない。アルカリ金属の 2D 状態の微細構造間隔を 1 つにまとめたものが Fig. 8 である。^{25), 12)} これらより 1 電子モデルは、低励起状態のみならず高励起状態においても不十分であることが明らかである。これは価電子と殻内電子との相互作用 (分極効果, 相関効果) によるとされているが、定量的な理解は十分なされていない。

4-2. スペクトルの線巾

現在の実験条件において、2 次のドップラー効果及び有限の相互作用時間による線巾は Table 3. に示した通りであり、いずれもレーザー周波数のふらつき ~ 15 MHz より小さい。観測された線巾は全てこのふらつきの範囲内であり、衝突による広がりは見られなかった。単位時間当りの衝突回数は、 $\Theta = \sqrt{2} \sigma v \rho$ と与えられるので、非弾性散乱断面積 σ^{inelas} の上限は $8.5 \times 10^{-12} \text{ cm}^2$ と推定される。

Fermi によれば²⁷⁾、高励起電子は殆んど自由な電子として近似され、従って衝突過程は非常に低速電子と基底状態原子との衝突と近似することができる。一般に低速電子とアルカリ金属との衝突断面積は大きく $\sigma \leq 5 \times 10^{-14} \text{ cm}^2$ であり、²⁸⁾ これは今の実験結果と矛盾しない。低速

Fig. 8 Fine structure intervals of the $^2D_{3/2, 5/2}$ states of alkali atoms vs. effective quantum number n^* .

電子線の散乱データは余り得られていないので、種々の励起状態に対する圧力効果を詳しく調べることは、非常に重要と考えられる。

なおドップラー巾のない2光子吸収遷移においては、速度のみが変化する衝突は線巾の広がりには寄与しないので、飽和吸収等の他の測定方法と並用することにより、衝突過程に関する理解を深めることができよう。

4-3. 同位体シフト

観測されたスペクトルにおいて、成分 $a-a'$ の間隔は全て等しく、 $565 \pm 5 \text{ MHz}$ であった。これより、励起状態の同位体シフトは無視でき、又基底状態のイオン化ポテンシャルの差は $\delta = 160 \pm 12 \text{ MHz}$ と求められる。質量シフト²⁶⁾は 150 MHz と計算されるので、体積シフトは $\sim 10 \text{ MHz}$ 以内であると結論される。イオン化エネルギーの同位体シフトがこのような高精度で求められたのは、これが初めてであろう。

4-4. 信号強度

2-2での計算によれば、観測している部分での $5s-18d$ 2光子吸収遷移確率は $\Gamma \simeq 1.4 \times 10^{11} \text{ sec}^{-1}$ である。実際に計数される光電子パルス数はこれに次の要因を乗じて求められる： $18d \rightarrow n'p$ ($n' \geq 6$) の branching ratio ($\sim \frac{1}{3}$)、 $n'p \rightarrow 5s$ の branching ratio ($\sim \frac{2}{3}$)、蛍光の試料中での自己吸収 ($\sim 10^{-2}$)、集光の立体角 ($\sim \frac{1}{8}$)、フィルター透過率 ($\sim \frac{1}{3}$)、光電面の量子効率 ($\sim 10^{-1}$)。従って予想される信号強度は $S^{\text{est}} \simeq 10^6 \text{ cps}$ となり、これは観測された強度 $S^{\text{obs}} \simeq 10^3 \text{ cps}$ より3桁大きく、この差は計算誤差の範囲外と思われる。これは高励起状態の非輻射緩和によるものかも知れない。非弾性散乱断面積を前記の $5 \times 10^{-14} \text{ cm}^2$ と仮定すれば衝突時間は $\Theta^{-1} = 1.1 \times 10^{-5} \text{ sec}$ となり、これは $18d$ 状態の輻射寿命の計算値 $7 \times 10^{-6} \text{ sec}$ と同程度にすぎない。しかし最近Na原子の励起状態と希ガスとの collisional angular momentum mixingの断面積が 10^{-13} cm^2 以上もあることが見出されている。⁶⁾ アルカリ金属蒸気中でも同様の非常に強い散乱過程が存在すると思われる、これにより信号光強度が減少しているので

はないかと推測される。いずれにしろこれらの解釈の妥当性は、今後の高分解能分光の測定結果に待たねばならない。

5. 結 論

従来非常に弱いと考えられていた高励起状態への2光子吸収遷移が、連続発振色素レーザーを用いて十分観測し得ることが示された。この様な高分解能の方法により、衝突の効果・化学反応・シュタルク効果等、高励起状態の性質を調べることは、非常に重要であり又興味深い。

6. 謝 辞

この研究を熱心に支持して下さったトロント大学の B. P. Stoicheff 教授、及び高励起状態の衝突効果について助言を下された電気通信大学の松沢通生教授に謝意を表します。

文 献

- 1) I. C. Percival, in *Atoms and Molecules in Astrophysics*, ed. by T. R. Carson and M. J. Roberts (Academic Press, N. Y., 1972) p. 65.
- 2) For example, T. G. Finn, B. L. Carnahan, W. C. Wells, and E. C. Zipf, *J. Chem. Phys.* **63**, 1596 (1975).
- 3) R. V. Ambartsumyan, G. I. Bekov, V. S. Letokhov, and V. I. Mishin, *JETP Lett.* **21** 279 (1975). [*ZhETP Pis. Red.* **21**, 595 (1975)]
- 4) Michio Matsuzawa, *J. Phys. B* **8**, 2114 (1975); and the references cited therein.
- 5) T. F. Gallagher, S. A. Edelstein, and R. M. Hill, *Phys. Rev. A* **11**, 1504 (1975).
- 6) T. F. Gallagher, S. A. Edelstein, and R. M. Hill, *Phys. Rev. Lett.* **35**, 644 (1975).
- 7) R. F. Stebbings, C. J. Latimer, W. P. West, F. B. Dunning, and T. B. Cook, *Phys. Rev. A* **12**, 1453 (1975).
- 8) T. W. Ducas, M. G. Littman, R. R. Freeman, and D. Kleppner, *Phys. Rev. Lett.* **35**, 366 (1975).
- 9) J. E. Bayfield and P. M. Koch, *Phys. Rev. Lett.* **33**, 258 (1974).
- 10) G. S. Hurst, M. G. Payne, M. H. Nayfeh, J. P. Judish, and E. B. Wagner, *Phys. Rev. Lett.* **35**, 82 (1975).
- 11) K. B. MacAdam and W. H. Wing, *Phys. Rev.* **12**, 1464 (1975).
- 12) C. Fabre, M. Gross, and S. Haroche, *Opt. Commun.* **13**, 393 (1975).
- 13) Yoshiaki Kato and B. P. Stoicheff, to be published.
- 14) S. Svanberg and P. Tsekeris, *Phys. Rev. A*

- 11, 1125 (1975) ; and the references cited therein.
- 15) T. W. Hänsch, K. C. Harvey, G. Meisel, and A. L. Schawlow, *Opt. Commun.* **11**, 50 (1974).
- 16) L. S. Vasilenko, V. P. Chebotaev, and A. V. Shishaev, *JETP Lett.* **12**, 113 (1970) [*ZhETP Pis. Red.* **12**, 161 (1970)].
- 17) J. J. Snyder and J. L. Hall, in *Laser Spectroscopy*, ed. by S. Haroche et al., (Springer-Verlag, Berlin, 1975) p.6.
- 18) E. V. Baklanov and V. P. Chebotaev, *Opt. Commun.* **12**, 312 (1974).
- 19) S. A. Ochs and P. Kusch, *Phys. Rev.* **85**, 145 (1952).
- 20) B. Cagnac, G. Grynberg, and F. Biraben, *J. de Phys.* **34**, 845 (1973).
- 21) Typical commercial product.
- 22) T. W. Hänsch, *Appl. Opt.* **11**, 895 (1972).
- 23) E. M. Anderson and V. A. Zilitis, *Opt. Spectrosc.* **16**, 211 (1964) [*Opt. Spektrosk.* **16**, 382 (1964)].
- 24) M. Lapp and L. P. Harris, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **6**, 169 (1966).
- 25) C. E. Moore, *Atomic Energy Levels*, Vol II, Circular 467, National Bureau of Standards (1952).
- 26) H. G. Kuhn, *Atomic Spectra* (Academic Press, New York, 1969) 2nd edition.
- 27) E. Fermi, *Nuovo Cimento* **11**, 157 (1934).
- 28) H. S. W. Massey and E. H. S. Burhop, *Electronic and Ionic Impact Phenomena*, Vol. 1 (Oxford, London, 1969) 2nd edition, p.560.