

利用脉冲光电流效应测量相对 gf 数的研究

殷立峰 胡企铨 林福成
(中国科学院上海光学精密机械研究所)

提 要

本文通过理论分析给出了脉冲光电流信号峰值与激励激光光强之间的定量关系。利用这一定量关系可以在放电管内能级集居数偏离 Boltzmann 分布及能级具有异常电离率的情况下利用光电流效应测定原子跃迁的相对 gf 数。用 Ne 空阴极放电灯进行的判断实验测量的结果证实了这一方法的可行性。

一、前 言

光电流效应中单光子跃迁光电流信号的大小是与激励激光强度、共振能级的粒子集居数和共振跃迁吸收截面三者都有关系, 而通过共振跃迁吸收截面的测量可以获得原子跃迁相对振子强度 gf 数的数值, 因而利用光电流效应有可能测量 gf 数。Zalowski 等^[1]和 Keller 等^[2]在利用可调谐连续激光进行的光电流效应的测量中研究了这种可能性。他们提出的公式为:

$$\Delta Z / I_{ij} \propto \lambda_{ij} n_0 g_i f_{ij} \cdot \exp(-E_i / kT), \quad (1)$$

其中 n_0 为基态粒子集居数; λ_{ij} 为入射共振激光波长; $g_i f_{ij}$ 为 $i \rightarrow j$ 跃迁的相对振子强度; E_i 为激光激励的下能级能量; k 为 Boltzmann 常数; T 为空阴极放电管内原子温度; ΔZ 为激光引起的放电管阻抗变化; I_{ij} 为激励激光光强。公式(1)是假设放电管内粒子集居数分布处于热动平衡后获得的。Zalowski 对 Ne 进行了实验测定, 对 Ne 的 $2p \rightarrow$ 高能态的跃迁获得了相对来说好的结果, 但对于 $1s \rightarrow 2p$ 态跃迁的测量结果表明(1)式不能用于这一测量。这一点实际上是由于能级粒子集居数的异常分布及能级具有异常电离率(两者主要是由于亚稳态的存在而引起的)。Keller 利用 U 空阴极放电管进行的测量表明(1)式可用于测量 U 的 gf 数。其后 H. A. Bachor et al. 利用 Ca 空心阴极放电管通过测量 Ca 跃迁的连续光电流信号值验证公式(1)^[3]。Bachor 对 Ca 进行的测量具有较大的误差, 他们认为这是因为空心阴极放电管内偏离 Boltzmann 分布, 因而利用(1)式进行 gf 数的测量就具有较大的不精确性。事实上, 除了 Bachor 指出的原因外, 各能级电离率的异常变化可能是利用连续光电流效应测量 gf 数中出现较大误差的另一主要原因。

为了解决利用光电流效应测量原子跃迁的 gf 数问题, 我们对利用脉冲光电流效应测量的可能性进行了理论的研究和实验的验证。研究结果表明, 利用脉冲光电流效应进行 gf 数测量可以避免偏离 Boltzmann 分布和异常电离率二者的影响, 从而能用这一方法测量用常

规发射谱和连续光电流光谱无法测量的如惰性气体原子跃迁的 gf 数。

二、原 理

G. Erez 等过去曾提出一个用以解决脉冲光电流效应机理的理论^[4], 这一建立在二能级速率方程基础上的理论模型过于简单, 无法解释脉冲光电流效应的全部实验结果。本文作者曾提出了一个用以解决脉冲光电流效应机理的新模型^[5], 这是在多能级速率方程的基础上, 引入电子密度变化的方程并考虑到电子在放电等离子体中的运动, 进而考虑到由此引起的回路电流变化方程, 可以得到一组用以描述脉冲光电流效应的方程组:

$$\left. \begin{aligned} \frac{d\Delta n_k}{dt} &= \sum_H S_{Hk} \Delta n_H - W_k \Delta n_k + \rho_k \Delta n_e \quad (k=1, 2, \dots, m), \\ \frac{d\Delta n_e}{dt} &= \sum_k \alpha_k \Delta n_k - \gamma \Delta n_e, \\ \frac{d^2 \Delta i}{dt^2} + \frac{1}{RC_0} \frac{d\Delta i}{dt} + \frac{\beta e}{RC_0 t_0} \Delta n_e &= 0 \quad (0 \leq t \leq t_0), \\ \frac{d^2 \Delta i}{dt^2} + \frac{1}{RC_0} \frac{d\Delta i}{dt} + \frac{\beta e}{RC_0 t_0} [\Delta n_e(t) - \Delta n_e(t-t_0)] &= 0 \quad (t \geq t_0), \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

其中, Δn_k 为 k 能级粒子集居数对稳态值的偏离; Δn_e 为电子密度对稳态值的偏离; S_{Hk} 为 H 能级向 k 能级的激励速率; W_k 为 k 能级的去激励速率; ρ_k 为电子复合引起 k 能级增加的速率; α_k 为各种因素引起的 k 能级的电离总速率; γ 为电子的倍增速率; RC_0 为回路时间常数; t_0 为电子在放电管内的渡越时间; Δi 为电流偏离稳态的值即光电流信号; β 为与电子在放电管内运动有关的常数; e 为电子电荷; m 为参与作用的能级数。解方程组(2)还需要有初始条件, 初始条件的建立是与激励激光的作用情况有关的。

在高峰值功率短脉冲激光激励时, 设激光功率函数为 $I_{ij}(t')$, 脚标 ij 表示激光波长与能级 i 到能级 j 的跃迁共振。由于激光峰值功率很高及作用时间很短, 因此在激光作用期间忽略放电等离子体中的其余作用。由此可得到 i 和 j 能级的粒子集居数速率方程:

$$\left. \begin{aligned} \frac{dn_i}{dt'} &= -(n_i - n_j) \sigma_{ij} I_{ij}(t'), \\ \frac{dn_j}{dt'} &= (n_i - n_j) \sigma_{ij} I_{ij}(t'), \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

其中, n_i 是下能级 i 的粒子集居数; n_j 是上能级 j 的粒子集居数; σ_{ij} 是能级 i 和 j 之间的光激发截面。由(3)式可以解得:

$$\left. \begin{aligned} \Delta n_i &= -\frac{1}{2} (n_i^0 - n_j^0) \left[1 - \exp\left(-2\sigma_{ij} \int I_{ij}(t') dt'\right) \right], \\ \Delta n_j &= \frac{1}{2} (n_i^0 - n_j^0) \left[1 - \exp\left(1 - 2\sigma_{ij} \int I_{ij}(t') dt'\right) \right]. \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

(4)式是脉冲激光作用期内, i 及 j 能级粒子集居数的变化关系。

以激励激光脉冲结束时的时刻作为 $t=0$ 时刻, 则(4)式就是方程(2)的初始条件之一。在 $t=0$ 时刻, 其余量(Δn_k 、 Δn_e 、 Δi 等)的初始值均为零, k 中不包括 i 和 j 。(4)式的积分是对激光脉冲进行的。

由初始条件解(2)式并考虑到必要的简化^[5], 可得到光电流信号为:

$$\left. \begin{aligned} \Delta i &= \frac{1}{2} (n_i^0 - n_j^0) \left[1 - \exp\left(-2\sigma_{ij} \int I_{ij}(t') dt'\right) \right] \\ &\quad \times \left[\sum_k C_k e^{-W_k t} + C_\gamma e^{-\gamma t} + C_R e^{-t/RC_0} - (\sum_k C_k + C_\gamma + C_R) \right] \quad (0 \leq t \leq t_0), \\ \Delta i &= \frac{1}{2} (n_i^0 - n_j^0) \left[1 - \exp\left(-2\sigma_{ij} \int I_{ij}(t') dt'\right) \right] \\ &\quad \times (\sum_k C'_k e^{-W_k t} + C'_\gamma e^{-\gamma t} + C'_R e^{-t/RC_0}) \quad (t \geq t_0). \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

(5)式中各系数 C_k 、 C_γ 、 C_R 、 C'_k 、 C'_γ 、 C'_R 均可从方程(2)中解出, 它们与各能级参量及放电等离子体参量有关。由方程(5), 在 $t = t_0$ 时刻, 光电流信号达到极大值(在某些情况下, 存在其余极大值, 此时 $\Delta i|_{t=t_0}$ 为极大值之一^[5]) Δi_{\max} :

$$\Delta i_{\max} = \delta_{ij} \left[1 - \exp\left(-2\sigma_{ij} \int I_{ij}(t') dt'\right) \right]. \quad (6)$$

(6)式中 δ_{ij} 是与激光激励的上下能级有关的系数, 对于不同的一对、下能级将具有不同的数值。在激光功率很小或激发截面小的情况下, $\sigma_{ij} \int I_{ij}(t') dt'$ 足够小, 此时(6)式可化简为线性关系:

$$\Delta i_{\max} = \delta_{ij} \cdot 2\sigma_{ij} \int I_{ij}(t') dt'. \quad (7)$$

(6)、(7)两式就是不同激光功率下光电流信号与激光功率之间的函数关系。它与过去文献报道的结果是十分一致的^[6]。

由(5)式可看出, 由于 δ_{ij} 中不仅包含能级集居数 n_i^0 和 n_j^0 , 还包括一部分与各有关能级参量及放电等离子体参量有关的量, 后一部分量中影响最大的是有关能级的电离率。在某些情况下(例如紫外辐射导致强光电效应出现等), 某些能级的电离率可能出现异常变化。因而对于不同的 i 和 j , δ_{ij} 不是一个常数。尤其在偏离 Boltzmann 分布和出现异常电离的情况下, δ_{ij} 的变化很大。正因为如此, 直接利用(1)式即将(7)式中的 δ_{ij} 仅考虑为粒子集居数的变化进行 gf 数测量将出现较大的不精确性。

如果激光激励功率足够强, 以致我们能够测定(6)式所表示的光电流信号与激光功率的关系, 则根据(6)式, 利用计算机拟合处理, 就有可能由实验测定的数据分别算得 δ_{ij} 和 σ_{ij} 的值, 通过 $\sigma_{ij} \propto \lambda_{ij} gf$ 的关系, 由 σ_{ij} 值确定 gf 数。显然, 利用这一方法在测定 gf 数时可以避免 δ_{ij} 的影响, 从而提高测量精度并有可能在偏离 Boltzmann 分布和能级具有异常电离率二种情况下利用脉冲光电流效应测定 gf 数。

三、实验装置和测量方法

为了对上述理论分析作出实验判断, 我们对几个 $\text{Ne } 1s \rightarrow 2p$ 态跃迁的 gf 数进行了测量。选择 $\text{Ne } 1s \rightarrow 2p$ 态跃迁是因为 Ne 空阴极放电中能级集居数不符合 Boltzmann 分布, 并且 $\text{Ne } 1s$ 态的电离率也具有异常现象, 此外, 还存在 4 个 $\text{Ne } 1s$ 态之间的强烈耦合作用的影响, 这些因素导致采用常规发射光谱及连续光电流效应均无法测量 $\text{Ne } 1s \rightarrow 2p$ 态跃迁的 gf 数。

测量是用商用 Ne-Nd 空阴极放电灯完成的。利用调 Q 倍频 YAG 激光器泵浦的脉冲染料激光器作为激励光源,采用了 R6G 和 RB 的混合染料。染料激光器波长调谐范围为 5800 ~ 6250 Å,然而,为了保证测量足够的的数据,仅能利用功率较大的 5900~6150 Å 范围。激光线宽约 0.1 Å,脉冲半宽度约 3 ns。

整个实验装置示意图如图 1。为了提高功率测量的精度,采用了电光调制器控制功率,利用毫微秒峰值保持器测量激光脉冲的峰值功率并用 X-Y 记录仪记录。光电流信号用宽带脉冲示波器检测。

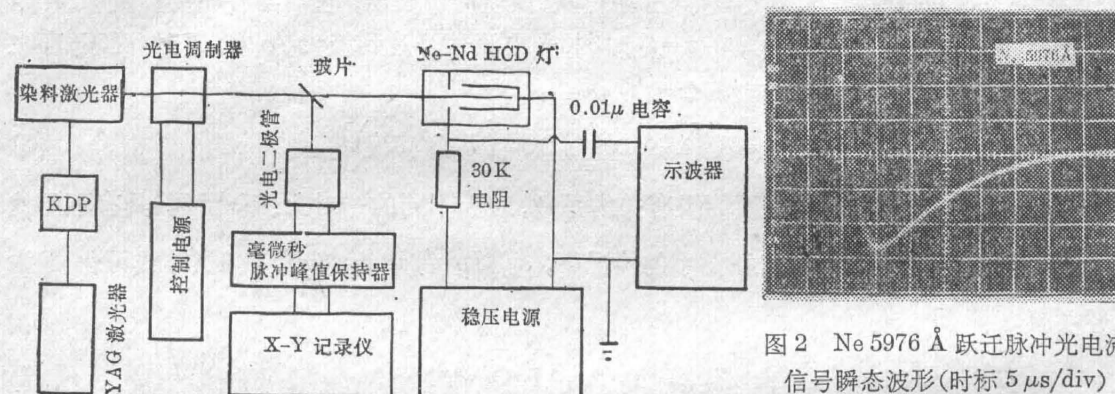


图 1 实验装置示意图

Fig. 1 The scheme of experiment setup

图 2 Ne 5976 Å 跃迁脉冲光电流信号瞬态波形(时标 5 μs/div)

Fig. 2 The pulse OGE signal of Ne transition 5976 Å (The time scale is 5 μs/div)

我们对 Ne 的下列 5 个跃迁进行了测量: 5976 Å ($1s_5-2p_5$)、6143 Å ($1s_5-2p_6$)、6030 Å ($1s_4-2p_2$)、6074 Å ($1s_4-2p_3$)、6096 Å ($1s_4-2p_4$)。这些 Ne 跃迁都起自 $1s$ 态,它们的光电流信号瞬态波形都具有特殊的结构。图 2 给出了 5976 Å 跃迁的光电流信号瞬态波形,其它跃迁的波形也是如此。测量的讯号峰值是第一极大值的数值。

由于激光器功率和频率的起伏导致了光电流信号的起伏。为了减小这种起伏引起的误差,对每一数据进行了多次重复测量后取平均值。

四、实验结果和讨论

实际测定了 5 个 Ne 跃迁的光电流信号与激光功率的变化关系,对实验测定的数据利用前述公式(6)用计算机进行了最佳拟合计算,分别获得了 5 组 δ_{ij} 与 σ_{ij} 的值。图 3 给出了 6143 Å 与 6096 Å 跃迁的光电流信号随激光能量 ($\int_{\text{pulse}} I_{ij} dt$) 变化的曲线,其中的“+”和“*”是实验数据点,实线是拟合计算后得到的曲线,二者的一致度是相当好的。其它 3 个跃迁的相应曲线的一致度也相当好,这里就不一一给出了。根据计算得到的 σ_{ij} 值可得到相应跃迁的相对振子强度 gf 数,所得的全部结果都列在表 1 中,表中的“实验测定的相对 gf 数”一列中的值已经用 6096 Å 跃迁的 gf 数进行了归一化处理。表 1 中列出的 5 个有关 Ne 跃迁的标准 gf 数是根据美国国家标准局公布的 Ne 原子跃迁几率(与 Instsugu 等的结果^[7]是一致的)并采用下列公式计算的^[8]:

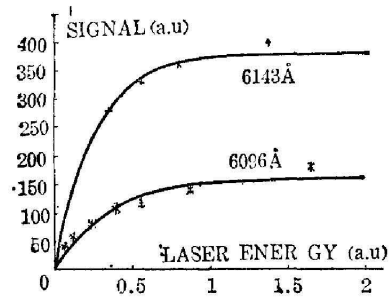


图 3 Ne 6143 Å 和 6096 Å 实验测定的光电流信号与激光能量的关系。其中“+”和“*”是实验数据，曲线是理论计算拟合的
Fig. 3 The OGE signal of Ne 6143 Å and 6096 Å transitions versus irradiated laser energy. “+”, “*” are experiment data and curves are theoretical calculations

表 1 用计算机处理后得到的实验结果

Table 1 Experimental results by computer processing

相应跃迁 (Paschen 标记)	波长 λ (Å)	δ_{ij}	σ_{ij}	实验测定的 相对 gf 数	gf 数 ^[7]	$\sigma_{ij}/\lambda_{ij}gf$	$\Delta Z/I\lambda gf^{[1]}$ ($\Omega/m\omega \cdot nm$)
$1s_5-2p_5$	5976	175	0.30	0.041	0.0565	1.8×10^{-3}	54.3×10^3
$1s_5-2p_6$	6143	382	1.95	0.26	0.795	0.8×10^{-3}	18.6×10^3
$1s_4-2p_2$	6030	163	1.45	0.20	0.0918	5.2×10^{-3}	-2.7×10^3
$1s_4-2p_3$	6074	85	3.85	0.52	0.333	3.8×10^{-3}	0.36×10^3
$1s_4-2p_4$	6096	202	3.77	0.50	0.504	2.5×10^{-3}	2.4×10^3

$$f_{ik} = 1.499 \times 10^{-14} \lambda^2 \cdot g_k / g_i \cdot A_{ki}, \quad (8)$$

其中 g_k 、 g_i 分别为 k 和 i 能级的简并数， A_{ki} 为 k 能级向 i 能级自发跃迁的几率。作为比较，表 1 中也列出了 Zalewski 利用连续激光激励的光电流效应对这些 Ne 跃迁的测量结果。

由表 1 可看出，即使在同一下能级的情况下， δ_{ij} 值仍有很大的不同，这一点表明，直接利用 (1) 式测量 gf 数将产生很大的误差。表 1 最后一列中列出的 Zalewski^[1] 的测量结果也说明了这一点，即使在同一下能级的情况下， $\Delta Z/I\lambda gf$ 也不是一个常数。

测量惰性气体的原子跃迁几率是一件十分复杂的工作，即使在计量精度的实验条件下，误差仍高达 20%^[7]，并且采用了十分复杂的实验装置和方法。

在没有偏离 Boltzmann 分布和异常电离率存在的情况下，Keller^[3] 和 Zalewski^[1] 等利用公式 (1) 进行的测量也具有很大的误差，仅在数量级上证实了该方法的可行性。

由于我们的实验目的仅在于验证理论方法的可行性，所采用实验装置的精度较低，因而测量精度较低，相对误差比较大。但在目前的情况下，通过比较，已可证实该方法的可行性。测量数据中的误差主要来源于以下几点：(1) 激光器功率与频率的漂移；(2) 空阴极放电的不稳定；(3) 示波器观测的较大主观误差；(4) 改变激光功率过程引起的误差；(5) 所引用 Ne gf 数本身所具有的较大误差。其中 (1) 和 (3) 的影响最大。为了提高测量精度必须进一步提高激光器的稳定性并采用更好的方法测量光电流信号峰值，以使最终达到计量精度的测量，

这些就是今后的进一步工作了。

五、结 论

利用脉冲光电流效应可以测量原子跃迁的 gf 数。利用这一方法的优点是能在放电管内能级集居数偏离 Boltzmann 分布和某些能级具有反常电离率的情况下测量 gf 数。在这二种情况下,不能利用一般的常规方法测量 gf 数,特别由于前一因素的存在,将给 gf 数的测量带来很大困难。由于空阴极放电几乎能产生任何原子的蒸气而无需复杂的原子束装置,这一方法就具有独特的优点。在采用级联激励的情况下,可以利用这一方法测量高能态跃迁的 gf 数。在空阴极放电条件下,由于高能态能级接近电离极限具有反常电离率,从而导致无法采用连续光电流谱技术进行测量。

这一方法的缺点是需要高功率的染料激光器以保证测得足够的数。此外,还要求脉冲染料激光器具有高的功率和频率的稳定性。尽管达到后一要求对脉冲激光器比连续激光器要困难一些,然而,这二个要求都是目前的实验技术能够解决的。

本文是在王之江研究员的关怀和指导下完成的,谨此表示衷心的感谢。

上海光机所四室的景春阳工程师和张桂燕工程师参加了本实验中的部分工作。上海科技大学物理系学生王建民 1983 年在上海光机所进行毕业实习时也参加了部分工作。

上海光机所 12 室甘柏辉工程师为我们研制 3 毫微秒峰值保持器,谨此表示衷心的感谢。

参 考 文 献

- [1] E. F. Zolowski *et al.*; *J. Chem. Phys.*, 1979, **70**, No. 2 (Jan), 1015.
- [2] R. A. Keller *et al.*; *J. Opt. Soc. Am.*, 1979, **69**, No. 5 (May), 738.
- [3] H. A. Bachor *et al.*; *Opt. Commun.*, 1982, **43**, No. 5 (Nov), 337.
- [4] G. Erez *et al.*; *IEEE Quantum Electronics*, 1979, **QE-15**, No. 12 (Dec), 1323.
- [5] 殷立峰,胡企铨,林福成;《光学学报》, 1984, **4**, No. 4 (Apr), 294.
- [6] 殷立峰,景春阳,张桂燕,崔俊文;《中国激光》, 1984, **11**, No. 4 (Apr).
- [7] S. Instsugu and J. R. Holmes; *Phys. Rev. A.*, 1975, **11**, No. 1 (Jun), 26.
- [8] W. L. Wiese; "Atomic Transition Probabilities and Lifetimes", *Progress in Atomic Spectroscopy B*, (Edited by W. Hanle and H. Kleinpoppen, Plenum Press, New York, 1979), 1106.

Measurement of relative oscillator strength gf using pulse optogalvanic effect

YIN LIFENG HU QIQUAN AND LIN FUCHENG

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica)

(Received 12 March 1984)

Abstract

We present the quantitative relation between the peak of the pulse optogalvanic signal and the intensity of the excited laser, based on this relation, it is possible to measure the relative oscillator strength of the atomic transition in a discharge tube, in which the population deviates from Boltzmann distribution, and the energy levels have anomalous electric ionization rate. The feasibility of this method was shown by an experiment using a Ne hollow cathode discharge tube.