

分步激发光电流谱测量Ne高激发态寿命

殷立峰 胡企铨 舒海珍 林福成
(中国科学院上海光学精密机械研究所)

提 要

第一次利用分步激发的光电流谱进行了原子能级寿命测量的研究。对Ne的 $2p_2$ 、 $2p_6$ 能级寿命的实测获得了很好的结果,表明这一方法具有很大的优越性和潜力。

一、前 言

早在50年前就已经发现了光电流效应。从1976年Green等人^[1]证实它作为激光光谱学的研究工具是有效和简单的以来,对它的兴趣已不断增长。

由于光电流谱的测量利用电信号代替了传统的光信号检测,因而可利用十分成熟的电子技术获得高灵敏度,高信噪比的检测结果。此外,由于空心阴极放电可以产生几乎任何种类的原子,包括高熔点金属的原子,因而使这一方法具有很大的优越性。近二年来,已有关于把光电流谱测量应用于激光技术和光谱学研究的报导^[2,3]。

本文报导了第一次从理论上证明并从实验上利用分步激发的光电流谱进行原子能级寿命测量的研究。对Ne的高激发态 $2p_2$ 和 $2p_6$ 能级的寿命进行了测量,获得的数据与过去的测量结果^[4]相当一致。

二、原 理

对于脉冲光电流效应,Elrez等人^[5]、张培林等人^[6]曾分别提出过两种表象理论的处理方法。但它们还存在一些内在的矛盾以及与实验不一致的缺陷。本文作者根据气体放电理论,并考虑到电子在放电管内的运动,在此基础上提出了一个改进的表象理论^[7],解决了上述理论中的矛盾,得到了较好的结果。采用这一改进的表象理论,本文证明了可用分步激发的光电流谱测定原子能级寿命。

在一个简化的三能级系统(见图1)中,能级能量为 $E_3 > E_2 > E_1$; A_1 、 A_2 、 A_3 分别为三能级在放电管内的衰减系数; E_1 为亚稳态; α_1 、 α_2 、 α_3 分别为三能级的电离速率系数,且 $\alpha_3 > \alpha_2 > \alpha_1$ (其中包括各种影响因素)。激光波长 λ_{12} 和 λ_{23} 分别对应于 E_1 到 E_2 和 E_2 到 E_3 的跃迁。在一定的条件下,忽略其它次要过程,则当 λ_{12} 和 λ_{13} 分别单独入射时,可得到光电流信号的瞬态波形表达式^[7]。

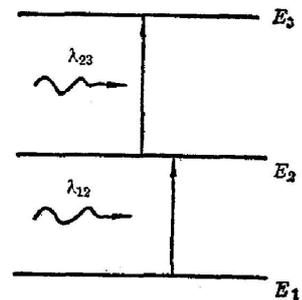


图1 激光分步激发的三能级系统

Fig.1 A three-level system for laser stepwise excitation.

当 λ_{12} 单独入射时, 可从速率方程由初始条件 $\Delta n_2 = -\Delta n_1 = (n_1^0 - n_2^0)Q_{12}$, ($t=0$ 时) 导得:

$$\Delta n_1 = -(n_1^0 - n_2^0)Q_{12}e^{-A_1 t}, \quad \Delta n_2 = (n_1^0 - n_2^0)Q_{12}e^{-A_1 t}. \quad (1)$$

由 (1) 式进一步可求得光电流信号为

$$\left. \begin{aligned} \Delta V_{12}(t) &= K(n_1^0 - n_2^0)Q_{12}[A'e^{-A_1 t} - B'e^{-\gamma t} + B' - A'] \quad (0 \leq t \leq t_0), \\ \Delta V_{12}(t) &= K(n_1^0 - n_2^0)Q_{12}[A'(1 - e^{A_1 t_0})e^{-A_1 t} - B'(1 - e^{\gamma t_0})e^{-\gamma t}] \quad (t \geq t_0), \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

式中, K 为常数; $Q_{12} = \sigma_{12} \int_{\text{pulse}} I(t) dt$, σ_{12} 为激光激发截面, $I(t)$ 为光强函数; $\gamma = \rho n_0$, ρ 为复合因子, n_0 为电子密度; t_0 为电子在放电管内的渡越时间。一般在低压气体放电条件下, $1/A_1$ 、 $1/\gamma$ 和 t_0 均为 μs 量级; A' 、 B' 为与 α_1 、 A_1 、 γ 以及放电回路时间常数 RC_0 (R 为负载电阻、 C_0 为放电管等效电容) 有关的常数, 在现在的情况下, 有 $B' > A'$ 。当 $t = t_0$ 时, $\Delta V_{12}(t)$ 达到的第一极大值为

$$\Delta V_{12 \max} = K(n_1^0 - n_2^0)Q_{12}[B' - A' + A'e^{-A_1 t_0} - B'e^{-\gamma t_0}]. \quad (3)$$

当 λ_{23} 单独入射时, E_2 和 E_3 均为非亚稳态, 可从速率方程及初始条件求得 $t = t_0$ 时的第一极大值(峰值)为

$$\Delta V_{23 \max} = K(n_2^0 - n_3^0)Q_{23}[C'(1 - e^{-\gamma t_0})], \quad (4)$$

其中 C' 是与 A' 、 B' 性质类似的常数。

当激光 λ_{12} 入射激励后, 经过 τ 时刻延迟再入射 λ_{23} 激光, 如果激励激光的脉宽很小以致可以忽略, 则由速率方程通过上述相似计算求得在 $\tau \ll (1/\gamma)$, $\tau \ll (1/A_1)$, $\tau \ll t_0$ 时, $\Delta V(t) = \Delta V_{12}(t) + \Delta V_{23}(t) + \Delta V'(t)e^{-A_1 \tau}$ 取极大值有

$$\Delta V_{\max} = \Delta V_{12 \max} + \Delta V_{23 \max} + \Delta V'_{\max} e^{-A_1 \tau}. \quad (5)$$

利用 (5) 式, 在分别单独测量 $\Delta V_{12 \max}$ 和 $\Delta V_{23 \max}$ 后, 改变 τ 的数值, 测得一系列的 ΔV_{\max} , 即可求得 A_2 的值, 由此得到高激发态 E_2 能级的寿命 $\tau_2 = 1/A_2$ 。

显然, 只要满足激光脉宽远小于所测能级寿命 τ , 且 $\tau \ll (1/\gamma)$ 、 $\tau \ll t_0$ 的条件时, 便可利用激光分步激发过程, 测量高激发态能级的寿命。

三、实验装置和测量方法

整个测量装置主体用一台 YAG 倍频脉冲激光经分光后分别泵浦两台可调谐脉冲染料激光器(脉冲半宽度为 3 ns)作为激发源, 从而很好地保证了激发源之间的同步(其示意图如图 2 所示)。染料激光器 2 的泵浦激光用可调光学延时系统延时。可调光衰减器是用以保证第二束激光在延时过程中保持功率不变, 每次测量前对激光功率进行监测。光电流信号是用示波器直接测量的, 测量是在商用 Ne-Au 空心阴极放电管上进行的。

我们利用这一方法对 Ne 的 $2p_2$ 和 $2p_6$ (Paschen 标记) 能级的寿命进行了测量。Ne $2p$ 态能级寿命为 10~30 ns 范围, 在现在的放电条件下, $\gamma \sim 2 \times 10^5 \text{ sec}^{-1}$, $t_0 \sim 10^{-6} \text{ sec}$, 因此前述条件 $\tau \ll 1/\gamma$ 和 $\tau \ll t_0$ 均能满足。利用集居数很高的亚稳态 $1s_5$ 能级作为 E_1 , $A_1 \sim 10^5 \text{ sec}^{-1}$, 因此 $\tau \ll 1/A_1$ 也成立。 $2p_2$ ($2p_6$) 和 $4s_1''$ ($4d_3$) 能级分别为 E_2 和 E_3 , 相应的激光波长为 $\lambda_{12} = 5881.9 \text{ \AA}$ ($1s_5 \rightarrow 2p_2$) 和 $\lambda_{23} = 5965.5 \text{ \AA}$ ($2p_2 \rightarrow 4s_1''$)。为了减少频率漂移的影响, 第一级激发(λ_{12}) 采用了宽带激光器(激光线宽为 1 \AA)。分别测定两束激光单独激发时

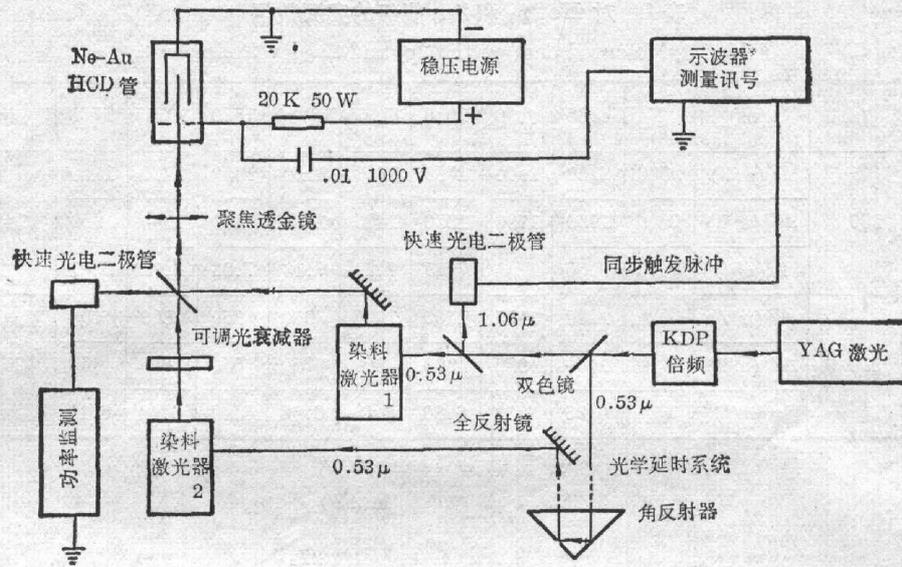


图 2 利用分步激发电流谱测量 Ne 高激发态寿命的实验装置图

Fig. 2 Experimental setup for measuring the lifetime of high excited states of neon using the stepwise excitation optogalvanic spectroscopy

5881.9 Å 或 6143.1 Å 激光单独激发, 如图 3(a); 5965.5 Å 或 5987.9 Å 激光单独激发, 如图 3(b) 的光电流信号 $\Delta V_{12 \max}$ 和 $\Delta V_{23 \max}$, 然后再测定两束激光 (5881.9 Å 与 5965.5 Å) 或 (6143.1 Å 与 5987.9 Å) 共同激发如图 3(c) 所示的光电流信号 ΔV_{\max} 。由于 E_1 能级是亚稳态, 因此光电流信号波形中除了所测量的负向峰值 $\Delta V_{12 \max}$ 外, 还在后面有一个正向的突起, 这是符合计算和过去测量结果的^[7]。由图 3 可见 ΔV_{\max} 、 $\Delta V_{12 \max} \gg \Delta V_{23 \max}$ 。通过延时系统可逐点测定 ΔV_{\max} 随延迟时间 τ 的变化。由测量的数据, 根据 $\Delta V'_{\max} = \Delta V_{\max} - \Delta V_{12 \max} - \Delta V_{23 \max}$ 随 τ 的变化可求出 $2p_2$ 能级的寿命 τ_2 。利用 $\lambda_{12} = 6143.1 \text{ \AA}$ ($1s_5 \rightarrow 2p_6$) 和 $\lambda_{23} = 5987.9 \text{ \AA}$ ($2p_6 \rightarrow 4d_3$), 采用同样步骤还测定了 $2p_6$ 能级的寿命。

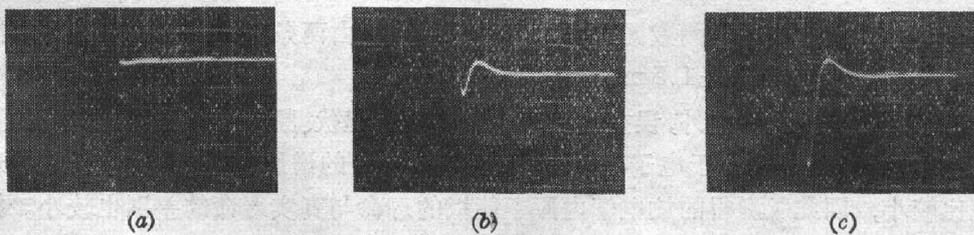


图 3 光电流信号波形(图中时标为 $2 \mu\text{s}/\text{div}$, 幅值 $0.5 \text{ V}/\text{div}$)

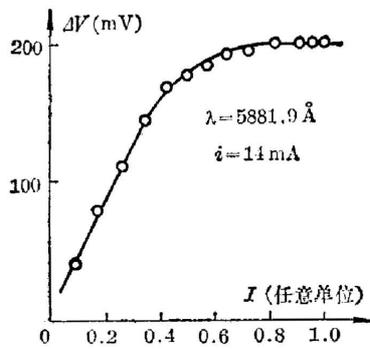
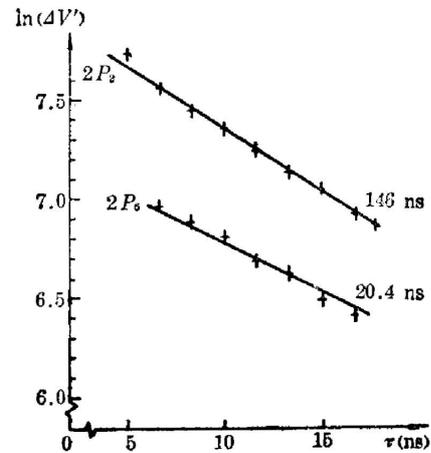
Fig. 3 Optogalvanic signals (The scales are $2 \mu\text{s}/\text{div}$ and $0.5 \text{ V}/\text{div}$)

四、实验结果和讨论

实际测量的数据列于表 1, 为了减小激光功率起伏的影响, 在两种情况下都保证了 ΔV_{12} 处于饱和状况。图 4 是 $\Delta V_{12 \max}$ 随激光功率变化的曲线, 显示了饱和现象。图 5 是根据表 1

表 1 对 $Ne 2p_2$ 和 $2p_6$ 能级的实测数据Table 1 Measured data of the $2p_2$ and $2p_6$ level of neon

测量能级	$\Delta V'_{12}$ (mV)	t (ns)	5	6.65	8.30	10.0	11.65	13.30	15.0	16.65	17.6	寿命 (ns)
$2p_2$	200	ΔV (mV)	2500	2150	1900	1750	1600	1450	1350	1200	1150	14.6 ± 1.5
		$\Delta V'$ (mV)	2300	1950	1700	1550	1400	1250	1150	1000	950	
		$\ln(\Delta V')$	7.74	7.56	7.44	7.35	7.24	7.13	7.04	6.91	6.81	
$2p_6$	200	ΔV (mV)		1250	1175	1100	1000	950	850	800	650	20.4 ± 2.0
		$\Delta V'$ (mV)		1050	975	900	800	750	650	600	450	
		$\ln(\Delta V')$		6.96	6.88	6.80	6.68	6.62	6.48	6.40	6.11	

图 4 $Ne 5882 \text{ \AA}$ 波长跃迁的光电流讯号
随激光功率的变化Fig. 4 Optogalvanic signal of the $Ne 588.2 \text{ nm}$ transition versus irradiating laser intensity图 5 对 Ne 的 $2p_2$ 及 $2p_6$ 能级寿命实
测数据的曲线Fig. 5 $\ln(\Delta V')$ versus delay time τ . The inversion of curve slope is lifetime of the measured level

对 $Ne 2p_2$ 和 $2p_6$ 能级的实测数据进行处理后的曲线。由两条直线斜率的倒数可得出所测能级寿命分别为 $2p_2$: $14.6 \pm 1.5 \text{ ns}$; $2p_6$: $20.4 \pm 2.0 \text{ ns}$ 。

除了系统测量误差之外,误差主要来自激光功率起伏、频率漂移及脉冲宽度的影响。在直流空心阴极放电中,由于电子碰撞、原子碰撞等引起的谱线加宽比较小,对能级寿命的影响也比较小,因此所测得的放电管内原子能级的寿命与真实寿命的差别也较小。把上述结果与过去的测量结果($2p_2$: $16.2 \pm 0.5 \text{ ns}$; $2p_6$: $19.3 \pm 0.6 \text{ ns}$)^[4]进行比较,可以看出结果相当一致。

五、结 论

利用速率方程和放电理论,我们第一次推导证明了利用分步激发光电流谱测量能级寿命的可能性,并在实验中完成了对 $Ne 2p_2$ 和 $2p_6$ 高激发态能级寿命的测量。实验结果表明,

利用分步激光电流谱测量原子能级寿命具有下列优点:

- (1) 用电信号的测量代替了光信号的测量,大大提高了检测灵敏度和信噪比。
- (2) 空心阴极放电可以产生几乎任何种类的原子,包括高熔点金属的原子。
- (3) 用光学延时的方法可以测量短寿命的原子能级,测量的下限只受激光器脉宽的限制。用微微秒脉冲激光器可以测量比 1 ns 更短的能级寿命。
- (4) 容易获得高激发态的数据。

由于这些优点,这一方法具有很大的潜力和应用价值。

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。

参 考 文 献

- [1] R. B. Green, R. A. Keller, G. G. Luther, P. A. Schenck, and J. C. Travis; *Appl. Phys. Lett.*, 1976, **23**, No. 11, 727.
- [2] E. F. Zalewski, R. A. Keller, and R. Engleman, Jr; *J. Chem. Phys.*, 1979, 70, No. 2, 1015.
- [3] Norman J. Dorvichi *et al.*; *Appl. Opt.* 1982, **21**, No. 8, 1468.
- [4] F. A. Sharpton *et al.*; *Phys. Rev. (A)*, 1970, **A2**, No. 4, 1305.
- [5] G. Ercz, S. Lavi, and E. Miron; *IEEE, J. Quant. Electron.*, 1979, **QE-15**, No. 12, 1328.
- [6] 赵朔嫣,张培林;“Ne 瞬态光电流光谱——机理研究”,《清华大学学报》,1983, **23**, No. 4 (Dec), 59.
- [7] 殷立峰、胡企铨、林福成;“脉冲光电流效应的机理研究”,《光学学报》,待发表。

Lifetime measurement of high excited states of neon using stepwise excitation optogalvanic spectroscopy

YIN LIFENG HU QIQUAN SU HAIZHENG AND LIN FUCHENG

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

(Received 9 April 1983, revised 20 July 1983)

Abstract

Stepwise excitation optogalvanic spectroscopy is used to measure the lifetime of atomic state for the first time. The lifetimes of $2p_2$ and $2p_0$ states of neon are obtained and agreement with the early reported data is quite well. This method shows its simplicity and other advantages.