

电荷转移碰撞对 He-Cd⁺ 和 He-Zn⁺ 激光作用的反常贡献

林福成

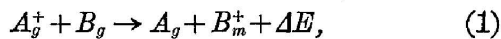
(中国科学院上海光学精密机械研究所)

提 要

用交叉束技术研究了 He⁺-Cd 和 He⁺-Zn 的电荷转移碰撞光谱。得到的结果可以分成两部分: 1. 证实了在能量亏损小于 1eV 时存在着共振的碰撞截面, 符合已有的理论计算; 2. 发现这种碰撞能强烈地激发 Cd⁺ 的 4d⁹5s² 组态和 Zn⁺ 的 3d⁹4s² 组态, 对应的能量亏损远大于 1eV。因此, 电荷转移碰撞对 Cd⁺ 的 441.6 和 325.0nm 及 Zn⁺ 的 747.9 和 589.4nm 的激光谱线有重要的贡献。讨论了这种反常贡献的起因, 认为共振的电荷转移碰撞和接着的级联跃迁可能是主要的激发机构。

电荷转移碰撞是气体激光器的一种重要激发机构。理论的计算表明, 这种碰撞截面具有尖锐的共振峰, 峰值发生在能量亏损 <1eV 以内^[1,2]。因此, 电荷转移碰撞激发具有很强的选择性, 避免了电子碰撞激发对激光跃迁下能级的非选择性激发, 大大地减轻粒子数反转的泵浦强度。根据这一想法, Walther 等人曾对反应系统进行过广泛的研究^[3]。此外, 与 Penning 电离不同, 电荷转移碰撞不容易饱和^[5], 有利于紫外波段所需要的高强度激发。目前最短波长的连续紫外 Ne-Cu⁺ 和 He-Ag⁺ 激光器, 就是利用电荷转移碰撞作为主要激发机构的^[6]。

在通常的气体放电过程中, 各种激发机构都可能同时存在。为了研究电荷转移碰撞单独所起的作用, 我们利用了交叉束装置^[3,4], 见图 1。惰性气体离子束的加速电压为 500V, 中性原子束从垂直方向入射。在与此两束垂直的方向上用单色仪和光子计数器记录荧光强度。这时产生的反应为



式中 A 为惰性气体原子, B 为金属蒸气原子, g 和 m 分别代表基态和激发态, ΔE 为能量亏损。令反应 (1) 的截面为 σ_m, 束的相对速度为 v, 自发辐射引起 B_m⁺ 的寿命为 τ_m, 则描写 B_m⁺ 的速率方程为

$$d[B_m^+]/dt = [A_g^+][B_g]\sigma_m v - [B_m^+]/\tau_m. \quad (3)$$

为简单起见, 假定原子束和离子束有锐利的边界。在束内的粒子数密度 [A_g⁺] 和 [B_g] 恒定不

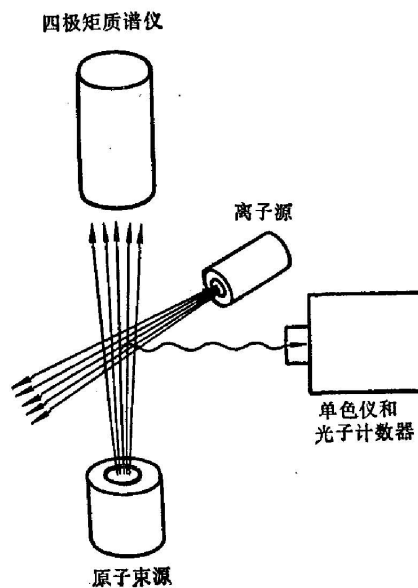


图 1 电荷交换光谱的实验装置
Fig. 1 Experimental schema for charge transfer spectroscopy

变, 在束外等于零。这个假定也隐含着反应 (1) 引起的 $[B_g]$ 的变化可以忽略。采用固定在 B 束上的运动坐标, 令 B 束与 A^+ 束刚刚碰撞的时刻为 $t=0$, 微分方程 (3) 的解为

$$[B_m^+] = [A_g^+] [B_g] \sigma_m \tau_m v (1 - e^{-t/\tau_m}). \quad (4)$$

在实验中, 原子束的速度为 10^4 cm/s 量级, 交叉束的相互作用区为 cm 量级, 所以相互作用区的渡越时间为 10^{-4} s 量级。另一方面, 对于较强的荧光谱线, τ_m 一般等于或小于 10^{-6} s。所以在相互作用区的绝大部分, (4) 式括号内的第二项可以忽略:

$$[B_m^+] = [A_g^+] [B_g] \sigma_m \tau_m R_{mn} v, \quad (5)$$

(5) 式也是 (3) 式的稳态解。令 B^+ 离子 $m \rightarrow n$ 跃迁的分支比为 R_{mn} , 则单位体积单位时间内 B 束的频率为 ν_{mn} 的自发辐射光子数为 $[B_m^+] R_{mn} / \tau_m$, 所以单色仪-光子计数器接收系统测量到的信号强度 I_{mn} 为

$$I_{mn} \propto [A_g^+] [B_g] \sigma_m \nu_{mn} v. \quad (6)$$

因此, 量 I_{mn} / ν_{mn} 标志着电荷转移碰撞激发速率 $[A_g^+] [B_g] \sigma_m v$ 的大小, 其比例系数则与光谱分支比 R_{mn} 有关。类似地, 如果 B^+ 离子的 m 态的激发, 主要是从级联跃迁 $k \rightarrow m$ 来的, 而 k 态是通过电荷转移碰撞激发的, 则

$$I_{mn} \propto \left(\sum_k [B_k^+] R_{km} / \tau_k \right) R_{mn} \nu_{mn}, \quad (7)$$

多次的级联跃迁引起的自发辐射, 也可用 (7) 式。如果同时存在着碰撞激发和级联跃迁激发, 则信号强度为 (6) 式与 (7) 式之和。

利用这台交叉束装置研究了 $\text{He}^+ - \text{Cd}$ 和 $\text{He}^+ \rightarrow \text{Zn}$ 的碰撞光谱。选择这两个研究对象是因为 $\text{He} - \text{Cd}^+$ 激光器是最重要的金属离子激光器之一, Cd 和 Zn 的外电子壳层非常相象, 它们的激发机理曾经进行过详细的研究^{[7], [2]}。接收系统用标准的钨丝灯定标, 波段为 230~850 nm。表 1 和表 2 分别是 Cd 和 Zn 的实验结果。图 2 和图 3 分别是有关的能级和观察到的荧光谱线。量 I/v 不仅正比于电荷转移碰撞激发率与光谱分支比的乘积, 也正比于这个跃迁的每秒光子数目。从实验结果看出, 电荷转移碰撞激发了能量亏损 $< 1\text{eV}$ 的那些能级, 再由这些能级向下级联辐射跃迁, 激发下面有关的能级。这个激发机构是 $\text{He} - \text{Cd}^+$ 和 $\text{He} - \text{Zn}^+$ 空心阴极激光器大多数激光谱线的主要激发方式, 和前人在放电管中观察放电余辉得到的结论相同^[7]。但是, 对于 Zn^+ 的 $3d^9s^2$ 组态和 Cd^+ 的 $4d^9s^2$ 组态, 能量亏损远大于 1eV , 却有最强的荧光强度, 并且在我們所用的探测波段内, 也观察不到任何来自上面的级联跃迁。这个组态与 Cd^+ 激光器最重要的紫色和紫外激光谱线 (441.6 和 325.0 nm) 有关。

长期以来, Cd^+ 的这两根激光谱线被认为是由 Penning 电离所激发的。最近, Goto 等人作了大量的工作, 证实了在正柱放电的 $\text{He} - \text{Cd}^+$ 激光器中, 441.6 nm 的谱线是由电子碰撞引起的分步电离-激发引起的^[8]。根据我们上述的实验结果, 在空心阴极放电中, 电荷转移碰撞应当有非常重要的贡献。这个结论, 也为下列两个与本实验类似的工作所证实。Soskida 等人^[9]用交叉束实验研究了 He^+ , Ne^+ , Ar^+ 和 Cd , Zn 碰撞时 441.6 nm、325.0 nm (Cd^+) 和 589.4 nm (Zn^+) 的荧光光谱, 离子束的能量为 2~400 eV, 发现电荷转移碰撞确实对这些谱线的激发有贡献。Ranjbar 等人^[10]研究了能量为 1~500 eV 的 He^+ 束和 He_2^+ 束与 Cd 束的碰撞, 得到类似于本文图 2 的结果。在他们的 2 eV 束的结果中, 各个荧光线的每秒量子数目与本文有很大的不同。

表 1 He⁺-Cd 的实验结果Table 1 Experimental results of He⁺-Cd collision

$\lambda(\text{nm})$	跃 迁	$\Delta E(\text{cm}^{-1})$	I/ν	机 理
231.3	$5d\ ^2D_{5/2}-5p\ ^2P_{3/2}^0$	35922	26	CR
257.3	$6s\ ^2S_{1/2}-5p\ ^2P_{1/2}^0$	42775	12	CR
274.8	$6s\ ^2S_{1/2}-5p\ ^2P_{3/2}^0$	42775	31	CR
325.0*	$s^2\ ^2D_{3/2}-5p\ ^2P_{1/2}^0$	50873	227	
349.5	$5f\ ^2F_{7/2}^0-5d\ ^2D_{5/2}$	7322	8	CT
353.6	$s^2\ ^2D_{3/2}-5p\ ^2P_{3/2}^0$	50873	36	
413.5	$7d\ ^2D_{5/2}-6p\ ^2P_{3/2}^0$	6204	6	CT
441.6*	$s^2\ ^2D_{5/2}-5p\ ^2F_{3/2}^0$	56507	1000	
488.2	$sp\ ^4F_{5/2}^0-5d\ ^2D_{3/2}$	19577	3	
533.7*	$4f\ ^2F_{5/2}^0-5d\ ^2D_{5/2}$	17347	17	CR
537.8*	$4f\ ^2F_{7/2}^0-5d\ ^2D_{5/2}$	17334	26	CR
588.0	$7f\ ^2F_{7/2}^0-6d\ ^2D_{5/2}$	1483	5	CT
635.5*	$6g\ ^2G_{7/2}-4f\ ^2F_{5/2}^0$	1615	12	CT
636.6*	$6g\ ^2G_{9/2}-4f\ ^2F_{7/2}^0$	1615	12	CT
646.5	$6d\ ^2D_{3/2}-6p\ ^2P_{1/2}^0$	15592	13	CR
672.0	$6d\ ^2D_{3/2}-6p\ ^2P_{3/2}^0$	15518	25	CR
723.7*	$6f\ ^2F_{5/2}^0-6d\ ^2D_{3/2}$	1778	7	CT
728.4*	$6f\ ^2F_{7/2}^0-6d\ ^2D_{5/2}$	1794	10	CT
806.7*	$6p\ ^2P_{3/2}^0-6s\ ^2S_{1/2}$	30382	40	CR
853.0*	$6p\ ^2P_{1/2}^0-6s\ ^2S_{1/2}$	31056	31	CR

* 激光谱线; CR 级联辐射; CT 电荷转移。

表 2 He⁺-Zn 的实验结果Table 2 Experimental results of He⁺-Zn collision

$\lambda(\text{nm})$	跃 迁	$\Delta E(\text{cm}^{-1})$	I/ν	机 理
250.2	$5s\ ^2S_{1/2}-4p\ ^2P_{1/2}^0$	34,101	9	CR
255.8	$5s\ ^2S_{1/2}-4p\ ^2P_{3/2}^0$	34,101	86	CR
384.2	$6d\ ^2D_{3/2}-5p\ ^2P_{3/2}^0$	-5092	8	CT
411.9	$7s\ ^2S_{1/2}-5p\ ^2P_{3/2}^0$	-3342	20	CT
491.2*	$4f\ ^2F_{5/2}^0-4d\ ^2D_{3/2}$	5275	37	CT
492.4*	$4f\ ^2F_{7/2}^0-4d\ ^2D_{5/2}$	5275	53	CT
589.4*	$s^2\ ^2D_{3/2}-4p\ ^2P_{1/2}^0$	57,097	573	
602.1*	$5d\ ^2D_{3/2}-5p\ ^2P_{1/2}^0$	4569	15	CT
610.2*	$5d\ ^2D_{5/2}-5p\ ^2P_{3/2}^0$	4545	27	CT
621.5	$s^2\ ^2D_{3/2}-4p\ ^2P_{3/2}^0$	57,097	127	
747.9*	$s^2\ ^2D_{5/2}-4p\ ^2P_{3/2}^0$	59,816	1000	
758.9*	$5p\ ^2P_{3/2}^0-5s\ ^2S_{1/2}$	20,927	162	CR
761.3*	$6s\ ^2S_{1/2}-5p\ ^2P_{1/2}^0$	8039	32	CT
773.3*	$5p\ ^2P_{1/2}^0-5s\ ^2S_{1/2}$	21,173	83	CR
775.8*	$6s\ ^2S_{1/2}-5p\ ^2P_{3/2}^0$	8039	45	CT

* 激光谱线; CR 级联辐射; CT 电荷转移。

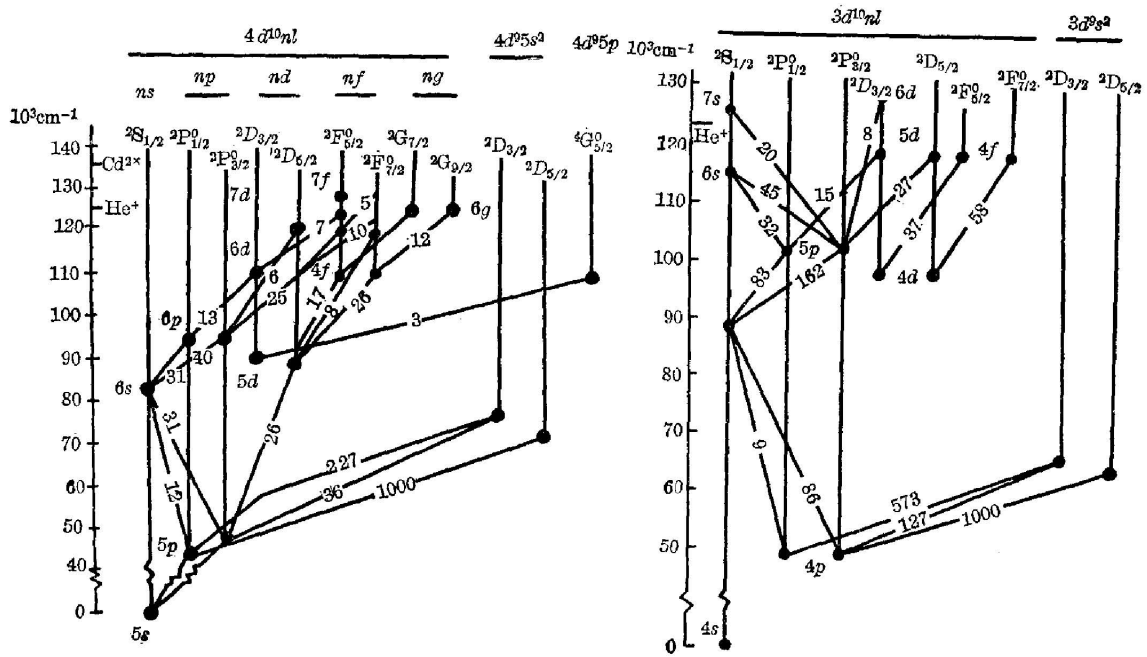


图 2 He⁺-Cd 碰撞光谱 (数字为相对光子数/秒) 图 3 He⁺-Zn 碰撞光谱 (数字为相对光子数/秒)

Fig. 2 Fluorescence observed in He⁺-Cd collision (the numbers are the relative number of photon/second)

Fig. 3 Fluorescence observed in He⁺-Zn collision (the numbers are the relative number of photon/second)

电荷转移碰撞对 nd^9s^2 组态的激发作用,可能来自两方面。文献[10]的作者认为,由 Cd 原子的基态 $4d^{10}s^2$ 直接碰撞出一个 d 电子的可能性比碰撞出一个 $5s$ 电子再激发另一个 $5s$ 电子的几率要大。这个观点显然也适用于 Zn 的 $3d^{10}s^2$ 的情况。众所周知, Zn 和 Cd 都是紧接着 $3d$ 过渡族和 $4d$ 过渡族的元素。在这两个过渡族中, nd 电子的组态能量同 $(n+1)s$ 的组态能量十分接近,单电子离化与双电子的离化-激发^[1]过程可能有相当大的不同,这需要进一步的理论和实验的证实。特别是,在低能碰撞时能量亏损必然要分配到碰撞产物中去,这在原则上是可以测量出来的。另一个可能性是电荷碰撞激发仍有尖锐的共振特性,但是接着观察到 nd^9s^2 的级联幅射落在真空紫外波段,而在实验中没有观察到。在 Zn⁺ 的情况,这些态可能是 $3d^9sp$ 组态或者是 $3d^{10}4f$, $3d^{10}6p$ 等组态;在 Cd⁺ 的情况,则可能是 $4d^9sp$ 组态或者 $4d^{10}5f$, $4d^{10}8p$, $4d^{10}6f$ 和 $4d^{10}9p$ 等组态。这些组态都满足共振的要求和宇称的选择定则。这也需要进一步的实验证实。

本文的实验测量是在西德 Max-Planck 协会的量子光学研究所进行的,作者对 H. Walther 教授和 K. Gnädig 博士的有益的讨论和合作表示感谢。

参 考 文 献

[1] В. И. Былкин; *Опт. и Спектр.*, 1970, **29**, Вып. 6 (Док), 1036.
 [2] A. R. Turner-Smith, J. M. Green et al.: *J. Phys. (B) Atom. Molec. Phys.*, 1973, **6**, No. 1 (Jan), 114.
 [3] K. Gnädig, Lin Fucheng, Mo Yang, H. Walther; «*Laser pumping by quasi resonant energy and charge exchange processes*», in Symposium on atomic and surface physics, p. 70, (Maria Alm/Sbg. Austria Feb. 10~16, 1980).

- [4] K. Gnädig, Lin Fucheng; et al.; «*Laseranregung durch Ladungsaustausch*», 西德物理学会年会上的报告, 1980, Bielefeld.
- [5] J. A. Piper, P. Gill; *J. Phys. (D) Appl. Phys.*, 1975, **8**, No. 1 (Jan.), 127.
- [6] D. C. Gerstenberger, R. Solanki et al.; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1980, **QE-16**, No. 8 (Aug) 830.
- [7] G. J. Collins; *J. Appl. Phys.*, 1973, **44**, No. 10 (Oct), 4633
- [8] T. Goto, 私人通信, 即将发表于 *Oyo Buturi*, 1983, **52**, No. 10, 里面有关于这一工作的大量文献。
- [9] M-T. I. Soskida, V. S. Shevera; *JETP Lett.*, 1975, **22**, No. 11 (Dec), 269
- [10] F. Ranjbar, H. H. Haris et al.; et al.; *Appl. Phys. Lett.*, 1979, **31**, No. 6 (Sep), 385.

The anomalous contribution of charge-transfer collision to the laser action of He-Cd⁺ and He-Zn⁺ lasers

LIN FUCHENG

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

(Received 29 August 1983)

Abstract

The charge-transfer collision spectroscopy of He⁺-Cd and He⁺-Zn were studied by using crossed-beam technique. The results may be divided into two parts: (1) The resonant collision cross-sections for the energy defect less than 1 eV, which are consistent with the known theory; (2) The 4d⁹s² configuration in Cd⁺ and 3d⁹s² in Zn⁺ are strongly excited and it means that CT collision has important contribution to the population inversion mechanism of 441.6 and 325.0 nm laser lines in Cd⁺ and of 747.9 and 589.4 nm lines in Zn⁺. The resonant CT collision followed by cascade radiation may be responsible to this contribution.