

Ne 空阴极放电中 $1s_2-2p$ 反常 脉冲光电流信号的研究

殷立峰 胡企铨 林福成 王之江
(中国科学院上海光学精密机械研究所)

提 要

本文报道利用 YAG 倍频激光泵浦的脉冲可调谐染料激光器在 Ne-Nd 空心阴极放电中测定 Ne $1s_2-2p$ 态跃迁及 $1s_2-2p-5s_1$ 态二级级联跃迁的光电流信号实验,并介绍了我们对此进行的理论计算。结果表明, Ne $1s_2-2p$ 态跃迁的反常光电流信号起因不在于能级间粒子数反转。

一、前 言

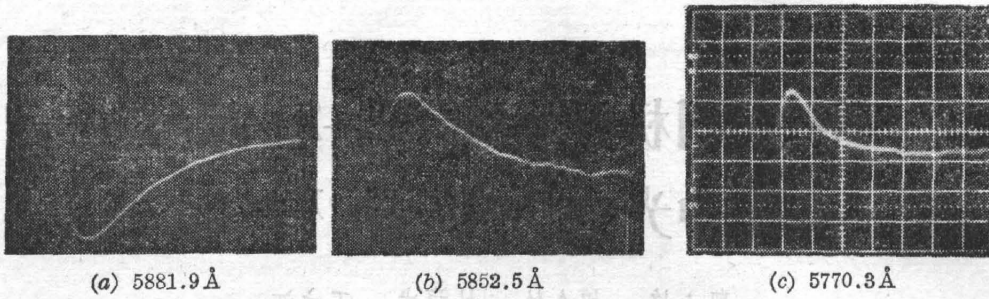
虽然过去人们对 Ne 的光电流效应已经进行了一些研究,但由于 Ne 是空阴极放电中最重要的一种缓冲气体,也由于 Ne 具有独特的能级结构,因此在 Ne 的光电流信号中仍然有若干独特的问题引起人们的注意。Shuker 等人^[1]发现 Ne $1s_2-2p$ 态跃迁的脉冲光电流信号与其它 $1s-2p$ 态跃迁的脉冲光电流信号具有相反符号,因而在波形上具有明显的镜像对称性。Shuker 认为这是由于在 $1s_2$ 与 $2p$ 态之间具有粒子数反转而引起的。最近 Caesar 等^[2]和胡企铨等^[3]对 $1s_2-2p-5s_1$ 态的级联激励脉冲光电流信号的实验研究表明,在空阴极放电的实验条件下,不可能存在 $1s_2$ 与 $2p$ 态间的粒子数反转,但 Caesar 等的文章没有给出理论证明。

由于这一问题牵涉到解释脉冲光电流效应的机理是否正确和利用光电流效应探测能级间粒子数是否反转的可能性,所以对它的研究就具有一定的实际意义。

本文利用脉冲可调谐染料激光器在 Ne-Nd 空心阴极放电中测定 Ne $1s_2-2p$ 态跃迁的光电流信号及利用二级级联激光从 Ne $1s_2$ 能级激励光电流信号的实验,对实验结果进行了理论计算。实验和理论计算的结果都表明在 Ne $1s_2$ 与 $2p$ 态之间不存在粒子数反转。

二、实验方法和结果

实验中使用了一台倍频 YAG 激光器同时泵浦两台染料激光器,采用 R6G 染料,激光线宽 0.1 \AA , 脉冲半宽度 3 ns , 峰值功率为几十千瓦数量级。测量是在 Ne-Nd 空阴极放电灯上进行的。信号显示利用了宽带脉冲示波器。整个实验装置与我们过去用光电流谱测量能级寿命的装置类似^[4],只是不需要光学延时部分。



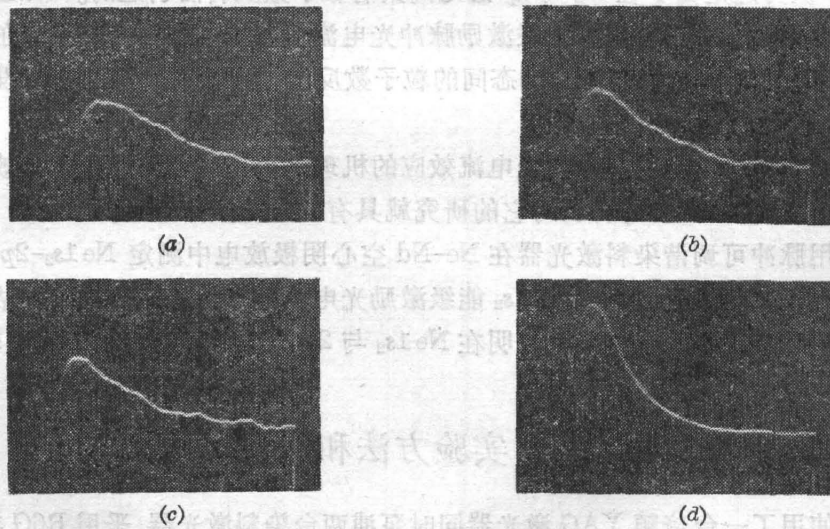
(a) 5881.9 Å (b) 5852.5 Å (c) 5770.3 Å

图 1 Ne 5881.9 Å、5852.5 Å 和 5770.3 Å 脉冲光电流信号瞬态波形

Fig. 1 Transient waveforms of Ne 5881.9 Å, 5852.5 Å and 5770.3 Å POGS.

首先利用一台染料激光器激励观察了 Ne $1s_2-2p$ 态跃迁和 Ne $1s_{3,4,5}-2p$ 态跃迁的光电流信号, 这两种信号具有镜像对称的特点, 图 1 显示了 Ne 5881.9 Å ($1s_2-2p_2$)、Ne 5852.5 Å ($1s_2-2p_1$) 和 Ne 5770.3 Å ($2p_1-5s'_1$) 的脉冲光电流信号瞬态波形。

为了检验 $1s_2$ 与 $2p$ 态之间粒子数反转是否存在, 在第一级激光激励的同时, 进行第二级激光的级联激励。图 2 显示了 5852.3 Å 和 5770.3 Å 波长激光同时激励的情况, 这是从 Ne $1s_2$ 激励到 $2p_1$ 再从 $2p_1$ 激励到 $5s'_1$ 的情况。图 2 中的 (a)、(b)、(c)、(d)* 四种情况分别显示了第二级激光激励 (5770.3 Å) 功率越来越大的情形。显然, 随着第二级激励激光功率的增强, 原来的第一负的极大值逐渐变小以致接近消失, 而正的极大值越来越大。在我们的实际测量中, 这一正极大的增大可以达到比原来数值增强 10 倍的数量级。显然, 如果在 $1s_2$ 与 $2p_1$ 态之间存在粒子数反转, 则第一级激光 (5852.3 Å) 激励的结果将使 $2p_1$ 态的粒子集居数减少, 从而使第二级激光 (5770.3 Å) 引起的脉冲光电流信号减小而不可能增大。实验事实恰好相反, 因而否定了 $1s_2$ 与 $2p$ 态间存在粒子数反转的看法。



(a) (b)
(c) (d)

图 2 5852.5 Å + 5770.3 Å 二级激光级联激励的脉冲光电流信号瞬态波形。

其中 (a), (b), (c), (d) 分别表示 5770.3 Å 激光功率越来越大的情况

Fig. 2 Transient waveforms of Ne 5852.5 Å + 5770.3 Å cascade excited POGS (a), (b), (c), (d), present the cases where the intensity of laser $\lambda=5770.3\text{Å}$ was different

* (d) 的纵坐标量程已经变大。

三、理论分析与计算

过去 Erez 等人曾提出过一个以二能级速率方程为基础的表象理论用以解释脉冲光电流效应的机理^[5]。这一理论虽然能解释一部分实验结果,但理论内部还存在一些矛盾,并且无法解释一些相当重要的实验事实。例如,利用这一理论来解决 Ne $1s_2-2p$ 态与 Ne $1s_{3,4,5}-2p$ 态脉冲光电流信号具有镜象对称的实验事实,就必须引入 Ne $1s_2$ 与 $2p$ 间存在粒子数反转这一结果^[1]。然而这一结果与二级激光级联激励 ($1s_2-2p-5s'_1$) 光电流信号的事实是明显矛盾的。

利用我们过去提出的用以解释脉冲光电流效应机理的理论^[6]可以对上述实验结果进行定量分析。

图 3 画出了 Ne 的部分能级图。其中的 $1s_2, 1s_3, 1s_4, 1s_5$ 是一组能量比较接近的除基态之外最低的四个能级, $1s_3$ 与 $1s_5$ 是亚稳态。由于能量比较接近,在这四个能级之间具有较强的耦合,特别在 $1s_3, 1s_4, 1s_5$ 三个能级之间的耦合更强一些。在 $1s$ 能级之上是一组 10 个 $2p$ 态能级。再上面就是其它高能态能级了。

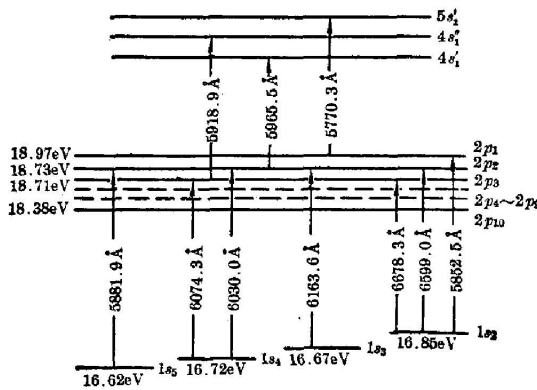


图 3 Ne 的部分能级图
Fig. 3 A part of Ne levels

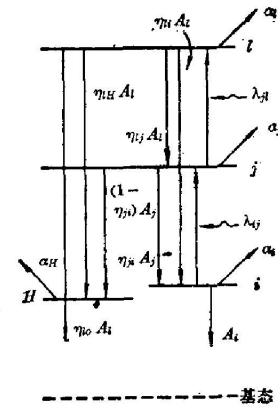


图 4 用于理论计算简化的多能级系统
Fig. 4 A simplified multi-level system for theoretically calculating

根据 Ne 的能级分布情况,我们在理论计算中取一个如图 4 所示的四能级系统,其中四个 $1s$ 能级合并为两个能级 H, i , H 为亚稳态能级, j 为某一 $2p$ 能级, l 为更高的能态。

对于下能级为亚稳态能级跃迁的光电流信号(如 $5881.9 \text{ \AA } 1s_5-2p_2$),我们过去已经介绍过了^[6],这里就不另行处理。这里主要是针对 $1s_2$ 能级跃迁的情况进行计算。由此设 i 能级为 $1s_2$ 能级。下面分两种情况进行讨论。

1. 激光 λ_{ij} 单独入射

激光 λ_{ij} 单独入射时,在激光作用(作用期间忽略其余过程)后的瞬间,令此时为 $t=0$ 时刻,则有初始条件:

$$\left. \begin{aligned} \Delta n_i|_{t=0} &= -(1/2) (n_i^0 - n_j^0) [1 - \exp(-2Q_{ij})], \\ \Delta n_j|_{t=0} &= (1/2) (n_i^0 - n_j^0) [1 - \exp(-2Q_{ij})], \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

其中, Δn_i 、 Δn_j 是 i 、 j 能级粒子集居数对稳态的偏离值; n_i^0 、 n_j^0 是 i 、 j 能级稳态粒子集居数; $Q_{ij} = (\sigma_{ij}/\hbar\omega_{ij}) \int I_{ij}(t') dt'$, σ_{ij} 是 i 能级到 j 能级的光激发截面; $I_{ij}(t')$ 是激励激光的光强函数; \hbar 是普朗克常数; ω_{ij} 是共振跃迁效率, 积分对整个激光脉冲进行。当激光光强足够大时, (1) 式达到饱和。此外, 为了简便起见, 设 $n_i^0 \gg n_j^0 \gg n_i^0$, 在一般放电条件下, 这一假设是合理的。由此, (1) 式变为:

$$\Delta n_i = -n_i^0/2, \quad \Delta n_j = n_j^0/2. \quad (2)$$

根据文献 [6] 的处理方法, 在一定的简化条件下, 光电流信号由下列一组方程解出:

$$\left. \begin{aligned} (d\Delta n_j/dt) &= -A_j\Delta n_j, \\ (d\Delta n_i/dt) &= -A_i\Delta n_i + \eta_{ji}A_j\Delta n_j, \\ (d\Delta n_H/dt) &= -A_H\Delta n_H + (1-\eta_{ji})A_j\Delta n_j, \\ (d\Delta n_e/dt) &= \alpha_j\Delta n_j + \alpha_i\Delta n_i + \alpha_H\Delta n_H - \gamma\Delta n_e, \\ \frac{d^2\Delta i}{dt^2} + \frac{1}{RC_0} \frac{d\Delta i}{dt} + \frac{\beta e}{RC_0 t_0} \Delta n_e &= 0 \quad (0 \leq t \leq t_0), \\ \frac{d^2\Delta i}{dt^2} + \frac{1}{RC_0} \frac{d\Delta i}{dt} + \frac{\beta e}{RC_0 t_0} [\Delta n_e(t) - \Delta n_e(t-t_0)] &= 0 \quad (t \geq t_0), \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

其中 Δn_e 为电子密度对稳态的偏离值, Δi 为回路电流对稳态的偏离值, 即光电流信号, A_k 为 k 能级的自发辐射系数, η_{ji} 为 j 能级到 i 能级的跃迁分支比, 其中考虑了由于 $1s$ 能级间的耦合引起的修正, α_k 为各种因素引起的 k 能级的电离率, γ 为电子在放电等离子体中的倍增速率, RC_0 为回路时间常数, t_0 为电子在放电管内的渡越时间, e 为电子电荷, β 为与电子运动路径有关的常数。

在我们的空阴极放电实验条件下, 并考虑到 H 能级为亚稳态, $i(1s_2)$ 能级的极短寿命, 有下列关系: $A_i > A_j$, $A_i > A_l$, $A_i, A_j, A_l \gg A_H$, $\gamma > A_H$, $A_i, A_j, A_l \gg \gamma$, $(1/RC_0) < A_i, A_j, A_l$, $(1/RC_0) \gg \gamma, A_H$, $\alpha_i > \alpha_j > \alpha_H$ 。此外, 由 i 能级向基态有一强烈的紫外辐射 (16.85 eV), 这一辐射在阴极上将激发出大量电子, 其量子效率高达 $10^{-2} \sim 10^{-1}$, 因此, $\alpha_i \gg \alpha_j, \alpha_H$ 。根据以上条件, 可得到解为

$$\left. \begin{aligned} \Delta i &= (1/2)n_i^0 e \beta [A \exp(-\gamma t) + B \exp(-A_H t) - (A+B)] \quad (0 \leq t \leq t_0), \\ \Delta i &= (1/2)n_i^0 e \beta [A(1 - \exp \gamma t_0) \exp(-\gamma t) + B(1 - \exp A_H t_0) \exp(-A_H t)] \quad (t \geq t_0), \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

$$\text{其中} \quad A = \frac{1}{t_0 \gamma} \left[\frac{\alpha_i}{A_i} \left(1 + \frac{\eta_{ji} A_j}{A_i - A_j} \right) - \frac{1}{A_j} \left(\alpha_j + \frac{\eta_{ji} A_j \alpha_i}{A_i - A_j} \right) + \frac{(1 - \eta_{ji}) \alpha_H}{\gamma - A_H} \right],$$

$$B = -\frac{1}{t_0 A_H} \left[\frac{(1 - \eta_{ji}) \alpha_H}{\gamma - A_H} \right],$$

方程(4)描述了 $\text{Ne } 1s_2$ 向 $2p$ 态跃迁的脉冲光电流信号瞬态波形。对于每个特定的跃迁可将各有关参数代入求出定量表达式。

例如, 5852.5 \AA 跃迁 ($1s_2-2p$), 在我们的实验条件下有下列各参数: $A_i = 4.4 \times 10^8 \text{ sec}^{-1}$, $A_j = 7.6 \times 10^7 \text{ sec}^{-1[7]}$, $A_H = 10^5 \text{ sec}^{-1}$, $\gamma = 2 \times 10^5 \text{ sec}^{-1}$, $t_0 = 10^{-6} \text{ sec}^{[6]}$, $\alpha_i = 5 \times 10^6 \text{ sec}^{-1}$ (考虑了光电效应的量子效率和几何因子估算), $\alpha_j = 10^4 \text{ sec}^{-1}$, $\alpha_H = 3 \times 10^3 \text{ sec}^{-1[8]}$, $\eta_{ji} = 0.95$ (根据分支比并考虑 $1s$ 能级间的耦合而加以修正)。把以上数据代入方程(4), 可得到

$$\left. \begin{aligned} \Delta i &= (1/2)n_i^0 e \beta [1.035 \times 10^{-2} \exp(-2 \times 10^5 t) \\ &\quad - 1.5 \times 10^3 \exp(-10^5 t) + 4.65 \times 10^{-3}] \quad (0 \leq t \leq t_0), \\ \Delta i &= (1/2)n_i^0 e \beta [-2.29 \times 10^{-3} \exp(-2 \times 10^5 t) + 1.58 \times 10^{-3} \exp(-10^5 t)] \quad (t \geq t_0). \end{aligned} \right\} (5)$$

当 $t = t_0 = 10^{-6}$ sec 时, 有第一极值 $\Delta i_{\max 1} = (1/2)n_i^0 e \beta (-4.5 \times 10^{-4})$; 当 $t = 1.06 \times 10^{-5}$ sec 时, 有第二极值 $\Delta i_{\max 2} = (1/2)n_i^0 e \beta (2.7 \times 10^{-4})$ 。(5)式与实验结果是十分一致的。

2. 激光 λ_{ij} 与 λ_{jl} 同时入射

激光 λ_{ij} 与 λ_{jl} 同时入射, 此时在 Q_{ji} 比较小的条件下, 在 $t=0$ 时刻, 有下列初始条件

$$\Delta n_i' = -n_i^0/2, \quad \Delta n_j' = (n_i^0/2)(1 - Q_{ji}), \quad \Delta n_l' = n_i^0 Q_{ji}/2, \quad (6)$$

其中 $\Delta n_k'$ ($k=i, j, l$) 右上角的一撇表示在级联激励情况下的参数, 与 λ_{ij} 单独激励加以区别, 各参数的意义与前面相同。这里的 $Q_{ji} = (\sigma_{ji}/\hbar\omega_{ji}) \int I_{ji}(t') dt'$ 。原来的方程组现在变为

$$\left. \begin{aligned} (d\Delta n_i'/dt) &= -A_l \Delta n_i', \\ (d\Delta n_j'/dt) &= -A_j \Delta n_j' + \eta_{lj} A_l \Delta n_l', \\ (d\Delta n_l'/dt) &= -A_l \Delta n_l' + \eta_{lu} A_l \Delta n_l' + \eta_{jl} A_j \Delta n_j', \\ (d\Delta n_H'/dt) &= -A_H \Delta n_H' + (1 - \eta_{ji}) A_j \Delta n_j' + \eta_{ll} A_l \Delta n_l', \\ (d\Delta n_e'/dt) &= \alpha_i \Delta n_i' + \alpha_j \Delta n_j' + \alpha_l \Delta n_l' + \alpha_H \Delta n_H' - \gamma \Delta n_e', \\ \frac{d^2 \Delta i'}{dt^2} + \frac{1}{RC_0} \frac{d\Delta i'}{dt} + \frac{\beta e}{RC_0 t_0} \Delta n_e &= 0 \quad (0 \leq t \leq t_0), \\ \frac{d^2 \Delta i'}{dt^2} + \frac{1}{RC_0} \frac{d\Delta i'}{dt} + \frac{\beta e}{RC_0 t_0} [\Delta n_e(t) - \Delta n_e(t - t_0)] &= 0 \quad (t \geq t_0). \end{aligned} \right\} (7)$$

利用初始条件(6)式解方程组(7), 可得到

$$\Delta i' = \Delta i + \Delta i'', \quad (8)$$

其中 Δi 即方程(4), 而 $\Delta i''$ 的表达式如下

$$\left. \begin{aligned} \Delta i'' &= (n_i^0 Q_{ji}/2) e \beta [A' \exp(-\gamma t) + B' \exp(-A_H t) - (A' + B')] \quad (0 \leq t \leq t_0), \\ \Delta i'' &= (n_i^0 Q_{ji}/2) e \beta [A' (1 - \exp \gamma t) \exp(-\gamma t) + B' (1 - \exp A_H t_0) \exp(-A_H t)] \quad (t \geq t_0), \end{aligned} \right\} (9)$$

其中

$$\begin{aligned} A' &= \frac{1}{t_0 \gamma} \left[\frac{\alpha_i}{A_i} \left(\frac{\eta_{lu} A_l}{A_i - A_l} - \frac{\eta_{jl} A_j}{A_i - A_j} \right) \right. \\ &\quad \left. + \frac{\eta_{jl} \alpha_i}{A_i - A_j} - \frac{1}{A_l} \left(\alpha_i + \frac{\eta_{lu} A_l \alpha_i}{A_i - A_l} \right) - \frac{1}{\gamma - A_H} (1 - \eta_{ji} - \eta_{ll}) \alpha_H \right], \\ B' &= \frac{1}{t_0 A_H} \left[\frac{1}{\gamma - A_H} (1 - \eta_{ji} - \eta_{ll}) \alpha_H \right]. \end{aligned}$$

在一般放电条件下 A' 、 B' 都小于零, 因此方程(9)式所表示的 $\Delta i''$ 在任何时刻总是大于零。

对于 $5852.5 \text{ \AA} (1s_2-2p_1) + 5770.3 \text{ \AA} (2p_1-5s_1)$ 二级级联激励的情况, 则有下列各参数: $A_l \approx 5 \times 10^7 \text{ sec}^{-1}$, $\alpha_l = 2 \times 10^6 \text{ sec}^{-1}$ (这里也考虑了 l 能级存在紫外辐射的情况), $\eta_{lu} \approx 0.3$; $\eta_{ll} \approx 0.4$ (l 能级与 $1s$ 能级没有直接跃迁; 但通过 10 个 $2p$ 态能级有间接跃迁, 在简化的计算中, 可直接假设 η_{lu} 和 η_{ll} 的值)。由此有

$$\left. \begin{aligned} \Delta i'' &= (n_i^0 Q_{ji} \beta e / 2) [-0.22 \exp(-2 \times 10^5 t) - 0.11 \exp(-10^5 t) + 0.33] \quad (0 \leq t \leq t_0), \\ \Delta i'' &= (n_i^0 Q_{ji} \beta e / 2) [0.049 \exp(-2 \times 10^5 t) + 0.012 \exp(-10^5 t)] \quad (t \geq t_0). \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

由(5)、(8)和(10)三式可以给出 $5852.5 \text{ \AA} + 5770.3 \text{ \AA}$ 二级级联激励光电流信号的半定量结果。图5是理论计算的三种情况的脉冲光电流信号瞬态波形,其中 $\Delta i''$ 是按某一 Q_{ji} 定值计算的。显然,理论计算的结果与图1(b)、(c)和图2中所示的实验测定的三种情况下的脉冲光电流信号瞬态波形十分一致。

由公式(9)可知,随着激光的增强, Q_{ji} 也将增强,因此所得到 $\Delta i''$ 和 $\Delta i'$ 的变化趋势也是与图2的实验结果一致的。

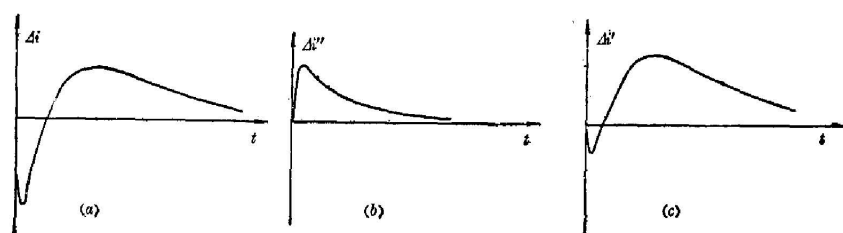


图5 理论计算的光电流信号瞬态波形曲线
Fig. 5 Theoretical calculated waveforms of POGS

四、结 论

利用二级级联激励的脉冲光电流效应对 $\text{Ne } 1s_2$ 到 $2p$ 态跃迁的反常光电流信号进行了实验和理论的研究。实验结果明确否定了 $\text{Ne } 1s_2$ 与 $2p$ 态间在通常的连续放电条件下存在能级粒子数反转。利用我们过去提出的脉冲光电流效应理论对 $\text{Ne } 1s_2$ 到 $2p$ 态跃迁的反常脉冲光电流信号和二级级联激励的脉冲光电流信号进行了计算,理论计算的结果与实验相当一致。

我们所进行的理论和实验的研究表明,在一定的条件下(如二级级联激励光电流信号、反转与不反转的对比实验),由于光电流信号与上下能级粒子集居数有关,因而有可能利用光电流信号的正负作为能级粒子集居数是否反转的判据。

参 考 文 献

- [1] R. Shuker, A. Ben-Amar *et al.*; *Opt. Commun.*, 1982, **42**, No. 1 (Jun), 29.
- [2] T. Caesar, Jean-Louis Heully; *Opt. Commun.*, 1983, **45**, No. 4 (Apr), 258.
- [3] 胡企铨,殷立峰等;《光学学报》, 1984, **4**, No. 3 (Mar), 212.
- [4] 殷立峰,胡企铨等;《光学学报》, 1984, **4**, No. 2 (Feb), 97.
- [5] G. Erez, S. Lavi *et al.*; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1979, **QE-15**, No. 2 (Feb), 1323.
- [6] 殷立峰,胡企铨等;《光学学报》, 1984, **4**, No. 4 (Apr), 294.
- [7] F. A. Sharpton *et al.*; *Phys. Rev. (A)*, 1970, **A2**, No. 4 (Oct), 1305.
- [8] P. L. Hagelstain; *Physics of Short Wavelength Laser Design*, (Ph. D. Thesis), LLL, UCRL-53100 (1981).

Study on the Ne $1s_2-2p$ anomalous pulse optogalvanic signal in the hollow cathode discharge

YIN LIFENG HU QIQUAN LIN FUCHENG AND WANG ZHIJIANG
(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica)

(Received 16 January 1984)

Abstract

Theoretical calculation and measurement of the pulse optogalvanic signals (POGS) of the Ne $1s_2-2p$ and $1s_2-2p-5s_1'$ transitions in the HCD is presented. The experiment was performed with a doubled-frequency YAG laser. It is shown that the cause of the Ne $1s_2-2p$ anomalous optogalvanic signal was not the population inversion.

《激光文摘》创刊

由中国科学技术情报研究所重庆分所编纂的《激光文摘》于1985年1月创刊(月刊,1985年上半年为试刊)。

《激光文摘》集中摘录有一定参考价值的激光研究的理论、器件、材料、附件以及激光应用方面的论文、专利、文集、报告、书籍等方面的科技文献资料,内容充实,每期刊登文摘600条左右。

《激光文摘》由新华书店发行,请各有关单位密切注意,向各地新华书店购阅。未尽事宜,请径直向《激光文摘》编辑部联系。

中国科学技术情报所重庆分所

《激光文摘》编辑部

1984年8月