

# 用激光感生荧光技术研究 Ne $1s_2-2p$ 反常光电流信号的机理

胡企铨 殷立峰 张延平 林福成  
(中国科学院上海光学精密机械研究所)

## 提 要

本文报道利用脉冲可调谐染料激光器在 Ne HCD 灯中测定 Ne  $1s_2-2p$  及  $1s_2-2p$ —高激发态跃迁的光电流信号的同时利用激光感生荧光技术测量 Ne  $2p-1s$  态的感生荧光信号,进一步研究 Ne  $1s_2-2p$  态反常脉冲光电流信号的机理。

## 一、引 言

曾经报道过 Ne  $1s_2-2p$  态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、在波形上呈明显的镜像对称<sup>[1]</sup>,但这种反常现象的机理众说不一。有人认为是 Ne  $1s_2$  与  $2p$  态之间在空心阴极放电(HOD)条件下存在粒子数反转<sup>[1]</sup>。我们<sup>[2]</sup>与 Caesar 等人<sup>[3]</sup>对  $1s_2-2p$ —高激发态的级联激发脉冲光电流信号的实验研究表明,在稳态 HOD 条件下,  $1s_2-2p$  态间不可能存在粒子数反转。考虑到 Ne  $1s_2$  态与基态间的强跃迁产生的远紫外辐射在金属阴极上引起的光电效应,利用我们过去提出的脉冲光电流效应理论和 Ne 有关能级的光谱参数对 Ne  $1s_2-2p$  及  $1s_1-2p$ —高激发态的脉冲光电流信号进行的理论计算结果与实验相当一致<sup>[4]</sup>。

最近 Shuker 等人又提出<sup>[5]</sup>:在双光子激发的情况下,中间能级的粒子数对光电流信号不起实际作用,不能用这时光电流信号的增减来判断能级间是否存在粒子数反转。这一说法和我们过去用分布激发电谱测量 Ne  $2p$  态寿命的实验事实和理论分析不符<sup>[6]</sup>。而且他们的理论解释我们认为是可疑的。

本文报道利用脉冲可调谐染料激光器在 Ne-Zn HOD 灯中测定 Ne  $1s_2-2p$  及  $1s_2-2p$ —高激发态跃迁的光电流信号的同时,利用激光感生荧光(LIF)技术测量 Ne  $2p-1s$  态的感生荧光信号进一步研究 Ne  $1s_2-2p$  态反常脉冲光电流信号的机理。

## 二、实验结果

实验装置与我们过去用分步激发电流谱测量 Ne  $2p$  态寿命的装置类似<sup>[6]</sup>,但去掉了光学延时线加入荧光测量装置。整个实验布置见图1。Ne-Zn HOD 灯是市售的。荧光信

号用快响应、高灵敏度、低噪声光电倍增管 R943-02 探测。WDG 500-1 型光栅单色仪及滤光片在光电倍增管前用来分光 and 遏制 HCD 灯散射激光的干扰。宽带存储示波器用来显示荧光信号。

利用一台脉冲可调谐染料激光器输出照射 HCD 灯, 同时测定 Ne 的光电流信号与相应的 LIF 信号。LIF 信号是叠加在一个直流放电产生的稳态荧光信号之上。图 2(a) 是 6678.3 Å 激光激发( $1s_2-2p_4$ )产生的光电流信号, 图 2(b) 是同时测量的 6096.2 Å LIF 信号( $2p_4-1s_4$ )。作为比较, 图 3(a) 给出 5944.8 Å 激光激发( $1s_5-2p_4$ )产生的光电流信号, 图 3(b) 是同时测量的 6678.3 Å LIF 信号( $2p_4-1s_5$ )。从图 2 与图 3 可以明显看出, 两种情况下的光电流信号具有相反的符号, 表明  $1s_2-2p_4$  光电流信号是反常的, 而两种 LIF 信号却具有相同的符号。

利用两台同时泵浦的可调谐脉冲染料激光器进行级联激光激发的实验。测定了

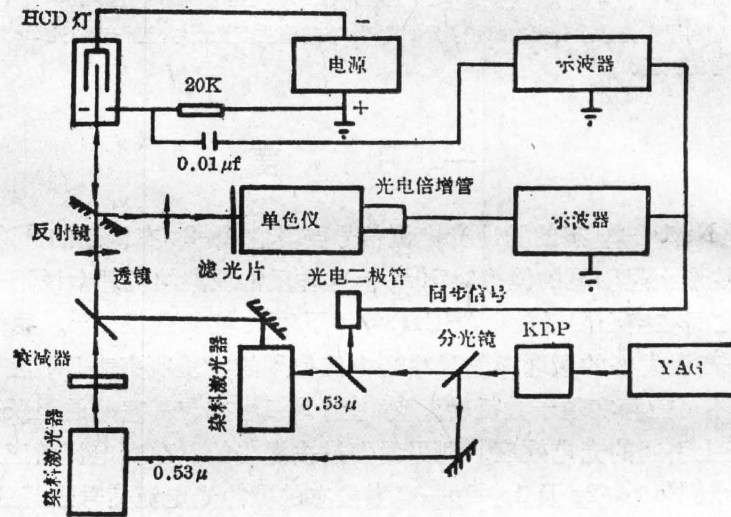
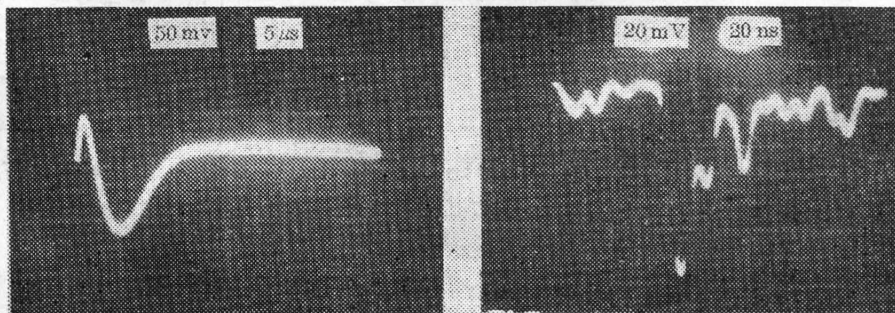


图 1 实验装置

Fig. 1 Experimental set-up

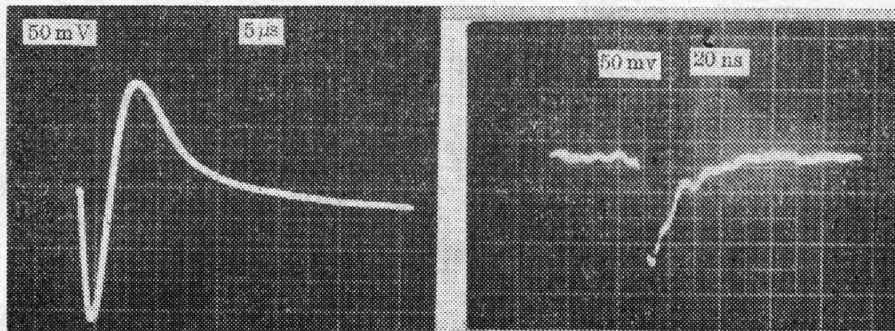


(a)

(b)

图 2 (a) 激光波长 6678.3 Å 激发的 Ne 光电流信号;  
(b) 同时探测的波长 6096.2 Å 的激光感生荧光

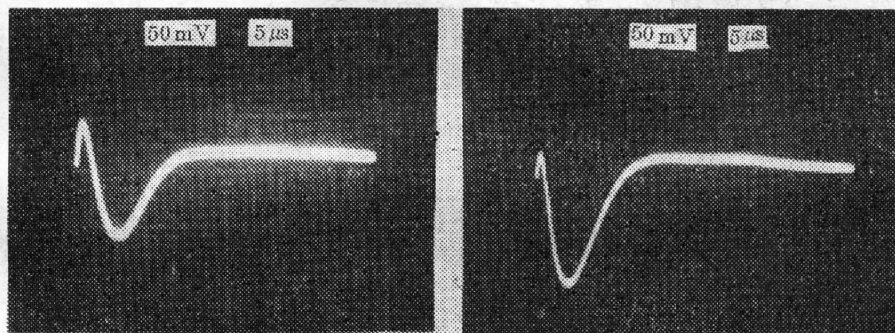
Fig. 2 (a) Ne POGS excited by a laser with  $\lambda=6678.3 \text{ \AA}$ ;  
(b) Ne LIF signal with  $\lambda=6096.2 \text{ \AA}$



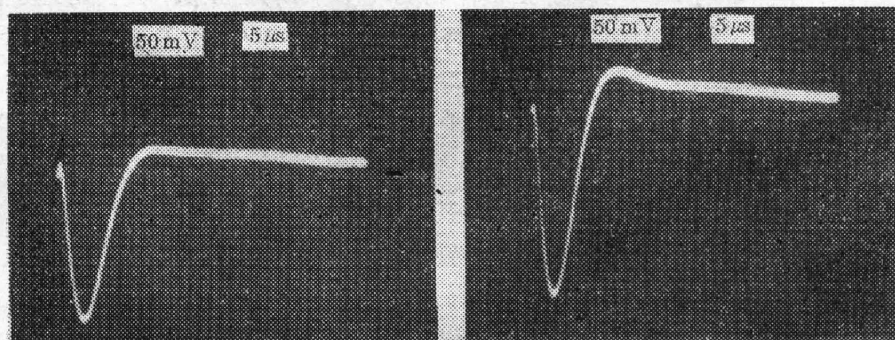
(a) (b)

图 3 (a) 激光波长  $5944.5 \text{ \AA}$  激发的 Ne 光电流信号;  
(b) 同时探测的波长  $6678.3 \text{ \AA}$  的激光感生荧光

Fig. 3 (a) Ne POGS excited by a laser with  $\lambda=5944.5 \text{ \AA}$ ;  
(b) Ne LIF signal with  $\lambda=6678.3 \text{ \AA}$



(a) (b)



(c) (d)

图 4  $6678.3 \text{ \AA} + 5902.5 \text{ \AA}$  二级激光级联激励的脉冲光电信号。其中  $a, b, c, d$  分别表示  $5902.5 \text{ \AA}$  激光功率越来越大的情况

Fig. 4 POGS of cascade-excited Ne ( $6678.3 \text{ \AA} + 5902.5 \text{ \AA}$ ), where the sequence of  $a, b, c,$  and  $d$  corresponds to an increasing laser intensity (at  $5902.5 \text{ \AA}$ )

Ne  $1s_2-2p_4-4s_1^m$  级联激发(6678.3 Å + 5902.5 Å)的脉冲光电流信号, 结果见图4。图4 a、b、c、d 四种情况分别对应第二级激光(5902.5 Å) 激发功率越来越大。显然, 随着第二级激光激发功率的增大, 反常光电流信号的第一正极大逐渐变小以致接近消失, 而负的极大值越来越大。这一结果与我们过去研究的  $1s_2-2p_1-5s_1^l$  级联激发(5852.5 Å + 5770.3 Å)的光电流信号变化情况相同<sup>[4]</sup>。在测量级联光电流信号的同时, 监测了  $2p_4-1s_4$  (6096.2 Å)的 LIF 信号的变化。明显可见随着 5902.5 Å 激光激发功率的增强, 6096.2 Å LIF 信号的峰值变小。

### 三、结果分析

#### 1. $1s_2$ 与 $2p$ 态间不存在粒子数反转

在 HCD 中, 当共振脉冲激光  $\lambda_{ij}$  入射( $i, j$  分别对应于共振的低和高能级)并且激光脉冲宽度足够窄的情况下, 设激光作用后的瞬间为  $t=0$  时刻, 则有初始条件:

$$\left. \begin{aligned} \Delta n_i &= -(n_i^0 - n_j^0) Q_{ij}, \\ \Delta n_j &= (n_i^0 - n_j^0) Q_{ij}, \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

其中,  $\Delta n_k (k=i, j)$  是  $k$  能级粒子数对稳态值  $n_k^0$  的偏离,

$$Q_{ij} = \sigma_{ij} \int_{\text{脉冲}} I_{ij}(t) dt,$$

$\sigma_{ij}$  是  $i$  能级到  $j$  能级的光激发截面,  $I_{ij}(t)$  是激光光强。由放电理论及速率方程, 在一定的简化条件下有:

$$d \Delta n_j / dt = -\Delta n_j / \tau_j, \quad (2)$$

其中  $\tau_j$  是  $j$  能级的寿命<sup>[4,7]</sup>。我们知道,  $j$  能级的自发辐射强度  $P$  正比于该能级的粒子数, 即  $P \propto n_j^0 + \Delta n_j$ , 由(1)和(2)式可得:

$$P \propto n_j^0 + C \cdot (n_i^0 - n_j^0) \cdot e^{-t/\tau_j}, \quad (3)$$

其中  $C$  是一个与激光光强、光激发截面等有关的常数。由(3)式可知, 在脉冲激光激发后, 测得的荧光信号包含有一个稳态分量(由稳态放电引起的荧光发射)及一个 LIF 信号分量。由(3)式可看出, 所测量的 LIF 分量的正负性反映了  $(n_i^0 - n_j^0)$  的正负, 因而可通过测量这一分量来判断稳态放电下  $i, j$  能级间粒子数是否反转。由此, 对图2和图3的 LIF 信号分析, 可以知道 Ne  $2p_4$  与  $1s_5$  及  $2p_4$  与  $1s_2$  能级间均不存在粒子数反转。由于  $1s_5$  是亚稳态, 在稳态放电下,  $2p_4$  与  $1s_5$  能级间确实不可能出现粒子数反转。对 Ne  $2p_2, 1s_2$  (6599.0 Å 激光激发、5882 Å 荧光探测),  $2p_5, 1s_2$  (6717.0 Å 激光激发、6266.5 Å 荧光探测)所作的类似实验结果表明, 在这些  $2p$  与  $1s_2$  能级间也不存在粒子数反转。

LIF 实验测量的结果表明, Ne  $1s_2-2p$  反常光电流信号确实不起因于粒子数反转。

#### 2. 激光级联激发过程

根据我们在文献[4, 7]中的理论分析, 激光  $\lambda_{ij}$  与  $\lambda_{ji}$  同时入射, 在  $Q_{ij}$  和  $Q_{ji}$  比较小的条件下, 在  $t=0$  时刻有下列初始条件:

$$\left. \begin{aligned} \Delta n_i' &= -(n_i^0 - n_j^0) Q_{ij}, \\ \Delta n_j' &= (n_i^0 - n_j^0) Q_{ij} (1 - Q_{ji}), \\ \Delta n_i &= (n_i^0 - n_j^0) Q_{ij} Q_{ji}, \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

其中  $\Delta n_k^l$  ( $k=i, j, l$ ) 右上角的一撇表示在级联激励情况下的参数, 与  $\lambda_{ij}$  单独激励加以区别, 各参数的意义与前面相同, 这里的  $Q_{ij} = (\sigma_{ij}/\hbar\omega_{ij}) \int_{\text{脉冲}} I_{ij}(t') dt'$ 。利用初始条件及放电理论解速率方程组, 可以在一定的简化条件下得到光电流信号:

$$\Delta V(t) = \Delta V_{ij}(t) + \Delta V_{ji}(t) + \Delta V'(t), \quad (5)$$

其中  $\Delta V_{ij}(t) = K(n_i^0 - n_j^0) Q_{ij} [A' e^{-A't} - B' e^{-\gamma t} + B' - A'] \quad (0 \leq t \leq t_0)$ ,

$$\Delta V_{ij}(t) = K(n_i^0 - n_j^0) Q_{ij} [A'(1 - e^{A't_0}) e^{-A't} - B'(1 - e^{\gamma t_0}) e^{-\gamma t}] \quad (t \geq t_0), \quad (6)$$

式中  $K$  为常数;  $\gamma = \rho n_e^0$ ,  $\rho$  为复合因子,  $n_e$  为电子密度;  $t_0$  为电子在放电管内的渡越时间;  $A'$ 、 $B'$  为与电离速率、能级粒子数在放电管内的衰减系数、 $\gamma$  是与放电回路时间常数有关的常数。 $\Delta V_{ji}(t)$  与 (6) 式有类似的表达形式, 但需代以相应的下标。 $\Delta V'(t)$  是级联激发产生的光电流信号增量<sup>[6]</sup>。根据 (5) 式和文献 [6] 的实验, 可以明显看出在级联激光激励情况下, 中间能级对光电流信号起着相当明显的作用。中间能级的粒子数影响级联激发电流信号的幅值, 这是分步激发电流谱测量激发态寿命的基础。在我们现在的实验中, 随着第二级激光激励功率的提高, 通过中间能级的作用, 更多的低能级粒子被激发到高能级, 从而使光电流信号负的极大值部分越来越大。由于级联情况下低能级粒子的减少, 减小了低能级向基态跃迁产生的紫外辐射的影响 (即紫外辐射的光电效应和光电离效应), 所以光电流信号起始的正极大值部分逐渐随第二级激励功率的提高而减小。

在二步级联激励情况下, 我们还可解得:

$$\Delta n_j^l = (n_i^0 - n_j^0) Q_{ij} (1 - Q_{ji}) e^{-A_j t}. \quad (7)$$

因此, 二步激光激发后, 感生荧光信号的幅值也应减小, 这也和实验结果一致, 确实表明中间能级参预了作用。

## 四、结 论

我们利用脉冲可调谐染料激光器在 Ne-Zn HCD 灯中测定 Ne 1s<sub>2</sub>-2p 及 1s<sub>2</sub>-2p—高激发态跃迁的光电流信号的同时, 利用 LIF 技术测量 Ne 2p-1s 态的 LIF 信号进一步研究了 Ne 1s<sub>2</sub>-2p 态反常脉冲光电流信号的机理。实验结果明确地否定了 Ne 1s<sub>2</sub>-2p 态间在通常的空阴极放电条件下存在粒子数反转。我们所进行的实验研究和理论分子表明, 空阴极放电中 Ne 1s<sub>2</sub>-2p 反常脉冲光电流信号的起因在于 1s<sub>2</sub> 态向基态跃迁产生的远紫外辐射引起的光电效应或光电离效应。这一实验结果也为研究光电流效应的机理提供了根据。

## 参 考 文 献

- [1] R. Shuker, A. Ben-Amar *et al.*; *Opt. Comm.*, 1982, **42**, No. 1 (Jun), 29.
- [2] 胡企铨, 殷立峰等; 《光学学报》, 1984, **4**, No. 3 (Mar), 213.
- [3] T. Caesar, J-L. Heully; *Opt. Comm.*, 1983, **45**, No. 4 (Apr), 258.
- [4] 殷立峰, 胡企铨等; 《光学学报》, 1984, **4**, No. 8 (Aug), 673.
- [5] R. Shuker, A. Ben-Amar *et al.*; *Opt. Comm.*, 1984, **49**, No. 4 (Apr), 263.
- [6] 殷立峰, 胡企铨等; 《光学学报》, 1984, **4**, No. 2 (Feb), 97.
- [7] 殷立峰, 胡企铨等; 《光学学报》, 1984, **4**, No. 4 (Apr), 294.

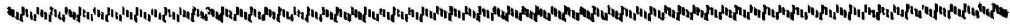
## Study on the mechanism of Ne $1s_2-2p$ anomalous POGS in HCD using LIF technique

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

(Received 29 January 1985; revised 23 March 1985)

### Abstract

Study on the mechanism of Ne  $1s_2-2p$  anomalous POGS in HCD was carried out by measuring two-step excited POGS and LIF signals simultaneously. Theoretical analysis is also presented in this paper.



### 全国化合物半导体发光外延技术学术讨论会在北京市平谷县召开

全国化合物半导体发光外延技术学术讨论会于1985年6月30日至7月3日在北京市平谷县召开。此次会议是1983年10月发光理事会黄山会议决定筹备召开的。会议重点讨论可见光发光二极管所需的外延技术和装备问题,是一次专门研究国产化问题的小型会议。

到会代表共35人。会议以论文宣讲和分组专题讨论两种形式进行。9位代表应邀作了各种发光材料的外延技术的国内外评述性报告,11位代表作了研究工作报告。

与会代表在充分肯定国内的外延技术方面所取得进展的同时,也指出了与国际上先进水平的差距仍然较大,特别是面临当今国际上外延技术的迅猛发展、单项技术严加保密、关键设备禁运等严峻形势,我国不能仅仅满足于实验室中“人有我有、现象能见到、技术不过关、产品质量上不去”的局面。与会代表认为,这些均应引起主管领导的重视。当然,同行们也须加强技术交流,在国内不能自搞技术封锁,应相互协作加快发展速度。

最后,会议针对1985年度一亿四千万只(且以逐步翻一番的增长速度增加)的巨量发光二极管的芯片需求量,仍100%依赖进口的状况,提请有关部门领导重视。为此,与会代表起草了一份致国家科委、经委和计委的呼吁书,促请领导重视,引进外延技术关键设备、组织攻关,以祈早日赶上国际水平。

(黎 风)