

用于探测 Rydberg 态原子的热电二极管 ——实验观察和理论分析

何懋麒 李浦生 王国益 王光永
(复旦大学物理系)

提 要

用热电二极管探测了热管炉中 Ba 原子 Rydberg 态的双光子吸收脉冲信号,对信号的幅度、信号峰值和出现时间与气压、温度、偏压、作用区位置的关系进行了实验观察和理论分析。

一、引 言

研究原子分子的 Rydberg 态和自电离态,在光子、原子、分子物理和同位素分离,化学反应等理论和应用方面,具有重要意义,引起国内外的重视。热电二极管作为探测 Rydberg 态和自电离态的手段,具有很高的灵敏度和分辨率,能够提供丰富的信息。它是通过光激发原子、热电离、检测二极管回路中形成的电流而获得信号的一种探测元件,故称为热电二极管。

M. Aymar^[1]等人用热电二极管研究了 Ba 原子的双光子光谱,并观察到信号的波形由正离子电流和电子电流组成。E. F. Worden^[2]认为 Rydberg 态的热电离过程主要是 Penning 电离。R. Beigang^[3]认为信号正比于激发态粒子密度、电离几率、探测率和放大率。但未见对热电二极管工作原理进行系统地观察和分析的报道。

本文进一步系统地观察了 Ba 原子双光子吸收信号的幅度和峰值出现时间随气压、温度、偏压、作用区位置的变化关系,并且分析了热电二极管的工作原理,导出了信号与激光参数、原子参数、放电参数关系的解析式。公式与实验基本符合。

二、实验装置

实验装置如图 1 所示。

氮分子激光 0.4 MW, 2 mJ, 脉宽 6 ns, 染料激光器采用掠入射式, 光栅 2400 lines/mm。掠入射角 89.5°。染料 Coumarin 500 和 Coumarin 480, 染料激光线宽 0.03 Å, 脉宽 10 ns。染料激光经透镜 ($f=55$ cm) 会聚进入热管炉, 热管炉长 60 cm, 等温工作区约长 8 cm, 内径 26 mm。钨棒作为阳极, 管壳作为阴极, 在等温工作区中部, 钨棒、管壳、光束的相对位置如图 2 所示, 作用区平均直径 Φ_0 约 0.3 mm, 钨棒直径 2 mm。作用区到钨棒的距离 L 是电子

的渡越长度, l_+ 是 Ba 离子的最短渡越长度。回路中用可变电阻 R_V 可以在 1~9 V 内改变二极管偏压, 信号由负载电阻 R_L (20 K) 取出送入示波器观察, 所有导线和热管炉管壳都屏蔽接地, 防止氦激光电源放电干扰。蒸汽的温度通过用热电偶测量外管壁的温度来间接地

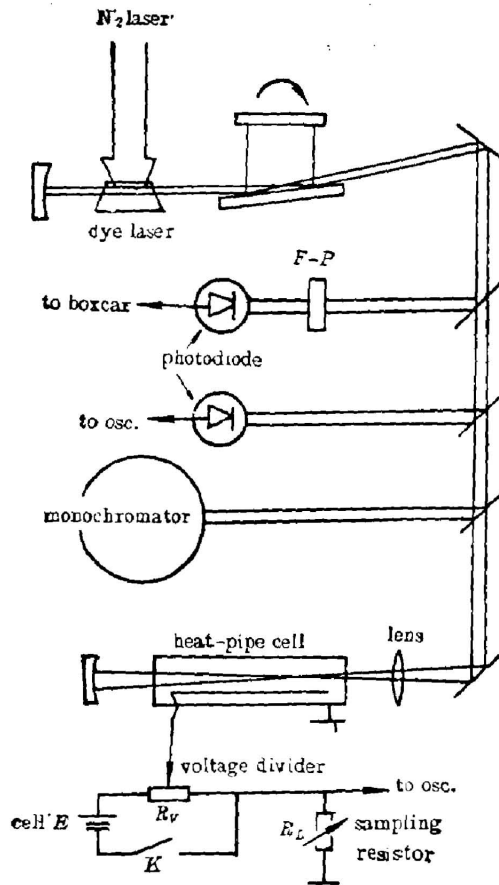


Fig. 1 Experimental setup

反映, 气压通过测量保护气体(Ar)气压而得。实验中, 首先让激光在 $4690 \text{ \AA} \sim 4910 \text{ \AA}$ 范围内扫描, 得到 Rydberg 态双光子吸收光谱, 其能级为 $6s n s^1 S_0$, $14 \leq n \leq 59$; $6s n d^1 D_2$, $12 \leq n \leq 70$; $6s n d^3 D_2$, $13 \leq n \leq 33$ (另文论述), 然后从中任选一能级, $6s 30s^1 S_0$ (Ba 原子吸收两个波长为 4776.8 \AA 的光子从基态跃迁到此能级), 作为本文的工作能级。观察信号与气压关系时, 保持温度不变。而测量信号与温度关系时, 保持气压不变。所测电子电流信号幅度都用零光强的平方相除。

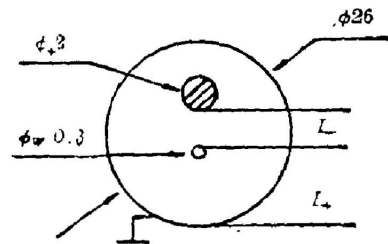
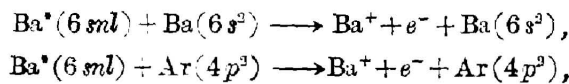


Fig. 2 Sectional diagram of pipe

三、公式的推导

热电二极管的物理过程如图 3 所示, 基态为 $|g\rangle$, Ba 原子经光强为 $I(t, \lambda)$ 的染料激光泵浦, 吸收两个光子, 到达 Rydberg 态 $|u\rangle$, 本实验中态 $|u\rangle$ 即为 $6s 30s^1 S_0$, 其密度为 $n_u(t)$ 。由于热运动, 对于 Rydberg 态 $|u\rangle$, 其主要的电离通道是 Penning 电离^[2]:



用 σ_{ion} 表示电离几率,

$$\sigma_{\text{ion}} = \frac{n_i}{n_u}, \tag{1}$$

n_i 为 Penning 电离的电子密度和离子密度。由于实验中气压 P (3~30 Torr) 和电压 V

(1~7V)均较低,二极管处于非自持放电状态。光照作用区域 Φ_0 之内产生的电子和离子在离开光照区域之前不断复合,只有离开光照区域之后,才不再复合,因此抵达阳极时电子密度只有

$$n_- = \alpha_- n_u, \quad (2)$$

同样,离子浓度只有

$$n_+ = \alpha_+ n_u, \quad (3)$$

α_- 、 α_+ 是由于复合,阳极和阴极能够捕获的电子密度和离子密度与 n_u 之比。由于热管炉的热电子发射和两极间加有偏压,阴极附近存在空间电荷, G. V. Marr^[6]等人观察到一个离子到达阴极

时,可以导致许多电子的反向运动,产生放大的电流,令此放大因子为 a_+ 。而电子抵达阳极时则无放大作用。设抵达阳极的电子对电流密度的贡献为 i_- , 抵达阴极的离子对电流密度的贡献为 i_+ , 电场为 E , 电子迁移率为 u_-^0 , 离子迁移率为 u_+^0 , 电荷为 q , 得到

$$i_- = qn_- u_-^0 E = qn_u(t, \lambda) \sigma_{ion} \alpha_- u_-^0 E, \quad (4)$$

$$i_+ = qn_+ u_+^0 E = qn_u(t, \lambda) \sigma_{ion} \alpha_+ u_+^0 E, \quad (5)$$

下面具体讨论 $n_u(t, \lambda)$ 、 σ_{ion} 、 α_+ 、 α_- 、 a_+ 、 u_-^0 、 u_+^0 。

Rydberg 态 $|u\rangle$ 的密度 $n_u(t, \lambda)$ 一般可由解速率方程得到。这里从略。近似地可以认为

$$n_u(t, \lambda) \sim \sigma I^2(t, \lambda) N, \quad (6)$$

N 为原子密度, I 为光强, σ 为双光子跃迁几率。

在热平衡条件下,能级粒子数按 Boltzmann 分布,热电离几率 $\sigma_{ion} \sim T^{5/4} P^{-1/2}$ ^[4]。但在本实验中, Rydberg 态 $6s30s^1S_0$ 距第一电离势 42032.4cm^{-1} 只有 162.3cm^{-1} , Penning 碰撞电离所需能量很少,仅为基态原子热电离所需能量的 $1/260$, 我们假定压强低于 30 Torr 时,原子的自由程很大,足以实现 Penning 电离,故可认为 σ_{ion} 与压强无关,这是 Rydberg 态原子的热电离过程与热平衡状态下的热电离过程不同之处。这个假定正确与否,还得由实验检验。

$$\sigma_{ion} = C_1 T^{5/4}, \quad (7)$$

C_1 是仅与 Ba 原子的电离势有关的常数。

关于 α_- , 作用区域的直径 Φ_0 约为 0.3mm, 电子、正离子复合主要在作用区域内进行,在 dt 时间内,单位体积内复合的电子数为 dn_- , 则

$$-dn_- = rn_-^2 - dt$$

其中 r 为复合系数,积分得

$$n_- = \frac{n_0}{1 + \gamma n_0 \tau}, \quad (8)$$

其中 τ 是原子从电离到电子正离子迁移而在空间上分离所需的时间。

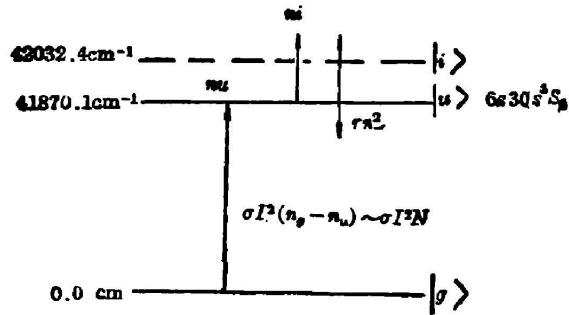


Fig. 3 Schematic energy-level diagram of Ba atom for deduction of Eq. (14)

$$\alpha_- = \frac{n_-}{n_+} = \frac{1}{H\tau n_+ \tau} = \alpha_+ \quad (9)$$

关于 τ 的估计, 由 $\Phi_0 = \tau(u_+^0 u_-^0) E$, 应用下面引出的 u_+^0 、 u_-^0 的表达式, 经过简单运算得到

$$\tau = \frac{P\Phi_0}{T^{1/2}(C_2 E + P^{1/2} E^{1/2})} \quad (10)$$

可以看出, τ 越长, α_- 、 α_+ 越小。此外, 在气压低于一个大气压的情况下, 复合系数

$$\nu \sim \sqrt{T} \quad (11)$$

意即温度越高, 粒子的平均热运动速度越快, 碰撞就越频繁, 复合的机会就越多。

关于迁移率, $u_-^0 = C_2' \sqrt{\frac{\lambda_-}{m_e E}} \lambda_+ = \frac{1}{\sqrt{2} \pi \sigma_+^2 N} \lambda_-$ 为电子的平均自由程, σ_- 为电子-原子的作用半径。考虑到 $P = NKT$, 代入得到

$$u_-^0 = C_3' \frac{1}{\sigma_-} \sqrt{\frac{T}{PE}} \quad (12)$$

同样, $u_+^0 = C_4' \frac{\lambda_+}{M_+ V_+} \quad (12)$, $V_+ = \sqrt{\frac{3KT}{M_+}}$

故

$$u_+^0 = C_5' \frac{1}{\sigma_+^2 M_+ N \bar{Y}_+} = C_5' \frac{1}{\sigma_+^2 N \sqrt{T}} = C_5'' \frac{\sqrt{T}}{\sigma_+^2 P} \quad (13)$$

电子迁移率与自由程的关系不同于离子, 这是电子和离子行为不同的重要原因。由(4)、(5)可以看出, 电子电流和离子电流的大小受到(12)、(13)两式的影响。

此外, (12)、(13)还可用来讨论电子电流峰值和离子电流峰值的大小。在本实验中, 示波器上观察到的波形与激光波形、电子在抵达阳极前的扩散、二极管回路的时间特性、示波器的频率响应特性等因素有关。本文不拟描述这些复杂的因素, 因为光谱实验中 Boxcar 积分器的门开在信号波形的峰值处, 仅记录信号的峰值, 故只讨论电子电流峰值与气压、温度、偏压、光强等参量的关系。这些参量不是时间的函数, 它们决定电子电流峰值。将(8)~(13)式代入(5)式, 得到电子电流峰值 i_{-m} 的解析表达式:

$$i_{-m} = C_6 \sigma I_m^2 \frac{P^{1/2} T^{3/4} E^{1/2}}{1 + C_7 P^2 T^{1/4} \frac{\Phi_0}{C_2 E + C_3 E^{1/2} P^{1/3}}} \quad (14)$$

上述各式中的系数 C_i 都只与原子参数 m_e 、 M_+ 、 u_+ 、 σ_- 、 σ_+ 、 k 有关, 对某一原子应为常数。 I_m 为激光脉冲峰值。

至于 i_{+m} 的解析表达式, 由于 G. V. Marr^[8] 的文章中没有给出 α_+ 与温度、压强等参数的关系, 本文未能导出 i_{+m} 的显式。

四、实验结果和分析

一、电子电流峰值 i_{-m} 和离子电流峰值 i_{+m} 出现的时间与压强、温度、偏压的关系;

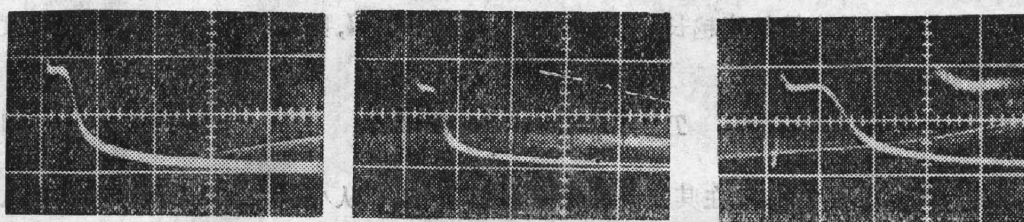
由图 4~7 可以看出, 示波器所观察到的电流波形由双峰组成, 第一峰是电子电流、次峰是离子电流。与 M. Aymar^[1] 观察到的结果一致。

电子电流峰值出现的时间 t_- 与电子的渡越时间 T_- 成正比, 由图 2 和(12)式得到:

$$t_- \sim T_- = \frac{l_-}{u_- E} = \frac{l_- \sigma_- P}{C_3^2 \sqrt{TE}} \quad (15)$$

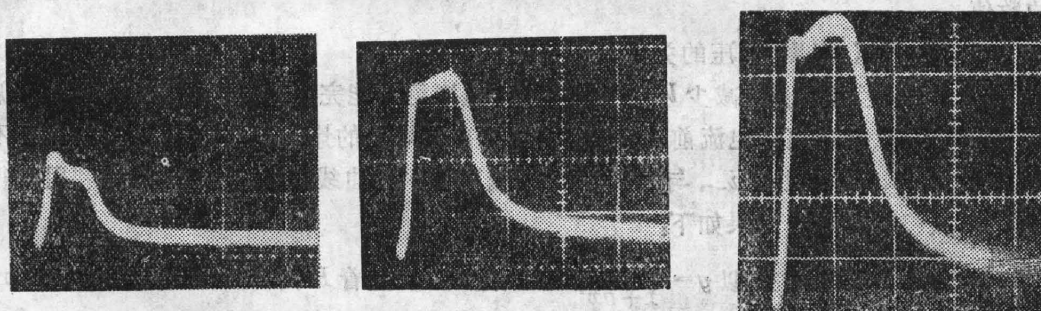
实验结果图 4(a)~(c)表明, 随气压由 8 Torr 增加到 24 Torr, t_- 由 0.05 ms 增加到 0.5 ms, 也就是说 i_{-m} 出现的时间推迟到了 0.1 ms。图 5(a)~(c)则表明随温度由 800°C 上升到 950°C, i_{-m} 出现的时间 t_- 有所提前, 但不显著, 因为温度的相对变化不大。而图 6(a)~(c)则表明偏压由 3 V 增到 9 V, i_{-m} 出现时间 t_- 由 0.12 ms 提前到 0.07 ms。P, T, V 与 t_- 关系的实验结果与(15)式一致。同样方法可以讨论 t_+ 与 P, T, V 的关系。

二、 i_{-m} 和 i_{+m} 峰值出现时间与作用区域位置的关系:



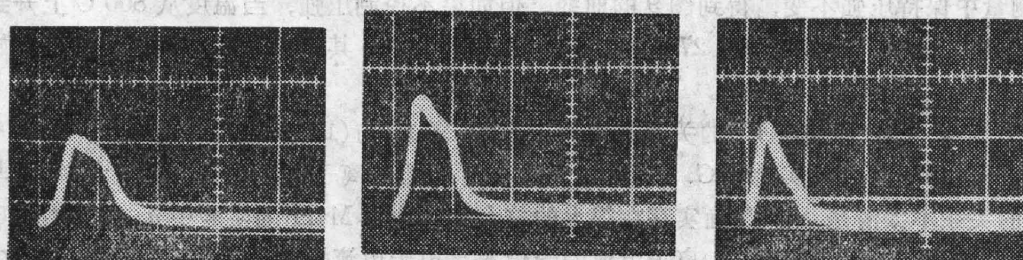
(a) $P=8$ Torr (b) $P=16$ Torr (c) $P=24$ Torr

Fig. 4 Typical diode waveforms at different pressures P; T: 860°C;
X: 0.5 msec/div.; Y: 200 mv/div



(a) $T=800^\circ\text{C}$ (b) $T=840^\circ\text{C}$ (c) $T=950^\circ\text{C}$

Fig. 5 Typical diode waveforms at different temperatures T;
P: 14 Torr; X: 0.2 msec/div.; Y: 100 mv/div.



(a) $V=3$ V (b) $V=6$ V (c) $V=9$ V

Fig. 6 Typical diode waveforms for different bias voltages V;
T: 860°C; P: 14 Torr; X: 0.2 msec/div.; Y: 200 mv/div.

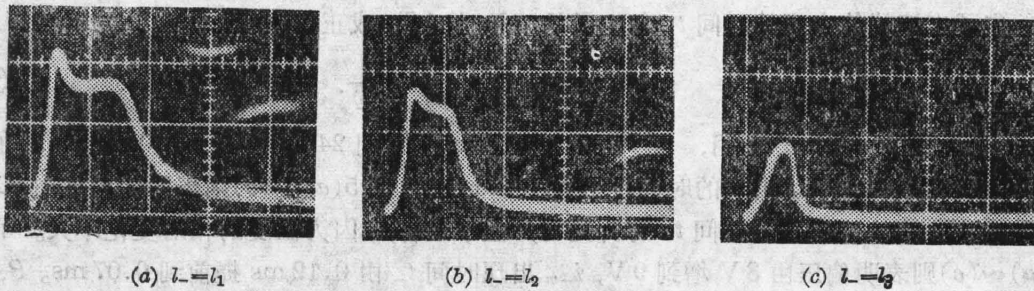


Fig. 7 Typical diode waveforms in different interaction zones
 $l_1 < l_2 < l_3$; T : 860°C; P : 14 Torr; X : 0.2 msec/div.; Y : 200 mv/div.

由图 2, 设 l_+ 是离子的渡越长度, 阳极到阴极的距离为 l , 则 $l = l_- + l_+$, 又设离子的渡越时间为 T_+ , 则由(13)

$$T_+ = \frac{l_+}{u_+^0 E} = \frac{1}{u_+^0 E} (l - l_-), \quad (16)$$

再考虑到(15), $T_- = \frac{l_-}{u_-^0 E}$, 在其它条件保持不变时, 如 l_- 从小到大, 也即使光照区域从阳极附近移至阴极附近, 将观察到 T_- 增加, 即 i_{-m} 出现时间落后; 同时 T_+ 减少, 即 i_{+m} 出现时间提前, 两峰靠拢。图 7(a)~(c)表明, 当 l_- 取 l_1, l_2, l_3 , 且 $l_1 < l_2 < l_3$ 时, 两峰靠拢的情况。在本实验中, 正是利用这一关系, 使光照区域尽可能靠近阳极, 使两峰尽量分开, 读出 i_{-m} 的数值。

三、 i_{-m} 与气压、温度、偏压的关系:

如上所述, 尽管可以利用减少 l_- 来分开两峰, 但毕竟不能完全分开, 所以 i_{-m} 的读数偏高, 产生系统误差(好在离子电流前沿较陡, 对电子电流峰值的影响较小), 估计这种偏高不超过读数的 20%。不致影响 i_{-m} 与气压、温度、偏压关系的曲线形状, 因此, 可以利用所得实验曲线与式(14)比较。结果如下:

(1) i_{-m} 与 P 的关系类似 $y = \frac{ax}{1+bx^4}$ 的函数关系。随着 P 由 3 Torr 增加到 30 Torr, i_{-m} 有一个先上升后下降的过程。与图 8 一致。

(2) i_{-m} 与 T 的关系类似 $y = \frac{a_1 x^3}{1+b_1 x}$ 的函数关系。随着 T 由 800°C 上升到 1000°C, 如果测量中保持压强不变, 得到图 9 的曲线。但如果不控制压强, 当温度从 800°C 上升到 1000°C, 压强从 21 Torr 上升到 27 Torr, 由图 8, 信号下降, 其结果是在 940°C 处信号开始下降。

(3) i_{-m} 与 E (即偏压 V) 的关系是单调上升的, 图 10 与(14)式相符。

此外, 根据我们的实验和 G. V. Marr^[8] 的实验, 虽然离子打在阴极上的放大率 a_+ 与 P, T 的关系不太清楚, 但是确实存在很大的放大率(G. V. Marr 的实验中 a_+ 在 $10^4 \sim 10^9$ 之间), 由图 4~7, 一般情况下, 离子电流的峰值虽比电子电流峰值小, 但其面积却大得多, 这就是离子的放大作用。这一点在低气压下特别有用, 图 11 可以看到, 当气压 3 Torr 时, 电流峰几乎不存在, 而离子虽很少, 但放大后, 由于气压低, 被离子打出的电子流到达阳极却很少扩散, 致使离子引起的电流峰值仍然很高。如果再加上较高的温度和适当减小 l_+ , 这一

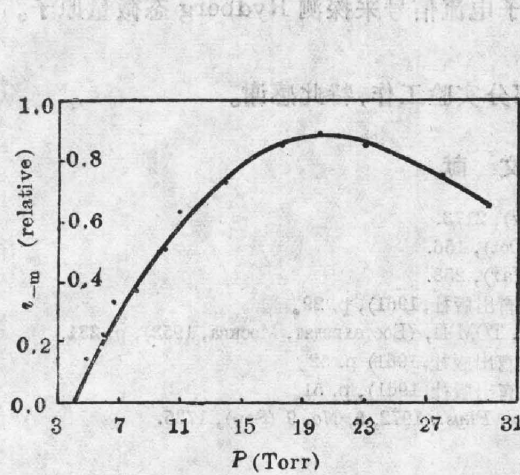


Fig. 8 Signal i_m vs. pressure at $T=860^\circ\text{C}$

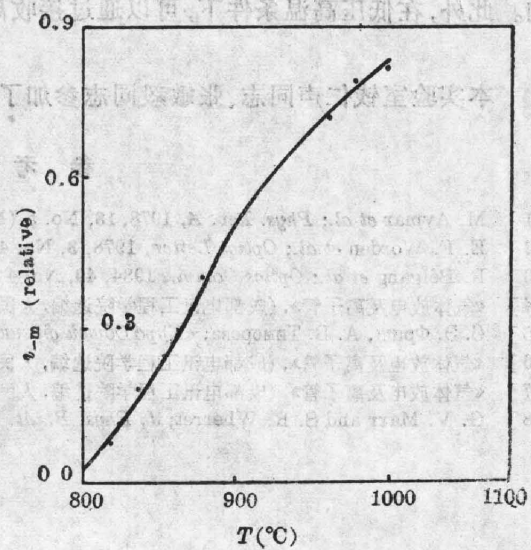


Fig. 9 Signal i_m vs. temperature at $P=16$ Torr

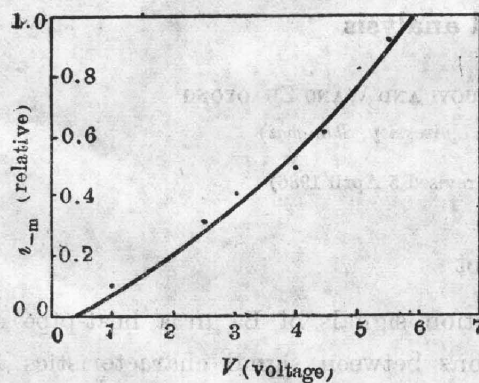


Fig. 10 Signal i_m vs. bias voltage at $T=860^\circ\text{C}$ and $P=14$ Torr

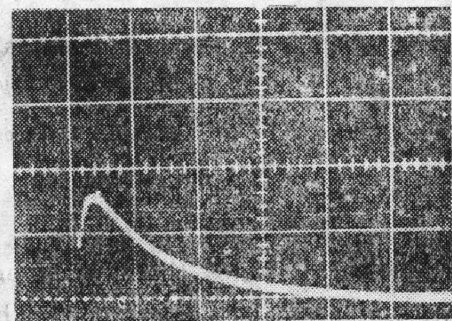


Fig. 11 Waveform at $T=860^\circ\text{C}$ and $P=3$ Torr

效果更为显著。从而可以提高 Rydberg 态原子的探测灵敏度。

五、结 论

由于分别精确测量电子电流和离子电流的困难,以致未能使实验结果与公式(14)完全拟合,但信号随气压、温度、偏压等因素变化的趋势是一致的。根据(14),对于某种元素的第一能级,所有系数和 σ 均为常数,一般情况下,为了获得较大的电子电流信号,可以改变气压和温度,找到最佳气压和温度,此外,可以适当提高激光器的功率 I_m ,增加偏压 E ,减少作用区直径 Φ_0 ,获得最佳信号。但是,过高的激光功率也会带来谱线的功率加宽,过高的偏压会导致严重的 Stark 效应。总之,有了(14)式,实验中如何获得较高的信噪比,就有了一个方

向。此外,在低压高温条件下,可以通过接收离子电流信号来探测 Rydberg 态微量原子。

本实验室钱仁声同志、张敏毅同志参加了部分实验工作,特此感谢。

参 考 文 献

- [1] M. Aymar *et al.*; *Phys. Rev. A*, 1978, **18**, No. 5 (Nov), 2173.
- [2] E. F. Worden *et al.*; *Optics Letter*, 1978, **3**, No. 4 (Oct), 156.
- [3] R. Beigang *et al.*; *Optics Comm.*, 1984, **49**, No. 4 (Mar), 253.
- [4] 《气体放电及离子管》, (成都电讯工程学院选编, 人民教育出版社, 1961), p. 29.
- [5] С. Э. Фриш, А. В. Тиморева; «Курс Общей физики», ТОМ II, (Бостехиздат, Москва, 1953), p. 231.
- [6] 《气体放电及离子管》, (成都电讯工程学院选编, 人民教育出版社, 1961) p. 52.
- [7] 《气体放电及离子管》, (成都电讯工程学院选编, 人民教育出版社, 1961), p. 51.
- [8] G. V. Marr and S. B. Wherret; *J. Phys. B. At. Mol. Phys.*, 1972, **5**, No. 9 (Sep), 1735.

Thermoelectronic diode used to detect Rydberg states in atoms—experimental observation and theoretical analysis

HE MAOQI, LI PUSHENG, WANG GUOYI AND WANG ZHAOYONG

(Department of Physics, Fudan University, Shanghai)

(Received 11 December 1985; revised 5 April 1986)

Abstract

We have detected the two-photon absorption signals of Ba in a heat-pipe cell using a thermoelectronic diode. The relations between signal characteristics and pressure, temperature, bias voltage, position of interaction zone were studied both experimentally and theoretically.