

激光诱导荧光能级寿命检测中磁场的干扰*

郑殷东

(杭州大学中心实验室, 杭州 310028)

摘 要 在孔阴极放电激光诱导荧光氩原子 $\text{Ar I } 5p [3/2]_2$ 能级寿命检测中, 当加强外磁场于其观察方向, 被测能级寿命随磁场强度的增加而缩短。其自然能级寿命被确定为 120 ns。

关键词 孔阴极放电, 魔角激发, 塞曼振荡, Stern-Vollmer 零气压趋近。

1 引 言

时间分辨激光诱导荧光实验是能级寿命检测的一个十分有用和可信的方法。当碰撞是影响能级寿命的唯一因素时, 对于一个特定的实验安排, 存在一个“魔角”, 使被测弛豫曲线中碰撞消取向相消失, 弛豫曲线仅代表能级粒子数减少, 成单指数衰减, 可用 Stern-Vollmer 零气压趋近求得其自然寿命^[1, 2]。而当外磁场存在时, 会引起“塞曼振荡”。不存在“魔角”使碰撞消取向相消失^[1], 在文献[1, 4]指出之前, 人们普遍认为可用加强外磁场于时间分辨激光诱导荧光实验来消除磁场的影响。强的外磁场使“塞曼振荡”频率(Larmor 频率)压缩, 当外磁场强到一定程度时, 仪器不能对振荡作时间分辨, 曲线中“塞曼振荡”消失, 这时的曲线被认为恢复到了无磁场干扰情况下的曲线^[3]。仔细的研究表明, “塞曼振荡”虽然能被消除, 但磁场干扰在孔阴极放电激光诱导荧光实验中依然存在。本文从实验和理论两方面对加强外磁场引起的现象作了探讨。文中数据处理中也考虑了如自吸收等影响能级寿命检测的其他因素。

2 实 验

实验装置与文献[1]相同。处于亚稳态($\text{Ar I } 4s [3/2]_2$ 和 $\text{Ar I } 4s' [1/2]_0$)的氩原子由孔阴极放电产生, 然后用准分子激光泵浦的脉宽 10 ns 的脉冲染料激光把处于亚稳态 $\text{Ar I } 4s [3/2]_2$ 的氩原子泵浦到 $\text{Ar I } 5p [3/2]_2$, 激光波长为 415.86 nm。在与激光入射方向垂直的方向观察其 $\text{Ar I } 5p [3/2]_2 \rightarrow \text{Ar I } 4s [3/2]_1$ 的辐射跃迁(426.63 nm)。采用单光子检测法作荧光检测。经多道处理后的数据送计算机作曲线拟合和输出。在激光入射方向和荧光检测方向均加有偏振片。两偏振片偏振方向构成的夹角为 β 角(见文献[1])。当 $\beta = 54.7^\circ$ 时, 即为“魔角”。孔阴极放电在检测时采用由脉冲发生器触发的脉冲放电形式。调节放电触发和激光触发之间的时差用以产生最佳时序。一般是放电正好消失时激光触发。这样处于亚稳态的原子

* 完成于德国基而大学实验物理系。

收稿日期: 1994年11月25日; 收到修改稿日期: 1995年2月22日

放电产生的强光正好消失,即可在时间上把放电产生的强光滤去。本实验的最佳时差是 17~20 μs 。激光和脉冲放电的重复率为 100 Hz。激光波长由氩灯谱线作初步校准。实验时根据信号强弱再作细调。

一对 Helmholtz 线圈装在放电管的两边,用以产生沿观察方向的外磁场。磁场强度由线圈内的电流强度调节。

所得曲线首先经过减背景处理,然后经计算机用“Peakfit”程序进行曲线拟合。当外磁场存在时,尽管采用“魔角”激发($\beta = 54.7^\circ$),乃需用双指数对曲线进行拟合。无外磁场影响下获得的曲线用以作 Stern-Vollmer 曲线以求得 Ar I $5p [3/2]_2$ 的自然能级寿命。

3 结果与讨论

仅当碰撞和磁场对能级寿命起影响而磁场加在观察方向,荧光强度满足如下公式^[1]:

$$S(t) \sim \exp(-\Gamma t) \{ \exp(-\Gamma_0^{\text{coll}} t) + (1/2)\alpha(2) \times \exp(-\Gamma_2^{\text{coll}} t) [(3 \cos^2 \beta - 2) + 3 \cos^2 \beta \cos 2\Omega t] \} \quad (1)$$

式中 $1/\Gamma$ 为能级自然寿命, Γ_0^{coll} 为碰撞消激发因子, Γ_2^{coll} 为碰撞消取向因子, β 为激光和荧光的偏振方向构成的夹角。 $\Omega = g_J \mu_B B / \hbar$ 。其中 g_J 为朗道(Landé)分裂因子, μ_B 为玻尔磁子, B 为外磁场强度, \hbar 为普朗克常数。 $\alpha(2)$ 为不对称系数。当 $\beta = 54.7^\circ$ 时

$$S(t) \sim \exp(-\Gamma t) \{ \exp(-\Gamma_0^{\text{coll}} t) + (1/2)\alpha(2) \times \exp(-\Gamma_2^{\text{coll}} t) [\cos 2\Omega t - 1] \} \quad (2)$$

当 Ω 足够大时,在一道时间范围内, $\overline{\cos 2\Omega t} = 0$ “塞曼振荡”消失。

$$S(t) \sim \exp(-\Gamma t) \{ \exp(-\Gamma_0^{\text{coll}} t) - (1/2)\alpha(2) \times \exp(-\Gamma_2^{\text{coll}} t) \} \quad (3)$$

因此,当加强外磁场于观察方向而 $\beta = 54.7^\circ$ 时,应用(3)式对曲线作拟合。

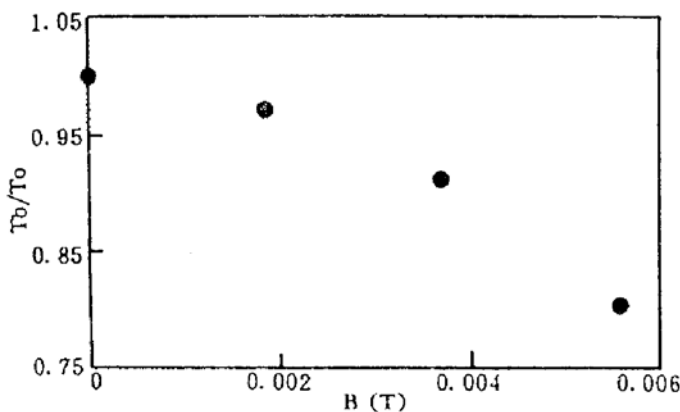


Fig. 1 Gas pressure 40 Pa. Double exponential fit to the curves. The ratio of lifetime with and without applied external magnetic field

被测能级寿命随所加外磁场强度的变化如图 1 所示。这表明,磁场的影响使实际被测能级寿命缩短,磁场越强寿命越短。由于加外磁场于观察方向引起放电管中的带电体绕动,从而增加了被激发原子与带电体(氩原子和电子)的碰撞几率。这可能是引起被测能级寿命缩短的原因。因此,由加外磁场消除“塞曼振荡”从而通过 Stern-Vollmer 零气压趋近所得到的自然寿命可能偏短。

无外磁场干扰时(或认为干扰可忽略),把所得曲线同时进行单指数和双指数拟合,可以得到表 1。由表 1 可知,当气压为 20 和

40 Pa 时,采用“魔角”激发,忽略实验偏差,曲线是非常漂亮的单指数衰减曲线,说明只有碰撞对寿命起影响;而对 80 Pa 气压下所得曲线,通过双指数拟合,得到两个不同的指数值,这说明曲线是非单指数衰减曲线,必定有其它因素影响能级寿命。相比于 20 Pa 和 40 Pa 气压下所得曲线,作者认为这一影响来自氩原子的自吸收。自吸收会引起弛豫加长,对于 80 Pa 气压下所得曲线,其弛豫时间偏长。先取 20 Pa 和 40 Pa 气压下所得曲线(其中一条见图 2)

寿命的平均值, 然后作 Stern-Vollmer 曲线(图 3)。作者得到其自然寿命为 120 ns。由表 2 可知, 这一值更接近理论值而与大多数实验值十分接近。本文的实验中, 先由孔阴极放电使氩原子亚稳态得到布居, 然后用激光作选择激发, 不存在用电子束布居所存在的“级联”(Cascade)现象, 且充分考虑了各种对能级寿命检测起影响的因素。因此, 有理由认为本寿命值较为准确。

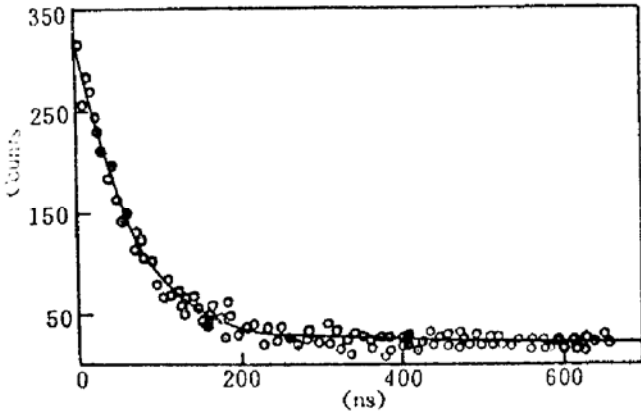


Fig. 2 Decay curve. Pressure 40 Pa without applied external magnetic field. Single exponential fit

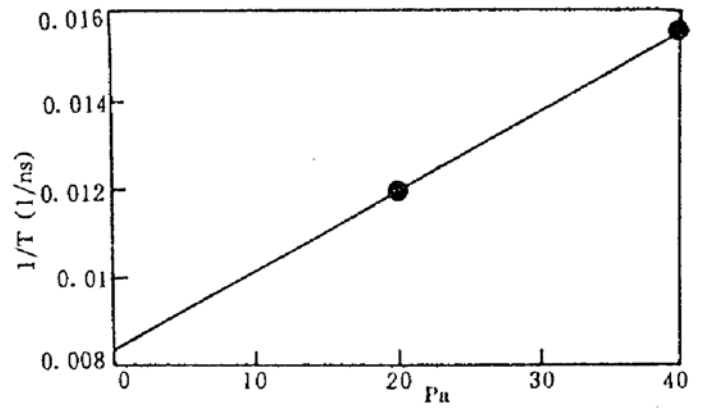


Fig. 3 Stern-vollmer plot of Ar I 5p [3/2]₂. The zero pressure extrapolation gives $\tau = 1/\Gamma = 120$ ns

Table 1. Measured lifetime (without applied external magnetic field)

pressure	single exponential fit (ns)	double exponential fit (ns)	
	$1/\Gamma$	$1/\Gamma_1$	$1/\Gamma_2$
20	81.9858	81.9837	81.9826
	85.1753	85.1794	85.1817
	84.3314	84.3277	84.326
40	63.9349	63.9313	63.93
	65.4339	65.4335	65.4333
	64.2137	64.2269	64.2334
80	58.1409	52.5845	2.6717
	57.6683	47.6195	5.43898
	50.2745	49.0942	2.36465

Table 2. Lifetime of the Ar I 5p[3/2]₂ level obtained by various authors

experiment			theory	
authors	excitation	lifetimes (ns)	authors	lifetimes (ns)
this work	laser	120 ± 2	[9]	98
[5]	hyfrequency deviation	125 ± 10	[10]	104
[6]	e-beam	238 ± 15	[11]	104
[7]	e-beam	130 ± 13		
[8]	e-beam	124 ± 3		

认真设计如何加磁场于孔阴极放电激光诱导荧光实验, 可能找到一个检测带电粒子对原子的碰撞消激发散射截面的方法。

作者感谢德国基尔大学实验物理系 Helbig 教授和 Schade 博士所提供的实验条件和对本人所作的指导与帮助。

参 考 文 献

- [1] W. Schade, L. Wolejko, V. Heibig, Influence of polarization effects and magnetic fields on time-resolved laser-induced fluorescence measurements. *Phys. Rev. A*, 1993, **47**(3) : 2099~2114
- [2] Takaki Fujimoto, Chiaki Goto, Yasunori Uetani *et al.*, Effects of anisotropic excitation in laser-induced fluorescence spectroscopy (LIFS). *Jap. J. Appl. Phys.*, 1985, **24**(7) : 875~880
- [3] P. Hannaford, R. M. Lowe, Determination of atomic lifetime using laser-induced fluorescence from sputtered metal vapor. *Opt. Eng.*, 1983, **22**(5) : 532~544
- [4] W. Schade, M. Reath. editors; M. Ducloy, E. Giacobino and G. Camy. The influence of magnetic fields on time-resolved laser-induced fluorescence measurements. *Tenth International Conference on Laser Spectroscopy*. Font-Romeu, France, Tenicols'91, World Scientific, 1991, 414~415
- [5] P. Erman, S. Hultdt, Trapping of non-resonance radiation in atoms and its influence on measured lifetimes of the 4p and 5p levels in Ar I. *Phys. Scripta*, 1978, **17**(4) : 473~477
- [6] P. Erman, I. Martinson, Lifetimes of the 3p⁵5p levels in Ar I. *Phys. Scripta*, 1973, **8**(6) : 269~273
- [7] Yu. I. Malakhov, V. G. Polyomkin, Life-time of some Ar I and Ar II levels. *Opt. Spectrosc.*, 1972, **32** : 129~130
- [8] Jules Z. Klose, Experimental lifetimes of the 5p levels in argon I*. *J. Opt. Soc. Am.*, 1968, **58**(11) : 1509~1512
- [9] R. A. Lilly, Transition probabilities in the spectra of Ne I, Ar I, and Kr I. *J. Opt. Soc. Am.*, 1976, **66**(3) : 245~249
- [10] P. W. Murphy, Transition probabilities in the spectra of Ne I, Ar I, and Kr I*. *J. Opt. Soc. Am.*, 1968, **58**(9) : 1200~1208
- [11] M. Aymar, Etude théorique des probabilités de transitions et des interactions de configurations proches dans les spectres des gaz rares. *Physica*, 1972, **57**(2) : 178~190

Magnetic Interfere on Time-resolved Laser Induced Fluorescence Measurements

Zheng Yindong

(Center Laboratory, Hangzhou University, Hangzhou 310028)

(Received 25 November 1994; revised 22 February 1995)

Abstract The measured lifetimes shortened according to the intensity of the magnetic field in hollow cathode discharge laser induced fluorescence Ar I 5p [3/2]₂ lifetime detection when strong external magnetic field was applied on the direction of observation. Its natural lifetime was decided to be 120 ns.

Key words hollow cathode discharge, magic angle excitation, Zeeman beats, stern-vollmer zero pressure extrapolation.