

α 粒子激励下氦、氪的光谱

蒋 刚 朱正和 黄 整 谭明亮

(四川联合大学(西区)原子分子物理所, 成都 610065)

陈涵德 傅依备

(中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 成都 610003)

摘 要 利用自制的单光子计数装置, 测定了氦、氪在 α 粒子激励下的发射光谱, 在 370.0~720.0 nm 波长范围内, 辨认出 5 条 He I, 1 条 Kr I 和 6 条 Kr II 的光谱线, 并在 α 粒子激励下观察到氦的分子谱带。实验研究了谱线强度随气体压强的变化规律, 对 α 粒子激励下氦、氪可能的激发机理进行了探讨。

关键词 α 粒子激励, He 光谱, Kr 光谱。

1 引 言

一些作者对核激励下稀有气体 Ne^[1, 2]、Ar^[3] 的光谱作过较系统的研究, 并对 Ne^[2, 5]、Xe^[4] 激光谱线的某些性质进行了探讨, 发现核激励与电激励的机理是不同的, 如在 He-Ne 体系中, 电激励主要是能量共振转移, 在可见区产生 632.8 nm 激光谱线, 而核激励主要是 Ne⁺ 的复合离解机制^[2], 产生 585.2 nm 激光谱线。这些为核激励下原子分子性质以及核泵浦激光器的研究提供了一定的理论与实验基础。最近, 在核激励下 Ne I 585.2 nm^[6] 和 Xe I 1.73 μ m 的激光输出已有报道。

1973 年, Walters^[7] 等曾在核裂变碎片对 He 的激发与电离研究中, 测定过 He I 的四条单重态跃迁谱线强度与压强的关系。1981 年, DeYoung^[8] 等在核裂变碎片激励³He-Kr 体系的研究中涉及到 Kr 的某些性质, 但是对 He 和 Kr 都缺乏较系统的核激励光谱研究。为了了解核激励下 He、Kr 的性质, 进一步探讨核激励机理, 丰富和完善核激励下稀有气体的光谱实验数据, 本文利用²³⁸Pu 放出的高能 α 粒子(约 5.5 MeV)为激励源, 首次对 He、Kr 在 α 粒子激励下的光谱进行了测量, 并对其在 α 粒子激励下的机理进行了一些探讨。

2 实验装置与方法

²³⁸Pu 放出的高能 α 粒子作用于待测气体, 使其电离与激发。由于本实验所用的 α 粒子源较弱(约 5×10^{11} Bq), 体系的发光强度较低, 故采用灵敏度较高的单光子计数装置^[2, 3]进行测量。其装置示意图如图 1 所示。其中, 单色仪的一级光栅范围为 300.0~800.0 nm, 分辨极限

为 0.1 nm, 光电倍增管的波长响应范围为 160.0~650.0 nm。本实验中, 单色仪入射狭缝宽 25 μm , 出射狭缝宽 15 μm , 并利用 He-Ne 激光器对波长示值进行校准。光电倍增管工作电压 -750 V, 系统本底计数为 15 ± 5 photon/min。源盒充气前真空度为 1.6×10^{-3} Pa 左右, 待测气体为北京氧气厂生产, 纯度分别是氦 99.999%, 氩 99.995%。每间隔 0.1 nm 记录一次光子数, 每次计数时间为 10 sec。

3 氦的实验结果与分析

3.1 氦谱线的辨认

本文在氦气压强 $P_{\text{He}} = 53328$ Pa 下, 测量了 370.0~720.0 nm 波长范围内 He 的谱线, 获得 He 的光谱图如图 2 所示。观测到 13 条谱线, 根据 (L, S) 耦合的电偶极跃迁选择定则^[11], 利用 Moore^[9] 给出的能级值, 由波长公式 $\lambda = hc/(E_i - E_j)$ 计算出所有可能发生跃迁的波长值, 与实验观测值进行比较, 辨认出其中较弱的 5 条谱线与放电条件下 He I 的光谱线相一致, 如表 1 所列。其相对强度是根据实验光子计数而得, 并给出了各谱线的波长和对应的能级跃迁。

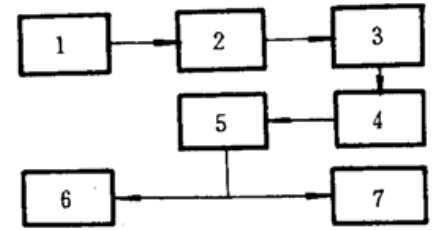


Fig. 1 Single-photon counting system

1. light- source ($^{238}\text{Pu} + \text{gas}$), 2. monochromater, 3. photomultiplier, 4. linear amplifier, 5. computer controlling and recording system, 6. printer, 7. plotter

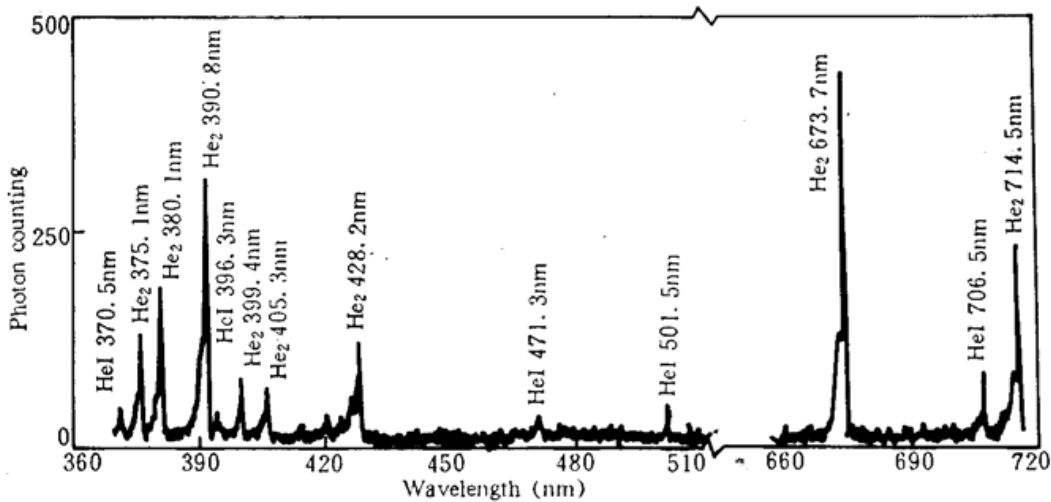


Fig. 2 The spectrum of helium excited by α -particle ($P_{\text{He}} = 53328$ Pa)

Table 1. The spectral lines of He I excited by α -particle

No.	obs. (nm)	relative intensity	configuration transition	term transition	calc. (nm)	ref [14] (nm)	ref [15] (nm)
1	370.5	53	$1s7d \rightarrow 1s2p$	$7d \ ^3D_{3,2,1} \rightarrow 2p \ ^3P_{2,1,0}^0$	370.61	370.500	—
2	396.3	52	$1s4p \rightarrow 1s2s$	$4p \ ^1P_1^0 \rightarrow 2s \ ^1S_0$	396.58	396.473	396.47
3	471.3	45	$1s4s \rightarrow 1s2p$	$4s \ ^3S_1 \rightarrow 2p \ ^3P_{2,1,0}^0$	471.45	471.315	471.31
4	501.5	65	$1s3p \rightarrow 1s2s$	$3p \ ^1P_1^0 \rightarrow 2s \ ^1S_0$	501.71	501.568	501.57
5	706.5	86	$1s3s \rightarrow 1s2p$	$3s \ ^3S_1 \rightarrow 2p \ ^3P_{2,1,0}^0$	706.72	706.517	706.52

另外 8 条较强的谱线, 通过计算与 He I、He II 可能存在的光谱线均不符合。但从图 2 可以看出, 它们均呈现出分子的带状光谱特征, 根据分子电子谱带通常有带头存在, 由谱带头位置^[16]

$$m_{\text{谱带头}} = - \frac{(B'_v + B''_v)}{2(B'_v - B''_v)} \tag{1}$$

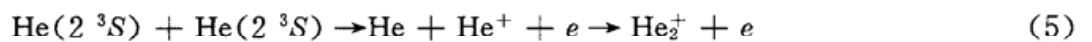
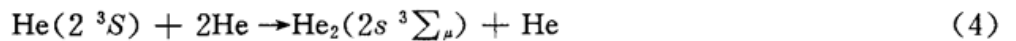
可鉴别谱带。从图 2 可知，这 8 条谱线的带头均在红端，则上电子态且属于振动量子能级 v' 的分子转动常数 B'_v 应大于下电子态的转动常数 B''_v 。由这一事实，并考虑到分子能级跃迁的选择定则^[16]，根据文献[10]给出的光谱常数，由公式

$$\Delta T = [T'_v + \omega'_v(v' + \frac{1}{2}) - \chi'_v \omega'_v(v' + \frac{1}{2})^2] - [T''_v + \omega''_v(v'' + \frac{1}{2}) - \chi''_v \omega''_v(v'' + \frac{1}{2})^2] \tag{2}$$

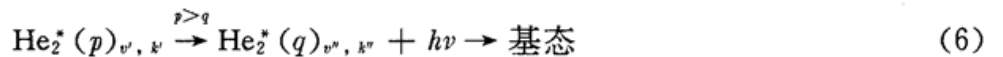
计算出谱项差，从而计算出波长值，对实验结果进行比较辨认，但由于 He_2 、 He_2^+ 的光谱数据不足，加之本实验仪器的限制，不能测量到更广阔范围和更精细的光谱线，因而不能确认其归属，只能定性认为这 8 条谱线应属于氦的分子电子振动光谱。

3.2 氦分子谱线的产生

由于 α 粒子激发过程实质就是高能 α 粒子和电子不断慢化的过程，而且氦的亚稳态具有较高的布居率，因而在氦体系中，激发和电离的主要过程是具有不同动能的次级电子与原子、亚稳态之间的碰撞等过程^[12]：



另外某些碰撞过程也易形成比较稳定的氦分子离子 He_2^+ ($D_0^0 = 2.365 \text{ eV}^{[10]}$)， He_2^+ 俘获一个电子后形成激发态氦分子 He_2^* ，因此，氦分子电子振动光谱不仅存在，而且由于 He_2^* 易向低电子态跃迁回到基态而离解，使其谱线强度比原子光谱要强。



3.3 氦谱线随气体压强的变化

为了分析气体压强对谱线强度的影响，实验测量了 71993 Pa、53329 Pa、46662 Pa、35330 Pa、21331 Pa、11332 Pa、4666 Pa 7 个不同压强下各谱线的强度，得到图 3、图 4 所示的谱线强度随气体压强的变化曲线。

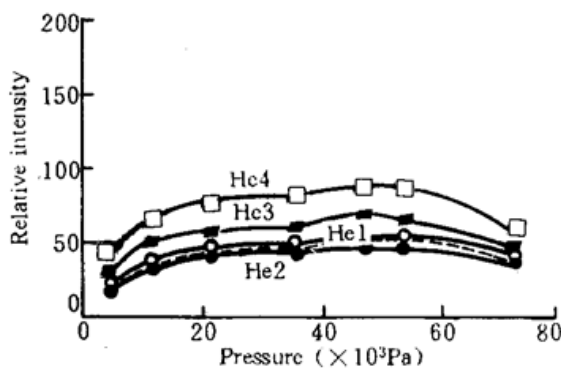


Fig. 3 The intensity of He I's spectral lines varied with the pressure of He

He1: 370.5 nm; He2: 471.3 nm; He3: 501.5 nm; He4: 706.5 nm; -----He5: 396.3 nm

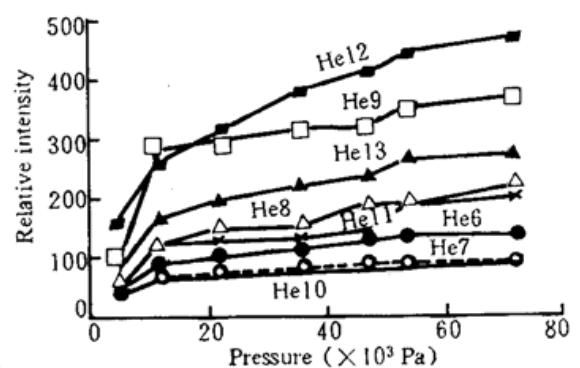


Fig. 4 The intensity of He₂s spectral lines varied with the pressure of He

He6: 375.1 nm; He7: 399.4 nm; He8: 380.1 nm; He9: 390.8 nm; He10: 405.3 nm; He11: 428.2 nm; He12: 673.7 nm; He13: 714.5 nm

根据 Walters^[7] 提出的二能级模型，谱线强度 I 与气体压强 P 的关系为：

$$I = \frac{AP + BP^2}{1 + CP + DP^2} \quad (7)$$

系数 $A = f_i$, $B = [a_{ji}(f_i + f_j) + C_i C_j]/A_j$, $C = (a_{ij} + C_i)/A_i + (a_{ji} + C_j)A_j$, $D = (a_{ji}C_i + a_{ij}C_j + C_i C_j)/A_i A_j$; 其中 i, j 表示上、下二能级。随 P 的变化, (7) 式可能有如下两种情况存在:

- 1) 当 $AD < BC$ 时, 谱线强度随压强的增加将单调增加, 并趋于一个常数 B/D ;
- 2) 当 $AD > BC$ 时, 谱线强度随压强的增加先增大, 而后随压强增加反而下降。

从图 3 可以看出, 当 $P_{\text{He}} < 53328 \text{ Pa}$ 时, He I 谱线强度随气体压强的变化与第一种情况基本吻合, 说明二能级模型所考虑的激发过程在较低压强时占主导地位。并由于观测到的 He I 谱线上能级均较高 ($> 22.5 \text{ eV}$), 这些激发态 He^* 的生成速率 f_i 较低, 导致 He I 谱线强度较低。当 $P_{\text{He}} > 53328 \text{ Pa}$ 后, He I 谱线强度又为什么有所下降呢? 这正是由于二能级模型未考虑到分子离子 He_2^+ 形成和复合过程, 而这些碰撞过程随压强的升高其生成速率增大^[12], 使 He_2^+ 浓度不断升高, He^* 浓度下降, 电子离子复合的加剧导致 He_2^+ 浓度不断升高, 表现出氦分子电子振动光谱强度在 $P_{\text{He}} > 53328 \text{ Pa}$ 以后继续增加如图 4 所示。



4 氩的实验结果与分析

4.1 氩谱线的辨认

实验在氩气压强 $P_{\text{Kr}} = 14665 \text{ Pa}$ 下, 测量了氩在 $400.0 \sim 600.0 \text{ nm}$ 波长范围内的谱线, 测得的 Kr 光谱如图 5 所示。实验共观测到 7 条 Kr 谱线, 根据 (J', l) 耦合和 (L, S) 耦合电偶极跃迁的选择定则^[11], 由 Sugar^[13] 给出的 Kr I、Kr II 的能级值, 按照谱线波长公式 $\lambda = hc/(E_i - E_j)$ 计算出可能的波长值, 与观测值进行比较辨认, 发现其中 436.1 nm 属于 Kr I 的谱线, 剩下 6 条谱线均属于 Kr II 的谱线, 而且除了 545.5 nm 谱线在已收集到的电激励光谱资料中未见报道外, 其余 6 条谱线与电激励的测量结果一致。而 545.5 nm 谱线对应于 Kr II 的 $5d[{}^2D]_{3/2} \rightarrow 5p' [{}^2P]_{3/2}$ 间的跃迁。各谱线的波长、对应的跃迁和相对强度(光子计数率)如表 2 所列。

4.2 氩谱线随气体压强的变化

实验测量了 66660 Pa 、 59994 Pa 、 41329 Pa 、 33330 Pa 、 22664 Pa 、 14665 Pa 、 10666 Pa 、 6666 Pa 、 4666 Pa 9 个不同压强下的谱线强度, 得到的谱线强度随气压的变化曲线, 如图 6 所示。

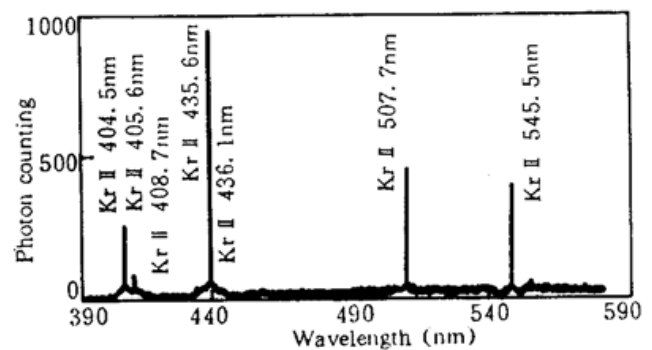


Fig. 5 The spectrum of krypton excited by α -particle ($P_{\text{Kr}} = 14665 \text{ Pa}$)

Table 2. The spectral lines of Kr excited by α -particle

No.	ele-ments	obs. (nm)	relative intensity	configuration transition	term transition	calc. (nm)	ref [14] (nm)
1	Kr II	404.5	267	$4p^4(^1D)5p \rightarrow 4p^4(^1D)5s$	$5p'[^2D]_{3/2} \rightarrow 5s'[^2D]_{3/2}$	404.58	404.467
2	Kr II	405.6	92	$4p^4(^1D)5p \rightarrow 4p^4(^1D)5s$	$5p'[^2D]_{3/2} \rightarrow 5s'[^2D]_{3/2}$	405.815	405.701
3	Kr II	408.7	28	$4p^4(^1D)5p \rightarrow 4p^4(^1D)5s$	$5p'[^2D]_{3/2} \rightarrow 5s'[^2D]_{3/2}$	408.948	408.833
4	Kr II	435.6	949	$4p^4(^3P)5p \rightarrow 4p^4(^3P)5s$	$5p'[^4D]_{3/2} \rightarrow 5s'[^4P]_{3/2}$	435.670	435.547
5	Kr I	436.1*	153	$4p^56P \rightarrow 4p^55s$	$6p[1/2]_1 \rightarrow 5s[3/2]_{3/2}$	436.387 ^{a)}	436.2643
6	Kr II	507.7	459	$4p^4(^3P)6s \rightarrow 4p^4(^3P)5p$	$6s[^2P]_{3/2} \rightarrow 5p[^2S]_{3/2}$	507.731	507.723
7	Kr II	545.5	388	$4p^4(^3P)5d \rightarrow 4p^4(^1D)5p$	$5d[^2D]_{3/2} \rightarrow 5p'[^2P]_{3/2}$	545.548	—

* transition by paschen symbol is $3P_{10} \rightarrow 1S_5$.

a) calculated from ref [9].

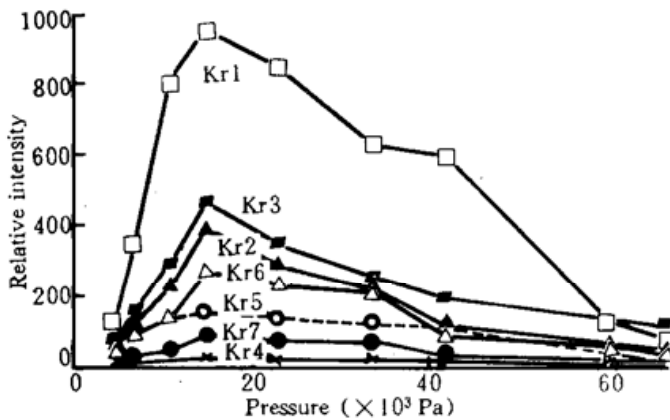


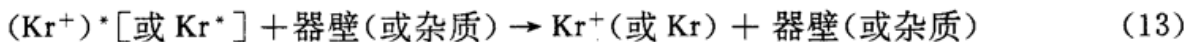
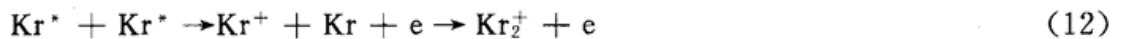
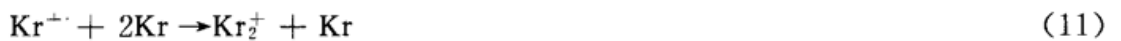
Fig. 6 The variation of intensity with the pressure of Kr

Kr1: 435.6 nm, Kr2: 545.5 nm, Kr3: 507.7 nm, Kr4: 408.7 nm, Kr5: 436.1 nm, Kr6: 404.5 nm, Kr7: 405.6 nm

实验观测到 7 条谱线中, Kr II 就占了 6 条, Kr I 仅有一条, 说明体系的单电离激发过程是其主要过程之一。



从图 6 可知, 谱线强度随气体压强的变化与二能级模型的第二种情形类似。这是由于 α 粒子具有较强的电离能力, 它与氪原子碰撞时, 激发态 $(\text{Kr}^+)^*$ 、 Kr^* 浓度随气体压强增加而增大, 但随着压强的继续升高, 体系中分子离子形成、复合和碰撞淬灭过程加剧而成为主要过程, 引起 Kr^+* 、 Kr^* 浓度下降, 就表现出图 6 的实验现象。



结 论 本文通过对 α 粒子激励下 He、Kr 光谱的测量, 得到 5 条 He I, 1 条 Kr I 和 6 条 Kr II 的光谱线, 首次观测到 8 条氪分子电子振动光谱, 并分析了分子电子谱带产生的原因, 从而得到分子离子的形成和复合离解是 α 粒子激励的较重要的激发过程; 通过不同气体压强下谱线强度的变化讨论了 α 粒子激励下 He、Kr 可能的激发机理, 得到各激发过程在不同气体压强下对体系的贡献不一样, 这对于核激励激光的研制具有重要的指导意义。

参 考 文 献

- [1] 黄 整, 傅依备, 金行星等, α 粒子激励 Ne 光谱测量. 原子分子物理学报, 1990, 7(3): 1496~1506
- [2] 谭明亮, 胡 正, 朱正和等, ^{238}Pu 激励下的 Ne 光谱和 Ne_2^+ 复合离解. 光学学报, 1995, 15(1): 8~13
- [3] 叶安培, 朱正和, 药清泉等, α 粒子激励下氩激发态光谱. 光学学报, 1993, 13(4): 294~298
- [4] G. A. Hebner, G. N. Hays, Fission-fragment excited xenon/rare gas mixtures I. Laser parameters of the 1.73 μm xenon transition. *J. Appl. Phys.*, 1993, 73(18): 3614~3626

- [5] 胡 迅, 朱正和, 谭明亮等, 核碎片激励下 He-Ne-H₂ 激光体系的理论计算. 化学研究与应用, 1994, 6 (2): 33~41
- [6] Y. R. Shaban, G. H. Miley, Search for a visible wavelength nuclear pumped laser. *Proc. U. S. A. -Japan Seminar on Physics of High Power Laser Matter Interaction*. Kyoto, Japan, March, 1992: 9~13
- [7] R. A. Walters, Excitation and ionization of gases by fission-fragment. *PhD. Dissertation*, University of Florida, 1973
- [8] R. J. DeYong, N. W. Jalufka, F. Hohl, Nuclear pumped lasing of ³He-Xe and ³He-Kr. *Appl. Phys. Lett.*, 1981, 39(7): 535~536
- [9] C. E. Moore, Atomic energy levels. Vol. I, *Reprint of NBS Circular 467*, Washington D. C., 1971: 5~6, 170~173
- [10] K. P. Huber, G. Herzberg, *Molecular Spectra and Molecular Structure*. Vol IV, Van Nostrand Reinhold, New York, 1979: 292~298
- [11] 郑乐民, 徐庚武, 原子结构与原子光谱. 北京, 北京大学出版社, 1988: 159~161
- [12] R. Deloche, P. Monchitourt, M. Cheret *et al.*, High-pressure helium afterglow at room temperature. *Phys. Rev. A*, 1976, 13(3): 1140~1176
- [13] J. Sugar, A. Musgrove, Energy levels of krypton, Kr I through Kr XXXVI. *J. Phys. Chem. Ref. Data*, 1991, 20 (5): 875~879
- [14] 光谱线波长表. 北京, 中国工业出版社, 1971: 67~678, 685~689
- [15] S. Bashkin, Jr. J. O. Stoner, *Atomic Energy Levels and Grotrian Diagrams*. Vol. I, North-Holland, Amsterdam, 1975: 8~9
- [16] 何福成, 朱正和, 结构化学. 北京, 高等教育出版社, 1985: 433~434

Spectra of Helium and Krypton by Alpha-Particle Impact Excitation

Jiang Gang Zhu Zhenghe Huang Zheng Tan Mingliang
(*Institute of Atomic and Molecular Physics, Sichuan Union University, Chengdu 610065*)

Chen Hande Hu Yibei

(*Institute of Nuclear Physics and Chemistry, Chinese Academy of Engineering Physics, Chengdu 610003*)

(Received 29 August 1994; revised 31 July 1995)

Abstract The spectra of helium and krypton excited by alpha-particles (~ 5.5 MeV) emitted from ²³⁸Pu have been measured using a home-made single-photon counting system. Thirteen spectral lines of helium between 370.0~720.0 nm are identified, five lines of them belong to He I's spectra, the others are the vibronic spectra of helium molecular; and seven spectral lines of krypton between 400.0~600.0 nm are observed. The spectral intensity varied with gas pressure have been given for He and Kr, respectively. The possible atomic and molecular processes by alpha-particles impaction are discussed.

Key words alpha-particle impaction, helium spectra, krypton spectra.