



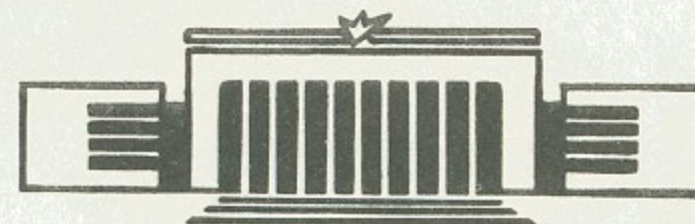
ИНСТИТУТ ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ СО АН СССР

14

С.Г.Воропаев, Б.А.Князев

**РЕГИСТРАЦИЯ АТОМОВ ТИТАНА
ПО РЕЗОНАНСНОЙ ФЛУОРЕСЦЕНЦИИ,
ВОЗБУЖДАЕМОЙ АЗОТНЫМ ЛАЗЕРОМ**

ПРЕПРИНТ 85-17



НОВОСИБИРСК

B.A.Knyazev, S.G.Voropaev

TECHNIQUE FOR DETECTING
OF TITANIUM ATOMS:
RESONANCE FLUORESCENCE EXCITED
BY NITROGEN LASER

ABSTRACT

The wavelength of transverse-excited nitrogen laser lines and of resonance transitions in a titanium atom is studied in detail. It is shown that the resonance fluorescence excited by a high pressure nitrogen laser can be used for absolute measuring of the density of titanium atoms. The experiments on detection of Ti atoms in a vapour cloud have been made. The cloud is created near a titanium plate in vacuum as a result of its evaporation by radiation from a microsecond-pulsed dye laser. The experiments show that the boundary of the expanded cloud is sharp. If the dye laser power is high, the cloud is partially ionized, and quenching of the titanium fluorescence is observed. As one may assume, the quenching is resulted from the collisions between the excited atoms and the electrons.

АННОТАЦИЯ

Детально исследовано совпадение длин волн линий генерации азотного лазера с поперечным разрядом и резонансных переходов в атоме титана. Показано, что резонансная флуоресценция, возбуждаемая азотным лазером высокого давления, может быть использована для абсолютных измерений плотности атомов титана. Выполнены эксперименты по детектированию атомов титана в облаке пара, образованном при облучении в вакууме титановой мишени микросекундным импульсом лазера на красителе. Обнаружено, что расширяющееся облако имеет резкую границу. При больших мощностях испарения, когда облако частично ионизовано, наблюдается тушение флуоресценции. Вероятным механизмом тушения являются переходы на близлежащие уровни при столкновениях возбужденных атомов с электронами.

При малых плотностях возбуждающего потока J_0 n_j пропорциональна заселенности нижнего уровня n_i и интенсивности падающего излучения J_0 , причем $n_j \ll n_i$. При очень больших интенсивностях J_0 наступает насыщение (вероятность индуцированных переходов существенно превышает вероятность спонтанных переходов), и заселенность верхнего уровня n_j , а значит и интенсивность резонансной флуоресценции I_{jk} , уже практически не зависят от интенсивности падающего излучения J_0 .

Если ввести безразмерный параметр насыщения $S = J_0/J_{\text{нас}}$, то для двухуровневой системы

$$J_{\text{нас}} = \frac{g_2}{g_1 + g_2} \cdot \frac{8\pi h}{c^3 \lambda_{ji}^5}, \quad (2)$$

а интенсивность резонансной флуоресценции выражается соотношением

$$I_{ji} = \frac{S}{1+S} n \frac{g_2}{g_1 + g_2} A_{jk}(h\nu_{ji}) V. \quad (3)$$

При $J_0 = J_{\text{нас}}$ интенсивность резонансной флуоресценции составляет половину максимально возможной. Для большего числа уровней при том же значении J_0 интенсивность флуоресценции будет несколько ниже и легко может быть вычислена для каждой конкретной системы переходов.

Атом титана является удобным объектом для наблюдения резонансной флуоресценции. Во-первых, при возбуждении в ближнем ультрафиолете (через кварц или стекло К-8) флуоресценция может наблюдаться на переходах в видимой области спектра, что, с одной стороны, позволяет работать с любой стеклянной оптикой, а с другой, избавиться от проблемы подавления рассеянного излучения лазера. Во-вторых, возможность возбуждения двух подуровней основного состояния позволяет определять их относительную заселенность, а следовательно, и «температуру» пара.

Схема уровней Ti показана на рис. 1 [3]. Два перехода из основного состояния $a^3F_2 \rightarrow \omega^3D_1^0$ ($\lambda_1 = 337,0436$ нм) и $a^3F_4 \rightarrow x^3G_5^0$ ($\lambda_2 = 337,1447$ нм) весьма близки к линиям, генерируемым азотным лазером. По разным данным [4—6] смещение линий Ti от линий генерации N_2 -лазера составляет $(-0,5) - (+0,4)$ пм для λ_1 и $(+1,0) - (+1,8)$ пм для λ_2 . Если ширина линий поглощения титана достаточно велика (при распылении атомов железа, например, доплеровская ширина составляла 3 пм [7]), оба перехода титана будут возбуждаться азотным лазером. Если же температура атомов низка,

то для возбуждения второго перехода лазер должен иметь достаточно широкие линии генерации.

Спектр генерации азотного лазера весьма богат. Наличие тех или иных линий и их интенсивности сильно зависят от конструкции лазера, способа накачки и давления азота, а ширина и смещение линий генерации по спектру сильно зависят от давления. Наиболее подходящим является лазер с поперечным разрядом при давлении, близком к атмосферному, ширина линий которого достигает 3—10 пм [8].

В наших экспериментах использовался лазер [9] с поперечным разрядом при давлении азота 0,1 атм. Длительность импульса генерации лазера по основанию составляла 12 нс, энергия за импульс — 1 мДж. Денситограмма спектра генерации азотного лазера, снятая на спектрографе СТЭ-1, показана на рис. 2. Масштабная шкала спектральной мощности генерации определена стандартным методом фотографической фотометрии. Пунктиром приведена денситограмма спектра искры между титановыми электродами в воздухе. Полуширины линий генерации азотного лазера на денситограмме составляют ~ 4 пм. Эта величина близка к практической разрешающей способности спектрографа СТЭ-1 и поэтому может рассматриваться лишь как верхняя граница истинной полуширины спектра. Действительная ширина линий в принципе может быть меньше почти на порядок. Заметим, однако, что поскольку, как будет показано ниже, параметр насыщения резонансной флуоресценции в экспериментах был порядка 100, то эффективное возбуждение флуоресценции могло осуществляться даже на далеких крыльях линии генерации.

3. ПОСТАНОВКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Схема экспериментальной установки, подробнее описанной в [10], приведена на рис. 3. Излучение импульсного лазера на растворе Родамина 6Ж в изо-пропаноле [11] фокусировалось линзой с фокусным расстоянием 20 см на поверхность титановой мишени, помещенной в вакуумную камеру с остаточным давлением $3 \cdot 10^{-6}$ Тор. Площадь облучаемой поверхности составляла 4 мм². Длительность импульса генерации — 5 мкс по основанию. Энергия падающего излучения могла ослабляться светофильтрами. Плотность мощности излучения на мишени, пространственное распределение которой регистрировалось «фольговым» методом [12], могла достигать 15 МВт/см².

Образующееся облако паров титана свободно расширялось в ва-

куум. Скорость расширения атомов на границе составляла $V_0 = 3 \cdot 10^5$ см/с и линейно спадала к центру облака [10]. Тепловые скорости атомов в точке наблюдения очень малы и в дальнейших оценках не учитываются. При расширении облако пересекало область объема V , в которую фокусировалось излучение азотного лазера, и в которой, следовательно, возбуждалась флуоресценция атомов Ti. Эта область, размеры которой показаны на нижней врезке рис. 3, отображалась оптической системой вниз под углом 90° на входную щель монохроматора. Расстояние от этой области до мишени составляло $l = 19$ мм. Запуск азотного лазера производился в различные моменты времени относительно запуска лазера на красителе. Меняя эту задержку от импульса к импульсу (при неизменной энергии испаряющего излучения), можно было получить временную зависимость сигнала флуоресценции.

Абсолютная калибровка аппаратуры [13] позволяла измерять абсолютное число фотонов, излучаемых из исследуемого объема на данном переходе. Вычисления, выполненные по этим данным, позволяли определить лишь нижнюю границу плотности атомов Ti в данный момент времени в исследуемом объеме. Причины этого ясны, если подробнее рассмотреть геометрию эксперимента.

На верхней врезке рис. 3 представлен вертикальный разрез флуоресцирующего объема в некоторый момент времени. Положение границы облака определяется выражением $R_0 = v_0 t$, а полный доплеровский разброс скоростей в пределах наблюдаемого объема (с учетом дополнительного разброса, вносимого телесным углом системы наблюдения) в нашем случае составляет $2\Delta v_D = 1,2 \cdot 10^5 l / R_0$ см/с. Тогда доплеровское уширение, обусловленное геометрией, составляет $2\Delta\lambda_D = 1,3l / R_0$ пм. Точно так же эффективная доплеровская ширина линии поглощения атомов титана на переходах λ_1 и λ_2 определяется как расходимость излучения азотного лазера, так и потоковыми скоростями атомов титана, и для фронта облака составляет ~ 2 пм.

Отсюда следует, что в наших условиях на переднем фронте облака поглощение излучения азотного лазера практически обеспечено, хотя, как это ясно из сказанного выше, не во всем объеме V , а лишь в тех местах, где доплеровски смещенная линия титана совпадает с линией возбуждения (согласно оценкам, одновременно может возбуждаться $\sim 0,1 V$). В процессе расширения облака указанный доплеровский контур поглощения сужается, и если центр его не совпадает с линией генерации азотного лазера, то в некоторый момент они перестанут пересекаться. Оценка показывает, что в нашем случае это происходит скорее всего не ранее, чем облако расширится вдвое после прихода его границы в точку наблюдения. Еще раз отметим, что

указанные трудности связаны только с узкими линиями генерации нашего лазера и не возникают, если они достаточно широки.

4. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

При возбуждении азотным лазером флуоресценция наблюдалась на всех четырех переходах в видимой области спектра $\lambda_3 = 472,3$ нм, $\lambda_4 = 471,0$ нм, $\lambda_5 = 551,4$ нм, $\lambda_6 = 547,4$ нм (см. рис. 1.). Параметр насыщения флуоресценции определялся экспериментально по наклону графика зависимости обратной интенсивности флуоресценции от обратной интенсивности накачки и всегда лежал в интервале 30—150. Отношение интенсивностей флуоресценции на переходах λ_3 и λ_4 не зависело от времени запуска азотного лазера и примерно соответствовало отношению вероятностей этих переходов.

На рис. 4 приведены осциллограммы, полученные в экспериментах. Интенсивность падающего на мишень излучения лазера на красителе изменялась примерно в 10 раз (см. масштаб вертикальной оси рис. 4а). Время запуска азотного лазера t^* для данной подборки показано стрелкой. Импульсы резонансной флуоресценции I_Φ , регистрируемые при этом на переходе λ_5 , приведены на рис. 4б.

При низких мощностях облучения мишени резонансная флуоресценция не регистрируется (верхняя осциллограмма). При приближении плотности мощности облучения к «оптимальной» [14] начинается интенсивное испарение титана и, как видно из следующих осциллограмм, появляется импульс резонансной флуоресценции. Дальнейшее относительно небольшое увеличение мощности лазера на красителе существенно увеличивает плотность атомов Ti и приводит к появлению ионного тока на ленгмюровский зонд, находившийся на расстоянии 25 мм от мишени. Отметим здесь, что в случае мишени из алюминия ионизация паров наблюдается [10] только при значительном превышении плотности мощности над оптимальной. Поскольку температура испарения титана много выше, чем алюминия, то скорее всего это означает, что появление ионов титана обусловлено термической ионизацией, а не оптическим пробоем. При дальнейшем увеличении мощности облучения нельзя исключать эффекты, связанные с поглощением этого излучения самим паром. На это, в частности, может указывать сложный характер ионного тока на ленгмюровский зонд на четвертой осциллограмме. Обсуждение этих вопросов, однако, выходит за рамки настоящей работы.

При сильном насыщении интенсивность флуоресценции на каскадном переходе $j \rightarrow k$ может быть найдена из соотношения (1), где

n_k — предельная заселенность k -того уровня при $S \rightarrow \infty$. В нашем случае $I_\phi = 0,012 (nV')$ фот/нс для $\lambda_5 = 551,4$ нм и $I_\phi = 0,0014 (nV')$ фот/нс для $\lambda_6 = 547,4$ нм, где V' — реальный флуоресцирующий объем, меньший V (см. раздел 3). Здесь и во всех дальнейших расчетах использовались данные о вероятностях переходов из [15] (приведены на рис. 1), скорректированные по работе [16]. Например, $gA_{ki}(\lambda_1) = 2,1 \cdot 10^8 \text{ с}^{-1}$, $gA_{ki}(\lambda_2) = 8,1 \cdot 10^8 \text{ с}^{-1}$.

Зная форму импульса азотного лазера, можно, используя простую модель (возбуждается переход $1 \rightarrow 2$, а с уровня 2 происходит спонтанное излучение на уровень 1 и метастабильный уровень 3), численно определить полное число фотонов, испущенное системой за импульс на переходе $2 \rightarrow 3$. Используя такую методику расчетов, из экспериментальных данных определялось число атомов Ti в состоянии a^3F_2 , находящихся в пределах контура линии возбуждения азотного лазера. Эта величина лежала в пределах $2 \cdot 10^8 - 5 \cdot 10^{13}$ атомов в флуоресцирующем объеме.

В экспериментах была обнаружена зависимость времени жизни флуоресценции от энергии испаряющего излучения. При умеренной мощности этого излучения, а, следовательно, и при небольших плотностях титанового облака, спад флуоресценции экспоненциальный с постоянной времени (12 ± 2) нс (осциллограммы 2 и 3 рис. 4б). Эта величина хорошо согласуется с временем жизни состояния $\omega^3D_1^0$, которое с учетом коррекции (см. ниже) можно положить равным 9 нс, и постоянной времени ФЭУ-87 с осциллографом С8-12, равной 4 нс. При увеличении мощности излучения лазера на красителе наблюдается уменьшение времени спада флуоресценции. Это уменьшение начинает наблюдаться одновременно с появлением сигнала на зонде Ленгмюра. С ростом ионного тока на зонд время спада приближается к постоянной времени измерительной аппаратуры (рис. 4б). Вероятнее всего тушение флуоресценции связано с девозбуждением уровня $\omega^3D_1^0$, на многочисленные соседние уровни ($\Delta E \sim 0,01 - 0,03$ эВ) в столкновениях с электронами, плотность которых могла достигать 10^{14} см^{-3} [10]. Нетрудно оценить, что для указанных значений ΔE сечение поляризационного взаимодействия атома Ti с электроном имеет порядок 10^{-13} см^2 , что обеспечивает время тушения уровня $\tau_T \sim n_e \sigma v_e$ — порядка нескольких наносекунд. Указанное значение сечения является довольно обычным для подобных процессов (см., например, [17, с.22] и экспериментальные данные [18]). Интенсивность флуоресценции Ti на переходе $\omega^3D_1^0 \rightarrow b^3F_2$ в зависимости от времени запуска t^* азотного лазера при малой мощности испарения, когда ток на зонд отсутствует, показана на рис. 5. Из этих данных нетрудно вычислить число флуоресцирующих атомов в каждый мо-

мент времени. Чтобы грубо оценить плотность атомов титана в объеме V число nV' делилось на полную величину возбуждаемого объема V и умножалось на 10 (для учета доплеровского контура (см. выше). При таком подсчете для оценки плотности атомов в состоянии a^3F_2 отсчет по шкале ординат нужно умножить на $7 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-3}$. Для вычисления полного числа атомов, первоначально находившихся в соответствии с их статвесами на всех трех подуровнях основного состояния указанное число нужно умножить еще на 4,2. Отсюда найдем, что при данной мощности испарения в максимуме кривой рис. 5 плотность имеет порядок величины 10^{13} см^{-3} . Истинное значение плотности может отличаться от вычисленного не более, чем в несколько раз.

Используя представление об автомодельности разлета газового облака в пустоту [19], по рис. 5 можно восстановить профиль плотности атомов в облаке по радиусу. Результаты этой операции показаны на рис. 6. В соответствии со сказанным ранее, при больших значениях r/R_0 (r — радиус вектор начинающийся в точке испарения), вблизи края облака профиль плотности, вероятно, передается достаточно точно. Из приведенного профиля (рис. 6) видно, что облако пара, созданное при лазерном испарении мишени, имеет весьма резкий спад плотности на границе с вакуумом. Этот факт может представлять интерес для приложений.

5. ВЫВОДЫ

Таким образом в настоящей работе экспериментально показана возможность регистрации с высоким временным разрешением плотности атомов титана на двух подуровнях основного состояния по резонансной флуоресценции, возбуждаемой азотным лазером. Исследована резонансная флуоресценция атомов титана в облаке паров, созданных излучением мощного лазера на красителе. Показано что плотность атомов Ti очень резко спадает на границе облака с вакуумом. Авторы благодарят В.Д. Ищенко за консультации при изготовлении азотного лазера и С.В. Лебедева за полезные обсуждения.

ЛИТЕРАТУРА

1. Зайдель А.Н. Атомно-флуоресцентный анализ. Физические основы метода. -М.:Наука, 1980.
2. Rohr H., Steuer K.-H., Wrobel W.-G. Resonanz- und fast resonante Reyleighstreuung an Titanatomen. -Verhandlg. DRG, 1977, v.12, №.2, p.591—592.
3. Bashkin S., Stoner J.O. Atomic energy-level and Grotrian diagrams, v.2.

-Amst.-Oxf.-N.-Y.:North-holl. Publ. Comp.,1978.

4. Справочник по лазерам, т.1, под ред. А.М. Прохорова -М.:Сов. радио, 1978.
5. Parks J.H., Rao D.R., Javan A. A high-resolution study of the $C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g(0,0)$ stimulated transitions in N_2 . -Appl. Phys. Lett., 1968, v.13, №.4, p.142—144.
6. Beck R., Englisch W., Gurs K. Table of laser lines in gases and vapors. -Berlin-Heidelb. -N.-Y.:Springer-Verlag, 1978.
7. Bogen P., Hinz E. The application of fluorescence spectroscopy to the study of plasma-wall interaction in magnetic-confinement devices. -Comments Plasma Phys. Contr. Fusion, 1978, v.4, №.4, p.115—130.
8. Bergmann H.M., Hasson V. Gain, fluorescence and energy extraction characteristics of photostabilised atmospheric pressure uv nitrogen lasers. -J. Phys. D: Appl. Phys., 1978, v.11, №.10, p.2341—2351.
9. Ищенко В.Н., Лисицын В.Н., Старинский В.Н. Импульсный ультрафиолетовый лазер на азоте. -Опт.-мех. промышл., 1974, в.3, с.32—34.
10. Князев Б.А., Лебедев С.В., Меклер К.И. Лазерное испарение с последующей фотоионизацией—способ получения облака плазмы с заданным составом элементов. Препринт Института ядерной физики СО АН СССР 84-99, Новосибирск, 1984.
11. Князев Б.А., Лебедев С.В., Фокин Е.П. Мощный лазер на роданине 6Ж с повышенным ресурсом работы. -Квантовая электроника, 1983, т.10, в.2, с.276—282.
12. Князев Б.А., Лебедев С.В. Фольговый метод оперативного контроля пространственного распределения плотности энергии излучения импульсного лазера. -ПТЭ, 1982, в.2, с.169—171.
13. Князев Б.А., Воропаев С.Г. Абсолютная калибровка при регистрации рассеяния света и резонансной флуоресценции. -ПТЭ, 1983, в.5, с.179—181.
14. Анисимов С.И., Имас Я.А., Романов Г.С., Ходыко Ю.В. Действие излучения большой мощности на металлы, М.:Наука, 1970.
15. Корлисс Ч., Бозман У. Вероятности переходов и силы осцилляторов 70 элементов. -М.:Мир, 1968.
16. Smith P.L., Kuhne M. Oscillator strengths of neutral titanium from hook method measurements in a furnace. I. Lines from the a F levels at 0, 0.21, 0.048 eV. - Proc. Roy. Soc. A. 1978, v.362, №.2, p.263—279.
17. Биберман Л.М., Воробьев В.С., Якубов И.Т. Кинетика неравновесной низкотемпературной плазмы. -М.:Наука, 1982.
18. Priigent P., Dubreil B., Gosset G. Quenching and excitation transfer induced by electron collisions in the $n=3$ sublevels of He in a plasma.- 17-th European Sect. Conf. on Atomic and Molec. Physics of Ionized Gases, Aug., 1984, Bari, Italy. - Europphysics conference abstracts, V.8E, p.71.
19. Зельдович Я.Б., Райзер Ю.П. Физика ударных волн и высокотемпературных гидродинамических явлений. -М.:ГИФМЛ, 1963.

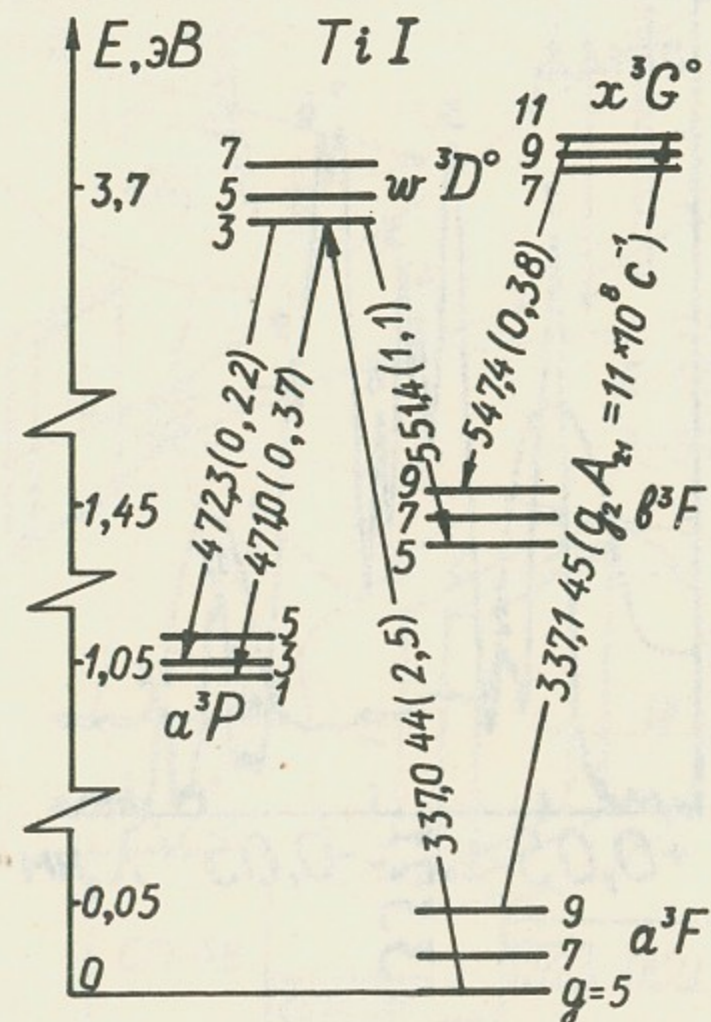


Рис. 1. Схема уровней Ti I.

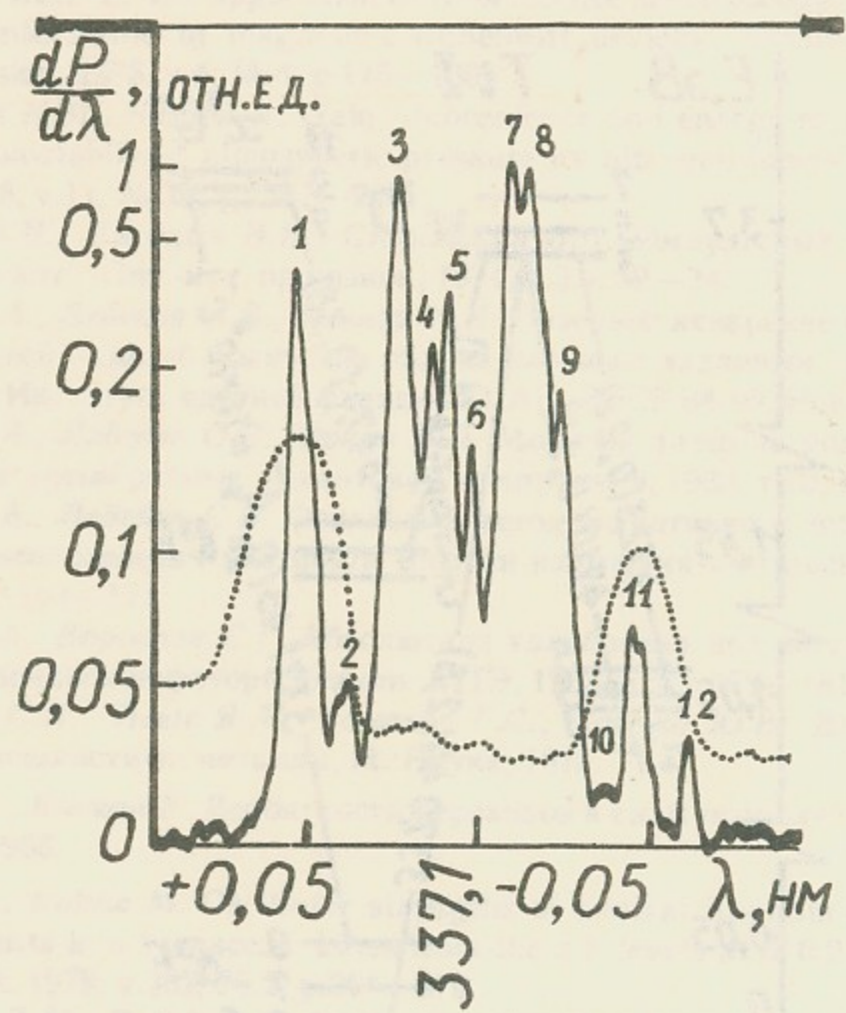


Рис. 2. Денситограмма спектра генерации азотного лазера и спектра искры между титановыми электродами в воздухе (пунктир).

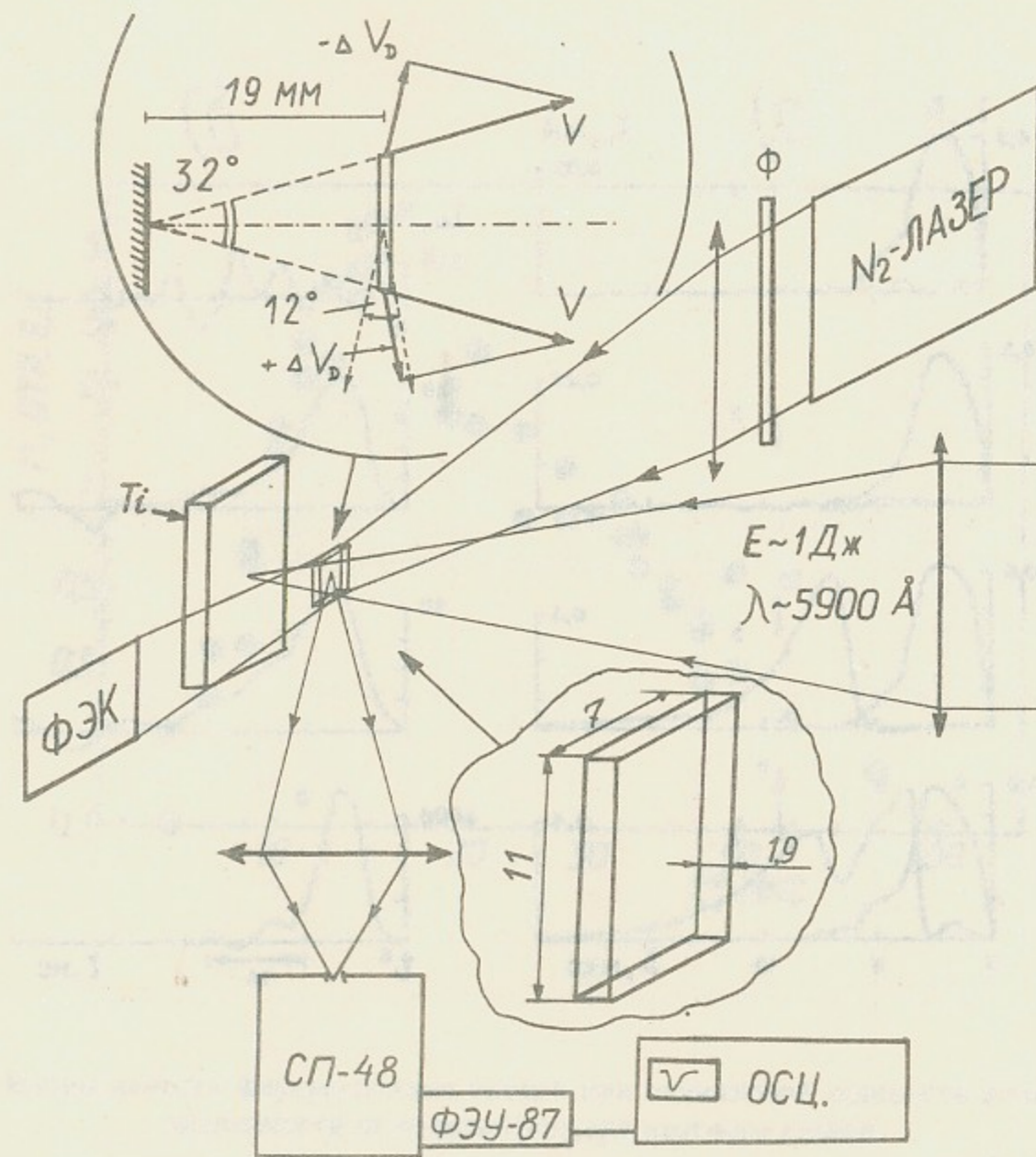


Рис. 3. Схема экспериментальной установки.

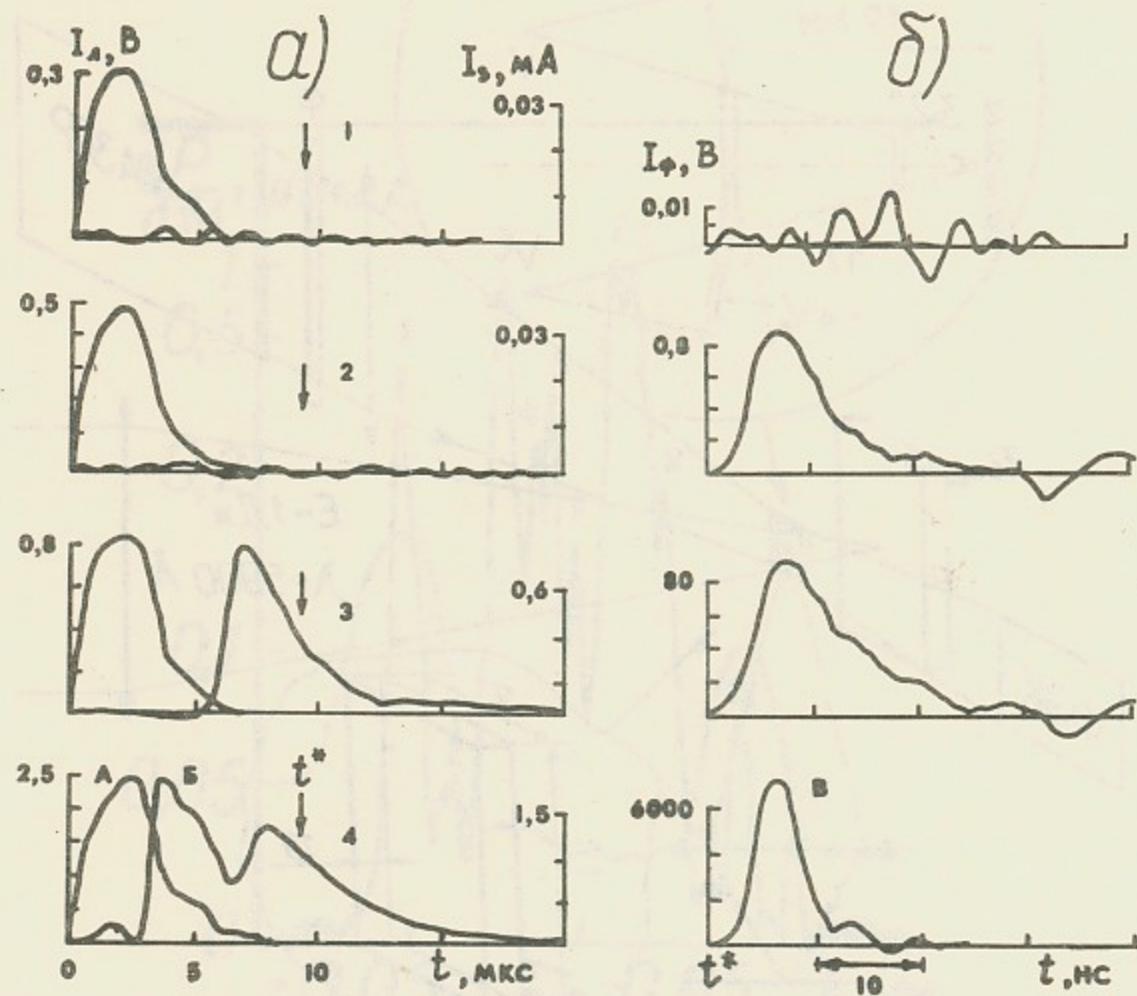


Рис. 4 а). Осциллограммы импульса лазера на красителе (А) и ионного тока насыщения на ленгмюровский зонд (Б) при разных мощностях испарения. б) импульсы возбуждаемой азотным лазером флуоресценции атомов Тi на длине волны 551,4 нм, регистрируемые в момент времени, указанный на осциллограммах слева стрелкой.

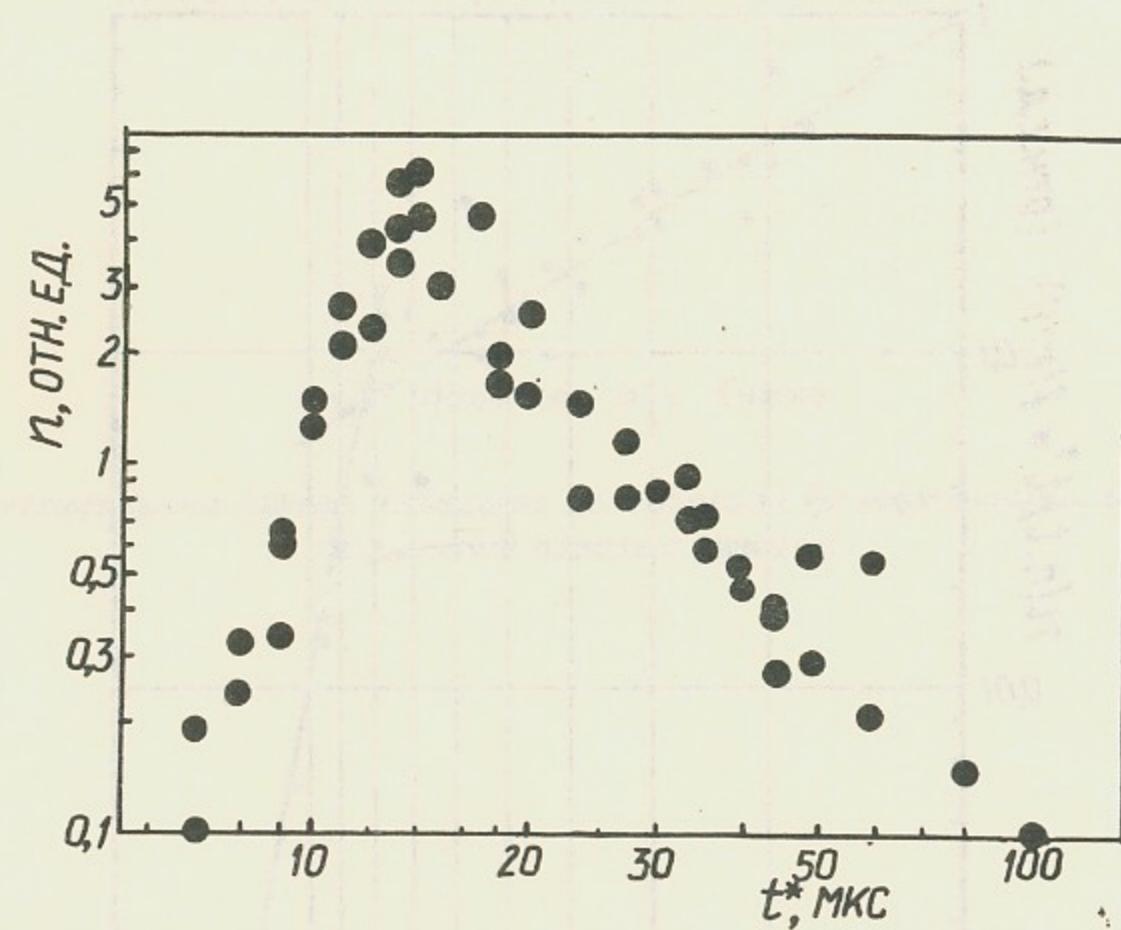


Рис. 5. Интенсивность флуоресценции титана при одинаковой мощности испарения в зависимости от времени запуска азотного лазера.

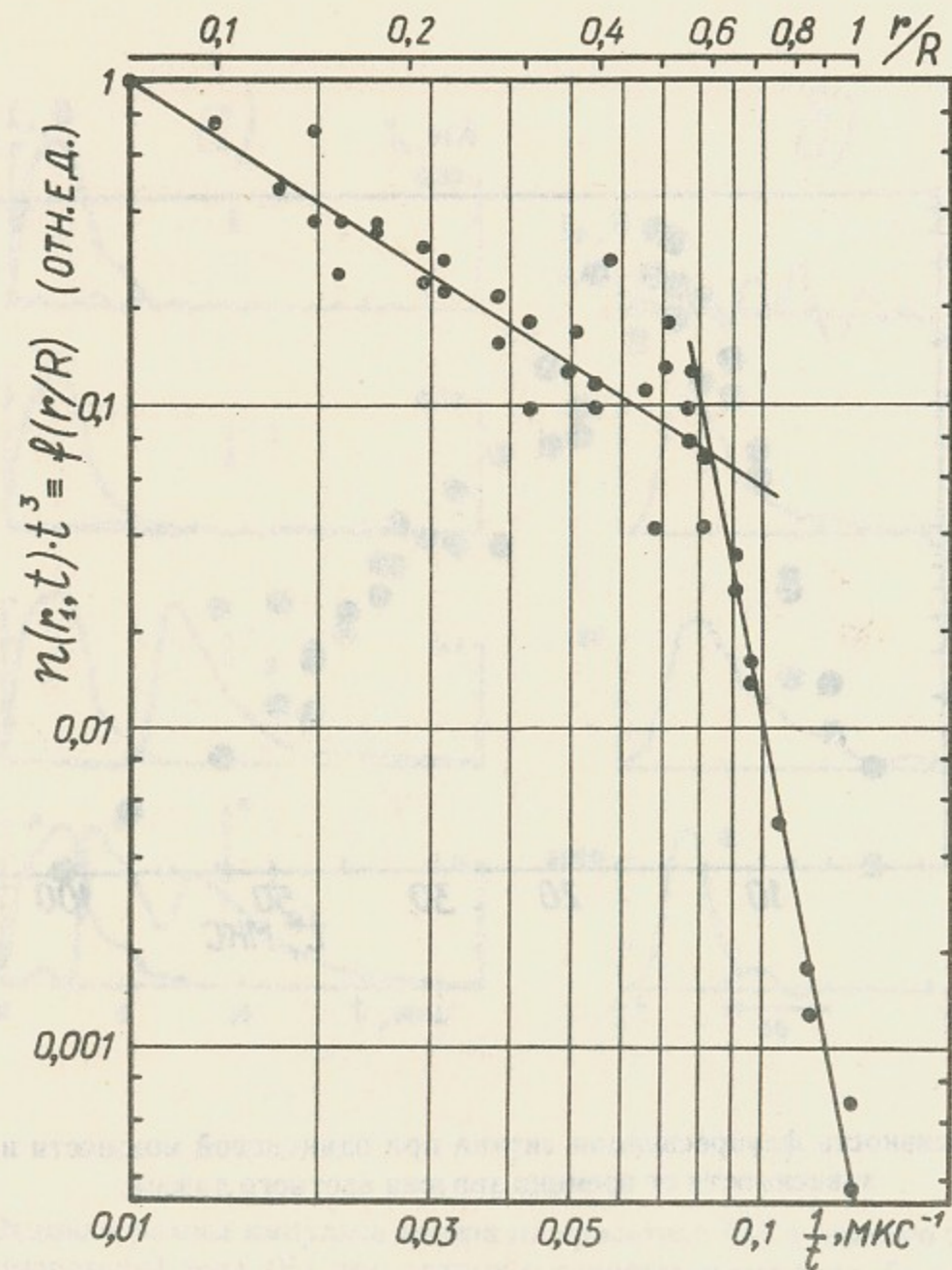


Рис. 6. Расчитанный по данным рис. 5 профиль плотности атомов Тi в расширяющемся облаке (см. пояснения в тексте).

С.Г. Воропаев, Б.А. Князев

Регистрация атомов титана по резонансной флуоресценции, возбуждаемой азотным лазером.

Ответственный за выпуск С.Г. Попов

Подписано в печать 8 февраля 1985 г. МН 06530
 Формат бумаги 60×90 1/16 Объем 1,1 печ.л., 0,9 уч.-изд.л.
 Тираж 290 экз. Бесплатно. Заказ № 17

Набрано в автоматизированной системе на базе фотонаборного автомата ФА1000 и ЭВМ «Электроника» и отпечатано на ротапринтере Института ядерной физики СО АН СССР,
 Новосибирск, 630090, пр. академика Лаврентьева, 11.