

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ВРЕМЕН ЖИЗНИ ВОЗБУЖДЕННЫХ СОСТОЯНИЙ АТОМОВ И ИОНОВ ТАЛЛИЯ

Л. Л. Шимон и Н. М. Эрдеви

Разработана методика времен жизни возбужденных состояний атомов методом задержанных совпадений с применением пересекающихся электронного и атомного пучков. Измерены радиационные времена жизни для 26 переходов атомов и ионов таллия. Полученные значения времен жизни находятся в пределах 3.9–130 нс.

Наиболее надежные данные о временах жизни возбужденных состояний атомов получены методом задержанных совпадений. Он является прямым методом измерения  $\tau$  и основан на наблюдении различными способами опустошения во времени заселенных уровней [1–3]. Этот метод до настоящего времени применялся для определения  $\tau$  атомов газов, а также тех металлов, парами которых легко заполнять объем экспериментальной установки при низких температурах (ртуть, кадмий, цинк) [4–6]. Однако в последнее время для решения ряда прикладных задач все большее применение находят пары различных металлов. В связи с этим представляет интерес расширить метод задержанных совпадений определения  $\tau$  и для атомов металлов с низкой упругостью паров. При изучении возбуждения атомов таких металлов наиболее трудной задачей является способ их транспортировки в источник возбуждения. Для решения этой задачи мы избрали способ атомного пучка, успешно применявшийся при изучении эффективных сечений возбуждения атомов элементов третьей группы (включая алюминий) [7–10].

Для освоения методики измерений объектом исследования мы избрали таллий, так как для его резонансного  $7^2S_{1/2}$ -уровня имеются данные о временах жизни, полученные различными методами [11, 12]. В то же время для других состояний атомов и ионов таллия времена жизни исследованы недостаточно полно.

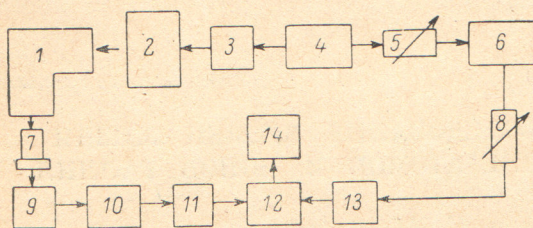
## Методика и условия эксперимента

Атомный пучок формировался с помощью канала эффузионного источника атомов, системы холодных диафрагм и пересекался под прямым углом электронным пучком. Источником электронного пучка служила электронная пушка, катодно-сеточные элементы которой взяты из отечественных металло-керамических СВЧ ламп. Созданная нами электронная пушка позволяла модулировать электронный пучок с высокой частотой при хороших временных параметрах импульса электронного тока. Блок-схема экспериментальной установки приведена на рис. 1.

Возбуждение атомов осуществлялось короткими импульсами электронного тока, при модуляции электронного пучка импульсами напряжения генератора Г5-44 4, предварительно усиленными по амплитуде до 40 В. Усилитель импульсов напряжения 3 построен нами на лампе со вторичной электронной эмиссией 6В2П. Радиационное излучение регистрировалось фотоэлектронными умножителями ФЭУ-77, ФЭУ-79 и ФЭУ-106, работавшими в режиме счета отдельных фотоэлектронов. Однофотоэлектронный

импульс ФЭУ-79, усиленный на 42 дБ приведен на осциллограмме рис. 2, а. Спектральные линии таллия выделялись с помощью монохроматора МДР-2. Импульсы ФЭУ усиливались усилителями 9 и 10, дискриминировались аттенуатором усилителя УЗ-4 10 и формировались формирователем-ограничителем 11 по амплитуде и по длительности до 5 нс (рис. 2, б).

Рис. 1. Блок-схема эксперимента.



1 — монохроматор, 2 — металлическая вакуумная камера с источниками электронного и атомного пучков, 3 — усилитель амплитуды импульса напряжения, 4, 6 — генераторы наносекундных импульсов напряжения Г5-44, 5 — дискретная переменная линия задержки (0-400 нс), 7 — ФЭУ, 8 — плавная переменная линия задержки (0-100 нс), 9 — широкополосный предварительный усилитель [13], 10 — широкополосный усилитель УЗ-4, 11, 13 — формирователи — ограничители импульсов [14], 12 — схема совпадений [14], 14 — регистрирующий прибор ЧЗ-33.

После формирования импульсы подавались на Вх. I схемы совпадений 12. На Вх. II подавался опорный импульс напряжения от генератора Г5-44 6, который запускался синхроимпульсом генератора Г5-44 4. Такая схема позволяла плавно и в широких пределах с помощью линий задержки 5 и 8 задерживать опорный импульс относительно модулирующего импульса

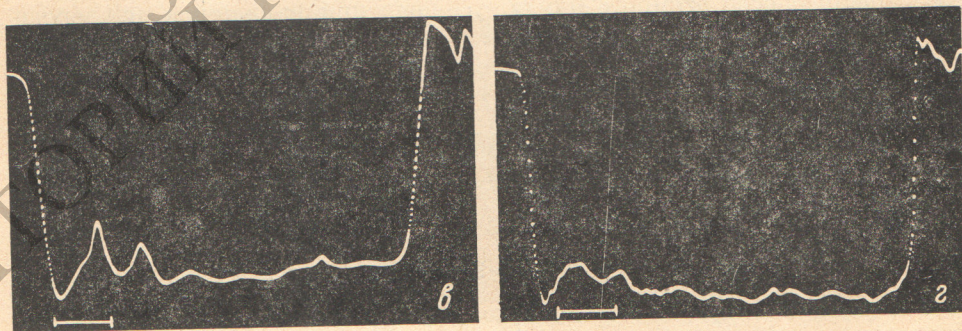


Рис. 2. Осциллограммы импульсов.

а — однофотозлектронный импульс ФЭУ-79 после усиления на 42 дБ (масштаб 0.2 В/см, 10 нс/см); б — однофотозлектронный импульс ФЭУ-79 после усиления и формирования (масштаб 0.5 В/см, 10 нс/см); в — импульс напряжения генератора Г5-44 (масштаб 2 В/см, 10 нс/см), г — импульс возбуждающего электронного тока (масштаб 1 В/см, 10 нс/см).

напряжения, а следовательно, и относительно возбуждающего импульса тока. Импульсы совпадений, предварительно расширенные до 60 нс, регистрировались прибором ЧЗ-33 14. Каждая экспериментальная точка, соответствующая определенному времени задержки ( $t_d$ ), измерялась не менее чем три раза при времени экспозиции от 10 до 100 с в зависимости от интенсивности спектральной линии.

Наиболее трудной задачей в методе задержанных совпадений является получение коротких импульсов возбуждающего электронного тока с кру-

тым срезом ( $t_c \sim 1$  нс). Впервые серьезное внимание решению этого вопроса было уделено в работе [15], где получен импульс электронного тока с  $t_c$ , равным 2 нс. В наших опытах импульс возбуждающего тока электронов воспроизводит временные характеристики импульса напряжения генератора Г5-44, у которого  $t_c \leq 1$  нс (рис. 2, в, г). Осциллограммы рис. 2, а, б получены с помощью осциллографа С1-31 (полоса пропускания 100 МГц), а осциллограммы рис. 2, в, г — с помощью широкополосного стробоскопического осциллографа С7-5 (полоса пропускания в ГГц).

Измерения  $\tau$  проводились в условиях однократности столкновений электронов с атомами. Давление паров таллия в эффузионной камере составляло около  $10^{-2}$  тор, а давление остаточных газов в камере не превышало  $2 \cdot 10^{-6}$  тор. Плотность тока электронов в импульсе составляла  $5 \div 25$  ма/см<sup>2</sup>. Частота следования возбуждающих импульсов устанавливалась в пределах 100 КГц  $\div$  3 МГц при их длительности 20  $\div$  50 нс и срезе импульса тока  $\sim 1$  нс. Энергия возбуждающих электронов выбиралась в интервале 20  $\div$  100 эВ. Разрешающее время схемы совпадений устанавливалось в пределах 1  $\div$  3 нс.

Приборная погрешность эксперимента определяется точностью калибровки переменной линии задержки. Поскольку точность калибровки плавной переменной линии задержки 8 0.01 нс, а дискретной переменной линии задержки 6 — 0.1 нс, то приборная погрешность эксперимента не превышала 0.5%.

Изменение плотности тока, энергии возбуждающих электронов в указанных выше пределах, а также концентрации атомов в широких пределах не влияли на измеряемую величину  $\tau$ . Кроме того, геометрия пересечения электронного и атомного пучков, а также наблюдаемого объема возбуждения таковы, что возможность искажения измеряемой величины  $\tau$  эффектами ухода возбужденных атомов из наблюдаемого объема и растяжения заднего фронта светового импульса за счет движения возбуждающих электронов полностью устранена.

### Результаты измерений и их обсуждение

Нами определены методом задержанных совпадений радиационные времена двадцати шести переходов в атомах и ионах таллия, причем для тринадцати из этого числа радиационные времена ранее не определялись.

Для отработки методики нами прежде всего были измерены радиационные времена резонансных переходов  $6^2P_{3/2}^0 - 7^2S_{1/2}$  ( $\lambda = 5350 \text{ \AA}$ ) и  $6^2P_{1/2}^0 - 7^2S_{1/2}$  ( $\lambda = 3776 \text{ \AA}$ ) Тl I. Значения их оказались равными  $7.4 \pm 0.5$  нс. Эта величина и есть собственно время жизни  $7^2S_{1/2}$  уровня Тl I, поскольку он является резонансным [16]. Измеренная нами величина  $\tau$  хорошо согласуется с данными, полученными другими авторами шестью различными методами. Результаты измерений  $\tau$  резонансного  $7^2S_{1/2}$  уровня Тl I, собранные в работе [11] и дополненные результатом из работы [12], представлены в табл. 1.

Таблица 1

Метод и год определения	$\tau$ , нс	Литературный источник	
Сдвиг фаз (1962)	$8.5 \pm 0.3$	} [11]	
Крюки (1968)	$8.2 \pm 0.6$		
Пересечение уровней (1964)	$7.6 \pm 0.2$		
Двойной резонанс (1964)	$7.4 \pm 0.3$		
Поглощение (1965)	$8.1 \pm 0.8$		
Сдвиг фаз (1967)	$7.6 \pm 0.2$		
Пересечение уровней (1968)	$7.4 \pm 0.4$		
Пересечение уровней (1971)	$7.4 \pm 0.2$		
Пучок-фольга (1972)	$7.7 \pm 0.5$		[12]
Поглощение и крюки (1973)	$7.4 \pm 0.4$		[11]
Задержанные совпадения (1975)	$7.4 \pm 0.5$	Наш результат	

На рис. 3, а и б приведены кривые задержанных совпадений, характеризующие опустошение во времени (по переходам в расщепленное основное  $6^2P_{3/2, 1/2}$ -состояние) заселенности резонансного  $7^2S_{1/2}$ -состояния ТI I. Из-за недостаточной для эффективного возбуждения атомов плотности электронного тока при энергии электронов вблизи порога возбуждения соответствующих спектральных линий исследование  $\tau$   $7^2S_{1/2}$ -уровня ТI I проводилось при энергии возбуждающих электронов  $E_e$ , равной  $25 \div 30$  эВ. Однако в этом случае исходный уровень, кроме прямого электронного возбуждения, заселяется еще и каскадными переходами. Это наглядно

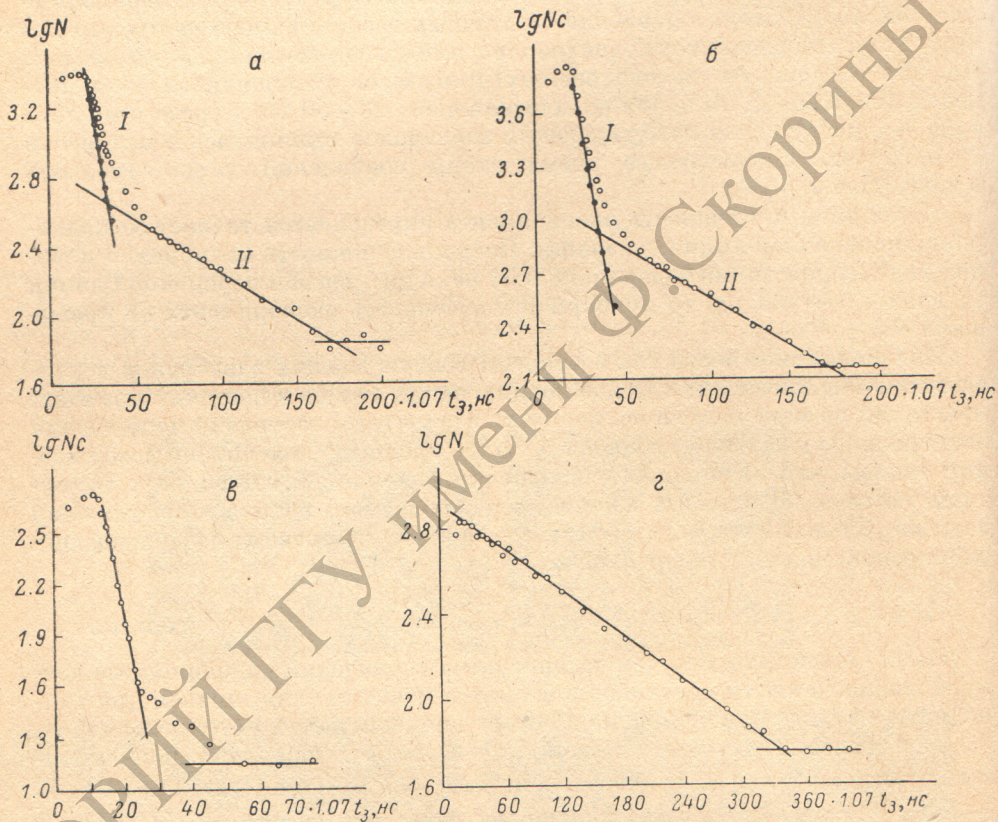


Рис. 3. Кривые задержанных совпадений.

а — для уровня  $7^2S_{1/2}$  ТI I ( $\lambda = 5350 \text{ \AA}$ ); б — для уровня  $7^2S_{1/2}$  ТI I ( $\lambda = 3776 \text{ \AA}$ ); в — для уровня  $7^1S_0$  ТI II ( $\lambda = 3092 \text{ \AA}$ ); г — для уровня  $6p4^0$  ТI II ( $\lambda = 4947 \text{ \AA}$ ).

иллюстрируют рис. 3, а и б, где участок I, соответствующий опустошению во времени  $7^2S_{1/2}$ -уровня, искажен каскадным заселением из вышележащих  $n^2P_{3/2, 1/2}$ -уровней, а участок II соответствует опустошению указанных  $n^2P_{3/2, 1/2}$ -уровней ТI I. Для учета каскадного заселения исследуемых уровней использовался графический метод обработки экспериментальных кривых [6]: черные точки на рис. 3, а и б соответствуют участку I после его обработки. На рис. 3, в и г для примера приведены характерные кривые задержанных совпадений для уровней с наиболее различающимися значениями  $\tau$ . В табл. 2 представлены результаты наших измерений, там же для сравнения приведены данные, известные в литературе. Указанные в табл. 2 ошибки измерений определялись из статистического разброса точек на кривых задержанных совпадений.

Как видно из табл. 2, результаты наших измерений хорошо согласуются с уже известными данными, полученными ранее для некоторых переходов. Отметим, однако, несколько завышенное значение  $\tau$  для  $8^2S_{1/2}$ -уровня,

Таблица 2

Переход	$\lambda, \text{Å}$	$\tau, \text{нс}$			
		наши результаты	метод пучок-фольга [12]	метод пересечения уровней	метод сдвига Фаз [11]
Тl I					
$6^2P_{1/2}^0 - 8^2S_{1/2}$	2580	$20 \pm 3$	$23 \pm 4$		
$6^2P_{3/2} - 8^2S_{1/2}$	3229	$20 \pm 3$	$23 \pm 4$		
$6^2P_{3/2} - 9^2S_{1/2}$	2826	$43 \pm 4$			
$6^2P_{3/2} - 10^2S_{1/2}$	2666	$31 \pm 3$			
$7^2S_{1/2} - 9^2P_{3/2}$	5520	$16.4 \mp 1.5$			
$6^2P_{1/2}^0 - 6^2D_{3/2}$	2768	$6.9 \pm 0.5$	$6.8 \pm 0.5$	$6.2 \pm 1$ [18] $5.2 \pm 0.8$ [19]	$6.9 \pm 0.6$
$6^2P_{3/2}^0 - 6^2D_{3/2}$	3529	$6.9 \pm 0.5$			
$6^2P_{3/2} - 6^2D_{3/2}$	3519	$7.2 \pm 0.6$	$7.6 \pm 0.5$		
$6^2P_{1/2}^0 - 7^2D_{3/2}$	2380	$16.0 \pm 1.3$	$16 \pm 4$		
$6^2P_{3/2}^0 - 7^2D_{3/2}$	2918	$19.8 \pm 1.5$	$19 \pm 4$		
$6^2P_{1/2}^0 - 8^2D_{3/2}$	2238	$34 \pm 3$			
$6^2P_{3/2}^0 - 8^2D_{3/2}$	2711	$34 \pm 3$			
$6^2P_{3/2}^0 - 8^2D_{5/2}$	2709	$44.0 \pm 4$	$50 \pm 10$		
$6^2P_{3/2}^0 - 9^2D_{3/2, 5/2}$	2609/10	$75 \pm 7$			
Тl II					
$6^1P_1 - 7^1S_0$	3092	$3.9 \pm 0.3$	$4.6 \pm 0.5$		
$6^1P_1 - 6^1D_2$	2532	$7.0 \pm 1$	$5.0 \pm 1$		
$6^1D_2 - 5^1F_3$	4739	$6.7 \pm 1$	$6.8 \pm 0.8$		
$6^1D_2 - 6^1F_3$	3186	$12.7 \pm 1$			
$6^3P_2 - 7^3S_1$	2299	$18 \pm 1.5$			
$7^3S_1 - 7^3P_1$	5950	$13.9 \pm 1$			
$6^3D_3 - 5^3F_{4, 2}$	5153/7	$12.1 \pm 1$			
$7^3S_1 - 6p4^0$	4947	$130 \pm 10$			
$8^3S_1 - 6p7^0$	4178	$4.75 \pm 0.5$			
Тl III					
$6 D_{5/2} - 5^2F_{5/2}$	3457	$5.5 \pm 0.5$			

полученное методом пучок-фольга [12]. Как известно [20], в этом методе затруднен учет каскадного заселения исследуемого уровня (каскадное заселение приводит к увеличению измеряемой величины  $\tau$ ). В наших же экспериментах установлено значительное заселение уровней резкой серии каскадными переходами:  $\sim 19\%$  для  $7^2S_{1/2}$ ,  $\sim 60\%$  для  $8^2S_{1/2}$  и  $\sim 40\%$  для  $9^2S_{1/2}$ -уровней (при энергии возбуждающих электронов  $20-40$  эВ). Такой же вклад каскадных переходов в заселение указанных состояний получен и при исследовании абсолютных сечений возбуждения атомов таллия электронным ударом, выполненных ранее одним из авторов [7]. Установлено также значительное заселение каскадными переходами  $6^2D_{5/2}$ -уровня Тl I — около  $22\%$  при энергии возбуждающих электронов равной  $20$  эВ. Для остальных членов диффузной серии не наблюдается заметное каскадное заселение исходных уровней.

Для уровней  $7^2S_{1/2}$ ,  $8^2S_{1/2}$ ,  $6^2D_{5/2}$  и  $8^2D_{5/2}$  Тl I  $\tau$  измерялись по двум переходам в основное  $6^2P_{1/2}^0$  и метастабильное  $6^2P_{3/2}^0$ -состояния и значения их оказались одинаковыми. Это лишний раз свидетельствует о том, что влияние самопоглощения на измеряемую в нашем эксперименте величину сведено к минимуму.<sup>1</sup>

<sup>1</sup> При температуре эффузионной камеры  $600^\circ\text{C}$  концентрации атомов в основных  $6^2P_{1/2}^0$ - и  $6^2P_{3/2}^0$ -состояниях отличаются на 6 порядков.

Полученные результаты дают возможность проследить за поведением  $\tau$  внутри резкой и диффузной серий. Для диффузной серии отчетливо проявляется тенденция монотонного возрастания  $\tau$  с ростом главного квантового числа  $n$ . Такую же тенденцию к монотонному уменьшению с ростом  $n$  проявляют значения чисел  $f$ , полученные экспериментально методом кривых Рождественского [21] и теоретически в одноконфигурационном приближении методом полуэмпирического приближения Дирака [22]. Следует также отметить, что и сечения возбуждения  $Q$  спектральных линий, отвечающих переходам из  $n^2D_{3/2, 5/2}$ -уровней ТI I, монотонно уменьшаются с ростом  $n$  [7].

Для резкой серии в отличие от диффузной наблюдается нарушение монотонности возрастания  $\tau$  по мере перехода к более высоким членам серии. Для  $10^2 S_{1/2}$ -уровня величина  $\tau$  в 1.4 раза меньше времени жизни предыдущего  $9^2 S_{1/2}$ -уровня ТI I. Такая же аномалия поведения  $f$  внутри резкой серии наблюдалась в работах [21, 23]. Правда, авторы работы [21] наблюдали аномалию только  $6^2 P_{1/2}^0 - 10^2 S_{1/2}$ -перехода, в то время как при исследовании абсолютных сечений возбуждения спектральных линий таллия [7] обнаружено аномальное поведение величины  $Q$  и для  $6^2 P_{3/2}^0 - 10^2 S_{1/2}$ -перехода ТI I. В работе [22] отмечается, что именно для терма  $10^2 S_{1/2}$  величина квантового дефекта выпадает из линейной зависимости от  $n$ . Это указывает на то, что для этого терма имеет место возмущение, вызванное конфигурационным взаимодействием и проявляющееся как на величинах  $\tau$ ,  $f$  и  $Q$ , так и на экспериментальном значении энергии уровня. В экспериментальной работе [24] аномально большое значение  $Q$   $6s^2 10s^2 S_{1/2}$ -уровня ТI I однозначно объясняется смешиванием его со смещенным  $6ssp^2 4P_{1/2}$ -уровнем ТI I. Сильное заселение  $10^2 S_{1/2}$ -уровня обусловлено относительно большим сечением возбуждения  $6^4 P_{1/2}$ -уровня.

Из полученных результатов по временам жизни возбужденных состояний ионов таллия можно заключить, что значения  $\tau$  головных членов спектральных серий ТI II одного порядка. Для синглетных состояний значения  $\tau$  несколько меньше, чем для триплетных.

Обращает на себя внимание аномально большое значение  $\tau = 130 \pm 10$  нс для смещенного  $5d^9 6s^2 6p^4$ -состояния ТI II, образующегося в результате вырывания внутреннего  $5d$ -электрона атома таллия ( $d$ -ионизация). Интересно, что сечение возбуждения перехода  $5d^{10} 6s 7s^3 S_1 - 5d^9 6s^2 6p^4$  ( $\lambda = 4947 \text{ \AA}$ ), равное  $41.3 \cdot 10^{-18} \text{ см}^2$  [25], также большое по сравнению с сечениями возбуждения других ионных линий таллия.

Из анализа кривых задержанных совпадений обнаружено значительное каскадное заселение  $7^3 S_1$  (более 40% при  $E_e = 100$  эВ)  $6^1 D_2$  (около 16% при  $E_e = 90$  эВ) и  $5^1 F_3$  (около 12% при  $E_e = 50$  эВ) уровней ТI II. Остальные исследованные нами состояния ТI II и ТI III подвержены каскадному заселению в меньшей степени. Смещенные состояния ТI II вовсе не подвержены каскадному заселению.

Следует отметить, что полученные нами результаты по определению  $\tau$  хорошо согласуются с уже известными данными, полученными ранее для некоторых переходов.

Из табл. 2 видно, что подавляющее большинство известных в литературе данных по временам жизни возбужденных состояний атомов и ионов таллия получены методом пучок-фольга. Но возможности этого метода ограничены невысокой чувствительностью, сложностью учета каскадного заселения исследуемых уровней, отсюда и недостаточной точностью результатов. Особенно затруднено исследование  $\tau$  возбужденных состояний ионов из-за малоэффективного заселения этих состояний при пучково-фольговой методике [12]. Разработанная нами методика определения  $\tau$  в пересекающихся атомном и электронном пучках отличается универсальностью, высокой чувствительностью, надежностью результатов и их достаточно высокой точностью.

Авторы благодарны И. П. Запесочному за постоянный интерес к работе и помощь при обсуждении результатов.

## Литература

- [1] А. Л. Ошерович, Г. М. Петелин. ДАН СССР, 129, 543, 1959.
- [2] Ю. И. Малахов, В. А. Фабрикант. Опт. и спектр., 34, 645, 1973.
- [3] М. Л. Бурштейн, Я. Ф. Веролайнен, В. А. Комаровский, А. Л. Ошерович, Н. П. Пенкин. Опт. и спектр., 37, 617, 1974.
- [4] Я. Ф. Веролайнен, А. Л. Ошерович. Опт. и спектр., 20, 929, 1966.
- [5] J. Pardiés, C. R. Acad. Sci., 266, В 1586, 1968.
- [6] А. Л. Ошерович, Г. П. Анисимова, М. Л. Бурштейн, Я. Ф. Веролайнен, Я. Сигети, Е. А. Ледовская. Опт. и спектр., 30, 793, 1971.
- [7] И. П. Запесочный, Л. Л. Шимон, Э. И. Непийпов. Укр. физ. журн., 18, 1297, 1973.
- [8] Л. Л. Шимон, Э. И. Непийпов. Укр. физ. журн., 19, 626, 1974.
- [9] Л. Л. Шимон, Э. И. Непийпов, В. Л. Голдовский, Н. В. Голловчак. Укр. физ. журн., 20, 233, 1975.
- [10] Л. Л. Шимон, Э. И. Непийпов, И. П. Запесочный. Укр. физ. журн., 20, 229, 1975.
- [11] Н. П. Пенкин, В. П. Рузов, Л. Н. Шабанова. Опт. и спектр., 34, 1017, 1973.
- [12] T. Andersen, G. Sorensen. Phys. Rev., A5, 2447, 1972.
- [13] В. Г. Вовченко, В. М. Железняков. Материалы симпозиума по наносекундной ядерной электронике, Дубна, 1967.
- [14] Ю. К. Акимов, М. Н. Дражев, И. Ф. Колпаков, В. И. Рыкалин. Быстродействующая электроника для регистрации ядерных частиц. «Сов. радио», М., 1971.
- [15] Ю. И. Малахов, В. Г. Потемкин. Опт. и спектр., 32, 245, 1972.
- [16] И. Агарбичану, И. Кукурезану, И. Попеску, В. Василю. Опт. и спектр., 14, 18, 1963.
- [17] P. T. Cunningham, J. Link. J. Opt. Soc. Am., 37, 1000, 1967.
- [18] G. M. Lawrence, B. D. Savage. Phys. Rev., 141, 67, 1966.
- [19] W. Gaugh, G. W. Series. Proc. Phys. Soc., 85, 469, 1965.
- [20] Я. Ф. Веролайнен. Автореф. канд. дисс. ЛГУ, Л., 1970.
- [21] Н. П. Пенкин. В сб.: Спектроскопия газоразрядной плазмы. «Наука», Л., 1970.
- [22] П. Ф. Груздев. В сб.: Физика вакуумного ультрафиолетового излучения. «Наукова думка», Киев, 1974.
- [23] В. К. Прокофьев, А. Н. Филлипов. ЖЭТФ, 4, 31, 1933.
- [24] Л. Л. Шимон, Э. И. Непийпов, Н. А. Гацюк, И. П. Запесочный. Опт. и спектр., 32, 1040, 1972.
- [25] Э. И. Непийпов, Л. Л. Шимон. Укр. физ. журн., 18, 539, 1973.

Поступило в Редакцию 17 декабря 1975 г.