

# 甲基氟远红外激光的斯塔克频移

傅 恩 生

(中国科学院上海光机所)

## 提 要

本文对甲基氟 ( $\text{CH}_3\text{F}$ ) 光泵远红外激光的斯塔克频移做了理论计算。指出用  $2.9 \times 10^4 \sim 4.4 \times 10^4$  伏/厘米的电场强度, 有可能使甲基氟发射的远红外激光 (496 微米) 与镁原子束的  ${}^3P_0 \rightarrow {}^3P_1$  跃迁共振, 同时保证甲基氟的泵浦跃迁与  $\text{CO}_2$  激光  $9P(20)$  线共振。预期可能的工作跃迁有四组:  ${}^0R(11, 5, -11)$ ,  ${}^0Q(12, 5, -11)$ ;  ${}^0R(11, 6, -6)$ ,  ${}^0Q(12, 6, -6)$ ;  ${}^0R(11, 7, -3)$ ,  ${}^0Q(12, 7, -3)$ ;  ${}^0R(11, 8, 0)$ ,  ${}^0Q(12, 8, 0)$ 。

## Stark frequency shift of the $\text{CH}_3\text{F}$ far-infrared laser light

*Fu Ensheng*

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica)

## Abstract

Stark frequency shift for the  $\text{CH}_3\text{F}$  optically pumped far infrared laser light has been theoretically calculated. It is pointed out that there is the possibility of resonance between the methylfluoride emitted far infrared laser line (496  $\mu\text{m}$ ) and  ${}^3P_0 \rightarrow {}^3P_1$  transition in Mg atomic beam at the electric field intensity of  $2.9 \times 10^4 \sim 4.4 \times 10^4$  v/cm, meanwhile maintaining resonance between the laser levels of methylfluoride and the  $\text{CO}_2$  pumped line  $9p(20)$ . It has been predicted that there are four sets of possible operating transitions:  ${}^0R(11, 5, -11)$ ,  ${}^0Q(12, 5, -11)$ ;  ${}^0R(11, 6, -6)$ ,  ${}^0Q(12, 6, -6)$ ;  ${}^0R(11, 7, -3)$ ,  ${}^0Q(12, 7, -3)$  and  ${}^0R(11, 8, 0)$ ,  ${}^0Q(12, 8, 0)$ .

## 一、引 言

在参考文献[1]中已经详细讨论了用 Mg 原子束作绝对频率标准的设想。概括起

来,就是用电子碰撞方法使 Mg 原子的  ${}^3P$  态亚稳能级形成一定量的粒子数,然后通过时间选态,使  ${}^3P_1$  能级粒子数抽空,同时却保存着  ${}^3P_0$  能级的粒子(见图 1)。我们设想用远

收稿日期: 1979 年 4 月 24 日。

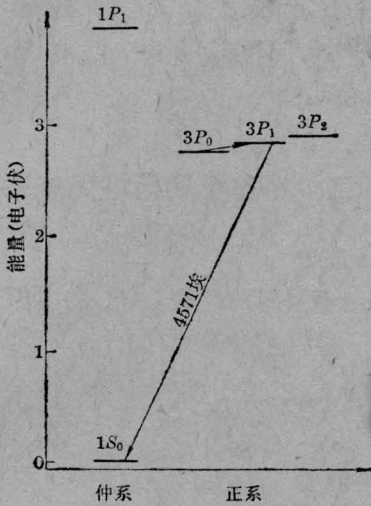


图1 Mg原子的部分能级

红外单色激光共振泵浦  $^3P_0$  能级粒子至已经抽空的  $^3P_1$  能级上, 于是, 应第二次出现  $^3P_1$  到基态  $^1S_0$  的自发辐射跃迁, 发射  $4571 \text{ \AA}$  的荧光。通过检测  $4571 \text{ \AA}$  荧光强度, 或通过磁泵浦检测粒子束强度, 来控制远红外激光器的振荡频率, 预期可实现比铯原子频率标准准确度高  $1 \sim 2$  个数量级的高准确度的频标。

问题是目前已知的远红外激光频率, 还不能恰好与 Mg 原子的  $^3P_0 \rightarrow ^3P_1$  跃迁共振。必须调谐远红外激光, 才能达到共振的要求。本文从理论上探讨用斯塔克(stark)效应调谐甲基氟光泵远红外激光频率的可能性。

## 二、甲基氟远红外激光器的特点

在光泵远红外激光的波长表中<sup>[2,3]</sup>, 甲基氟的激光波长(496微米)与镁原子  $^3P_0 \rightarrow ^3P_1$  跃迁吸收波长最接近, 因此首先考虑甲基氟远红外激光的频移。

甲基氟分子的能级图如图2所示<sup>[4]</sup>。用选支  $\text{CO}_2$  激光器的  $9.6$  微米带的  $P(20)$  线 ( $9P(20)$ ) 泵浦甲基氟分子, 使  $\text{CH}_3\text{F}$  从  $\nu_3$  模

(C-F 拉伸振动模) 的基振动态 ( $V=0, J=12$ ) 跃迁到高振转能级 ( $V=1, J=12$ ), 其中  $V$  是振动量子数,  $J$  是总角动量量子数, 图2中  $K$  是  $J$  在分子对称轴方向的分量量子数。由于上能级中热激发粒子数很少 ( $\sim 6.6 \times 10^{-3} n_0$ ,  $n_0$  是基态粒子数密度), 所以泵浦跃迁  $^0Q(12)$ , 很容易造成  $V=1, J=12$  能级相对于  $V=1, J=11$  转动能级的粒子数反转。甲基氟分子具有很大数值的永久偶极矩 ( $\sim 1.9$  德拜), 因而容易形成激光振荡, 发射  $496$  微米的远红外激光。

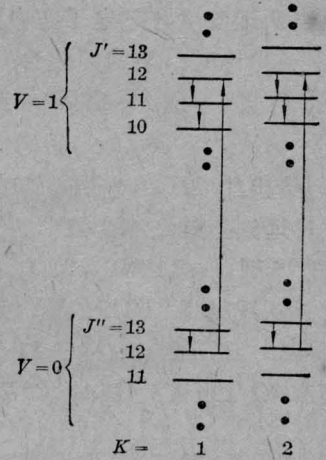


图2 甲基氟分子的部分振转能级

甲基氟分子具有对称陀螺结构, 其振转谱带由下式确定<sup>[5]</sup>

$$T' - T'' = \nu_0 + F'(J', K') - F''(J'', K'') \quad (1)$$

其中  $\nu_0$  是谱带的基线, 对  $\nu_3$  模,  $\nu_0 = 1048.61$  厘米 $^{-1}$ ; 谱项  $F(J, K)$  的转动能量为

$$F_V(J, K) = B_V J(J+1) + (A_V - B_V) K^2 - D_{JV} J^2 (J+1)^2 - D_{KV} J(J+1) K^2 - D_{KV} K^4 \quad (2)$$

其中  $A_V > B_V \gg D_{JV}, D_{KV}$  和  $D_{KV}$ , 都是转动常数。与远红外激光发射相关的跃迁是  $\Delta J = +1, \Delta K = 0$  的跃迁, 相应的频率可由 (1)、(2) 和选择定则得

$$\begin{aligned}
{}^{\circ}R(J, K) = & \nu_0 + K^2[(A' - A'') \\
& - (B' - B'')] - K^4[D'_K - D''_K] \\
& + (J+1)[(B' + B'') - K^2(D'_{JK} + D''_{JK})] \\
& + (J+1)^2[(B' - B'') - K^2(D'_{JK} - D''_{JK}) \\
& - (D'_J - D''_J)] - 2(J+1)^3[D'_J + D''_J] \\
& - (J+1)^4[D'_J - D''_J] \quad (3)
\end{aligned}$$

与吸收泵浦跃迁相关的是  $\Delta J=0, \Delta K=0$  的跃迁, 其频率值

$$\begin{aligned}
{}^{\circ}Q(J, K) = & \nu_0 + K^2[(A' - A'') \\
& - (B' - B'')] - K^4[D'_K - D''_K] \\
& + J(J+1)[(B' - B'') - K^2(D'_{JK} - D''_{JK})] \\
& - J^2(J+1)^2[D'_J - D''_J] \quad (4)
\end{aligned}$$

特别是当跃迁发生在基电子态中同一个振动态(如  $V=1$ )中时, (3)式简化为

$$\begin{aligned}
{}^{\circ}R(J, K) = & 2(J+1)[B' - K^2 D'_{JK}] \\
& - 4(J+1)^3 D'_J \quad (5)
\end{aligned}$$

根据[6]给出的  $\text{CH}_3\text{F}$  分子的转动常数和[7]对  $\text{CH}_3\text{F}$  远红外激光 496 微米的频率测量, 由(5)式得到  $J=11, K=0, 1, \dots, 11$  的一组远红外跃迁频率  ${}^{\circ}R(11, K)$  以及由(4)式得到  $J=12, K=0, 1, \dots, 11$  的一组泵浦跃迁频率  ${}^{\circ}Q(12, K)$ , 同时将  ${}^{\circ}R(11, K)$  与

表 1  $\text{CH}_3\text{F}$  的远红外跃迁频率和泵浦跃迁频率以及有关的频率失谐

K	远红外跃迁频率 ${}^{\circ}R(11, K)$ [兆赫]	${}^{\circ}R(11, K)$ 与 $\text{Mg}^3\text{P}_0 \rightarrow {}^3\text{P}_1$ 失谐频率 $\Delta\nu(R, K)$ [兆赫]	泵浦跃迁 频率 ${}^{\circ}Q(12, K)$ [兆赫]	${}^{\circ}Q(12, K)$ 与 $\text{CO}_2 9\text{P}(20)$ 失谐频率 $\Delta\nu(Q, K)$ [兆赫]
0	604358	3035	31383848	-52
1	604344	3021	31383860**	-40
2	604297*	2974	31383944	44
3	604234	2911	31384071	171
4	604137	2814	31384260	360
5	604013	2690	31384525	625
6	603861	2538	31384880	980
7	603682	2359	31385345	1445
8	603475	2152	31385942	2042
9	603240	1917	31386698	2798
10	602978	1655	31387644	3744
11	602688	1365	31388548	4648

\* 取自[7]

\*\* 参考[13]

$\text{Mg}^3\text{P}_0 \rightarrow {}^3\text{P}_1$  频率失谐  $\Delta\nu(R, K)$  和  ${}^{\circ}Q(12, K)$  与  $\text{CO}_2 9\text{P}(20)$  的频率失谐  $\Delta\nu(Q, K)$  一并列于表 1。

### 三、甲基氟的斯塔克效应

#### 1. 理论

甲基氟是对称陀螺分子, 在电场  $E$  中转动能级的能量变化是<sup>[8]</sup>

$$\begin{aligned}
\Delta W = & -\frac{\mu K M E}{J(J+1)} \\
& + \frac{\mu^2 E^2}{2Bh} \left\{ \frac{(J^2 - K^2)(J^2 - M^2)}{J^3(2J-1)(2J+1)} \right. \\
& \left. - \frac{[(J+1)^2 - K^2][(J+1)^2 - M^2]}{(J+1)^3(2J+1)(2J+3)} \right\} \quad (6)
\end{aligned}$$

其中  $\mu$  是永久偶极矩,  $M$  是  $J$  在外电场  $E$  方向的分量量子数。

对于  $\Delta V=0$  的  $J+1 \rightarrow J$  的跃迁,  $\Delta J=+1$ , 当  $\Delta K=0, \Delta M=0$  时, 由(6)式和选择定则得转动能级跃迁频率(率)移(动):

$$\Delta\nu_0(R) = \frac{2\mu M K E}{J(J+1)(J+2)h} \quad (7)$$

而当  $\Delta K=0, \Delta M=\pm 1$  时, 频移为:

$$\Delta\nu_{\pm 1}(R) = \frac{(2M \mp J)\mu K E}{J(J+1)(J+2)h} \quad (8)$$

(7)式和(8)式中的量子数  $M$  和  $J$  均为下能级的量子数。

对于  $\Delta V=1, \Delta J=0$  的跃迁, 当  $\Delta K=0, \Delta M=0$  时, 振转跃迁的频移为:

$$\Delta\nu_0(Q) = -\frac{(\mu' - \mu'') M K E}{J(J+1)h} \quad (9)$$

而当  $\Delta K=0, \Delta M=\pm 1$  时,

$$\Delta\nu_{\pm 1}(Q) = -\frac{[(M \pm 1)\mu' - M\mu''] K E}{J(J+1)h} \quad (10)$$

其中  $\mu'$  和  $\mu''$  分别表示  $V=1$  和  $V=0$  态的永久偶极矩。(7)、(8)、(9)、(10)各式是计算  $\text{CH}_3\text{F}$  斯塔克效应的基本理论根据。

#### 2. 远红外激光频移与电场的关系

我们先考虑  $\text{CH}_3\text{F} \nu_3$  模  $V=1$  振动态

表2 CH<sub>3</sub>F<sup>Q</sup>R(11, K, M)与Mg<sup>3</sup>P<sub>0</sub>→<sup>3</sup>P<sub>1</sub>失谐频率Δν(R, K)以及补偿Δν(R, K)需要的电场强度E

K	Δν(R, K) [兆赫]	E=[×10 <sup>4</sup> 伏/厘米]											
		M=-11	-10	-9	-8	-7	-6	-5	-4	-3	-2	-1	0
2	2974	8.05	8.56	9.15	9.83	10.6	11.5	12.6	13.9	15.6	17.6	20.0	24.2
3	2911	5.22	5.56	5.95	6.40	6.94	7.54	8.25	9.10	10.6	11.5	13.3	15.7
4	2814	3.80	4.05	4.33	4.64	5.02	5.45	5.97	6.60	7.36	8.37	9.62	11.4
5	2690	2.91	3.10	3.31	3.56	3.85	4.18	4.57	5.05	5.65	6.43	7.40	8.75
6	2538	2.30	2.44	2.62	2.80	3.04	3.30	3.61	4.00	4.47	5.05	5.83	6.90
7	2359	1.83	1.94	2.08	2.24	2.41	2.62	2.87	3.17	3.54	4.01	4.63	5.48
8	2152	1.46	1.55	1.65	1.78	1.92	2.09	2.29	2.53	2.82	3.20	3.70	4.37
9	1917	1.15	1.23	1.32	1.41	1.52	1.66	1.81	2.00	2.24	2.54	2.93	3.46
10	1655	0.90	0.96	1.02	1.10	1.18	1.28	1.41	1.56	1.74	1.97	2.28	2.69
11	1365	0.67	0.72	0.77	0.82	0.89	0.97	1.06	1.17	1.30	1.48	1.70	2.05

表3 CH<sub>3</sub>F泵浦跃迁<sup>Q</sup>Q(12, K, M)与CO<sub>2</sub>9P(20)共振所必须的电场强度E

K	Δν(Q, K) [兆赫]	E[×10 <sup>4</sup> 伏/厘米]												
		M=-11	-10	-9	-8	-7	-6	-5	-4	-3	-2	-1	0	+1
2	44	0.49	0.47	0.46	0.45	0.43	0.42	0.41	0.40	0.39	0.38	0.37	0.36	0.35
3	171	1.27	1.23	1.19	1.15	1.12	1.08	1.05	1.03	1.00	0.97	0.95	0.92	0.90
4	360	2.00	1.97	1.87	1.82	1.76	1.72	1.66	1.62	1.57	1.53	1.50	1.46	1.43
5	625	2.78	2.69	2.60	2.52	2.45	2.38	2.32	2.25	2.29	2.13	2.08	2.03	1.98
6	980	3.63	3.51	3.40	3.30	3.20	3.10	3.02	2.94	2.86	2.78	2.71	2.64	2.55
7	1445	4.58	4.43	4.30	4.16	4.04	3.92	3.81	3.70	3.61	3.51	3.43	3.34	3.26
8	2042	5.68	5.50	5.32	5.15	5.00	4.86	4.73	4.60	4.48	4.36	4.25	4.15	4.05
9	2798	6.90	6.68	6.46	6.27	6.08	5.90	5.75	5.59	5.45	5.30	5.16	5.05	4.93
10	3744	8.30	8.05	7.80	7.56	7.35	7.13	6.93	6.73	6.57	6.37	6.22	6.10	5.93
11	4648	9.40	9.10	8.80	8.55	8.28	8.03	7.81	7.60	7.40	7.20	7.00	6.85	6.68

中<sup>Q</sup>R(11, 2)的斯塔克频移。在无外加电场时,<sup>Q</sup>R(11, 2)的频率是604297兆赫。Mg原子<sup>3</sup>P<sub>0</sub>→<sup>3</sup>P<sub>1</sub>跃迁频率是601323兆赫。失谐频率

$$\Delta\nu(R) = 604297 - 601323 = 2974 \text{ 兆赫} \quad (11)$$

为了达到共振泵浦,需要将<sup>Q</sup>R(11, 2)向低频方向频移约3千兆赫。从(8)式可以看出,为向低频方向频移,应该在(8)式中选择ΔM=+1,且当M=-J时有最大的频移,即(8)式变成

$$\Delta\nu_{+1}(R) = -\frac{3\mu KE}{(J+1)(J+2)\hbar} = -18.47 \times 10^4 KE \text{ [赫]} \quad (12)$$

将(11)代入(12)中,得E=8.05×10<sup>4</sup>伏/厘米。这表示在K=2能级簇,为使<sup>Q</sup>R(11, 2, -11)与Mg<sup>3</sup>P<sub>0</sub>→<sup>3</sup>P<sub>1</sub>跃迁共振,需要加8.05×10<sup>4</sup>伏/厘米的电场才行。在(12)中利用了[6]给出的CH<sub>3</sub>F偶极矩数值。

类似地对K=3, 4, ..., 11各能级簇中的M=-11, -10, ..., 0分别计算出使<sup>Q</sup>R(11, K, M)与Mg<sup>3</sup>P<sub>0</sub>→<sup>3</sup>P<sub>1</sub>共振所需要的电场E,列于表2中。

### 3. 泵浦跃迁<sup>Q</sup>Q(12, K)的斯塔克频移

在无电场时,CO<sub>2</sub>9P(20)线只能泵浦CH<sub>3</sub>F的<sup>Q</sup>Q(12, 1)和<sup>Q</sup>Q(12, 2),因为它们与9P(20)的失谐较小(<100兆赫),其他的K=3以上的各能级簇均不能泵浦。可是,

加上电场后,泵浦跃迁也发生斯塔克频移,原来匹配的变为失谐了,原来失谐的也可能变成匹配了。由表1看出,对 ${}^{\circ}Q(12, K)$ 除 $K=1$ 之外,其频率都比 $\text{CO}_2 9P(20)$ 的频率高。为了得到共振泵浦,应该使 ${}^{\circ}Q(12, K)$ 向低频方向频移。从(10)式可见,取 $\Delta M = +1$ 且 $M=J-1$ , ${}^{\circ}Q(J, K)$ 有最大的负向频移,即

$$\begin{aligned} \Delta\nu_{+1}(Q) &= -[J(\mu' - \mu'') + \mu''] \frac{KE}{J(J+1)h} \\ &= -7.84 \times 10^3 KE [\text{赫}] \quad (13) \end{aligned}$$

由表1的 $\Delta\nu(Q, K)$ 数据和(13)式,可计算得不同 $K$ 和 $M$ 的泵浦跃迁 ${}^{\circ}Q(12, K, M)$ 与 $\text{CO}_2 9P(20)$ 共振所必须的电场 $E$ ,列于表3。

#### 4. 泵浦跃迁和远红外发射跃迁的能级匹配

为了使下能级粒子泵浦到相应的激光上能级,必须使泵浦跃迁 ${}^{\circ}Q(12, K, M)$ 和发射跃迁 ${}^{\circ}R(11, K, M)$ 有相同的上能级。对于发射跃迁,已如前述,只有选择 $\Delta M = +1$ , $M \leq 0$ 才能在较低的电场 $E$ 得到与 $\text{Mg } {}^3P_0 \rightarrow {}^3P_1$ 跃迁共振的频移。对于泵浦跃迁,由(10)式可知,应该选择 $\Delta M = +1$ ,才能得到负频移。对于量子数 $M$ ,虽然 $M > 0$ 时需要的电场较低,但是考虑到与发射跃迁要求有相同的上能级,我们只能考虑属于 $M \leq 0$ 的跃迁,也就是说,要求泵浦跃迁和发射跃迁有相同的 $M$ 值。将表2和表3的数据作图于图3中, ${}^{\circ}R(11, K, M)$ 簇曲线与 ${}^{\circ}Q(12, K, M)$ 簇曲线交迭且有相同 $M$ 值的点(这些点在图3中用虚线连接成曲线),同时落在量子数 $K$ 的附近(泵浦跃迁的频率失谐在100兆赫范围内),才能使两种共振都能得到满足。可见,比较合适的跃迁有四组:

- ${}^{\circ}R(11, 5, -11), {}^{\circ}Q(12, 5, -11);$
- ${}^{\circ}R(11, 6, -6), {}^{\circ}Q(12, 6, -6);$
- ${}^{\circ}R(11, 7, -3), {}^{\circ}Q(12, 7, -3);$
- ${}^{\circ}R(11, 8, 0), {}^{\circ}Q(12, 8, 0)。$

对应的电场强度分别为 $2.9 \times 10^4, 3.3 \times 10^4,$

$3.5 \times 10^4$  和  $4.4 \times 10^4$  伏/厘米。前两组的能级跃迁关系示于图4。

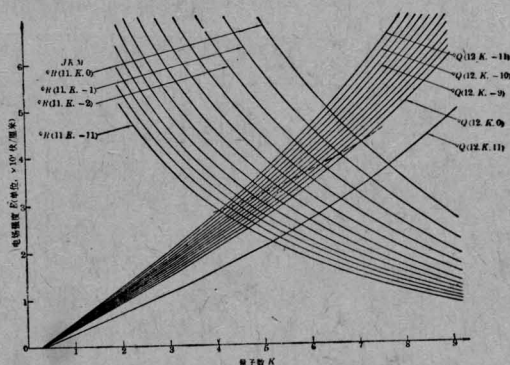


图3  $\text{CH}_3\text{F}$  的 ${}^{\circ}R(11, K, M)$ 与 $\text{Mg } {}^3P_0 \rightarrow {}^3P_1$ 共振和 ${}^{\circ}Q(12, K, M)$ 与 $\text{CO}_2 9P(20)$ 共振所需电场强度 $E$ 和转动量子数 $K$ 的关系

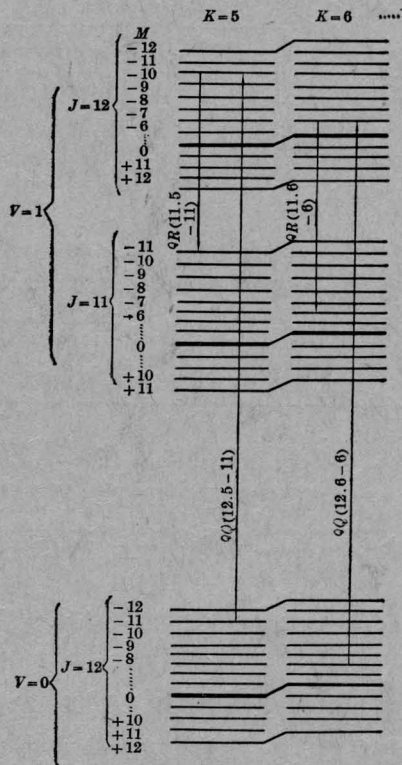


图4  $\text{CH}_3\text{F}$  振转能级的斯塔克分裂和相应的匹配跃迁

## 五、结束语

近年来光泵远红外激光的斯塔克调谐已

引起重视<sup>[9-11]</sup>。文献[9]对CH<sub>3</sub>F激光的斯塔克可调谐性进行了较全面的分析。但是关于与Mg原子<sup>3</sup>P<sub>0</sub>→<sup>3</sup>P<sub>1</sub>跃迁共振的远红外激光斯塔克频移尚未见报导,由于这种共振要求的电场强度较高,致使必须考虑泵浦跃迁的斯塔克效应。本文的特点在于同时考虑到泵浦跃迁和发射跃迁的斯塔克频移并推出既能保证发射跃迁和Mg<sup>3</sup>P<sub>0</sub>→<sup>3</sup>P<sub>1</sub>跃迁共振又能保证泵浦跃迁与CO<sub>2</sub>9P(20)共振的斯塔克场强,指出用 $2.9 \times 10^4 \sim 4.4 \times 10^4$ 伏/厘米的电场强度,有可能使甲基氟发射的远红外激光与Mg原子束的<sup>3</sup>P<sub>0</sub>→<sup>3</sup>P<sub>1</sub>跃迁共振,同时保证甲基氟的泵浦跃迁与CO<sub>2</sub>9P(20)共振,预期可能的工作跃迁有四组:<sup>0</sup>R(11, 5, -11), <sup>0</sup>Q(12, 5, -11); <sup>0</sup>R(11, 6, -6), <sup>0</sup>Q(12, 6, -6); <sup>0</sup>R(11, 7, -3), <sup>0</sup>Q(12, 7, -3); <sup>0</sup>R(11, 8, 0), <sup>0</sup>Q(12, 8, 0)。

众所周知,光泵远红外激光器的工作气压很低(几十毫托),实验上能否获得 $3 \sim 4 \times 10^4$ 伏/厘米的电场强度还不知道,但是参考文献[12]的实验对我们很有启发,他们已经在30毫托的气压下,获得 $5 \times 10^4$ 伏/厘米的电场强度。

斯塔克效应既能调谐远红外激光的频率,又能调谐吸收跃迁的频率,因此能用于探

索新的激光波段,提高光泵远红外激光器的输出功率<sup>[11]</sup>,这不仅在光频标上,而且在广泛的远红外光谱学领域中都有重要意义。

### 参 考 文 献

- [1] F. Strumia, P. Minguzzi, M. Francesconi, R. Benedetti; Proceedings of the 28th Annual Symposium of Frequency Control, p. 350 (1974).
- [2] M. Rosenbluh *et al.*; *Appl. Opt.*, **15** (1976), 2635.
- [3] J. J. Gallagher, M. D. Blye *et al.*; *Infrared Phys.*, **17** (1976), 43.
- [4] T. Y. Chang; *IEEE, Trans. Microwave Theory Tech.*, **MTT-2**, (1974), 983.
- [5] W. L. Smith, I. M. Mills; *J. Mol. Spectr.*, **11** (1963), 11.
- [6] S. M. Freund *et al.*; *J. Mol. Spectr.*, **52** (1974), 38.
- [7] E. Bava, A. DeMarchi, A. Godone; *Opt. Commun.*, **21** (1977), 46.
- [8] C. H. Townes, A. L. Schowlow; *Microwave Spectr.*, Chnp. 10. (Mc Graw Hill), 1955.
- [9] M. Inguscio *et al.*; *Infrared Phys.*, **16** (1976), 453.
- [10] M. Inguscio *et al.*; *Opt. Commun.*, **21**(1977), 208.
- [11] M. S. Tobin, R. E. Jensen; *IEEE J., Quant. Electr.*, **QE-13**(1977), 481.
- [12] M. Redon, M. Fourrier; *Rev. Sci. Instrum.*, **46** (1975), 911.
- [13] D. T. Hodges, J. R. Tucker, T. S. Hartwick; *Infrared Phys.*, **16** (1976), 175.