

F 原子 $3p^4S^0-3s^4P$ 跃迁产生的激光

何 林 生

(中国科学院安徽光机所)

提要: 用角动量理论和库仑近似法计算了 F 原子和 Si^+ 离子有关跃迁几率和能级寿命。证实 634.8 nm 激光系由 F 原子 $3p^4S^0_{3/2}-3s^4P_{3/2}$ 跃迁产生。

Laser emission from fluorine atomic transition $3p^4S^0-3s^4P$

He Linsheng

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

Abstract: The transition probabilities and the life-time concerned for fluorine atoms and Si^+ ions are calculated with the help of angular theory momentum and Coulumb approximation method. It is confirmed that the laser emission at 634.8nm is produced by the atomic transition of fluorine $3p^4S^0_{3/2}-3s^4P_{3/2}$.

一、引 言

634.8 nm 激光是否 F 原子激光曾有争议^[1-3]。[1]认为 634.8 nm 激光由 F 原子产生,但未能辨认跃迁归属。[2]从理论上指出该激光波长属 Si^+ 离子 $4s^2S^0_{1/2}-4p^2P^0_{3/2}$ 跃迁。 Si^+ 是放电时 F 原子和(管壁) SiO_2 作用,生成 SiF_4 , 再产生 Si^{+*} 。[3]以无氟含 Si 体系做实验,断定 634.8 nm 激光是 $Si^+4s^2S^0_{1/2}-4p^2P^0_{3/2}$ 跃迁产生。

氟原子 $3s^4P$ 是亚稳态(图1)。只当泵浦速率足够快,才能在 $3p^4S$ 和 $3s^4P$ 态之间建立粒子数反转。为判断能否产生这种反转,作者计算了 F 原子 $3p^4S^0_{3/2}-3s^4P$ 和 $Si^+4p^2P^0_{3/2}-4s^2S^0_{1/2}$ 等跃迁几率和能级寿命。同时用有机

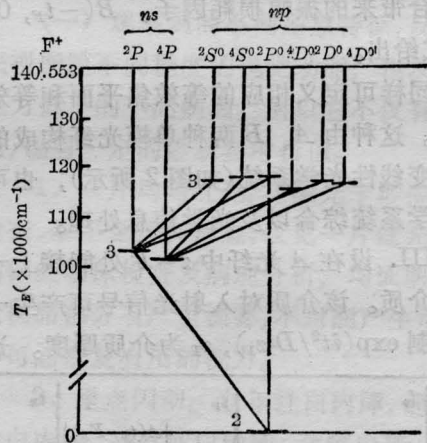


图1 F 原子光谱项简图

玻璃做激光腔体,消除 Si^+ 产生激光可能性。结果判明 634.8 nm 确是氟原子激光。实验还发现一些有意义的现象。本文将探讨这些

收稿日期:1985年3月25日。

现象的原因。

二、跃迁几率计算方法和结果

计算跃迁几率的一般公式是:

$$A_{if} = \frac{64\pi^4}{3h} \frac{1}{g_i \lambda^3} s_{if} \quad (1)$$

式中 λ 以 nm 为单位, $s_{if} = |e r_{if}|^2$, 叫谱线强度, 用原子单位 ($a_0^2 e^2$), g_i 是初能级 i 的简并度。由角动量理论^[4]得 s_{if} (见附录 A):

$$s_{if} = \delta(\alpha, \alpha') [J, J', L, L'] \left| \begin{array}{c} \{L_1 L l\} \{s L J^2\} \\ \{1' L' l'\} \{1 J' L'\} \end{array} \right| \times |\langle n l \| P \| n' l' \rangle|^2, \quad (2)$$

其中 $\{ \}$ 是 $6J$ 符号,

$$|\langle n l \| P \| n' l' \rangle|^2 = \left| \int_0^\infty R(nl) R(n'l') r dr \right|^2 \quad (3)$$

为电偶极约化矩阵元方。F 原子 $3p$ 和 $3s$ 电子轨道半径比内层轨道大得多, 可近似认为 $3p$ 或 $3s$ 电子在有效电荷为 Z^* 的库仑场中运动——库仑近似法^[5]。改写(3)式为

表 1. F 原子跃迁几率和能级寿命

跃 迁	λ (nm)	A_{if} ($\times 10^8$ sec $^{-1}$) ^(A)	A_{if} ($\times 10^8$ sec $^{-1}$)	$\tau_i = (\sum A_{if})^{-1}$ (ns)
$3p^4 S_{3/2}^0 \rightarrow 3s^4 P_{5/2}$ $3p^4 S_{3/2}^0 \rightarrow 3s^4 P_{3/2}$ $3p^4 S_{3/2}^0 \rightarrow 3s^4 P_{1/2}$	623.9		0.285	17.7
	634.8		0.183	
	641.3		0.094	
$3p^2 P_{1/2}^0 \rightarrow 3s^2 P_{3/2}$ $3p^2 P_{1/2}^0 \rightarrow 3s^2 P_{1/2}$	696.6	0.16	0.160	22.0
	712.8	0.30	0.294	
$3p^2 P_{3/2}^0 \rightarrow 3s^2 P_{3/2}$ $3p^2 P_{3/2}^0 \rightarrow 3s^2 P_{1/2}$	703.7	0.38	0.389	21.7
	720.2	0.072	0.0723	
$3p^2 S_{1/2}^0 \rightarrow 3s^2 P_{3/2}$ $3p^2 S_{1/2}^0 \rightarrow 3s^2 P_{1/2}$	731.1	0.27	0.280	24.4
	748.9	0.13	0.129	
$3p^2 D_{3/2}^0 \rightarrow 3s^2 P_{3/2}$ $3p^2 D_{3/2}^0 \rightarrow 3s^2 P_{1/2}$	760.1	0.061	0.0629	28.2
	780.0	0.29	0.292	
$3p^2 D_{5/2}^0 \rightarrow 3s^2 P_{3/2}$	775.5	0.35	0.357	28.0

表 2. Si⁺ 跃迁几率及能级寿命

跃 迁	λ (nm)	A_{if} ($\times 10^8$ sec $^{-1}$)	$\tau_i = (\sum A_{if})^{-1}$ (ns)
$4p^0 P_{3/2}^0 \rightarrow 4s^2 S_{1/2}$	634.7	0.711	14.06
$4s^2 S_{1/2} \rightarrow 3p^2 P_{3/2}^0$ $4s^2 S_{1/2} \rightarrow 3p^2 P_{1/2}^0$	153.3	3.89	1.72
	152.6	1.94	

(Δ) 引自 *Appl. Phys. Lett.*, 1976, 29, No. 8, 493.

$$\langle n_i^* l \| P \| n_{i-1}^* l - 1 \rangle = (-1)^l Z^{* - 1} [l(l^2 - 1)]^{\frac{1}{2}} \mathcal{F}(n_i^*, l) \mathcal{J}(n_{i-1}^*, n_i^*, l), \quad (4)$$

式中 $n_i^* = n$, $n_{i-1}^* = n'$, 为有效主量子数, $\mathcal{F}(n_i^*, l)$ 和 $\mathcal{J}(n_{i-1}^*, n_i^*, l)$ 为 [5] 中定义函数, 有表可查。对原子 $Z^* = 1$, 一价离子 $Z^* = 2$, $n^* = Z^* / \epsilon^{\frac{1}{2}}$ 。利用 [6] 中谱项值求各能级能量参数 ϵ :

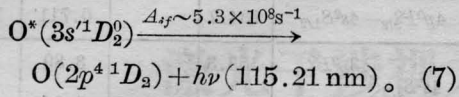
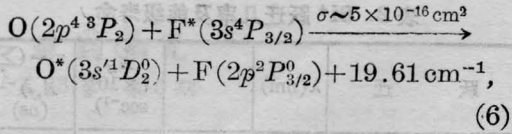
ϵ = 电离限值 - 能级谱项值 (单位里德堡 R_∞)
计算结果和 [4] 基本一致 (见表 1 和表 2)。

三、实验结果分析讨论

1. 634.8 nm 激光确是 F 原子 $3p^4 S_{3/2}^0 \rightarrow 3s^4 P_{3/2}$ 跃迁产生的。因有机玻璃为腔体排除了 Si⁺ 激光可能性, 而实验仍观察到 634.8 nm 激光, 表明它属于 F 原子跃迁。

顺便还指出, [1] 的工作条件不允许在 $3p^4 S_{3/2}^0$ 和 $3s^4 P_{3/2}$ 之间建立粒子数反转, 而对 Si⁺, $\tau(4s^2 S_{1/2}) \ll \tau(4p^2 P_{3/2}^0)$ (见表 2), 因此 [1] 中 634.7 nm 激光应归属 Si⁺。

2. 现象 A: 源于同一上能态 $3p^4 S_{3/2}^0$ 的三个跃迁, $A_{if}(623.9 \text{ nm}) > A_{if}(634.8 \text{ nm}) > A_{if}(641.3 \text{ nm})$, 理应 623.9 nm 激光最强。我们实验只发现 634.8 nm 激光, 在 [7, 8] 的实验中也是 634.8 nm 为最强。我们认为这是由于氧原子对氟原子 $3s^4 P_{3/2}$ 有较强的抽空作用, 使在 $3p^4 S_{3/2}^0$ 和 $3s^4 P_{3/2}$ 之间比较容易建立粒子数反转的原故。其动力学过程为 (图 2):



3. 现象 B: 低气压时 731.1 nm 激光较强, 634.8 nm 激光较弱; 高气压 (>120 Torr) 时 634.8 nm 激光变强, 731.1 nm 激光变弱。其原因如下:

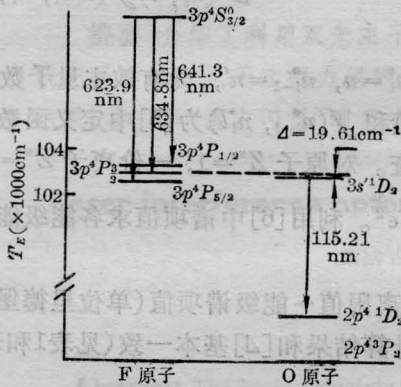


图 2 氧原子对氟原子 $3s^4P_{3/2}$ 的抽空作用

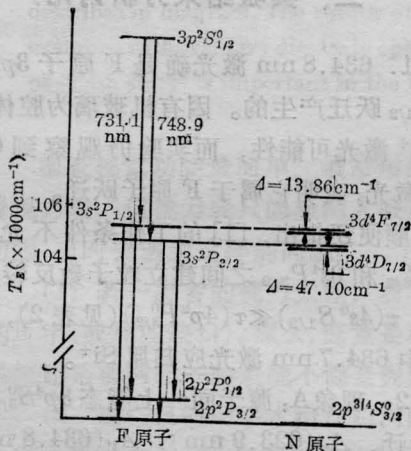
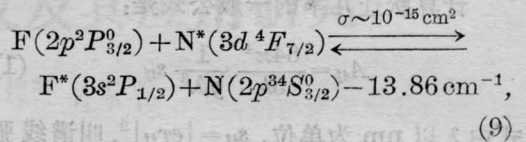
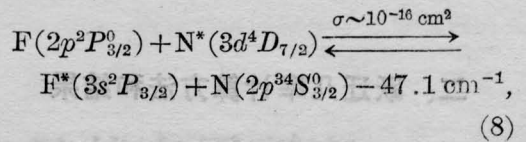


图 3 氮原子对氟原子 $3s^2P$ 的阻塞作用

$3s^2P$ 是光学共振能级, 抽空快, 而 $3s^4P$ 是亚稳态, 故低气压易得二重态间跃迁产生的激光。

随着气压增高, 粒子之间碰撞频率增大, 利于 F 原子 $3p^2S^0_{1/2}$ 不断向 $3p^4S^0_{3/2}$ 态转变, 而放电产生的氮原子起阻止 F 原子 $3p^4S^0_{3/2}$

向 $3p^2S^0_{1/2}$ 转变的作用。因为



而 $N^*(3d^4D^0_{7/2})$ 和 $N^*(3d^4F^0_{7/2})$ 都是亚稳态 (图 3)。

在 $F(3p^2P^0)$ 和 $F(3p^4P^0)$ 间及 $F(3p^2D^0)$ 和 $F(3p^4D^0)$ 之间没有近共振转移的条件, 但在更高气压下, 通过碰撞可加速向低能态逐步过渡的趋势。因能量次序是 $2p^0 > ^4S^0 > ^2S^0 > ^2D^0 > ^4D^0 > ^4P^0$, 碰撞使 $^4P^0$ 态粒子数相应增大, 二重态粒子数都相应减小。因此随着工作气压增高, 先是 731.1 nm 激光由强变弱, 同时 634.8 nm 激光由弱变强; 然后是 712.9 nm 激光变弱, 755.2 nm 和 739.9 nm 激光相继出现, 变强, 最后 755.2 nm 激光强于 739.9 nm 激光, 更强烈于 634.8 nm 激光^[8]。

作者与魏守安副研究员和杨立书同志进行了有益的讨论, 特此致谢。

附录 A

设 $P_z = (er)_z$ 是电偶极矩在 z 方向投影, 由 [5]

$$\langle s_{if} \rangle = \sum_{M'M} |\langle \alpha_1 S_1 L_1 n l S L J M | P_z | \alpha'_1 S'_1 L'_1 n' l' S' L' J' M' \rangle|^2 \quad (A1)$$

式中量子数符号沿用惯例, 大写字母表原子, 带下标 1 的表原子实, 小写字母表电子, 带'的表终态, α_1 为 S_1 和 L_1 外的原子实其它量子数集。

由表象变换和 [5] 之 (3·7·3) 式

$$\begin{aligned} & \langle \alpha_1 S_1 L_1 n l S L J M | P_z | \alpha'_1 S'_1 L'_1 n' l' S' L' J' M' \rangle \\ &= \sum_{M''_1, M''_2, M''_3} (-1)^{M+M'-L-L'} [J, J']^{\frac{1}{2}} \\ & \quad \begin{pmatrix} S & L & J \\ M_s & M_L & -M \end{pmatrix} \begin{pmatrix} S & L' & J' \\ M'_s & M'_L & -M' \end{pmatrix} \\ & \quad \cdot \langle \alpha_1 S_1 L_1 n l S L M_L | P_z | \alpha'_1 S'_1 L'_1 n' l' S' L' M'_s M'_L \rangle \end{aligned} \quad (A2)$$

因 P 和自旋无关, 由 W-E 定理和 [5] 之 (3·7·8) 式得

$$(s_{if})_z = \frac{1}{3} [J, J', L, L'] \delta(\alpha_1, \alpha'_1) \delta(J', J, 1) \cdot \left| \begin{Bmatrix} L_1 L l \\ 1 l' L' \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} S L J \\ 1 J' L' \end{Bmatrix} \right|^2 |\langle n l \| P \| n' l' \rangle|^2. \quad (A3)$$

若不管辐射偏振方向, 则

$$S_{if} = \delta(\alpha_1, \alpha'_1) \delta(J' J 1) [J, J', L, L'] \left| \begin{Bmatrix} L_1 L l \\ 1 l' L' \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} S L J \\ 1 J' L' \end{Bmatrix} \right|^2 |\langle n l \| P \| n' l' \rangle|^2. \quad (A4)$$

现在求 $|\langle n l \| P \| n' l' \rangle|^2$. 因 $\Delta l = \pm 1$, 当 $l' = l - 1$, 由 [5] 之 (2·5·29) 和 (4·6·3) 式得

$$\langle n l m_l | P_z | n' l' - 1 m_{l-1} \rangle = -[4l^2 - 1]^{\frac{1}{2}} \times \begin{pmatrix} 1 & l l - 1 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & l' l' - 1 \\ 0 & -m_l m_{l-1} \end{pmatrix} \int_1^\infty R(n l) R(n' l - 1) r dr \quad (A5)$$

另一方面由 [5] 之 (5·4·1) 式得

$$\langle n l m_l | P_z | n' l - 1 m_{l-1} \rangle = (-1)^{l-m_l} \times \begin{pmatrix} l & 1 & l - 1 \\ -m_l & 0 & m_{l-1} \end{pmatrix} \langle n l \| P \| n' l - 1 \rangle. \quad (A6)$$

比较 (A5) 和 (A6) 有

$$\langle n l \| P \| n' l - 1 \rangle = (-1)^{m_l + 1/2} \int_1^\infty R(n l) R(n' l - 1) r dr \quad (A7)$$

同样, $l' = l + 1$ 时可得

$$\langle n l \| P \| n' l + 1 \rangle = (-1)^{l+m_l} l^{\frac{1}{2}} \times \int_0^\infty R(n, l - 1) R(n' l') r dr. \quad (A8)$$

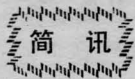
(A7) 和 (A8) 可统一写成

$$|\langle n l \| P \| n' l' \rangle|^2 = l \int_0^\infty R(n l) R(n' l') r dr \quad (A9)$$

l 表示 l 和 l' 中大者。

参 考 文 献

- [1] Cheo P. K., Cooper H. G.; *Appl. Phys. Lett.*, 1965, **7**, No. 7, 202.
- [2] Palenius H. P.; *Appl. Phys. Lett.*, 1966, **8**, No. 4, 82.
- [3] Carr W. C., Grow R. W.; *Proc. IEEE*, 1967, **55** No. 5, 726.
- [4] Edmonds A. R.; «Angular Momentum in Quantum» (princeton univ. press, princeton, New Jersey 1957)
- [5] Bates D. R., Damgas A.; *Phil. Trans. Roy. Soc.*, 1950, **242**, A842, 101.
- [6] Moore C. E.; «Atomic Energy Levels», Vol. I-II, Nat'l, Bur Stads, Circ., U. S. GPO, Washington D. C., 1949.
- [7] 梁培辉等; «激光», 1978, **5**, No. 2, 1.
- [8] Loreo T. R., Sze R. C.; *Opt. Commun.*, 1977, **21**, No. 2255.



高功率 CO₂ 激光器窗口用的高纯低吸 KCl 晶体

KCl 晶体具有较宽的红外透过波段, 低的本征吸收系数和负折射率温度系数, 从而有较高的光畸变品质因数, 是目前高功率 CO₂ 激光窗口的最佳材料之一。

中国科学院上海光机所用 RAP (反应气氛法) Bridgman 方法获得了低吸 KCl 单晶。生长这种晶体时, 先在高温下由高纯氦运载四氯化碳蒸气注入熔融的氯化钾中, 让其充分反应, 去除氯化钾中含氧阴离子杂质, 达到纯化的目的, 再采用 Bridgman 法长成晶体。

上海光机所生长的 KCl 单晶, 其主要性能指标 (吸收系数和透过率) 已达到国际先进水平。在 2.5~

18 μm 范围内的透过率为 92~93%, 10.6 μm 处的体光吸收系数为 2~4 × 10⁻⁴ cm⁻¹, 能承受的 CO₂ 激光功率密度 > 2.55 × 10⁴ W/cm², φ 60 mm 晶片的全斑通过 CO₂ 激光总功率 > 5 kW。

1986年1月14日, KCl 单晶通过了技术鉴定, 与会代表一致认为, 上海光机所生长 KCl 单晶时采用的工艺合理, 原料处理纯化技术有一定特色, 晶体成品率高, 成本低, 已在千瓦级 CO₂ 激光器的聚焦透镜和 5 kW CO₂ 激光器的输出窗口等方面得到了应用, 圆满地完成了国家“六五”科技攻关任务, 并建议能将该成果迅速推广, 形成一定的生产能力。

(瑞雪)