

## 钾分子的二步泵浦光离解受激辐射

张开昌 秦莉娟 王祖庚 郑一善

(华东师范大学物理系)

**摘要:** 运用从  $H_2$  喇曼管出射的红外相干辐射, 第一步将  $K_2$  分子激发到  $A^1\Sigma_u^+$  态; 第二步再由染料激光将其激发到高位  $g$  态的离解限, 从而产生光离解受激辐射。

### Stimulated emission generated by two-step pumping photodissociation of $K_2$

Zhang Kaichang, Qin Lijuan, Wang Zugeng, Zheng Yishan

(Department of Physics, East China Teachers University, Shanghai)

**Abstract:** We used the infrared radiation produced from  $H_2$  Raman pipe as first-step pumping beam to excite the  $K_2$  from  $X^1\Sigma_g^+$  to  $A^1\Sigma_u^+$  state, and a dye laser as second-step pumping beam to excite the  $K_2$  again from several vibrational energy level of the  $A^1\Sigma_u^+$  state to the dissociation limit of a high-lying state. Then the stimulated emission by photodissociation was generated.

## 一、引言

由激光双光子或二步泵浦金属蒸气的原子-分子系统, 可产生丰富的位于红外、可见和紫外区的受激辐射或相干辐射。我们曾用可见双光子激发钾分子, 产生了光离解激光<sup>[1]</sup>; 又用等频二步及不等频二步方式泵浦金属钠或钾蒸气, 通过分子-原子间的近共振碰撞能量转移过程, 获得了原子高位态间的红外受激辐射以及分子紫区和紫外区的扩散带受激辐射<sup>[2~4]</sup>。在本工作中, 利用受激喇曼效应, 将由高压  $H_2$  管出射的斯托克斯光作为第一步泵浦光, 将  $K_2$  分子由  $X^1\Sigma_g^+$  态激发到  $A^1\Sigma_u^+$  态的低振动能级, 由另一束染料

激光作为第二步泵浦光, 将分子由  $A^1\Sigma_u^+$  态的这些低振动能级激发到分子离解为  $5P+4S$  的离解限, 从而在  $5P$  能级上获得了大量粒子布居, 由布居反转产生了  $5P \rightarrow 5S$ 、 $5P_{1/2, 3/2} \rightarrow 3D_{3/2, 5/2}$  的红外受激辐射。本文给出了实验结果分析。

## 二、实验

实验装置可参见图1。由 Quantal YAG 激光同时泵浦一台 DCM 染料激光及一台 Rh590 染料激光。由透镜将 DCM 激光束聚焦于压力为 20 atm 的  $H_2$  管中心, 经过频移的受激斯托克斯光束从  $H_2$  管出射后与

收稿日期: 1987年1月5日。

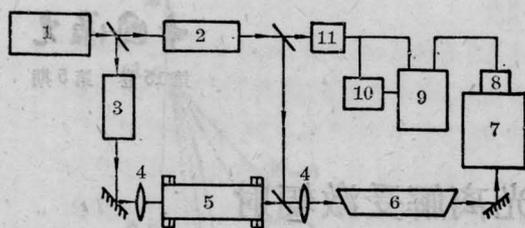


图 1

1—YAG 激光器; 2—Rh590 染料激光器; 3—DCM 染料激光器; 4—透镜; 5—高压H<sub>2</sub>管; 6—样品热管炉; 7—单色仪; 8—红外探测器; 9—信号处理系统; 10—记录仪或示波器; 11—触发器

Rh590 染料激光束重合,一起聚焦于热管炉中心。热管炉长 70 cm,加热区长 20 cm,管内装有样品 K,炉温由控温仪控制在 400~600°C 变化。在 440°C 时可得到最大的辐射信号。热管前向出射的定向红外辐射的发散角约为 8 mrad。信号经滤光片后由单色仪测定波长,用 PbS 探测器或高莱池接收并由信号处理系统处理后即可记录或用示波器显示。

H<sub>2</sub> 分子的喇曼频移量是 4155 cm<sup>-1</sup>。实验中使用的 H<sub>2</sub> 管由清华大学生产。当用能量为数十 mJ 的 DCM 染料激光激发时,可同时获得多级次的受激斯托克斯光及反斯托克斯光输出。实验测得频移后的红外斯托克斯光能量为 30 μJ,测得紫外反斯托克斯光能量为 50 μJ。调谐 DCM 染料激光波长时,这些斯托克斯光及反斯托克斯光也随着调谐。实验测得当 DCM 调谐范围在 605~660 nm 时,一级斯托克斯光的调谐范围是 810~910 nm,一级及二级反斯托克斯光的调谐范围是 483~518 nm 及 402~426 nm。

由于受到泵浦光波长的限制,以往人们对 K<sub>2</sub> 分子的研究主要限于 B<sup>1</sup>Π<sub>u</sub> 及更高的分子态,对 A<sup>1</sup>Σ<sub>u</sub><sup>+</sup> 态的了解甚少<sup>[6]</sup>。本实验使用经过 H<sub>2</sub> 分子喇曼频移的一级斯托克斯光激发钾分子,可使分子布居到 A<sup>1</sup>Σ<sub>u</sub><sup>+</sup> 态。这为研究钾分子的 A<sup>1</sup>Σ<sub>u</sub><sup>+</sup> 态提供了手段。由于从 H<sub>2</sub> 管输出的辐射中含有许多级次的斯托克斯及反斯托克斯成分,因而在实验中使用

了不同的滤光片组以滤去不需要的其他成分及剩余泵浦激光。当用带通为 700 nm~1 μm 的滤光片组时,输出的一级斯托克斯光与 Rh590 染料激光共同作用于样品,可测得强的红外受激辐射信号;当用带通大于 1.1 μm 的滤光片,也即仅有二级及二级以上斯托克斯光与 Rh590 染料激光共同作用于样品时,测不到红外信号。

### 三、结果分析

将上述 H<sub>2</sub> 管输出的一级斯托克斯光和 Rh590 染料激光重合后聚焦泵浦 K<sub>2</sub> 分子。当斯托克斯光位于 810~890 nm 波段范围的任一波长处,而 Rh590 染料激光调谐到 573.3、575.5、577.8 及 580.1 nm 等波长处时,可以测得对应于钾原子 5P→5S 和 5P→3D 的强红外受激辐射信号。如果挡住二光束中任一束或使二光束重叠不好,则信号全部消失。由此可见,信号是二束激光与样品共同作用的结果。当 Rh590 染料激光调谐到 578.2、580.2、581.2 及 583.1 nm 等原子共振波长时,也可测得等频双光子作用产生的原子红外受激辐射信号<sup>[3]</sup>。

由于 573.3、575.5、577.8 及 580.1 nm 不对应 K 原子(或 K<sup>+</sup> 离子)的任何共振波长,而对应于产生原子红外信号的斯托克斯光又可在很大波段范围内任选,显然,原子 5P 态的布居不应该是由于原子共振激发形成的,而是二束光激发分子并使之解离后形成的。图 2 是产生钾原子红外受激辐射信号时斯托克斯光的激发谱。815~885 nm 的激发范围恰好对应了 K<sub>2</sub> 分子 X<sup>1</sup>Σ<sub>g</sub><sup>+</sup>→A<sup>1</sup>Σ<sub>u</sub><sup>+</sup> 态的吸收区<sup>[6]</sup>。由于泵浦激光有较大线宽(约 2 cm<sup>-1</sup>)以及大量分子转动能级的存在,因此斯托克斯光小范围调谐时并不影响红外受激辐射信号的强度。

处于 A<sup>1</sup>Σ<sub>u</sub><sup>+</sup> 的低振动态的分子被 Rh590 激光继续激发到高位分子 g 态的离解限位

置附近。图3是Rh590激光波长调谐时的激发谱。图中四个较宽的峰的间距约为 $67\text{ cm}^{-1}$ 。我们特别注意到, $\text{K}_2$ 分子 $A^1\Sigma_u^+$ 态的 $v'=0, 1, 2, 3, 4$ 等的振动态间隔也是 $67\text{ cm}^{-1}$ 。而且从计算知,对应于上述四个峰处波长的泵浦光分别可使 $A^1\Sigma_u^+$ 态中的 $v'=1, 2, 3, 4$ (设 $J=0$ )等振动能级上的粒子激发到 $29222\text{ cm}^{-1}$ 的高度,而 $\text{K}_2$ 分子解离为 $5P_{1/2}+4S$ 或 $5P_{3/2}+4S$ 原子的解离限估计值可由文献[7]推得分别为 $29218\text{ cm}^{-1}$ 及 $29236\text{ cm}^{-1}$ 。

表1列出了实验及计算所得的第二步激

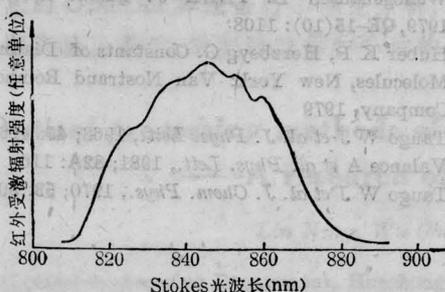


图2 产生红外受激辐射的激发谱 A

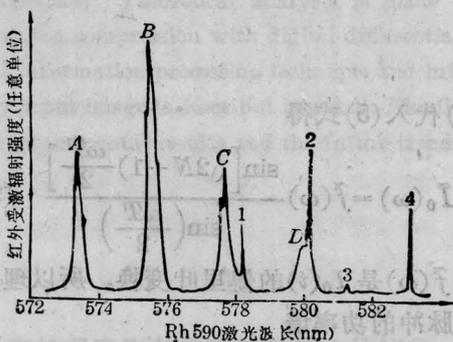


图3 产生红外受激辐射的激发谱 B

A、B、C、D—分子二步泵浦光解离信号

1、2、3、4—原子共振激发信号

表1 激光第二步激发实验值与计算值的比较

$A^1\Sigma_u^+$ 态振动态高度( $\text{cm}^{-2}$ )		振动态波数差	第二步激发波长实验值			二步泵浦后达到高度( $\text{cm}^{-1}$ )	分子解离限估计值( $\text{cm}^{-1}$ )
			波长(nm)	波数( $\text{cm}^{-1}$ )	波数差		
$v'=1$	11785.2	68.5	573.36	17436.2	67.3	29221.4	$5P_{1/2}+5S$
2	11853.7		575.58	17368.9		29222.6	29218
3	11921.8	68.1	577.84	17301.0	67.9	29222.8	$5P_{3/2}+5S$
4	11989.7	67.9	580.10	17233.6	67.4	29223.3	29236

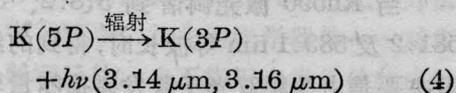
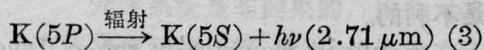
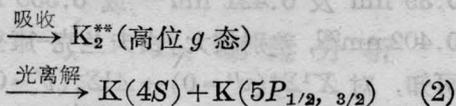
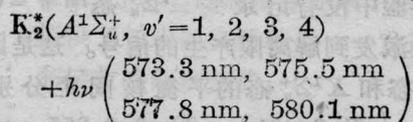
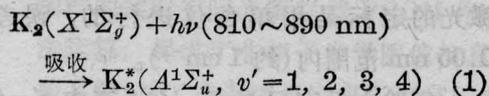
发的波长及始末能量高度。其中,对Rh590激光的定标是用单色仪进行的,误差在 $0.05\text{ nm}$ 范围内(约 $1\text{ cm}^{-1}$ )。

实验中没有记录到 $A^1\Sigma_u^+$ 态中 $v'=0$ 振动能级激发到解离限产生的信号。这是因为 $X^1\Sigma_g^+$ 态和 $X^1\Sigma_u^+$ 态的平衡核间距分别为 $0.39\text{ nm}$ 及 $0.421\text{ nm}$ <sup>[6]</sup>或 $0.355\text{ nm}$ 及 $0.402\text{ nm}$ <sup>[8]</sup>,差别较大。由弗兰克-康登原理可知,对 $X^1\Sigma_g^+(v''=0)\rightarrow A^1\Sigma_u^+(v'=0)$ 跃迁是不利的。

当Rh590激光调谐到 $578.2, 580.2, 581.2$ 及 $583.1\text{ nm}$ 等波长时,得到的红外信号主要是由等频双光子激发碰撞能量转移而产生的。以前的工作表明<sup>[2,3]</sup>,当用DCM染料激光( $640\sim 690\text{ nm}$ )作为第一步泵浦 $\text{K}_2$ 分子到 $B^1\Pi_u$ 态或 $A^1\Sigma_u^+$ 态的较高振动态时,通过分子-原子碰撞效应,可有效地使 $\text{K}$ 原子 $4P$ 能级得到布居,从而第二步由 $4P\rightarrow nD$ 或 $nS$ 共振激发后,可得到强红外信号。用斯托克斯光泵浦的实验显示出,当第一步为 $X^1\Sigma_g^+$ 态 $\rightarrow A^1\Sigma_u^+$ 态的低振动态吸收时,原子-分子碰撞使 $4P$ 能级获得布居的途径并不有效。斯托克斯光的作用只使红外受激辐射信号有微弱的增加。这有二个原因:一是 $X^1\Sigma_g^+\rightarrow A^1\Sigma_u^+$ 的振子强度要比 $X^1\Sigma_g^+\rightarrow B^1\Pi_u$ 的振子强度小<sup>[6]</sup>;另一原因是获得布居的 $A^1\Sigma_u^+$ 态的低振动态能量高度较低,约在 $12000\text{ cm}^{-1}$ 以下,而 $4P$ 能级的能量高度为 $13000\text{ cm}^{-1}$ 左右,考虑热平动能平均 $kT$ 后,能量相差仍较大,因此不足以发生到 $4P$ 能级的转移。

现在,我们将本工作所涉及的第二步激发

及光解离受激辐射过程表达为:



#### 四、结 语

利用由  $H_2$  喇曼频移管获得的斯托克斯光和染料激光共同泵浦  $K_2$  分子, 以  $K_2$  分子  $A^1\Sigma_u^+$  态的较低振动能为中间共振能级, 可

将  $K_2$  分子激发到高位分子  $g$  态的离解限高度, 由光解离产生了钾原子红外受激辐射。这不仅对受激辐射的产生机制研究, 而且对光解离过程的研究, 都是有益的。

唐小玲同志参加了部分实验工作, 在此表示衷心感谢。

#### 参 考 文 献

- 1 王祖庚 *et al.* *Opt. Commun.*, 1984; **51** (1): 155
- 2 秦莉娟 *et al.* *Laser Spectroscopy VII*, Springer Verlag, 1985: 225
- 3 王祖庚 *et al.* *Appl. Phys. B*, 1986; **B41**: 125
- 4 王祖庚 *et al.* *Opt. Commun.*, 1986;
- 5 Wellegehausen B. *IEEE J. Quant. Electr.*, 1979, **QE-15**(10): 1108
- 6 Huber K P, Herzberg G. *Constants of Diatomic Molecules*, New York: Van Nostrand Reinhold Company, 1979
- 7 Taugo W J *et al.* *J. Phys. Lett.*, 1968; **49**: 4264
- 8 Valance A *et al.* *Phys. Lett.*, 1981; **82A**: 116
- 9 Taugo W J *et al.* *J. Chem. Phys.*, 1970; **53**: 3094

(上接第 271 页)

引入随机函数  $V(t)$ , 使  $TV(t) = \delta T_n$  则得

$$I_V(t) = I_0(t) + \dot{I}_0(t)TV(t)$$

#### 附录 II 理想锁模脉冲列的功率谱

首先求出  $I_0(t)$  的频谱  $\tilde{I}_0(\omega)$  和其功率谱  $P_0(\omega)$  之间的关系

$$\tilde{I}_0(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-NT}^{NT} I_0(t) \exp(i\omega t) dt \quad (5)$$

$$G_0(\omega) = \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{1}{2N+1} \int_{-NT}^{NT} I_0(t) I_0(t+\tau) dt$$

$$(6)$$

$$P_0(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-NT}^{NT} G_0(\tau) \exp(i\omega\tau) d\tau \quad (7)$$

代入并计算得到

$$P_0(\omega) = \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{1}{2N+1} |\tilde{I}_0(\omega)|^2 \quad (8)$$

将(1)代入(5)式得

$$\tilde{I}_0(\omega) = \tilde{f}(\omega) \frac{\sin\left[(2N+1)\frac{\omega T}{2}\right]}{\sin\left(\frac{\omega T}{2}\right)} \quad (9)$$

式中  $\tilde{f}(\omega)$  是  $I_0(t)$  的傅里叶变换。所以理想锁模脉冲的功率谱

$$P_0(\omega) = \left(\frac{1}{2N+1}\right)^2 |\tilde{f}(\omega)|^2$$

$$\times \left| \frac{\sin\left[(2N+1)\frac{\omega T}{2}\right]}{\sin\left(\frac{\omega T}{2}\right)} \right|^2$$

$$= \left(\frac{2\pi}{T}\right)^2 |\tilde{f}(\omega)|^2 \sum_n \delta\left(\omega - \frac{2\pi n}{T}\right)$$

$$= \left(\frac{2\pi}{T}\right)^2 |\tilde{f}(\omega)|^2 \sum_n \delta(\omega_n) \quad (10)$$