

PTP 染料蒸气中的若干非线性过程*

丁良恩 李 敏 王祖庚

(华东师范大学物理系**, 上海 200062)

提要: 本文报道了由双光子激发 PTP(p-terphenyl) 染料蒸气产生了 340~385 nm 的受激带辐射以及检测三光子电离信号的研究结果。文中对有关的过程作了讨论。

关键词: PTP 染料, 蒸气, 非线性

Nonlinear optical processes in PTP dye vapor

Ding Liang'en, Li Min, Wang Zugeng

(Department of Physics, East China Normal University, Shanghai 200062)

Abstract: Stimulated radiation (in the wavelength range of 340~385 nm) was generated by two-photon excitation, and three-photon ionization signal via two-photon near-resonance was also measured in PTP (p-terphenyl) dye vapor. The relative nonlinear processes were discussed.

Key words: p-terphenyl, vapor, nonlinear

一、引 言

许多有机染料分子在高位区域存在着丰富的能态,尤其是一些有机染料分子的“g”宇称能态正被发现和标定,这为在有机染料分子中通过多光子泵浦过程产生紫外激光提供了可行的途径。

本文报道了在较强的 R6G 激光波段 (555~575 nm) 光场作用下,有机染料分子 PTP (para-terphenyl) 蒸气的非线性紫外辐射的产生。运用可见的双光子激发分子,得到了受激的 340~385 nm 宽带紫外辐射;由自行研制的可同时检测电离信号的热管,观察了分子在强光作用下的多光子跃迁行为,获得了分子的双光子能级增强、三光子电离等信息。文中根据实验得到的信息,对产生紫外受激辐射的能级机制进行了讨论。

二、PTP 有机染料分子

PTP 有机染料分子结构稳定,电子能态位置较高,是由三个苯环构成的属于 D_{2h} 群的

收稿日期:1990年8月14日;修改稿收到日期:1990年11月26日。

* 国家自然科学基金资助的课题;** 此工作在中科院上海光机所和华东师范大学量子光学联合开放实验室进行。

平面分子。由于具有对称中心,它所存在的组态($A_g, B_{1g}, B_{2g}, B_{3g}, A_u, B_{1u}, A_{2u}, B_{3u}$)分为“g”和“u”二类,分子的基态为 ${}^1A_{1g}$ 。对单光子激发来说 A_u 态为非光谱活性。

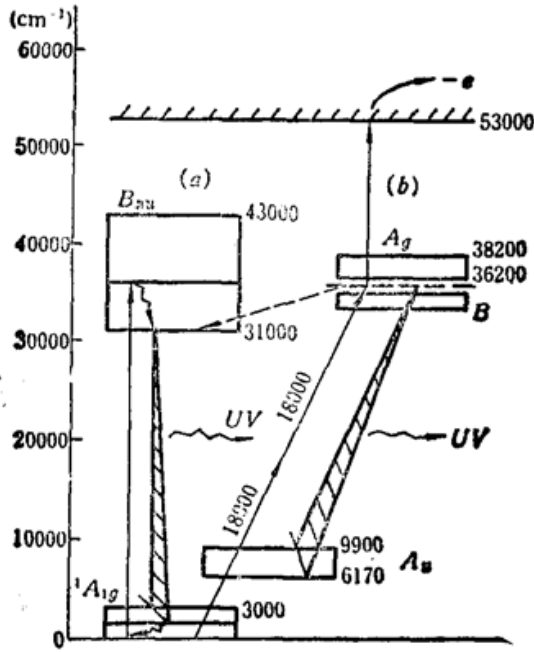


Fig. 1 Level scheme of UV generation in PTP dye vapor

(a) one-photon pumped process; (b) two-photon pumped process

PTP分子的部分能态已被研究和标定^[1,2]。分子在紫外区(31000~43000 cm^{-1})有强的单光子吸收带,它对应于 ${}^1A_{1g} \rightarrow B_{2u}$ 跃迁。由248 nm的Kr激光泵浦^[3],可产生30780 cm^{-1} (325 nm)~28170 cm^{-1} (355 nm)区内可调谐的紫外染料激光。图1(a)示出了相应的泵浦和发射跃迁,图3(a)为由此产生激光的调谐曲线。

由分子的双光子吸收和荧光的偏振特性研究^[1],得知位于36200~38200 cm^{-1} 的 A_g 态的能态宽度约为2000 cm^{-1} 。利用 A_g 态的双光子共振增强作用,由YAG的1.06 μm 基频和0.530 μm 倍频激光在PTP分子蒸气样品中混频效应,产生了波长为355 nm的紫外相干辐射,其三阶非线性极化率比一些简单分子(如NO、CO等)来说要大1~3个数量级^[3]。

用于本工作中的R6G染料激光输出的双光子能量在34000~36000 cm^{-1} 范围内,其高能区接近于 A_g 态的底部(如图1(b)所示),因而实验中由双光子激发产生的Raman散射以及三光子电离都会被 A_g 态所增强。

三、实验装置

实验装置如图2所示。泵浦源为Datachroom-5000型 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ 二倍频泵浦的染料激光器,运用R6G染料时激光可在555~590 nm范围内调谐,激光脉冲宽度为12 ns,在激光波长562 nm处输出的能量为50 mJ。光束经焦距为0.5 m的会聚透镜,聚焦入射到热管的中心区域。该热管的轴心装有电离探针,因而可同时探测光致电离信号和热管前向紫外辐射信号。热管内放置适量的PTP有机染料样品,抽真空至 10^{-4} Torr并加热到260 $^{\circ}\text{C}$,此时热管内的分子蒸气浓度约为 $4.5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 。产生的前向紫外辐射由反射镜引入44 W型光栅单色仪,并由紫外透过率为80%的UG-11滤光片滤掉可见光。信号由光电倍增管R562接收,经Boxcar信号平均器处理后由x-y记录仪记录。热管的外壳与电离探针间加上数十伏电压,从而可检测样品的多光子电离后的电离信号。

四、实验结果和讨论

当R6G强激光场(约 $10^9 \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$)双光子泵浦PTP蒸气时,在热管的前向测得了定向的紫外带辐射,其发散角与泵浦光的发射角大致相同。图3(b)是泵浦波长为562 nm时由单

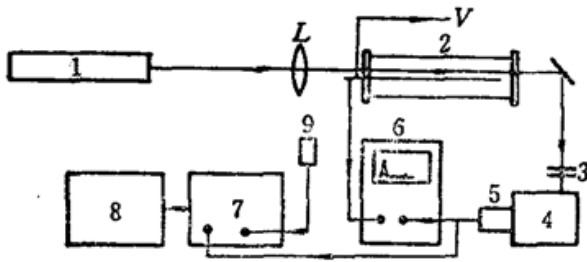


Fig. 2 Experimental set-up

1—Datachrom-5000 YAG pumped dye laser; 2—heat-pipe oven for detecting ionized signal and stimulated radiation; 3—UG-11 filter; 2—44 W grating monochromater; 5—R562 PMT; 6—oscillograph; 7—Boxcar; 8—chart recorder; 9—triggering detector

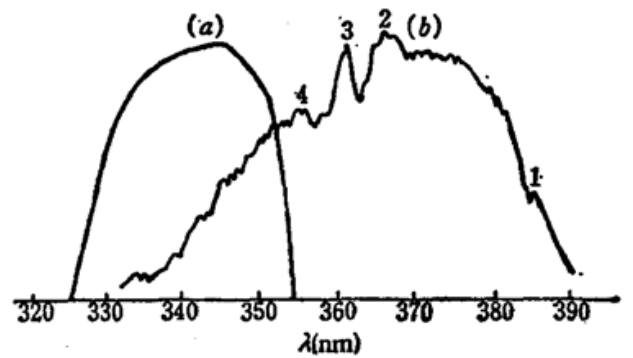


Fig. 3 UV radiation from PTP dye vapor (a) tunable range of PTP dye laser, pumping source: Kr^+ laser; (b) spectra of stimulated UV forward radiation, pumping source: R6G dye laser

色仪记录得的定向紫外带辐射 (340~385 nm) 的光谱分布。它与已报道的紫外单光子激发产生的 $B_{2u} \rightarrow ^1A_{1g}$ 受激带辐射光谱分布^[9](图 3(a))相比,辐射带更宽,且分布在较长波段处。

实验中测量了产生紫外带辐射的激发函数(如图 4(b) 所示)。在改变泵浦光波长时,所检测的是通过单色仪(狭缝为 3 mm 宽)的 365 nm 区(光谱宽度约 5 nm)的辐射信号。从 A_g 态的能态高度和宽度以及 R6G 泵浦激光双光子能量的范围来考虑,显然泵浦光没有直接将分子激发到 A_g 态,但双光子的能量(特别是 R6G 激光输出的短波区)已接近于 A_g 态的底部,所得到的带辐射信号较强。然而,随着泵浦光波长的增大,输出信号减小(见图 4(b)),这是由于对 A_g 态的失谐量逐渐增大的缘故。当泵浦波长继续增大时,带辐射信号又由小增大。这很可能是受到如图 1 所示的 B_{1g} 态近共振增强而引起的(目前尚未标识出是 B_{1g} 、 B_{2g} 还是 B_{3g})^[11]。

受到“g”态增强的双光子激发过程,使分子处于 36000 cm^{-1} 的能量高度,除了再用一个光子使之电离外,它的跃迁下能级的通道仅为 A_u 态所许可。 A_u 能态单光子激发是禁戒的,在

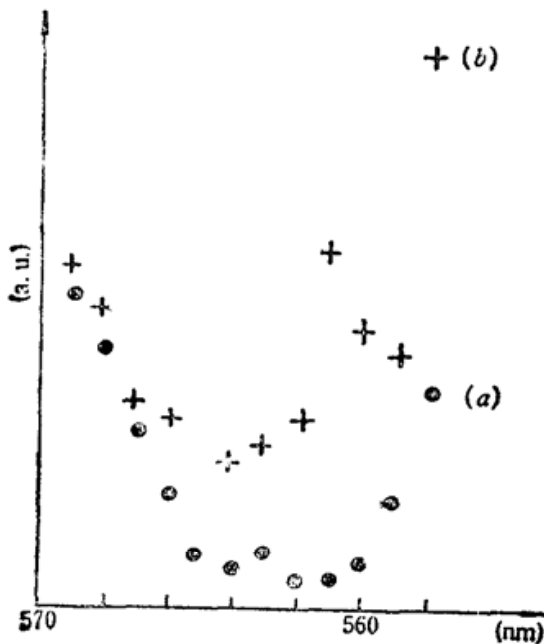


Fig. 4 Exciting spectra.

(a) two-photon resonance three-photon ionization
(b) two-photon stimulated radiation

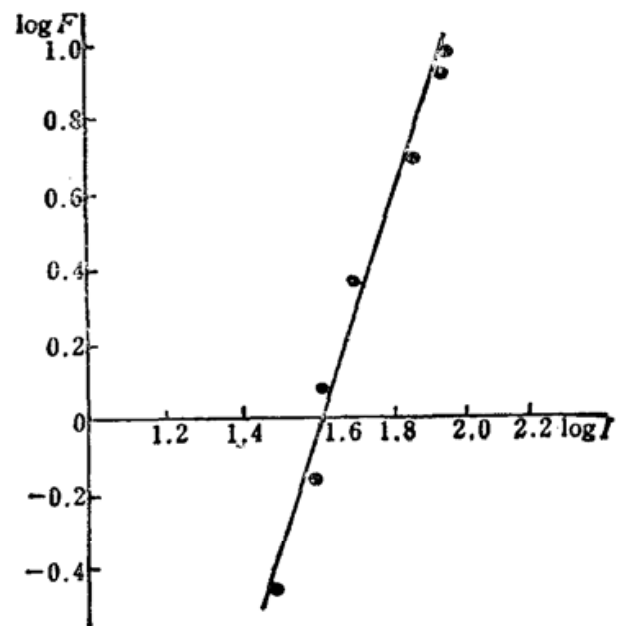


Fig. 5 Slog for multi-photon ionizations: $k \cong \partial(\log F) / \partial(\log I) k \cong 3$

强激光感应下 A_u 态不会引起布居。所以, PTP 分子在强激光作用下, 很容易在高激发电子“g”态与 A_u 态之间产生双光子喇曼受激散射。由于有机染料分子的转动能级非常密集, 仅观察到图 3(b) 所示的宽带辐射结果。根据 PTP 分子的 $[C_6H_6]_8$ 的对称性及其 D_{2h} 点群的特征标, 可以计算得到该分子的振动有

$$\Gamma^{vib} = 18 A_g + 5 B_{1g} + 17 B_{2g} + 11 B_{3g} + 6 A_u + 17 B_{1u} + 11 B_{2u} + 17 B_{3u}$$

其中 A_u 态存在 6 种振动频率, 实验结果也明显表明这些振动结构的存在。我们通过双光子激发的能量高度、紫外辐射的频率, 对结果中的可分辨的 A_u 振动态进行标定: ① 9747.39 cm^{-1} 、② 8413.27 cm^{-1} 、③ 8038.97 cm^{-1} 、④ 7575.98 cm^{-1} 。

以上的实验和讨论表明, 所测得的定向带辐射是一种受到分子的 A_g 态和 B_{0g} 态近共振增强的由双光子激发所产生的受激超 Raman 散射, 散射的终态为 A_u 态, 估计终态的能量高度为 $6170 \sim 9900 \text{ cm}^{-1}$ 。

在实验中, 在测得定向紫外带辐射的同时, 由电离探针测得了电离信号。在不用聚焦透镜会聚泵浦光束(也即较低激光强度)的实验条件下, 测量不同入射光强度 I 时的电离信号强度 F , 由公式: $k = \partial(\log F) / \partial(\log I)$ 可求得电离的阶数 $k \approx 3$, 结果由图 5 所示。此时, 前向紫外辐射信号不再具有强烈的方向性, 并且信号也很微弱。在泵浦强度为 $10 \times 10^6 \text{ W cm}^{-2}$ 的情况下, 观察电离信号强度随泵浦波长的变化, 由图 4(a) 可明显看到, 三光子电离过程同样受到 A_g 态和 B_{0g} 态的近共振增强。

文章中关于分子的振动结构得到了潘佐棣老师的指数, 特此感谢。

参 考 文 献

- 1 R. P. Drucker *et al.*, *J. Chem. Phys.*, **61**, 2609(1974)
- 2 V. I. Tomin, *Opt. Commun.*, **26**(3), 396(1978)
- 3 V. F. Lukinykh *et al.*, *Appl. Phys.*, **B38**, 143(1985)

(上接第 912 页)

感谢蔡希洁提供 KDP 晶体, 戴美兰、薛志玲、樊根良等在实验上给予的协助。

参 考 文 献

- 1 孟绍贤 *et al.*, 物理学报, **34**(9), 1220(1985)
- 2 孟绍贤 *et al.*, 光学学报, **5**(7), 640(1985)
- 3 孟绍贤, 中国光学学会 1985 年年会论文摘要汇编, 162
- 4 孟绍贤 *et al.* 核聚变与等离子体物理, **9**(2), 102(1989)
- 5 Lawrence Livermore National Laboratory 1981 Laser Program Annual Report
- 6 R. L. Byer (1977) Chapter in "Nonlinear Optics", edited by P. G. Harper and B. S. Wherret, 47~153
- 7 陈创天 *et al.*, 中国科学 B, **7**, 598(1984)
- 8 J. A. Stamper *et al.*, *Phys Rev. Lett.*, **40**(18), 1177(1978)
- 9 O. Willi, *IEEE J. Quant. Electr.*, **QE-17**(9), 1909(1981)
- 10 A. G. M. Maaswinkel *et al.*, *Rev. Sci. Instrum.*, **55**(1), 48(1984)
- 11 R. Benattar *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **45**, 1108(1980)
- 12 N. G. Basov *et al.*, Translated from Preprint No. 85 of the Lebedev Physics Institute, 1988