

双光子共振激发的电离复合产生 受激电子辐射

李永放 金海燕 郭芳霞

(陕西师范大学物理系, 西安710062)

提要: 文中报道利用双光子共振激发锂原子到 $4s$ 态, 获得了多条受激电子辐射和相干辐射, 同时观察到了高于 $4s$ 能级的 nd, ns 态 ($n > 4$) 到 $2p$ 态的跃迁, 以及从连续态到 $3s$ 态的辐射。

关键词: 锂原子, 电离复合过程

Generation of stimulated electron radiation by ionization recombination processes following two-photon resonant excitation

Li Yongfang, Jin Haiyan, Guo Fangxia

(Department of Physics, Shanxi Normal University, Xi'an)

Abstract: By two-photon resonant exciting Li-atoms to $4s$ state, a series of stimulated and coherent radiation lines were generated, also observed were the transition from continued energy-level to $3s$ state. The populated mechanisms and radiation properties were discussed and it is considered that stimulated radiations from indirect-pumped energy-level were generated by ionization recombination processes following two-photon resonant excitation.

Key words: Li-atoms, ionization recombination processes

本文报道了利用 YAG:Nd³⁺ 激光器泵浦染料激光器, 以双光子共振激发锂原子到 $4s$ 态。获得了多条受激电子辐射和相干辐射, 同时观察到了非直接泵浦而获得粒子布居的 $6s, 6d, 5s, 5d, 4d$ 到 $2p$ 态的跃迁。信号辐射波段从 300 nm 到 500 nm, 分析表明高于 $4s$ 态的能级获得粒子布居是由于双光子共振电离锂原子, 使得离子 Li^+ 和电子 (e) 的复合而实现。文中对其辐射机制和特性进行了分析和讨论。

一、实验与结果

利用 YAG:Nd³⁺ 激光器泵浦 Rhodamine 染料激光器 (Quanta-Ray, DCR-3 和 PDL-2 型), 输出脉冲频率为 10 Hz, 输出能量为 2 mJ/pulse, 脉冲宽度和线宽分别为 7 ns 和 0.3 cm^{-1} 。激光束经透镜聚焦于热管炉中心, 炉内装有 10 g 纯锂样品, 并充 10 Torr 氩气体为缓冲气体。

炉长 70 cm, 加热区为 25 cm。入射和出射窗装有石英玻璃窗片, 炉温由温控仪控制在 800°C 左右。此时炉内锂原子浓度约为 $2 \times 10^{16}/\text{cm}^3$ 。信号经单色仪(44 W 型, 分辨率为 0.1 nm)分光后, 由 PbS 或光电倍增管接收并送积分仪(Model SR 250 型)处理送示波器观察或由记录仪(XWT-164 型)记录。装置如图 1 所示。

调谐激光频率到 2s-4s 光子共振频率 ω_P (17506 cm^{-1} , $\lambda_P = 571.07 \text{ nm}$) 激发锂原子, 使得 4s 态获得大量粒子布居。从而在 4s-3p, 4s-2p, 以及 3p-3s, 3s-2p 间形成粒子反转而产生受激电子辐射, 及部分信号与泵浦光混频产生的 323.3 nm、319.5 nm、440.3 nm、670.8 nm 的相干辐射, 同时我们观察到了高于 4s 态的通过非直接泵浦而获得粒子布居 nd 、 ns ($n \geq 4$) 到 2p 态的跃迁, 及连续态 ap 到 3s 态的跃迁。实验结果具有很好的重复性且大部分信号很强。实验结果见表 1。

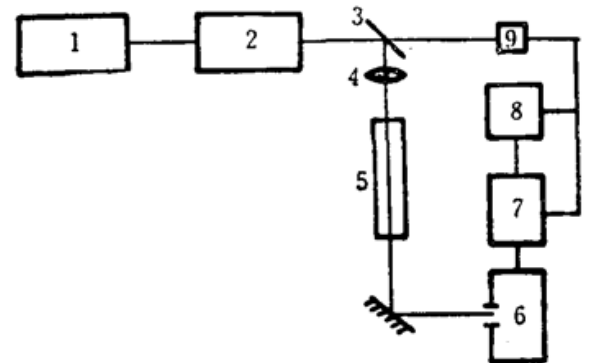


Fig. 1 Experimental setup

1—YAG:Nd³⁺ laser; 2—dye laser; 3—splitter; 4—lens; 5—heat-pipe oven; 6—monochromator; 7—Boxcar; 8—oscilloscope; 9—triggering detector

Table 1 Experimental results

Excited mechanics	Emission process	Wavelength
$\text{Li}(2s) + 2h\nu(\lambda_p = 571.07 \text{ nm}) \rightarrow \text{Li}^*(4s) + \text{Li}(2s)$	4s-2p	497.2 nm
	4s-3p	2.446 μm
	3p-3s	2.687 μm
	3s-2p	812.6 nm
	$\omega_L = 2\omega_p - \omega_s(4s-3p)$	323.3 nm
	$\omega_L = 2\omega_p - \omega_s(4s-2p)$	670.8 nm
	$\omega_L = 2\omega_p - \omega_s(3s-2p)$	440.3 nm
	$\omega_L = 2\omega_p - \omega_s(3p-3s)$	319.5 nm
$\text{Li}(2s) + 2h\nu(\lambda_p = 571.07 \text{ nm}) \rightarrow \text{Li}^*(4s)$ $\text{Li}^*(4s) + h\nu \rightarrow \text{Li}^- + e$	6d-2p	391.5 nm
	5d-2p	413.3 nm
	4d-2p	460.3 nm
	6s-2p	398.6 nm
	5s-2p	427.3 nm
	ap-3s	395.0 nm

实验中观察了当温度变化时信号受到的影响。当 $T = 600^\circ\text{C}$ 时, 由于温度比较低, 信号的强度很弱, 且 6s-2p 的跃迁消失。而 ap-3s 态跃迁仍然很强。随着温度的升高, 信号的强度逐渐增加, 当 $T = 800^\circ\text{C}$ 时观察到了 6s-2p 态的跃迁信号, 且信号强度最大。当温度继续升高时信号强度变化不大。

若改变泵浦光频率使其偏离双光子共振激发频率 ($2s-4s$, $2\omega_P = 35012.06 \text{ cm}^{-1}$) 形成离共

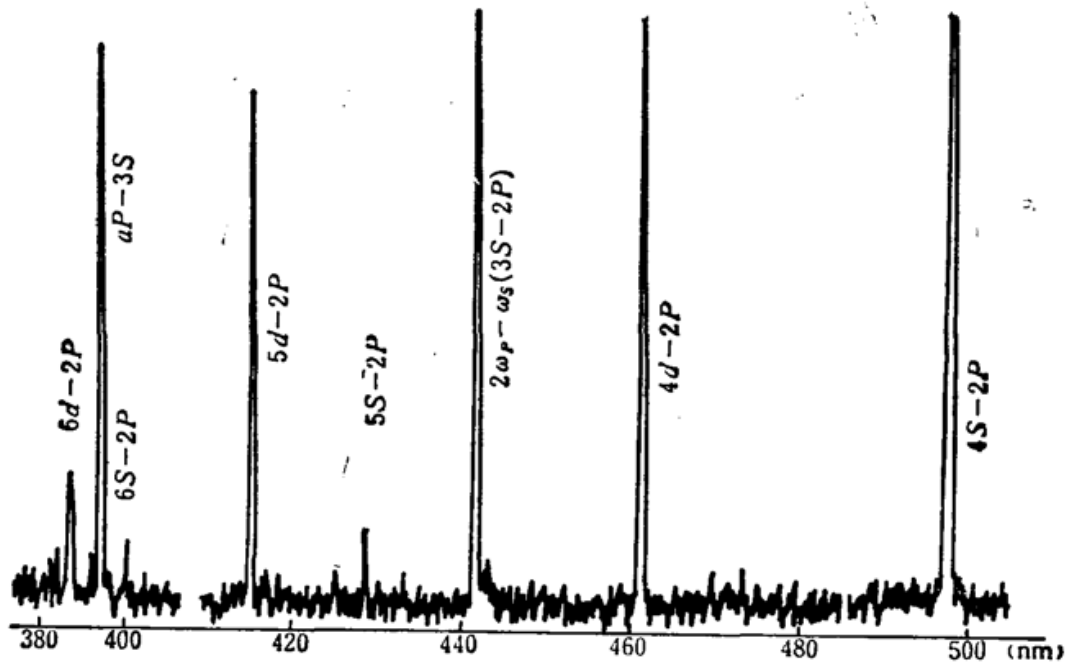


Fig. 2 Stimulated and coherent emission spectra

振的双光子激发,当调谐泵浦光频率大于共振激发频率时,观察到信号由于离共振量的增大而迅速减小,当 ω_P 增加到 17511.1 cm^{-1} ($\lambda_P = 570.9 \text{ nm}$)时只观察到 $5d-2p$, $4d-2p$, $4s-2p$ 和 $ap-3s$ 的受激辐射跃迁。当继续增加 ω_P 时所有信号消失。相反,当泵浦光频率减小时,信号的变化相对要缓慢些,随着 ω_P 的减小,部分信号开始消失,当 $\omega_P = 17498.8 \text{ cm}^{-1}$ ($\lambda_P = 571.3 \text{ nm}$)时信号强度大大减小,且 $6s-2p$ 、 $5s-2p$ 跃迁信号消失。在离共振激发情况下没有观察到 $ap-3s$ 跃迁频率变化。受激辐射信号发散角经测定约为 8 mrad 。从离共振激发情况看,信号对双光子共振激发有着很强的依赖关系。只有在严格共振激发情况下,信号强度最大,如图3所示。

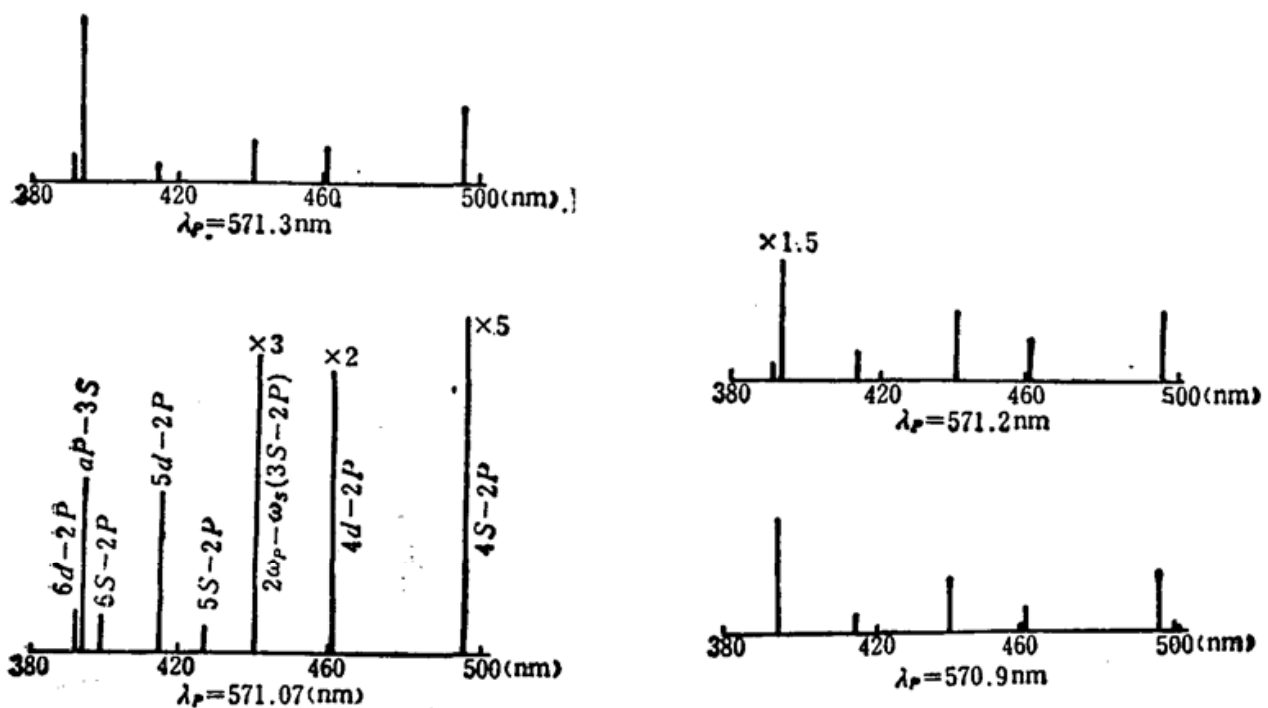


Fig. 3 Intensity of the stimulated emission at different excitation wavelength

二、激发机理与辐射特性分析

1. 非直接泵浦使得能级获得粒子布居可以有多种方式。主要有碰撞的能量转移过程、Energy-pooling 过程、电离复合过程。

利用碰撞的能量转移过程只能在相近的能级之间才更有效，在锂原子中获得粒子布居的 $ns, nd (n \geq 4)$ 能级中距 $4s$ 态最近的 $4d$ 能级，其两能级间能量差为 1611.34 cm^{-1} ，相距最远的 $6d$ 能级与 $4s$ 能级能量差为 4975.58 cm^{-1} ，在几千波数之间的能量转移过程的有效性是很差的。

而 Energy-pooling 过程为使高于 $4s$ 态的能级获得粒子布居可表示为

$$\text{Li}^*(4s) + \text{Li}^*(4s) \rightarrow \text{Li}^*(M) + \Delta E \tag{1}$$

$$\text{Li}^*(N) + \text{Li}^*(N) \rightarrow \text{Li}^*(M) + \Delta E \tag{2}$$

其中 M 表示能态高于 $4s$ 态的能级； N 为能量大于 $3s$ 态的具有粒子布居的任何态。在这两种过程中，要求遵守能量守恒定律，使得此过程中剩余能量以热运动方式转化。在(1)、(2)式中， $4s$ 态的粒子数最多，在此过程中要求大部分的能量要转化为热能，而其它态的粒子布居则要少得多，因此利用上述过程使高于 $4s$ 态的能级获得粒子布居不是主要途径。

2. 利用双光子共振激发 Li 原子到 $4s$ 态，使得 $4s$ 态获得大量粒子布居后，再吸收一个光子使得锂原子被电离。由于双光子共振激发时，激发截面很大，因此这种激发方式在 Li 蒸气中的激活区内，大量锂原子被电离形成 Li^+ 和电子 e ，处于这种状态的 Li^+ 离子和电子 e 经过碰撞复合过程，形成处于激发态的中性原子，其复合过程可以写成^[1]：

$$\text{Li}^+ + e + e \rightarrow \text{Li}^* + e \tag{3}$$

$$\text{Li}^*(N) + e \rightarrow \text{Li}^*(M) + e \tag{4}$$

$$\text{Li}^* \rightarrow \text{Li}^{*'} + h\nu \tag{5}$$

Li^+ 和两个电子相互作用时，其中一个电子与 Li^+ 复合成处于激发态的中性原子，另一个电子带走多余能量以满足能量守恒关系。另外，处于某激发态的原子与电子相互作用而转移到另外的电子态，这期间电子起了能量转移的作用，它可以使 N 态升高，也可以使其降低。

复合过程是三体复合过程，由于 Li^+ 和电子 e 的复合，使得 Li^+ 衰变到中性原子的激发态。而电子的热运动速度不同，决定了它们具有不同的能量，在复合过程中损失的能量不同而复合到不同的原子态。

3. 温度的变化对复合过程有很大的影响。由于温度的变化直接影响粒子数 n_0 的变化，温度低时 n_0 小，这样被激发和电离的粒子数也随着下降，而影响复合过程的进行，使得信号强度大大下降。同时温度的变化也影响了电子速度分布与复合过程有关的电子温度 T_e ，从而影响复合过程进行。

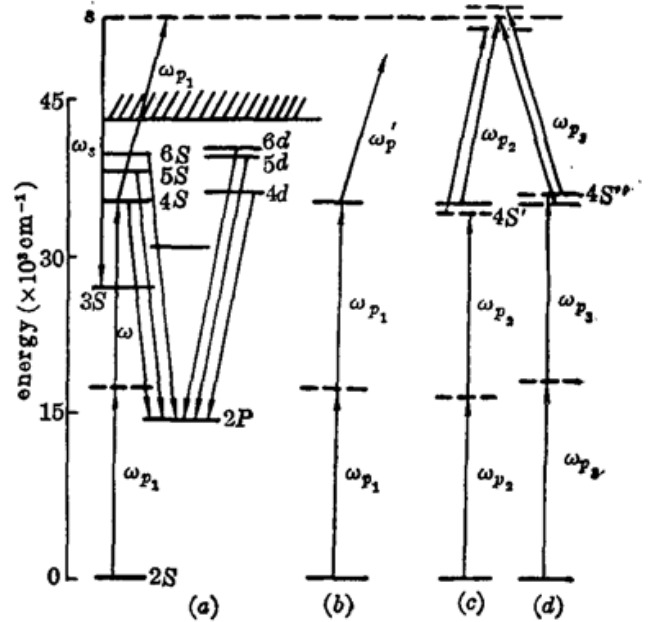


Fig. 4 Mechanism diagram of the two-photon excited Li-atoms

三 讨 论

本工作与 R. S. McDowell 等人^[1]的结果有一定差异。但我们认为本文结果较可靠。因为,我们得到的带头位置与 Q 支的高分辨光谱的带头位置是一致的,实际上他们依据的 FT 光谱分辨率($\sim 0.05 \text{ cm}^{-1}$)较低,除仪器本身线位精度较差外,由于大量热带跃迁及其它谱线的存在(高分辨光谱表明,很多这类跃迁是相当强的),亦将影响对 ν₂+ν₄ 带谱线位置的测量。此外,他们在分析中采用了 P(30~64)和 R(9~60)共 71 条转动线的光谱数据。但我们的分辨光谱表明,其中大部分转动簇存在明显分裂,即张量项已产生明显影响,因此也必将影响转动线的重心位置,影响拟合结果。而这些问题,在本工作中均得以避免。

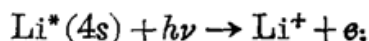
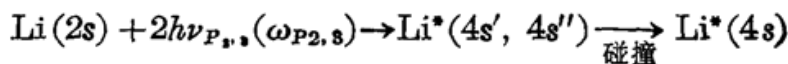
参 考 文 献

- 1 R. S. McDowell *et al.*, *Spectrochim. Acta*, **42 A**, 351(1986)
- 2 W. G. Harter, *Phys. Rev. A*, **21**, 192(1981)
- 3 W. B. Olson *et al.*, *Phys. Chem. Ref. Data*, **10**(4), 1065(1981)
- 4 C. W. Patterson *et al.*, *J. Mol. Spectrosc.*, **76**, 457(1979)
- 5 K. C. Kim *et al.*, *J. Mol. Spectrosc.*, **76**, 322(1979)
- 6 Li Baozhong *et al.*, *Spectrochim. Acta*, **43 A**, 1361(1987)
- 7 J. Moret-Bailly, *J. Mol. Spectrosc.*, **15**, 344(1965)
- 8 K. T. Hecht, *J. Mol. Spectrosc.*, **5**, 355(1960)
- 9 J. Moret-Bailly, *Cah. Phys.*, **15**, 237(1961)
- 10 C. W. Patterson *et al.*, *J. Mol. Spectrosc.*, **80**, 71(1980)

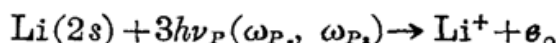
(上接第 530 页)

在离共振激发情况下,由于激发光偏离共振能级从而使得激发的几率大大下降,影响了 Li 原子的电离速率,使得复合信号下降,其过程分为:

(a) 在离共振激发情况下,可以使得粒子通过碰撞转移到 4s 态,然后再吸收一个光子电离,如图 4(a), (b) 所示,即



(b) 可以使 Li 原子直接吸收三个光子电离:



上述两种过程都存在,但前者的几率要大于后者。实验中当泵浦波长离共振很大时,所有信号消失。同时,后一种情况下 ω_{P_{1,2}} 的离共振量的叠加会产生很大的能量差 ΔE,而这样大的变化范围是可以观察到 ω_s = ap - 3s 跃迁的频率变化情况,而第一种情况 (a) 对 ap 态的 ΔE 量要小得多,只能是最后电离的光子起作用,因此在实验中很难观察到 ap - 3s 态跃迁的频率变化,这种情况与实验结果吻合。

参 考 文 献

- D. R. Bates, F. R. S. A. E. Kingsten, *Proc. Roy. Soc. London*, **A267**, 297(1962)