

由锂分子高位三重态跃迁产生的 435.0~445.0 nm 扩散带受激辐射*

李永放** 金海燕 秦莉娟 沈建琪 王祖庚

(中国科学院上海光机所、华东师范大学量子光学联合实验室, 201800)

摘要: 本文报道了以 590.0~625.0 nm 宽波段范围内任何波长的脉冲激光双光子激发锂分子, 均可产生 435.0~445.0 nm 扩散带受激辐射的实验结果, 对激发和发射机制进行了讨论。

关键词: 双光子激发, 二步激发, 扩散带受激辐射

Generation of 435.0~445.0 nm diffuse band stimulated radiation corresponding to the transition from high-lying triplet-states in Li_2

Li Yongfang, Jin Haiyan, Qin Lijuan, Shen Jianqi, Wang Zugeng

(Joint Laboratory for Quantum Optics, Shanghai Institute of Optics & Fine Mechanics, Academia, Sinica, and East China Normal University, Shanghai 201800)

Abstract: 435.0, 445.0 nm diffuse band stimulated radiation was generated for the first time by two-photon excitation with any pumping wavelength between 590.0~625.0 nm in Li_2 . The excitation and radiation mechanisms were discussed.

Key words: two-quantum excitation, two-step excitation, diffuse band stimulated radiation

一、引言

在钠分子中, 由单光子或双光子共振激发钠原子 $3P$ 态或 $4D$ 、 $4F$ 等高位原子态以及双光子激发钠分子高位态, 已获得了位于紫外和紫区的扩散带受激辐射^[1~4]。在钾分子中, 由单光子激发钾分子的 $\sigma^1\Pi_u$ 态或离共振激发钾原子的 $4P$ 态, 产生了黄色扩散带荧光辐射^[5~7]。对于锂分子, 以双光子共振激发锂原子 $4S$ 态, 产生了 $2^3\Pi_g - \alpha^3\Sigma_u^+$ 跃迁的蓝区扩散带受激辐射^[8]; 通过紫外单光子激发锂分子的 $\sigma^1\Pi_u$ 态或借助于 $A^1\Sigma_u^+ \sim b^3\Pi_u$ 混合能级的光—光双共振激发锂分子的 $2^3\Pi_g$ 、 $3^3\Sigma_g^+$ 等高位三重态, 产生了 $3^3\Sigma_g^+ - 2^3\Pi_g - \alpha^3\Sigma_u^+$ 跃迁的扩散带荧光辐射^[9, 10]; 我们曾用 620.0~660.0 nm 区的脉冲染料激光双光子泵浦锂分子, 产生了 455.0~465.0 nm 扩散带受激辐射, 还通过双光子共振激发锂原子的 $4S$ 态, 获得了 407.0~418.0 nm 扩散带受激

收稿日期: 1991年1月25日; 修改稿收到日期: 1991年5月8日。

* 国家自然科学基金资助课题, ** 陕西师范大学物理系。

辐射^[11]。

本文报道了以 590.0~625.0 nm 宽波段范围内任何波长的脉冲激光双光子激发锂分子高位态。获得 435.0~445.0 nm 扩散带受激辐射的结果,同时也观测到 445.0~467.0 nm 区的扩散带受激辐射。

二、实验装置

实验中,以 YAG 激光泵浦的 R610/R640 染料激光作为泵浦源,激光输出可在 585.0~630.0 nm 波段范围内调谐,最大输出能量约 5 mJ。在长约 90 cm(加热区为 30 cm)的热管炉内加入约 20 g 纯锂样品,并充入 0~8000 Pa 缓冲气体 He,样品的典型加热温度为 900°C。泵浦激光由透镜聚焦于热管炉的中心。热管前向出射的定向辐射由光纤导入 0.5 m 光栅单色仪,经分光后由光电倍增管接收,信号经处理系统后,由记录仪记录。

三、实验结果和讨论

将泵浦波长调谐到 590.0~625.0 nm 波段内任意波长处,均观测到了 435.0~445.0 nm

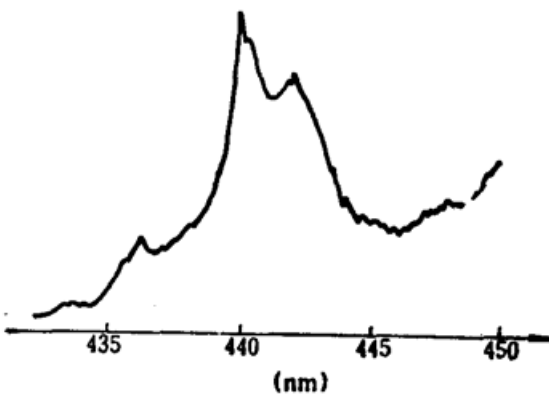


Fig. 1 435.0~445.0 nm radiation band of Li_2 . Pumping wavelength: 600.0 nm; buffer gas pressure: 4000 Pa; temperature: 920°C

区的扩散带定向辐射。经实验测定,从热管炉前向出射的该蓝区扩散带辐射的发射角略大于泵浦激光发射角。图 1 示出了在泵浦波长为 600.0 nm、缓冲气压为 4000 Pa、温度为 920°C 时所记录得的辐射谱,其峰值位于 440.0 nm 附近,带宽约为 10 nm 左右(435.0~445.0 nm)。

随着泵浦波长的变化,该辐射带的强度会有所变化,但辐射带的波段位置不变,带的形状也无变化。这表明,尽管分子在不同波长激光的激发下抵达了不同的高位分子能级,但上述扩散带辐射却是对应了一些固定的分子能级到基三重态的跃迁(这一点下文还将讨论)。

图 2 示出了在缓冲气压为 4000 Pa、泵浦波长为 598.0 nm 时,该辐射带随温度的变化情况。由图可见,除了这个新产生的受激辐射带之外,还可同时记录到早先使用 DOM 染料激光泵浦时所观测到的位于 458.0 nm 区的辐射带,其带宽更大(445.0~467.0 nm),峰值位置在 455.0 nm 附近。值得注意的是,随着温度的升高,两个辐射带的强度均有所增强,即带宽无明显变化,但两辐射带的增强有所不同。在 650°C 时,由于分子浓度过低而仅存在位于 460.2 nm 处的锂原子 $4D-2P$ 辐射线,无任何分子带辐射。当温度升高到 750°C 时,435.0~445.0 nm 区与 445.0~467.0 nm 区辐射带已明显可见,但前者较弱。温度升高到 840°C 时,两辐射带的强度已几乎相当。根据文献[11],我们注意到,从高位三重态较高位的振转能级向基三重态的受激跃迁可使 445.0~467.0 nm 辐射带伸延到短于 445.0 nm 的波段,且随着温度的升高,较高位振转能级的粒子布居数增多,辐射带上相应的短波部分也有所增强。435.0~

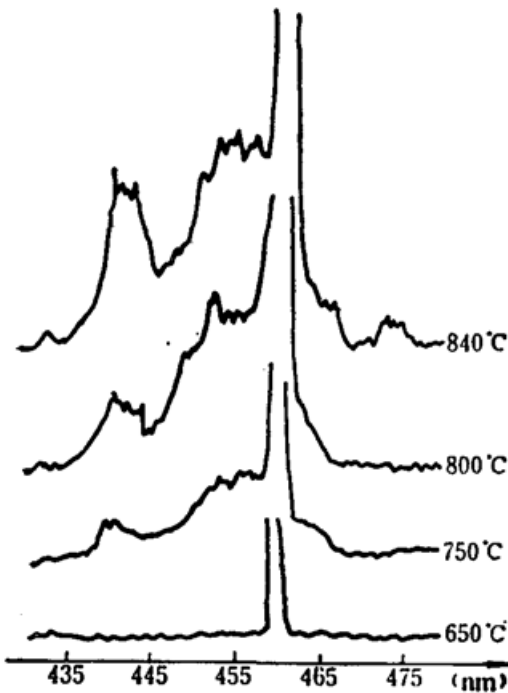


Fig. 2 Dependence of 435.0~445.0 nm and 445.0~467.0 nm radiation bands of Li_2 on temperature. Pumping wavelength: 598.0 nm; buffer gas pressure: 4000 Pa

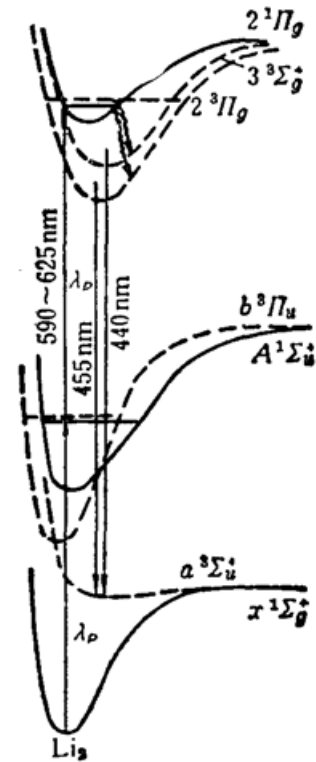


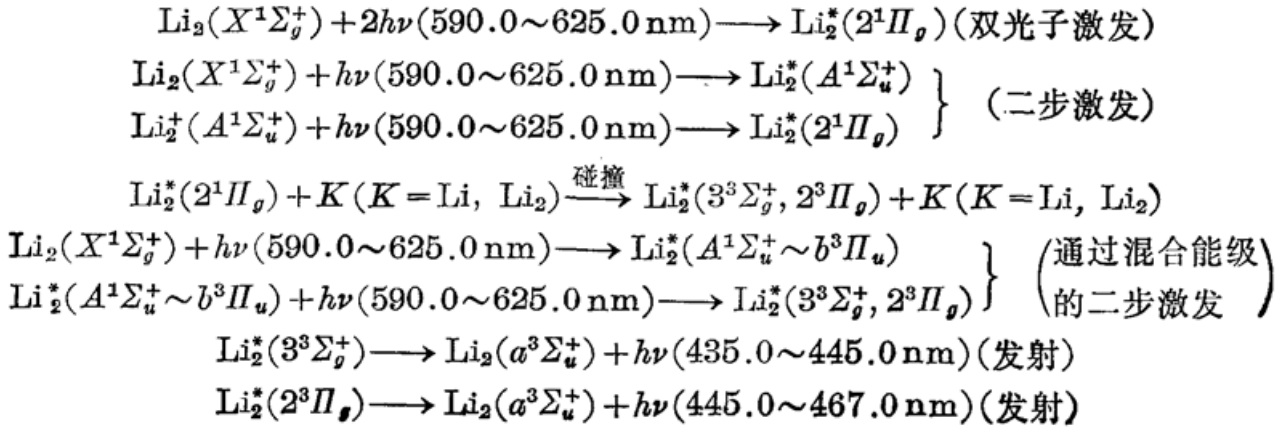
Fig. 3 Schematic diagram of diffuse band stimulated radiation generated by two-photon or two-step exciting lithium dimer

445.0 nm 辐射带长波部分与 445.0~467.0 nm 辐射带的短波部分有一定的迭加, 形成了随温度增加而增加的“背底”。

将泵浦波长固定在 598.0 nm, 我们还观测了缓冲气压对上述两扩散带的影响。实验发现, 当温度一定时(如 750°C), 缓冲气压由 0 Pa 增加到 1330 Pa 左右时, 辐射带略有增强, 缓冲气压大于 1330 Pa 后, 随着缓冲气压的升高, 辐射带强度下降, 至 8000 Pa 时, 辐射带已很弱, 这时升高热管炉温度至 800°C, 所得辐射带的强度才能与 1330 Pa、720°C 条件下的辐射带强度相当。可见, 随着缓冲气压的升高, 产生辐射带的最佳温度也升高。无缓冲气体时, 最佳温度为 720°C 左右, 在 4500 Pa 时, 最佳温度约为 860°C。

图 3 画出了锂分子的部分势能曲线以及有关的激发和发射跃迁。锂分子吸收一个在 590.0~625.0 nm 区的泵浦光子, 由基态 $X^1\Sigma_g^+$ 跃迁到 $A^1\Sigma_u^+$ 态, 而第二个泵浦光子可将锂分子从 $A^1\Sigma_u^+$ 态激发到高位单重态 $2^1\Pi_g$, 这是一个二步激发过程。在这宽范围波段中的任何波长, 均处于锂分子的 $X^1\Sigma_g^+ - A^1\Sigma_u^+$ 和 $A^1\Sigma_u^+ - 2^1\Pi_g$ 吸收带内。当然, 通过双光子激发, 处于基态的锂分子也可直接跃迁到 $2^1\Pi_g$ 态(这时, $A^1\Sigma_u^+$ 态是中间增强能态)。而后, 通过熟知的 $\text{Li}_2 - \text{Li}$ 和 $\text{Li}_2 - \text{Li}_2$ 碰撞能量转移过程, 可使高位三重态 $2^3\Pi_g$ 和 $3^3\Sigma_g^+$ 获得布居。另一个使高位三重态获得布居的途径是锂分子吸收一个光子后抵达 $A^1\Sigma_u^+ \sim b^3\Pi_u$ 的混合能级, 然后再吸收一个光子而直接跃迁到高位三重态^[10]。锂分子的 $3^3\Sigma_g^+$ 和 $2^3\Pi_g$ 态的 T_0 值分别为 31149 cm^{-1} 和 30300 cm^{-1} ^[12, 13], 由这两个高位三重态的低振转能级到基三重态 $a^3\Sigma_u^+$ (准排斥态, 其 T_0 值约为 8355 cm^{-1} ^[13]) 的跃迁波长正好分别位于 440.0 nm 和 455.0 nm 附近。我们已经从理论上和实验上确认 455.0 nm 扩散带是由 $2^3\Pi_g$ 低振转能级向 $a^3\Sigma_u^+$ 的跃迁所致^[11]。由上述实验

结果, 参考文献[10]中的讨论并运用文献[12, 13]提供的数据, 我们认为, 实验中所记录到的位于 440.0 nm 区的扩散带受激辐射是 $3^3\Sigma_g^+ - a^3\Sigma_u^+$ 受激辐射跃迁而产生的。锂分子吸收 590.0 ~ 625.0 nm 波段两个泵浦光子后, 可从基态 $X^1\Sigma_g^+$ 的底部跃迁到位于 $32000 \sim 33900 \text{ cm}^{-1}$ 的高位态振转能级, 通过碰撞和弛豫等过程, $3^3\Sigma_g^+$ 及 $2^3\Pi_g$ 态的低振转能级可获得布居^[2, 11]。我们可将所涉及的激发、碰撞能量转移和发射过程归结表达为



参 考 文 献

- 1 Z. G. Wang, L. S. Ma *et al.*, *Opt. Commun.*, **58**, 315 (1986)
- 2 王祖庚, 张开昌 *et al.*, *光学学报*, **6**, 1081 (1986)
- 3 C. Y. R. Wu, J. K. Chen *et al.*, *Opt. Commun.*, **48**, 28 (1983)
- 4 J. T. Bahns, W. C. Stwalley, *Appl. Phys. Lett.*, **44**, 826 (1984)
- 5 林毅东, 孙献平 *et al.*, *激光杂志*, **9**, 141 (1988)
- 6 S. Milosevic, P. Kowalczy *et al.*, *J. Phys. B*, **20**, 2231 (1987)
- 7 S. Milosevic, G. Pichler, *Chem. Phys. Lett.*, **128**, 145 (1986)
- 8 H. H. Wu, T. C. Chu *et al.*, *Appl. Phys. B*, **43**, 225 (1987)
- 9 J. T. Bahns, W. C. Stwalley *et al.*, *J. Chem. Phys.*, **90**, 2841 (1989)
- 10 X. Xie, R. W. Field, *J. Mol. Spectro.*, **117**, 228 (1986)
- 11 Y. F. Li, J. Q. Shen *et al.*, *Chinese Phys. Lett.*, **8**, 176 (1991)
- 12 I. Schmidt-Mink, W. Muller *et al.*, *Chem. Phys.*, **92**, 263 (1985)
- 13 D. D. Konowalow, J. L. Fish, *Chem. Phys.*, **84**, 463 (1984)