

镱蒸气中由二步光泵和碰撞能量转移 产生的受激辐射

陈 德 董正泓 王祖赓

(华东师范大学物理系, 上海 200062)

摘要: 用一台氮分子激光器同时泵浦两台染料激光器, 以两步激发的方式, 分别将稀土镱原子激发至高位单重态和三重态, 由此获得了一系列范围从红外到紫外的受激辐射信号。这些受激辐射分别来自单重态的跃迁、三重态间的跃迁以及单-三重态间的辐射跃迁。文章对这些受激辐射的产生过程进行了详细的讨论。此外还测定了单重态和单-三重态间的吸收系数之比以及能级间的碰撞转移几率之比。

关键词: 镱蒸气, 碰撞能量转移, 受激辐射

Stimulated radiation generated by two-step pump and collision energy-transfer in ytterbium vapour

Chen De, Dong Zhengong, Wang Zugeng

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

Abstract: A series of stimulated radiation signals covering from infrared to ultraviolet ranges were generated when atomic ytterbium was pumped to high lying singlet and triplet states with two dye lasers excited simultaneously by a N_2 laser using two-step pump. These stimulated lines are from radiative transitions between singlet states, triplet states and singlet-triplet states respectively. The generation processes of these stimulated lines were discussed in detail. Besides, the ratio of the absorption coefficients between singlet states and singlet-triplet states, and that of probability of collision energy-transfer were measured.

Key words: Ytterbium vapour, collision energy-transfer, stimulated radiation

一、引 言

人们已对金属蒸气中受激辐射的产生进行了大量的研究, 但大多数工作都集中在碱金属、碱土金属和过渡族金属。相比之下, 对稀土金属蒸气的工作进行得较少。由于稀土金属在开发新材料等方面有重要的意义, 因此对它们的研究有着特殊的作用。镱原子是结构较为简单的一种稀土元素。对它进行研究所采用的方法和获得的有关结果, 有可能进一步推广到其他

稀土元素。

Oahuzac 用放电激发方式在镱蒸气中记录了位于 $1\sim 5\mu\text{m}$ 共十条红外受激辐射谱线^[1~3]。Klimkin 用类似的方法观察到了由 YbI, YbII 发射的另外六条受激辐射谱线^[4]。两步光激发和双光子(或三光子)激光是研究原子里德堡态的常用激发方式,这类激发方式已被用于测量 Yb 原子里德堡态的结构和光谱^[5~7]。

本文作者用一台 N_2 激光器同时激励两台染料激光器,通过两步激发镱原子蒸气,获得了由镱原子发射的数十条位于红外、可见和紫外波段的受激辐射。本文对有关的激发和发射机制作了较为详细的讨论,并测定了某些特定能级间的吸收系数之比和碰撞转移几率之比。

二、实验装置

如图 1 所示,实验时,用一台输出能量为 $2\sim 3\text{mJ}$ 、脉冲宽度为 9ns 的 N_2 激光器同时泵浦两台染料激光器。通过光学系统,将两束染料激光共线地聚焦于热管炉(长为 75cm , 加热区为 22cm 的陶瓷管)的中心。样品产生的多波段辐射信号沿热管炉前向出射后引入光栅单色仪分光(单色仪分辨率 0.1nm),并用 PbS 探测器和光电倍增管分别探测红外、紫外和可见信号,经采样积分仪处理后由示波器观察。

实验中, PBBO 染料激光(输出波长 398.8nm)将镱原子从基态 ($6s^21S$) 激发到第一激发态 ($6s6p^1P$),而 Coumarin 540A^F 染料激光(输出波长为 518.2nm)及 DOM 染料激光(输出波长为 667.0nm 或 677.0nm)又分别将镱原子从 ($6s6p^1P$) 态激发到 ($6s7d^1D$) 或 ($6s7d^3D$) 态及 ($6s6d^1D$) 或 ($6s6d^3D$) 态。经测定,由热管出射的辐射信号的发散角约 8mrad ,与通过光学系统后的泵浦光束的发散角近似相等。产生受激辐射的温度阈值和泵浦能量阈值分别为 470°C 和 $30\mu\text{J}$ 。

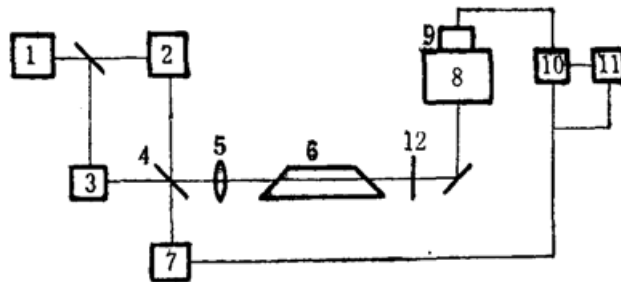


Fig. 1. Experimental set-up

1— N_2 laser; 2, 3—dye lasers; 4—beam splitter; 5—lens; 6—heat-pipe oven; 7—trigger; 8—monochromator; 9—detector; 10—Boxcar; 11—chart recorder and oscilloscope; 12—filters

三、实验结果与分析

(一) 二步激发产生的受激辐射

在加热温度为 600°C 、缓冲气体 He 气压为 50Torr 的条件下,由如图 2 和图 3 所示的二步激发,分别使镱原子的高位单重态 ($6s7d^1D$) 和高位三重态 ($6s7d^3D_2$) 获得布居,从而观察到一系列属于单重态间跃迁、三重态间跃迁和单-三重态间跃迁的受激辐射信号,输出波段位于紫外到近红外区。所有这些测得的受激辐射信号波长及其所对应的跃迁都详细地列在表 1

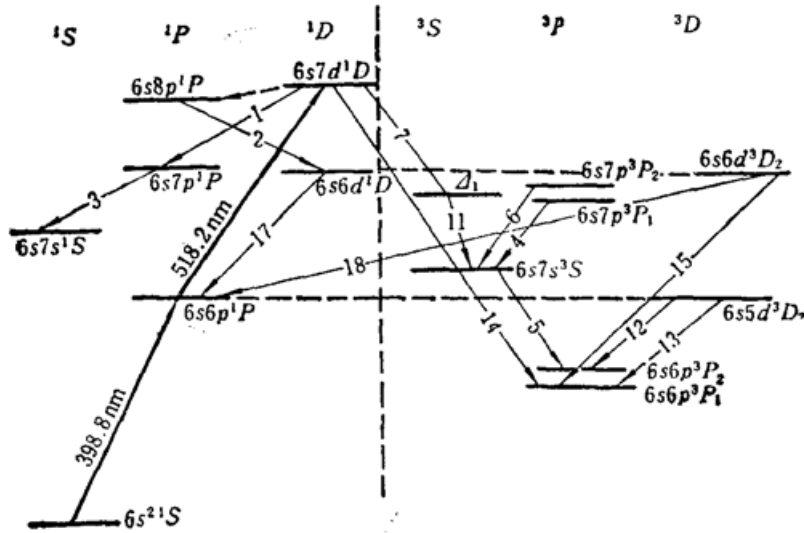


Fig. 2 Level scheme of the generation of stimulated radiation through singlet-singlet-singlet states two-step excitation

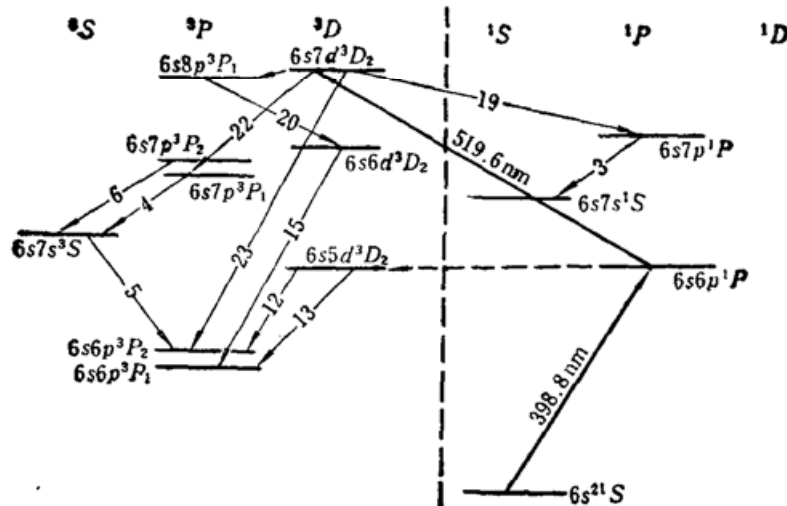


Fig. 3 Level scheme of the generation of stimulated radiation through singlet-singlet-triplet states two-step excitation

中。由两步激发后(第二步激发波长为 518.2 nm 或 519.6 nm) 所得的受激辐射信号的能量在几十毫微焦量级。图 2 和图 3 中也示意了相应的各辐射跃迁。

1. 单重-单重态以及三重-三重态之间的受激辐射

如图 2 所示, 继 $(6s^{21}S) \rightarrow (6s6p^1P) \rightarrow (6s7d^1D)$ 二步共振泵浦后, 信号 1 和 3 对应于单重-单重态之间的受激跃迁和串级受激跃迁。而图 3 中所示的辐射信号 4、5、22、23 等是继 $(6s^{21}S) \rightarrow (6s6p^3P) \rightarrow (6s7d^3D_2)$ 二步泵浦所产生的三重态之间的受激和串级受激跃迁。

2. 单重态-三重态之间的受激辐射

图 2 中所示的辐射信号 7、14、18 以及图 3 中所示的辐射信号 19 分别由单重-三重态以及三重-单重态之间的受激跃迁产生。对于象铯这类原子序数大的原子来说上述跃迁过程是容易产生的^[8]。

3. 近共振碰撞能量转移所产生的受激辐射

实验中, 测得了许多由近共振碰撞能量转移所产生的受激辐射, 现择其中的若干加以讨论。

Table.1 The wavelengths, relative intensity and corresponding transitions of the stimulated emission signals measured in the experiment (pump wavelength for the first step: 398.8nm; that for the second step: 518.2nm or 519.6 nm)

| Signals | Wavelengths (μm) | Relative intensity | Transition levels |
|---------|----------------------------------|-----------------------|---|
| 1 | 2.636 | 150 | $6s7a^2D \rightarrow 6s7p^1P$ |
| 2 | 2.527 | 40 | $6s8p^1P \rightarrow 6s6d^1D$ |
| 3 | 1.609 | 60 | $6s7p^1P \rightarrow 6s7s^1S$ |
| 4 | 1.825 | 100 | $6s7p^3P_1 \rightarrow 6s7s^3S_1$ |
| 5 | 0.7702 | 40 | $6s7s^3S_1 \rightarrow 6s6^1p^3P_2$ |
| 6 | 1.707 | 40 | $6s7p^3P_2 \rightarrow 6s7s^3S_1$ |
| 7 | 1.685 | 20 | $6s7d^1D \rightarrow \Delta_1 (38422\text{cm}^{-1})$ |
| 8 | 1.806 | 80 | $\left(\frac{7}{2}, \frac{3}{2}\right)_4 \rightarrow \left(\frac{7}{2}, \frac{5}{2}\right)_5$ |
| 9 | 2.308 | 20 | $\Delta_4 (44392\text{cm}^{-1}) \rightarrow 6s6d^1D$ |
| 10 | 2.926 | 20 | $\Delta_3 (43297.5\text{cm}^{-1}) \rightarrow \left(\frac{7}{2}, \frac{3}{2}\right)_2$ |
| 11 | 1.746 | 100 | $\Delta_1 (38422\text{cm}^{-1}) \rightarrow 6s7s^3S_1$ |
| 12 | 1.984 | 200 | $6s5d^3D_2 \rightarrow 6s6p^3P_2$ |
| 13 | 1.479 | 400 | $6s5d^3D_2 \rightarrow 6s6p^3P_1$ |
| 14 | 0.3793 | 50 | $6s7d^1D \rightarrow 6s6p^3P_1$ |
| 15 | 0.4577 | 60 | $6s6d^3D_2 \rightarrow 6s6p^3P_1$ |
| 16 | 0.6420 | 30 | $\Delta_3 (43255\text{cm}^{-1}) \rightarrow 6s5d^1D$ |
| 17 | 0.6670 | 30 | $6s6d^1D \rightarrow 6s6p^1P$ |
| 18 | 0.6770 | 40 | $6s6a^3D_2 \rightarrow 6s6p^1P$ |
| 19 | 2.667 | 80 | $6s7a^3D_2 \rightarrow 6s7p^1P$ |
| 20 | 2.617 | 40 | $6s8p^3P_1 \rightarrow 6s6d^3D_2$ |
| 21 | 2.155 | 40 | $6s6d^3D_2 \rightarrow \left(\frac{7}{2}, \frac{3}{2}\right)_2$ |
| 22 | 1.629 | 60 | $6s7d^3D_2 \rightarrow 6s7p^3P_1$ |
| 23 | 0.3799 | 80 | $6s7d^3D_2 \rightarrow 6s6p^3P_1$ |

1) 实验中发现, a) 当切断第二束激光而只有第一束激光共振激发 $6s6p^1P$ 态时, 除了信号 12 和 13 外, 其他所有信号均消失; b) 当第二束激光加入并共振激发铯原子到有关高位态时, 其他信号产生, 但 12 和 13 信号明显减弱; c) 当第一束激光调谐到 $6s^2S \rightarrow 6s5d^3D_2$ 共振时, 信号 12 和 13 并不存在; d) $6s6p^1P$ 与 $6s5d^3D_2$ 态之间的能量差 $\Delta E = 323\text{cm}^{-1}$, 小于本实验条件下的平动能 $kT \approx 600\text{cm}^{-1}$ 。这些实验事实说明, 辐射信号 12 和 13 的上能态 $6s5d^3D_2$ 的布居是通过 $6s6p^1P$ 与 $6s5d^3D_2$ 能级间的近共振碰撞能转移过程而获得的^[4]。当第二束激光加入时, 使一部分布居在 $6s6p^1P$ 态上的粒子被抽运到高位态, 于是通过碰撞转移到 $6s5d^3D_2$ 的粒子数减少, 导致了信号 12 和 13 的明显减弱。

2) 如图 2 所示, 当第二束激光波长调谐到 518.2nm 时, 辐射信号 4、6、7 和 11 均能测得。这里, Δ_1 是一个尚未被标识的能级, 但知其总角动量为 1, 能级高度为 38422cm^{-1} (表 1 中所涉及的 Δ_3 和 Δ_4 也是尚未标识的能级, 它们的总角动量分别为 3 和 4, 能级高度分别为 43297.5cm^{-1} 和 44392cm^{-1})^[9]。辐射信号 7 使 Δ_1 获得布居, 而且还测得了串级辐射信号 11。实验中并没有观察到 $6s7d^1D \rightarrow 6s7p^3P_{2,1}$ 的跃迁信号, 也没有观察到其它以 $6s7p^3P_{2,1}$ 为下能

级的辐射。此外, 4_1 能级与 $6s7p^3P_{2,1}$ 二个能级之间的能量差分别只有 130 cm^{-1} 和 248 cm^{-1} , 小于平动能 kT 。由此可以断定, 布居在 4_1 能级上的粒子通过近共振碰撞而转移到 $6s7p^3P_{2,1}$ 能级, 从而产生辐射信号 4 和 6。同样, 图 2 中所示的信号 2 和 15 是由 $6s7d^1D \rightarrow 6s8p^1P$ 以及 $6s6d^1D \rightarrow 6s6d^3D_2$ 态的近共振碰撞能转移过程产生的。

3) 如图 3 所示, 当第二束激光波长调谐到 519.6 nm 时, 测得辐射信号 20、22 和 6。显然, 信号 20 是由 $6s7d^3D_2 \rightarrow 6s8p^3P_1$ 态的近共振碰撞能量转移过程产生的。特别是, 实验中仅观察到信号 22 (从而使 $6s7p^3P_1$ 能级获得布居), 并未观察到以 $6s7p^3P_2$ 为下能级的跃迁信号, 而 $6s7p^3P_1$ 和 $6s7p^3P_2$ 态之间的能量差仅为 378 cm^{-1} 。由此, 可以推断 $6s7p^3P_2$ 能级的布居来自 $6s7p^3P_1 \rightarrow 6s7p^3P_2$ 能级的近共振碰撞能量转移过程, 从而产生信号 6。

(二) 单重-单重态间与单重-三重态间吸收系数之比的测定

运用如图 4 所示的激发和发射, 通过观察信号 12 和 13 在第二步激发前后的强度变化, 可分别测出 $6s6p^1P \rightarrow 6s7d^1D$ 能态间的吸收系数 B_1 与 $6s6p^1P \rightarrow 6s7d^3D_2$ 能态间的吸收系数 B_2 的比值 B_1/B_2 。如前所述, 当对样品加上第二步激发时, $6s6p^1P$ 态上的粒子会被抽运到 $6s7d^1D$ 态或 $6s7d^3D_2$ 态。设与之相对应的 $6s6p^1P$ 态上的粒子数变化为 Δa_1 或 Δa_2 , 从而使辐射信号 12 和 13 的强度减弱。设 ΔI_1 和 ΔI_2 分别为信号 12 (或信号 13) 在第二步激发 (激发波长分别为 518.2 nm 和 519.6 nm , 强度分别为 P_1 和 P_2) 前后的强度变化, 于是

$$\Delta a_1 = KB_1P_1 \quad (K \text{ 为常数}),$$

$$\Delta I_1 = l\Delta a_1 \quad (l \text{ 为常数}),$$

$$\Delta a_2 = KB_2P_2,$$

$$\Delta I_2 = l\Delta a_2,$$

在现在的实验中, $P_1 \simeq P_2$, 因而

$$B_1/B_2 \simeq \Delta I_1/\Delta I_2.$$

实验测得, $\Delta I_1 \simeq \Delta I_2$, 因而得到 $B_1/B_2 \simeq 1$, 即 $6s6p^1P \rightarrow 6s7d^1D$ 的吸收系数与 $6s6p^1P \rightarrow 6s7d^3D_2$ 的吸收系数近乎相等。

我们还使用另一组上能级进行了类似的实验, 同样得到 $6s6p^1P \rightarrow 6s6d^1D$ 与 $6s6p^1P \rightarrow 6s6d^3D_2$ 的吸收系数近乎相等的结果。

(三) 有关能态间的碰撞能量转移几率之比的测量

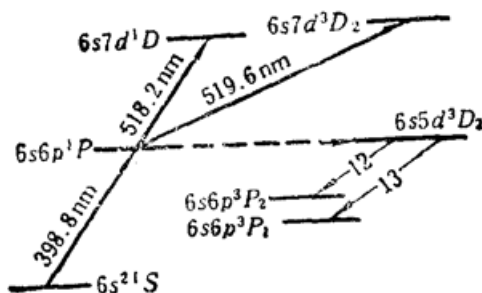


Fig. 4 Levels concerning the measurement of the ratio of the absorption coefficients between $6s6p^1P \rightarrow 6s7d^1D$ and $6s6p^1P \rightarrow 6s7d^3D_2$

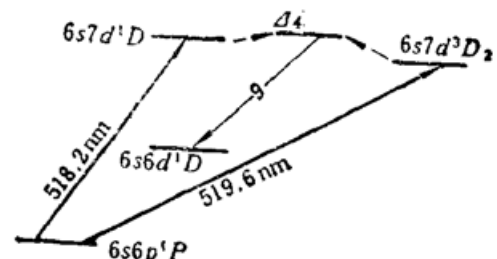


Fig. 5 Levels concerning the measurement of the ratio of K_1 and K_2 , the probabilities of $6s7d^1D \rightarrow \Delta_4$ and $6s7d^3D_2 \rightarrow \Delta_4$ collision energy transfer

运用如图 5 所示的机制, 可测得 $6s7d^1D \rightarrow \Delta_2$ 与 $6s7d^3D_2 \rightarrow \Delta_4$ 之间的碰撞能量转移几率之比。在实验中我们注意到, 当第二束激光分别调谐到 518.2 nm 和 519.6 nm 的共振波长时, 都观察到了辐射信号 9。但是, 当波长稍微调离共振位置时, 该辐射信号就消失; 而能态 Δ_4 与能态 $6s7d^1D$ 和 $6s7d^3D_2$ 之间的能量差分别只有 44 cm^{-1} 和 79 cm^{-1} 。这表明产生辐射信号 9 的上能态 Δ_4 的布居是通过与 $6s7d^1D$ 或 $6s7d^3D_2$ 能态的碰撞能量转移过程获得的。这类碰撞过程是容易产生的^[10,11]。

设波长分别取 518.2 nm 和 519.6 nm 的激光作为第二步泵浦源时, 所产生的辐射信号 9 的强度分别为 I_1 和 I_2 , 而 $6s7d^1D \rightarrow \Delta_4$ 和 $6s7d^3D_2 \rightarrow \Delta_4$ 的碰撞能量转移几率分别为 K_1 和 K_2 。如前所述, 考虑到实验中 $P_1 \simeq P_2$, 以及已测得的 $B_1 \simeq B_2$, 因而,

$$I_1/I_2 \simeq K_1/K_2。$$

通过测量, 我们得到 $I_1/I_2 \simeq 0.53$, 于是碰撞能量转移几率之比 $K_1/K_2 \simeq 0.53$ 。

参 考 文 献

- 1 Ph. Cahuzac, *Phys. Lett.*, **27A** (8), 473 (1968)
- 2 Ph. Cahuzac, *J. Phys.*, **32**, 499 (1971)
- 3 Ph. Cahuzac, *Phys. Lett.*, **31 A** (10), 541 (1970)
- 4 V.M.Klimkin, *Sov. J. Quant. Electr.*, **5** (3), 326 (1975)
- 5 P. Camus *et al.*, *J. Phys. B.*, **13** (6), 1073 (1980)
- 6 M. Baumann *et al.*, *Opt. Commun.*, **38** (4), 259 (1981)
- 7 U. Majewski *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **51** (15), 1340 (1983)
- 8 R. D. Cowan, *The Theory of Atomic Structure and Spectra*, (University of California Press), 409
- 9 W. G. Martin *et al.*, *Atomic Energy Levels-The Rare-Earth Elements*, 76
- 10 王祖庚 *et al.*, *Opt. Commun.*, **51**, 155 (1984)
- 11 王祖庚 *et al.*, *中国科学 (A 辑)*, 44 (1987)