

激光与 $\text{Li}_2\text{-Li}$ 系统相互作用的双 量子激发过程*

金海燕 沈建琪 李永放** 秦莉娟 王祖赓
(华东师范大学物理系, 上海 200062)

提要: 本文报道了激光激发 $\text{Li}_2\text{-Li}$ 系统时所观察到的多种双量子作用过程, 其中包括 Li 原子的双光子电偶极和电四极激发、 $\text{Li}_2\text{-Li}$ 系统的混合激发和 Li_2 的双量子激发, 它们导致了 Li 原子或分子高位态的布居。

关键词: 双量子激发, 混合激发, $\text{Li}_2\text{-Li}$ 系统

Two-quantum excitation processes in $\text{Li}_2\text{-Li}$ system

Jin Haiyan, Shen Jianqi, Li Yongfang, Qin Lijuan, Wang Zugeng
(Department of Physics, East China Normal University, Shanghai)

Abstract: Several two-quantum processes, including two-photon dipole and quadrupole excitation of Li atom, the hybrid excitation of $\text{Li}_2\text{-Li}$ system and two-quantum excitation of lithium molecule, were observed. These processes resulted in population on high-lying states of lithium atom and molecule.

Key words: two-quantum excitation, hybrid excitation, $\text{Li}_2\text{-Li}$ system

一、引言

激光与原子或分子的双量子作用是研究激光与物质相互作用以及激光光谱学的重要内容。对于激发分子和原子的高位态来说, 最常用的方式是紫外光单光子激发或可见光双光子激发, 所涉及的大多为电偶极允许的跃迁过程。然而, 对分子-原子混合系统中的混合激发过程^[1~3]、原子中的双光子电四极跃迁过程以及原子-分子、分子-分子碰撞布居转移过程^[4, 5]等已有所研究, 特别是在钠和钾样品中, 它们还直接形成了高位原子和分子能态的布居并产生了受激辐射。

本工作主要讨论了激光与 $\text{Li}_2\text{-Li}$ 系统相互作用时所观察到的多种双量子激发过程, 包括 Li 原子的双光子电偶极和电四极共振激发过程、 $\text{Li}_2\text{-Li}$ 混合系统的二步混合激发过程(其中第二步激发可以是单光子电偶极共振, 也可以是电四极共振)、双光子(或二步)激发锂分子和分子-原子碰撞布居转移过程等。这些过程的实现, 不仅导致了有关锂原子、分子高位态的布

收稿日期: 1990年5月10日; 修改稿收到日期: 1990年6月20日。

* 国家自然科学基金资助课题; ** 通信地址: 陕西师范大学物理系。

居,而且对进一步了解激光与原子、分子的相互作用也有益。

二、实 验

用 Nd:YAG 激光泵浦的可在 605.0~670.0 nm 区内连续调谐的 DCM 染料激光作为泵浦源,其在 640.0 nm 附近的输出能量约为 13 mJ,输出脉宽为 15 ns,线宽为 0.5 cm⁻¹。激光束经透镜聚焦于两端装有石英窗片的高温热管炉中心。热管炉加热区长 22 cm,炉内装有约 10 g 锂样品并充有约 10 Torr 缓冲气体 He,自动温控仪将炉温控制在 700~1000°C 范围内。从热管炉前向出射的红外辐射经单色仪后,由 PbS 探测器探测。探测器的输出信号经信号处理系统处理后由记录仪记录,具体

实验装置可参考文献[6]。

实验中,调谐泵浦光波长,观察在不同热管炉温度时的锂原子的 3P-3S 辐射(波长为 2.688 μm)。图 1 为不同温度下,在 609.0~647.0 nm 波段内调谐泵浦光波长时,2.688 μm 红外辐射的相对强度随泵浦波长的变化。图中虚线为染料激光的能量曲线。

在 950°C 时,测量了在同一泵浦能量(1.2 mJ)、不同泵浦波长下的 2.688 μm 红外辐射的相对强度。实验表明,610.4 nm 附近激发带的激发-辐射转换效率最高,其次是 623.9 nm 激发线,639.1 nm 的激

发-辐射转换效率较小,与它们相应的 2.688 μm 辐射的相对强度在同一数量级内依次下降,但 646.5 nm 的作用非常弱,以至无法观测。

三、分析和讨论

本工作涉及以下几种双量子作用过程:

3.1 原子的双光子电偶极和电四极共振激发过程

当将染料激光的输出波长调谐到 639.1 nm Li 原子的 2S → 3D 双光子电偶极跃迁的共振波长^[7]时,可观测到对应于 3P → 3S 的辐射,其波长为 2.688 μm。这时, Li 原子 3D 能级被双光子共振激发,如图 2(1)所示。当 3D 能级获得粒子数布居后,可通过 3D → 3P 的辐射或碰撞能量转移过程布居 3P 能级(3D 与 3P 能级的间隔仅为 35.8 cm⁻¹)。上述激发和发射过程可表达为

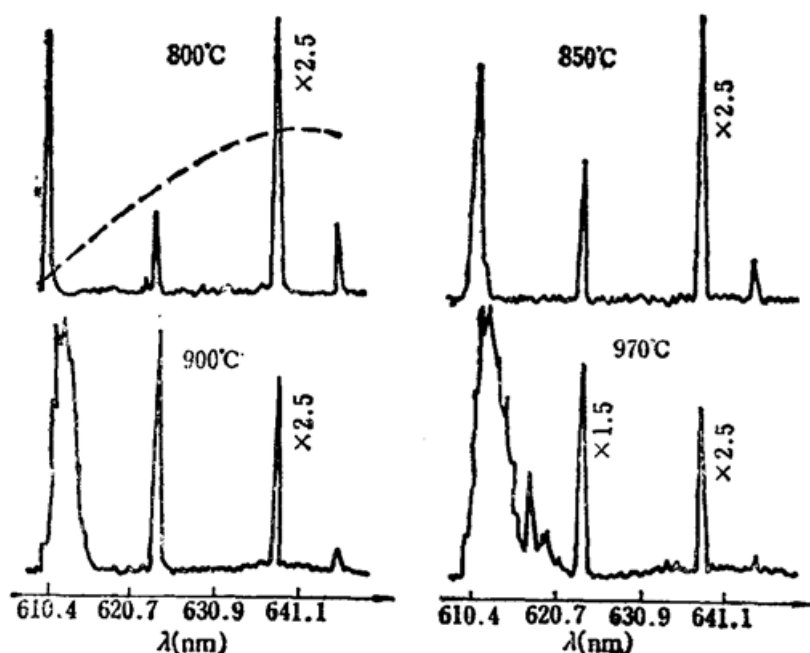
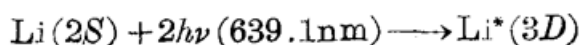
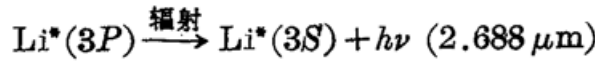
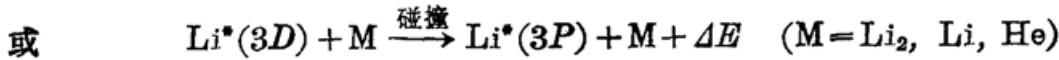
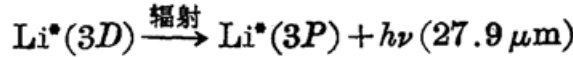
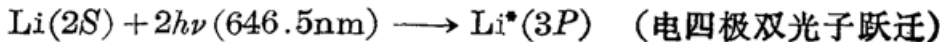


Fig. 1 The relative intensity of IR radiation at 2.688 μm versus pumping wavelength at different temperatures



当泵浦波长调谐到 646.5 nm 时, 也观测到 3P→3S 辐射。这时, 泵浦能量为 13 mJ。由图 1 可以看出, 在 646.5 nm 泵浦光作用下, 随着温度的升高, 辐射强度下降。当温度高于 900°C 时, 已几乎无法观测。且泵浦波长仅在 646.5 nm 附近极窄的范围内调谐时, 才能够产生相应的红外辐射(对应于图 1 中 646.5 nm 处的激发线)。这种温度特性及泵浦波长调谐特性与 639.1 nm 泵浦波长的作用相同, 故而 646.5 nm 泵浦作用一定也与 Li 原子的共振激发有关。646.5 nm 应为 Li 原子的某一共振跃迁波长。但从 Li 原子能级^[7]可知, 646.5 nm 不与 Li 原子的任何电偶极单光子或双光子共振跃迁波长对应, 恰对应于 2S→3P 的双光子共振波长。这显然是电偶极禁戒的双光子跃迁, 其跃迁几率很小。但本文的部分作者及其同事已在钠原子中观测到了由这类电四极双光子跃迁所产生的受激辐射。在我们的实验中, 尽管 646.5 nm 双光子激发 3P 能级, 而 639.1 nm 双光子激发 3D 能级, 但相应于 646.5 nm 的 3P→3S 辐射强度远弱于 639.1 nm 作用下产生的 3P→3S 辐射的强度, 且在较低泵浦能量(如 1.2 mJ)下, 已观测不到。因而, Li 原子在强激光激发下, 实现了 2S→3P 的电四极双光子跃迁, 从而观察到要比上述双光子偶极跃迁所对应的辐射强度小两个数量级的辐射, 这个激发过程示于图 2(2), 并可表示为



3.2 分子-原子系统的双光子混合激发

在图 1 中, 当泵浦波长分别为 610.4 和 623.9 nm 时, 产生了 2.688 μm(3P→3S) 辐射。我们注意到, 610.4 和 623.9 nm 分别为 Li 原子 2P→3D 和 2P→3P 的单光子电偶极和电四极跃迁的共振波长。610.4 和 623.9 nm 泵浦光子的能量分别为 16383 和 16031 cm⁻¹, 位于 Li₂ 的 X¹Σ_g⁺→A¹Σ_u⁺ 吸收区, Li₂ 吸收一个泵浦光子, 从基态 X¹Σ_g⁺ 跃迁到 A¹Σ_u⁺ 态, 而 Li 原子的 2P 能级高度仅为 14903 cm⁻¹, 因而通过碰撞能量转移过程使锂原子布居于 2P 能级, 而分子返回基态 X¹Σ_g⁺。在这个过程中, 多余的能量以振转能量的形式留在分子基态内。第二个 610.4 或 623.9 nm 泵浦光子使处于 2P 态的锂原子共振激发到 3D 或 3P 能级, 前者为 Li 的 2P→3D 单光子电偶极共振激发, 后者为 Li 的 2P→3P 单光子电四极共振激发。因此, 如图 2(3) 所示的这种锂分子-原子中的混合激发过程可表示为

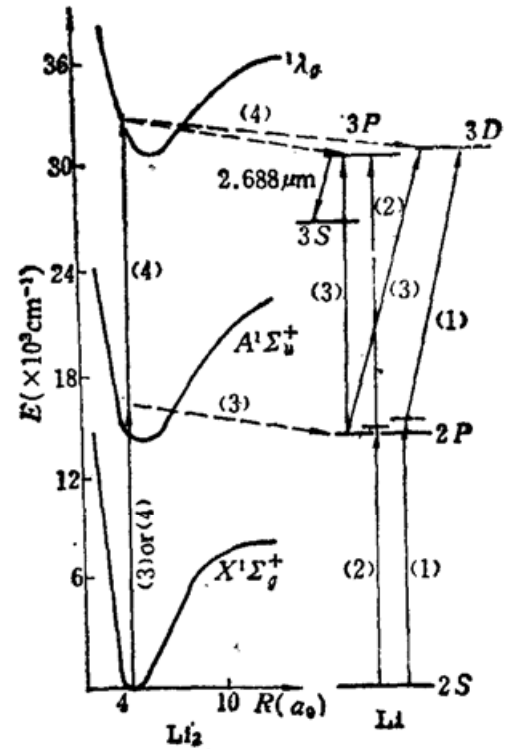
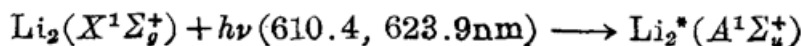
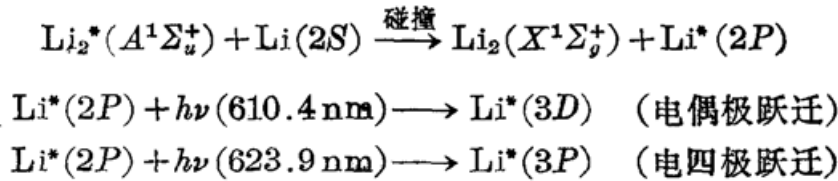


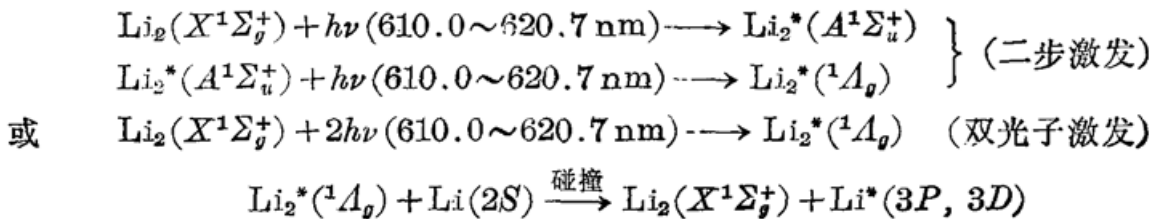
Fig. 2 The population mechanisms of high-lying atomic states in Li₂-Li system



3.3 锂分子的双光子或二步激发及锂原子高位态的布居

由图 1 明显可见, 当温度为 800°C 时, 仅在 610.4、623.9、639.1 和 646.5 nm 处出现很窄的激发线, 它们分别与上述分子-原子系统双光子混合激发机制和原子的双光子电偶极和电四极共振激发机制相对应。随着温度的升高, 热管炉中的锂分子浓度也随之增大, 激发谱中 610.4 nm 附近出现的宽激发带对应了另一种激发过程。随着温度的升高, 带宽增加, 而 610.4 nm 激发线已淹没于宽带内, 激发作用逐渐下降。在 970°C 时, 激发带的波长范围为 610.0~620.7 nm, 也即在这么宽的激发波长范围内均能产生 3P→3S 辐射。

这种激发过程显然与锂分子的激发有关。通过对锂分子电子态势能曲线的考察^[8,9], 可知激发跃迁是从锂分子基态 $X^1\Sigma_g^+$ 起始, 通过中间能态 $A^1\Sigma_u^+$, 双光子或二步跃迁使 Li₂ 抵达高于 Li 原子 3P 和 3D 能级高度的高位分子激发态 1A_g , 对于这种双光子或二步跃迁, 从双量子跃迁选择定则和能态高度考虑, 合适的跃迁终态可能是 $4^1\Sigma_g^+$ 或 $2^1\Pi_g$ ($4^1\Sigma_g^+$ 和 $2^1\Pi_g$ 的 T_e 值分别为 30023 和 31863 cm⁻¹[8,9]), 进而通过碰撞能量转移过程而使 3P 和 3D 能级获得布居。于是, 这种如图 2(4) 所示的激发机制可表示为



作者感谢马龙生、丁良恩同志在实验等方面所给予的帮助。

参 考 文 献

- 1 王祖赓, 秦莉娟 *et al.*, *Opt. Commun.*, **51**, 155 (1984)
- 2 王祖赓, 秦莉娟 *et al.*, *Appl. Phys. B*, **41**, 125(1986)
- 3 李永放, 李祥生 *et al.*, *中国激光*, **16**, 586 (1989)
- 4 王祖赓, 马龙生 *et al.*, *Opt. Commun.*, **58**, 315(1986)
- 5 王祖赓, 张开昌 *et al.*, *光学学报*, **6**, 1081(1986)
- 6 王祖赓, 唐小玲 *et al.*, *中国科学*, A 辑, (1), 44(1987)
- 7 Stanley Bashkin *et al.*, *Atomic energy-level and grotrian diagrams* (Vol. I, North-Holland Publishing Company, Amsterdam, New York, 1978), p. 16
- 8 Daniel D. Konowalow, James L. Fish, *Chem. Phys.*, **84**, 463(1984)
- 9 I. Schmidt-Mink, W. Müller, W. Meyer, *Chem. Phys.*, **92**, 263(1985)