

过热铷蒸汽中的受激电子喇曼散射

王阿连 邹英华
(北京大学物理系)

提 要

采用一个特殊设计的热管炉,我们观测了过热铷蒸汽中的 $5S_{1/2} \rightarrow 6S_{1/2}$ 受激电子喇曼散射(SERS)和有关的放大自发辐射(ASE)。实验结果表明: ASE过程有某些新的特性,对调谐SERS红外输出显示出不利的影响。

一、引 言

从1967年开始,相继对四种碱金属:钠、钾、铷、铯和碱土金属钡的原子蒸汽中的受激电子喇曼散射(SERS)过程进行过多次观测和研究^[1~3]。近年来通过钡、锡、铊、铅、铋、铟等原子蒸汽中SERS过程,实现紫外到可见的非线性频率转换的研究也有所发展^[4]。在实际应用方面,也已作过一些成功的尝试^[5]。目前,能否进一步提高转换效率是SERS推广应用的关键,而若干竞争过程(如单光子吸收、光抽运受激发射、双原子分子吸收、多光子电离……等)影响了转换效率的提高。因此,研究和克服各种竞争过程也就成为原子蒸汽中SERS过程研究内容之一。最近发展了用过热蒸汽热离解碱金属蒸汽中的双原子分子,从而减少对泵浦光的吸收,降低喇曼阈值,使SERS过程的转换效率有较大的提高。据报导^[6],用过热蒸汽方法可使铯的喇曼阈值下降到一般方法的七分之一以下。再结合多级同步泵浦,曾在 1360 cm^{-1} 的调谐范围内获得高达10 MW的可调谐红外激光输出^[6]。

我们在实验中采用一个特殊设计的热管炉产生过热铷原子蒸汽,在研究 $5S_{1/2} \rightarrow 6S_{1/2}$ SERS过程的同时,详细观测了有关的ASE过程,获得了一些新的实验结果。这有助于比较全面地评价过热蒸汽中产生SERS的技术。

二、基本原理与计算

本实验观测的过程所涉及的铷原子能级和跃迁如图1所示。在一定的铷原子蒸汽压条件下,调谐泵浦激光的频率 ν_L ,完成对中间态 $6P_{1/2}$ 、 $6P_{3/2}$ 的近共振,就可以实现 $5S_{1/2} \rightarrow 6S_{1/2}$ 的SERS,获得频率为 ν_S 的红外激光输出。 ν_S 具有可调谐的特性, $\nu_S = \nu_L - \Delta\nu_{6S_{1/2} - 5S_{1/2}}$ 。图中的虚线表示有关的ASE谱线,它们的频率是固定的,不具备可调谐特性。

根据Hanna等人的推导^[7], SERS过程的增益系数

$$g_s = - \frac{3i\omega_s}{\epsilon_0 c^2 n_s n_L} \chi_{\text{SERS}}^{(3)} I_L \quad (1)$$

式中 I_L 为泵浦光光强, $\chi_{\text{SERS}}^{(3)}$ 为 SERS 过程的非线性极化率。我们根据 Hanna 等人推得的 $\chi_{\text{SERS}}^{(3)}$ 表达式, 分别计算了铷原子 $5S_{1/2} \rightarrow 6S_{1/2}$ SERS 过程的非线性极化率的 \mathcal{S} 项和 \mathcal{A} 项随泵浦波长变化的曲线, 如图 2 所示。计算中共取 $5P_{1/2,3/2} \rightarrow 14P_{1/2,3/2}$ 的 20 个能级作为对过程有影响的中间能级。所有能级的数值取自文献[8], 有关跃迁矩阵元的数值取自文献[9]。分析上述计算结果, 我们可以看到:

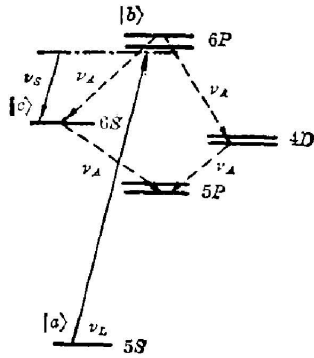


图 1 铷原子的能级和跃迁

Fig. 1 Partial energy levels and transitions of Rubidium atom

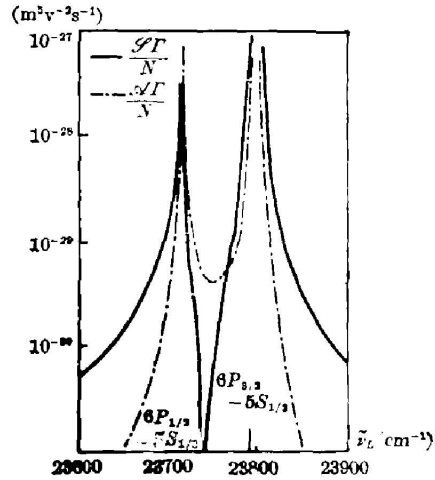


图 2 铷原子 $5S_{1/2} \rightarrow 6S_{1/2}$ SERS 过程的非线性极化率

Fig. 2 Nonlinear susceptibility of $5S_{1/2} \rightarrow 6S_{1/2}$ SERS in Rubidium atom

(1) 除了 $5S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ 和 $5S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ 两条共振线之间的部分区域外, 绝大部分泵浦波长处产生的 SERS 激光应与泵浦光具有相同的偏振方向。

(2) 通常可以认为 SERS 过程中泵浦光的损失是很小的, 除了 $5S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ 和 $5S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ 两条共振线附近有较强的单光子吸收外, 泵浦光强 I_L 是与传播距离近似无关的常量。可以断定, 增益系数 g_s 和斯托克斯光强 I_s 将具有与极化率类似的随泵浦波长变化的曲线: 泵浦波长接近共振线时递增, 在两条共振线之间有一凹陷。此外, 由于单光子吸收带来的泵浦光的衰减, I_s 曲线上相应于 $5S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ 和 $5S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ 精确共振处也将出现两个凹陷。

三、实验装置

图 3 为我们的实验装置方框图。氮分子激光泵浦的染料激光器以克分子浓度 2×10^{-3} 的 POPOP 的四氢呋喃溶液为增益介质。产生调谐范围 $4120 \rightarrow 4260 \text{ \AA}$, 峰值功率 8 kW, 线宽 $\Delta\lambda < 1 \text{ \AA}$ 的激光。其波长用铷光谱灯为基准在 WP1 型一米平面光栅摄谱仪上定标。

为了获得过热的铷原子蒸汽, 我们特地设计一个分离内网式热管炉, 其中间部分的结构如图 4 所示。在距中心约 6 cm 处的外管壁上紧贴一个镍铬-镍铝热偶作为热敏元件, 用 DWT-702 型精密温度自动控制仪控制温度。实测证实, 热管中部温度与控温点温度差随控温点温度的升高而加大。在 10 Torr 铷蒸汽压时, 中部温度高 200°C 左右。热管的入射和出射窗口分别由熔融石英和氟化钙加工而成。

厚约 3 mm 的锗片滤去短于 1.8μ 的短波, 也曾用 WDG 300 型红外光栅单色仪代替锗

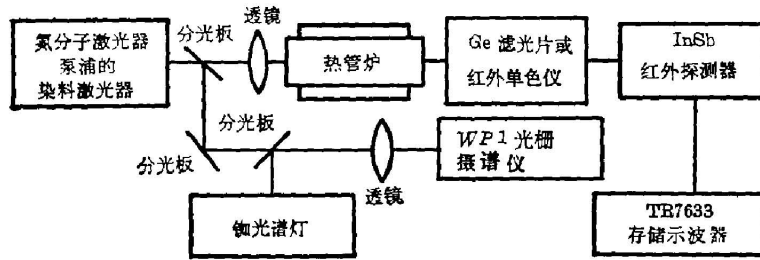


图 3 实验装置方框图

Fig. 3 Schematic diagram of experimental instruments

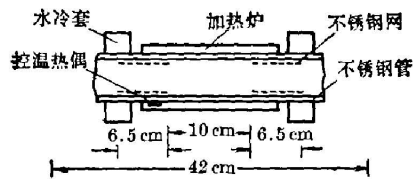


图 4 热管炉结构(中间部分)

Fig. 4 Structure of the heat pipe oven (the middle part)

滤光片。适当衰减后,红外信号由 InSb 光伏式红外探测器(77 K)探测,直接输入到存储示波器(TEKTRONIX 7633)显示。

四、观测结果与分析

(1) 采用锗滤光片滤光,测量了不同饱和蒸汽压下红外信号强度随泵浦波长的变化曲线。图 5 表示的是 10 Torr 时的测量结果。图中每一实验点为 15 个脉冲的平均值。饱和蒸汽压由控温点温度值,根据文献 [10] 中所列图表查得。所测得的曲线与前面理论分析预计的 I_S 曲线出入很大,也与已有的实验结果文献 [2] 不同。无疑这反映了过热蒸汽中 SERS 过程和伴随发生的其它过程具有某些新的特性。

(2) 改用红外单色仪将红外信号分光,分别进行探测。首先,在不同蒸汽压下,将红外单色仪与染料激光器按 $5S_{1/2} \rightarrow 6S_{1/2}$ 的 SERS 过程的要求同步调谐,测得了 I_S 随泵浦波长改变的曲线,如图 6 所示。图中垂直短线表示测量的均方误差。由图可见,测量结果与前面理论分析基本吻合,也与过去的实验结果报道相似。但是 I_S 分布曲线上相应于单光子吸收的两处凹陷并没有位于 $5S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ 和 $5S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ 两条共振线上,而是向短波方向偏移,其原因尚不十分清楚。我们还曾按 $5S_{1/2} \rightarrow 4D_{3/2,5/2}$ SERS 过程的要求,进行类似的同步调谐,但没有观测到这一信号。

(3) 经红外单色仪分光后,除上述 SERS 信号外,还探测到若干固定波长的信号。测量

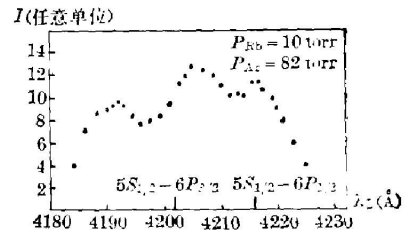


图 5 在锗滤光片后测量红外信号随泵浦波长的变化曲线

Fig. 5 Variation of the infrared signal (behind the Ge filter) with the wavelength of the pumping laser

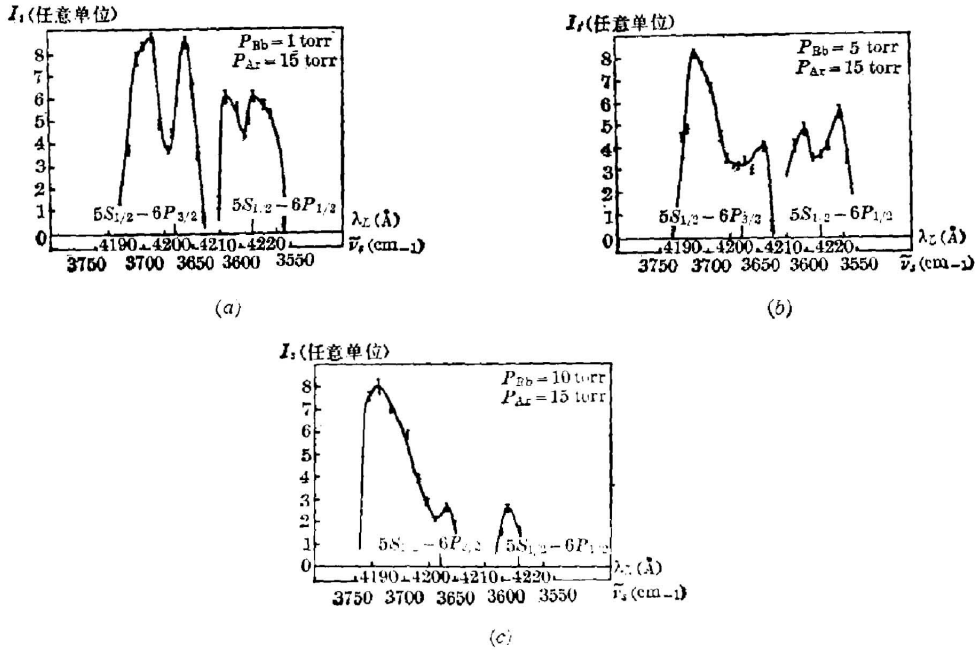


图 6 分光后测量 $5S_{1/2} \rightarrow 6S_{1/2}$ SERS 信号随泵浦波长变化的曲线
 Fig. 6 Tuning curve of the $5S_{1/2} \rightarrow 6S_{1/2}$ SERS signals in Rb vapour

它们的波长后,证实其中包括有对应 $6P_{1/2,3/2} \rightarrow 6S_{1/2}$ 、 $6P_{1/2,3/2} \rightarrow 4D_{3/2,5/2}$ 、 $6S_{1/2} \rightarrow 5P_{1/2,3/2}$ 和 $4D_{3/2,5/2} \rightarrow 5P_{1/2,3/2}$ 跃迁的。它们的强度与观测到的 SERS 红外激光相近,并且也具有很好的方向性。我们认为它是相应于上述跃迁的“放大的自发辐射”(ASE)。将红外单色仪固定于各 ASE 信号波长,测得其强度随泵浦波长改变的曲线。图 7 为 1 torr 铷蒸汽压时,测得的部分结果。由图 7(a)可见,对应 $6P_{3/2} \rightarrow 4D_{3/2,5/2}$ 和 $6P_{1/2} \rightarrow 4D_{3/2}$ 的 ASE 信号的极大值出现在泵浦波长 λ_L 与 $5S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ 和 $5S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ 跃迁精确共振点。因此,粒子数反转状

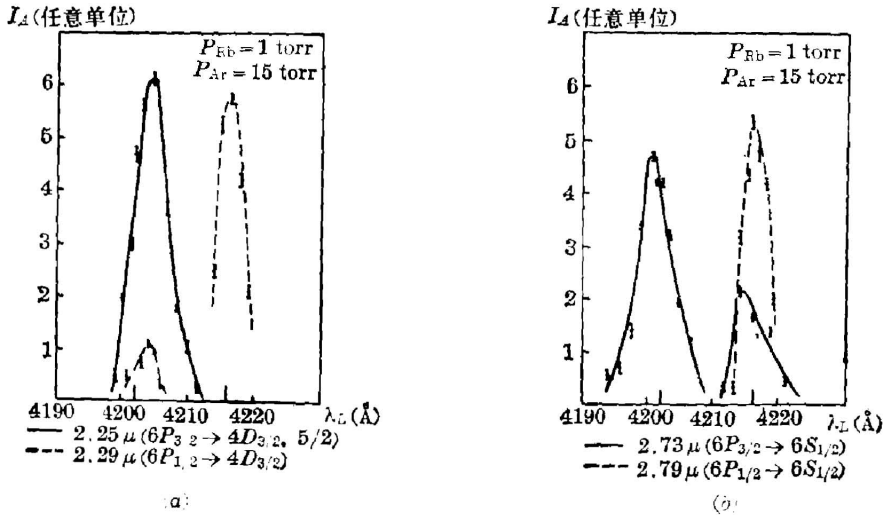


图 7 分光后测量 ASE 信号的部分结果
 Fig. 7 Part of the results of ASE measurement

态是直接光泵浦的结果。但是存在两种反常现象：泵浦波长调谐宽度($\sim 20 \text{ \AA}$)大大超过激光线宽和谱线的多普勒宽度；对 $6P_{3/2}$ 近共振泵浦时，有 $6P_{1/2} \rightarrow 4D_{3/2}$ 的 ASE 信号出现。这说明还有其它物理过程(例如铷原子与缓冲气体原子碰撞过程等)参与光泵浦。类似情况在图 7(b) 中也可以看到。与以往报道^[9]有很大差异的是：我们观测到了 $6P_{1/2} \rightarrow 6S_{1/2}$ 和 $6P_{3/2} \rightarrow 6S_{1/2}$ 的 ASE 信号。图 7 表明它们的强度与 $6P \rightarrow 4D$ 的各 ASE 信号强度相当，而且在更高的铷蒸汽压时，测得的强度甚至大于后者。我们认为这反映了过热铷蒸汽的特征。

(4) 当铷蒸汽压超过 1 Torr 而进一步提高时，各 ASE 信号的特征有很大变化。铷蒸汽压为 10 Torr 时，相应于从 $6P_{1/2}$ 态出发的 ASE 信号消失，而相应于从 $6P_{3/2}$ 态出发的 ASE 信号强度随泵浦波长变化而改变。尤其是 $6P_{3/2} \rightarrow 6S_{1/2}$ ($2 \sim 73 \mu$) 跃迁的 ASE 信号几乎在我们的染料激光器的全部调谐范围内都出现。图 8 表示了这种情况。

我们认为可能存在另一种物理过程——光离解受激发射过程^[11]，即双原子分子 Rb_2 吸收泵浦光子跃迁到不稳定的高电子态，随后热离解产生激发态铷原子，造成某些铷原子能级间粒子数反转，产生了相应的 ASE 信号。

五、结 论

通过过热铷蒸汽中 $5S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ SERS 和有关的 ASE 过程的观测，可以得出以下结论：过热铷蒸汽方法虽然可以减少双原子分子对泵浦光的吸收，有利于提高 SERS 过程的转换效率，但是伴随发生的 ASE 过程也变得更为复杂。尤其是在高蒸汽压时，ASE 过程对 SERS 的调谐特性产生了不利影响。采用过热蒸汽产生 SERS 调谐红外激光时，对这种情况必须加以注意。

本文理论计算部分得到了北京大学无线电系郑乐民教授的热情指导，夏宗炬同志曾协助制作热管炉，特此致谢。

参 考 文 献

- [1] D. Cotter, D. C. Hanna; *Opt. & Quant. Electron.*, 1977, **9**, No. 6 (Nov), 509.
- [2] P. Niay, P. Bernage *et al.*; *Opt. Commun.*, 1979, **29**, No. 3 (Jun), 369.
- [3] P. Bernage, P. Niay *et al.*; *Opt. Commun.*, 1981, **36**, No. 3 (1 Feb), 241.
- [4] R. Burnham, N. Djeu; *Opt. Lett.*, 1978, **3**, No. 6 (Dec), 215.
- [5] R. Wyatt, D. Cotter; *Appl. Phys.*, 1980, **21**, No. 3 (Mar), 199.
- [6] R. Wyatt, D. Cotter; *Opt. Commun.*, 1981, **37**, No. 6 (15 Jun), 421.
- [7] D. C. Hanna, D. Cotter *et al.*; *«Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules»*, (Berlin, Springer-Verlag, 1979), 15~19, 209.
- [8] C. E. Moore; *«Atomic Energy Levels»*, (U. S. Government Printing Office, Washington, 1949), 180~183.
- [9] H. Eicher; *IEEE J. Q. E.*, 1975, **QE-11**, No. 4 (Apr), 121.

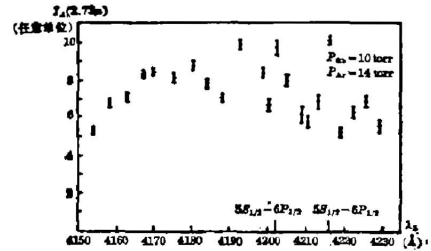


图 8 高蒸汽压条件下的 $6P_{3/2} \rightarrow 6S_{1/2}$ (2.73μ) 信号特性

Fig. 8 Characteristics of the $6P_{3/2} \rightarrow 6S_{1/2}$ (2.73μ) signal under the condition of high-pressure vapour

- [10] J. L. Margrave; *«The Characterization of High Temperature Vapours»*, (New York John Wiley & Sons, 1967), 479.
- [11] P. P. Sorokin, J. R. Lankard; *J. Chem. Phys.*, 1971, **54**, No. 5 (1 Mar), 2184.

Stimulated electronic Raman scattering in superheated rubidium vapour

WANG AHLIAN AND ZOU YINGHUA
(Department of Physics, Beijing University)

(Received 1 June 1982, revised 29 November 1982)

Abstract

Using a specially designed heat-pipe oven, the $5S_{1/2} \rightarrow 6S_{1/2}$ stimulated electronic Raman scattering (SERS) and some relative amplified spontaneous emission (ASE) have been observed in superheated Rb vapour. The experimental results reveal that ASE processes have some new characteristics and have dramatic influence on the tuning profiles of the SERS signal.



XIII IQEC 将在美国加州召开

1984年6月13日~22日将在美国加利福尼亚州召开第十三届国际量子电子学会议(XIII IQEC), 会议邀请王之江教授为中国地区节目委员会主席。

接受这次会议的邀请, 将成立本地区节目委员会以处理参加这次会议的稿件。与此同时还将举行激光应用及光电子学(CLEO)年会。