

宽波段范围内双光子泵浦钠分子产生的紫外和紫区漫散带受激辐射*

王祖赓 张开昌 唐小玲[†] 郑一善
(华东师范大学物理系)

提 要

本文首次报道了在620.0~670.0nm宽波段范围内以双光子泵浦方式产生钠分子紫外区(350.0~385.0nm)和紫区(405.0~460.0nm)受激漫散带辐射的结果。文中还对所涉及的激发和发射机制进行了讨论。

一、引 言

分子漫散带受激辐射的产生和研究是激光工作者极感兴趣的问题,它可实现在一定波段范围内可调谐的激光输出。以可见波段激光激发而产生紫外区的可调谐激光,则意义更大。

在钠分子 $X^1\Sigma_g^+ \rightarrow C^1\Pi_u$ 态的单光子激发、 $X^1\Sigma_g^+ \rightarrow A^1\Sigma_g^+ \rightarrow$ 高位 g 态的双光子激发、钠分子 $3S \rightarrow 3P$ 态的单光子激发以及 $3S \rightarrow 4D$ 态的双光子激发方式下,可以观察到紫区的漫散带荧光^[1~3]。近年来,报道了当激光波长调谐到双光子激发钠原子 $4D$ 态附近时产生紫区漫散带受激辐射^[4]以及由氩离子激光激发钠蒸气时产生紫区漫散带的增益测量结果^[5]。最近,我们报道了分别实现钠原子 $3S \rightarrow 3P$ 泵浦和 $3S \rightarrow 4D$ 双光子泵浦时产生紫外区漫散带和紫区漫散带受激辐射的研究成果^[6,7]。

本文首次报道了在钠蒸气中在宽波段范围内以双光子泵浦方式产生紫外区和紫区受激漫散带辐射的结果。当以在620.0nm~670.0nm宽范围内调谐的脉冲染料激光泵浦钠分子时,可测得紫外(350.0~385.0nm)和紫区(405.0~460.0nm)的受激漫散带辐射。泵浦激光以双光子激发方式将钠分子从基态 $X^1\Sigma_g^+$ 通过单重态 $A^1\Sigma_g^+$ 和三重态 $b^3\Sigma_u^-$ 的混合能级布居到高位三重 g 态。上述受激漫散带辐射即是由钠分子的高位三重 g 态到基三重态 $a^3\Sigma_g^-$ 的跃迁所产生的。本中对所涉及的激发-发射过程进行了讨论。

二、实 验

由YAG激光泵浦的脉冲染料激光经透镜聚焦于装有约10g钠的热管炉中心。使用

收稿日期:1986年3月10日

* 中国科学院科学基金资助的课题。

[†] 陕西师范大学物理系研究生。

DCM 染料, 输出激光束可在 620.0~670.0 nm 波段范围内调谐。在 640.0 nm 附近激光能量约为 30 mJ, 染料激光的脉宽为 12 ns, 线宽为 0.1 cm^{-1} 。热管炉长为 70 cm, 加热区长为 22 cm, 由自动控温仪在 400~650°C 范围内加热。热管炉两端装有石英窗片。

经实验测定, 由沿泵浦光束从热管炉前向出射的紫外区和紫区漫散带辐射的发散角约为 8 mrad。以上定向辐射经 0.5 m 光栅单色仪分光并由光电倍增管接收, 经信号处理系统处理后由记录仪记录。单色仪的带宽约为 0.2 nm。在单色仪的狭缝前和光电倍增管前分别设置两块带通为 300.0~500.0 nm 的滤光片, 以滤去由热管炉出射的剩余泵浦光。装置的其它部分与早先的描述相同^[11]。作为比较用的以 YAG 的三倍频窄带激光泵浦样品的实验装置可参考[12]。

三、结果与分析

当用 DCM 染料激光作泵浦源时, 记录所得的紫外区及紫区受激漫散带辐射的光谱见图 1(a)。紫外带信号(350.0~385.0 nm)在泵浦波长较长时(>650.0 nm)较小, 并随泵浦

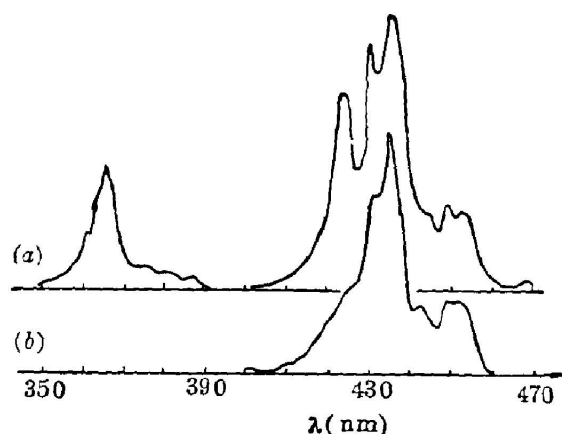


Fig. 1 UV and violet diffuse band stimulated emission spectra

- (a) Two-photon excitation (λ : 620.0~670.0 nm)
 (b) One-photon excitation (λ : 354.72 nm)

波长增加渐趋消失。图 1(b) 示出了由 YAG 的三倍频窄带激光作泵浦源时, 记录所得的紫区受激带辐射光谱, 此时不存在紫外带受激辐射信号。

在作用光谱宽度为 0.2 nm 的光栅单色仪时, 所测得的带光谱不存在分子带的振动结构, 可知这些辐射并不是来自束缚-束缚态的跃迁, 而是来自束缚-自由态的跃迁。钠分子的基三重态 $\alpha^3\Sigma_u$ 是一自由态, 因而上述漫散带光谱可看成是由束缚三重态和基三重态之间的跃迁所产生的。

由于随着泵浦波长的增加, 紫外漫散带信号渐趋消失, 并注意到用 YAG 的三倍频激光(波长为 354.719 nm)将钠

分子由基态激发到波数为 30264 cm^{-1} 处时^[12], 这一漫散带信号不存在。因此可推断紫外区受激漫散带辐射是从较高位的三重态(设为 $(2)^3A_g$, $A=\Sigma$ 或 Π)到基三重态 $\alpha^3\Sigma_u$ 的跃迁产生, 而紫区受激漫散带辐射是由较低位的三重态(设为 $(1)^3A_g$, $A=\Sigma$ 或 Π)到基三重态 $\alpha^3\Sigma_u$ 的跃迁产生。YAG 的三倍频激光不能使钠分子布居到 $(2)^3A_g$ 态, 但是波长较短处的 DCM 染料激光却能以双光子激发使基态 $X^1\Sigma_g^+$ 中较高振-转能态的分子布居到 $(2)^3A_g$ 态。最近, G. Jeung^[13~14] 从理论上对钠分子的若干高位三重态进行了计算, 给出了若干态的能量高度 T_e 。例如分别存在 T_e 为 $32.3 \times 10^3 \text{ cm}^{-1}$ 和 $32.1 \times 10^3 \text{ cm}^{-1}$ 的 $^3\Sigma_g^+$ 和 $^3\Pi_g$ 态, 并存在 T_e 为 $30.1 \times 10^3 \text{ cm}^{-1}$ 和 $28.9 \times 10^3 \text{ cm}^{-1}$ 的 $^3\Sigma_g^+$ 和 $^3\Pi_g$ 态。因而我们有关紫外区和紫区谱带信号分别来自于 $(2)^3A_g$ 和 $(1)^3A_g$ 的分析这和 Jeung 的理论计算是相符的。

图 2 是产生紫外及紫区漫散带受激辐射的部分激发光谱。实际上在 620.0~670.0 nm 宽波段范围内均可测得不同强度的漫散带受激辐射信号。图 2(a) 为获得 405.0~460.0 nm 辐射带的激发谱, 图 2(b) 为获得 350.0~385.0 nm 辐射带的激发谱。由图可见, 在泵浦光的某些波长处, 激发光谱出现尖峰, 而其它一些波长处则没有明显尖峰。注意到图 2(a) 和 (b) 中的一部分尖峰是完全对应的, 而另一部分尖峰并不对应。并且, 实验显示出在整个 620.0~670.0 nm 的激发谱范围内均存在不同强度的漫散带的受激辐射信号。激发谱的这些明显特征表明: 存在着几种不同的布居高位三重态(1)³A_g 或 (2)³A_g 的途径。

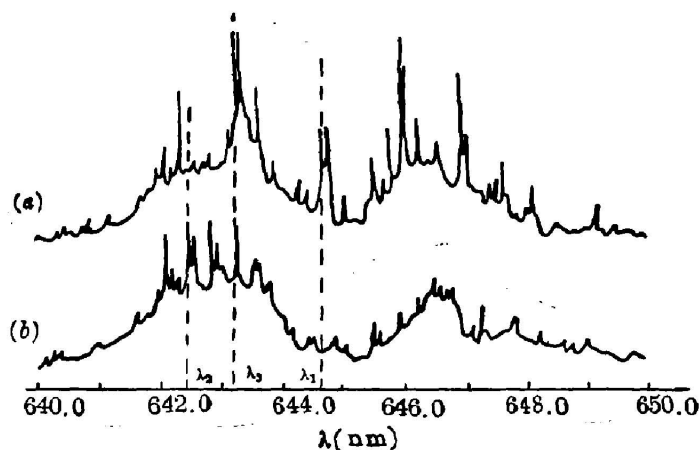


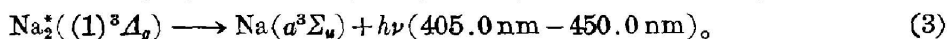
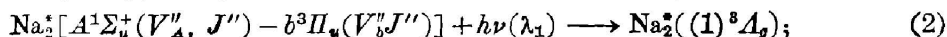
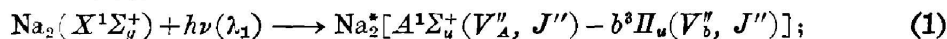
Fig. 2

(a) Excitation spectrum for generating violet diffuse band (405.0~460.0 nm)

(b) Excitation spectrum for generating UV diffuse band (350.0~385.0 nm)

可将布居高位三重态的途径分为二类: 第一类是以 $A^1\Sigma_g^+ - b^3\Pi_u$ 混合能级为中间能级的双光子跃迁, 其激发波长对应于尖峰处的波长; 第二类是伴随有碰撞效应的双光子跃迁。第一类所对应的激发波长可有如图 3 所示的 (a)、(b)、(c) 三种典型情况 (分别对应图 2 中 λ_1 、 λ_2 、 λ_3 的情形)。

1. 对应 (a) 的情况下, 波长为 λ_1 的泵浦光第一步将分子激发到较低的 $A^1\Sigma_g^+(V''_A, J'') - b^3\Pi_u(V''_b, J'')$ 混合能级, 第二步再将分子激发到 (1)³A_g, 如图 3(a) 所示。但这时, 波长为 λ_1 的泵浦光并不能有效地使分子布居到 (2)³A_g 态, 这是由于没有适当的混合能级与 λ_1 的单光子激发对应, 或者没有适当的高位 (2)³A_g 态的振-转能级与 λ_1 的双光子激发对应。所以仅在紫带激发谱中出现尖峰, 而在紫外带的激发谱中不出现尖峰。产生紫区受激辐射带的激发-发射过程可表示为:



2. 图 3(b) 的情况与 (a) 相反, 波长为 λ_2 的泵浦光第一步将分子激发到较高的 $A^1\Sigma_g^+(V'_A, J') - b^3\Pi_u(V'_b, J')$ 的混合能级, 第二个光子再将分子激发到 (2)³A_g 态。但这时, 波长为 λ_2 的泵浦光对布居 (1)³A_g 态不是有效的, 因而仅出现对应于紫外带的尖峰, 而不存在对应于紫区带的尖峰。产生紫外区受激辐射带的激发-发射过程可表示为:

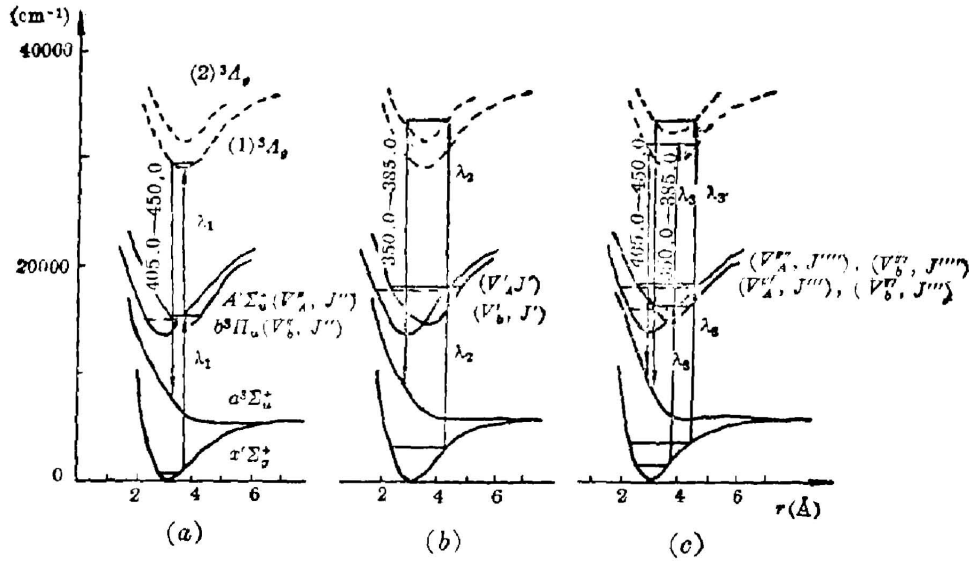
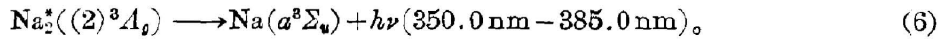
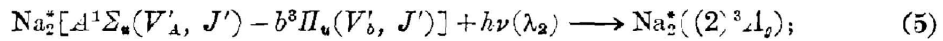
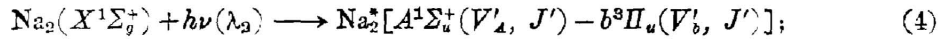


Fig. 3 Three typical excitations of two-photon transition using $A^1\Sigma_u^+ - b^3\Pi_u$ mixing energy levels as the enhanced levels



3. 在图 3(c) 的情况下, 泵浦光的波长 λ_3 既适合于将分子通过 $A^1\Sigma_u^+(V''_A, J''')$ - $b^3\Pi_u(V''_b, J''')$ 中间混合能级激发到高位 $(1)^3A_g$ 态, 又适合于将分子通过 $A^1\Sigma_u^+(V''_A, J''')$ - $b^3\Pi_u(V''_b, J''')$ 激发到 $(2)^3\Sigma_g$ 态。于是, 在激发光谱中, 对应于 λ_3 同时出现两个尖峰。

第二类布居高位三重态的激发过程是与碰撞效应有关。由于泵浦光并没有将分子激发到 $A^1\Sigma_u^+ - b^3\Pi_u$ 的混合能级, 第一个光子只是将分子激发到 $A^1\Sigma_u^+$ 态, 然后, 再由第二个光子将分子从 $A^1\Sigma_u^+$ 态抽运到高位单重 g 态, 并通过碰撞效应, 使粒子布居高位三重态, 或者先通过碰撞效应使分子转移到 $b^3\Pi_u$ 三重态, 再由第二个光子将分子抽运到高位三重态, 从而产生漫散带的受激辐射。显然, 这时的辐射强度比起对应于尖峰处泵浦波长激发的情形来要弱。然而, 当泵浦光在较宽波段范围内调谐时必然都能获得漫散带的受激辐射。

四、结 论

高位三重态的布居及漫散带受激辐射的产生是发展可调谐激光的重要研究课题。我们用调谐范围达数百 Å 的染料激光双光子泵浦钠分子时, 始终可测得由高位三重态出发的位于紫外和紫区的漫散带受激辐射, 这为研制上述波段的可调谐激光提供了重要的线索。

本工作表明, 在上述泵浦情况下, 高位三重态的布居是以 $A^1\Sigma_u^+ - b^3\Pi_u$ 混合转动能为中间增强能级的双光子跃迁以及与分子间的碰撞效应有关的双光子跃迁的共同贡献。因而对三重态及其与单重态的混合能级的进一步研究是很重要的。

参 考 文 献

- [1] J. P. Woerdman; *Chem. Phys. Lett.*, 1976, **43**, No. 3 (Sep), 279.
 [2] M. Allegrini, G. Alzetta, A. Kopystynska, L. Moi and G. Orriols; *Optics Commun.*, 1977, **22**, No. 3 (Sep), 329.
 [3] J. P. Woerdman; *Optics Commun.*, 1978, **26**, No. 2 (Aug), 216.
 [4] A. Kopystynska and P. Kowalczyk; *Optics Commun.*, 1979, **28**, No. 1 (Jan), 78.
 [5] M. Allegrini and L. Moi; *Optics Commun.*, 1980, **32**, No. 1 (Jan), 91.
 [6] M. E. Koch, K. K. Verma and W. C. Stwalley; *J. O. S. A.*, 1980, **70**, No. 6 (Jun), 627.
 [7] C. Y. R. Wu, J. K. Chen; *Optics Commun.*, 1982, **44**, No. 3 (Dec), 100.
 [8] C. Y. R. Wu, J. K. Chen, D. L. Judge and C. C. Kim; *Optics Commun.*, 1983, **48**, No. 1 (Nov), 23.
 [9] J. T. Bahns and W. C. Stwalley; *Appl. Phys. Lett.*, 1984, **44**, No. 9 (May), 826.
 [10] 王祖贻, 马龙生, 夏慧荣, 张开昌, 郑一善; *to be published in Optics Commun.*, 1986.
 [11] 王祖贻, 夏慧荣, 马龙生, 林远齐, 郑一善; *Appl. Phys. B* 1985, **37**, No. 4 (Aug), 233.
 [12] 王祖贻, 王应哲, G. P. Morgan and A. L. Schawlow; *Optics Commun.*, 1984, **48**, No. 6 (Jan), 398.
 [13] G. Jeung; *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, 1983, **16**, No. 23 (Dec), 4289.
 [14] G. Jeung; *to be published.*

Stimulated radiation of UV and violet diffuse bands by two-photon pumping covering a wide wavelength region in Na₂*

WANG ZUGENG, ZHANG KECHANG, TANG XIAOLING AND ZHENG YISHAN
 (Department of Physics, East China Normal University, Shanghai)

(Received 10 March 1986)

Abstract

This paper reports the generation of the stimulated radiation of UV (350.0~385.0nm) and violet (405.0~460.0nm) diffuse bands by two-photon pumping covering a wide wavelength region (620.0~670.0nm) in Na₂. The processes of the excitation and emission are discussed.

* Projects Supported by Science Fund of the Chinese Academy of Sciences.