

产生二步混合激发受激辐射的 光延时效应研究

张开昌 秦莉娟 王祖庚 郑一善
(华东师范大学物理系)

提 要

本文对双光束二步混合激发气体样品产生受激辐射的光延时效应进行了研究。通过三能级模型计算了激发能级上粒子数布居随时间的变化,并以实验进行验证。计算得到与实验值符合较好。

关键词: 光延时效应, 二步激发, 碰撞能量转移。

一、引 言

原子-分子系统中的碰撞能量转移过程是使原子或分子某些能级(或能态)获得布居的有效方法。我们曾用等频二步及不等频二步激光混合激发 K_2-K 、 Na_2-K 、 Na_2-Na 系统,即第一步激发分子,通过分子-原子间的近共振碰撞能量转移过程,使原子的特定能级获得布居;第二步再共振激发原子,从而获得了原子高位态间跃迁产生的红外受激辐射^[1~3]。与之相对应的是,如果首先共振激发原子,则通过原子-分子碰撞能量转移过程,产生了分子紫区及紫外区的扩散带受激辐射^[4]。

在两束光分别激发分子及原子的情况下,所产生的原子受激辐射强度与两束光之间的相对延迟时间有关。本文从计算和实验两个方面来研究二光束之间的时间延迟效应,以得到最佳受激辐射强度时的延迟时间。在计算上,通过建立三能级速率方程,并在非稳态情形下求解,考查粒子数布居随时间的演变规律;在实验上,使用光路延时装置,测量了不同延迟时间情况下,红外受激辐射强度的变化,计算所得与实验结果符合较好。

二、光延时效应的计算

用于分析分子-原子碰撞能量转移过程的三能级模型如图1所示。以 Na 为例,设在泵浦光激发下, Na_2 分子从基态 $X' \Sigma_g^+$ 的某一振转能级 L_0 激发到分子 $A' \Sigma_g^+$ 态或 $B' \Pi_u$ 态的某一振转能级 L_1 。然后,一部分分子将通过受激辐射及自发辐射回到初始能级 L_0 , 另一部分分子通过碰撞将能量转移给原子使其布居到 $3P$ 能级 L_2 。在没有第二步继续激发的情况下,其速率方程为

$$\left. \begin{aligned} \frac{dN_0}{dt} &= B_{01}\rho(\nu)(N_1 - N_0) + \Gamma_1 N_1, \\ \frac{dN_1}{dt} &= B_{10}\rho(\nu)(N_0 - N_1) - \Gamma_1 N_1 - R_1 N_1 + R_2 N_2, \\ \frac{dN_2}{dt} &= R_1 N_1 - R_2 N_2 - \Gamma_2 N_2, \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

$$\left. \begin{aligned} B &= \frac{2\pi^2}{3\epsilon_0\hbar} |R_{ik}|^2, & \rho(\nu) &= \frac{I_\nu}{c} = \frac{I}{c\delta\nu}, \\ R_1 &= k[\text{Na}(3S)], & R_2 &= k[\text{Na}_2(X'\Sigma_g^+, \nu, J)], \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

式中, $N_i (i=0, 1, 2)$ 分别为相应能级 L_i 上的粒子数, $B_{01} = B_{10} = B$ 是爱因斯坦系数, Γ_1 和 Γ_2 为自发辐射系数, R_1 和 R_2 分别为通过碰撞过程由能级 L_1 向能级 L_2 转移及其逆过程的弛豫系数, $\rho(\nu)$ 为泵浦光的单色能量密度, R_{ik} 为相应能级的跃迁偶极矩, k 为碰撞速率常数, 方括号表示相应能级的粒子数密度, I 为泵浦光的强度。

由于在脉冲光激发下, 激发强度 I 是时间的函数且与样品作用时间很短, 不能认为 $\rho(\nu)$ 与时间无关, 因而必须考虑粒子数随激发强度变化的瞬态解。为了得到粒子数随时间变化的瞬态情况, 我们用数值迭代法, 由计算机求解上述方程。

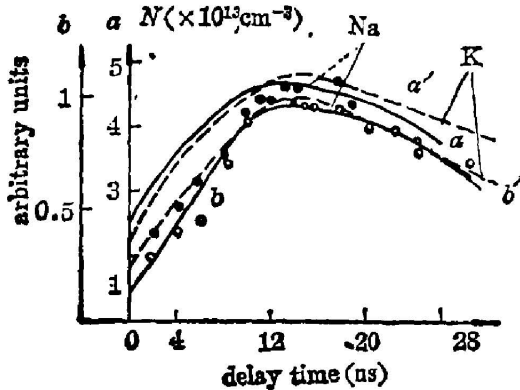


Fig. 2 Comparison of calculated and experimental delay time in Na vapor.
Line a: Na(3P) level population density versus delay time.
Line b: infrared stimulated emission intensity versus delay time.

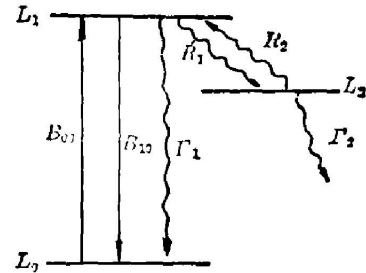


Fig. 1 Three-level model of energy transfer process of molecule-atom collision

设脉冲泵浦光的时间函数为高斯分布, 所用激光器的脉宽为高斯分布的半宽度。对于 Na 样品, 取各常数为^[5,6] $R_1 = 4.86 \times 10^7 \text{ sec}^{-1}$, $R_2 = 3.8 \times 10^9 \text{ sec}^{-1}$, $\Gamma_1 = 8.3 \times 10^7 \text{ sec}^{-1}$, $\Gamma_2 = 6.25 \times 10^7 \text{ sec}^{-1}$, $R_{12} = 1 \times 10^{-28} \text{ Ascm}$; 对于 K 样品, 取各常数为^[5~7] $R_1 = 8.85 \times 10^7 \text{ sec}^{-1}$, $R_2 = 5.3 \times 10^4 \text{ sec}^{-1}$, $\Gamma_1 = 8.3 \times 10^7 \text{ sec}^{-1}$, $\Gamma_2 = 3.57 \times 10^7 \text{ sec}^{-1}$, $R_{12} = 1 \times 10^{-28} \text{ Ascm}$ 。考虑到分子基态 $X'\Sigma_g^+$ 中仅有一部分振转能级上的粒子受到激发, 取 $[\text{Na}_2]$ 为温度 $T = 500^\circ\text{C}$ 时分子总浓度的 $1/5$, 取 $[\text{K}_2]$ 为温度 $T = 430^\circ\text{C}$ 时分子总浓度的 $1/5$ 。当激光能量为 $10 \mu\text{J}$, 脉宽为 $1.2 \times 10^{-8} \text{ sec}$, 聚焦面积为 0.16 mm^2 , 则 $\rho(\nu) = 5.7 \times 10^{-10} (\text{Jsec}^{-1}\text{m}^{-3})$ 。

计算得到的 Na_2 -Na 碰撞时 Na 原子 3P 能级上粒子数变化和 K_2 -K 碰撞时 K 原子 4P 能级上粒子数变化分别如图 2 中曲线 a、a' 所示。由图可知, Na 原子 3P 能级的粒子数布居最大值出现在第一步激光激发后约 14.8 ns 时; 而 K 原子 4P 能级上的粒子数布居最大值出现在第一步激发后约 12.1 ns 时。因此, 二步混合激发时若使第二束激光相对第一束激光有与此相同的时间延迟, 就能获得最大强度的红外受激辐射输出。

三、光延迟效应的实验和结论

研究光延迟效应的实验装置如图 3 所示。以一台 YAG 激光器同时泵浦两台染料激光器，两束激光输出后其线聚焦于热管样品炉中心。当炉内装有 Na 样品时，炉温控制在 500°C ；当炉内装有 K 样品时，炉温控制在 430°C 。与作者以前工作不同的是在第二束输出激光后加入一自制的多程怀特 (White) 池光延迟装置，它可使光束在腔池内多程延迟而保持出入光束性质共轭。在光束发散及能量损耗都较小时，也可使用由几块平面反射镜组成的延时装置*。

在 Na 为样品时，两台均用 Rh590 染料激光输出。一束置于 $5600\text{ \AA} \sim 5900\text{ \AA}$ 范围的任意波长处(对应 $\text{Na}_2 X' \Sigma_g^+ \rightarrow A' \Sigma_g^+ \cdot B' \Pi_u$ 的吸收区)，设为激光 1；另一束调谐到 5682 \AA 或 5688 \AA 的原子共振波长处，设为激光 2。观察由布居反转产生的 $4D \rightarrow 4P$ ($2.34\text{ }\mu\text{m}$) 或 $4P \rightarrow 4S$ ($2.20\text{ }\mu\text{m}$) 的红外受激辐射信号，如果挡住激光 2，仅让激光 1 激发样品时，没有红外信号产生；若挡住激光 1，仅让激光 2 激发样品时，可得到由等频二步激发碰撞能量转移过程所产生的红外信号^[3]，强度为 I_1 ；当激光 1 和激光 2 共同作用样品时，信号将明显增强为 I_{total} 。显然，增加的部分 $I_{\text{total}} - I_1$ 即为由两光束中各取一个光子由不等频二步激发碰撞能量转移过程产生的信号。

在 K 为样品时，用 DCM 染料激光输出作为激光 1，波长调谐在 $6250\text{ \AA} \sim 6950\text{ \AA}$ 范围内，先将分子激发到 $A' \Sigma_g^+$ 或 $B' \Pi_u$ 态，通过碰撞能量转移使原子 $4P$ 能级得到布居后，再用 Rh590 染料激光输出作为激光 2，调谐到 5782 \AA 、 5801 \AA 、 5812 \AA 或 5831 \AA 处共振激发 K 原子到 $7S$ 或 $5D$ 能级，从而可产生由 $7S \rightarrow 6P$ 、 $5D \rightarrow 6P$ 和各串级迁移形成的红外受激辐射信号。由于实验使用的红外探测器响应波长低于 $3.4\text{ }\mu\text{m}$ ，因此通过观察 $5P \rightarrow 5S$ ($2.71\text{ }\mu\text{m}$)、 $5P \rightarrow 3D$ ($3.14\text{ }\mu\text{m}$, $3.16\text{ }\mu\text{m}$) 等串级受激辐射信号来研究光延迟效应的。在这种情况下，若挡住激光 2，仅让激光 1 作用样品时，由于二步泵浦光解离过程^[2]， K_2 分子可被激发到高位 g 态的解离区，并解离为 $4S + 5P$ 原子，因而也能产生红外信号，但强度 I_1 较弱；若挡住激光 1，仅让激光 2 激发样品时，与 Na 中情形类似，将得到等频二步激发产生的红外信号，强度为 I_2 ；当激光 1 和激光 2 同时泵浦时，信号将大大增加。这时，由两束光共同作用所产生的信号强度为 $I_{\text{total}} - I_1 - I_2$ 。

当两束染料激光的能量为 $10 \sim 20\text{ mJ}$ 时，获得的总红外受激辐射能量在 Na、K 两种蒸气中约为 $10\text{ }\mu\text{J}$ 。其中不等频二步激发的信号比等频二步激发的信号大 $4 \sim 5$ 倍。

实验中，固定激光 1 的光程，利用延时装置改变激光 2 的光程，随着两束光到达样品中心的相对延迟时间变化，由不等频二步混合激发所产生的红外受激辐射信号强度也发生变化。实验所得到的 Na 样品及 K 样品的强度曲线分别如图 2 中的曲线 b 、 b' 。对应于最大强

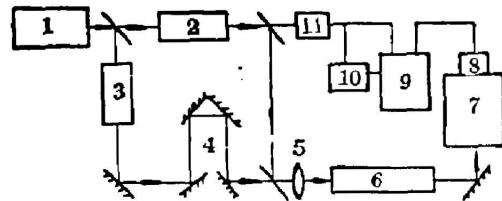


Fig. 3 Experimental setup

1—YAG Laser 2, 3—dye laser 4—optical-time-delay instrument 5—lens 6—heat-pipe oven 7—grating monochrometer 8—infrared detector 9—signal processing system 10—oscilloscope or chart recorder.

* 实验装置的其他部分可参见文献[3]。

度的受激辐射信号,测得 Na 样品中的最佳延迟时间为 13.5 ± 0.5 ns; K 样品中的最佳延迟时间为 11.5 ± 0.5 ns。这一结果与用三能级速率方程模型计算得到的最佳延迟时间较符合。

实验也表明,当第二束光脉冲到达样品的时间比第一束激光稍有超前时(如 2~3 ns),仍能由碰撞能量转移过程产生红外受激辐射信号,但强度大大下降。这是由于泵浦光脉冲有一定宽度。计算也得到了同样结果。

为了研究二步混合激发分子-原子系统时两光束之间的延迟效应,以获得最大强度的受激辐射输出,我们建立了描述系统粒子数变化的速率方程,并在非稳态情形下求解,得到了最佳延迟时间、同时在实验中测定了受激辐射强度随时间的变化关系。计算值与实验结果符合较好。上述分析和实验,对寻找并产生较强的二步混合激发受激辐射,对研究分子-原子间碰撞能量转移的动力学过程,都有一定意义。

参 考 文 献

- [1] Z. G. Wang *et al.*; *Opt. Commun.*, 1984, **51**, No. 3 (1 Sep), 155~159.
- [2] L. J. Qin *et al.*; *Laser Spectroscopy VII*, (Springer Verlag, New York, 1985), 225~226.
- [3] Z. G. Wang *et al.*; *Appl. Phys. (B)*, 1986, **41B**, No. 2 (Oct), 125~129.
- [4] Z. G. Wang *et al.*; *Opt. Commun.*, 1986, **58**, No. 5 (1 Jul), 315~318.
- [5] A. N. Nesmeyanov; *Vapor Pressure of Chemical Elements* ed. by Robert Gary, (Amsterdam, 1963), 423~431.
- [6] Steveus *et al.*; *J. Chem. Phys.*, 1977, **66**, 1477~1484.
- [7] E. K. Kraulinya *et al.*; *Chem. Phys. Lett.*, 1976, **39**, 565~566.

Optical-time-delay effect of stimulated emission generated by two-step hybrid pumping

ZHANG KAISHANG, QIN LIJUAN, WANG ZUGENG AND ZHENG YISHAN

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

(Received 6 January 1987; revised 11 May 1987)

Abstract

This paper studies the optical-time-delay effect of stimulated emission generated by two-step hybrid pumping theoretically and experimentally. Using three-level model, we calculate the population density of exciting level as a function of time and investigate the relation between stimulated emission intensity and delay-time of the two pumping beam. The best delay-time calculated agrees well with that from the experiment.

Key words: optical-time-delay-effect; two-step excitation; collisional energy transfer.