

光泵 Ba/He 系统 582.8 nm 碰撞诱导 荧光辐射及其弛豫振荡

莫春松 楼祺洪 王润文 霍芸生
(中国科学院上海光学精密机械研究所)

提 要

观察到光泵 Ba/He 混合物产生的 582.8 nm 碰撞诱导荧光新谱线及其弛豫振荡。进行理论分析和计算,结果与实验相符合。

关键词: 碰撞诱导荧光; 弛豫振荡。

一、引 言

弛豫振荡在固体激光器、有机染料激光器、气体激光器中被观察到并进行了广泛的研究^[1-3]。这种现象是在介质荧光寿命大于腔的衰减时间的条件得到满足情况下,由于光场和腔内介质上、下能级布居反转的作用而引起的,可以用耦合微分方程组——关于介质粒子数密度和腔内光子数密度的两个速率方程得到令人满意的解释^[4,5]。根据它的产生条件,可以知道,短的谐振腔和高的输出耦合将有利于清楚地观察到弛豫振荡,这方面的工作近来仍有报道^[6]。

碰撞诱导荧光的工作起源于研究金属的原子蒸汽在高气压惰性气体的碰撞环境中,其发射谱的碰撞增宽和中心频率移动效应^[7]。后来, Raymer 等人研究了铯和氩的原子混合气体的受激喇曼散射和受激碰撞诱导荧光^[8]。最近的工作集中用特定波长的激光对金属卤化物的蒸汽进行光离化,产生处于一定能态上的金属原子,然后,再用另一束激光进行受激过程的研究^[9,10]。

本文报道了现阶段我们研究 XeCl 准分子激光泵浦钡蒸汽和氦气混合物,产生碰撞诱导荧光的实验情况,首次观察到该荧光的弛豫振荡,并对它进行理论分析和数值计算,与实验观察相比较,结果能较好地符合。

二、实验安排

实验装置如图 1 所示。用一台 Lumonics 的 Hyper Ex-400XeCl 准分子激光器作泵浦源。其输出为单脉冲能量 300 mJ,脉宽 40 ns,波长 308 nm 的紫外激光。样品池由内径 28 mm、长度约 170 cm 的不锈钢管制成,两端用石英腔片密封,为防止加热时钡蒸汽向两端扩散遇冷凝结而污染石英腔片,在不锈钢管两端、靠近封口处加上水冷套。把样品池插入管

收稿日期: 1987 年 7 月 1 日; 收到修改稿日期: 1987 年 8 月 26 日

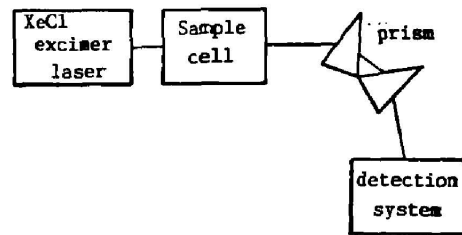


Fig. 1 Schematic diagram of the experimental arrangement

式电阻炉的炉膛, 加热范围约 100 cm, 最高温度为 1100°C, 此时样品池内钡的饱和蒸汽压约为 15 mm of Hg。选氮气作缓冲气体, 压力在 760 mm of Hg 以下变化。从样品池输出的碰撞诱导荧光和透射泵浦光经两棱镜组成的色散系统后, 到达探测系统, 进行各种测量。探测系统包括光谱仪、能量计、光电管和示波器等, 分别用于拍荧光光谱、荧光波形、测量能量。

三、实验结果与理论分析

通过各种测量装置, 测得碰撞诱导荧光的波长为 $\lambda_0 = 5829 \text{ \AA}$; 谱宽 $\Delta\lambda_0 = 0.933 \text{ \AA}$; 能量 0.1 mJ; 荧光波形如图 4 所示。

由氩原子的发射光谱, 可以知道该荧光不可能是氩原子发射的。考察钡的原子能级图, 发现 λ_0 与钡原子从 $6p5d^1P_1$ 态跃迁到 $6s5d^1D_2$ 态的发射线 582.8 nm 在实验误差范围内是一致的, 因此, 我们确定该荧光是钡原子从 $6p5d^1P_1$ 向 $6s5d^1D_2$ 跃迁时发射的。

为了确定荧光的产生机制, 在样品池前插入不同透过率的衰减片, 测量不同的入射泵浦强度对荧光强度的影响。图 2 是荧光的相对强度随衰减片透过率而变化的曲线图。由图 2 可见, 两者的关系是线性的, 说明这个过程是自发而不是受激的^[8]。因此, 进行理论分析时,

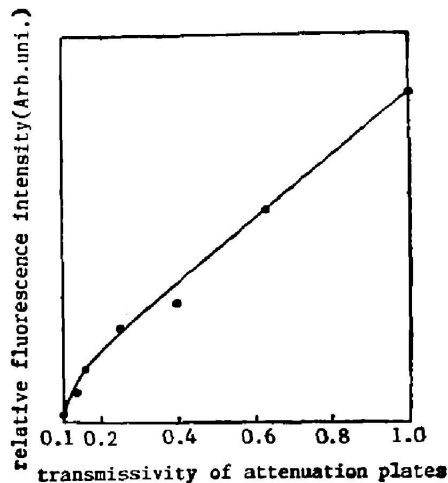


Fig. 2 Dependence of relative fluorescence intensity on transmissivity of attenuation plates

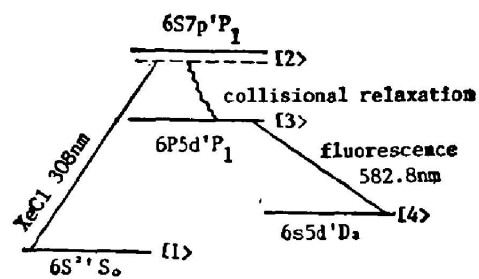


Fig. 3 Partial energy level diagram of atomic Ba relevant to collisional induced process

* 这里我们忽略了经棱镜色散后引入的误差。

可以不考虑传播效应, 忽略各物理量随空间距离的变化。

图 3 是碰撞诱导过程所涉及的钡的原子能级图。在入射泵浦光作用下, 处于基态(用 $|1\rangle$ 表示)的钡原子跃迁到 $6s7p\ ^1P_1$ 附近的虚能级(用 $|2\rangle$ 表示), 然后通过氦原子的碰撞弛豫过程, 无辐射跃迁到电偶极近似下是禁戒的 $6p5d\ ^1P_1$ 态(用 $|3\rangle$ 表示), 再从 $6p5d\ ^1P_1$ 向 $6s5d\ ^1D_2$ (用 $|4\rangle$ 表示)跃迁发出荧光。

由于入射泵浦场的强度不高, 并且采用的是无透镜聚焦的准直泵浦方式, 泵浦场的强度没有达到产生受激过程的阈值, 因此, 只观察到自发散射, 荧光在传播过程没有增益。某一时刻 t , 样品池内各点的强度是相等的, 这样就可以忽略空间变量, 而只考虑随时间的变化, 即用速率方程理论来分析解决碰撞诱导荧光的问题。

图 4(a) 是实验上拍摄到的不同加热温度时的荧光波形。可以看到它们是振荡衰减的, 作者认为这是碰撞诱导荧光的弛豫振荡。

为了从理论上解释观察到的现象, 考虑态 $|3\rangle$ 的钡原子数密度 N_3 和碰撞诱导荧光强度 I_1 , 它们满足如下方程组

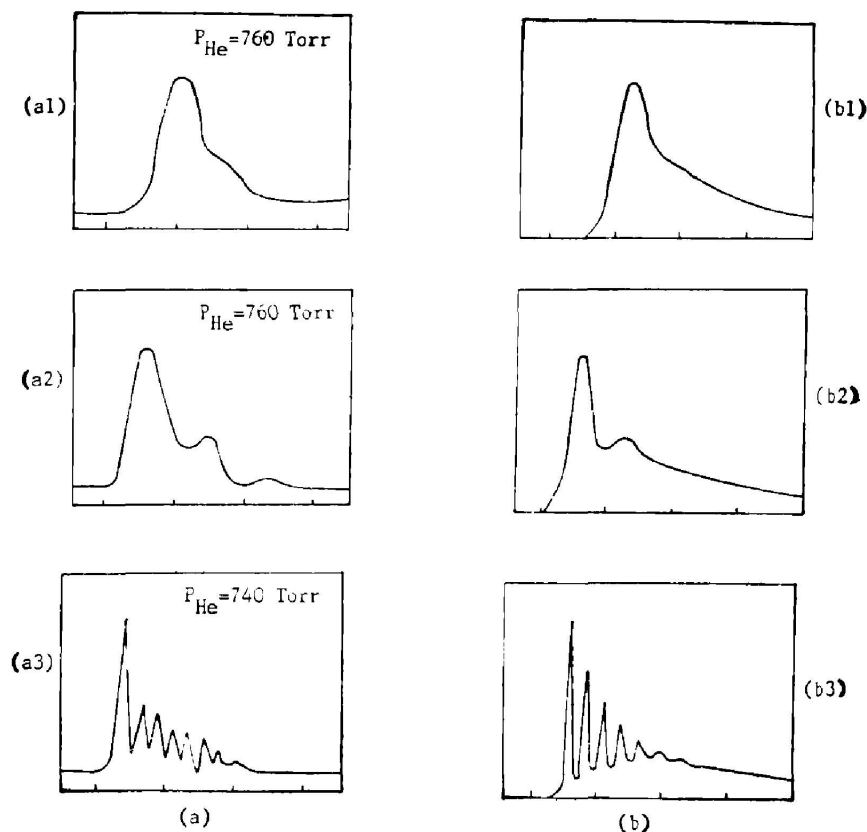


Fig. 4 Time dependent shape of fluorescence

- (a) Experimental observation: (a1) 790°C, 5ns/div; (a2) 820°C, 5ns/div; (a3) 950°C, 10ns/div;
 (b) Calculated results: (b1) $A=2.241 \times 10^{26}$, $t_d=10$ ns, 5ns/div; (b2) $A=2.750 \times 10^{26}$, $t_d=15$ ns, 5ns/div;
 (b3) $A=4.481 \times 10^{26}$, $t_d=50$ ns, 10ns/div

$$\left. \begin{aligned} \frac{dN_3}{dt} &= -W_{3 \rightarrow 4} N_3 - \frac{1}{\tau} N_3 + P, \\ \frac{dI_s}{dt} &= W_{3 \rightarrow 4} \left(N_3 - \frac{g_3}{g_4} N_4 \right) + \frac{h\nu_s c}{\tau} N_3 - \frac{1}{t_c} I_s, \\ W_{3 \rightarrow 4} &= \frac{\lambda_s^2 g(\nu_s)}{8\pi n_s^2 h\nu_s \tau} I_s, \\ t_c &= \frac{n_s L}{c \ln R} = 1.48 \text{ ns}, \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

式中 $W_{3 \rightarrow 4}$ 是钡原子从态 |3> 到态 |4> 的受激发射系数; $g(\nu_s) \sim 4\nu_s^{-1}$ 是钡原子的线型函数; ν_s 为荧光的频率。 $\tau = 17.86 \text{ ns}^{[1]}$, 是钡原子在态 |3> 的寿命; $n_s = 0.88$ 是钡蒸汽在 ν_s 处的折射率; t_c 是光子在腔内的衰减时间; L 是样品池的长度。 $R \approx 4\%$, 是石英腔片的反射率; c 是真空中光速; h 是普朗克常数; g_3 和 g_4 分别是态 |3> 和态 |4> 的简并度; P 表示对态 |3> 的净泵浦速率, 它与态 |2> 和态 |4> 的钡原子数密度 N_2, N_4 , 以及 N_3 和 I_s 有关。

作为弛豫振荡的必要条件^[2,3], $\tau > t_c$ 得到满足。 由于荧光能量较低, 并且亚稳态 |4> 有较长的寿命, 因此, 认为在荧光发射过程中, 态 |4> 的钡原子数密度近似保持热平衡时的值不变, 即

$$N_4 \approx g_4 N_0 \exp\left(-\frac{E_{14}}{kT}\right), \quad (2)$$

式中 N_0 表示样品池内钡原子数密度, E_{14} 表示态 |4> 和态 |1> 的能级间隔, k 为玻耳兹曼常数, T 为样品池温度。

按照解决这类问题的通常方法^[2,6], 由于预计到 N_3 和 I_s 等将随时间的增长而衰减, 所以, 假定 $P = A \exp(-t/t_d)$ 。 A 在 2×10^{20} 到 5×10^{20} , t_d 在 10 ns 到 50 ns 范围内变化, 不同的 A 和 t_d 值与不同的实验条件相对应。 代回(1)式, 对它们求数值解, 结果见图 4(b), 其中, 用数字拟合法确定。

将图 4(a) 和 (b) 作比较, 理论计算与实验结果基本符合。 可见, 本文所采用的方法简明、合理, 能较好地反映实验情况, 结果是令人满意的。

碰撞诱导荧光的实验和理论分析工作, 在研究原子碰撞的动力学过程中有着其重要的地位。 首先, 通过测量原子发射谱的碰撞增宽, 可以求出处于激发态的辐射原子与微扰原子碰撞的消激发和猝灭截面, 研究它们间的距离为 R 时的相互作用势能 U_n/R_n 。 此外, 还可以研究亚稳态的辐射原子通过与池壁、微扰原子等的碰撞弛豫到基态的过程。 因此, 碰撞诱导过程无疑是研究原子碰撞物理和原子光谱的一有力工具。

参 考 文 献

- [1] H. Statz et al.; *Advanced in Quantum Electronics*, (J. R. Singer, Ed. Columbia Univ. Press, New York, 1961), 342~347.
- [2] C. Lin; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1972, **QE-11**, No. 8 (Aug), 602~609.
- [3] L. W. Cape rson, A. Yariv; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1972, **QE-8**, No. 2 (Feb), 69~73.
- [4] G. Birnham; *Optical Masers*, (Academic Press, New York, 1964), 51~56.
- [5] A. Yariv; *Quantum Electronics*, (John Wiley & Sons Inc., New York, 1975), 273~277.
- [6] Y. E. Meyer et al.; *Opt. Commun.*, 1986, **60**, No. 1, 2 (Oct), 64~68.
- [7] B. Cheron et al.; *Phys. Rev. (A)*, 1977, **A15**, No. 2 (Feb), 651~660.
- [8] M. G. Raymer, J. L. Carlsten; *Phys. Rev. Lett.*, 1977, **39**, No. 21 (Nov), 1326~1329.

- [9] S. Shahdin *et al.*; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1981, **QE-17**, No. 7 (Jul), 1276~1280.
[10] D. G. Cunningham *et al.*; *Optica Acta*, 1986, **33**, No. 4(Apr), 425~436.
[11] *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, (Robert C. Weast Ed. CRC Press Inc., Boca Raton, Florida, 1982), E-334.
[12] Y. Miyazoe, M. Maeda; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1971, **QE-7**, No. 1 (Jan), 36~37.

582.8nm collisional induced fluorescence emission and it's relaxational oscillations in optical pumped Ba/He system

MO CHUNSEONG, LOU QIHONG, WANG RUNWEN AND HUO YUNSHENG
(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica)

(Received 1 July 1987; revised 26 August 1987)

Abstract

We have observed 582.8 nm collisional induced fluorescence emission and it's relaxational oscillations in optically pumped Ba/He mixtures. Theoretical analysis and numerical calculations are presented and the results coincide with experimental observations.

Key words: collisional induced fluorescence; relaxational oscillation.