

钡蒸气的受激喇曼散射及碰撞诱导受激辐射

霍芸生 莫春松 丁爱臻 楼祺洪
(中国科学院上海光学精密机械研究所)

提 要

在宽带 XeCl 激光泵浦的钡蒸气中, 观察到波长分别为 472.6 nm, 582.6 nm 和 648.3 nm 的碰撞诱导受激辐射以及波长为 475 nm 的受激喇曼散射。碰撞诱导受激辐射脉宽为 3 ns 左右的自终止型短脉冲, 其强度随缓冲气体压力的升高而上升。喇曼光脉冲前沿与泵浦光脉冲前沿之间有长达 20 ns 的时间延迟, 喇曼转换效率随缓冲气体压力的升高而下降。

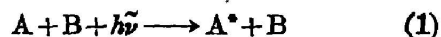
关键词: 喇曼散射; 碰撞诱导辐射; 准分子激光; 钡蒸气。

一、引 言

与金属原子的电子能级近共振的泵浦光束在金属蒸气中产生的受激喇曼散射, 以及当存在较高的缓冲气体分子密度时所产生的碰撞诱导受激辐射, 提供了有效的频率转换方法, 并为原子碰撞物理的研究, 提供了重要的实验手段。

本文实验研究了宽带 XeCl 准分子激光在钡蒸气中的受激喇曼散射及碰撞诱导受激辐射。XeCl 激光在钡蒸气中的受激喇曼散射有较高的增益系数, 其喇曼光波长为 475 nm^[4,5]。但到目前为止, XeCl 激光在钡蒸气中产生碰撞诱导辐射尚未见报道。

根据原子体系对近共振光子碰撞吸收理论^[6,7], 金属原子与缓冲气体分子相互碰撞的持续时间 τ_c 为 ps 量级, 由它所决定的原子共振线附近的“碰撞区域”的带宽 $\Gamma_c \leq 10 \text{ cm}^{-1}$ 。当泵浦激光波长与金属原子共振线间的失谐量 $|\Delta\nu|$ 大于 Γ_c 时, 它产生的光泵效果将非常弱。但如果失谐量 $|\Delta\nu|$ 同时又满足 $|\Delta\nu| \leq K T / h \nu$, 缓冲气体 B 与金属原子 A 之间的准弹性碰撞可以使金属原子 A 从激光光子所产生的虚能级泵浦到 A 的实际激发能级上去:



上述反应中, 失谐量 $|\Delta\nu|$ 由缓冲气体分子 B 的平

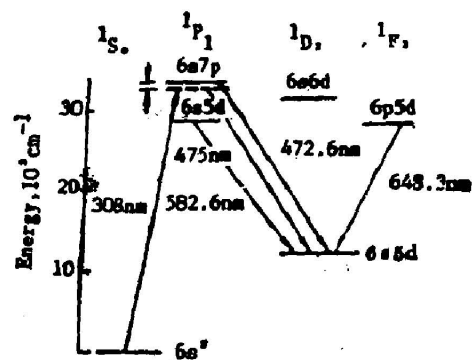


Fig. 1 Partial energy levels of Ba related to the processes of stimulated Raman scattering and stimulated collision-induced fluorescence

动能补偿或吸收。因此,在一定的金属原子密度下,如果入射激光足够强,或者气体分子B密度足够高时,可能在激发能级 A^* 与某一较低能级之间产生粒子数反转,并实现碰撞诱导辐射^[1~3]。

图1给出钡原子的部分能级图^[7],波长为308 nm的激光处于钡原子 $6s^2\ ^1S_0 \sim 6s7p\ ^1P_1$ 跃迁(307.16 nm)的长波长一侧,失谐量 $|\Delta\nu| \sim 80\text{ cm}^{-1}$ 。

二、实验装置

实验装置如图2所示。Lumonics EX-400型准分子激光器自由振荡下脉冲能量约为350 mJ,脉宽为40 ns,光束发散角约为4 mrad。激光束经石英透镜 L 会聚于长度为1 m、内径为2.8 cm的热管型喇曼池中央,焦点处的功率密度约为 40 MW/cm^2 。两块石英棱镜用于输出光束的分光,滤光片 F 对308 nm高反射而透过波长大于450 nm的光。紫外强流光电管 D_1 用于接收受激喇曼散射或碰撞诱导受激辐射; D_2 用于监视参考信号,两个信号同时输入双线宽带示波器,借以给出信号之间的延迟时间。此外,还用光栅光谱仪和激光能量计在 D_1 位置进行光谱测量及光脉冲能量测量。

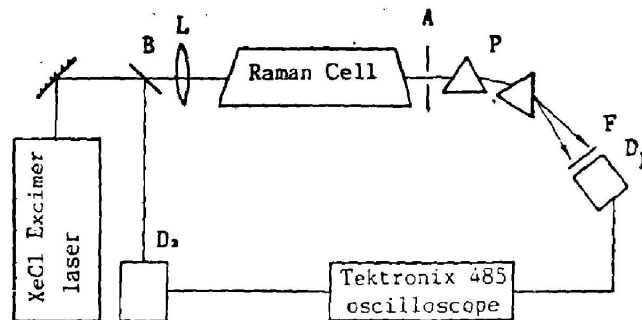


Fig. 2 Schematic diagram of the experimental arrangement

B —beam splitter; L —lens; A —diaphragm; F —filter; D_1, D_2 —photodiodes

三、受激喇曼散射和碰撞诱导受激辐射性能比较

图3给出受激喇曼散射能量随钡蒸气压的变化关系曲线,此时泵浦脉冲能量为270 mJ。当钡蒸气压为1 Torr时,达到受激喇曼散射阈值。当钡蒸气压为7 Torr时,输出的喇曼光能量达28 mJ,相应地从泵浦光到喇曼光的光子转换效率为16%。当喇曼池温度继续升高时,呈现喇曼光能量随钡蒸气压力的升高而下降的趋势。根据 Burnham 等人^[4]的分析,其原因为钡蒸气中的宽带散射所致。

受激喇曼散射光能量与缓冲气体 He 的压力有很强的依赖关系。从图4所示的实验结果可见,在泵浦光能量及钡蒸气压分别固定在250 mJ及6 Torr的条件下,受激喇曼散射光能量随 He 气压力上升而单调下降。当 He 气压从20 Torr增加到200 Torr时,相应的喇曼光能量变化为25:1。而在同样的 He 气压范围内,泵浦光经过喇曼池的透过率变化约

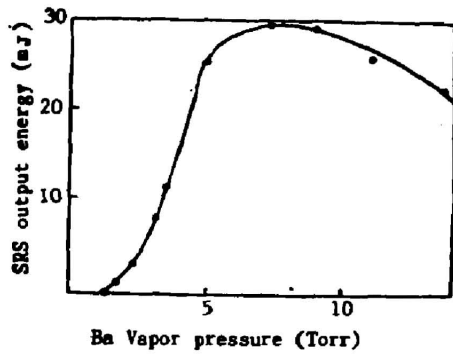


Fig. 3 Energy of the Raman-shifted radiation as a function of Ba vapor pressure, with 270 mJ incident laser energy, and 20 Torr helium pressure

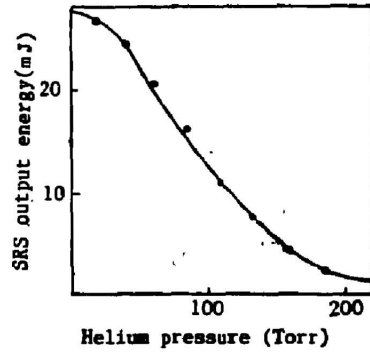


Fig. 4 Output energy of the Raman-shifted radiation as a function of helium pressure, with 250 mJ incident laser energy, and 6 Torr Ba vapor pressure

为 10%，它不可能引起喇曼光能量如此强烈的变化。我们在铅蒸气的受激喇曼散射实验中，也观察到类似的结果^[8]。

上述结果与近共振受激喇曼散射截面有关，金属原子的电子能级间近共振受激喇曼散射截面 σ 为：

$$\sigma \propto 1/\gamma_R (\Delta\nu)^2 \quad (2)$$

式中 γ_R 为喇曼能级的线宽。当缓冲气体压力较高时， γ_R 主要由钡原子与 He 原子间的碰撞加宽决定。He 气压的升高导致 γ_R 的增大以及 σ 的减小，喇曼转换过程的效率亦随之迅速下降。

与上述缓冲气体气压增加时喇曼光能量的减小相反，当 He 气压为 200~300 Torr 时，喇曼池前、后向均开始出现红、黄及蓝色光束，且强度随 He 气压的继续升高而增加。这些光束具有与泵浦光发散角相近的发散角。光谱测量表明，这些光束的波长分别为 472.6 nm, 582.6 nm 和 648.3 nm。根据钡原子能级分布，上述谱线相应于 $6s7p^1P_1$ 、 $6p5d^1P_1$ 及 $6p5d^1F_3$ 至共同的 $6s5b^1D_2$ 亚稳态能级间的跃迁相对应。

图 5 给出钡蒸气压力分别为 0.5 Torr 及 10 Torr 条件下，648.3 nm 和 582.6 nm 受激辐射强度随 He 气压力的变化，两者均随 He 气压力的升高而增强。上述特性与图 4 给出的趋势是相反的。这种压力变化关系属于碰撞诱导受激辐射的特点，因为随着缓冲气体分子密度的增大，通过光学碰撞过程(1)使基态钡原子抽运到激发态 $6s7p^1P_1$ 的速率随之加快，从而使碰撞诱导辐射的增益系数也随之增大^[9]。

为了进一步比较受激喇曼散射及碰撞诱导辐射的不同特性，我们还分别对二者进行了光谱测量。采用 WP₁ 型平面光栅光谱仪分别拍摄了 XeCl 激光光谱、波长为 475 nm 附近

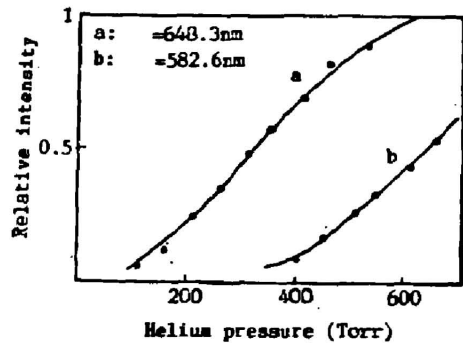


Fig. 5 Dependence of stimulated collision-induced fluorescence on helium pressure. Barium vapor pressure was 10 Torr (a), and 0.5 Torr (b), respectively

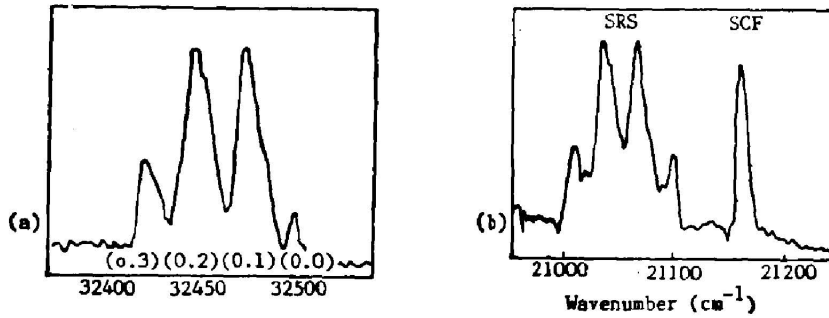


Fig. 6 Microdensitometer traces from spectrograph records

- (a) The XeCl laser emission at 308 nm;
 (b) The Raman-shifted radiation at 475nm(SRS), and the stimulated collision-induced fluorescence at 4726Å(SCF) in Ba vapor

的受激喇曼散射谱以及波长为 472.6 nm 的碰撞诱导辐射谱, 其结果由图 6 给出。XeCl 308 nm 附近的激光谱由四条谱线 (308.43 nm, 308.18 nm, 307.92 nm 和 307.69 nm) 组成, 分别对应于 XeCl 准分子 B-X 之间 0—3, 0—2, 0—1 及 0—0 四个振动跃迁带^[5]。对于受激喇曼散射谱, 当 He 气压力为 30 Torr, 喇曼池温为 950°C, 拍摄到四条谱线, 波长为 475.98 nm, 475.40 nm, 474.71 nm 及 474.02 nm, 它与泵浦光的谱线一一对应。它们与泵浦光之间的频移量为 $11410 \pm 3 \text{ cm}^{-1}$, 与喇曼终态能级 $6s5d^1D_2$ 的高度 11395 cm^{-1} 符合得很好^[7]。在相同的池温下, 当 He 气压力为 700 Torr 时摄得的 472.6 nm 谱线仅有单线结构, 与泵浦光光谱结构无关, 而仅与钡原子 $6s7p^1P_1-6s5d^1D_2$ 跃迁相对应。另外, 在 582.6 nm 及 648.3 nm 处均拍到了单线光谱, 从光谱能级来看, 它们分别对应于钡原子 $6p5d^1P_1-6s5d^1D_2$ 和 $6p5d^1F_2-6s5d^1D_2$ 之间的跃迁。

四、讨 论

1. 碰撞诱导辐射的自终止特性

我们采用快速光电二极管检测泵浦光脉冲, 受激喇曼散射脉冲和碰撞诱导受激辐射脉冲波形, 分别示于图 7(a)、(b) 和 (c)。喇曼光脉冲具有很陡的前沿, 其持续时间约为 40 ns, 略短于泵浦光脉冲的持续时间 60 ns, 另外喇曼光脉冲前沿相对于泵浦光脉冲前沿的延迟时间为 10 ns 左右。此延迟时间可长达 20 ns, 它随泵浦光强、钡蒸气压等实验参数而改变。

从图 7(c) 可见, 波长为 472.6 nm 的碰撞诱导受激辐射是一个比泵浦脉冲短得多的脉冲, 且出现在泵浦脉冲前沿, 在泵浦激光脉冲达到其峰值以前, 碰撞诱导受激辐射即已终止。对于波长为 582.6 nm 及 648.3 nm 的黄、红光束亦具有类似的结果, 其脉宽约 3 ns 左右。

产生上述结果是由于钡原子从基态泵浦到激发能级 $6s7p^1P_1$ 是通过公式 (1) 的光学碰撞, 它是一个非相干过程^[9]。在泵浦过程起始时, 碰撞诱导辐射的下能级 $6s5d^1D_2$ 尚未被粒子数占据, 因此在泵浦光的前沿部分在 $6s7p^1P_1$ 和 $6s5d^1D_2$ 之间形成粒子数反转, 从而观察到碰撞诱导辐射。但一旦在亚稳态 $6s5d^1D_2$ 上集聚了较多的粒子数, 粒子数反转条件将不复成立, 受激辐射也随之终止, 因此所观察到的碰撞诱导辐射呈现为自终止型短脉冲。

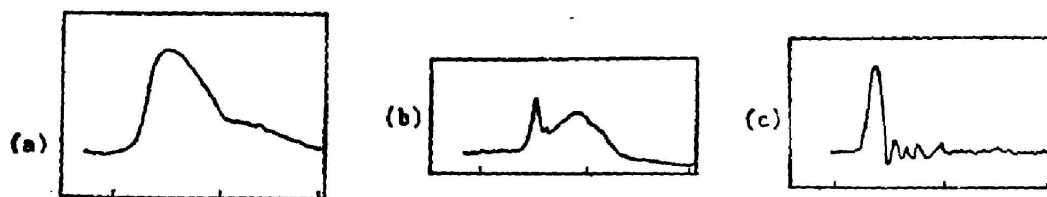


Fig. 7 Synchronized oscillograms showing the incident XeCl laser pulse shape (a), and the pulse shapes of the Raman-shifted radiation (b) and the simulated collision-induced fluorescence at 4726\AA (c). Helium pressure was 20 Torr for (b), and 550 Torr for (c), respectively
(time scale: 10 ns/div., $T=950^\circ\text{C}$)

2. 关于 $6p5d\ ^1P_1$ 及 $6p5d\ ^1F_3$ 的形成

在上述讨论中,公式(1)仅涉及了铷原子 $6s7p\ ^1P_1$ 的形成,对于碰撞诱导辐射 582.6 nm 和 648.8 nm 相对应的上能级 $6p5d\ ^1P_1$ 及 $6p5d\ ^1F_3$ 的形成过程有必要作进一步的讨论。

对于铷原子激发能级^[7]的分析表明,从 $6s7p\ ^1P_1$ 到 $6p5d\ ^1P_1$ 和 $6p5d\ ^1F_3$ 之间产生直接的偶极跃迁是不可能的,经过中间能级 $6s6d\ ^1D_2$ 的串级跃迁是符合选择定则的。但是要验证此项假设,最好能检测这些跃迁的红外辐射,根据光谱能级计算,这些红外辐射的波长应在 $2.92\ \mu\text{m}$ 到 $5.94\ \mu\text{m}$ 范围内。由于实验条件限制,目前还未进行仔细系统的测量,这方面工作有待进一步深入。

3. 关于受激喇曼散射和碰撞诱导辐射之间的竞争

从图1可见,受激喇曼散射及碰撞诱导辐射均以亚稳态 $6s5d\ ^1D_2$ 为终态,因此它们之间存在着竞争。喇曼散射的增益系数 g_{RS} 正比于^[10]

$$g_{\text{RS}} \propto N(6s^2\ ^1S_0) - N(6s5d\ ^1D_2) \quad (3)$$

因此只有当亚稳态 $6s5d\ ^1D_2$ 能级上集聚了足以与基态原子相比拟的粒子数时才会对喇曼转换过程产生明显的影响;另一方面,碰撞诱导受激辐射的增益系数 g_{SCR} 正比于(以 472.6 nm 为例):

$$g_{\text{SCR}} \propto N(6s7p\ ^1P_1) - N(6s5d\ ^1D_2) \quad (4)$$

由于 $6s7p\ ^1P_1$ 等能级粒子数远小于基态粒子数,亚稳态 $6s5d\ ^1D_2$ 的粒子数密度变化时 g_{SCR} 有明显的影响,甚至可能破坏公式(4)的粒子数反转条件。

由于喇曼光脉冲相对于泵浦光脉冲有一个延迟时间,因此,在泵浦光脉冲前沿阶段,我们观察到碰撞诱导辐射,一旦受激喇曼过程出现,铷原子 $6s5d\ ^1D_2$ 能级粒子数增加,占主导地位后即转向受激喇曼散射。

参 考 文 献

- [1] D. G. Cunningham *et al.*; *Optica Acta*, 1986, **33**, No. 4 (Apr), 425.
- [2] D. G. Cunningham *et al.*; *Optica Acta*, 1984, **31**, No. 3 (Mar), 249.
- [3] M. G. Raymer *et al.*; *Phys. Rev. Lett.*, 1977, **39**, No. 21 (Nov), 1326.
- [4] R. Burnham *et al.*; *Opt. Lett.*, 1978, **3**, No. 6 (Dec), 215.
- [5] D. Cotter *et al.*; *Opt. Commun.*, 1978, **26**, No. 2 (Aug), 251.
- [6] J. L. Carlsten *et al.*; *Phys. Rev. A*, 1977, **15**, No. 3 (Mar), 1029.
- [7] C. E. Moore; "Atomic Energy Levels", 1971, **3**, (NSRDS-NBS 35, U. S. Government Printing Office, Washington, D. C.), 131.

- [8] 霍芸生等;《光学学报》,1986, 6, No. 10 (Oct), 890.
[9] Y. Prior *et al.*; *Phys. Rev. A*, 1986, 33, No. 4 (Apr), 2362.
[10] A. Yariv; "*Quantum Electronics*", (John Wiley & Sons. In., New York, London, Sydney, Toronto, 1975), 477.

Stimulated Raman scattering and stimulated collision-induced fluorescence in barium vapor

HUO YUNSHENG, MO CHUNSONG, DING AIZHEN AND LOU QIHONG
(*Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica*)

(Received 24 April 1987; revised 26 August 1987)

Abstract

The stimulated collision-induced fluorescence (SCF) at wavelengths of 472.6 nm, 582.6 nm and 648.3 nm, as well as Raman-shifted radiation at wavelength of 475 nm were observed in barium vapor pumped by broadband pulse of the XeCl laser. The SCF was found to be self-termination short pulses with FWHM of 3 ns, and its intensity increased with buffer-gas pressure. There existed time delay as long as 20 ns between the front edges of the pump pulse and of the Raman-shifted pulse, and the Raman conversion efficiency decreased significantly as the buffer-gas pressure increasing.

Key words: Raman scattering; collision-induced fluorescence; excimer laser; barium vapor.