

光解产生的铅原子中受激喇曼散射 和共振激光辐射*

张 杰 程丙英 张道中 赵理曾 赵玉英 王大眷
(中国科学院物理所)

提 要

用 2660 Å 的紫外激光解离 PbCl₂ 分子时, 发现在 3740 Å 和 3734 Å 波长上有较强的受激辐射输出。根据它们的光谱特性和铅原子的能级结构判断, 这些辐射是基于双光子解离 PbCl₂ 分子得到的铅原子在 6p² 3P₂ 亚稳能级上的布居而产生的光泵共振激光辐射和受激喇曼散射。提出了描述整个过程的理论模型, 通过拟合实验结果, 确定了 2660 Å 激光双光子解离 PbCl₂ 产生 6p² 3P₂ 亚稳态铅原子的光解系数。当 PbCl₂ 分子密度为 $N_{00}=6.21 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 时, 光解产生的铅原子在 6p² 3P₂ 和 6p² 1D₂ 这两个亚稳态的最大布居数近似相等, 称为 $2.0 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 。

关键词: 受激喇曼散射, 共振激光辐射。

一、引 言

紫外光单光子光解金属化合物获得金属原子的高位能级或亚稳能级布居, 能够产生原子共振激光(主要在红外和可见波段)及反斯托克斯喇曼激光(在紫外和真空紫外波段)。这种系统具有泵浦阈值低, 转换效率高和装置简单等特点, 因而引起人们很大兴趣^[1,2]。但是对于大多数具有较大解离能的金属化合物, 单光子过程不足以使它们解离, 它们的解离需要双光子或多光子过程才能实现。对这种双光子或多光子过程的深入研究有助于得到更多的共振激光线, 特别是得到更多的有关亚稳态布居的信息, 以达到扩展现有的反斯托克斯喇曼激光波段的目的。

作者曾简单报道过 2660 Å 激光入射到 PbCl₂ 蒸气中时 3740 Å 铅原子共振激光辐射的发现^[3]。本文进一步观察了铅原子中与 3740 Å 跃迁相互竞争的 3734 Å 受激喇曼散射随入射泵浦光强及 PbCl₂ 分子密度的变化关系。建立了描述整个过程的理论模型。从实验和理论两方面对 3740 Å 共振激光辐射与 3734 Å 受激喇曼散射的竞争关系进行了探究。通过与实验结果的拟合, 得到 2660 Å 光子解离 PbCl₂ 分子产生 6p² 3P₂ 亚稳态铅原子的光解系数 $\sigma_{37}^{(2)}$ 和在我们的实验条件下, 铅原子在亚稳态 6p² 3P₂ 和 6p² 1D₂ 上的布居数随时间的变化关系。

二、实 验

实验装置类似于文献[3]、[4]中安排。把 Nd:YAG 激光的 2660 Å 四次谐波聚焦在装有

收稿日期: 1987年12月14日; 收到修改稿日期: 1988年4月13日

* 国家自然科学基金资助的项目。

PbCl₂ 粉的交叉型热管炉中。炉内充有 20~30 Torr 氩作缓冲气体。在 2660 Å 激光的前进方向(前向)及后向用光电倍增接收系统观察出射信号。当泵浦激光功率密度和炉温分别达到一定阈值后,在前向和后向均可以观察到很强的受激辐射输出(总转换效率高达 3%)。用精度为 0.2 Å 的光谱仪测量发现,其波长分别为 3734 Å 和 3740 Å 脉宽分别为 5 ns 和 8 ns 的受激辐射。它们对于入射光强 I_p 和分子密度 N_{00} , 均有明显的阈值关系。3740 Å 信号强度 I_{3740} 的前向测量值与后向测量值相同。而 I_{3734} 的前向测量值则比后向测量值大两个量级。

对铅原子能级结构和光解过程的分析^[4]表明,3740 Å 信号是 2660 Å 激光近共振地把处在亚稳能级 $6p^2^3P_2$ 上的铅原子激发到 $6p7s^3P_2^0$ 能级后产生的铅原子 $6p7s^3P_2^0-6p^2^1D_2$ 能级间的共振激光辐射。而 3734 Å 信号则是 2660 Å 激光诱导的,以 $6p7s^3P_2^0$ 为中间态(2660 Å 光子能量比 $6p^2^3P_2-6p7s^3P_2^0$ 间跃迁能量大 41 cm⁻¹), $6p^2^3P_2$ 、 $6p^2^1D_2$ 为始、末态的受激喇曼散射。测量结果证实了这一点。 I_{3740} 的前后向测量值相同,这正是共振激光的性质;而 I_{3734} 信号前后向的不对称性,正是宽带泵浦产生的受激喇曼散射的重要特征^[5]。

我们还测量了不同入射泵浦光强 I_p 及不同分子密度 N_{00} 下的 $I_{3740}(I_R)$ 和 $I_{3734}(I_S)$ 的变化情况。观察到 I_R 、 I_S 对 N_{00} 变化饱和现象和 I_R 对 I_p 变化出现饱和的现象;限于激光器的能力(2660 Å 最大输出能量为 2 mJ/pulse),没能观察到 I_S 随 I_p 的增大而出现饱和的现象。

三、速率方程组

作者在前不久的文章中认为^[3,4],用 2660 Å 激光光解 PbCl₂ 分子的主要通道为

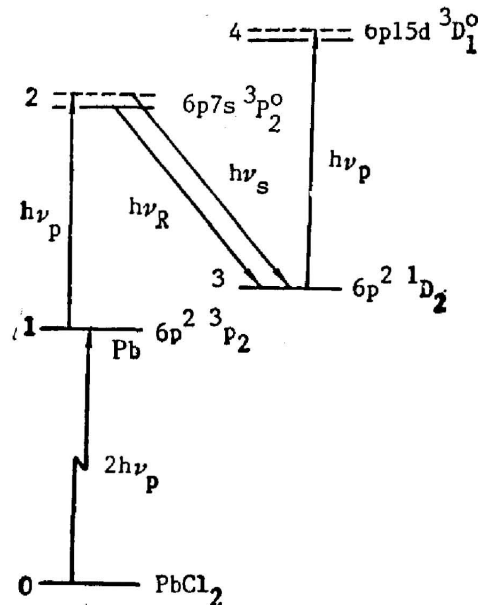
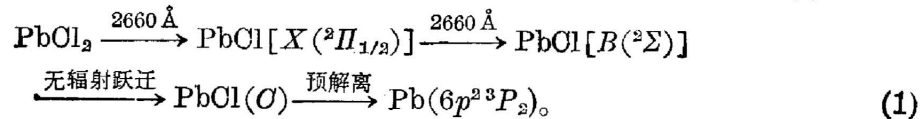


Fig. 1 Level diagram related to pump laser, 3740 Å and 3734 Å transitions

根据这个思想并结合本文的实验条件,可以建立如下的五能级系统,如图 1 所示。

处于 PbCl_2 基态(能级 0)的分子被光强为 I_p 的 2660 \AA 的激光双光子解离(光解系数 $\sigma_{01}^{(2)}$),形成铅原子在 $6p^3^3P_2$ 亚稳态上的布居(能级 1),能级 1 上的铅原子又被第三个 2660 \AA 光子离共振激发,其中一部分被激发到 $6p7s^3P_2^0$ (能级 2),通过波长为 3740 \AA 的共振激光辐射 I_R 落到 $6p^2^1D_2$ (能级 3)上,另一部分则以能级 2 为中间态,通过受激喇曼散射 I_s (波长为 3734 \AA)落到能级 3 上,同时, 2660 \AA 入射光对最后布居于 $6p^2^1D_2$ 态上的粒子有泵浦作用($6p^2^1D_2$ 亚稳态到 $6p15d^3D_1^0$ 态的能量差只比 2660 \AA 光子的能量小几个波数)。

为了便于计算以及与实验作比较,可根据实验条件对速率方程组进行一些近似处理,使其成常微分速率方程组。其考虑要点有:

(1) 在实验的温度区间内,对 2660 \AA 激光在热管炉入口与出口处进行了测量,发现经过热管炉前后 2660 \AA 激光能量的差别不大。因此,在我们的理论计算中将不考虑 I_p 在介质中的衰减。

(2) 在实验中使用了短焦距会聚透镜对入射光束进行聚焦,把焦点附近很短的高功率密度区域作为工作区域,由于这个工作区域很短,因而近似有 $(\partial I/\partial z) \sim (I/l)$ (l 为工作区域长度)。

于是,五能级系统的速率方程组可以写为

$$\frac{dN_0}{dt} = -\sigma_{01}^{(2)} \frac{I_p}{(h\nu_p)^2} (N_0 - N_1) + \sum_i F_i N_i, \quad (2)$$

$$\frac{dN_1}{dt} = -\left(\frac{\sigma_{12}}{h\nu_p} I_p + \frac{\sigma_s}{h\nu_s} I_s\right) N_1 + \left(\frac{\sigma_{12}}{h\nu_p} I_p + A_{21}\right) N_2 + \frac{\sigma_s}{h\nu_s} I_s N_3 + \sigma_{01}^{(2)} \frac{I_p}{(h\nu_p)^2} (N_0 - N_1), \quad (3)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = \frac{\sigma_{12}}{h\nu_p} I_p N_1 - \left(\frac{\sigma_{12}}{h\nu_p} I_p + \frac{\sigma_{23}}{h\nu_R} I_R + A_{21} + A_{23}\right) N_2 + \frac{\sigma_{23}}{h\nu_R} I_R N_3, \quad (4)$$

$$\frac{dN_3}{dt} = \frac{\sigma_s}{h\nu_s} I_s N_1 + \left(\frac{\sigma_{23}}{h\nu_R} I_R + A_{23}\right) N_2 - \left(\frac{\sigma_{23}}{h\nu_R} I_R + \frac{\sigma_s}{h\nu_s} I_s + \frac{\sigma_{34}}{h\nu_p} I_p\right) N_3, \quad (5)$$

$$\frac{dI_s}{dt} = c\sigma_s I_s (N_1 - N_3) - \frac{I_s}{t_0}, \quad (6)$$

$$\frac{dI_R}{dt} = c\sigma_R I_R (N_2 - N_3) - \frac{I_R}{t_0} + N_2 A_{23} h\nu_R c\Omega, \quad (7)$$

$$I_p = I_{p0} \exp \left\{ - \left[\frac{t}{\Delta t} (\ln 2)^{1/2} \right]^2 \right\}, \quad (8)$$

式中 I_p 为高斯型泵浦激光脉冲($\Delta t = 5 \text{ ns}$ 为泵浦激光脉冲半宽度)。 $\sigma_{01}^{(2)}$ 为 PbCl_2 分子光解产生处于 $6p^3^3P_2$ 亚稳态上的铅原子的双光子光解系数, σ_{12} 是铅原子在 I_p 作用下,在能级 1~2 间跃迁的截面, σ_{23} 为在能级 2~3 间受激辐射的截面, σ_s 为从能级 1 到 3 能级的受激喇曼散射截面。以上这三个截面都可以根据能级的跃迁几率等参数得到。 σ_{34} 为在能级 3 上的粒子吸收 I_p 光子跃迁到能级 4 的截面。由于我们找不到铅原子 $6p^2^1D_2$ — $6p15d^3D_1^0$ 的跃迁几率, σ_{34} 为根据里德堡态跃迁几率正比于 n^{-3} , 由相应低能级的值估算的。 A_{ij} 是第 i 、 j 能级间的自发跃迁几率; N_i 是第 i 个能级上的粒子数。 $t_0 = (l/c)$ 为腔内光子寿命。 I_p 、 ν_p ; I_s 、 ν_s ; I_R 、 ν_R 分别为入射激光、喇曼散射及共振线激光的光强和频率。 Ω 为 2~3 能级间自发辐射在激光方向上的角因子。(2)式中右边第二项为原子重新化合成分子的速率,在时间

尺度为 ns 的量级上这一项可忽略。(5)式中忽略了从能级 4 到能级 3 的自发跃迁, 因为对高位能级 4 来说, 离化等过程有更大的几率。

用四阶 Runge-Kutta 方法对此方程组进行数值求解, 得到不同的 $\sigma_{01}^{(2)}$ 时 I_R 、 I_S 随入射光强 I_p 及初始 PbCl_2 分子密度 N_{00} 的变化关系, 并与实验结果比较, 可以确定 $\sigma_{01}^{(2)}$ 的值。在这个取定的 $\sigma_{01}^{(2)}$ 值下, 得到在我们的实验条件下, 铅原子两个亚稳态 $6p^2^3P_2$ (能级 1) 及 $6p^2^1D_2$ (能级 3) 上粒子数随时间的变化规律。

四、结果及讨论

(1) 图 2 表示 I_R 随 I_p 的变化关系, 图中的叉线是在 PbCl_2 分子密度 $N_{00}=1.16 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 下的实验值, 实线是 $N_{00}=1.16 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, $\sigma_{01}^{(2)}=8.39 \times 10^{-45} \text{ cm}^4 \cdot \text{s}$ 时的理论曲线。图 3 是 $I_S \sim I_p$ 关系曲线, 图中的圆点是在 $N_{00}=6.2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 时的实验值, 实线是 $N_{00}=6.2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, $\sigma_{01}^{(2)}=8.39 \times 10^{-45} \text{ cm}^4 \cdot \text{s}$ 时的理论曲线。

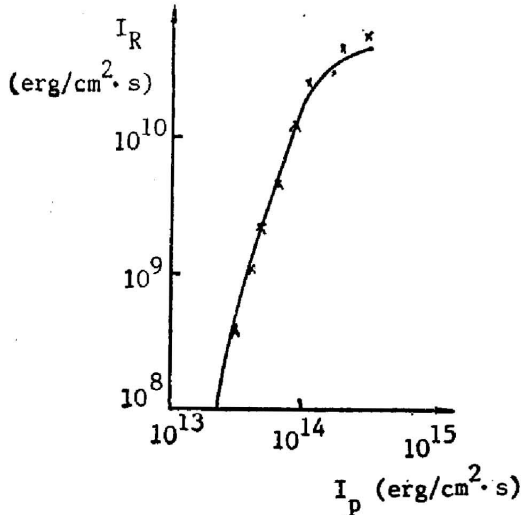


Fig. 2 Stimulated resonant laser peak intensity $I_{8740}(I_R)$ as a function of input pulse peak intensity I_p . x: experimental values
solid line: theoretical curve

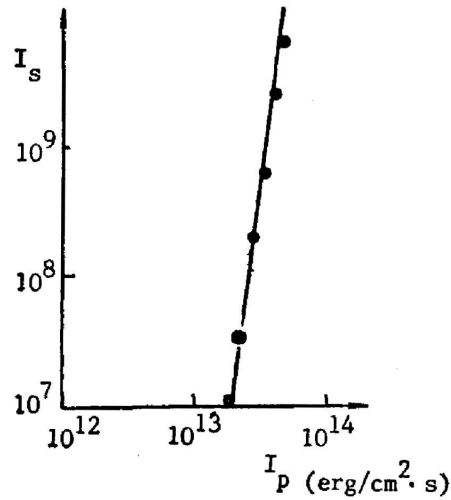


Fig. 3 Peak intensity of stimulated Raman scattering $I_{8734}(I_S)$ vs I_p .
●: experimental value solid line: theoretical curve

(2) 图 4 表示 I_R 、 I_S 随 PbCl_2 分子密度的变化关系, 实验是在泵浦光强峰值 $I_{p0}=4.6 \times 10^{13} \text{ erg/cm}^2 \cdot \text{s}$ 时做的, 理论曲线是在 $I_{p0}=4.6 \times 10^{13} \text{ erg/cm}^2 \cdot \text{s}$, $\sigma_{01}^{(2)}=8.39 \times 10^{-45} \text{ cm}^4 \cdot \text{s}$ 时由计算机绘出的。

从图 2、图 3、图 4 中可以看出, 当双光子吸收系数 $\sigma_{01}^{(2)}=8.39 \times 10^{-45} \text{ cm}^4 \cdot \text{s}$ 时, 理论计算值与实验值符合得较好。因此, 我们确信, 在 2660 \AA 激光作用下, PbCl_2 分子解离成铅原子的 $6p^2^3P_2$ 亚稳态的双光子吸收系数为 $8.39 \times 10^{-45} \text{ cm}^4 \cdot \text{s}$ 。这个值远大于通常非共振激发时的 $10^{-47} \sim 10^{-48} \text{ cm}^4 \cdot \text{s}$ 。其原因在于这里的双光子光解是分两步进行的。第一步: $\text{PbCl}_2 \xrightarrow{h\nu_p} \text{PbCl}[X]$, 第二步: $\text{PbCl} \xrightarrow{h\nu_p} \text{PbCl}[B(^2\Sigma)] \xrightarrow{\text{预解离}} \text{Pb}(6p^2^3P_2)$ 。在第二步中, 2660 \AA 与 PbCl 的 $X(^2\Pi_{1/2}, v'=1)$ 到 $B(^2\Sigma, v''=7)$ 的间距几乎是共振的, 这就大大提高

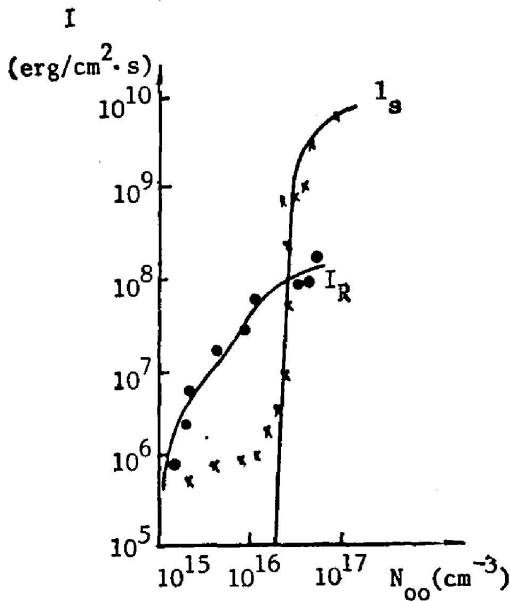


Fig. 4 Variation of I_R and I_S as functions of PbCl_2 molecular density N_{00} . ●: experimental point of $I_R - N_{00}$, x: experimental value of $I_S - N_{00}$, solid lines: theoretical curves

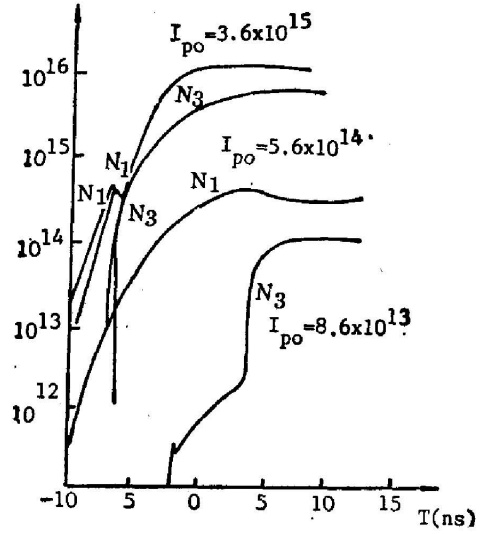


Fig. 5 Time evolution of the level populations, N_1 and N_3 , ($\sigma_{01}^{(2)} = 8.39 \times 10^{-45} \text{ cm}^4 \cdot \text{s}$, $N_{00} = 6.21 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$)

了整个过程的作用截面。

实验中还发现,在泵浦激光强度 I_p 的峰值为 $4.6 \times 10^{13} \text{ erg/cm}^2 \cdot \text{s}$ 的条件下,热管炉温度小于 530°C ($N_0 = 2.0 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$) 时, I_S 很小,然后,随着温度的升高, I_S 急剧增大, I_S 增大到一定程度后, I_R 趋于饱和,这一性质,也与理论计算一致。

(3) 图 5 是在 $\sigma_{01}^{(2)} = 8.39 \times 10^{-45} \text{ cm}^4 \cdot \text{s}$, $N_0 = 6.21 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 和泵浦光强峰值分别为 $8.6 \times 10^{13} \text{ erg/cm}^2 \cdot \text{s}$, $5.6 \times 10^{14} \text{ erg/cm}^2 \cdot \text{s}$, $3.6 \times 10^{15} \text{ erg/cm}^2 \cdot \text{s}$ 的情况下,理论结果给出 N_1 ($6p^2\ ^3P_2$ 能级上的布居) 和 N_3 ($6p^2\ ^1D_2$ 态上的布居) 随时间的变化关系。结果表明,随着 I_p 的增加, N_1 与 N_3 在泵浦光脉冲达到峰值前后,逐渐趋于相等。

由图中可以清楚地看到 3740 \AA 的辐射和 3734 \AA 的辐射对 $3p^2\ ^1D_2$ 能级上粒子布居 N_3 的不同影响。在时间区间 $t = -2 \text{ ns}$ 到 $t = 4.5 \text{ ns}$ 内, N_3 的增长是 3740 \AA 共振激光辐射把能级 2 上的粒子泵浦到能级 3 上的结果。从 $t = 4.5 \text{ ns}$ 起,受激喇曼散射开始起作用,由于此时它的散射截面远大于 3740 \AA 辐射的跃迁截面,所以,通过 3734 \AA 受激喇曼散射从能级 1 向能级 3 泵浦粒子而导致 N_3 增加的速率远大于由 3740 \AA 辐射而造成的增加速率。比较图中不同泵浦光强峰值 I_p 的曲线还可以看出,随着泵浦光强的增大, N_1 、 N_3 时间特性的变化。当 $I_p \sim 10^{15} \text{ erg/cm}^2 \cdot \text{s}$ 时, $N_1 \sim N_3 \sim (N_0/3)$ ($t = -\infty$)。此时,在每一个光泵浦脉冲结束时, N_1 、 N_3 都达到了它们各自的极大值,整个体系的粒子 $N_{00} = N_0(-\infty)$ 基本上在能级 0、1、3 之间平分。

在我们以前的实验中已发现^[4],在适当的温度下,用 2660 \AA 紫外光光解 PbCl_2 分子能形成铅原子 $6p^2\ ^3P_2$ 相对于基态 $6p^2\ ^3P_0$ 的粒子数反转分布。现在进一步表明,粒子数反转不但能存在于上述一对能级间,也有可能存在于 $6p^2\ ^1D_2$ 和基态之间。 1D_2 能级与基态间的能量差为 $2.1 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$,这比现有的作为反斯托克斯喇曼激光介质的其它原子体系的斯托克

斯频移还要大。这种大斯托克斯频移的体系,有可能把 360 nm 左右的近紫外光直接转换成波长为 200 nm 左右的远紫外光,这种大频率转换体系无疑是很有价值的。

参 考 文 献

- [1] H. Hemmati, G. J. Collins; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1980, **QE-16**, No. 6 (Jun), 594~596.
- [2] S. E. Harris; *Opt. Lett.*, 1980, **5**, No. 1 (Jan), 1~3.
- [3] Zhang Daozhong, Cheng Bingying *et al.*; *Opt. & Quant. Electron.*, 1988, **20**, No. 1 (Jan), 26~29.
- [4] 张杰,程丙英等;《物理学报》,1988, **37**, No. 5 (May), 713~721.
- [5] M., G. Raymer, J. Mostowski *et al.*; *Phys. Rev.*, 1979, **19**, No. 6 (Jun), 2304~2314.

Stimulated Raman scattering and resonant laser radiation in photodissociated Pb

ZHANG JIE, CHENG BINGYING, ZHANG DAOZHONG, ZHAO LIZENG

ZHAO YUYING AND WANG TIANJIAN

(*Institute of Physics, Academia Sinica, Beijing*)

(Received 14 December 1987; revised 13 April 1988)

Abstract

Strong stimulated radiations at wavelengths 3740 Å have been observed when PbCl₂ molecules are photodissociated by 2660 Å ultraviolet laser. Dependences of these radiations on the pump laser intensity and PbCl₂ molecular density have been studied experimentally. A theoretical model to describe these processes is put forward. These two radiations are identified as resonant laser radiation and stimulated Raman scattering originated from the population of the metastable level $6p^{2^3}P_2$ of atomic Pb, which is produced by two-photon dissociation of PbCl₂. When molecular density of PbCl₂ is $6.21 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, the maximum populations on the two metastable levels, $6p^{2^3}P_2$ and $6p^{2^1}D_2$, of atomic Pb are almost same, which equals $2.0 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$.

Key words: stimulated Raman scattering; resonant laser radiation.