

# 由混合激发钠分子-原子系统产生的强度振荡变化的红外受激喇曼散射\*

郭芳侠\*\* 陈 德 李永放\*\* 王祖赓

(华东师范大学物理系, 上海 200062;

中国科学院上海光学精密机械研究所量子光学联合开放实验室, 上海 201800)

## 提 要

本文报道以等频二步激发钠分子-原子系统, 观测到强度随泵浦光的调谐而呈振荡变化的  $3P-4P$  受激喇曼散射, 以及对应  $4D-4P$  和  $4F-3D$  跃迁的红外受激辐射和由四波混频产生的  $816.8\sim 822.1\text{ nm}$  区内可调谐相干辐射。文中对这些过程进行了分析讨论。

关键词: 钠分子-原子系统; 混合激发; 受激喇曼散射。

## 一、引 言

十余年来, 人们已对碱金属蒸气中基于原子喇曼, 超喇曼效应以及四波、六波混频等非线性过程产生位于众多波段的可调谐或固定波长的受激或相干辐射作了广泛的研究<sup>[1~9]</sup>。近年来, 本文作者曾在钠、钾和锂分子-原子系统中, 运用多种混合激发机理, 产生了位于红外和紫外区的可调谐和固定波长的受激和相干辐射<sup>[10~13]</sup>。

本文报道以等频二步激发钠分子-原子系统, 由受第一步激发而处于激发态的钠分子通过碰撞将能量转移给钠原子, 使钠原子的  $3P_{1/2, 3/2}$  能态获得布居, 第二步实现  $3P_{1/2, 3/2}-4D$  电偶极跃迁或  $3P_{1/2, 3/2}-4F$  电四极跃迁。于是观察到了强度随着泵浦光在  $4D$  和  $4F$  能级附近调谐而呈现出振荡变化的  $3P-4P$  受激喇曼散射。此外还观察到了  $4D-4P$  和  $4F-3D$  跃迁的红外受激辐射, 以及由四波混频产生的波长在  $816.8\sim 822.1\text{ nm}$  区内可调谐的相干辐射和三个固定波长的相干辐射。文中对这些过程进行了分析讨论。

## 二、实验与混合激发过程

实验装置基本上与文献[12]中所报道的装置相同。泵浦源是由脉冲  $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$  激光器泵浦的 R 590 染料激光器, 其输出波长在  $530\sim 590\text{ nm}$  范围内连续可调谐, 脉冲宽度为  $15\text{ ns}$ , 宽约为  $0.5\text{ cm}^{-1}$ , 在  $560\text{ nm}$  附近的激光输出能量约为  $10\text{ mJ}$ 。热管炉内装有约  $10\text{ g}$  纯钠样品, 充入  $150\text{ Torr}$  氦气( $\text{He}$ )作为缓冲气体, 温度由温控仪控制在  $410^\circ\text{C}$ 。经实验测

收稿日期: 1990年5月10日; 收到修改稿日期: 1990年10月3日

\* 国家自然科学基金资助的课题。

\*\* 陕西师范大学物理系。

定,由热管炉前向出射的受激和相干辐射信号的发散角约为 8 mrad。

实验时,将染料激光器的输出波长在 568.0 nm 附近调谐,同时观察到二个波长在 2.3

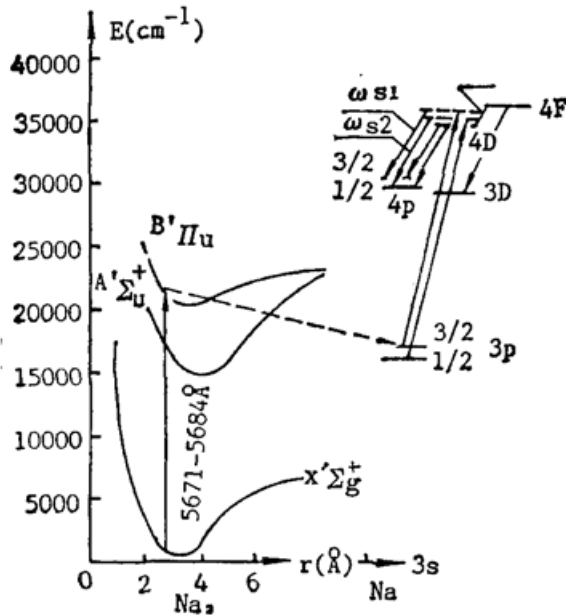
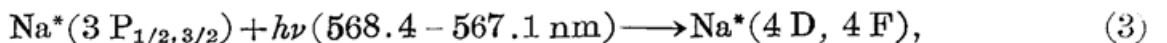
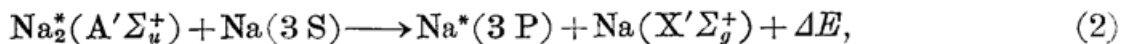
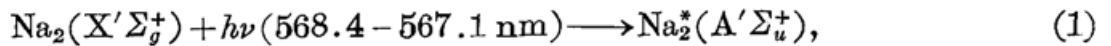


Fig. 1 The scheme of excitation and emission mechanism in  $\text{Na}_2$ -Na system

说明 4 D 与 4 F 态之间存在粒子的碰撞能量转移过程。由此可以断定,红外辐射是由如图 1 所示的激发与发射过程产生。即处于基态的钠分子吸收一个光子后被激到  $\text{Na}_2^*(A'\Sigma_u^+)$  态,而被激发的钠分子与基态钠原子碰撞并将能量转移给钠原子,使其 3 P 态获得布居;接着处于激发态的钠原子  $\text{Na}^*(3 P)$  再吸收一个相同频率的光子而被激发到高位 4 D 或 4 F 态(见图 1)。可将上述过程表示如下:



其中 (1)、(2) 式所表示的过程是一种有效的分子和原子间的碰撞能量转移过程。这种过程已在钠、钾及钠钾混合等金属蒸气中获得了充分的证实<sup>[10~14]</sup>。

### 三、辐射强度振荡变化的受激喇曼散射

在上述实验条件下,当泵浦光波长在 567.37~568.70 nm 范围内调谐时,测得了如图 1 所示的受激喇曼散射。对应于  $3 P_{3/2}-4 P_{3/2}$  和  $3 P_{1/2}-4 P_{1/2}$  受激喇曼散射信号的频率  $\omega_{s1}$  和  $\omega_{s2}$  分别由下列关系式决定

$$\omega_{s1} = \omega_{4D-4P_{3/2}} + \Delta_1, \quad (4)$$

$$\omega_{s2} = \omega_{4D-4P_{1/2}} + \Delta_2, \quad (5)$$

式中  $\Delta_1$  和  $\Delta_2$  分别对应  $3 P_{3/2}-4 D$  和  $3 P_{1/2}-4 D$  跃迁的离共振量。实验中可记录得频率为  $\omega_{s1}$  和  $\omega_{s2}$  辐射的泵浦光频率  $\omega_p$  的调谐范围分别为  $250 \text{ cm}^{-1}$  和  $58 \text{ cm}^{-1}$ 。相应测得的红外受激喇曼散射的调谐范围分别为  $2.277 \sim 2.413 \mu\text{m}$  和  $2.318 \sim 2.336 \mu\text{m}$ 。

在泵浦光离共振激发 4 D 能级时,由于激光感应作用<sup>[15]</sup>,使得 4 D 能级获得一定的布

$\mu\text{m}$  附近调谐的以及二个波长分别为  $2.338 \mu\text{m}$  和  $1.846 \mu\text{m}$  的红外定向辐射信号。其中二个调谐信号的调谐情况与泵浦光的一致,它们的调谐量相同,并分别保持频移量  $13299 \text{ cm}^{-1}$  和  $13310 \text{ cm}^{-1}$ 。分析表明,这二个调谐的红外定向辐射是钠原子中  $3 P_{3/2, 1/2}-4 P_{3/2, 1/2}$  受激电子喇曼散射信号。这二个信号中,  $3 P_{3/2}-4 P_{3/2}$  的喇曼散射信号强度明显大于  $3 P_{1/2}-4 P_{1/2}$  的喇曼散射信号强度。这是因为前者具有更大的喇曼增益。而波长  $2.338 \mu\text{m}$  和  $1.846 \mu\text{m}$  的二个信号经标识,分别来自钠原子  $4 D-4 P_{3/2}$  和  $4 F-3 D$  的受激跃迁辐射。这二个信号在激发光频率对应  $3 P_{1/2, 3/2}-4 D$  和  $3 P_{1/2, 3/2}-4 F$  的偶极和四极共振激发位置时,都出现峰值。这

居,从而产生对应于  $4D-4P_{3/2}$  和  $4D-4P_{1/2}$  的受激辐射,它们的波长分别为  $2.338 \mu\text{m}$  和  $2.335 \mu\text{m}$ 。

值得特别注意的是,当激发频率从  $17559.88 \text{ cm}^{-1}$  连续扫描到  $17636.68 \text{ cm}^{-1}$  时,所测得的受激喇曼散射的强度随着激发光频率的变化而振荡,如图 2(a)所示。这与通常起始于原子基态(如钠原子  $3S$ )的受激喇曼散射强度随激发光频率的变化情况有很大的不同。这种特殊变化规律的产生,完全是由于此处对应于同一激发频率产生的是二个同时起始于  $3P_{1/2}$  和  $3P_{3/2}$  能级的受激喇曼散射,而且散射过程的中间态不仅涉及一个原子能级  $4D$ ,还涉及仅与  $4D$  能级间隔  $39.8 \text{ cm}^{-1}$  的  $4F$  能级的影响。

从图 2(a)中可以看到,当激发频率对应于  $3P_{3/2}-4D$  共振频率时, $3P_{3/2}-4P_{3/2}$  受激喇曼散射(可测频率  $\omega_{s1}$ )呈现出一个极小值,这是由于:(i)  $4D$  能级获得了较多的布居,通过碰撞转移过程将一部分布居转移到  $4F$  能级,使得参与喇曼散射过程的粒子数减少,实验中也同时测到了对应于  $4F-3D$  跃迁的受激辐射的峰值,如图 2(b)所示;(ii)当激发光频率处于共振位置时,由于自陷作用,即介质对入射光和散射光的吸收,使喇曼散射强度减弱<sup>[16]</sup>。当激发光频率对应于  $3P_{1/2}-4D$  跃迁时,上述受激喇曼散射呈现出第二个极小值,这时由  $4D$  到  $4F$  能级的布居转移增大, $4F-3D$  受激辐射同时呈现又一个极大值,如图 2(b)所示。由此,由  $3P_{3/2}$  能级起始的离共振激发对  $4D$  能级的激光感应作用增强,使  $3P_{3/2}$  和  $3P_{1/2}$  能级间的弛豫作用也增强,从而削弱了(频率为  $\omega_{s1}$ )的受激喇曼散射强度。当激发光频率对应于  $3P_{3/2}-4F$  四极共振跃迁时,出现了第三个  $4F-3D$  受激辐射峰值。这说明  $4F$  态获得了直接的布居,显然这将减弱在此激发频率下产生的受激喇曼散射强度,于是在图 2(a)中出现了第三个极小值。当激发光频率对应于  $3P_{1/2}-4F$  四极共振跃迁时, $4F-3D$  受激辐射出现第四个峰值,如图 2(b)所示。这时由于  $4F$  到  $4D$  能级的碰撞能量转移,使得由  $3P_{3/2}$  能级起始的离共振激发对  $4F$  能级的激光感应作用增强,这又使  $3P_{3/2}$  和  $3P_{1/2}$  能级间的弛豫作用加强,从而导致受激喇曼散射减弱,出现第四个极小值,如图 2(a)所示。同时,当激发光频率处于上述这些共振位置时,介质对它的强吸收作用也是受激喇曼散射强度在这些位置出现极小值的重要原因。

同样在对应于  $3P_{1/2}-4D$  离共振跃迁频率激发下产生的  $3P_{1/2}-4P_{1/2}$  的受激喇曼散射也呈现出类似于  $\omega_{s1}$  的强度振荡变化规律。

#### 四、离共振混合激发分子-原子系统时产生的相干辐射

当实现如前所述的离共振混合激发钠分子-原子时,在本文的实验条件下,对应于一个

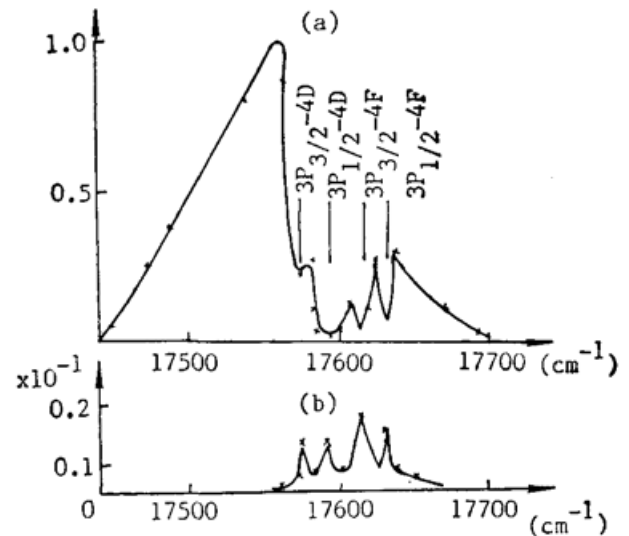


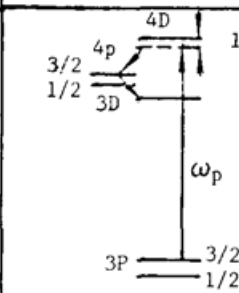
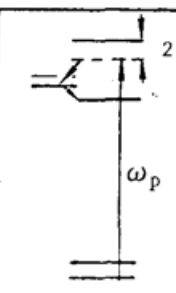
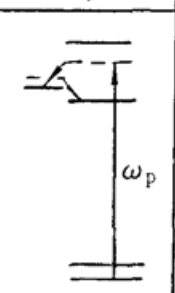
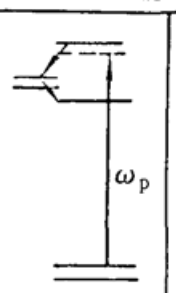
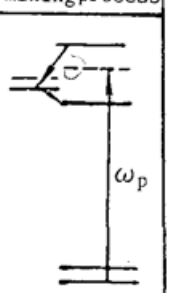
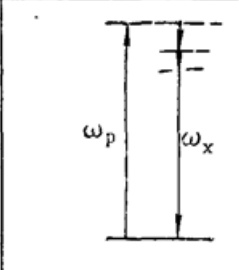
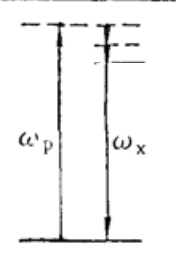
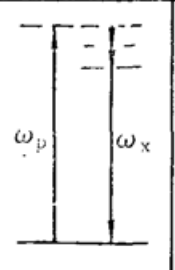
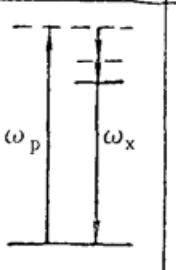
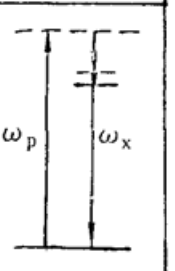
Fig. 2

(a) The intensity-oscillated IR stimulated Raman scattering  $\omega_{s1}$  with pump frequency.

(b) The excitation function for generation of  $4F-3D$  ( $1.846 \mu\text{m}$ ) radiation.

激发光波长( $\omega_p$ ), 可以同时测得由表 1 所列出的五种混频方式所产生的近红外相干辐射。这与纯原子系统中由基态出发的混频方式产生的相干辐射有明显不同。在表 1 中列出的由实验观察到的前三种混频方式中, 参与混频的有起始于  $3P_{3/2}$  或  $3P_{1/2}$  态频率为  $\omega_p$  的激发波, 终态为  $4P_{3/2}$  或  $4P_{1/2}$  的受激喇曼散射波, 和对应于  $4P_{3/2}-3D$  或  $4P_{1/2}-3D$  的串级辐射波。显然当激发波频率  $\omega_p$  被调谐时, 由四波混频产生的相干辐射并不跟随调谐, 而是分别产生波长为 819.7, 818.9 和 818.6 nm 和的固定频率的相干辐射。

Table 1. Several coexistent four-wave mixing processes upon off-resonance excitation

|                                      | wavelength-fixed four-wave mixing frequencies process                              |  |  | tunable four-wave mixing process  |  |
|--------------------------------------|--|--|--|---|--|
| second photon excitation status      |   |   |   |   |   |
| mixing styles for coherent radiation |  |  |  |  |  |
| mixing expression                    | $\omega_x = \omega_p - [\omega(4D, 4P_{3/2}) - \Delta_1] - \omega(4P_{3/2}, 3D)$   | $\omega_x = \omega_p - [\omega(4D, 4P_{1/2}) - \Delta_2] - \omega(4P_{1/2}, 3D)$   | $\omega_x = \omega_p - [\omega(4D, 4P_{1/2}) - \Delta_2] - \omega(4P_{3/2}, 3D)$   | $\omega_x = \omega_p - \omega(4D, 4P_{3/2}) - \omega(4P_{3/2}, 3D)$                 | $\omega_x = \omega_p - \omega(4D, 4P_{1/2}) - \omega(4P_{1/2}, 3D)$                  |
| wave-length                          | 819.7nm  | 818.6nm  | 818.9nm  | 816.8-822.1nm   |  |

在实验中, 观察到的后两种混频方式中, 所参与混频过程的并不是终态为  $4P_{3/2}$  或  $4P_{1/2}$  的受激喇曼散射, 而是由离共振激发感应所产生的对应于  $4D-4P_{1/2}$  和  $4D-4P_{3/2}$  跃迁的受激辐射。于是当调谐  $\omega_p$  时, 由混频过程所产生的相干辐射频率也跟随调谐。实验中测得当泵浦光波长在 567.6~570.2 nm 调谐时, 所产生的可调谐相干辐射的调谐范围为 816.8~822.1 nm。实验结果与计算数据相比, 误差不超过 1 Å。

### 五、结 束 语

利用混合激发钠分子-原子系统的方法, 使钠原子  $3P_{1/2, 3/2}$  两能级作为第二步激发的起始能级, 并由于  $4D$  与  $4F$  能级的相互作用, 获得了完全不同于由原子基态作为起始能级激发而产生的受激喇曼散射和可调谐近红外相干辐射。

## 参 考 文 献

- [1] D. Cotter, D. O. Hanna *et al.*; *Opt. Commun.*, 1977, **22**, No. 2 (Aug), 190.  
 [2] W. Harting; *Appl. Phys.*, 1978, **15**, No. 4 (Apr), 427.  
 [3] J. Heinrich, W. Behmenburg; *Appl. Phys.*, 1980, **23**, No. 3 (Mar), 333.  
 [4] R. Wyatt, D. Cotter; *Appl. Phys.*, 1980, **21**, No. 3 (Mar), 199.  
 [5] A. V. Smith, J. F. Ward; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1981, **QE-17**, No. 4 (Apr), 525.  
 [6] P. L. Zhang, Y. C. Wang *et al.*; *J. Opt. Soc. Am.*, (B), 1984, **B1**, No. 1 (Mar), 9.  
 [7] D. Krokkel, K. Ludewigt *et al.*; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1986, **QE-22**, No. 3 (Mar), 489.  
 [8] Z. G. Wang, H. Schmidt *et al.*; *Appl. Phys. (B)*, 1987, **B44**, No. 1 (Sep), 41.  
 [9] 王祖庚;《物理学报》, 1990, **39**, No. 1 (Jan), 76.  
 [10] Z. G. Wang, L. J. Qin *et al.*; *Opt. Commun.*, 1984, **51**, No. 3 (Sep), 155.  
 [11] Z. G. Wang, L. J. Qin *et al.*; *Appl. Phys. (B)*, 1986, **B41**, No. 2 (Oct), 125.  
 [12] 王祖庚, 唐小玲等;《中国科学》, **A** 辑, 1987, No. 1 (Jan), 44.  
 [13] 李永放, 李祥生等;《中国激光》, 1989, **16**, No. 10 (Oct), 586.  
 [14] E. K. Kraulinya *et al.*; *Chem. Phys. Lett.*, 1976, **37**, No. 3, 565.  
 [15] J. L. Carlsten, A. Szoke *et al.*; *Phys. Rev. (A)*, 1977, **15**, No. 3 (Mar), 1029.  
 [16] 王骥等;《中国激光》, 1989, **16**, No. 1 (Jan), 25.

## The generation of intensity-oscillated IR stimulated Raman scattering based on hybrid excitation of Na<sub>2</sub>-Na system\*

GUO FANGXIA, CHEN DE, LI YONGFANG AND WANG ZUGENG

(Department of Physics, East China Normal University, Shanghai 200062)

(Laboratory for Quantum Optics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics,  
Academy Sinica, Shanghai 201800)

(Received 10 May 1990; revised 3 October 1990)

### Abstract

The intensity-oscillated IR stimulated Raman scattering was observed in Na<sub>2</sub>-Na system by using two-step equal-frequency excitation. The intensity of which oscillates with pump wave length. Besides, the IR stimulated radiation of 2.338 μm (4D-4P) and 1.84 μm (4F-3D) and tunable coherent radiation in the region of 816.8~822.1 nm were generated. The results were analysed and discussed in detail.

**Key words:** Na<sub>2</sub>-Na system, hybrid excitation, stimulated Raman scattering.

\* Project supported by the National Natural Science Fund of China.