

宽波段多步激发 K_2 -K 系统产生的 钾原子高位态辐射*

金海燕 秦莉娟 李永放** 陈 德 王祖康

(华东师范大学物理系, 上海 200062)

[中国科学院上海光机所、华东师范大学量子光学(联合)研究实验室, 上海 201800]

提 要

本文首次报道以 690.0~715.0 nm 宽波段范围内任何波长的脉冲染料激光激发 K_2 -K 系统, 由高位钾分子与钾原子碰撞以及分子-原子的混合激发等过程而产生钾原子 404.4, 404.7 和 470.05~590.0 nm 波段内高位态辐射的实验结果, 并对激发机制进行了探讨。

关键词: K_2 -K 系统、高位态辐射, 双光子激发。

一、引 言

分子与原子高位态的布居途径是激光光谱学的重要研究内容, 通常采用紫外光单光子激发和可见光双光子激发等纯原子或分子过程, 然而, 也可借助于分子与原子之间的相互作用对存在多种布居分子与原子高位态, 通过分子-原子系统的双光子混合激发过程和分子的光解离过程直接布居原子高位态^[1~2]的途径。在 Shen 和 Curry^[3]所采用的双光子激发过程中, 两步将钾分子由基态激发到高位 nS 和 nD 态。Kopeikina、Yason^[4] 和 Lemont 等人^[5] 还证明了由 K_2^* 与 K 之间的碰撞能量转移布居钾原子高位态的可能性。

本文报道 LD700 脉冲染料激光与 K_2 -K 系统相互作用, 产生高位 nS 、 nD - $4P$ 的位于 470.0~590.0 nm 波段内以及 $5P_{3/2,1/2}$ - $4S$ (404.4, 404.7 nm) 辐射的结果, 文中分析了其激发机制和辐射特性。

二、实验装置及结果

用 YAG 激光泵浦的在 690.0~715.0 nm 区连续调谐的 LD700 脉冲染料激光作为 K_2 -K 混合样品的泵浦源, 其最大输出能量约为 3.6 mJ, 由 690.0 nm 调谐到 700.0 nm 时, 激光能量逐渐增大, 继续向长波方向调谐时, 输出能量基本保持不变, 直到 715.0 nm 处开始下降。激光束经透镜聚焦于十字热管炉中心, 炉内工作温度为 540°C, 装有约 20g 纯钾样品及 He 缓冲气体。由热管炉前向或侧向出射的信号, 经光纤导入 0.5 m 光栅单色仪, 分光

收稿日期: 1991年2月28日; 收到修改稿日期: 1991年6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。

后由光电倍增管接收,再经信号处理系统后由记录仪记录。

将染料激光器调谐到 690.0~715.0nm 波段内的任何波长,当 He 缓冲气压大于 2666.44 Pa 时,在热管的侧向和前向均能观测到波长为 404.4 和 404.7nm ($5P_{3/2,1/2}-4S$) 的强辐射线以及 583.2nm、580.2nm、578.2nm、535.9nm、533.9nm、532.3nm、511.2nm、509.9nm、508.4nm 等辐射线,其中 404.4 和 404.7nm 辐射的辐射强度比其它辐射线强一个数量级左右,图 1 是温度为 540°C、He 缓冲气压为 30397.4 Pa、泵浦波长为 693.9nm 时所记录到的在 470.0~590.0nm 波段的辐射谱,图中除 583.2nm 等辐射线外,在 572.5nm 处的辐射带对应于 $2^3\Pi_g-\alpha^3\Sigma_u^+$ 辐射带辐射跃迁。此外,实验还观测到 K_2B-X 带辐射和 400.0~460.0nm 波段内的起始于 K_2 高位态的辐射跃迁。

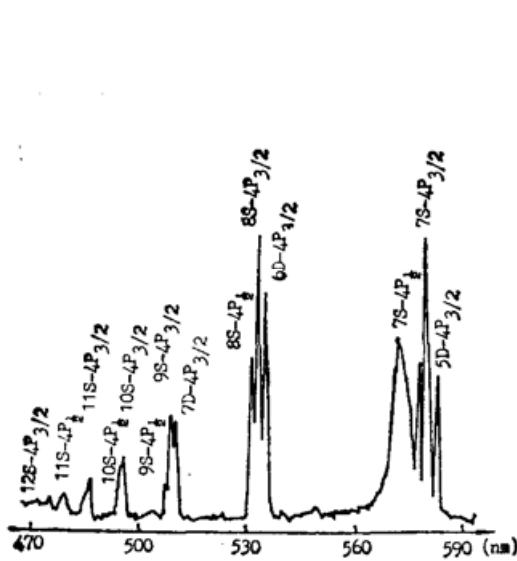


Fig. 1 The radiation spectra in 470.0~590.0nm region, temperature: 540°C; buffer gas: 228 Torr; pumping wavelength: 693.9nm

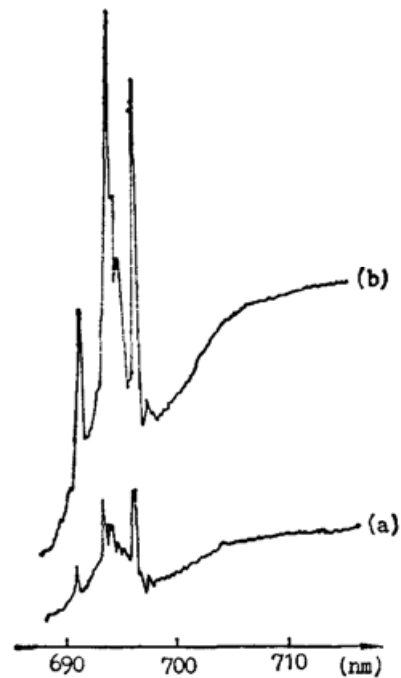


Fig. 2 The excitation function for generating (a) 583.2nm and (b) 404.4nm radiation lines

实验发现,随着泵浦波长的变化,各辐射线的强度变化趋势相同,图 2 分别示出了 404.4nm 和 583.2nm 辐射的激发函数,显然,在 690.0~715.0nm 的宽泵浦波长范围内,均可产生上述辐射;而当泵浦波长调谐到 691.1nm、693.9nm 和 696.5nm 时,各辐射线的强度有极明显的增强。

三、结果讨论

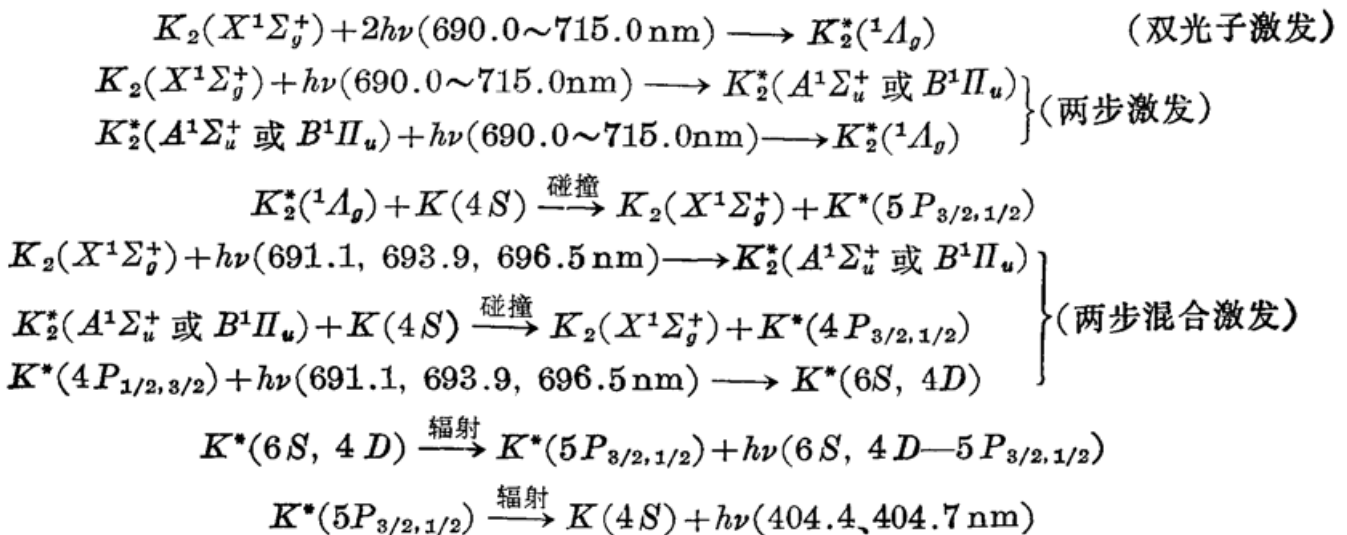
1. 404.4 与 404.7nm 强辐射线的产生

图 3 是 K_2-K 系统中有关激发-发射机制示意图,690.0~715.0nm 区的泵浦光势必可将钾分子由基态 $X^1\Sigma_g^+$ 双光子或二步激发到高位单重态 1A_g ,由于分子振转能级非常密集,显然双光子激发和二步激发过程同时存在。实验观测到了起始于钾分子高位态的辐射跃

迁, 根据钾分子势能曲线^[6], 双光子或二步激发的高位单重态 1A_g 只可能是 $6^1\Sigma_g^+$ 和 $3^1\Pi_g$ 。处于高位单重态 1A_g 上的钾分子与基态钾原子之间的碰撞转移使 $5P_{3/2,1/2}$ 态获得布居(如图 3), 从而产生了 $5P_{3/2,1/2}-4S$ 的辐射。

上述的 691.1、693.9 和 696.5 nm 这三个泵浦波长分别对应于钾原子的 $4P_{1/2,3/2}-6S$ 和 $4P_{3/2}-4D$ 共振跃迁, 通过 K_2 -K 系统的二步混合激发过程可使钾原子 $6S$ 或 $4D$ 态获得大量布居, 紧接着的 $6S$ 或 $4D-5P$ 的辐射跃迁又使 $5P$ 态获得布居, 由此增强了 $5P_{3/2,1/2}-4S$ (404.4 和 404.7 nm) 的辐射, 图 3 中示出了这一过程。由于对应这三个泵浦波长的激发线很强(见图 2), 故此时 K_2 -K 系统的二步混合激发过程是布居 $5P_{3/2,1/2}$ 态的主要过程; 而通过高位态钾分子与基态钾分子的碰撞转移布居 $5P_{3/2,1/2}$ 态的过程是一次要过程。注意到 693.9 nm 激发线比 691.1 和 696.5 nm 激发线要宽, 这是由于对应于钾原子 $4P_{1/2}-4D$ 共振跃迁(693.6 nm) 的激发线在该区与其叠加所致。

综上所述, 现将两个激发过程和发射过程表达为



2. 钾原子 $nS-4P_{3/2,1/2}$ 和 $nD-4P_{3/2}$ 辐射的产生

根据钾原子能级, 实验中观测到的各辐射线对应于钾原子 $nS(n=7 \sim 12)-4P_{1/2,3/2}$ 和 $nD(n=5 \sim 7)-4P_{3/2}$ 诸辐射跃迁^[7], 图 1 中标出了各辐射线相应的跃迁。原子辐射的跃迁几率随着 n 的增大而迅速下降^[8], $nS-4P_{1/2,3/2}$ 跃迁几率大于能量相当的 $nD-4P_{1/2,3/2}$ 跃迁几率; $nS, nD-4P_{3/2}$ 跃迁几率大于 $nS, nD-4P_{1/2}$ 跃迁几率。因此, 图 1 中对应于 $nS-4P_{3/2}$ 跃迁的辐射线的强度大于 $nS-4P_{1/2}$ 辐射线强度, 由 nS 能级的跃迁强于由相应能量的 nD 能级的跃迁, 且随着 n 的增加, 谱线强度逐渐减弱, 在本实验中, $nS(n \geq 13)$

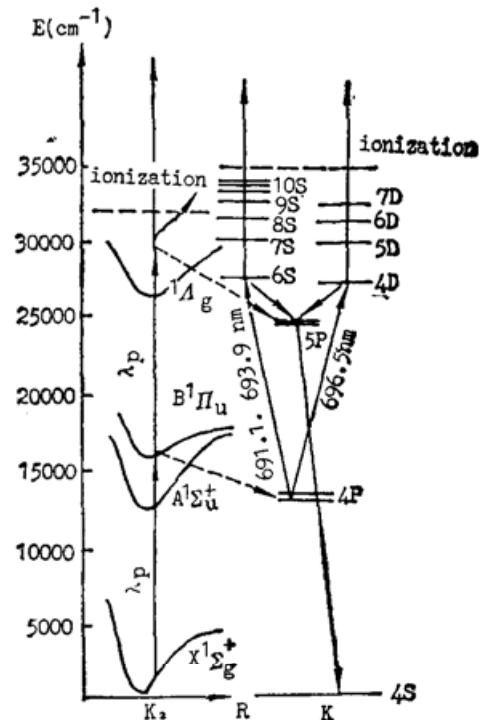


Fig. 3 K_2 -K states scheme with relevant excitation-emission cycles

* 由于分子谱标识工作较繁复, 目前尚不能确定。

$4P$ 和 $nD(n \geq 8) \rightarrow 4P$ 的辐射已不能观测到, 而 $nD \rightarrow 4P_{1/2}$ 与相应的 $nS \rightarrow 4P_{3/2}$ 跃迁波长相近, 它们被较强的 $nS \rightarrow 4P_{3/2}$ 辐射掩盖而难于分辨。

在图 3 所示的钾分子与钾原子能态图中, 钾原子 $7S$ 、 $8S$ 和 $9S$ 态的能量分别为 30274 、 31765 和 32648 cm^{-1} , $5D$ 、 $6D$ 和 $7D$ 的能量分别为 30185 、 31696 和 32598 cm^{-1} , 而高于 $10S$ 的能级在 33000 cm^{-1} 以上, $690.0 \sim 715.0 \text{ nm}$ 区的泵浦光仅能将钾分子由基态 $X^1\Sigma_g^+$ 的较高位振转能级双光子或两步激发到 30000 cm^{-1} 左右的高位单重态 1A_g 上, 因此如果是通过激发态钾分子与基态钾原子之间的碰撞能量转移, 只可能较有效地布居 $7S$ 、 $5D$ 、 $8S$ 、 $6D$ 等较低的高位态, 而不能使 $9S$ 、 $7D$ 以及更高位的能态获得布居。然而在实验中却可清晰地记录到起始于这些高位态的辐射。作者认为, 在现在的实验条件下, 钾分子是被双光子或两步激发到高位单重态后, 再通过吸收第三个光子或通过碰撞而电离, 产生了 $K_2^+ + e$, K_2^+ 与 K 之间的碰撞相互作用可使钾原子高位 nS 、 nD 态获得布居, 从而产生了如图 1 所示的众多钾原子辐射线。

如前所述, 波长为 691.1 、 693.9 和 696.5 nm 的泵浦光对这些原子辐射有强烈的增强作用, 且在上述波长泵浦光激发下, 可通过 K_2 - K 系统的二步混合激发布居钾原子 $6S$ 或 $4D$ 态, 由于 $6S$ 和 $4D$ 态的能量只有 27450 和 27398 cm^{-1} , 不可能通过碰撞能量转移过程布居 30000 cm^{-1} 以上的能级, 因此处于 $6S$ 和 $4D$ 态的钾原子可吸收泵浦光子而电离为 $K^+ + e$, 然后通过电离复合过程布居高位 nS 、 nD 态, 从而增强了 583.2 nm 等辐射, 关于这种由电离复合过程形成高位 nS 、 nD 态的布居的假设, 在早先的工作中已被大量采用^[9~11]。限于实验条件尚不能直接测量离子谱。

可见, 钾原子高位态的布居是通过各种碰撞相互作用过程实现的, 实验发现, 在无缓冲气体时, 即使泵浦波长调谐到 693.9 、 696.5 nm , 仅观测到位于 404.4 、 404.7 nm 和图 1 中 583.2 nm 等几条强度较大的辐射线, 且这时的辐射信号很弱, 而观察不到 495.6 nm 等弱辐射信号, 随着缓冲气压的升高, 各辐射线的强度急剧增大, 由更高能态至 $4P_{1/2, 3/2}$ 的辐射逐

渐具有可观测的强度, 在缓冲气压为 30397.4 Pa 时, 辐射强度增加了一个数量级。说明缓冲气体在钾原子高位态的布居过程中起着重要的作用, 它是碰撞过程的能量传递者。

实验中还在 30397.4 Pa 、 He 缓冲气压下, 观测了 404.4 、 583.2 nm 等辐射信号随温度的变化情况, 图 4 是在泵浦波长分别为 696.5 和 708.0 nm 时, 404.4 和 533.9 nm 辐射的温度特性, 可见, 随着温度的升高, 两辐射信号均增强, 但在 708.0 nm 泵浦波长下, 产生辐射信号需要较高的温度 (500°C 以上), 且信号强度增加得更快, 实验在 480°C 时记录了 404.4 nm 辐射的激发函数, 除 691.1 、 693.9 、 696.5 nm 处出现激发线外, 其它泵浦波长下无可观测的辐射信号, 因此, 在低温下仅存在 691.1 、 693.9 、 696.5 nm 泵浦波长下通过 K_2 - K 系统的

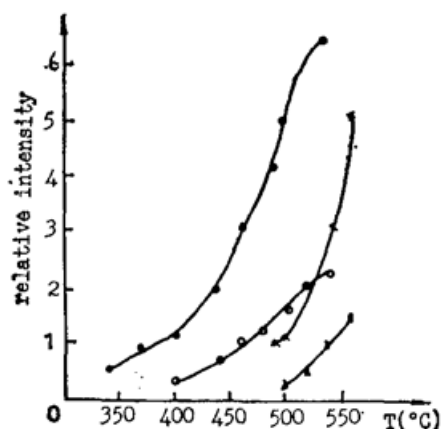


Fig. 4 The dependences of 404.4 and 533.9 nm signals on vapor temperature

- $404.4 (\lambda_p = 696.5)$; ○ $533.9 (\lambda_p = 696.5)$; × $404.4 (\lambda_p = 708.0)$; △ $533.9 (\lambda_p = 708.0)$

的二步混合激发钾原子 $6S$ 或 $4D$ 态, 从而布居钾原子高位 nS 、 nD 态和 $5P$ 态的过程, 而通

过泵浦光激发分子产生的激发态钾分子和 K_2^+ 与基态钾原子相互作用布居高位 nS 、 nD 和 $5P$ 态的过程, 由于需要较高的分子密度而只能在较高温度下才有效。

参 考 文 献

- [1] Z. G. Wang, L. J. Qin *et al.*; *Opt. Commun.*, 1984, **51**, No. 3 (Sep), 155~159.
- [2] Z. G. Wang, L. J. Qin *et al.*; *Appl. Phys. (B)*, 1986, **41**, No. 2 (Oct), 125~129.
- [3] N. M. Shen, S. M. Curry; *Opt. Commun.*, 1977, **20**, No. 3 (Mar), 392~396.
- [4] E. K. Kopeikina, M. L. Yanson; *Opt. Spect.*, 1975, **39**, No. 4 (Oct), 442.
- [5] S. Lemont, R. Giniger *et al.*; *J. Chem. Phys.*, 1977, **66**, No. 10 (May), 4509~4575.
- [6] G. H. Jeung, A. J. Ross; *J. Phys. (B)*, 1988, **21**, No. 8 (Aug), 1473~1487.
- [7] Stanley Bashkin *et al.*; *Atomic Energy-Level & Grotrian diagrams*, Vol. II (North-Holland Publishing Company, Amsterdam, New York, 1978), 280.
- [8] Barian Warner; *Mon. Nat. R. Astr. Soc.*, 1968, **139**, No. 1 (Jan), 115.
- [9] 金海燕等;《陕西师范大学学报(自然科学版)》, 1989, **17**, No. 2 (May), 19~23.
- [10] C. Y. Robert Wu, F. Roussel *et al.*; *J. Phys. (B)*, 1985, **18**, No. 2 (Feb), 239~250.
- [11] C. Y. Robert Wu, J. K. Chen *et al.*; *Opt. Commun.*, 1983, **48**, No. 1 (Nov), 28~32.

Generation of radiation lines from K high-lying states by multi-step pumping covering a wide wavelength region K_2 -K system*

JIN HAIYAN, QIN LIJUAN, LI YONGFANG**, CHEN DE AND WANG ZUGENG

(Dept. of Physics, East China Normal University)

(Joint Laboratory for Quantum Optics Shanghai Institute of Optics & Fine Mechanics Academia Sinica and East China Normal University Shanghai 201800)

(Received 28 February 1991, revised 3 June 1991)

Abstract

By multi-step excitation of K with any pumping wavelength between 690.0~715.0nm, collision-energy-transfer from potassium dimer to atomic potassium, hybrid excitation, and the other processes in K_2 -K system, the radiation at 404.4, 404.7nm and in 470.0~590.0 nm region from high-lying states of atomic potassium was generated. The excitation and population mechanisms were discussed.

Key words: K_2 -K system; the radiation from high lying states; two photon excitation.

** Dept. of Physics, Shaanxi Normal University.