

锌原子的受激发射*

张培林 吴小光 赵朔嫣

(清华大学现代应用物理系, 北京 100084)

提 要

用与 $4^1S_0-4^3P_1$ 跃迁共振的 307.59 nm 脉冲激光激发锌原子, 获得 $4^3D-4^3P_J$, $5^3S_1-4^3P_J$ 和 $4^1D_2-4^1P_1$ 七条受激发射线, 对其布居数产生机制进行了讨论。

关键词 受激发射, 锌原子, 多光子过程。

锌离子受激发射研究早在 60 年代已有详细报道^[1~3], 利用锌原子为非线性介质以产生短波长相干辐射近年亦有论文发表^[4~6], 但至今未见到锌原子受激发射的研究. 而且一般受激发射是从激光泵浦的能级向较低能级跃迁产生, 本文与此不同, 报道的 $5^3S_1-4^3P_J$ 、 $4^3D-4^3P_J$ 和 $4^1D_2-4^1P_1$ 受激发射, 其上能级并非由泵浦激光 307.59 nm 直接产生布居, 如图 1 所示。

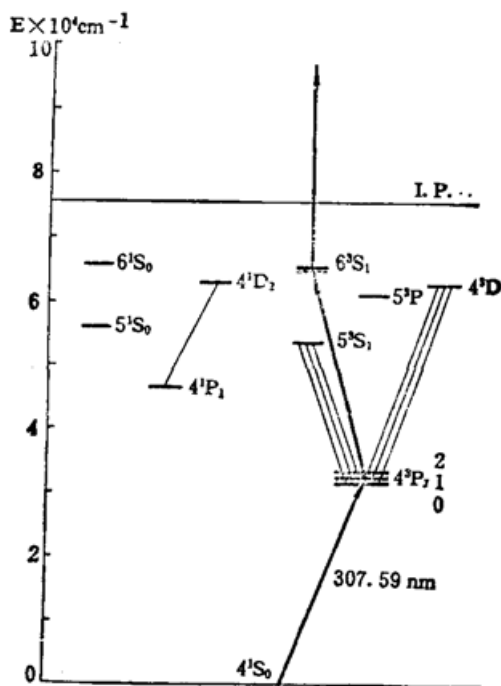


Fig. 1 Zn atomic-energy levels and relevant transitions

1 实验研究

1.1 实验装置

使用倍频 Nd:YAG 激光泵浦的两台染料激光器, 其输出经倍频为紫外光: 一台输出波

收稿日期: 1991年7月15日; 收到修改稿日期: 1991年9月24日

* 国家自然科学基金资助的项目。

长调至 307.59 nm, 与锌原子 $4^1S_0-4^3P_1$ 跃迁共振, 用作受激发射的泵浦光源. 另一台输出经光延迟器使其产生一定时延, 用来研究激发机制. 泵浦光聚焦入射到装有高纯锌的十字热管炉中, 炉温可控, 使用范围约为 750~1000 K, 在轴向和侧向可分别观测受激发射和荧光. 测量受激发射时, 离热管炉 8 米处放置预分光棱镜和滤光片以减少泵浦光的散射光, 然后进入单色仪, 用光电倍增管接收, 经取样积分器和微机处理后用记录仪记录. 热管炉中充有气压可以调节的缓冲气体 Ar, 为研究缓冲气体的作用, 还使用 T 型石英玻璃锌样品室, 其中一个不含缓冲气体, 另一个充有微量氢气.

1.2 受激发射实验研究

实验观测到的受激发射共有三组. 第一组为 $4^3D_{J'}-4^3P_J$, $J=0, 1, 2$, 波长分别为 328.2, 330.2 和 334.5 nm. 三条谱线的相对强度稳定, 强度比为 1:2:3. 第二组为 $5^3S_1-4^3P_J$, 波长分别为 468.0, 472.2 和 481.0 nm. 其中 481.0 nm 为观测到的最强受激发射线, 强度也稳定; 另二条谱线强度涨落较大(说明见后). 强度比依次大致为 2:3:25. 第三组只有一条为 $4^1D_2-4^1P_1$, 636.2 nm. 只在热管炉和充气样品室中观测到.

各受激发射的线宽为 0.15 nm(由光谱仪器分辨率决定); 全发散角 $\theta \sim 10$ mrad, 约与泵浦激光的发散角相等. 经仔细观测不存在四波混频和光参量过程的角锥形结构^[7], 后向辐射与前向类似, 故为受激发射. 使用一快速光电二极管测出泵浦光脉冲与受激发射光脉冲的时间特性, 图 2(a)和图 2(b)分别是 481.0 nm 泵浦光和受激发射的实测结果, 受激发射比泵浦光迟后约 2 ns.

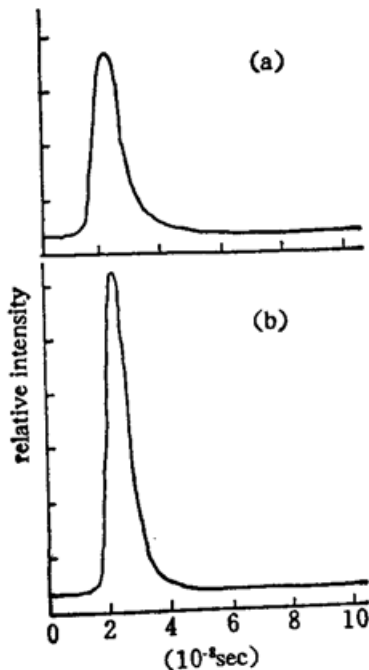


Fig. 2 Time development of (a) 307.59 nm pump-laser pulse and (b) 481.0 nm stimulated emission pulse

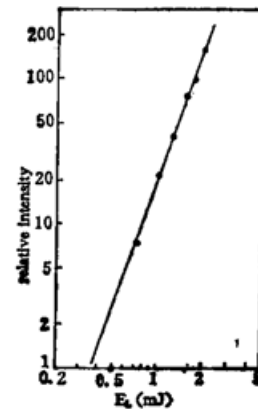


Fig. 3 Dependence of 481.0 nm stimulated emission intensity on pump-laser energy

为了能弄清楚受激发射的机制, 测量了受激发射光强随泵浦光强和随锌原子数密度的变化关系, 以及各受激发射线的激发谱. 图 3 和图 4 分别表示出 481.0 nm 和 334.5 nm 输出光强随泵浦光能量的变化曲线. 在实验误差范围内, 前者呈现 $I_{(481)} \propto I_p^3$, 而后者近似为 $I_{(334)} \propto I_p^2$. 说明二组受激发射机制有所不同. 334.5 nm 一组受激发射的激发谱只在

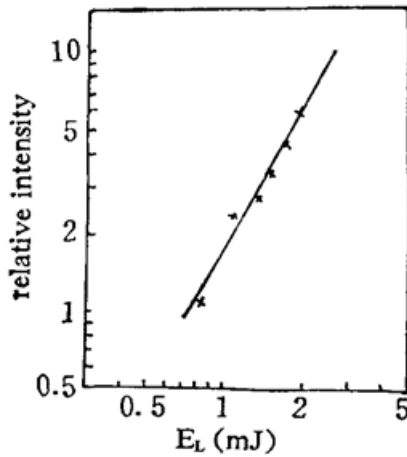


Fig. 4 Dependence of 334.5 nm stimulated emission intensity on pump-laser energy

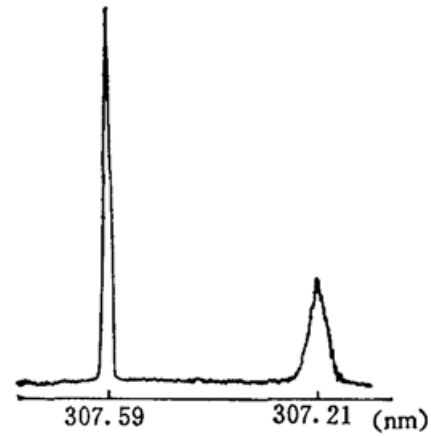


Fig. 5 Two-step excitation spectrum of 481.0 nm stimulated emission

Table 1 Observed fluorescence lines

Wavelength(nm)	Transition	Wavelength(nm)	Transition
636.2	$4^1D_2-4^1P_1$	271.2	$7^3S_1-4^3P_2$
518.2	$6^1S_0-4^1P_1$	268.4	$7^3S_1-4^3P_1$
481.0	$5^3S_1-4^3P_2$	267.1	$7^3S_1-4^3P_0$
472.2	$5^3S_1-4^3P_1$	260.8	$6^3D-4^3P_2$
468.0	$5^3S_1-4^3P_0$	258.2	$6^3D-4^3P_1$
463.0	$5^1D_2-4^1P_1$	257.0	$6^3D-4^3P_0$
334.5	$4^3D-4^3P_2$	251.6	$7^3D-4^3P_2$
330.2	$4^3D-4^3P_1$	249.2	$7^3D-4^3P_1$
328.2	$4^3D-4^3P_0$	248.0	$7^3D-4^3P_0$
307.5	$4^3P_1-4^1S_0$	246.3	$8^3D-4^3P_2$
307.2	$6^3S_1-4^3P_2$	244.0	$8^3D-4^3P_1$
303.5	$6^3S_1-4^3P_1$	242.9	$8^3D-4^3P_0$
301.8	$6^3S_1-4^3P_0$	213.9	$4^1P_1-4^1S_0$
280.1	$5^3D-4^3P_2$	206.2	$ZnII 4^2P_{1/2}-4^2S_{1/2}^*$
277.0	$5^3D-4^3P_1$	202.6	$ZnII 4^2P_{3/2}-4^2S_{1/2}^*$
275.6	$5^3D-4^3P_0$		

* Ionic Transition

307.59 nm 处出现峰值。对于 481.0 nm 发射线，做了单波长的激发谱，其结果同上。此外，还做了二步激发的研究(参看图 1)：第一步波长固定为 307.59 nm，第二步激光波长扫描。结果如图 5 所示，除原有的 307.59 nm 的峰值以外，还在 307.21 nm 处出现一个小峰，说明 $4^3P_0-6^3S_1$ 的激发对 481.0 nm 受激发射也有贡献。

1.3 侧向荧光实验

为进一步了解受激发射上能级布居的产生机制，对侧向荧光进行了仔细的观测，共测出 31 条荧光谱线(表 1)，大致分为三类：(1) 三重态间跃迁， $n^3D-4^3P_J$ ，除 $n=4$ 外，尚有 $m=5, 6, 7, 8$ ； $m^3S_1-4^3P_J$ 除 $n=5$ 外，尚有 $m=6, 7$ ；(2) 单重态跃迁， $4^1D_2-4^1P_1$ ， $4^1P_1-4^1S_0$ 等；(3) 锌离子荧光谱线， $ZnII 3d^{10}4p^2P_{3/2,1/2}-3d^{10}4s^2S_{1/2}$ 。作者认为离子谱线的存在说明存在着多光子电离过程，离子和电子的复合导致锌原子高激发态布居的产生从而出现一簇系列的光辐射。

2 讨 论

2.1 $5^3S_1-4^3P_J$ 受激发射及其激发机制

本组三条谱线共用一上能级,故谱线间有强烈的竞争效应.下能级简并度为 $2J+1$,显然与 $J=2$ 相应的 481.0 nm 谱线在竞争中处于优势.强度大而稳定,另二条光强则弱且不稳定.

单光子共振激发 4^3P_1 态产生 5^3S_1 态的布居,必然有多光子过程或其他能量转移过程参与.实验显示受激发射光强与泵浦光强三次方成正比,以及锌离子谱线的出现,可以肯定三光子电离过程起重要作用.泵浦激光的双光子能量 65002 cm^{-1} 比 Zn 6^3S_1 态能量 65432 cm^{-1} 只差 430 cm^{-1} ^[10],小于 $kT=694\text{ cm}^{-1}$ ($T=1000\text{ K}$).因此上述电离过程不仅有单光子共振(4^3P_1),还存在双光子近共振(6^3S_1)增强效应.泵浦光强经聚焦后可达 100 MW/cm^2 ,作用时间 10^{-8} sec ,估计电离速率可达 10^2 sec^{-1} 量级^[8].在 1000 K 时锌原子密度为 10^{18} cm^{-3} ^[9].估算出光电子密度为 10^{12} cm^{-3} ,相当于百万分之一的锌原子被电离.

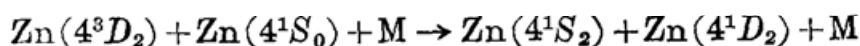
Zn⁺ 离子和电子复合可产生高激发态锌原子,从而直接和间接地使 5^3S_1 布居.但这还不能解释 481.0 nm 是最强的受激发射线.因为复合过程更容易产生高激发态的布居,尽管考虑到跃迁的振子强度随主量子数的增加而减小,但仍难以说明自 5^3S_1 跃下的谱线最强,因此应有更有效的布居过程:从泵浦光三光子能量与锌原子电离能之差得到的光电子动能为 21737 cm^{-1} ,几乎与 $4^3P_1-5^3S_1$ 的激发能 21171 cm^{-1} 相等^[10],光电子碰撞激发可使 5^3S_1 布居的几率增大,但却无法使更高能态布居大量增加.此外,双光子近共振激发 6^3S_1 态,通过级联辐射也可使 5^3S_1 布居,图 5 所示的 481.0 nm 受激发射的激发谱也表明了本过程的存在,但不占主导地位.

2.2 $4^3D_{J'}-4^3P_J$ 受激发射机制

本组三条谱线上能级可以是 $J'=3, 2, 1$ 不同的子能级.因而输出光强稳定,不存在强烈竞争效应.图 4 显示受激发射光强与泵浦光强是平方关系.泵浦光双光子能量比 4^3D_J 能级约高 $3kT$,通过碰撞效应,会有一些的布居 4^3D_J 的几率.此外,有关的分子过程也有可能使 4^3D 布居,但尚未有可供讨论这问题的实验和理论数据发表,需要进一步的研究才能搞清具体过程.

2.3 $4^1D_2-4^1P_1$ 受激发射

只在充 Ar 的热管炉和充 H₂ 的石英样品室中出现,在不充缓冲气体的样品室中观测不到.再者,泵浦光激发的是原子三重态,怎样造成单态的布居?这些因素说明 4^1D_2 的布居与碰撞过程密切相关. Zn 4^1D_2 (62458 cm^{-1}) 与 Zn 4^3D_2 (62772 cm^{-1}) 能量只差 $314\text{ cm}^{-1} < 0.5kT$,在 Ar 原子 ($\sim 10^{18}\text{ cm}^{-3}$) 的参与下可有相当大的碰撞能量转移几率.在侧向荧光实验中证实了 4^1D_2 和 4^3D_2 碰撞能量转移过程的有效性.因此认为下述过程



导致了 4^1D_2 态的布居.

2.4 光增益

受激发射光增益系数由下式表示

$$g = (\lambda^2 \Delta N / 8\pi\tau_s \Delta\nu)$$

以 481.0 nm 为例, 5^3S_1 态寿命 $\tau_s = 8 \text{ ns}^{[12]}$, 线宽 $\Delta\nu \approx 2 \text{ GHz}$, 设布居数反转 ΔN 为 10^{11} cm^{-3} , 则 $g = 0.6 \text{ cm}^{-1}$. 热管炉工作区长度 15 cm, 则光增益 $gL = 9$.

最后说明一下, $\text{Zn } 4^3P_1$ 的出空主要是通过碰撞过程. 已知 $\text{Zn } 4^3P_1$ 与基态 Zn 原子碰撞时形成锌分子^[13,14], 与氢分子碰撞形成 Zn H 分子^[15], 具有较大截面. 缓冲气体的碰撞也会导致 4^3P_1 的出空.

参 考 文 献

- [1] G. R. Fowles, W. T. Silfvast, *IEEE J. Quant. Electron.*, 1965, **QE-1** (3): 131
- [2] R. C. Jenson, G. J. Collins *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, 1969, **23** (4): 363~367
- [3] A. N. Dubrovin, A. S. Tibilov *et al.*, *Opt. Spectrosc.*, 1972, **32** (3): 685
- [4] W. Jamroz, P. E. Larocque *et al.*, *Opt. Lett.*, 1982, **7** (12): 617~619
- [5] P. R. Herman *et al.*, *Can. J. Phys.*, 1985, **63** (12): 1581~1588
- [6] Shuo-Yan Zhao, Pei-Lin Zhang *et al.*, *Appl. Opt.*, 1989, **21** (21): 4521~4524.
- [7] C. H. Skinner, P. D. Kleiber. *Phys. Rev. (A)*, 1980, **21**(1): 151~156
- [8] G. Mainfray, C. Manus, *Normal Multiphoton Ionization of Atoms (Experimental) in Multiphoton Ionization of Atoms*, Ed. by S. L. Chen & P. Lambropoulos., New York: Academic Press., 1984
- [9] A. N. Nesmeyanov, *Vapor Pressure of Elements*, New York: Academic Press., 1963
- [10] C. E. Moore, *Atomic Energy Levels, Vol. II*, Washington D. C.: NSRDS-NBS, 1971
- [11] P. J. Hay, T. H. Dunning Jr. *et al.*, *J. Chem. Phys.*, 1976, **65** (7): 2679~2689
- [12] P. F. Gruzdev, A. V. Loginov. *Opt. Spectrosc.*, 1983, **54** (4): 348~350
- [13] Pei-Lin Zhang, Shou-Yan Zhao *et al.*, *Laser-induced Fluorescence of Excited Zinc Molecules, Laser Spectroscopy IX*, New York: Academic Press., 1989: 426~428
- [14] W. Kedzierski, J. B. Atkinson *et al.*, *Opt. Lett.*, 1989, **14** (12): 607~608
- [15] W. H. Breckenridge, J.-H. Wang, *Chem. Phys. Lett.*, 1986, **123** (1): 17~22

Stimulated emission in atomic zinc

ZHANG PEILIN WU XIAOGUANG ZHAO SHUOYAN

(Department of Modern Applied Physics, Tsinghua University, Beijing 100084)

(Received 15 July 1991; revised 24 September 1991)

Abstract

Seven stimulated emission lines on the transitions of $4^3D-4^3P_J$, $5^3S_1-4^3P_J$ and $4^1D_2-4^1P_1$ are observed following pulsed laser excitation of atomic Zn on $4^1S_0-4^3P_1$ resonance at 307.59 nm. The mechanism of the population inversion for the different transitions is discussed.

Key words stimulated emission, Zinc atom, multiphoton process.