文章编号:0253-2239(2001)07-0891-03

高激发态钠原子与分子碰撞能量转移及 分子扩散带辐射的增强效应研究*

张衍亮¹) 李永放^{2),3}) 孙真荣¹) 丁良恩¹) 王祖赓¹)

(1),光谱学与波谱学教育部重点实验室,华东师范大学物理系,上海 200062)

2), 西安交通大学现代物理研究所, 西安 710049

3),陕西师范大学物理系,西安 710062

摘要: 在钠原子-分子混合体系中,实验研究了加入缓冲气体对高位态原子-分子碰撞能量转移和分子扩散带辐射的增强效应;运用瞬态碰撞模型作了理论计算,理论结果与实验结果相符合。

关键词: 分子扩散带辐射;碰撞能量转移;瞬态碰撞模型

中图分类号:0433.54 文献标识码:A

1 引 言

碱金属分子扩散带辐射的研究是光物理学和激 光光谱学的热门课题之一。因为它对应于分子束缚 -自由(或弱束缚)跃迁 具有易实现粒子数反转和相 对较宽的光谱调谐范围,所以人们一直试图把碱金 属分子蒸汽作为"准分子"激光器的激活介质,以产 生在一定波长范围内可调谐的激光输出。至今,已 研究了碱金属分子高位三重态到低位三重态所产生 的扩散带受激辐射(或荧光辐射)的多种激发机 制^{1~7]}。例如,我们实验室在钠原子 – 钠分子的混 合样品中,以双光子共振激发钠原子4D能级后,由 $Na^*(4D)$ Na, 碰撞能量转移使钠分子高位三重态 布居 从而产生扩散带受激辐射^[4]。这种激发态原子 和分子的碰撞能量转移是产生扩散带辐射的一个关 键过程 尽可能有效地增强该过程 从而产生较强的 扩散带辐射是需要研究的一个重要课题。本文从实 验上研究了缓冲气体对 Na*(4D)-Na, 碰撞能量转 移过程的增强效应,并用瞬态碰撞模型给予了较好 的解释。

2 实验与结果

实验在一装有纯钠样品的十字形热管炉中进 行 加热热管炉以产生钠原子-分子的混合气体。炉 内温度为 623 K,以 Nd³⁺:YAG 激光器抽运的染料 激光器为激发光源,其线宽与脉宽分别为 0.05 cm⁻¹ 和 12 ns。激光束聚焦到热管炉中心,从热管侧向辐 射的信号经适当的滤光片后引入单色仪,由光电倍 增管接收并经 Boxcar 取样平均后,由计算机存储处 理,最后输出结果。

实验中,将激光调谐到 578.7 nm,钠原子被双 光子共振激发到 4D 态,此时可产生由高位三重态 向低位三重态跃迁的钠分子扩散带辐射信号。主要 反应通道为:

$$N_{a}(3S) + 2h(578.7 \text{ nm}) \xrightarrow{WW} \text{Na}^{*}(4D),$$

$$Na^{*}(4D) + Na_{2}(X^{1}\Sigma_{g}^{+}) \xrightarrow{\dot{W}\underline{\mu}}$$

$$Na_{2}(2^{3}\Pi_{g}) + Na(3S),$$

$$Na_{2}(2^{3}\Pi_{g}) \xrightarrow{\underline{\xi}\underline{\eta}} Na_{2}(a^{3}\Sigma_{u}^{+}) +$$

$$h(420 \text{ nm} + 460 \text{ nm})$$

其所涉及的激发、碰撞能量转移和扩散带辐射如图 1 所示。

图 2 为检测到的位于紫区的扩散带荧光谱。图 2 (a)~图 2(c)为其他实验条件均不变的情况下热管 内分别充入 Ar 气 0、6.67×10³ Pa 和 2.67×10⁴ Pa 时的辐射信号。由此可见,热管中 Ar 气气压的增 加,有效增强了原子和分子的碰撞能量转移,从而增 强了扩散带的辐射强度。图 3 是 452 nm 处的荧光 强度随充入 Ar 气量的变化规律图。从图中可清楚 地看到,随着充入 Ar 气气压的增加,荧光辐射也随 之增强;当充入的 Ar 气气压大于 2.67×10⁴ Pa 后,

^{*} 国家自然科学基金(19734003)资助课题。

收稿日期 2000-04-06; 收到修改稿日期 2000-06-02



Fig.1 The energy level related with the energy transfer in the Na and Na_2

荧光强度趋于饱和状态。



Fig. 2 The violet diffuse band fluorescence emission of the Na₂. (a) P = 0, (b) $P = 6.67 \times 10^3$ Pa, (c) $P = 2.67 \times 10^4$ Pa

3 实验结果分析

由图 2 及图 3 可明显看到,分子扩散带辐射强 度随着 Ar 气的充入而增强,这是由于充入 Ar 气时, Na*(4D)与 Na₂($X^{1}\Sigma_{g}^{+}$)之间的碰撞加剧,使分子 扩散带辐射跃迁的上能态 2 ${}^{3}\Pi_{g}$ 获得的布居数增 加,从而导致辐射强度随着 Ar 气的充入而逐步增 强。当 Ar 气压达到 2.67 × 10⁴ Pa 时,荧光辐射强度 达到最大。此后,随着 Ar 气充入,辐射强度变化不 明显。这是由于在高 Ar 气气压下,分子间的碰撞会 使已布居的分子高位态弛豫加剧,即布居会转移到 其他分子能态,并且向原子转移机会也会增大。因 而当 Ar 增加到一定程度时,高位分子态的布居与 消布居这二者达到平衡,次后 Ar 气的充入不再影响 荧光的强度。





上述现象可用简化的瞬态速率方程来描述。在 短激光脉冲的激发下,钠原子 4D 态布居数密度 N,(t)随时间的变化为:

$$N_1(t) = N_1(0) \exp(-t/\tau_1),$$
 (1)

其中 τ₁ 为 4*D* 态的有效寿命。为计算方便起见,将 *N*₁(0)设为1 这样

$$V_1(t) = \exp(-t/\tau_1).$$
 (2)

分子高位态的布居数密度为 N₂(t),与之相关的速 率方程为

$$\frac{\mathrm{d}N_2}{\mathrm{d}t} = -\frac{N_2}{\tau_2} - \sigma_2 \, V n N_2 + \sigma_1 \, V n N_1 , \quad (3)$$

这里 ,*n* 为热管炉中气体的粒子数密度 , τ_2 为 2³ \prod_g 态的寿命 , σ_1 为原子 4*D* 态与分子间的碰撞截面 , σ_2 为分子高位态与原子 4*D* 态之间的碰撞截面 ,*V* 为平均碰撞速率。用理想气体模型描述热管炉中的 气体 ,即 *P* = *nkT* ,*k* 为玻尔兹曼常数 ,*T* 为样品气 体的温度 ,*P* 为氩气和炉内钠蒸气气压之和。在加热 温度 *T* 为 623 K 时 ,炉内钠蒸气气压约为 2.13 × 10³ Pa^[8]。平均碰撞速率 *V* = (8*RT*/ $\pi\mu$)^{1/2} ,其中 *R* 为 普适气体常数 , μ 是钠分子和原子的约化折合质量。 由此 联立(2)式和(3)式 ,可解得

$$N_{2}(t) = P\sigma_{1} V \frac{e^{(-t/\tau_{1})} - e^{(-t/\tau_{2} - \sigma_{2} VP_{1}/kT)}}{(1/\tau_{2} - 1/\tau_{1})kT + \sigma_{2} VP}.(4)$$

文献[9]具体给出了 $\sigma_1, \sigma_2, \tau_1$ 和 τ_2 的值 , t 值为

Boxcar 采样门信号与输入信号的延迟时间间隔,在 本实验中为 20 ns。将各参数代入(4)式,计算出与 实验数据相符合的如图3所示的曲线。

结论 实验研究了在充入不同 Ar 气量的情况下,钠 分子通过双光子共振激发钠原子 4D 态并由原子--分子碰撞能量转移所产生的分子扩散带辐射强度的 变化规律,并以瞬态碰撞模型作了计算,其结果与实 验相符。实验和计算结果表明,充入适量的氩气,对 增强高位原子--分子碰撞能量转移,从而增强分子扩 散带辐射,对钠"准分子"激光的产生是非常有效和 有用的。

参考文献

- $[\ 1 \]$ Wu C Y R, Chen J K, Judege D L et al.. Spontaneous amplified emission of a Na₂ diffuse violet band produced through two-photon excitation of sodium vapor. Opt. Commun. , 1983 , 48(1) 28 ~ 32
- [2] Shahdin S, Gondal M A. Observation of UV and violet diffuse band of sodium dimer excited by XeF (351 nm)

excimer laser. $O_{pt}.\ Commun.$, 1989 , 71
(1) $65\sim71$

- [3] Gondal M A, Shahdin S, Shadan A et al.. First observation of a collisionally induced diffuse band ⁷Li₂ diffuse bands in the 440.0 nm region. Opt. Commun., 1991, 86(2):128~134
- [4] Wang Z G, Ma L S, Xia H R et al.. The generation of UV and violet diffuse band stimulated radiation in a sodium dimer. Opt. Commun., 1986, 58 (5) 315 ~ 323
- [5] Li Y F, Jin H Y, Shen J Q et al.. Generation of violet and blue diffuse band of stimulated radiation in lithum dimer^{*}. Chinese Physics Letters, 1991, **8** (4):176~179
- [6] 贾锁堂,秦莉娟,钱祖良等. 钾分子-原子系统中多种 激发机制产生分子扩散带受激辐射研究. 中国科学(A 辑),1996,26(4)328~335
- [7] Wang Z G, Qin L J. The two-photon hybrid resonance laser and photodissociation laser by two photon pumping covering a wide wavelength region in the potassium vapour. *Opt. Commun.*, 1984, 51(3):155~159
- [8] Nesmeyanov N. Vapour Pressure of the Chemical Elements. New York : Elsevier Publishing Co., 1963
- [9]黄小仙,秦莉娟,周国运等.由混合共振激发产生钠分子 扩散带的时间特性研究.华东师范大学学报(自然科学 版),1995,1:48~53

Enhanced Effect of the Collisional Energy Transfer Between Na and Na₂ and Diffuse Band Radiation in Na₂

Zhang Yanliang¹⁾ Li Yongfang^{2),3)} Sun Zhenrong¹⁾ Ding Liangen¹⁾ Wang Zugeng¹⁾

- (1), Key Laboratory for Optical and Magnetic Resonance Spectroscopy, East China Normal University; Department of Physics, East China Normal University, Shanghai 200062
- 2), Mordern Physics Institute, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049
- (3), Department of Physics, Shanxi Normal University, Xi'an 710062

(Received 6 April 2000; revised 2 June 2000)

Abstract: The enhanced effects of the collisional energy-transfer between the highly excited sodium atoms and molecules and diffuse band radiation were experimentally investigated in the sodium vapours when the buffer gas was added in. A transient collisional model was used to describe the experimental result. The theoretical analysis was in agreement with the experimental result.

Key words : diffuse band radiation ; collisional energy transfer ; transient collisional model