

文章编号: 0253-2239(2001)08-0961-04

激光感生碰撞能量转移实验*

郑瑞华 陈德应 吕志伟 赵晓彦 马祖光

(哈尔滨工业大学光电子研究所, 哈尔滨 150001)

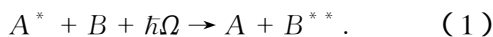
摘要: 首次观察到 $\text{Eu}(6s6p)^3P_{9/2}$ 至 $\text{Sr}(5s10s)^1S_0$ 、准稳态翼为紫翼的激光感生碰撞能量转移实验现象, 其荧光波长为 458.42 nm, 峰值转移激光波长为 459.75 nm, 并对其激发函数谱随温度和随转移激光能量改变进行实验研究, 测量了激光感生碰撞能量转移谱的截面, 证实了激光感生碰撞能量转移谱为非对称谱。

关键词: 碰撞能量转移; 偶极-偶极相互作用; 碰撞截面

中图分类号: O562.3 文献标识码: A

1 引言

原子和原子间的激光感生碰撞能量转移现象 (LICET) 可以用如下反应式表示^[1,2]



其特征就是在 A 原子与 B 原子发生碰撞过程中, A 原子从激发态回到基态, B 原子接收 A 原子激发能量的同时又吸收一激光光子 $h\Omega$ 并从基态跃迁至高激发态, 图 1(a) 给出与激光感生碰撞能量转移有关的 A 原子、B 原子相应能级的示意图。原子和原子间激光感生碰撞过程的实验主要研究激发函数谱, 即研究激光感生碰撞共振荧光强度随激光失谐参量 Δ 的变化关系(称之为激光感生碰撞能量转移谱), 此处失谐参量定义为:

$$\Delta = \Omega - \omega_{\beta^{**}} + \omega_{\alpha^*} \quad (2)$$

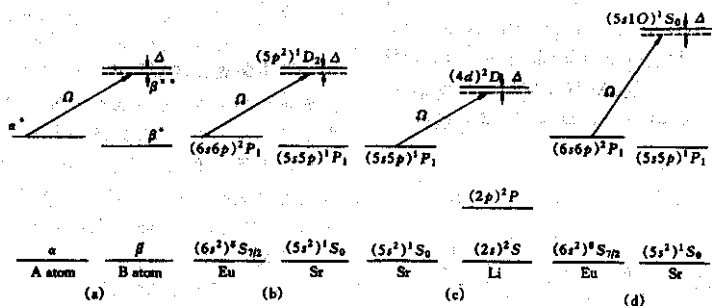


Fig. 1 (a) A schematic diagram of the energy level of LICET between two atoms. Ω is the laser frequency with transition occurs from state α^* of atom A to state β^{**} of atom B. (b) and (c) Typical energy level diagrams of LICET with one dipole-dipole interaction. (d) The energy level diagram for Eu-Sr system in this paper with two dipole-dipole interactions in Ref. [9]

* 国家自然科学基金(69388003)资助课题。

收稿日期: 1999-12-24; 收到修改稿日期: 2000-06-05

式中 α 、 β 分别代表 A 原子和 B 原子的基态, 其标记 * 和 ** 分别代表相应的激发态和高激发态。激光感生碰撞能量转移谱与传统原子光谱相比具有大的谱翼且两边呈明显不对称特点, 其谱峰位于 Δ 为 0 处即激光频率为跃迁共振频率处 ($\Omega = \omega_{\beta^{**}} - \omega_{\alpha^*}$)。通常称激光感生碰撞能量转移谱中随 Δ 下降较快的一边为非准稳态翼, 而随 Δ 下降缓慢的一边为准稳态翼。

如图 1(b) 所示的 Eu-Sr^[3,4] 系统和如图 1(c) 所示的 Sr-Li^[5] 系统为激光感生碰撞能量转移两种典型能级结构类型, 其中两原子的各自一组电偶极允许跃迁对应的能级差相近, 图 1(b) 有 Eu 的 ω_{α^*} 与 Sr 的 $\omega_{\beta^{**}}$ 能级相差 63 cm^{-1} 及图 1(c) 有 Sr 的 ω_{α^*} 与 Li 的 $\omega_{\beta^{**}}$ 能级相差 21 cm^{-1} , 理论分析则把

它们之间偶极-偶极相互作用作为碰撞势^[2,4,6,7]; 同时铕的 ω_{α^*} 与铕的 $\omega_{\beta^{**}}$ 相差 6499 cm^{-1} , 而铕 ω_{α^*} 与铕的 $\omega_{\beta^{**}}$ 能级相差为 6794 cm^{-1} , 理论的分

析则忽略它俩之间偶极-偶极相互作用^[2,5,8],即目前大多数激光感生碰撞能量转移实验过程的碰撞势当作一组偶极-偶极相互作用,采用三能级理论进行处理。

本文研究的 Eu-Sr 系统^[9]中如图 1(d)所示的能级结构不仅铈的态 $\alpha\alpha^*$ 与锶的态 $\beta\beta^*$ 相差为 63 cm^{-1} ,而且铈的态 $\alpha\alpha^*$ 与锶的态 $\beta^*\beta^{**}$ 能级相差为 53 cm^{-1} ,因而碰撞势包含了铈的态 $\alpha\alpha^*$ 与锶的态 $\beta\beta^*$ 之间以及铈的态 $\alpha\alpha^*$ 与锶的态 $\beta^*\beta^{**}$ 之间两组偶极-偶极相互作用。因此,其实验现象须采用四能级理论进行解释^[9,10]。

2 实验装置与实验结果

本实验目的是高精度获取弱场下激光感生碰撞能量转移的远翼谱线,并研究不同的温度以及不同的激光强度对谱线的影响。

如图 2 所示,实验中采用准分子激光 (EMG201MSC 型) 抽运两台染料激光器,染料激光 1 (FL2002E 型) 用来抽运 $\text{Eu}(6s^2)^8S_{7/2}$ 至 $\text{Eu}(6s6p)^8P_{9/2}$ 使 $\text{Eu}(6s6p)^8P_{9/2}$ 原子作为准备态,该激光称为抽运激光(波长 459.53 nm);染料激光 χ (上海激光研究所生产) 用来完成激光感生碰撞能量转移过程称为转移激光,两束激光成一定角度 (2° 左右) 对向入射至热管炉中心,荧光探测方向与入射激光成 90° ,并且转移激光与抽运激光有 10 ns 到 40 ns 的延迟,上述光路的安排一方面避免使用双色镜并使两束光可各自调焦;另一方面可减低噪声,如延迟则可将两光子跃迁噪声及由抽运光引起的噪声降至可忽略水平上。交叉光路使两束光起作用区域为几个立方厘米。热管炉里包括两种不同金属 Sr 与 Eu 及保护窗口的缓冲气体 Ar 气,Ar 气压应尽可能地小,以免影响激光感生碰撞能量转移过程,缓冲气体 Ar 的气压为 1333 Pa 。

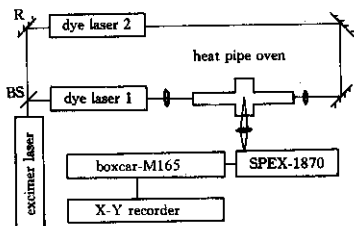
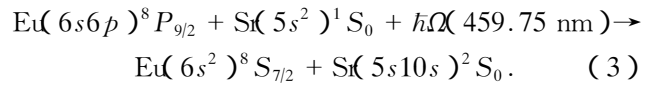


Fig. 2 The experimental setup of LICET for Eu-Sr system. BS: beam splitter. R: reflector

在如图 1(d)所示的 Eu-Sr 系统能级结构中,以 458.42 nm 即 $\text{Sr}(5s^2)^1D_2 \rightarrow (5s5p)^1P_1$ 为固定荧光探测波长,观察到如图 3 所示的如下激光感生碰撞能量转移的实验现象



(3) 式表示荧光 458.42 nm 、峰值位于转移激光波长 459.75 nm 、准稳态翼为紫翼激光感生碰撞能量转移现象。图 3 为判断产生激光感生碰撞现象实验图,横轴为转移激光频率,纵轴为荧光强度 (458.42 nm),曲线 a 代表单束转移激光产生的 458.42 nm 荧光信号,曲线 b 代表两束激光产生的 458.42 nm 荧光信号,两者的其余外界条件都一样。准分子激光的能量为 200 mJ ,重复频率为 5 Hz ,经分束输出,在热管炉中心,染料激光 1 的输出功率为 1.2 mJ ,染料激光 2 输出功率为 0.8 mJ ,两束激光线宽均为 0.02 nm ,两束激光脉宽均为 10 ns ,热管炉温度控制稳定范围为 $(750 \pm 10)^\circ\text{C}$,信号经单色仪 (SPEX1870 型) 由 Boxcar (EG&G 公司的 M162 型和 M165 型) 进行处理,由 X-Y 记录仪记录。

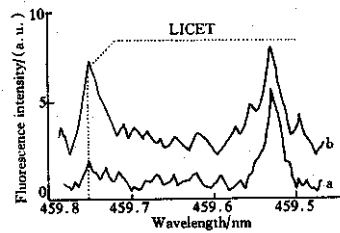


Fig. 3 458.42 nm fluorescence excitation function spectral of LICET for Eu-Sr system

两束激光在热管炉中心的时间延迟为 22 ns ,两束光都没加聚焦,转移激光在热管炉中心功率密度为 $8.4 \times 10^4\text{ W/cm}^2$,显然图 3 中的 459.75 nm 信号符合产生激光感生碰撞能量转移的条件,即激光感生碰撞能量转移是在碰撞与激光场(指的是转移激光)同时作用下的一种光学现象,单独激光或单独碰撞都不能产生此现象。

图 4 和图 5 分别给出了在不同的温度和不同的转移激光能量下激光感生碰撞能量转移谱的变化,抽运激光和转移激光能量分别为 1.8 mJ 和 1.1 mJ ,两束光在热管炉中心的延迟为 22 ns ,转移激光经焦距为 50 cm 透镜聚焦在热管炉中心的功率密度为 $2.2 \times 10^6\text{ W/cm}^2$,图 4 中曲线 a、b、c、d 分别对应于温度为 750°C 、 800°C 、 850°C 和 900°C 的激光感生

碰撞能量转移曲线,可以看到:随温度升高激光感生碰撞能量转移谱的谱峰反而下降,这与文献 9, 10 的预计是一致的,图 5 中曲线 a、b、c、d 分别对应转移激光强度衰减为 1/1、1/2、2/3、1/4 的情况,可以看到其激光感生碰撞能量转移谱峰随转移激光强度减小也相应发生衰减为 1:0.50:0.64:0.26,并且其形状基本不变,这证实了弱场下谱线性状不随转移激光强度改变的结论、以及弱场下谱线形状大小基本与转移光强激光强度成线性正比关系的结论^[2,3,5]。实验发现抽运光强的改变不会影响激光感生碰撞能量转移的碰撞截面,表明较弱的光强也能使 Eu 原子的第一激发态获得足够的粒子数。本文最低抽运光在热管炉中心的功率密度约为 $1.0 \times 10^4 \text{ W/cm}^2$,并且抽运光的聚焦点是否在热管炉中心并不影响 Eu 的第一激发态的粒子数,从图 3、图 4 和图 5 谱线走势可看到,随着失谐参量的改变,激光感生碰撞能量转移谱红翼下降较快,紫翼下降缓慢,证实了激光感生碰撞能量转移谱是不对称谱^[2]。

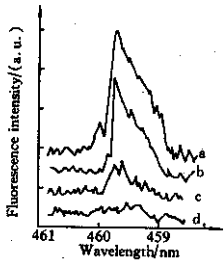


Fig. 4 458.42 nm fluorescence excitation function spectr of LICET for Eu-Sr system at different temperature. a: 750 °C, b: 800 °C, c: 850 °C, d: 900 °C. The delay between two laser beams is 22 ns

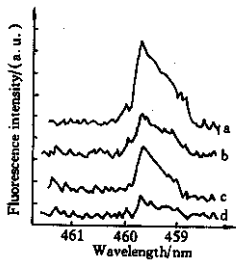


Fig. 5 458.42 nm fluorescence excitation function spectra of LICET for Eu-Sr system at different intensity of transfer laser. a: I_0 , b: $I_0/2$, c: $2I_0/3$, d: $I_0/4$. The temperature is 750 °C and the delay between two laser beams is 22 ns in the center of the heat pipe oven

实验截面的计算采用如下式子^[2,11]

$$\sigma = \frac{N(\text{Sr}^{**})}{N(\text{Eu}^*)} \frac{1}{N(\text{Sr})v\tau} \quad (4)$$

可以估算出 Eu-Sr 系统在 750 °C 时的截面约为 $3.10 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$,其中 N 代表相应某态的粒子数密度 $N(\text{Sr})$ 是 Sr 原子基态粒子数密度,为 $2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ (利用已有的 Sr 的相应温度蒸汽压和理想气体方程得到)。脉宽 $\tau = 10 \text{ ns}$,平均速率 $v = 49700 \text{ cm/s}$, $N(\text{Sr}^{**})N(\text{Eu}^*) = 0.0031$ (实验测量采用双激光产生 458.42 nm 的荧光与单激光产生 459.53 nm 荧光峰值之比,原因在于两组荧光实验寿命相近)。

单光束的存在对激光感生碰撞能量转移的影响,如双光子跃迁,两极跃迁,与缓冲气体的碰撞引起的非共振吸收,染料激光本身带宽引起的共振吸收等^[2],一般采用以下措施如优化染料激光窄带与宽带发射比改善信号的信噪比,使抽运激光微微偏离 Eu 原子 $\alpha\alpha^*$ 跃迁共振线,及增加两束光间的延迟等可使噪声降至可忽略水平上。如 Eu 的第一激发态的寿命约为 5 ns,两束光较大的延迟可以使双光子效应降至可忽略水平,而单束光由于功率密度的增加产生的双光子效应不足以影响激光感生碰撞能量转移的谱,例如图 3 曲线 a 中单束光在 459.75 nm 处有一较小谱,但不影响本文实验现象的观察)。

结论 观察到 Eu-Sr 系统荧光波长为 458.42 nm、转移激光峰值波长为 459.75 nm、准稳态翼为紫翼的激光感生碰撞能量转移现象,紫翼下降缓慢,红翼下降较快。实验结果表明弱场下准稳态翼为失谐参量 Δ 复杂幂函数,非准稳态翼是失谐参量 Δ 快速下降函数^[6-8],证实了激光感生碰撞能量转移谱是不对称谱。

参 考 文 献

- [1] Guddenk L I, Yakovlenko S I. Radiative collision. *Sov. Phys.-JETP*, 1972, **35**(4): 877~811
- [2] Bambini A, Berman P R. Laser-induced collisional energy transfer. *Phys. Rep (Netherlands)*, 1994, **238**(5): 245~339
- [3] Brechignac C, Cahuzac P. High resolution studies on LICET profiles. *Phys. Rev. (A)*, 1980, **21**(6): 1969~1974
- [4] Matera M, Mazzoni M. LICET experimental study of spectral profiles. *Phys. Rev. (A)*, 1990, **41**(7): 3766~3769
- [5] Dorsch F, Geltman S. LICET in the thermal collisions of

- Sr and Li. *Phys. Rev. (A)*, 1988, **37**(7) 2441~2447
- [6] Bambini A, Berman P R. Quasistatic wing behavior of collisional-radiative line profiles. *Phys. Rev. (A)*, 1987, **36**(9) 3753~3757
- [7] Matera M, Mazzoni M. Far-wing study of laser-induced collisional energy transfer. *Phys. Rev. (A)*, 1987, **36**(3) 1471~1473
- [8] Agresti A, Berman P R. Analysis of far-wing behavior in the spectrum of LICET process. *Phys. Rev. (A)*, 1988, **38**(5) 2259~2273
- [9] 陈德应, 王 骐, 马祖光. Eu-Sr 中激光感生碰撞能量转移的数值计算. *中国科学*, 1997, **A27**(5) 449
- [10] 陈德应, 王 骐, 马祖光. 激光感生碰撞能量转移的四能级理论模型. *光学学报*, 1996, **16**(11) 1563~1569
- [11] Green W R, Lukasik J. Measurement of large cross sections for Laser-induced collisions. *Phys. Rev. Lett.*, 1979, **42**(15) 970~973

Experiments of Laser Induced Collision Energy Transfer

Zheng Ruihua Cheng Deying Lu Zhiwei Zhao Xiaoyan Ma Zuguang
 (*Institute of Opto-Electronics, National Key Laboratory of Tunable Laser Technology, Harbin institute of technology, Harbin 150001*)
 (Received 24 December 1999 ; revised 5 June 2000)

Abstract : Laser induced collision energy transfer (LICET) for transition from $\text{Eu}(6s6p) \text{ }^8P_{9/2}$ to $\text{Sr}(5s10s) \text{ }^1S_0$ is observed at fluorescence 458.42 nm and with the peak transfer wavelength of 459.75 nm. The quasi-static wing of LICET is observed and the dependence of the excitation function spectral on the temperature and the intensity of transfer laser is investigated. The experimental cross sections of LICEF is measured and the asymmetrical spectral line of LICET is confirmed.

Key words : collision energy transfer ; dipole-dipole interaction ; collision cross section