

原子分子蒸气中的光学抽运及受激辐射的获得

王祖康

(华东师范大学物理系)

原子分子蒸气中的光学抽运是原子分子物理学和激光发展中的一个重要研究方向。约十年来,国际上在这方面开展了大量的工作。当前,这方面的工作在继续深入,新的机制和新的结果不断出现。

光学抽运原子或分子是一种简单而有效地进行相干光频率转换的手段。它可将单线抽运激光辐射转换为在其它光谱区域内多线或步进可调及连续可调的辐射。这样的抽运和辐射对原子分子光谱学和动力学的研究是很合适的。与荧光光谱相比,这样的辐射光谱更为简单,以致能较好地标识分子跃迁和更精确地确定原子分子常数、弛豫速率、截面及跃迁矩等数据。此外,测量工作以及波长标准都需要有各波段的激光发射线。正由于光学抽运系统具有运转容易、工作物质便宜、转换效率高等优点,它将在光谱学及其它方面获得更广泛的应用。

由于分子存在有效的激光循环,分子激光能在许多谱线上实现振荡,并可在一定程度上调谐以及可覆盖较宽的光谱范围,因而光学抽运分子是一项极有意义的工作。我们可基于分子的电子跃迁,获得可见、近红外区的受激发射输出;可基于振动-转动跃迁,获得中红外区的输出;可基于纯转动跃迁,而获得远红外区的输出。光学抽运技术已成功地用于实现多种分子的振动-转动或纯转动跃迁的激光输出。在大多数情况下,是由一氧化碳和二氧化碳等激光激发这些分子,从而导致在红外和远红外光谱区的脉冲或连续激光振荡。分子产生电子跃迁的光学抽运在1976年后才较多地发展起来,大部分的研究是在同核双原子分子(二聚体)中实现的。已在 I_2 , S_2 , Na_2 , Te_2 , Br_2 , Li_2 , Bi_2 , K_2 和 Se_2 等二聚体中实现了光抽运激光输出。

有脉冲的,也有连续的;有加腔形成激光振荡的,也有不加腔而直接得到受激发射输出的。

一种最简单的二聚体激光器装置如图1所示。

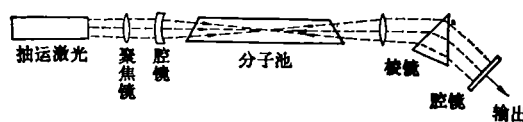


图1 二聚体激光器装置示意图

分子池由密封的玻璃或石英制成,也可以是热管。布儒斯特棱镜可使激光在分子的个别谱线上振荡。图2(a)表示钠二聚体激光中束缚态之间的一种典型的激发和发射过程。频率

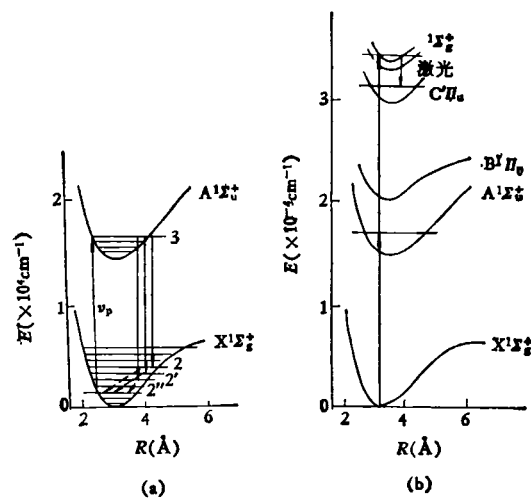


图2

- (a) 二聚体激光的抽运和发射图;
- (b) 双光子抽运钠分子红外激光的产生

为 ν_p 的抽运激光将处于电子基态 $X'Σ_g^+$ 的振-转能级1的分子激发到电子态 $A'Σ_g^+$ 的振-转能级3上。在恰当的条件下,能在能级3与2, 2', 2''...之间形成粒子数反转。因而可获得属于同一荧光系列的许多谱线的激光振荡。最后

由碰撞弛豫过程完成激光循环。上述二聚体激光的最主要的特征是：(1)在一定波段范围内多线辐射；(2)由于强跃迁矩和激光下能级粒子数很少而具有高增益和低阈值；(3)为获得高功率输出，必须使激光器的一系列参数最佳化，特别是蒸气柱长度、温度、缓冲气压、会聚系统和腔镜参数等；(4)它是一种具有耦合多普勒加宽跃迁的三能级激光系统。

钠二聚体有较丰富的光谱资料，具有高增益和容易制备等优点，因而引起了物理学工作者的兴趣。对它的典型分析，将对进一步开展分子的光学抽运和分子激光的获得提供线索。

(1) 1976年，Hencian, Herbst 和 Byer^[5] 首先用工作在 $0.964\mu\text{m}$ 和 $1.32\mu\text{m}$ 的 Q 开关 YAG 激光倍频输出分别抽运钠分子的 $B^1\Pi_u$ 态和 $A^1\Sigma_u^+$ 态，获得了由 $B^1\Pi_u$ 态到 $X^1\Sigma_g^+$ 态的十余条受激辐射线和由 $A^1\Sigma_u^+$ 态到 $X^1\Sigma_g^+$ 态的近二十条受激辐射线，其波长范围为 $0.54\text{—}0.81\mu\text{m}$ 。当极大抽运能量为 $225\mu\text{J}$ 时，转换为前一组辐射线的能量转换效率为 0.067% 。(2) 1976年，Itoh, Uchiki 和 Matsuoka^[6] 用 6000Å 左右的脉冲染料激光抽运钠分子的 $A^1\Sigma_u^+$ 态，获得了由 $A^1\Sigma_u^+$ 态到 $X^1\Sigma_g^+$ 态的数十条近红外受激辐射线，它们位于 $0.79\text{—}0.81\mu\text{m}$ 波段范围内。当抽运激光的峰功率约 300kW 时，所有受激辐射线的总功率约 10W 。(3) 1977年，Weilegchausen, Shahdin, Friede 和 Welling^[3] 用 $454\text{—}488\text{nm}$ 区的氩激光抽运钠分子的 $B^1\Pi_u$ 态，首先实现了连续激光振荡，获得了对应于 $B^1\Pi_u$ 态到 $X^1\Sigma_g^+$ 态的在 $525\text{—}560\text{nm}$ 区的二十余条激光线。抽运功率阈值约低于 1mW 。抽运功率如为瓦级，则输出激光功率可达毫瓦级。(4) 1980年，Kantoriskii, Kaslin 和 Yakushev^[4] 用 578.2nm 的脉冲铜蒸气激光抽运钠分子的 $A^1\Sigma_u^+$ 态，获得了 $A^1\Sigma_u^+$ 态到 $X^1\Sigma_g^+$ 态跃迁的近三十条激光线，其波长位于 $0.765\text{到}0.804\mu\text{m}$ 之间。当脉冲抽运功率为 150W 时，所有辐射线的平均功率为 10mW 。上述几项工作均是将分子由基态 $X^1\Sigma_g^+$ 抽运到较低电子态 $A^1\Sigma_u^+$ 或 $B^1\Pi_u$ ，然后在 $A^1\Sigma_u^+$ 或 $B^1\Pi_u$ 态与基电子态 $X^1\Sigma_g^+$ 之间形成

粒子数反转而产生激光。(5) 1981年，Müller 和 Hertel^[5] 用 $585\text{到}610\text{nm}$ 的脉冲染料激光抽运钠分子，获得 $3\text{—}5\mu\text{m}$ 的红外激光。由钠分子能级图可知，这不可能是由 $A^1\Sigma_u^+$ 态或 $B^1\Pi_u$ 态到 $X^1\Sigma_g^+$ 态的跃迁。经过对辐射谱线的标识，确认这是由双光子抽运钠分子，从而在高位电子态之间形成粒子数反转得到的激光输出。图 2(b) 是表示抽运和发射机制的能级图。通过 $A^1\Sigma_u^+$ 态的近共振中间能级，双光子将钠分子激发到高位 $^1\Sigma_g^+$ 态，而激光的下能级是 $C^1\Pi_u$ 态的一些振动-转动能级。(6) 1983年，作者王应哲和 Schawlow^[6] 用 YAG 激光的三次谐波输出光泵钠分子。当抽运波长调谐为 3547.19Å 时，通过对紫外荧光光谱分析，确定该抽运跃迁为 $X^1\Sigma_g^+ \rightarrow C^1\Pi_u$ ，再通过位于 $0.91\mu\text{m}$ 附近的十余条受激辐射线以及 $0.69\mu\text{m}$ 附近的十余条相干发射线的分析，发现主要的受激辐射过程是从 $C^1\Pi_u$ 态到一高位 $^1\Sigma_g^+$ 态，然后受激跃迁到 $A^1\Sigma_u^+$ 态，接着又形成对应于 $A^1\Sigma_u^+$ 到 $X^1\Sigma_g^+$ 态的相干发射。当抽运波长调谐到 3547.06Å 时，另外十余条位于 $1.03\mu\text{m}$ 附近的受激辐射线强度为极大。(7) 最近，我们通过氟分子激光抽运钠分子，获得了在 $2.5\mu\text{m}$ 和 $0.9\mu\text{m}$ 附近的三十余条受激辐射线，并已对大部分辐射线进行了标识^[7]。

由以上分析可看到：用不同的光泵机制(不同的光泵方式和波长)抽运分子蒸气，可由不同的发射机制(如低态之间跃迁、高态之间跃迁、串级跃迁等)获得位于不同波长区的一系列脉冲或连续的激光输出，同时给出了有关分子光谱和动力学方面有价值的信息。

对原子蒸气的光学抽运，可通过多种激发和发射机制获得从紫外到红外区的固定波长或在一定范围内可调谐的受激辐射。其中喇曼激光是重要的一类。有关铯和钾的工作是很典型的，其主要的光泵和发射机制如下：(1) Sorokin, Cotter, Kung 和林远齐等人^[8-11]的工作表明，当单光子抽运基态原子到偶极跃迁允许的 P 能级(如铯中的 $7p, 8p, 9p, 10p$) 附近，并在一定波长范围内调谐时，能获得近红外和中红

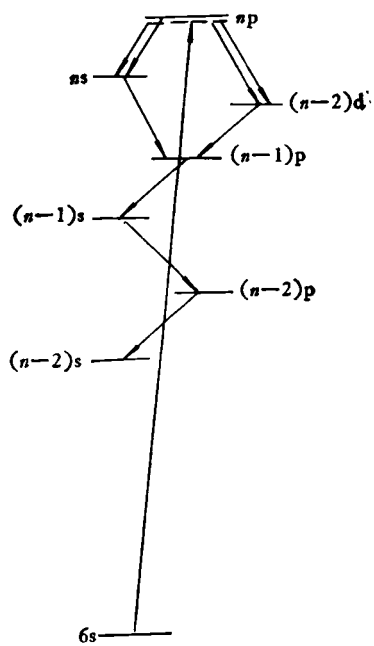


图3 铯中光泵和受激发射示意图

外区的连续可调谐受激辐射，它们对应于 $6s-np-ns$ 和 $6s-np-(n-2)d$ 的受激电子喇曼散射。除此之外，还获得对应于 $np \rightarrow ns$, $np \rightarrow (n-2)d$, $ns \rightarrow (n-1)p$ 等过程的固定波长受激辐射，其光泵和发射过程如图3所示；(2) Vrehan 和 Hikspoors^[12] 以双光子方式抽运铯到 $7s$ 能级附近时，获得了对应于 $6s-7s-6P_{3/2}$ 的 $1.42\mu\text{m}$ 受激辐射；(3) 1983年，杨、林、秦^[13] 用氮分子抽运的染料激光单光子将铯抽运到偶极跃迁禁戒的 $5d$ 附近，获得了对应于 $6s-5d-6P$ 的在 3.49 和 $3.01\mu\text{m}$ 附近调谐的红外受激发射输出；(4) 1983年，王、秦、林等^[14] 以双光子抽运的方式将铯激发到 $9D$, $11D$ 和 $13D$ 能级附近时，获得了继受激超喇曼散射后的波长为 2.424 , 2.335 和 $2.932\mu\text{m}$ (分别对应于 $7D_{3/2} \rightarrow 7P_{3/2}$, $7D_{3/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ 和 $7P_{3/2} \rightarrow 7s$) 的串级受激辐射线；(5) 1983年，作者与王、张、Schawlow 合作^[15,16]，用 YAG 抽运的染料激光分别抽运纯钾以及钾-钠混合物。当双光子抽运频率分别达钾的 $7s$, $8s$, $9s$, $5d$, $6d$ 和 $7d$ 六个能级附近时，获得了位于 303 到 348nm 区内的数十条紫外相干发射线。这些发射线大部分是继受激电子超喇曼散射和双光子光泵受激发射后由混频过

物理

程产生的。原子金属蒸气中喇曼激光的另一光泵和发射机制是由 Nikolaus, Zhang 和 Toschek 于 1981 年提出的^[17] (如图4所示)。当用两

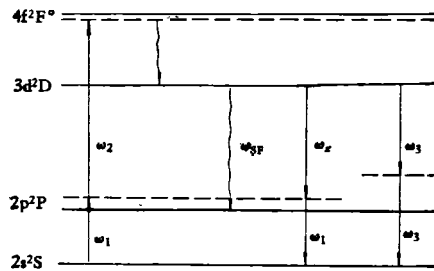


图4 产生超荧光、简并和非简并受激双光子发射的锂能级示意图

束氮分子激光抽运的染料激光(输出频率为 ω_1 和 ω_2) 双光子激发锂蒸气，使之与 $4f$ 能级接近共振或共振时，主要以共振四极喇曼斯托克斯过程使 $3d$ 能级获得相当多的粒子数，可形成 $S-D$ 共振双光子跃迁的瞬态粒子数反转。 $3d$ 能级的粒子，产生了到 $2p$ 能级的频率为 ω_{4f} 的超荧光和频率为 ω_x 和 ω_1 的非简并双光子激光发射 [$\omega_1 + \omega_x = \omega(2s-3d)$]。而当频率 $\omega_3 = \frac{1}{2} \omega(2s-3d)$ 的第三个脉冲激光注入样品时，又可获得频率为 ω_3 的简并双光子激光放大。除了上述基于原子蒸气的各种斯托克斯喇曼效应获得受激辐射外，还可基于反斯托克斯喇曼散射效应获得受激辐射。用原子亚稳态和基态间的反斯托克斯喇曼散射可得到相当强的紫外受激辐射。

近年来，发展了自电离-抽运激光、光离解激光的机制，并注意到原子共振线粒子数反转和相应的激光输出，高强度脉冲共振线源有重要的潜在应用，如用于化学和大气中有关杂质的探测和遥测。1982年，White, Bokor 和 Henderson^[18] 用 YAG 激光的四次谐波 (266nm , 40mJ , 4ns) 抽运 T_m ，实现如图5所示的跃迁(1)后，产生许多与串级跃迁相应的超荧光。如再吸收一个 266nm 的光子，则 $4f^1s^6s7p$ 态产生光电离。基态 T_m 离子受抽运实现跃迁(3)而到达自电离态，于是可由激发的离子而产生串

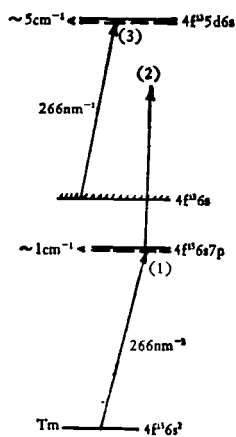


图5 Tm 原子的光泵激发和电离、自电离

级超荧光发射。实验中共记录到 300—900nm 范围内的 87 条激光线，其中 15 条是由于对中性原子和单次离化原子的基态粒子数反转而引起的。

光学抽运分子使之离解可导致激发原子的

形成，从而产生原子光离解激光。目前已获得了 In, Se, Li, Na, K, Rb, Cs, Tl, Tm 等原子光离解激光。紫外激光器的发展为产生原子光离解激光提供了有力工具。当碱金属卤化物吸收紫外辐射，使激发的分子离解为碱金属原子的特定原子态和卤素原子，如： $\text{NaI} + h\nu \rightarrow \text{Na}^*(3p^2) + \text{I}(5p^5 \ ^2P_{3/2}) + \Delta W$ 。例如，Ehrlich 和 Osgood^[19] 用 1—10mJ、25ns 的 ArF (193nm) 或 KrF (249nm) 激光抽运碱金属卤化物，得到 Na, K, Rb, Cs 的对应于高位能级的受激辐射以及共振线激光发射。

最近，我们以分子-原子双光子混合共振抽运机制，获得了对应于钾原子 $6s \rightarrow 5p$, $5p \rightarrow 5s$, $5p \rightarrow 3d$ 的红外受激辐射^[20]。

原子分子的光学抽运及受激辐射机制的研究还在不断发展。作为本文的结束，将文中涉及的各种机制归纳在表 1。

表 1

光学抽运方式	工作物质	受激跃迁方式	输出波段
单光子抽运分子低电子激发态	金属分子蒸气	由分子低电子态到基态受激跃迁	可见、近红外
双光子抽运分子高位偶电子激发态	同上	分子高位电子激发态之间的受激跃迁	近红外
单光子抽运分子高位奇电子激发态	同上	分子串级受激发射	可见、近红外
单光子抽运分子多个高位奇电子激发态	同上	分子高位电子激发态之间的受激跃迁	近红外
单光子抽运到原子 P 能级附近	金属原子蒸气	可调谐受激电子喇曼散射及固定波长受激发射	近红外、中红外
单光子抽运到原子 D 能级附近	同上	可调谐受激电子喇曼散射	近红外
双光子抽运到高 D 或 S 能级附近	同上	继受激超喇曼散射后的固定波长受激发射及由混频产生的紫外相干发射	紫外、近红外
双光子共振抽运并注入第三个频率	同上	简并和非简并的双光子激光跃迁	可见
紫外激光抽运分子离解并以可见激光抽运原子	金属蒸气	可调谐受激反斯托克斯喇曼散射	紫外
紫外激光抽运到原子自电离态	金属原子蒸气	自电离-抽运激光跃迁(包括对基态的激光跃迁)	紫外、可见、近红外
紫外激光抽运分子离解	碱金属卤化物	光离解激光跃迁(包括共振线激光跃迁)	可见、红外
双光子混合共振抽运分子-原子	金属蒸气	原子受激发射及串级受激发射	红外

(下转第 164 页)