

原子-分子混合激发及所产生的受激和相干辐射

王 祖 赓

(华东师范大学物理系, 上海 200062)

用适当波长的激光混合激发原子-分子样品, 和通过原子-分子碰撞能量转移, 可产生从紫外到红外宽波段范围内的受激和相干辐射, 其中包括固定波长辐射、可调谐辐射以及宽带辐射。这是一个物理涵义极为丰富并具有应用前景的研究领域。

关键词 混合激发, 碰撞能量转移, 受激辐射, 相干辐射

Abstract

By means of hybrid excitation of atom-molecule samples and collision energy transfer between the atoms and molecules, stimulated and coherent radiation from UV to IR can be generated. This includes radiation of fixed wavelengths, tunable radiation and wide band radiation. The topic is an attractive field with rich physical meaning and application potential.

Key words hybrid excitation, collision energy transfer, stimulated radiation, coherent radiation

一、一个物理内涵极为丰富和具有应用前景的研究领域

众所周知, 如何在各波段内有效地产生激光是人们长期以来探索的重要课题。在激光产生过程中, 首先需要用电学、光学、化学等方式来激励适当的激光工作物质, 以形成工作物质适当能态之间的粒子数反转。在多种激励方式中, 光学激发是产生受激辐射和形成激光的一种重要的方式, 而由光学混频产生相干辐射则直接需要由光学激发。此外, 除了产生受激和相干辐射外, 激光与工作物质的相互作用, 还会提供有关工作物质的大量的有价值的信息。因此, 众多的工作物质, 多样的光学激发方式以及由此而产生的各波段内的受激和相干辐射, 构成了一个物理内涵极为丰富、并有着应用意义的研究领域。

通常, 对于自由原子、分子来说, 光学激发

都是对单纯的分子或原子进行的, 也就是说, 分子(或原子)被光学激发后, 使分子(或原子)的某些(或某个)激发态获得足够的布居, 从而形成分子(或原子)特定能态之间的粒子数反转。然而, 在分子-原子混合样品中, 我们可以运用光学混合激发和碰撞能量转移过程, 产生来自于分子或原子的受激辐射。在这类激发方式和过程中, 可以用一束激光激发分子, 并通过处于激发态的分子与基态原子相碰撞, 将能量转移给原子, 而第二束激光(或同一束激光中的另一个光子)共振激发原子到更高位的激发态, 从而产生来自原子的受激辐射; 也可以是一束激光先激发原子, 而后通过原子-分子碰撞能量转移过程, 使分子处于低激发态, 而第二个光子又将分子激发到更高位的激发态, 从而产生分子受激带辐射; 还可以是用激光先激发分子, 通过第一次分子-原子碰撞及第二次激发, 使原子高位态获得布居, 然后通过第二次碰撞过程, 使分子高位态获得布居而产生分子受激带辐射。

设计和发现多样化的光学混合激发及碰撞能量转移过程,可得到了多波段的受激和相干辐射以及激光与物质相互作用的信息,构成了一幅多姿多采的画面^[1]。

二、分子-原子系统中的混合激发——原子受激辐射的产生

在这里,我们用碱金属分子-原子(例如 K_2-K)作为典型的工作物质系统。这种混合样品很容易制备,只需将一定重量的纯碱金属放入一金属样品管(例如不锈钢管)中加热,即可产生分子-原子混合气体。加热温度越高,样品密度也越高,且分子对原子的密度比也随之增高,例如将金属钠加热到 400°C 时,钠原子蒸气的密度约为 $10^{16}/\text{cm}^3$,钠分子的密度约为 $10^{14}/\text{cm}^3$,钠分子与钠原子的密度比例约为 1:100。

1. 等频混合共振激发

图 1 示出了 K_2-K 系统的部分能态及有关的激发和受激发射。输出波长为 691.1 或 693.9nm 的脉冲激光经透镜聚焦到装有人射和出射窗片的样品管中心时,可测得从样品管前向出射的波长为 3.66, 3.64, 3.14, 3.16 和 2.71 μm 的受激辐射。激光波长对应于 $K(4P_{1/2}) \rightarrow K(6S)$ 和 $K(4P_{3/2}) \rightarrow K(6S)$ 跃迁,而发射则分别对应于 $K(6S) \rightarrow K(5P)$, $K(5P) \rightarrow K(3D)$ 和 $K(5P) \rightarrow K(5S)$ 跃迁。在通常情况下,钾原子的激发态 4P 几乎是没有任何粒子布居的,那么现在如何会有相当的布居、并且经上述激发后产生一系列的受激发射呢?原来是激光输出波长正处于钾分子的吸收波段范围内, K_2-K 混合样品经激光激发时,钾分子首先从基态 X 跃迁到激发态 A(或 B),而后通过样品管内钾分子与钾原子的碰撞,将钾分子得到的这一份能量转移给钾原子,从而使钾原子布居到 $4P_{1/2}$ 和 $4P_{3/2}$ 能态上。应当特别注意的是,该过程是一个近共振碰撞能量转移过程,因此有较高的能量转移效率。这一点也不难理解,因为分子各个能态有众多的振转能级,因而即使分子激发能比起钾原子所接受的这份能量 ($4P \rightarrow 4S$)

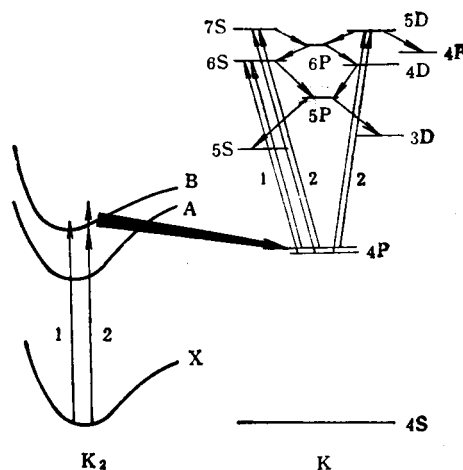


图 1 K_2-K 系统中混合共振及产生的受激辐射

有过剩,但当分子碰撞后返回到 X 态时,却可到达比分子起始跃迁的振转能级要高的振转能级。因此,在碰撞能量转移过程的前后能量几乎是平衡的。由此可推想,混合激发中对分子的激发波长,并没有太苛刻的要求,只要在分子的吸收波段内即可,这一点连同碰撞能量转移的有效性,就构成了各种混合激发的共同的物理基础。有关 K_2-K , Na_2-Na 等碰撞能量转移已由荧光光谱实验得到证实^[2,3]。

当分子被激光激发到 A(或 B) 态并经过上述碰撞过程后,钾原子获得能量并布居到 4P 态,再经过第二个光子激发而布居到 6S 态,从而形成 6S 态对 5P 态的粒子数反转并产生受激辐射,而接着 5P 态对 5S 和 3D 态的粒子数反转又产生了相应的串级受激辐射。现在,可将上述等频混合激发及受激发射表达为^[4]

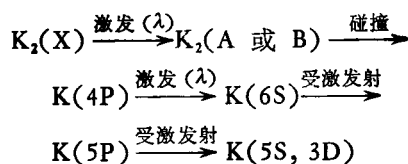


图 1 中用 1 来表示该混合激发跃迁。

以上激发和发射机制在钠分子-原子系统中也得到了证实,并获得了连续波激光振荡^[5]。

2. 不等频混合共振激发

既然混合激发的第一步只要使分子到达一定的激发态,那么我们完全可以用分子吸收带

内的任何波长的激光去激发分子，而用另一束适当波长的激光去共振激发原子。这就是所谓不等频混合共振激发。图1中标记2所指示的就是这种混合激发。实验上可用氮分子激光(或YAG激光)泵浦的两台染料激光器的输出，经共线会聚后激发分子-原子混合样品。如图1所示，第一束激光可调谐到625—695nm区内的任一波长，K₂经激发后到达B态，经分子-原子碰撞能量转移后，钾原子的4P态获得了相当的布居；第二束激光调谐到对应于4P_{1/2,3/2} → 钾原子高位态(如7S, 5D)跃迁的波长。于是就可测得起始于7S或5D能态的受激辐射及相应的串级受激辐射^[6]。不等频混合共振激发的机制在Na₂-Na系统中也已得到证实，这时，第一步激发钠分子的激光波长可用447—680nm区内的任一波长，它对应于钠分子从基态X到激发态A或B的跃迁^[7]。

3. 混合离共振激发

通常，原子中的由离共振激发而产生的拉曼散射都起始于基态。在分子和原子混合系统中，通过首先激发分子和碰撞能量转移，原子的激发态得到布居，于是由离共振激发而引起的拉曼散射就从该激发态起始。例如，在Na₂-Na系统中，就从钠原子的3P_{1/2}和3P_{3/2}能态起始。这时，对应于一个激发波长，会产生三个受激辐射成分，其中两个是受激拉曼散射，另一个为离共振激发所感应的光泵受激辐射，如图2右上部所示。当适当调谐激发波长时，显然前两个成分跟随调谐，而第三个成分则是以固定频率辐射(在现在的例子中，对应于5S → 4P

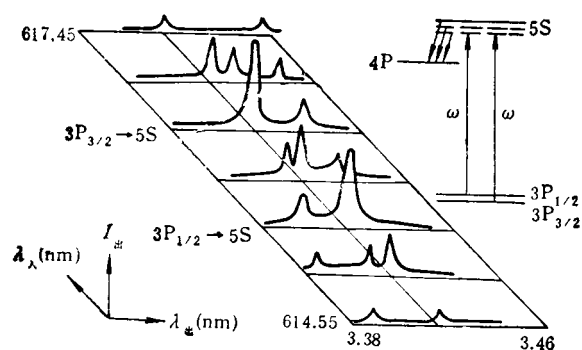


图2 由混合离共振激发产生的红外可调谐受激辐射

物理

跃迁)。在我们的实验中，当激发光在614.55—617.45 nm区内调谐时，可测得如图2所示的在3.46—3.38 μm区内跟随调谐的红外受激辐射^[8]。当然，在3P_{1/2} → 5S或3P_{3/2} → 5S共振跃迁时，各有一个受激拉曼成分与光泵受激辐射成分重合，因而只有两个信号成分；而当离共振量逐步增大时，有一个受激拉曼成分将首先消失，这些从图2中都可看出。

三、分子-原子系统中的混合共振四波混频——可调谐紫外相干辐射的产生

1. 等频混合共振四波混频

四波混频是产生新波段相干辐射的一个重要手段。图3(a)所示的是在纯原子系统中典型的双光子共振四波混频方式，所产生的紫外频率 $\omega = 2\omega_1 - \omega_2$ ，这里 ω_1 为激发频率， ω_2 为钠原子5S → 4P跃迁的受激辐射频率。钠原子的3P能级虽然在四波混频过程中起了增强作用，但它并没有被激发光共振激发。但在Na₂-Na混合系统中，由于分子有大量的振转能级，例如图3(b)所示的3P → 5S跃迁频率，同样可被钠分子共振吸收(图中的标记X和A代表钠分子X和A态的某振转能级)。于是就可产生如图4所示的等频混合共振四波混频，它与原子中的双光子共振四波混频在机制上有重要的差别^[9]。图3(b)仅画出了简化的示意图，实际上，如前所述，3P态有两个子能级，而参与混频的红外受激辐射通常也有三个，

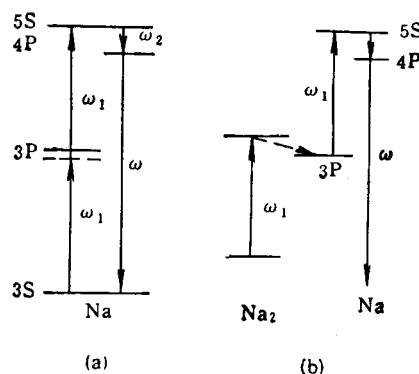


图3 原子中共振四波混频与分子-原子系统中混合四波混频机制对比

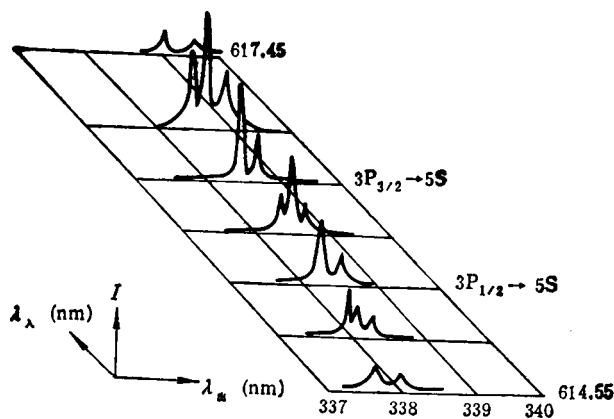


图4 由等频混合共振四波混频产生可调谐紫外相干辐射

于是通过这种特殊混频过程所产生的紫外相干辐射成分也就有三个。图4示出了激发波长在614.55—617.45 nm区内调谐时所产生的在337.64—339.43nm范围内可调谐的紫外相干辐射。

2. 不等频混合四波混频

上述等频混合四波混频所产生的紫外相干辐射的可调谐范围不可能很宽，这是因为激发光对原子共振跃迁离共振过大时所产生的红外受激辐射过弱(甚至消失)。为此，我们完全可以设想，如果将一束激发光的波长调谐到以3P能态起始的共振跃迁波长，而以另一束激发光在分子的广阔吸收波段范围内调谐，也即两束激发光始终分别与原子和分子共振，那么通过这种不等频混合四波混频就有可能产生在宽波段范围内调谐的紫外相干辐射。这种设想已在实验中得到证实^[10]。当第一束激光波长固定于钠原子的 $3P_{1/2} \rightarrow 4D$ 跃迁波长，而第二束激光在钠分子的X态到A态和B态的吸收范围内扫描时(550—670nm)，由这种分子-原子混合系统中的不等频混合共振四波混频，产生了在319—354nm宽范围内的可调谐的紫外相干辐射。

四、由原子的激发和混合激发产生分子受激宽带辐射

由分子的高位三重束缚态向低位三重排斥

态的受激跃迁而产生的分子受激宽带(扩散带)辐射，是一个重要的研究课题，这不仅涉及激光与分子和原子相互作用以及激光光谱学的基本问题，而且这种宽带辐射有可能发展成在一定波段范围内的可调谐激光。除了通过单光子或双光子激发分子而产生分子受激扩散带辐射的途径外，下面列出多种通过分子-原子碰撞产生能量转移的过程。

1. 单光子激发原子

如图5中标记1所示，在 Na_2-Na 混合气体中，激光单光子共振激发钠原子使它布居到3P态，通过碰撞能量转移，将激发能转移给钠分子，并使它布居到单重A态和三重b态，这时

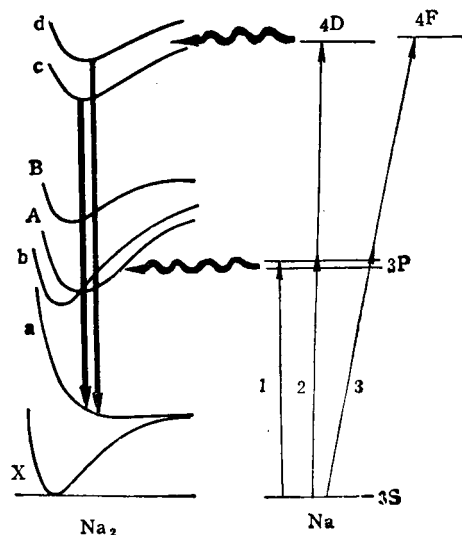


图5 由激发原子产生分子的受激扩散带辐射

又经过一次碰撞并又获得一份原子的 3P 激发能,从而使分子的高位三重态 c 和 d 获得布居而形成三重态 c 和 d 对基三重排斥态 a 之间的粒子数反转,并产生如图 6 所示的受激扩散带辐射^[11]。可以看出,这是一种宽带的准连续的受激辐射。

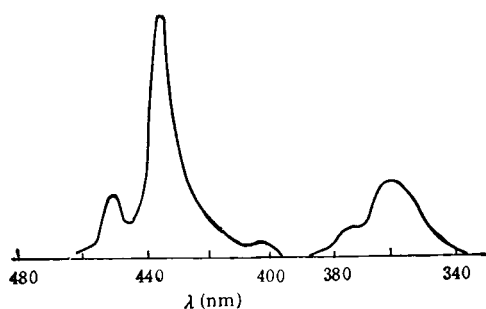


图 6 钠分子的受激扩散带辐射

2. 偶极许可的双光子激发原子

如图 5 中标记 2 所示,钠原子可被偶极许可的双光子共振激发而跃迁到 4D 态,通过原子-分子碰撞能量转移,而将这份激发能转移给钠分子,从而使分子的高位三重态 c 和 d 获得布居,并同样产生如图 6 所示的受激扩散带辐射。

3. 偶极禁戒的双光子激发原子

如果将激光调谐到 3S → 4F 态的双光子跃迁波长(如图 5 中的标记 3),虽然这不符合偶极许可的双光子跃迁的选择定则,但由于高强度的激光激发,通过双光子偶极→四极跃迁,仍可使钠原子的 4F 态获得一定的布居,经原子-分子碰撞能量转移,分子三重态 c 和 d 也会获得一定的布居,从而产生如图 6 所示的受激扩散带辐射,只是辐射的强度仅为偶极许可双光子激发原子情况时的五分之一。

4. 混合激发分子-原子系统

这是一种更为复杂的激发和碰撞能量转移过程。现以如图 7 所示的 K₂-K 系统为例。首先,分子被激光激发跃迁到 B 态,由分子-原子碰撞能量转移而使钾原子的 4P 态获得布居,接着激光又将原子由 4P 态激发到 6S 或 4D 态,并由第二次的分子-原子碰撞过程使分子的 G

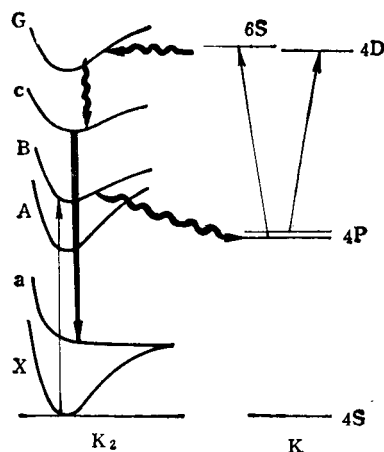
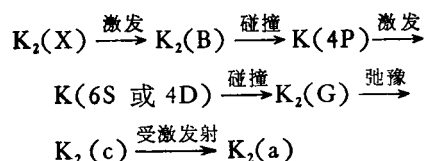


图 7 由混合激发产生分子扩散带受激辐射

态获得布居,而再通过弛豫过程使钾分子的高位三重态 c 得到布居,进而产生由三重态 c 到基三重态 a 的受激辐射^[12]。以该辐射为中心,在 572nm、约宽 25nm 的受激扩散带辐射。我们可将上述过程综合表达为



以上以 Na₂-Na 和 K₂-K 系统为例,列举了若干产生分子受激扩散带辐射的几个包含有分子-原子碰撞能量转移过程的激发方式。在 Li₂-Li 混合系统中,类似的过程和方式同样可使用,并可产生位于其他波段的受激扩散带辐射。

由前面简单的阐述和例举,我们清楚地看到,只要恰当而巧妙地利用分子具有密集振转能级的性质,运用混合系统中分子-原子的碰撞能量转移过程,设计多种光学激发方式,可以获得位于多波段内的受激和相干辐射。这些辐射包括固定波长的受激辐射、可调谐的受激和相干辐射以及宽带受激辐射。显然,这里不仅涉及到分子原子光谱和动力学以及激光光谱学的问题,而且还涉及到激光的产生以及非线性光学的问题。研究工作不仅提供了有关这些分支

学科的大量新信息,而且为开拓各波段内新的激光和相干辐射源提供了重要线索。

- [1] Z. G. Wang, H. R. Xia, *Molecular and Laser Spectroscopy*, Springer, Berlin, Heidelberg, (1991), Chap. 6.
- [2] E. K. Kraulinia, E. K. Kopeikina, M. L. Janson, *Chem. Phys. Lett.*, **39**(1976), 565.
- [3] V. B. Grushevskii, *Opt. Spectrosc.*, **42**(1977), 572.
- [4] Z. G. Wang et al., *Opt. Commun.*, **51** (1984), 155.
- [5] D. Krökel et al., *Appl. Phys.*, **B37**(1985),137.
- [6] Z. G. Wang, L. J. Qin, K. C. Zhang, *Appl. Phys.*, **B41**(1986), 125.
- [7] L. J. Qin et al., *Chinese Physics*, **6**(1986),986.
- [8] 唐小玲等,物理学报, **37**(1988),1227.
- [9] 王祖贻等,中国科学 (A), **30**(1987), 1045.
- [10] S. L. Deng et al., *SPIE*, **1726**(1992),264.
- [11] Z.G. Wang et al., *Opt. Commun.*, **58**(1986),313.
- [12] H. Y. Jin et al., *SPIE*, **1726**(1992), 274.

亚皮秒光整流效应

马新发 张希成

(美国 Rensselaer 综合技术学院物理系)

介绍了亚皮秒光整流效应的原理及其应用。亚皮秒光整流效应是一种特殊的非线性光学效应,是指利用亚皮秒脉冲激光和非线性介质的相互作用而产生低频电极化场(THz)的过程。这种低频电极化场可以产生超快电磁波辐射。它可以作为一种非接触探测手段来研究非线性材料的电光效应,测量非线性材料的二阶非线性极化张量元之间的比值。

关键词 非线性光学,光整流, THz 辐射

Abstract

Subpicosecond optical rectification is presented as a novel nonlinear optical effect and a powerful THz radiation technique. It can be used as a noncontact method to study electro-optic materials and to characterize electro-optic devices. It can also be employed efficiently to determine the ratios between nonlinear optical coefficients in low symmetry nonlinear optical crystals.

Key words nonlinear optics, optical rectification, THz radiation

利用激光脉冲产生亚毫米电磁波脉冲是近年来十分活跃的研究领域。许多种不同的光子和光电子技术被用来激发自由空间的 核赫兹(10^{12} Hz)宽频带电磁波辐射。常见的光致电磁辐射有两种:光生电流效应和脉冲激光光整流效应^[1]。光生电流效应是指介质中的光生载流子(电子-空穴对)在内部或外加电场下作变速运动而辐射电磁波的过程。光生载流子的激发时间和入射激光脉冲的宽度相同,而其寿命则决定于介质的衰减机制。脉冲激光光整流效应则是一种非线性光学效应,是指利用脉冲激

光和非线性介质的相互作用而产生低频电极化场的过程。这种随时间变化的电极化场辐射电磁波,其辐射电磁波的振幅强度和频率分布决定于脉冲激光的特征和介质的非线性性质。本文将介绍脉冲激光光整流效应的原理及其在电光材料和非线性材料测试方面的应用。

一、光整流效应和亚皮秒光整流效应

我们知道,两个光束在线性介质中可以独立传播,而不改变各自的振荡频率。但是在非