

锶蒸气 M-M 跃迁激光^{*}

姚志欣 潘佰良 陈 钢 方本民 陈 星 陈 坤

(浙江大学物理系 杭州 310027)

(2001 年 1 月 10 日收到)

通过在锶蒸气和氦混合气体中的高重复率脉冲放电,同时获得了锶原子 4 条谱线的激光振荡,它们对应于复合三能级 $4d \cdot ^3D_{3/2}$ 与 $5p \cdot ^3P_{2,1,0}$ 之间的多谱线跃迁,其波长分别为 $2.92\mu\text{m}$ 、 $3.01\mu\text{m}$ 、 $2.69\mu\text{m}$ 和 $2.60\mu\text{m}$ 。除了 $3.01\mu\text{m}$ 激光外,均为首次报道。激光平均功率合计约 10mW,相互之间的强度比为 5:4:4:1。在分析了相关能级特征和实验现象的基础上,对其作用机理进行了初步的探讨,建议将其分类命名为 M-M 跃迁激光。

关键词: 锶蒸气激光, 自终止, M-M 跃迁

PACC: 4255H, 4260H

1 引 言

众所周知,铜蒸气激光器是典型的自终止跃迁 (Self-terminating transition) 激光器件,根本的理由在于它的激光下能级相对于基态是光学跃迁禁戒的亚稳态 (Metastable state),激光本身必将造成粒子数在激光下能级的堆积,粒子数反转被破坏,激光将自动终止。

Walter 等在文献 [1] 中,对自终止跃迁激光系统,除了强调激光下能级相对于基态是光学跃迁禁戒的亚稳态外,同时更强调激光上能级相对于基态是光学跃迁允许的共振态 (Resonance state)。因为在玻恩近似得以成立的放电激励条件下,电子碰撞激发速率与上能级的自发跃迁速率正相关,所以基态原子经由电子直接碰撞激励至共振能级的速率远强于至亚稳能级,以此造成上下能级粒子数反转并实现激光。值得注意的是,激光是否自终止与上能级是否共振态并无必然联系。

我们在文献 [2] 中已经指出,包括铜蒸气激光器在内的脉冲放电激励的多种金属蒸气自终止跃迁激光器件实际情况下,玻恩近似虽然可以使用,但是比较粗糙,激光实际上并不是由于激光作用本身而自动终止的。俄罗斯学者近来的报道中已经少用自终止跃迁激光术语,代之以 R-M 跃迁激光^[3]。我们赞成这种提法,认为较确切地反映了物理实际。

既然自终止跃迁激光并没有要求激光上能级必须是共振态,那么当上能级相对于基态不是共振态,比方说也是亚稳态时,能不能产生激光呢?回答是肯定的。我们的实验结果表明,它可以在下面报道的锶原子能级的 $4d \cdot ^3D_{3/2}$ 组态至 $5p \cdot ^3P_{2,1,0}$ 组态之间的多谱线跃迁中实现。由于锶原子基态是 $5s \cdot ^1S_0$,所以激光上能级 $4d \cdot ^3D_{3/2}$ 组态相对于基态 $5s \cdot ^1S_0$ 是亚稳态;与此同时,激光下能级中的 $5p \cdot ^3P_2$ 和 $5p \cdot ^3P_0$ 相对于基态 $5s \cdot ^1S_0$ 也是亚稳态,惟有 $5p \cdot ^3P_1$ 相对于基态 $5s \cdot ^1S_0$ 虽然不是严格意义上的光学禁戒跃迁,但因为涉及多重态的改变,它的自发跃迁寿命长达 $15\mu\text{s}$ ^[4],可以认为是准亚稳态。因此我们建议将这种类型激光统称作 M-M 跃迁激光,它与 R-M 跃迁激光的差异表现在前一个字母上,即激光上能级相对于基态是亚稳的 M 态或是共振的 R 态;而后一个字母相同,即激光下能级相对于基态都是 M 态或准 M 态。

最早在 1971 年,Cahuzac 就曾在脉冲放电实验中观察到 $4d \cdot ^3D_2 \rightarrow 5p \cdot ^3P_2$ 跃迁、波长 $3.01\mu\text{m}$ 和 $4d \cdot ^3D_1 \rightarrow 5p \cdot ^3P_2$ 跃迁、波长 $3.06\mu\text{m}$ 的激光脉冲^[5]。1979 年 Bokhan 等还曾撰文深入探讨过这 2 条激光谱线的作用机制,他们当时着重的是激光下能级 $5p \cdot ^3P_2$ 的排空过程,而对于激光上能级 $4d \cdot ^3D_2$ 和 $4d \cdot ^3D_1$ 的布居过程,他们认为还不清楚^[6]。1978 年 Platonov 等曾有过与我们现在实验条件相似的报道,在高重复率脉冲放电锶蒸气激光实验中同时获得多组

* 国家自然科学基金(批准号:19974037, 69778009)资助的课题。

激光振荡,用滤波片方法确认 $\sim 3\mu\text{m}$ 的激光在 1.2W 总功率中份额约占 20%,可惜的是他们没有进行光谱分析,而是简单地认同了 Cahuzac 的结果,以为仅是 $3.01\mu\text{m}$ 和 $3.06\mu\text{m}$ 2 条激光的混合^[7].

我们的实验在重现 Platonov 等主要结果的基础上,对波长 $3\mu\text{m}$ 附近的激光进行了光谱分析,在上述镧原子能级的 $4d\cdot{}^3D_{3,2,1}$ 三能级组态至 $5p\cdot{}^3P_{2,1,0}$ 三能级组态之间的多谱线跃迁中,鉴别出存在跃迁通道分别为 $4d\cdot{}^3D_3\rightarrow 5p\cdot{}^3P_2$ 、 $4d\cdot{}^3D_2\rightarrow 5p\cdot{}^3P_1$ 和 $4d\cdot{}^3D_1\rightarrow 5p\cdot{}^3P_0$,波长分别为 $2.92\mu\text{m}$ 、 $2.69\mu\text{m}$ 和 $2.60\mu\text{m}$ 3 条新激光.但是在我们的实验中,虽然重现了已有报道的 $4d\cdot{}^3D_2\rightarrow 5p\cdot{}^3P_2$ 跃迁、波长 $3.01\mu\text{m}$ 的激光,却没能再现 $4d\cdot{}^3D_1\rightarrow 5p\cdot{}^3P_2$ 跃迁、波长 $3.06\mu\text{m}$ 的激光.本文将对所有这些结果做出合理的分析和探讨.

2 相关能级、激励途径和激光跃迁

图 1 是镧原子自基态至共振态的所有能级示意图,图上标示出主要的电子激励途径,以及实验中得到的 5 条镧原子激光谱线的波长和跃迁通道.其中共振态 $5p\cdot{}^1P_1$ 至亚稳态 $4d\cdot{}^1D_2$ 之间的激光,波长 $6.45\mu\text{m}$ 属于典型的 R-M 跃迁激光,最早在 Walter 等的经典论文中就曾有过预言^[1],以后也多有研究,我们将在文献 8 中报道.

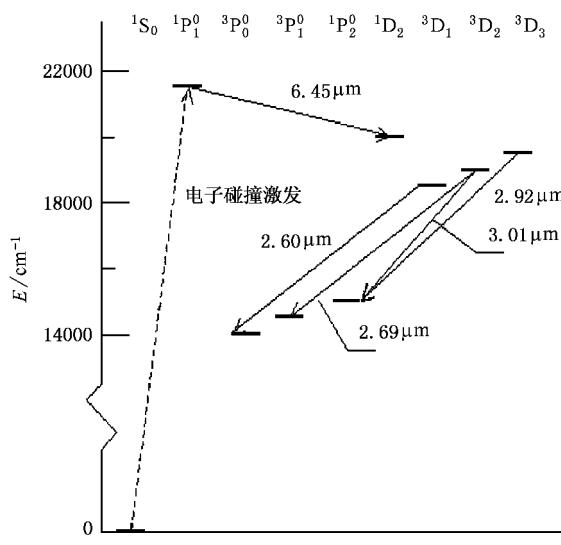


图 1 镧原子相关能级、电子激励途径和激光通道

跃迁通道 $4d\cdot{}^3D_3\rightarrow 5p\cdot{}^3P_2$ 、 $4d\cdot{}^3D_2\rightarrow 5p\cdot{}^3P_1$ 和 $4d\cdot{}^3D_1\rightarrow 5p\cdot{}^3P_0$ 相应波长 $2.92\mu\text{m}$,

$3.01\mu\text{m}$ 、 $2.69\mu\text{m}$ 和 $2.60\mu\text{m}$ 共 4 条激光谱线是本文讨论的重点.

3 实验布置和测量结果

实验布置在文献 8 中有较详尽的描述. $3\mu\text{m}$ 附近激光的鉴别,用的是北京光学仪器厂的 WDG30 红外光栅单色仪,分辨率优于 $0.01\mu\text{m}$,探测器是上海技物所的 HgCdTe 红外探头,批号 OKF08,适用波长范围 $1.0\text{--}3.8\mu\text{m}$;室温下工作的响应时间约 $66\mu\text{s}$,接上与之匹配的自制电子线路,将时间积分后的平均电压信号显示在 TDS754C 示波器上.由于实验中同时还存在波长 $1.03\mu\text{m}/1.09\mu\text{m}$ 的镧离子自终止激光成分,利用上海光机所的红外频率上转换测试板(适用于 $0.85\text{--}1.55\mu\text{m}$)显示出的红色光斑,很容易将光束定位,将红外光栅单色仪沿光束后移输出窗口 2m 以外时,示波器显示的电压信号没有明显的减弱,证明实验所得 $3\mu\text{m}$ 波长附近的信号准直性很好,确认其为激光无疑.

实验采用氦气作为缓冲气体,调整到最佳工作条件时,氦压约为 7.6kPa ,电源电压 4.8kV ,脉冲重复频率 18.6kHz ,边界温度控制为 117°C .在以上工作参数的大致范围内,利用 2 块滤波片,多次测量取平均得到 $3\mu\text{m}$ 波长附近的激光总功率约 10mW ^[8].根据示波器上的电压信号大小确认波长分别为 $2.92\mu\text{m}$ 、 $3.01\mu\text{m}$ 、 $2.69\mu\text{m}$ 和 $2.60\mu\text{m}$ 4 条激光之间的强度比为 $5:4:4:1$.

4 分析和讨论

1. 在 $4d\cdot{}^3D_{3,2,1}$ 三能级组态至 $5p\cdot{}^3P_{2,1,0}$ 三能级组态之间的多谱线跃迁中,根据选择定则,一共有 6 条光学允许跃迁.根据 Burger 等^[9]的总和定则,以具备 $\Delta J = \Delta L$ 和 J_{\max} 条件的谱线具有最大强度,跃迁谱线的相对强度如表 1 所示,其数值取自文献 10].将实验所确认的 4 条激光与表 1 中 6 条谱线的相对强度对照可知,最强的激光其跃迁强度最大,获得激光振荡的 4 条谱线相对强度排在前 4 位,没有获得激光振荡的 2 条谱线相对强度落在后 2 位.因此可以确认,决定组态之间多谱线跃迁相对强度的总和定则对组态之间激光振荡同样起着重要作用.

2. Bokhan 等曾经指出,在氦缓冲气体环境下,无论是三能级组态 3D_j ($j=3,2,1$) 还是 3P_j ($j=2,1,0$),能级之间的碰撞混合(collision mixing) 是很强的,这

表 1 复三能级之间多谱线跃迁相对强度^[10]和相应的锶原子能级及跃迁波长

相对强度 (波长)	上三能级 ${}^3D_1 \cdot 18159.0 \text{cm}^{-1}$	${}^3D_2 \cdot 18218.7 \text{cm}^{-1}$	${}^3D_3 \cdot 18319.2 \text{cm}^{-1}$
${}^3P_0^0 \cdot 14317.5 \text{cm}^{-1}$	23.8 (2.60 μm) [*]		
${}^3P_1^0 \cdot 14504.3 \text{cm}^{-1}$	17.9 (2.73 μm)	53.6 (2.69 μm) [*]	
${}^3P_2^0 \cdot 14898.5 \text{cm}^{-1}$	1.2 (3.06 μm)	17.9 (3.01 μm) [*]	100 (2.92 μm) [*]

* 表示激光。

些能级与氦原子的碰撞截面高达 $\sim 6 \times 10^{15} \text{cm}^2$, 导致三能级组态内部的粒子数布居很快达到玻尔兹曼分布^[6]。如果将三能级组态的最低能级 3D_1 和 ${}^3P_0^0$ 的相对布居 ζ_1 和 η_0 都取作 100 的话, 那么在运转温度约 677°C (= 950K) 情况下, 根据能级间隔不难算得 $\zeta_3 = 78$, $\zeta_2 = 91$ 和 $\eta_2 = 41$, $\eta_1 = 75$ 。将表 1 中的相对强度乘以对应的比例因子 ζ_j/η_j 后, 再将最大相对强度仍然取作 100, 得到的结果为表 2, 则是考虑三能级组态内部能级布居经由氦原子实现碰撞混合后, 新的谱线强度关系。

将实验所确认的 4 条激光再次与表 2 中修正过的 6 条谱线相对强度对照可知, 分析的第一条给出的定性结论仍然有效: 最强的激光其跃迁强度仍然最大, 获得激光振荡的 4 条谱线相对强度仍然排在前 4 位, 没有获得激光振荡的 2 条谱线相对强度依旧落在后 2 位。但定量的情况有了明显的改善: 激光强度的相互关系与修正过的谱线强度关系趋于一致, 特别是 3.01 μm 和 2.60 μm 激光之间强度比为 4:1, 而谱线之间的强度比由 17.9:23.8 修正为 20.8:12.5, 数量的相对变化造成了本质上的差异。因为虽然激光之间强度比不可能、也不应该等同于谱线之间的强度比, 但根据激光竞争中强者恒强的原则, 顺序不会颠倒, 实验结果充分表明了这种修正极其必要的。因此可以确认, 三能级组态内部的粒子数布居由于和氦原子碰撞而重组, 对激光振荡起着重要

表 2 考虑到能级碰撞混合后锶原子复三能级之间多谱线跃迁的相对强度

相对强度 (波长)	上三能级 ${}^3D_1 \cdot 18159.0 \text{cm}^{-1}$	${}^3D_2 \cdot 18218.7 \text{cm}^{-1}$	${}^3D_3 \cdot 18319.2 \text{cm}^{-1}$
${}^3P_0^0 \cdot 14317.5 \text{cm}^{-1}$	12.5 (2.60 μm) [*]		
${}^3P_1^0 \cdot 14504.3 \text{cm}^{-1}$	12.5 (2.73 μm)	34.2 (2.69 μm) [*]	
${}^3P_2^0 \cdot 14898.5 \text{cm}^{-1}$	1.5 (3.06 μm)	20.8 (3.01 μm) [*]	100 (2.92 μm) [*]

* 表示激光。

的作用。

根据速率方程

$$dn_{\text{Sr}}/dt = - n_{\text{Sr}} \cdot n_{\text{He}} \cdot \sigma \cdot v,$$

可以估算时间常数

$$\tau \sim 1/n_{\text{He}} \cdot \sigma \cdot v.$$

取氦压 7.6kPa 碰撞截面 $\sigma \sim 6 \times 10^{-15} \text{cm}^2$, 运转温度 677°C, 可以求得 $\tau \sim 1.4 \text{ns}$ 。因此, 对于 10 μs 数量级能级寿命的准亚稳态、特别是更长能级寿命的亚稳态, 在三能级组态内部能级之间实现碰撞混合, 从时间上考虑是足够充分的。

3. 在 $4d \cdot {}^3D_{2,1}$ 三能级组态至 $5p \cdot {}^3P_{2,1,0}$ 三能级组态之间的多谱线跃迁中, 不论是否考虑三能级组态内部能级之间的碰撞混合, 对应通道 $4d \cdot {}^3D_3 \rightarrow 5p \cdot {}^3P_2^0$ 、波长 2.92 μm 的跃迁都具有最大的相对强度, 也是我们鉴别出最强的激光谱线, 但为什么不仅开始 Cahuzac 没有发现, 而且以后无论 Bokhan 等, 还是 Platonov 等经过深入细致的实验仍然没有报道呢? 这是一个不容回避和必须正面回答的问题。

我们认为这是由于实验条件的不同, 它涉及到激光上能级 $4d \cdot {}^3D_3$ 的布居过程。具体说就是 Cahuzac 和 Bokhan 等采用的是单次的脉冲放电, $4d \cdot {}^3D_3$ 能级无法得到有效的布居; 而 Platonov 等虽然和我们一样采用的是高重复率脉冲放电, 所得到 3 μm 附近的激光理应包含 2.92 μm 激光成分, 但他们没有进行光谱分析, 只能认为是一种遗憾。

2.92 μm 谱线的上能级 $4d \cdot {}^3D_3$ 相对于基态 $5s \cdot {}^1S_0$ 是亚稳态, 在放电过程中不会由电子直接碰撞有效布居。我们考虑至少有二条间接途径:

其一是经过共振态 $5p \cdot {}^1P_1^0$ 的转移。根据玻恩近似, 在放电激励过程中, 共振态 $5p \cdot {}^1P_1^0$ 的布居是充分的, 6.45 μm R-M 跃迁激光的存在足以证明。但 $5p \cdot {}^1P_1^0$ 至 $4d \cdot {}^3D_3$ 的光学跃迁却是禁戒的, 而且二者之间中唯一的中间态 $4d \cdot {}^1D_2$ (见图 1) 由于宇称的关系, 至 $4d \cdot {}^3D_3$ 的光学跃迁也是禁戒的, 所以光学跃迁转移, 无论直接还是间接都是不可能的。同样由于玻恩近似, $5p \cdot {}^1P_1^0$ 态经由电子碰撞转移到 $4d \cdot {}^3D_3$ 态, 无论直接还是间接(经由中间态 $4d \cdot {}^1D_2$)效率都是不高的。注意到单重态 $5p \cdot {}^1P_1^0$ 与三重态 $4d \cdot {}^3D_2$ 和 $4d \cdot {}^3D_1$ 之间的光学跃迁并非禁戒, Bokhan 等的实验就曾观察到 $5p \cdot {}^1P_1^0 \rightarrow 4d \cdot {}^3D_2$ 跃迁, 波长 2.87 μm 的强荧光^[6]; 与此同时, 只要电子能量合适, 它们之间经由电子碰撞的转移截面也是很大的, 其数值甚至可

以与共振能级之间的电子碰撞转移截面相当^[11]。脉冲放电期间和放电以后的余辉期间,电子能量必然在相当宽的范围内变化,为单重态 $5p\cdot{}^1P_1^0$ 经由电子碰撞转移至三重态 $4d\cdot{}^3D_2$ 和 $4d\cdot{}^3D_1$ 提供了可能。因此我们认为,在最初激励中被布居的共振态 $5p\cdot{}^1P_1^0$ 粒子,经由光学的或非光学的途径,可以充分转移到三重态 $4d\cdot{}^3D_2$ 和 $4d\cdot{}^3D_1$ 上去,然后再一次考虑三能级组态 3D_j ($j = 3, 2, 1$) 内部经由氦原子实现碰撞混合,从而 $4d\cdot{}^3D_3$ 态可以因此而得到有效布居。

其二是经过准亚稳态 $5p\cdot{}^3P_1^0$ 的转移,实验表明在脉冲放电激励过程中,与电流脉冲几乎同步,存在着激发的三重态 $5p\cdot{}^3P_1^0$ 至基态单重态 $5s\cdot{}^1S_0$ 之间波长 689nm 跃迁的强荧光辐射^[12]。由于能级的自发跃迁寿命而言,所谓准亚稳态,指的是其寿命介于亚稳态的寿命与共振态的寿命之间,从另一个角度也被称作准共振态,Bokhan 等就是这样称呼三重态 $5p\cdot{}^3P_1^0$ 的^[6]。经由电子对准共振态 $5p\cdot{}^3P_1^0$ 再次碰撞引起的级联跃迁,与之有强光学联系的三重态上能级 $4d\cdot{}^3D_2$ 和 $4d\cdot{}^3D_1$ 就可以得到有效填充,然后同样考虑三能级组态 3D_j ($j = 3, 2, 1$) 内部经由氦原子实现碰撞混合, $4d\cdot{}^3D_3$ 态也会因此而得到有效布居。

Cahuzac 实验采用的是单次短而强的脉冲放电,Bokhan 等实验采用的是微秒量级的单次脉冲放电, $4d\cdot{}^3D_3$ 态都不可能得到有效的布居;而我们实验中的脉冲重复频率高达 18.6kHz,脉冲间隔约 53μs,鉴于整个三能级组态 3D_j ($j = 3, 2, 1$) 相对于基态都是亚稳态,它们的寿命远高于脉冲间隔,其上的粒子数有可能得到不断的积累。 $4d\cdot{}^3D_3$ 态因此而得到有效的布居。所以在我们的实验中 $4d\cdot{}^3D_{3,2,1}$ 三能级组态至 $5p\cdot{}^3P_{2,1,0}$ 三能级组态之间的多谱线跃迁中,具有

最大相对强度的谱线表现为最强的激光,Cahuzac 和 Bokhan 等之所以没有观察到该激光,应该是在他们的实验条件下因为上能级无法充分布居而确实不存在;同样的道理,由于缺乏最强谱线的有力竞争,所以 Cahuzac 和 Bokhan 等才有可能观察到多谱线跃迁中具有最小相对强度的 $3.06\mu\text{m}$ 谱线实现了激光振荡,而在我们的实验中反而观察不到。

5 结 论

我们在铷蒸气的高频脉冲放电激励中发现了一类新的激光,和传统的以铜蒸气激光器为代表的自终止激光器件相比,不仅它们的激光下能级相对于基态是亚稳态,具有激光自终止机制,而且它们的激光上能级相对于基态也是亚稳态,因此我们建议将其分类命名为 M-M 跃迁激光,这是又一类新型的激光机制,还有许多不清楚的地方,值得深入仔细研究,还可以引申至其他的激光材料,其中最有希望的应是钙和钡。

根据对实验现象的讨论和对前人已有工作的分析,我们认为:

1. 决定组态之间多谱线跃迁相对强度的总和定则在激光竞争中起着重要的作用;
2. 组态内部的粒子数布居由于和氦原子碰撞而重组,修正了组态之间多谱线跃迁相对强度,对激光产生显著的作用;
3. 亚稳态激光上能级的粒子数布居主要依靠电子经由中间态的非直接激发,即所谓的碰撞激励转移^[13](Collisional Excitation Transfer, CEF),它们既可能是从上至下的级联衰变,也可能是自下而上的串级激发,在高频脉冲放电情况下无论那一种都具有积累效应,明显影响激光振荡的产生。

- [1] W. T. Walter *et al.*, *IEEE J. Quant. Electron.*, **2** (1966) 474.
- [2] Z. X. Yao *et al.*, *J. Quant. Electron.*, **17** (2000) 467 (in Chinese)
[姚志欣等,量子电子学报, 2000, 17(2): 467].
- [3] S. V. Markova *et al.*, *SPIE*, **2110** (1993), 165.
- [4] C. H. Corliss, W. R. Bozman, Experimental transition probabilities for spectral lines of seventy elements (NBSM 53, Washington 25, D. C. 1962), 389.
- [5] P. Cahuzac, *J. Phys. (Paris)*, **32** (499), 1971.

- [6] P. A. Bokhan *et al.*, *Sov. J. Quant. Electron.*, **9** (1979) 374.
- [7] A. V. Platonov *et al.*, *Sov. J. Quant. Electron.*, **8** (1978), 120.
- [8] G. Chen *et al.*, *Acta Physica Sinica* (in Chinese) to be published
[陈钢等,物理学报,待发表].
- [9] G. Herzberg, *Atomic Spectra and Atomic Structure* (New York, 1944), Chapter. 4, Section. 1.
- [10] E. U. Condon, G. H. Shortley, *The theory of atomic spectra* (Cambridge University, London, 1979), p. 242.

- [11] O. Svelto , *Principles of Lasers* , Second edition (Plenum , New York , 1982) p. 95 .
- [12] V. E. Prokopev *et al.* , *Sov. J. Quant. Electron.* , **15** (1985) 832 .
- [13] V. A. Gerasimov , *SPIE* , **3403** (1998) 165 .

THE M-M TRANSITION LASERS IN STRONTIUM VAPOR *

YAO ZHI-XIN PAN BAI-LIANG CHEN GANG FANG BEN-MIN CHEN XING CHEN KUN

(Department of Physics , Zhenjiang University , Hangzhou 310027 , China)

(Received 10 January 2001)

ABSTRACT

A set of laser oscillations of four strontium atom spectral lines simultaneously have been obtained , through high-repetition-frequency pulsed discharge in mixed gases of strontium vapor and helium buffer gas . The corresponding wavelengths with the transitions from compound three-energy levels $4d\cdot{}^3D_{3,2,1}$ to $5p\cdot{}^3P_{2,1,0}$ are $2.92\mu\text{m}$, $3.01\mu\text{m}$, $2.69\mu\text{m}$ and $2.60\mu\text{m}$ respectively , their ratios of intensities are $5:4:4:1$ and the total average laser power is 10mW . As far as we know , the laser spectral lines have never been reported except $3.01\mu\text{m}$. On the basis of analyzing characteristics of corresponding energy levels and experimental phenomena , the action mechanism is discussed primarily . We suggest the classification of the spectral lines to be named as M-M transition laser .

Keywords : strontium vapor laser , self-terminating , M-M transition

PACC : 4255H , 4260H

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 19974037 & 97778009).