

光学泵浦的锂分子激光*

王 祖 赓 李 敏

(华东师范大学物理系)

1987 年 4 月 28 日收到

以可见染料激光泵浦锂分子,在高于 900℃ 的蒸气温度下,获得了由锂分子 $A^1\Sigma_u^+$ 态跃迁到基态 $X^1\Sigma_g^+$ 的位于 874—912 nm 区的许多光泵激光输出。谐振腔使输出信号增强约 9 倍。对部分激光跃迁的振转量子数作了标识。

一、引 言

近 10 年来,对光学泵浦的同核双原子分子激光器已进行了不少研究。运用这种技术,能方便地将单一波长的泵浦激光输出转换为多种波长激光输出。显然,这种激光对同核双原子分子本身的光谱和动力学研究(例如跃迁矩和弛豫速率的测定、分子常数的确定等)是特别适宜的。此外,由于这类激光器有低阈值泵浦强度、单模运转和多谱线发射等特点,因而所有涉及需要固定激光线的场合(例如频率标准、测量的参考系统等)都会对它感兴趣^[1]。

在光泵同核双原子分子激光器中,对钠分子激光器的研究最多,也最典型,一种激发方式是用脉冲激光激发分子,从而产生脉冲钠分子激光输出^[2-7],这时大都没有使用谐振腔,所产生的是单程增益的光泵受激辐射。另一种激发方式是用连续激光激发分子,使用谐振腔,从而产生连续激光输出^[8,9]。相对来讲,对光泵锂分子激光的研究较少,这方面有代表性的工作是以氩离子激光和氦离子激光泵浦锂分子,产生连续输出的锂分子激光^[10-12]。

本文报道了以准分子激光泵浦的可见染料激光器激发锂分子,从而获得了由锂分子 $A^1\Sigma_u^+$ 态跃迁到基态 $X^1\Sigma_g^+$ 的许多光泵激光输出。使用谐振腔和不使用谐振腔两种情况的对比表明,前者的输出强度要比后者增强约 9 倍。运用锂分子能级常数及编制的计算机程序进行计算,标识了大部分发射谱线的振动和转动量子数。

二、运转原理

图 1 为锂分子的有关能级图。本工作中用于泵浦锂分子的可调谐染料激光输出范围为 570—610 nm。该波段范围对应于锂分子从基态 $X^1\Sigma_g^+$ 到激发态 $A^1\Sigma_u^+$ 的吸收区^[13]。处于基态底部的分子,可被上述调谐范围的激光激发到 16399—17539 cm⁻¹ 的区间(当然,处于基态较高位振-转能级上的分子也会被激发。见下述)。设处于基态某振-转能级 1

* 国家自然科学基金资助的课题。

上的分子,被波长为 λ_1 的染料激光激发后,跃迁到 $A^1\Sigma_u^+$ 态的振-转能级 2。由热分布律可知,处于基态较高位振-转能级 3 上的粒子布居远少于处于振-转能级 1 上的粒子布居。显然,这将形成能级 2 与能级 3 之间的粒子数反转,因而可产生能级 2 到能级 3 的波长为 λ_3 的激光辐射。当然, λ_3 应该大于 λ_1 。激光循环是通过碰撞弛豫使分子回复到能级 1 而完成的。

由于 $X^1\Sigma_g^+$ 态和 $A^1\Sigma_u^+$ 态各具有成千上万个振-转能级,因而当具有一定线宽的某一波长的激光激发锂分子时, $X^1\Sigma_g^+$ 态中可以有多个振-转能级被激发,也即 $A^1\Sigma_u^+$ 态中可有多个振-转能级获得布居,从而产生多线发射。即使只有一个振-转能级获得布居,属于同一荧光系列的多条谱线也都有可能产生受激辐射。对应于同一下振动能级

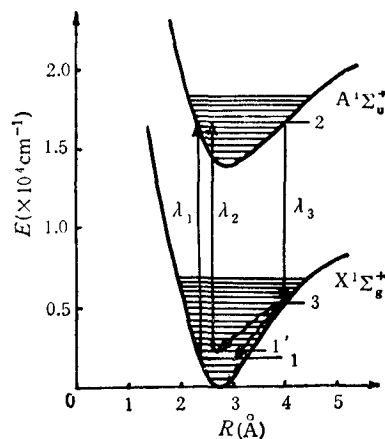


图1 锂分子激光的光学泵浦和发射能级示意图

3, 有两条分别相应于选择定则 $\Delta J = +1$ 和 $\Delta J = -1$ 的转动谱线。不同波长的泵浦光(如图1中 λ_1 和 λ_2) 也可使处于不同下能级(如图1中能级 1 和 1') 的分子激发到同一激光上能级 2, 从而产生相同波长的发射。另外,当调谐泵浦光波长使其与 $A^1\Sigma_u^+$ 态的振-转能级有一定失谐时,考虑到高温条件下分子间的能量碰撞转移及能级间的相对弛豫等因素,在 $A^1\Sigma_u^+$ 态中与泵浦光波长对应的高度附近的一些振-转能级也可获得布居,从而产生受激辐射。

三、激光装置

图2为激光装置示意图。锂热管的长度为90 cm, 内径约为2 cm, 加热区长度为33

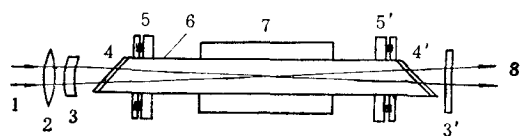


图2 锂分子激光装置示意图

1 为泵浦光束; 2 为聚焦透镜; 3 和 3' 为光学谐振腔;
4 和 4' 为布儒斯特窗; 5 和 5' 为水冷却区; 6 为锂
热管; 7 为加热区; 8 为锂分子激光输出

cm。锂热管两端装有石英布儒斯特窗。水冷却区靠近布儒斯特窗。热管通常在1000℃温度下运转,这时锂分子的浓度约为2.6 Torr^[14]。

光学谐振腔的输入镜为一块对泵浦波长区有99%透过率、对800—900 nm 区有99%高反射率的球面镜

($R \approx 150$ cm),

腔的输出耦合镜为一块对800—900 nm 区有约80%反射率而对泵浦光区有高透过率的平面镜。

泵浦光为XeCl准分子激光(Lambda Physics EMG 150)泵浦的染料激光(lambda physics FL 2002),其输出波段范围为570—610 nm,在585 nm区的输出能量为15 mJ,输出脉宽为15 ns。

泵浦光由焦距为50 cm的透镜聚焦到锂热管的中心,由热管前向出射的锂分子激光

(使用腔镜时)或单程增益的受激辐射信号(不使用腔镜时),经滤光片滤去剩余的泵浦光后由单色仪和光电倍增管检测,并经 Boxcar 后由记录仪记录。

四、结论与讨论

当以 570—610 nm 区内几乎任何染料激光输出波长泵浦锂分子时,总可以测得几条锂分子激光线。表 1 中一、五列和三、七列分别列出了不同的泵浦光波长及测得的由若干

表 1 若干波长的泵浦光所产生的光泵锂分子激光线

泵浦波长 (nm)	$A^1\Sigma_u^+ \leftarrow X^1\Sigma_g^+$ $v',j' \leftarrow v'',j''$	锂分子激光 波长 (nm)	$A^1\Sigma_u^+ \rightarrow X^1\Sigma_g^+$ $v',j' \rightarrow v'',j''$	泵浦波长 (nm)	$A^1\Sigma_u^+ \leftarrow X^1\Sigma_g^+$ $v',j' \leftarrow v'',j''$	锂分子激光 波长 (nm)	$A^1\Sigma_u^+ \rightarrow X^1\Sigma_g^+$ $v',j' \rightarrow v'',j''$
571.12	24,10 $\leftarrow$ 5,11	884.63	24,11 $\rightarrow$ 32,10	582.94		889.33	
		900.16	24,10 $\rightarrow$ 44,11			890.40	
	24,39 $\leftarrow$ 4,38	885.47	24,39 $\rightarrow$ 33,40			893.67	17,57 $\rightarrow$ 44,56
		895.67	24,39 $\rightarrow$ 37,40			895.83	17,56 $\rightarrow$ 44,57
	22,25 $\leftarrow$ 4,24	874.47	22,26 $\rightarrow$ 47,27			898.13	17,56 $\rightarrow$ 44,55
575.52		877.93		581.96	17,56 $\leftarrow$ 0,55	900.40	
		885.80					
		900.00	19,27 $\rightarrow$ 48,28			873.73	
572.20	24,19 $\leftarrow$ 5,18	874.44				877.80	
		884.07	24,18 $\rightarrow$ 45,19			891.93	24,15 $\rightarrow$ 33,14
		885.69				894.49	24,17 $\rightarrow$ 44,18
		891.93				893.79	24,11 $\rightarrow$ 33,12
		893.57				899.77	24,11 $\rightarrow$ 34,10
579.98		897.16				897.12	
		899.79	17,38 $\rightarrow$ 24,39				
	17,37 $\leftarrow$ 1,36					888.27	20,74 $\rightarrow$ 30,73
610.00						891.52	20,72 $\rightarrow$ 34,71
		895.34	22,23 $\rightarrow$ 30,24			893.66	20,74 $\rightarrow$ 32,75
		901.52	21,59 $\rightarrow$ 31,60				
		909.12	18,68 $\rightarrow$ 38,69			899.33	19,77 $\rightarrow$ 29,78
		912.72	18,67 $\rightarrow$ 38,68			907.12	21,26 $\rightarrow$ 30,25
						910.80	16,41 $\rightarrow$ 24,40

不同波长泵浦光所产生的锂分子激光谱线。图 3 和图 4 分别给出以波长为 575.52 nm 的激光泵浦时,波长为 877.93 nm 的锂分子激光输出与泵浦光能量和蒸气温度之间的关系。由图 3 可以看到,为产生锂分子激光,并不需要很高的泵浦能量。通常,数百微焦耳即可。泵浦能量增大时,输出渐趋饱和。由图 4 可清楚地看出,为使锂分子激光很好运转,必需加以高温。一般要在 1000℃ 左右时运转。如果温度过低,则由于达不到一定的锂分子浓度而不能运转。在本实验中,如果温度低于 900℃,则几乎测量不到输出信号。

实验中所测得的由 570—610 nm 区的泵浦光所产生的锂分子激光线大都位于 874—912 nm 波长区间。由此可知,激发的起始能级与激光下能级之间的能级差,通常要大于 5000 cm^{-1} 。这表明,如果可调谐染料激光将处于基态底部振-转能级的分子激发到 $A^1\Sigma_u^+$ 态的 $16389\text{—}17539\text{ cm}^{-1}$ 区的激光上能级,那么分子由 $A^1\Sigma_u^+$ 态到 $X^1\Sigma_g^+$ 态跃迁产生激光而到达的下能级要比 $X^1\Sigma_g^+$ 态的底部高出 5000 cm^{-1} 以上。如果激光激发高于 $X^1\Sigma_g^+$ 态底

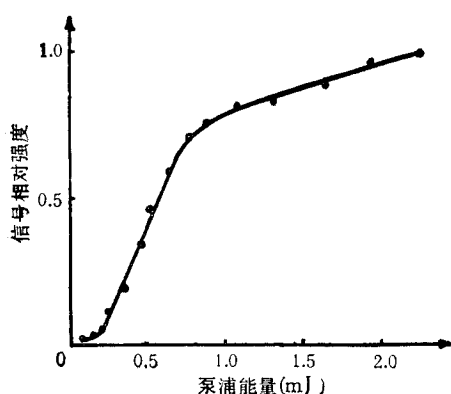


图3 锂分子激光 (877.93nm) 输出与泵浦能量的关系 ($\lambda_p = 575.52 \text{ nm}$)

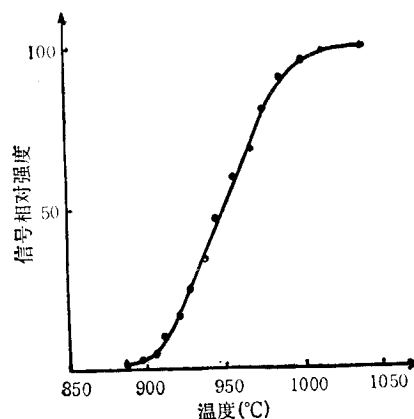


图4 锂分子激光 (877.93nm) 输出与温度的关系

部的分子,则激光下能级将位于 $X^1\Sigma_g^+$ 态的更高部位。

为了标识表1中锂分子激光线的振-转量子数,需要利用锂分子的能级常数。锂分子基态 $X^1\Sigma_g^+$ 及激发态 $A^1\Sigma_u^+$ 的 Dunham 系数见文献[13]表2。利用该表中的分子常数,由 Dunham 光谱项可写出锂分子 $X^1\Sigma_g^+$ 态和 $A^1\Sigma_u^+$ 态间的跃迁频率为

$$\nu = \sum_{l,k} Y'_{l,k}(\nu' + 1/2)^l [J'(J' + 1)]^k - \sum_{l,k} Y''_{l,k}(\nu'' + 1/2)^l [J''(J'' + 1)]^k (\text{cm}^{-1}). \quad (1)$$

式中 ν' , J' 和 ν'' , J'' 分别代表上下能级的振-转量子数。该公式不仅适用于 $X^1\Sigma_g^+ \rightarrow A^1\Sigma_u^+$ 态的激发跃迁,同时也适用于 $A^1\Sigma_u^+ \rightarrow X^1\Sigma_g^+$ 态的激光发射跃迁。如第二节所述运转原理,为标识激光发射谱,首先应确定光泵激发谱对应的上、下能级的振-转量子数。由所确定的泵浦光上能级对应的振-转量子数,可进一步寻找由该振-转能级出发向 $X^1\Sigma_g^+$ 态跃迁的激光发射谱对应的下能级的振-转量子数。由此,我们编制了一计算机寻找程序。对于一给定的搜寻频率间隔 $\Delta\nu_i$ ($\Delta\nu_i$ 的典型值取为 1cm^{-1}),该程序给出了与(1)式 ν 的频率差落在 $\Delta\nu_i$ 内的所有测量谱线对应的振-转量子数。标识结果列于表1的第二、四、六、八列中。其中一些未标识的谱线,我们认为通过进一步将强度和频率结合起来考虑,有希望对这些谱线也作出标识。

图5表示以波长为 604.47 nm 的激光泵浦时所测得的锂分子激光的发射谱。可见,当使用第三节中所述的谐振腔镜时,激光输出强度

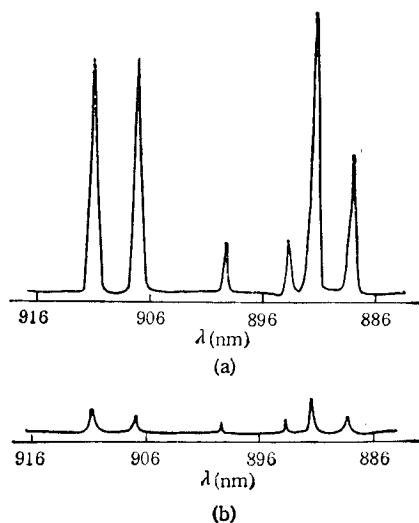
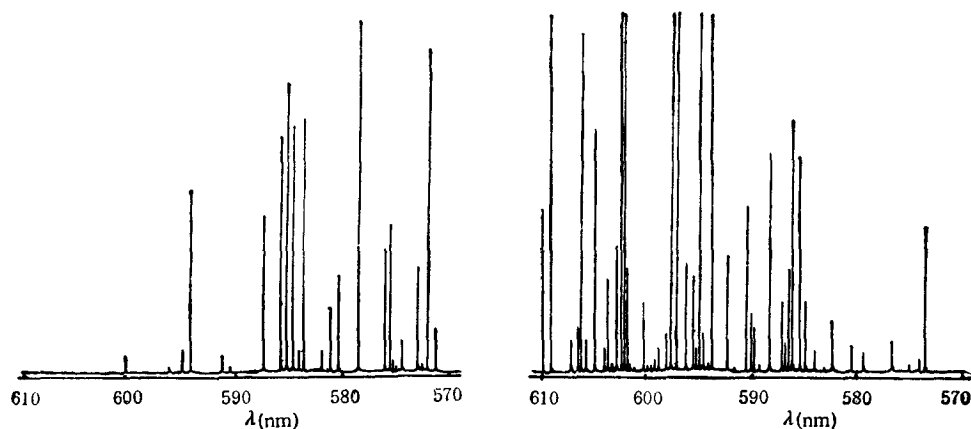


图5 使用谐振腔(a)和不使用谐振腔(b)时锂分子激光输出的比较 ($\lambda_p = 604.47 \text{ nm}$)



(a) 产生 877.93 nm 锂分子激光的激发光谱

(b) 产生 901.52 nm 锂分子激光的激发光谱

图 6

将增强约 9 倍。由于泵浦激光的脉宽为 15 ns, 腔长大于 100 cm (锂热管长度 90 cm), 因而上述 9 倍的输出增强是由于一个光脉冲约可在谐振腔内往返 2—3 次的结果。

如第二节中所述, 由于分子的每一个电子态具有众多的振-转能级, 因而不同的泵浦波长有可能将分子从不同的下能级激发到同一个激光上能级, 从而产生相同波长的激光发射线。图 6(a) 和 (b) 分别表示产生 877.93 nm 和 901.52 nm 锂分子激光输出的激发光谱。可见, 以许多不同的激发波长可产生同一激光谱线。此外, 由图 6(a) 可看出, 产生较短波长激光线的泵浦波长大都位于较短波长区。而图 6(b) 则表明产生较长波长激光线的泵浦波长大都是在较长波长区。这些都与第二节中的分析一致。

实验工作是在联邦德国 Hannover 大学进行的, 在此表示衷心感谢。

- [1] B. Wellegehausen, *IEEE J. Quant. Elect.*, **QE-15** (1979) 1108.
- [2] M. A. Henejian, R. L. Herbst and R. L. Byer, *J. Appl. Phys.*, **47**(1976), 1515.
- [3] W. Muller and I. V. Hertel, *Appl. Phys.* **24**(1981), 33.
- [4] S. Shahdin, B. Wellegehausen and Z. G. Ma, *Appl. Phys.*, **B29**(1982), 195.
- [5] 王祖赓、王应哲、G. P. Morgan and A. L. Schawlow, *Opt. Commun.*, **48**(1984), 398.
- [6] 王祖赓、夏慧荣、马龙生、林远齐、郑一善 *Appl. Phys.*, **37**, (1985), 233.
- [7] 王祖赓、夏慧荣、马龙生、林远齐、郑一善, A. L. Schawlow, *Proceedings of the 7th International Conference on Laser*, (1984), p. 291.
- [8] B. Wellegehausen, S. Shahdin, D. Friede and H. Willing, *Appl. Phys.*, **13**(1977), 97.
- [9] A. R. Rajaei-Rizi, J. T. Bahns, K. K. Verma and W. C. Stwalley, *Proc. Intern. Conf. on Laser*, (1981), (1982), p. 447.
- [10] H. Willing and B. Wellegehausen, in "Laser Spectroscopy III", Springer Verlag, New York, (1977), p. 365.
- [11] K. K. Verma, W. C. Stwalley and W. T. Zemke, *J. Appl. Phys.*, **52**(1981), 3821.
- [12] C. N. Man-Pichor and A. Brillet, *IEEE J. Quant. Elect.*, **QE-16**(1980), 1103.
- [13] P. Kusch and M. M. Hessel, *J. Chem. Phys.*, **67**(1977), 586.
- [14] A. N. Nesmeyanov, *Vapor Pressure of the Chemical Elements*, (translated and edited by J. I. Carasso), Academic Press., New York, (1963).

OPTICALLY PUMPED Li_2 LASER

WANG ZU-GENG LI MIN

(Department of Physics, East China Normal University, Shanghai)

ABSTRACT

Many optically pumped Li_2 laser lines (874—912 nm) resulting from $A^1\Sigma_u^+$ state to $X^1\Sigma_g^+$ state transition of molecular lithium were generated at the vapor temperature beyond 900°C. With a resonator, the laser output was increased by about 9 times. The vibrational and rotational quantum numbers for some laser lines were identified.