

Ne 原子双光子吸收截面的实验测定

周达君 谢汉伟 余振新

(激光与光谱学研究所)

摘 要

本文提出了一种测量原子和分子的双光子吸收截面的新方法——饱和光电流光谱法。在二能级模型的基础上,从实验上首次测定放电管中Ne原子的 $1S_5-4d_1''$ 两能级间的双光子吸收截面,与理论计算结果颇为一致。

关键词 双光子吸收, 吸收截面, 饱和吸收

双光子吸收的存在,早已由M.Goeppert-Mayer于1931年从理论上作了预言,但只有在激光出现之后,才能从实验上进行观察。随着大功率的染料激光器出现,双光子吸收的实验工作不断深入,人们对这一非线性光学现象的认识也随之逐步深化。但过去多数的工作停留在理论分析上,而实验工作并不多见,并且要么误差较大,要么实验条件比较麻烦^[1,2]。

本文提出的饱和光电流光谱法测量Ne原子的双光子吸收截面的方法,所得结果是比较令人满意的,而实验装置却非常简便。这为测量其他原子的双光子吸收截面提供了一种简单可行的普遍适用的方法。

1 理论分析

1.1 Ne原子的 $1S_5-4d_1''$ 能级间双光子吸收截面的计算

根据双光子吸收截面的定义^[3],从基态 g 到激发态 f 的双光子吸收截面 σ_{fg} 为

$$\sigma_{fg} = \frac{W_{fg} \cdot \hbar^2 \cdot \omega_1 \cdot \omega_2}{I_1 \cdot I_2} \quad (1)$$

其中, W_{fg} 为从基态 g 到激发态 f 的双光子跃迁几率; I_1, I_2 分别为入射的激光强度; ω_1, ω_2 分别为入射激光的频率。

当原子从一束光吸收两个光子而跃迁时,其跃迁几率为^[4]

$$W_{fg}^{(1)} = \frac{1}{4} \left(\frac{e}{\hbar} \right)^4 |\vec{E}_1|^4 \cdot \left| \sum_n \frac{(\vec{r} \cdot \vec{e}_1)_{gn} \cdot (\vec{e}_2 \cdot \vec{r})_{nf}}{\omega_{ng} - \omega_0} \right|^2 g(2\nu_1)$$

其中, \vec{E}_1 为激光的电场强度; $(\vec{r} \cdot \vec{e}_1)_{gn}$ 为基态 g 和中间态 n 之间的偶极矩阵元; $(\vec{r} \cdot \vec{e}_2)_{nf}$ 为中间态 n 与激发态 f 之间的偶极矩阵元; \vec{e}_1, \vec{e}_2 为激光电场的电矢量;

本文1989年11月16日收到

$g(2\nu_1)$ 为双光子跃迁的线型因子; ω_0 为激光频率。而求和 \sum_n 是对所有的中间态 n 。

类似地,当原子从两束入射光中各吸收一个光子而产生跃迁时,其双光子跃迁几率为

$$W_{fg}^{(2)} = \frac{1}{4} \left(\frac{e}{\hbar} \right)^4 \left| \vec{E}_1 \right|^2 \left| \vec{E}_2 \right|^2 \cdot \left| \sum_n \left(\frac{(\vec{r} \cdot \vec{e}_1) g_n (\vec{r} \cdot \vec{e}_2)_{nf}}{\omega_{ng} - \omega_1} + \frac{(\vec{r} \cdot \vec{e}_2) g_n (\vec{r} \cdot \vec{e}_1)_{nf}}{\omega_{ng} - \omega_2} \right) \right|^2 \cdot g(\nu_1 + \nu_2)$$

其中各项符号的物理意义与前面的单光束双光子吸收一样。利用关系

$$|\vec{E}|^2 = (8\pi/c) \cdot I \quad (2)$$

代入上面双光子跃迁几率表达式以及利用公式(1),最后得到双光子吸收截面可表示为:
单光束入射情况:

$$\sigma_{fg}^{(1)} = \frac{16e^4 \cdot \pi^2 \omega_0^2}{\hbar^2 c^2} \left| \sum_n \frac{(\vec{r} \cdot \vec{e}_1) g_n (\vec{r} \cdot \vec{e}_1)_{nf}}{\omega_{ng} - \omega_0} \right|^2 g(2\nu_1) \quad (3)$$

双光束入射情况:

$$\sigma_{fg}^{(2)} = \frac{16e^4 \pi^2 \omega_1 \omega_2}{\hbar^2 c^2} \left| \sum_n \left(\frac{(\vec{r} \cdot \vec{e}_1) g_n (\vec{r} \cdot \vec{e}_2)_{nf}}{\omega_{ng} - \omega_1} + \frac{(\vec{r} \cdot \vec{e}_2) g_n (\vec{r} \cdot \vec{e}_1)_{nf}}{\omega_{ng} - \omega_2} \right) \right|^2 \cdot g(\nu_1 + \nu_2) \quad (4)$$

实验中,两束激光的线宽均为 0.18 cm^{-1} , 远大于原子的多普勒线宽。在这种情况下,线型因子 $g(2\nu_1)$ 和 $g(\nu_1 + \nu_2)$ 可近似表示为^[5]

$$g(2\nu_1) \rightarrow (\sqrt{2} \cdot \Delta\nu_L)^{-1}$$

$$g(\nu_1 + \nu_2) \rightarrow [\sqrt{2} (\Delta\nu_{L1} + \Delta\nu_{L2}) / 2]^{-1} = (\sqrt{2} \Delta\nu_L)^{-1}$$

其中 $\nu_{L1} = \nu_{L2} = \nu_L$ 为激光光谱宽度。

此外,在单光束激发情况下: $\lambda_0 = 6057.84 \text{ \AA}$, 即 $\omega_0 = 3.1095 \times 10^{15} \text{ rad/s}$ 。而在双光束激发情况下: $\lambda_1 = 6145.06 \text{ \AA}$, 即 $\omega_1 = 3.0654 \times 10^{15} \text{ rad/s}$; $\lambda_2 = 5973.07 \text{ \AA}$, 即 $\omega_2 = 3.1537 \times 10^{15} \text{ rad/s}$ 。

因而,在(3)、(4)式中,只要求得中间能态相对于基态 g 和激发态 f 的相对跃迁频率和跃迁偶极矩阵元,就可以从理论上计算出结果来。

在我们选定的 $1S_5 - 4d''_1$ 的双光子跃迁中,中间能态为: $2P_6, 2P_7, 2P_8, 2P_9, 3P_4, 3P_6, 3P_7, 3P_8, 3P_9$, 它们的跃迁偶极矩阵元和跃迁频率如表1所示,其中偶极矩阵元是通过文献[6,7]中相应的自发辐射系数求得。Ne原子的能级结构如图1所示。

将上述的线型因子,跃迁频率和跃迁偶极矩阵元各项数值代入式(3)、(4)中,则可求得它们的理论值为

$$\sigma_{fg}^{(1)} = 1.886 \times 10^{-49} \text{ cm}^4 \cdot \text{sec/photon}$$

$$\sigma_{fg}^{(2)} = 4.243 \times 10^{-47} \text{ cm}^4 \cdot \text{sec/photon}$$

表1 跃迁矩阵元和频率表

Tab. 1 Matrix component and frequency of excitation

level	1S ₅	g = 5	4d ₁ ^{''}	g = 5
g	w _{gn} [10 ¹⁵]	(r,e) [10 ⁻⁹] (cm)	w _{nf} [10 ¹⁵]	(r,e) [10 ⁻⁹] (cm)
5 2 P ₆	3.0664	12.269	3.1527	1.1812
3 2 P ₇	3.0298	4.5987	3.1892	5.4340
5 2 P ₈	2.9737	9.7068	3.2453	3.6228
7 2 P ₉	2.9422	20.852	3.2768	2.0914
5 3 P ₄	5.5899	0.1327	0.6291	3.1448
5 3 P ₆	5.4636	0.9317	0.7554	4.5505
3 3 P ₇	5.4588	0.3534	0.7602	36.006
5 3 P ₈	5.4374	0.6188	0.7816	26.477
7 3 P ₉	5.4245	1.3247	0.7945	6.4838

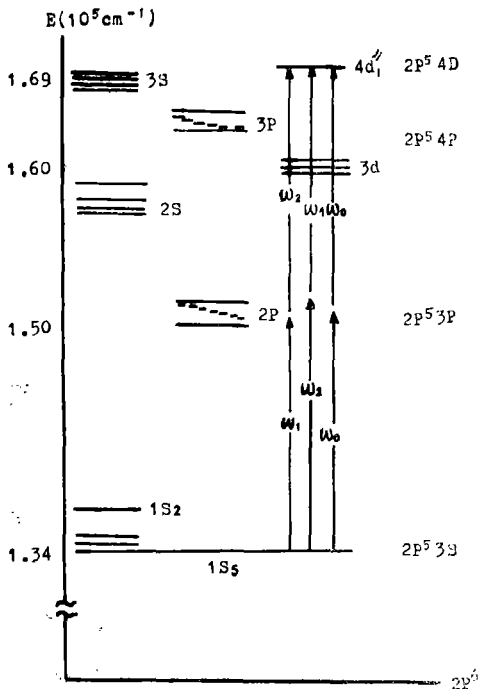


图1 Ne原子能级图

Fig.1 Schematic diagram of Ne energy levels involved in two-photon absorption

1.2 测定双光子吸收截面的理论依据

饱和参数被定义为

$$S = (W_{fg} + W_{gf}) / \sum_n A_{fn}$$

其中, S 为饱和参数, W_{fg} 为从低能级 g 到高能级 f 的双光子跃迁几率, W_{gf} 为从高能级 f 到低能级 g 的双光子感应发射几率, $\sum_n A_{fn}$ 为从能级 f 到所有低能级 n 的总的自发辐射衰变率。

如定义 τ_f 为能级 f 的寿命, 则有

$$\sum_n A_{fn} = 1/\tau_f$$

如果 G_g 和 G_f 分别为 g 态和 f 态的统计权重则应有 G_gW_{fg} = G_fW_{gf},

在能级 1S₅—4d₁^{''} 跃迁中, G_g = G_f = 5,

故有 W_{fg} = W_{gf},

$$\text{即 } S = 2W_{fg} / \sum_n A_{fn} = 2\tau_f \cdot W_{fg}$$

根据(1)式得

$$\sigma_{fg} = \frac{\hbar^2 \omega_1 \omega_2}{2\tau_f} \cdot \frac{S}{I_1 I_2} = \frac{\hbar^2 \omega_1 \omega_2}{2\tau_f} \cdot \frac{S}{P_1 P_2} A_1 A_2 \tag{5}$$

其中, P₁, P₂ 分别为两束激光的功率, A₁, A₂ 分别为光束的截面积。

所以, 如果测得激光功率、光束面积, 查表求得 f 态的寿命, 并且在知道 S 与 P 的关系的情况下, 则可以从实验上求得 σ_{fg} .

实验中只能直接测量 P_1 和 P_2 , 以及可以直接测量原子吸收了双光子之后所产生的光电流讯号 F , 而无法直接测量饱和参数 S . 因此, 必须求得 S 或者 S 与 P_1P_2 的关系. 假设参与双光子吸收的上下能级组成一个封闭的二能级系统, 也就是下能级 g 态吸收二个光子跃迁到上能级 f 态之后, 通过受激发射或自发辐射弛豫到其他中间态之后, 仍然回到 g 态上去. 整个过程中, 二个相关连能态的粒子数守恒. 于是有

$$dN_g/dt = -dN_f/dt = W_{gf}N_f - W_{fg}N_g + A_fN_f$$

其中, $A_f = \sum_i A_{fi}$ 为能级 f 到所有其他能级 i 的自发辐射系数.

在粒子数守恒条件下

$$dN_g/dt = dN_f/dt = 0$$

因为 $G_gW_{fg} = G_fW_{gf}$, 而 $G_g = G_f = 5$, 所以 $W_{fg} = W_{gf}$

此外, 设 N 为二个相关的能级粒子总数, 则有 $N_g + N_f = N$,

即 $N_f = [W_{fg}/(A_f + 2W_{fg})] \cdot N$

根据 S 的定义, 上式可以变化成为

$$N_f = [S/(1+S)](N/2).$$

原子被激发到 f 态后, 由于受电流的作用, 使光电流(实验中用以探测 N_f 变化的手段)产生变化, 即 $F \propto (N_f - N_{f0}) \sim N_f$,

其中, N_{f0} 为原子未受激光照射之前, N_f 态上的粒子数近似为零.

于是 $F \propto S/(1+S)$, 最后, 得到关系式

$$F = A[S/(1+S)] \quad (6)$$

其中 A 为一常数, 与样品、探测系统等有关.

由于 $S = (W_{fg} + W_{gf})/A_f$, 所以 $S \propto I_1I_2 \propto P_1P_2$, 故可设 $S = BP_1P_2$

其中 B 为一常数, 与样品性质有关. 代入(6)式, 得

$$F = AB \cdot P_1 \cdot P_2 / (1 + BP_1 \cdot P_2) \quad (7)$$

这是一个关于 F (光电流讯号)随入射激光功率 P_1P_2 变化的函数. 在实验中可以测出二个量之间的变化关系曲线. 通过这条曲线的最小二乘法的拟合, 可求得系数 A 和 B , 即求得 S 与 P_1P_2 的关系, 最终求得 σ_{fg} .

2 实验工作

2.1 单光束照射Ne原子条件下双光子吸收截面的测定

实验装置如图2所示.

实验采用一台准分子激光器直接泵浦染料激光器, 染料激光输出波长 $\lambda = 6057.84 \text{ \AA}$, 最大输出能量 $E = 16.06 \text{ mJ}$; 使用焦距 $f = 5 \text{ cm}$ 的透镜聚焦在Ne放电管内, 其焦点处的光斑面积, 用照相纸曝光测得为 $A_1 = 1.00 \times 10^{-4} \text{ cm}^2$; 激光输出脉冲重复率为 10 Hz , 脉冲宽度 16 ns . Ne原子吸收双光子后, 所产生的光电流变化讯号送到BOXCAR处理, 将数据平均后在面板上的电表指示出来. 激光的强度变化是通过在输出光路上加插中性的标

准滤光片来控制的。激光能量由一台已经标定过的激光能量计测量。图3是经过最佳拟合后得到的光电流讯号与激光功率关系曲线。从曲线的拟合中,求得 $A=18.3$; $B=1.24 \times 10^{-11} W^{-2}$ 。

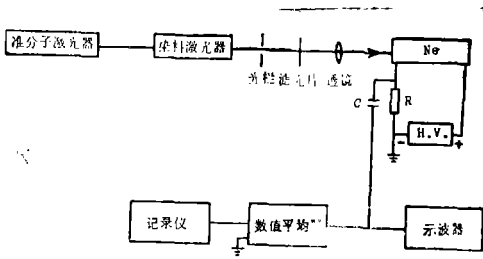


图2 单光束实验装置示意图
Fig.2 Experiment set-up for two-photon absorption with one laser beam

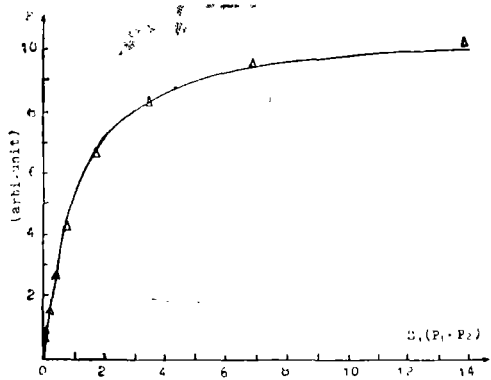


图3 单束双光子饱和吸收曲线
Fig.3 Saturated absorption curve of two-photon absorption with one laser beam

最后,根据(5)式,

$$\sigma_{ig}^{(1)} = (\hbar^2 \omega_1 \omega_2 / 2\tau_f) \cdot (S/P_1 P_2) A_1 A_2$$

或
$$\sigma_{ig}^{(1)} = (\hbar^2 \omega^2 / 2\tau_f) B \cdot A_1^2$$

可求得 $\sigma_{ig}^{(1)}$ (实验值) = $(1.26 \pm 0.13) \times 10^{-49} \text{cm}^4 \cdot \text{s/photon}$ 。

比较 $\sigma_{ig}^{(1)}$ (理论值) = $1.886 \times 10^{-49} \cdot \text{cm}^4 \cdot \text{s/photon}$, 两者相差为33%。

2.2 双光束照射Ne原子条件下双光子吸收截面的测定

实验装置如图4所示。

实验工作类似于单光束激励的情况,所不同的是采用不同波长的二束染料激光去同时激发样品,因而采用二个不同焦距的透镜去把激光聚集在放电管内。它们的焦距分别为 $f_1 = 35\text{cm}$, $f_2 = 11\text{cm}$ 。由于光路调节的需要,它们的长度均大于在单光束激励时所采用的焦距长度。两光束在焦点处的截面积分别测得为 $A_1 = 4 \times 10^{-4} \text{cm}^2$, $A_2 = 2.25 \times 10^{-4} \text{cm}^2$ 。图5是经过最佳拟合的光电流讯号与激光功率关系曲线。从曲线拟合过程中,求得 $A=10.8$, $B=3.96 \times 10^{-10} W^{-2}$ 。最后可求得

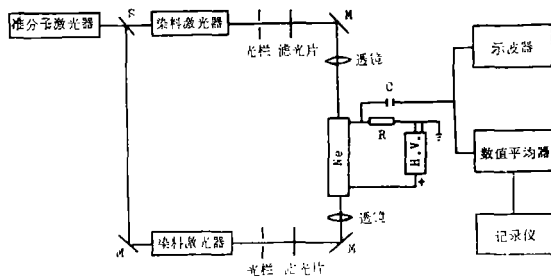


图4 双光束实验装置示意图
Fig.4 Experiment set-up for two-photon absorption with two laser beams

中,求得 $A=10.8$, $B=3.96 \times 10^{-10} W^{-2}$ 。最后可求得

$$\sigma_{ig}^{(2)} \text{ (实验值)} = (3.69 \pm 0.37) \times 10^{-47} \text{cm}^4 \cdot \text{s/photon}$$

$$\sigma_{ig}^{(2)} (\text{理论值}) = 4.243 \times 10^{-47} \text{cm}^4 \cdot \text{s}/\text{photon}$$

两者比较相差为13%。

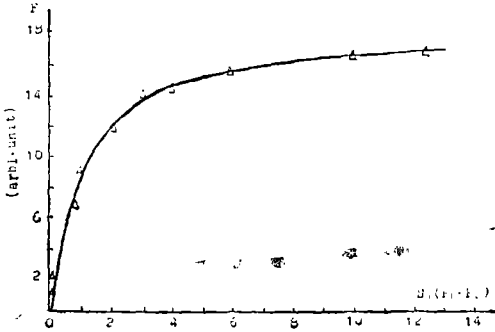


图5 双束双光子饱和吸收曲线

Fig.5 Saturated absorption curve of two-photon absorption with two laser beams

数据, 与实际数量会有一定差异。我们准备在下一步的工作中作实际的测量。

本工作中, Ne原子放电管由源永安、陈应标同志提供, 在此表示感谢。

3 结 论

(1) 本工作中对于光电流和激光功率的测量, 都经过数值平均器的多次平均取得读数, 其误差范围从1~10%的数量级。而激光束焦点处面积的测量靠照相纸曝光取得, 是本实验的最大误差来源, 估计在10%数量级, 所以, 实验结果估计误差取10%数量级。

(2) 在实验值 σ_{ig} 的计算过程中, 其中参数 τ_i 为高能级寿命, 受周围环境影响, 应该作具体测量, 但本文采用已有的数据,

参 考 文 献

- [1] Hermann J P et al., *Phys. Rev., A*, 5 (1972), 2557
- [2] Schunke B et al., *Opt. Comm.*, 64 (1987), 481
- [3] Shen Y R, "The Principles of Nonlinear Optics" (John Wiley & Sons. Inc. New York, 1984), Chap. 8
- [4] Bloembergen N et al., "Hing-Resolution Laser Spectroscopy" (Springer, Berlin 1976), Chap. 8
- [5] Maxx B R et al., *J. Phys.*, B, 11 (1978), L273
- [6] Statz H et al., *J. Appl. Phys.*, 34 (1963), 2625
- [7] Murphy P W, *J. Opt. Soc. Am.*, 58 (1968), 1200

Experimental Determination of the Two-Photon Absorption Cross Section of Ne

Zhou Dajun* Xie Hanwei Yu Zhenxin

Abstract

A new method that uses saturated optogalvanic spectroscopy to measure two-photon absorption cross section of atoms and molecules is presented. The two-photon absorption cross section of $1s_5-4d^2_1$ transition in Ne in a discharge tube has for the first time been determined experimentally. The experimental results are in agreement, with theoretical ones, obtained based on a two-level model.

Keywords two-photon absorption, absorption cross section, saturated absorption

* Institute rfo Laser and Spectorscopy