

Experimental Evaluation of Collisional Transfer cross Section in Rb-N₂ System

Zenan Liu, Jing Liu*, Bao Liu, Hao Wei, Haoran Gao, Nulaholmoti Niazili

School of Physics Science and Technology, Xinjiang University, Urumqi Xinjiang
Email: xdlj@xju.edu.cn

Received: Jun. 4th, 2018; accepted: Jun. 18th, 2018; published: Jun. 26th, 2018

Abstract

Rb atoms were excited to the $5P_{3/2}$ state using a single-mode diode laser. The fluorescence intensity ratio of D_1 and D_2 line was measured at different temperatures in Rb-N₂ system. The experimental results show that when the N₂ pressure was filled at 100 - 600 Torr, strong electron-vibration rotational energy transfer between Rb-N₂ was produced, and collisions between Rb-Rb atoms could be ignored. The fluorescence intensity of D_2 line decreased faster than D_1 with the increase of pressure. The fluorescence intensity ratio of D_1 and D_2 lines was almost unchanged with the increase of temperature when the N₂ pressure at 600 Torr. By solving the rate equations, we obtained average value of fine structure transfer cross section of Rb $5P_j$ atoms in 323 K - 353 K range. The values of the cross sections from Rb $5P_{3/2}$ to $5P_{1/2}$ and from Rb $5P_{1/2}$ to $5P_{3/2}$ were $(6.57 \pm 1.64) \times 10^{-16} \text{ cm}^2$ and $(4.83 \pm 1.21) \times 10^{-16} \text{ cm}^2$, respectively. The quenching cross section in Rb-N₂ collisions was $(1.80 \pm 0.36) \times 10^{-16} \text{ cm}^2$.

Keywords

Laser Spectroscopy, Collisional Energy Transfer, Cross Section, Fluorescence

Rb-N₂系统中碰撞转移截面的测定

刘泽南, 刘 静*, 刘 豹, 魏 浩, 高浩然, 尼亚孜艾力·努拉合买提

新疆大学物理科学与技术学院, 新疆 乌鲁木齐
Email: xdlj@xju.edu.cn

收稿日期: 2018年6月4日; 录用日期: 2018年6月18日; 发布日期: 2018年6月26日

摘 要

激光激发Rb原子到 $5P_{3/2}$ 激发态, 测量了不同温度下Rb-N₂蒸气室中 D_1 线和 D_2 线的荧光强度比。实验结果

*通讯作者。

文章引用: 刘泽南, 刘静, 刘豹, 魏浩, 高浩然, 尼亚孜艾力·努拉合买提. Rb-N₂ 系统中碰撞转移截面的测定[J]. 光电子, 2018, 8(2): 51-58. DOI: 10.12677/oe.2018.82008

表明, 充入 N_2 压强在100~600 Torr时, Rb- N_2 间有较强的电子-振动转动能量转移, Rb-Rb间的碰撞可以忽略。随着压强的增加, D_2 线强度下降比 D_1 线更快。 N_2 压强在600 Torr时, D_1 线和 D_2 线的荧光强度比随温度升高基本不变。建立并求解速率方程, 得到323 K~353 K范围内Rb $5P_1$ 原子的精细结构转移截面平均值为 $\sigma_{21} = (6.57 \pm 1.64) \times 10^{-16} \text{ cm}^2$, $\sigma_{12} = (4.83 \pm 1.21) \times 10^{-16} \text{ cm}^2$ 。Rb- N_2 间的平均碰撞猝灭截面值为 $\sigma_1 = (1.80 \pm 0.36) \times 10^{-16} \text{ cm}^2$ 。

关键词

激光光谱, 碰撞能量转移, 截面, 荧光

Copyright © 2018 by authors and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

半导体泵浦的碱金属蒸气激光器(DPAL)以碱金属为工作介质, 具有量子效率高、光学性能好、输出线宽窄等突出优点, 在激光冷却, 能量传输, 国防军工, 航空航天等领域有着很好的应用前景[1] [2] [3] [4]。在碱金属蒸气室中充入缓冲气体, 可以提高激光转换效率, 改善光谱特性。例如充入 He 气可使谱线碰撞加宽, 提高泵浦吸收率; 充入 C_2H_6 可用于加速两个上能级间的能量交换, 实现有效粒子数反转等。

近年来人们对碱金属-缓冲气体混合系统中激发态能量的辐射传输及碰撞转移过程作了大量的实验和理论研究[5] [6] [7] [8], 得到的结果对理解混合系统中的物理及化学过程做出了重要贡献。Krupke 的小组[3]发现, 在 Rb 蒸气室中充入 ^3He , 压强从 1 atm 提高到 2.8 atm 时, 输出功率可由 3 W 提高到 28 W; 充入 He 气 1~20 atm 时, 光-光转换效率由 2%线性提高到 50%。Shen 的小组对激发态碱原子之间及碱-气体系统中的碰撞能量转移及辐射过程进行了大量的实验研究, 得到了丰富的实验数据。对 Rb-(Ar, N_2)混合蒸气系统, 测量了不同气压下 Rb($5P_{3/2}$)态的有效辐射率, 给出了 Rb- N_2 碰撞转移截面为 $5.0 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$ [5]。对 Cs- H_2 系统, 实验测量了 Cs 6^2D - 7^2P 态的碰撞转移截面及 7^2P 态的猝灭截面[6]; 对纯 Rb 系统, 激光激发 Rb 原子 $5P_{1/2}$ 态, 测得 $5P_{1/2}$ - $5P_{3/2}$ 态的精细结构转移截面为 $2.9 \times 10^{-14} \text{ cm}^2$, $5P_{3/2}$ 态的能量合并转移截面为 $3.1 \times 10^{-14} \text{ cm}^2$ [8]。

在对混合气体系统碰撞能量转移过程的实验研究中, 对充入缓冲气体压强大于 100 Torr 的系统研究较少。随着充入气体的压强增加, 粒子数密度大, 碰撞过程更加复杂。 N_2 具有丰富的振转能级, 与激发态碱原子碰撞可能发生较强的电子-振动转动能量转移, 对碱原子的荧光辐射具有不同的抑制或增益效果。对碱原子-氮气系统中碰撞过程的实验研究, 在提高 DPAL 抽运效率、压缩谱线宽度和改善光谱特性等方面有一定指导意义。本文实验研究了 100~600 Torr 压强下 Rb- N_2 系统中的碰撞能量转移过程。单模半导体激光激发 Rb 原子到 $5P_{3/2}$ 激发态, 在不同 N_2 压强和温度条件下分别探测 Rb 原子 D_1 和 D_2 线的激光感应荧光信号, 讨论了荧光强度比随温度和压强的变化, 并建立速率方程求解得到了 Rb 5^2P 原子的精细结构转移截面和碰撞猝灭截面。

2. 实验方案

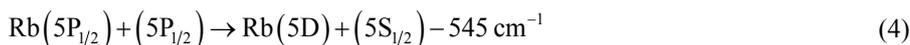
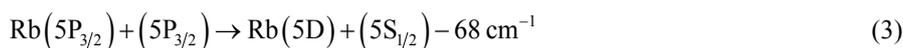
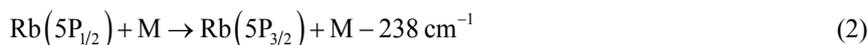
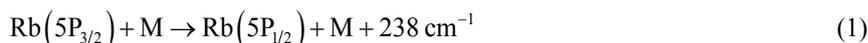
将长 5 cm, 直径 2.5 cm 的圆柱形石英玻璃样品管接入真空系统, 真空度达到 10^{-6} Pa 后充入数百毫克碱金属铷(^{85}Rb : 72.15%, ^{87}Rb : 27.85%)和 100~600 Torr 氮气(充入气体压强由压强计测定), 封闭样品管,

得到不同压强下的碱金属蒸气室。蒸气室两端套有纯铜加热套，加热温度可控，最小精度为 $\pm 0.1^\circ\text{C}$ 。

实验装置如图 1 所示。DL100 型半导体激光器作为激发光源，波长调至 780.2 nm 激发 Rb 原子到 $5P_{3/2}$ 态。在与激光束垂直方向探测 $^{85}\text{Rb}(5P_J)$ 能级的自发辐射荧光信号，透镜聚焦后经单色仪分光和光电倍增管放大进入 ICCD，由计算机记录数据。

3. 分析与讨论

DL100 激光器 780.2 nm 激光共振激发 Rb- N_2 混合蒸气中的 Rb 原子至 $5P_{3/2}$ 激发态，在样品管中存在的碰撞传能过程可能有以下几种：



此外，还可能存在 Rb($5P_J$) 原子与 M 粒子的碰撞猝灭过程



其中，碰撞粒子 $\text{M} = \text{N}_2, \text{Rb}(5S_{1/2})$ 。过程(1)和(2)是精细结构碰撞转移过程，Rb(5^2P_J)原子精细结构能级间隔只有 238 cm^{-1} ，这两个过程容易进行。过程(3)和(4)是碰撞能量合并(EP:Energy pooling)过程，从能量角度看，过程(3)比(4)更容易进行。过程(5)是 Rb(5^2P_J)原子的碰撞猝灭过程，即激发态 Rb(5^2P_J)原子通过与 N_2 分子或 Rb($5S_{1/2}$)原子碰撞无辐射跃迁回到基态。Rb($5P_{3/2}$)原子与 N_2 基电子态的 $\nu = 5$ 振动能级能量接近，容易发生近共振电子-振动转动能量转移过程。实验中充入氮气压强约 100~600 Torr，以上几个过程基本同时发生，氮分子密度约为 10^{19} cm^{-3} ，远远大于基态铷原子密度(10^{11} cm^{-3})，也比激发态 Rb($5P_{3/2}$)原子的密度大得多。故在讨论混合气体中的碰撞过程时，Rb-Rb 间的碰撞远小于 Rb- N_2 间的碰撞，能量合并过程(3)和(4)可以忽略。

3.1. 速率方程分析

激光激发 Rb($5P_{3/2}$)原子后，激发态 Rb($5P_{3/2}$)原子主要通过自发辐射、精细结构碰撞转移和碰撞猝灭三个过程退布居，主要的碰撞能量转移过程见图 2。为表述方便，用 0~2 分别表示 Rb 原子的 $5S_{1/2}$ ， $5P_{1/2}$ 和 $5P_{3/2}$ 能级。

对 Rb 原子的 $5P_{1/2}$ 和 $5P_{3/2}$ 态建立速率方程：

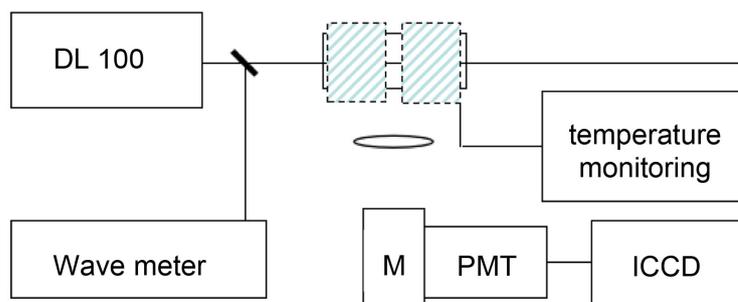


Figure 1. Experimental setup
图 1. 实验装置图

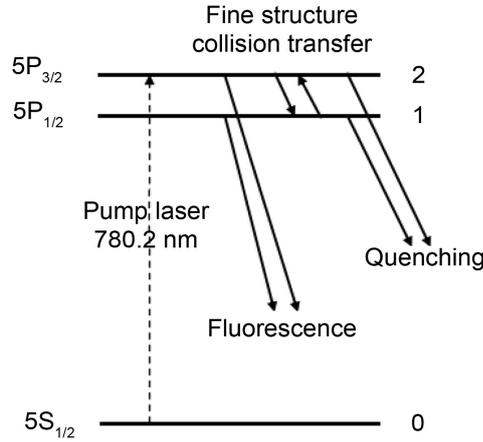


Figure 2. Schematic diagram of transition radiation for Rb atoms

图 2. Rb 原子跃迁辐射过程示意图

$$\frac{dn_1(t)}{dt} = Z_{21}n_2(t) - (\Gamma_1 + Q_1 + Z_{12})n_1(t) \quad (6)$$

$$\frac{dn_2(t)}{dt} = Z_{12}n_1(t) - (\Gamma_2 + Q_2 + Z_{21})n_2(t) \quad (7)$$

其中, $n(t)$ 为粒子数密度, Z 为精细结构碰撞转移率, Γ 为自发辐射率, Q 为碰撞猝灭率(包括各种无辐射跃迁过程), 各跃迁速率系数的下标代表参加碰撞的相应能级。

在 $t = 0$ 时, $n_2(0) = n$, $n_1(0) = 0$, 求解速率方程得:

$$n_1(t) = \frac{nZ_{21}}{\omega_+ - \omega_-} (e^{-\omega_- t} - e^{-\omega_+ t}) \quad (8)$$

$$n_2(t) = \frac{n}{\omega_+ - \omega_-} \{ [(\Gamma_1 + Z_{12} + Q_1) - \omega_-] e^{-\omega_- t} + [\omega_+ - (\Gamma_1 + Z_{12} + Q_1)] e^{-\omega_+ t} \} \quad (9)$$

其中:

$$\omega_{\pm} = \frac{1}{2} [(\Gamma_1 + Q_1) + (\Gamma_2 + Q_2) + Z_{12} + Z_{21}] \pm \frac{1}{2} \left\{ [(\Gamma_1 + Q_1) - (\Gamma_2 + Q_2)]^2 + 2(Z_{12} - Z_{21})[(\Gamma_1 + Q_1) - (\Gamma_2 + Q_2)] + (Z_{12} + Z_{21})^2 \right\}^{1/2} \quad (10)$$

由 $n_1(t)$, $n_2(t)$ 产生的 Rb 原子 D_1 线($5P_{1/2} \rightarrow 5S_{1/2}$) 794 nm 和 D_2 线($5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}$) 780 nm 自发辐射荧光光强分别为

$$I_1 = \frac{nZ_{21}}{\omega_+ \omega_-} \Gamma_1 h\nu_1 \quad (11)$$

$$I_2 = \frac{n}{\omega_+ \omega_-} \Gamma_2 h\nu_2 (\Gamma_1 + Q_1 + Z_{12}) \quad (12)$$

由(11)和(12)两式之比可以得到

$$\frac{I_2}{I_1} = \frac{\Gamma_2}{\Gamma_1} \frac{h\nu_2}{h\nu_1} \frac{\Gamma_1 + Q_1 + Z_{12}}{Z_{21}} \quad (13)$$

设 $Q_1 = k_1 N$, k_1 为碰撞猝灭速率系数, N 为 N_2 密度(由气体的压强计算得到)。 $Z_{21} = k_{21} N$, $Z_{12} = k_{12} N$, k_{21} , k_{12} 为精细结构碰撞转移速率系数。由细致平衡原理,

$$k_{12} = k_{21} \frac{g_2}{g_1} \exp\left(-\frac{\Delta E}{k_B T}\right) \quad (14)$$

其中, $g = 2J + 1$ 为统计权重, 对应 $5P_{1/2}$ 和 $5P_{3/2}$ 能级 $g_1 = 2$, $g_2 = 4$, $\Delta E = 238 \text{ cm}^{-1}$ 为能级间隔, k_B 为玻尔兹曼常数, T 为样品管温度。在 $T = 333 \text{ K}$ 时, $k_{21} = 1.4k_{12}$ 。将 $\Gamma_1 = 3.7 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$, $\Gamma_2 = 3.8 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ [9] 和相应辐射频率代入(14)式化简得到 $T = 333 \text{ K}$ 时荧光强度比与充入 N_2 密度 N 间满足的关系

$$\frac{I_2}{I_1} = \frac{3.87 \times 10^7}{k_{21} N} + \frac{k_1 + 0.75k_{21}}{k_{21}} \quad (15)$$

在同一温度下测量不同 N 值对应的自发辐射荧光强度比, 实验曲线拟合直线, 可由斜率得到精细结构碰撞转移速率系数, 由截距得到猝灭速率系数。对应不同温度, (15)式的表述不同。

定义 σ_{21} 和 σ_1 为相应的碰撞转移截面, $\sigma_{21} = k_{21}/v$ 和 $\sigma_1 = k_1/v$ 。 $v = (8k_B T/\pi\mu)^{1/2}$ 为碰撞粒子的平均相对速率, μ 为碰撞对粒子的折合质量, k_B 为玻尔兹曼常数。代入相应数据可计算得到不同温度下 Rb- N_2 混合系统中的碰撞转移截面。

3.2. 碰撞转移截面的测定

实验中充入 N_2 压强 100~600 Torr, 相应的氮分子密度约为 10^{19} cm^{-3} , 而由蒸气压公式估算的基态铷原子密度约为 10^{11} cm^{-3} ($T = 333 \text{ K}$), 故 Rb-Rb 间的碰撞远远小于 Rb- N_2 间的碰撞。图 3 给出了 333 K 下随着 N_2 压强增加荧光强度的变化。

从图 3 可以看出, 随着 N_2 气压的增加, Rb 原子 D_1 线和 D_2 线的荧光强度 I_1 和 I_2 减小。由于 N_2 分子具有丰富的振转能级, 激发态 Rb($5P_{3/2}$) 态原子与 N_2 间的电子-振转碰撞转移随着 N_2 分子密度的增加而增加, 过程(5)对应的碰撞猝灭过程增强了, 自发辐射荧光强度减小。 D_2 线减小的速度比 D_1 线更快, 过程(1)比(2)容易发生。

样品管温度设定在 323~373 K 之间, 由 ICCD 测量了不同 N_2 压强下的 $5P_{1/2} \rightarrow 5S_{1/2}$ (794 nm) 和 $5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}$ (780 nm) 荧光强度比。代入(13)式给出不同温度下 I_2/I_1 与 $1/N$ 的关系描绘曲线, 见图 4。

图 4 中直线的斜率和截距给出了不同温度下 Rb- N_2 的碰撞转移速率系数和相应的碰撞转移截面, 结果见表 1。

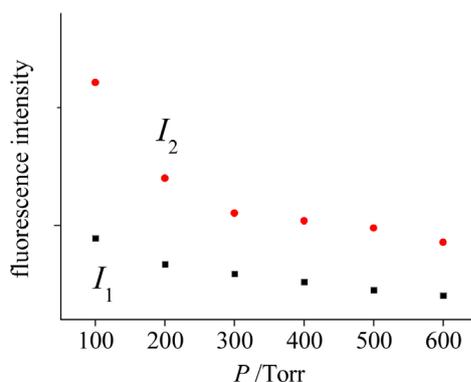


Figure 3. The P_{N_2} dependence of Rb fluorescence intensity

图 3. Rb 原子荧光强度随 N_2 压强的变化

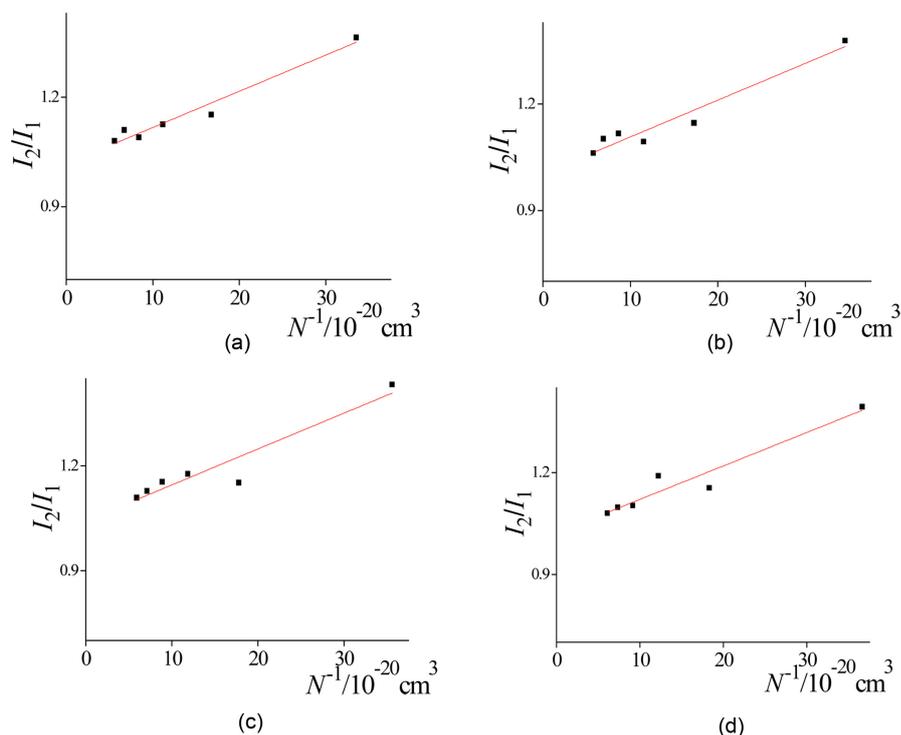


Figure 4. Plot of population ratio against N^{-1} at different temperatures. (a) $T = 323$ K; (b) $T = 333$ K; (c) $T = 343$ K; (d) $T = 353$ K

图 4. 不同温度下荧光强度比与 N^{-1} 的关系曲线。(a) $T = 323$ K; (b) $T = 333$ K; (c) $T = 343$ K; (d) $T = 353$ K

Table 1. Collisional transfer rate coefficient and cross section at different temperatures

表 1. 不同温度下的碰撞转移速率系数及截面

T/K	$k_{21}^{(1)}$	$\sigma_{21}^{(2)}$	$\sigma_{12}^{(2)}$	$k_1^{(1)}$	$\sigma_1^{(2)}$
323	3.90	6.84	4.74	1.14	2.01
333	3.72	6.44	4.83	0.94	1.63
343	3.77	6.42	4.73	1.03	1.76
353	3.92	6.59	5.01	1.03	1.73

⁽¹⁾单位: $10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ molecule}^{-1} \text{ s}^{-1}$; ⁽²⁾单位: 10^{-16} cm^2 。

从实验结果中可以看出, 在 323 K~353 K 温度范围内碰撞转移速率系数和截面值变化不大。Rb($5P_{1/2}$) 态的精细结构碰撞转移截面平均值 $\sigma_{21} = (6.57 \pm 1.64) \times 10^{-16} \text{ cm}^2$, $\sigma_{12} = (4.83 \pm 1.21) \times 10^{-16} \text{ cm}^2$, 猝灭截面的平均值 $\sigma_1 = (1.80 \pm 0.36) \times 10^{-16} \text{ cm}^2$ 。

图 5 是 N_2 压强分别为 100、300 和 600 Torr 时荧光强度比随温度的变化关系曲线。从图中可以看出, $P = 100$ Torr 时, 随着温度的升高荧光强度比 I_2/I_1 有一个快速升高和减小的过程, $P = 300$ Torr 时, 荧光强度比 I_2/I_1 升高的速度变慢, 但仍然有一个较为明显的起伏。 $P = 600$ Torr 时, 荧光强度比随温度增加基本不变。

充入 N_2 压强 $P = 100$ Torr 时, Rb($5P_{3/2}$) 原子与 N_2 分子间的电子-振动转动碰撞过程比自发辐射过程慢, 随着温度升高, 基态 Rb 原子密度增加, 被激光共振激发的 Rb($5P_{3/2}$) 态原子密度增加更快。 D_2 线的自发辐射荧光强度显著增强, 而 Rb($5P_{1/2}$) 态原子的 D_1 线荧光强度随温度升高变化不大, 故荧光强度比随

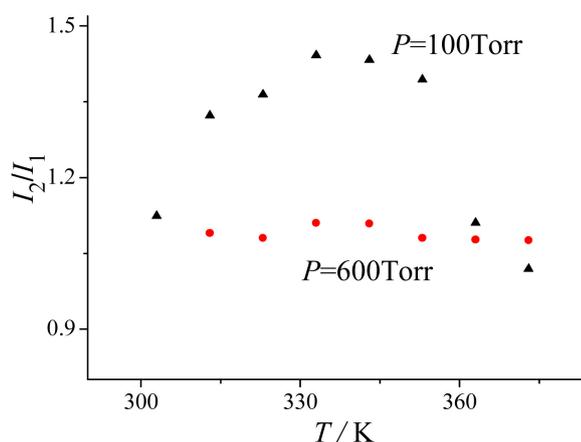


Figure 5. The relationship between Fluorescence intensity ratio and temperature

图 5. 荧光强度比随温度的变化曲线

温度升高有一个明显的上升过程。在 $T = 353$ K 后，激光饱和激发，随温度升高基态 Rb 原子密度增加得比 Rb ($5P_{3/2}$) 原子快，转移到精细结构能级 $5P_{1/2}$ 的原子数增加， D_2 线强度下降，荧光强度比随温度升高迅速下降。 $P = 600$ Torr 时， N_2 分子密度足够大，Rb- N_2 间的电子 - 振动转动碰撞猝灭过程占主导地位，抑制了 Rb($5P_{3/2}$) 原子的自发辐射， D_1 线和 D_2 线的荧光强度比随温度升高变化不大。

4. 结论

本文实验研究了 Rb- N_2 系统中的碰撞能量转移过程。780 nm 激光激发 Rb 原子到 $5P_{3/2}$ 激发态，测量了不同温度压强条件下 D_1 线和 D_2 线的荧光强度比。通过求解速率方程组得到了 Rb 与 N_2 间的精细结构转移截面 $\sigma_{21} = (6.57 \pm 1.64) \times 10^{-16} \text{ cm}^2$ ， $\sigma_{12} = (4.83 \pm 1.21) \times 10^{-16} \text{ cm}^2$ ；碰撞猝灭截面 $\sigma_1 = (1.80 \pm 0.36) \times 10^{-16} \text{ cm}^2$ 。与文献[5]中给出的 Rb- N_2 间总转移截面 $(5.0 \pm 1.2) \times 10^{-16} \text{ cm}^2$ 量级一致。随着充入 N_2 压强的增加，Rb($5P_{3/2}$) 原子与 N_2 分子间的电子 - 振动转动碰撞转移迅速增加。

致 谢

本工作受到国家自然科学基金项目(11564039)和新疆大学大学生创新训练项目(XJU-SRT-17085)的资助，同时感谢实验室老师和学院老师对本研究小组工作的支持。

参考文献

- [1] Zhdanov, B.V. and Knize, R.J. (2015) Power Degradation Due to Thermal Effects in Potassium Diode Pumped Alkali Laser. *Optics Communications*, **341**, 97-100. <https://doi.org/10.1016/j.optcom.2014.12.021>
- [2] 成洪玲, 王志敏, 张丰丰, 等. 碱金属蒸气激光器的研究进展[J]. 激光与光电子学进展, 2015(2): 22-32.
- [3] Zweiback, J. and Krupke, W.F. (2010) 28W Average Power Hydrocarbon-Free Rubidium Diode Pumped Alkali Laser. *Optics Express*, **18**, 1444-1448. <https://doi.org/10.1364/OE.18.001444>
- [4] Zhdanov, B.V., Shaffer, M.K. and Knize, R.J. (2009) Cs Laser with Unstable Cavity Transversely Pumped by Multiple Diode Lasers. *Optics Express*, **17**, 14767-14770. <https://doi.org/10.1364/OE.17.014767>
- [5] 陈洁, 白振岍, 赵亿坤, 等. Rb+(Ar, N_2)混合蒸气中 $5P_{3/2}$ 能级有效辐射率的计算与测量[J]. 中国激光, 2008, 35(6): 907-910.
- [6] 周冬冬, 王大贵, 王雪燕 等. H_2 诱导 Cs($6D_J$) \rightarrow Cs($7D_J$)碰撞转移截面[J]. 激光杂志, 2010, 31(1): 28-29.
- [7] Chang, Y.P., Hsiao, M.K., Liu, D.K., et al. (2008) Rotational and Vibrational State Distributions of NaH in the Reactions of Na(4^2S , 3^2D and 6^2S) with H_2 : Insertion versus Harpoon-Type Mechanism. *Journal of Chemical Physics*, **128**,

Article ID: 234309. <https://doi.org/10.1063/1.2939570>

- [8] 吴红萍, 郭启存, 戴康, 等. 激发态 Rb 原子间的碰撞能量转移[J]. 光谱学与光谱分析, 2009, 29(8): 2038-2041.
- [9] Theodosiou, C.E. (1984) Lifetimes of Alkali-Metal-Atom Rydberg States. *Physical Review A*, **30**, 2881-2909. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.30.2881>

Hans 汉斯

知网检索的两种方式:

1. 打开知网页面 <http://kns.cnki.net/kns/brief/result.aspx?dbPrefix=WWJD>
下拉列表框选择: [ISSN], 输入期刊 ISSN: 2164-5450, 即可查询
2. 打开知网首页 <http://cnki.net/>
左侧“国际文献总库”进入, 输入文章标题, 即可查询

投稿请点击: <http://www.hanspub.org/Submission.aspx>

期刊邮箱: oe@hanspub.org