

# 锂蒸气中双光子泵浦的六波、四波混频和受激辐射\*

王 祖 赓

华东师范大学物理系, 上海, 200062

1989年2月22日收到

本文报道锂蒸气中由双光子泵浦所产生的位于紫外、可见和红外区的相干和受激辐射. 包括: 由一特殊六波混频过程产生的在  $1.03\mu\text{m}$  附近的可调谐相干辐射, 由锂分子双光子离解或原子串级跃迁产生的波长为  $812.6\text{nm}$  的受激辐射, 以及由四波混频产生的位于  $323.3\text{nm}$  和  $670.8\text{nm}$  的相干辐射.

PACC: 4265; 4255; 3280

## 一、引 言

在金属蒸气中由共振双光子或多光子泵浦所引起的混频过程是实现激光频率转换的一种重要途径. 在例如钠、钾、钡和铯等蒸气中, 这类混频过程(特别是四波混频)已得到较多的研究, 并且产生了许多可调谐或固定频率的相干辐射<sup>[1-6]</sup>. 最近, 作者及其合作者论证了在钠蒸气中的一种特殊六波混频过程, 并由此获得在  $840.2$  和  $795.2\text{nm}$  区可调谐的相干辐射<sup>[7]</sup>. 然而, 在锂蒸气中, 有关的混频过程还研究得较少. 近期内, 在锂中较典型和有意义的工作是有关双光子激光的实验<sup>[8]</sup>和超喇曼反斯托克斯激光的实验<sup>[9]</sup>.

本文提出在继双光子共振或近共振激发锂原子  $4S$  能级后, 由一六波混频过程产生在  $1.03\mu\text{m}$  附近的可调谐相干辐射, 由四波混频过程产生位于  $323.3\text{nm}$  和  $670.8\text{nm}$  的相干辐射. 此外, 还存在由锂分子双光子离解和原子的串级跃迁所产生的位于  $812.6\text{nm}$  的受激辐射.

## 二、实验装置

激发锂蒸气样品的泵浦源是一台由 XeCl 准分子激光器( $\lambda$  physics EMG105)泵浦的脉冲染料激光器 ( $\lambda$  physics FL 2002). 在本实验中, 该染料激光器的运转波长在  $565$  和  $600\text{nm}$  之间. 在  $571$  和  $585\text{nm}$  处的输出能量分别为  $10$  和  $20\text{mJ}$ . 脉冲宽

\* 国家自然科学基金资助的课题.

度为 15ns.

泵浦激光束由一块焦距为 50cm 的透镜聚焦到锂热管炉的中心部位. 该热管长为 90cm, 加热区长为 40cm, 并装有布儒斯特窗. 通常, 热管炉被加热到 1150—1250K, 这时锂原子和锂分子和蒸气压分别达 9.6—33.2Torr 和  $5.2 \times 10^{-1}$ —2.3Torr<sup>[10]</sup>.

由热管出射的前向信号, 经一组滤光片滤去剩余的泵浦光后, 由一合适的光纤引入可见或红外单色仪进行分析, 并用光电倍增管和硫化铅探测器分别探测紫外和可见以及红外信号. 为了减小泵浦光对信号探测的影响, 实验中受激辐射信号是在热管的后向探测的.

### 三、结果与讨论

1. 当泵浦波长调谐到 571.07nm, 也即对应于锂原子的 2S—4S 双光子共振时, 在热管前向可测得位于  $1.03\mu\text{m}$  的定向信号, 其发散角约为 5mrad, 比该实验装置中的泵浦光发散角略小. 当泵浦波长下离共振或上离共振时, 该定向信号跟随着调谐, 但调谐的方向相反, 也即泵浦波长调向短波时定向信号跟随调谐到长波. 而当泵浦波长调向长波时, 定向信号跟随调谐到短波. 图 1 示出了该定向信号的跟随调谐行为. 图 1(b) 为泵浦波长  $\lambda_p = 571.07\text{nm}$  对应于 2S—4S 双光子共振时 (离共振量  $\Delta = 0\text{cm}^{-1}$ ) 所测得的定向信号 (频率为  $\omega_x$ ). 图 1(a) 为泵浦波长上离共振 ( $\lambda_p = 570.77\text{nm}$ ,  $\Delta = +9.2\text{cm}^{-1}$ ) 时, 所测得的定向信号 (频率为  $\omega_x - \Delta$ ), 它移向长波. 当泵浦波长下离共振 ( $\lambda_p = 571.37\text{cm}^{-1}$ ,  $\Delta = -9.2\text{cm}^{-1}$ ) 时, 定向信号频率为  $\omega_x - \Delta$ , 它移向短波, 如图 1(c) 所示. 由于在后向不存在该信号, 因而它是由混频过程产生.

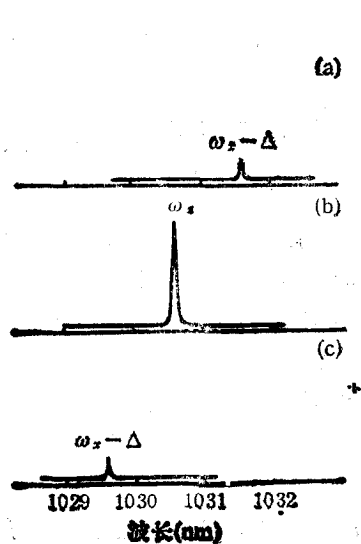


图 1 对应于三个不同泵浦波长的  $1.03\mu\text{m}$  附近相干辐射的调谐行为

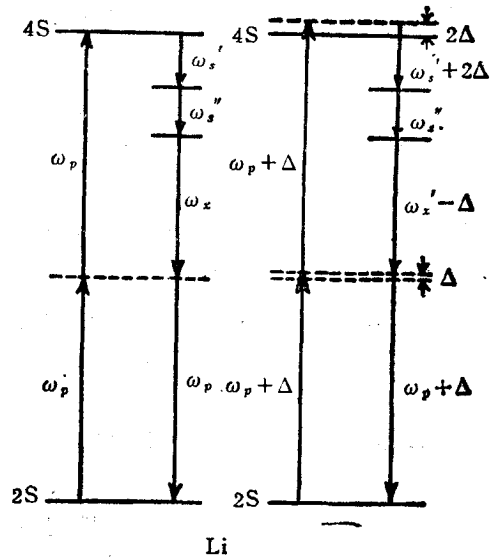


图 2 六波混频示意图 左部为共振泵浦; 右部为离共振泵浦

图 2 示出了产生上述可调谐相干辐射的六波混频过程. 图 2 的左部对应于共振泵浦

情况, 这里  $\omega'_s$  表示双光子泵浦后所产生的 4S—3P 受激辐射频率,  $\omega''_s$  表示由 3P 能级到 3S 能级的串级受激辐射频率, 而  $\omega_p$  表示泵浦光频率. 于是, 由该混频过程所产生的相干辐射频率  $\omega_x$  可表示为

$$\omega_x = 2\omega_p - \omega'_s - \omega''_s - \omega_p. \quad (1)$$

图 2 的右部对应于离共振情况. 假定泵浦频率的离共振量为  $\Delta$ , 也即双光子频率对 4S 能级的离共振量为  $2\Delta$ , 因此

$$\omega'_s = 2(\omega_p + \Delta) - (\omega'_s + 2\Delta) - \omega''_s - (\omega_p + \Delta) = \omega_x - \Delta, \quad (2)$$

这里  $(\omega'_s + 2\Delta)$  为熟知的超喇曼散射频率. 运用上述六波混频公式(1)和(2)所得的计算值与实验测量值符合很好.

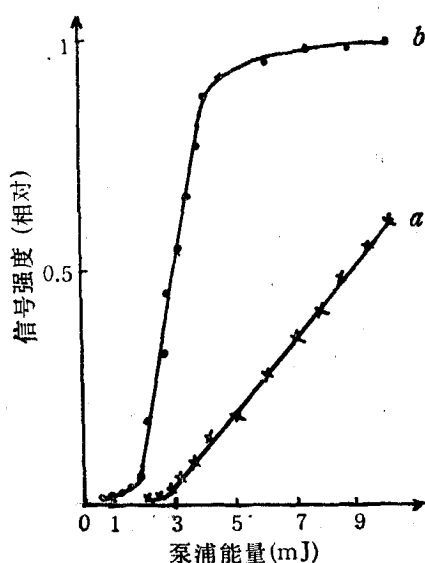


图 3 六波混频信号(曲线 *a* 为  $1.03\mu\text{m}$ )和四波混频信号(曲线 *b* 为  $323.3\text{nm}$ )对泵浦能量的依赖关系

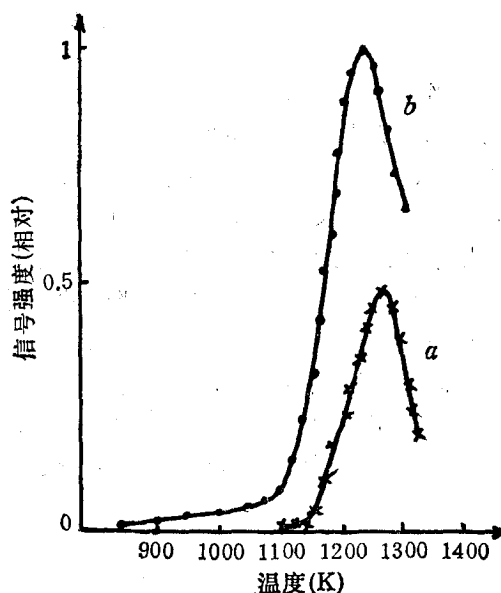


图 4 六波混频信号(曲线 *a* 为  $1.03\mu\text{m}$ )和四波混频信号(曲线 *b* 为  $323.3\text{nm}$ )对蒸气温度的依赖关系

图 3 和图 4 分别示出了六波混频信号 ( $1.03\mu\text{m}$ ) 对泵浦能量和样品蒸气温度的依赖关系. 为比较起见, 同时示出了由四波混频产生的  $323.3\text{nm}$  相干辐射(后详)对泵浦能量和蒸气温度的依赖关系. 可见, 虽然这两种混频过程中均有泵浦光束和超喇曼散射参与, 但与四波混频过程相比, 六波混频的泵浦能量阈值和蒸气浓度阈值都较高. 如果泵浦能量低于  $2.5\text{mJ}$ , 或蒸气温度低于  $1150\text{K}$ , 则  $1.03\mu\text{m}$  信号已难于观察.

2. 当泵浦波长调谐到 2S—4S 双光子共振, 则在前向和后向都可探测到对应于 3S—2P 跃迁的、波长为  $812.6\text{nm}$  的受激辐射.

在较高温度下(例如  $1250\text{K}$ ), 热管内有较高浓度的锂分子. 这时, 通过双光子跃迁, 锂分子被激发到高位电子态的离解区, 分子离解为 3S 和 2S 原子. 于是, 3S 能级获得了有效的布居, 从而产生了由 3S 到 2P 的受激辐射. 这一过程已由作者及其合作者在钾的实验中得到证实<sup>[1]</sup>. 图 5 为由分子双光子离解产生该受激辐射的能级示意图. 这里 A'S:

态为锂分子近共振双光子跃迁的中间增强能态, 虚线表示分子的高位电子态, 斜线区表示离解区. 图 6 为记录到的产生 812.6nm 受激辐射的激发光谱. 图 6 中虚线为泵浦能量的相对光谱分布. 由图 6 可清楚地看出, 除了原子 2S—4S 双光子共振可产生强的串级受激辐射外, 还存在许多对应于被中间能态  $A^1\Sigma_g^+$  中的振-转能级所增强的分子近共振双光子跃迁, 它们也产生了不同强度的 812.6 nm 受激辐射. 需要注意的是, 锂分子基态  $X^1\Sigma_g^+$  的离解能为  $8521.5\text{cm}^{-1}$ <sup>[12]</sup>, 由此可推断形成 3S 原子的离解限约位于  $35727.6\text{cm}^{-1}$ . 因而, 尽管在 595—600nm 区内泵浦输出并不弱, 但却几乎不能产生该受激辐射. 这是因为使用这种长波激发时, 仅能将初始能级位于超过  $2000\text{cm}^{-1}$  的分子激发抵达上述高位离解限. 显然, 这种激发是无效的. 但是, 在短波长区, 尽管泵浦输出已很低, 分子却仍能较有效地由双光子激发而抵达高位离解限.

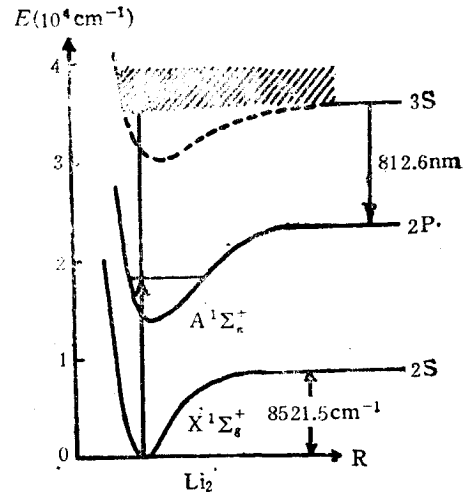


图 5 由锂分子双光子离解而产生 812.6nm (3S—2P) 受激辐射机制图

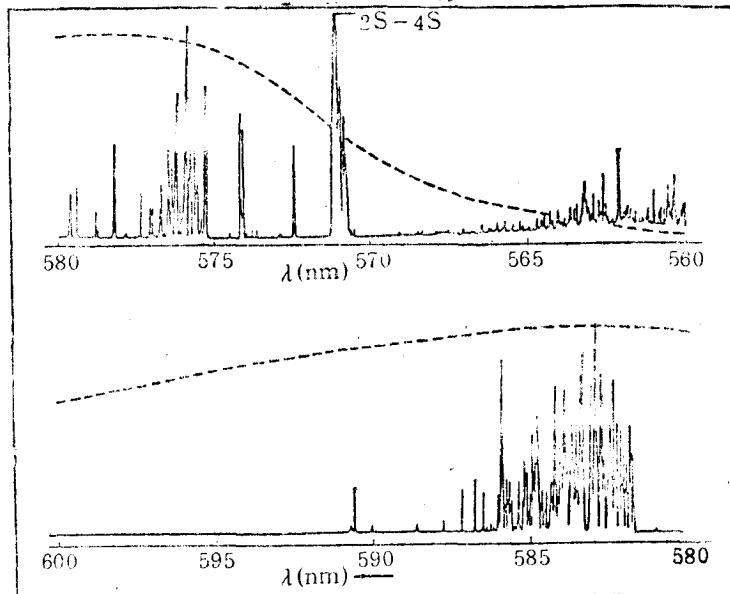
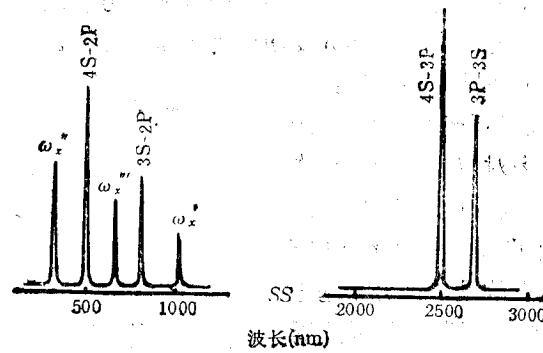


图 6 产生 812.6nm 受激辐射的激发光谱

如果蒸气温度低于 1100K, 那么除了 2S—4S 原子线之外, 几乎所有的分子激发线均消失, 这显然是由于分子浓度太低的缘故.

3. 当实现 2S—4S 双光子共振激发时, 除了上述六波混频过程之外, 还存在四波混频过程, 它产生了紫外和可见区的相干辐射. 图 7 示出了在双光子共振激发时所测得的相

图7 相干和受激辐射信号  $\lambda_p = 571.07 \text{ nm}$ 

干和受激辐射信号。受激辐射信号  $\omega_x''$  (2488 nm) 对应于 4S—3P 跃迁, 受激辐射信号  $\omega_x'''$  (497 nm) 对应于 4S—2P 跃迁。相干辐射  $\omega_x'$  (1.03  $\mu\text{m}$ ) 由前述六波混频产生, 而相干辐射  $\omega_x''$  (323.3 nm) 和  $\omega_x'''$  (670.8 nm) 则分别由下列四波混频过程产生:

$$\omega_x'' = 2\omega_p - \omega_{i_2} \quad (3)$$

$$\omega_x''' = 2\omega_p - \omega_{i_3} \quad (4)$$

正如图 3 和图 4 所示, 四波混频的泵浦能量阈值和蒸气浓度阈值要比六波混频的阈值低。

实验测量是在联邦德国 Hannover 大学进行的, 在此表示感谢。

- [ 1 ] W. Harting, *Appl. Phys.*, **15**(1978), 427.
- [ 2 ] P. L. Zhang, Y. C. Wang and A. L. Schawlow, *J. Opt. Soc. Am.*, **B1**(1984), 9.
- [ 3 ] J. Heinrich and W. Behmenberg, *Appl. Phys.*, **23**(1980), 333.
- [ 4 ] A. V. Smith and J. F. Ward, *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-17**(1981), 525.
- [ 5 ] C. H. Skinner, H. P. Palenius, *Opt. Commun.*, **18**(1976), 335.
- [ 6 ] 王祖赓, 唐小玲, 张开昌, 郑一善, *光学学报*, **6**(1986), 1063.
- [ 7 ] 王祖赓, H. Schmidt and B. Wellegehausen, *Appl. Phys.*, **B44**(1987), 41.
- [ 8 ] B. Nikolaus, D. Z. Zhang and P. E. Toschek, *Phys. Rev. Lett.*, **47**(1981), 171.
- [ 9 ] D. Krökel, K. Ludewigt and H. Welling, *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-22**(1986), 489.
- [ 10 ] A. N. Nesmeyanov, *Vapor Pressure of Chemical Elements*, Akad. Nauk SSR, Moscow, (1961).
- [ 11 ] 王祖赓, 秦莉娟, 马龙生, 林远齐, 郑一善, *Opt. Commun.*, **51** (1984), 155.
- [ 12 ] K. K. Verma, M. E. Koch and W. C. Stwalley, *J. Chem. Phys.*, **78**(1983), 3614.

## TWO-PHOTON PUMPED SIX-AND FOUR-WAVE MIXING AND STIMULATED RADIATION IN LITHIUM VAPOR

WANG ZU-GENG

*(Department of Physics, East China Normal University, Shanghai, 200062)*

(Received 22 February 1989)

### ABSTRACT

This paper reports the generation of the coherent and stimulated radiation in UV, visible and infrared regions by two-photon pumping. It includes the tunable coherent radiation around 1.03  $\mu\text{m}$  generated by a special six-wave mixing process, the stimulated radiation at 812.6 nm generated by molecular two-photon dissociation or atomic cascade transition, coherent radiation at 323.3 nm and 670.8 nm generated by the four-wave mixings.

**PACC:** 4265; 4255; 3280