

Na 原子中 3S—4D 双光子共振增强 紫外相干辐射的观测和研究*

张毓英 黄显玲 孙陶亨

北京大学物理系

1989 年 2 月 27 日收到

用 Na 原子 3S—4D 双光子共振增强的受激超 Raman 散射、四波混频和光泵受激发射过程, 获得 230—340 nm 范围内两组紫外相干辐射, 分析了这一系列紫外相干辐射的产生机制和谱线特性。

一、引 言

长期以来, 利用金属蒸气的非线性效应获得红外和紫外相干辐射一直是人们普遍关心的问题之一。近年来, 为了获得紫外和真空紫外波段的相干辐射, 人们对金属蒸气中的高次谐波、受激 Raman 散射、多波混合以及双光子或多光子的光泵受激发射进行了许多研究并取得一定成果^[1-3]。Na 原子中 3S—4D 双光子激发产生红外相干辐射的过程曾引起许多学者的关注^[4-7], 这不仅是因为这一过程所需的泵浦光正好落在染料激光的强输出波段 (577—595 nm), 而且由于这一跃迁具有特殊的共振增强效应, 能获得很强的红外相干辐射输出, 有重要实际意义。

但是在过去若干年中, 对 Na 原子 3S—4D 双光子激发过程的机制却存在着相互矛盾的解釋^[4,5], 争论的焦点是: 由这一过程直接产生的, 中心波长为 2.3 μm 的可调谐红外相干辐射到底应归属于受激超 Raman 散射 (SHRS) 还是光泵受激发射 (OPSE)? 为了彻底搞清这一问题, 我们对这一过程进行了系统的全面研究。首先测量了由这一过程直接和间接产生的大量红外相干辐射, 其中包括中心波长为 2.3 μm 的宽波段可调谐红外辐射, 2.2, 1.1, 3.4 和 9.1 μm 的红外相干辐射。通过对这些红外辐射的光谱特性、转换效率、相位匹配关系以及正向和反向辐射特征的实验和理论分析, 得出结论: Na 原子 3S—4D 双光子激发过程实际上同时存在三种效应, 即受激超 Raman 散射、光泵受激发射和四波参量混频。三种效应存在着明显的竞争, 具体的实验条件是决定哪一种效应占主导地位的因素。这是对这一过程的全面解释, 有关红外辐射的这部分数据拟另文发表^[8]。

本文所报道的是该项研究中的第二部分, 即我们所观测到的由上述红外相干辐射与泵浦光耦合而成的两组紫外相干辐射, 波长范围为 230—340 nm。它们分别归属于红外

* 中国科学院科学基金资助的课题。

相干辐射光子和两个泵光光子形成的四波差频以及四波和频的结果。其中最强的紫外相干辐射的峰值功率可高达几十千瓦,已具有实用价值。这两组紫外相干辐射的观测结果,为全面解释 Na 原子 3 S—4 D 双光子激发非线性过程提供了新的有力论据。

二、原 理

图 1 是 Na 原子 3 S—4 D 双光子共振增强产生的有关红外相干辐射的能级图。将

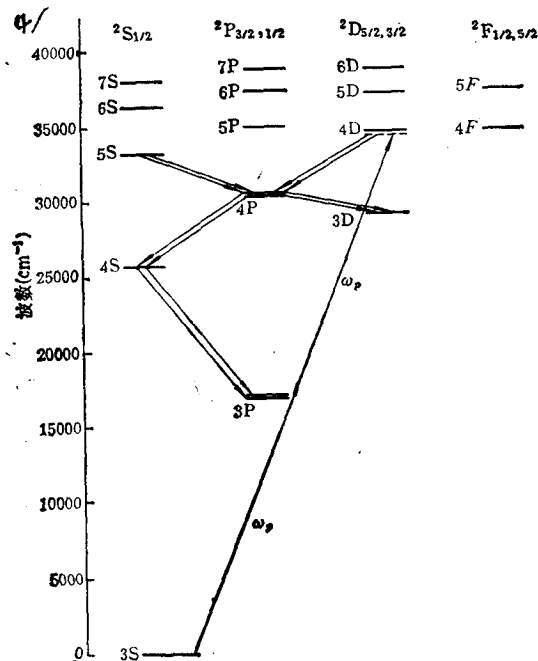


图 1

泵光调到与 Na 原子 3 S—4 D 双光子跃迁共振或近共振(例如 578.84 nm)时,出现的一个主要过程是由自发 Raman 散射诱发的 3 S—4 P 受激超 Raman 散射 (SHRS), 散射光中心波长约为 2.34 μm (设其频率为 ω_{IR})。同时,由泵光 ($2\omega_p$) 与 ω_{IR} 耦合形成的四波参量差频过程,可以得到很强的 330.3 nm 紫外相干辐射。SHRS 过程与 FWDM 过程同时存在且互依存相互竞争^[8]。在一般的情况下,FWDM 过程产生的相干辐射占优势。当泵光非常接近或与 3 S—4 D 双光子跃迁中心频率完全共振时,2.3 μm 的辐射将主要由光泵受激发射 (OPSE) 过程产生。这样 4 D 能级将获得大量的粒子布居,并通过级联跃迁和碰撞能量转移^[9,10]使有关能级获得粒子数布居,产生一系列受激红外辐射。一般来说,这些红外相干辐射有一定的输出

功率,可以与其它强相干光耦合形成新的相干辐射。我们观测到的紫外相干辐射,就是这些红外相干辐射与泵光形成的耦合波。

三、装置和方法

图 2 是实验装置示意图。激发光源是法国 Quantel 公司生产的 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ 激光器泵浦的脉冲染料激光器。选用若丹明 6 G 和若丹明 B 混合染料,波长在 570—610 nm 范围内连续调谐可获得足够的能量。在 579 nm 附近每个脉冲最大输出能量可达 80 mJ,脉宽为 10 ns,脉冲重复率为 10 次/s,不加标准具时激光线宽为 0.5 cm^{-1} ,加标准具后为 0.05 cm^{-1} 。波长调谐的读数精度优于 0.01 nm。

有两个长度不同的热管炉。当需要研究受激 Raman 散射作用时,选用恒温区长约 70 cm 的热管炉,这是因为受激 Raman 散射的增益与样品长度有关。但是对于一般的

四波参量过程来说,信号大小主要取决于相干长度(即相位匹配的情况),单纯增大样品长度不仅无益,有时还会因为自吸收等原因而降低效率。所以在通常情况下选用较短的热管炉,恒温区长约 15 cm。热管炉出射端用 CaF_2 窗片密封,以利于紫外和红外辐射输出,入射端用一般光学玻璃片密封。炉温可在 650°C 以下任意调节,炉温用精密温度控制仪自动控制,炉温稳定度控制在 $\pm 1^\circ\text{C}$ 之内。热管炉内可任意充入 Ar 或 Xe 气作为缓冲气体。实验表明,为得到紫外相干输出,用 Xe 气作缓冲气体相位匹配效果更好一些。本实验的大部分测量是在 Xe 气压为 120 Torr 的条件下进行的。

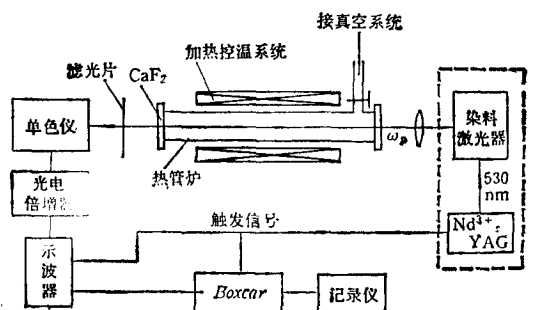


图2 实验装置示意图

信号检测系统由一台 0.3 m 光栅单色仪和一台 Boxcar 积分平均器组成。紫外相干辐射经单色仪分光后进入光电倍增管,光信号变为电信号再送入 Boxcar,最后由记录仪画出光谱。

在观测紫外相干辐射时,要选择焦距合适的聚光透镜,将泵光会聚到热管炉恒温区的中心部位。实验表明,泵光会聚点在热管炉中的位置以及聚焦后光斑的大小对输出信号是有影响的。如果不用聚光透镜或透镜位置放的不合适,输出的紫外相干辐射信号将明显减少。在热管炉的出射端要用滤光片将泵光滤掉,而让所有要观测的紫外相干辐射通过。由于很难找到一块在紫外区较大范围内(230—340 nm)是中性的滤光片,所以波长越短的紫外信号强度损失越大,测得的信号相对强度比原有的偏低。

四、结果与讨论

我们观测和研究了 230—340 nm 范围内的紫外相干辐射,它们分别归属于两种四波参量混频过程。其中一组波长为 230.8(230.7) nm; 255.9(255.8) nm; 257.6(257.5) nm; 266.8 nm 和 280.5 nm。它们的频率分别满足

$$\omega_{\text{紫外}} = 2\omega_p + \omega_{\text{IR}},$$

式中 ω_p 表示入射泵光的频率, ω_{IR} 表示 3S—4D 双光子共振或近共振产生的红外相干辐射频率。

另一组波长为 298.9 nm; 316.3(316.2) nm; 330.3(330.2) nm 和 333.1 nm。它们的频率分别满足

$$\omega_{\text{紫外}} = 2\omega_p - \omega_{\text{IR}}.$$

表 1 给出与上述紫外相干辐射有关的红外相干辐射的波长 λ_{IR} , 相应的能级跃迁和产生机制。

表 2 给出由表 1 中所列诸红外相干辐射与泵光耦合产生的紫外相干辐射的波长 $\lambda_{\text{紫外}}$ 。

表 1

$\lambda_{\text{IR}}(\mu\text{m})$	对 应 的 跃 迁	产 生 机 制
1.138 1.140	$4^2\text{S}_{1/2} \rightarrow 3^2\text{P}_{1/2}$ $4^2\text{S}_{1/2} \rightarrow 3^2\text{P}_{3/2}$	级联受激发射
2.206 2.208	$4^2\text{P}_{3/2} \rightarrow 4^2\text{S}_{1/2}$ $4^2\text{P}_{1/2} \rightarrow 4^2\text{S}_{1/2}$	
2.338 2.341	$4^2\text{D}_{5/2,3/2} \rightarrow 4^2\text{P}_{1/2}$ $4^2\text{D}_{5/2,3/2} \rightarrow 4^2\text{P}_{3/2}$	受激超 Raman 散射, 四波参量混频, 光泵受激发射
3.408 3.414	$5^2\text{S}_{1/2} \rightarrow 4^2\text{P}_{1/2}$ $5^2\text{S}_{1/2} \rightarrow 4^2\text{P}_{3/2}$	
9.091 9.138	$4^2\text{P}_{3/2} \rightarrow 3^2\text{D}_{5/2,3/2}$ $4^2\text{P}_{1/2} \rightarrow 3^2\text{D}_{5/2,3/2}$	级联受激发射

表 2

$\lambda_p(\text{nm})$	$\lambda_{\text{IR}}(\mu\text{m})$	$\lambda_{\text{紫外}}(\text{nm})$ ($\omega_{\text{紫外}} = 2\omega_p + \omega_{\text{IR}}$)	$\lambda_{\text{紫外}}(\text{nm})$ ($\omega_{\text{紫外}} = 2\omega_p - \omega_{\text{IR}}$)
578.84	1.138	230.7	
	1.140	230.8	
	2.206	255.8	333.1
	2.208	255.9	333.1
	2.338	257.5	330.3
	2.341	257.6	330.2
	3.408	266.8	316.3
	3.414	266.8	316.2
	9.091	280.5	298.9
	9.138	280.5	298.9

图 3 是当泵光波长 λ_p 调至 578.84 nm 时测得的紫外光谱。其中除个别谱线 (276.3 nm) 目前尚未找到确实证据确定其归属外, 其它所有谱线的频率都符合上述表 2 列出的四波参量混频的关系。其中 330.3(330.2)nm 线最强, 其脉冲峰值功率可达几万瓦数量级, 频率转换效率大于 3%, 远远大于其它谱线。这些紫外辐射都有很好的方向性, 当单色仪离开热管炉出射窗口数米远时仍能观测到这些紫外谱线。对于 330 nm 线, 可在 10 m 以外远处用荧光纸观测到很好的远场光斑。紫外相干辐射强度与泵光能量的关系如图 4 所示。可以看出紫外输出信号随泵光能量的增加而明显增大, 当泵光能量大于 13 mJ 时, 信号开始有饱和趋势。

由于参与耦合的红外相干辐射是由不同的非线性效应产生的, 而这些不同的非线性过程与泵光失谐情况的依赖关系是不同的, 因而相应的紫外相干辐射与泵光失谐情况的依存关系也不相同。例如在本实验条件下, 对于 2.34 μm 红外辐射, 泵光的失谐量在长波端 (大于 578.7 nm) 可达 1 nm 以上, 而在短波端则只有 0.3 nm, 表现出明显不对称的特点^[8]。而与 2.34 μm 相关的四波差频和四波和频的紫外信号, 它们与泵光失谐情况的

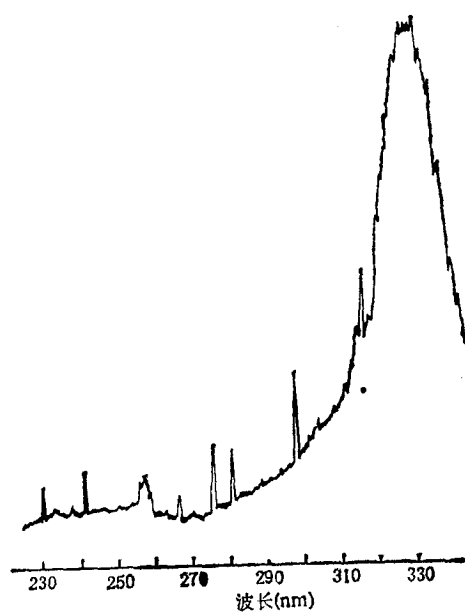


图3 泵光为 578.84 nm 时测得的紫外光谱

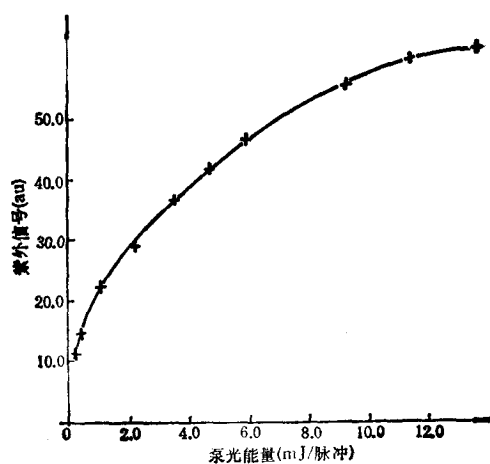


图 4

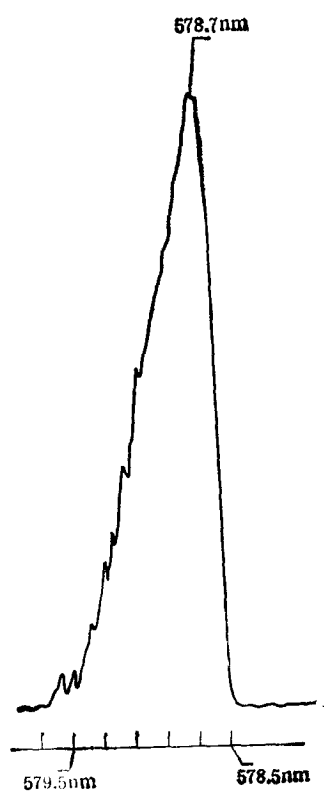


图5 257.6 nm 的紫外信号与泵光波长的关系

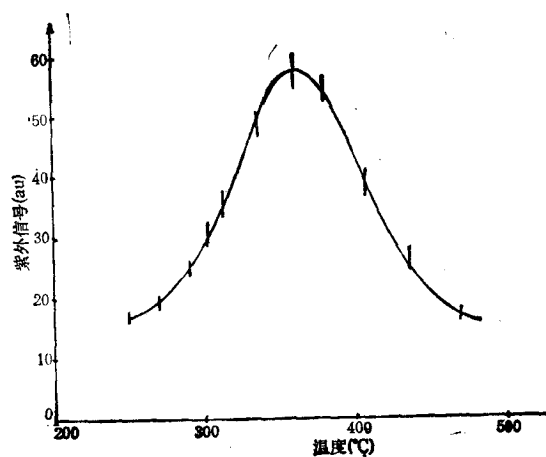


图 6

关系也有同样的不对称特性,图 5 是 257.6 nm 的紫外信号与泵光波长之间的关系。

相位匹配和粒子浓度对四波参量过程都是至关重要的。选用 Xe 气作缓冲气体并起到相位匹配作用。实验表明, Xe 气压大于 100 Torr 可以获得较强的紫外相干辐射。也用 Ar 气作过实验,效果不如 Xe 气好。热管炉温度决定 Na 原子的浓度,也对相位匹配有影响。图 6 是一条典型的紫外信号强度与温度的关系曲线,最佳温度在 360℃。

在实验中得到夏宗炬的热情支持和帮助,作者深表谢意。

- [1] G. Hiber, A. Lago and R. Wallenstein, Generation and Application of Tunable VUV Radiation at 50 to 200nm, invited paper on IQEC' (1988), Tokyo. Japan Digest of IQEC, (1988), 10.
- [2] D. Gauthier, J. Krasinski and R. W. Boyd, *Opt. Lett.*, 8(1983), 211.
- [3] S. E. Harris *et al.*, Generation of UV and VUV Radiation, «Laser Application to Optics and Spectroscopy», Ed. by S. Jacobs, M. Sargent and J. Scott, Addison Wesley Publishing Company, (1975), pp. 181—197.
- [4] D. Cotter *et al.*, *Optics Commun.*, 22(1977), 190.
- [5] W. Hartig, *Appl. Phys.*, 15(1978), 427.
- [6] W. Müller and I. V. Hertel, *Appl. Phys.*, 24(1981), 33.
- [7] J. R. Taylor, *Optics Commun.*, 18(1976), 504.
- [8] 孙驹亨等, *Optics Commun.*, (待发表).
- [9] M. Allegrini *et al.*, *Phys. Rev.*, A32(1985), 2068.
- [10] 刘琴,孙驹亨, *Chinese Phys. Lett.*, 6(1989), 8.

A STUDY OF 3S-4D TWO-PHOTON RESONANCE ENHANCED UV COHERENT RADIATION IN SODIUM VAPOUR

ZHANG YU-YING HUANG XIAN-LING SUN TAO-HENG

Department of Physics, Peking University

(Received 27 February 1989)

ABSTRACT

Using the two-photon resonance enhanced SHRS, FWM and OPSE processes in sodium vapour, the two sets of the UV coherent radiation in 230 nm—340 nm have been observed, and the characteristics of these UV radiation are presented and discussed.