

汞蒸汽中利用四波和频产生 125nm 附近 可调谐真空紫外激光*

张玉珂 朱宝强 邹英华

北京大学物理系, 北京, 100871

1990 年 12 月 18 日收到

以氙为匹配气体的汞蒸汽四波和频实验中, 一束泵浦光 (ω_1) 与汞原子 $6^1S_0-7^1S_0$ 严格双光子共振, 当另一束泵浦光 (ω_2) 在汞原子 $7^1S_0-9^1P_1$ 跃迁的蓝端调频时, 产生可调谐的真空紫外 (VUV) 激光 ($\omega_s = 2\omega_1 + \omega_2$), 其波长可调谐范围为 124.80—125.06nm. 用小信号近似下的四波和频理论对实验结果进行分析. 特别着重讨论了影响最佳相位匹配的因素和在弱泵浦光条件下增大调谐范围的途径.

PACC: 4265K

一、引 言

为满足军事和科学研究的需要, 近年来人们对于在 VUV, 极紫外 (extreme ultra violet 缩写成 XUV) 和 X 射线波段产生激光, 特别是可调谐激光, 引起越来越大的兴趣. 利用气态介质的三阶或高阶非线性光学效应, 将长波长的激光变换至短波长激光, 是达到目的途径之一^[1-3]. 在氙气中已观察到 YAG:Nd³⁺ 1.06 μm 激光的 33 次谐波, 而 KrF* 准分子激光 (248nm) 在氙气中的 17 次谐波也已产生 14.6nm 的相干辐射. 这类高次谐波的实验需要吉瓦 (10^9W), 甚至更高功率的大型激光系统做泵浦源, 产生的激光也不具备调谐性, 因此在推广应用方面受到一定限制. 相比起来, 四波混频方法更具有吸引力^[4-7]. 充分利用近年来在紫外倍频晶体材料研究的成果将染料激光变换为可调谐的紫外激光, 然后通过气态介质的最低级非线性效应进行频率变换. 由于利用了双光子或单光子共振增强, 这种四波混频实验对泵浦功率要求大为降低, 通常兆瓦或更低功率和激光就可以有效地变换到 VUV 甚至 XUV 波段.

目前, 已在 Xe, Kr, Ar, Ne, Sr, Mg, Be, Zn 和 Hg 等^[8,9]一系列介质中进行成功的实验. 利用四波混频方法产生的 VUV 和 XUV 可调谐激光开始在科学研究中得到应用. 例如, 已用来从事原子或简单分子的高分辨 ($1+1$) 光电离光谱的研究^[10]. 另外, 可以通过研究共振增强的四波和频精确地确定里德伯态能级的振子强度^[11].

本文报道在汞蒸汽中利用 $6^1S_0-7^1S_0$ 双光子共振与 $7^1S_0-9^1P_1$ 单光子共振增强的四

* 国家 863 高技术项目资助的课题.

波和频产生真空紫外激光辐射。实验记录了双光子、单光子共振增强效应与输出强度随入射光强的关系, 并与小信号近似下的四波和频理论结果进行对比分析。着重研究了影响相位匹配的几个因数, 目的是探讨在弱泵浦功率下如何实现大调谐范围的途径。

二、理 论

图 1 为汞原子与四波和频有关的部分能级图。泵浦光 (ω_1) 与 $6^1S_0-7^1S_0$ 双光子共振, 当泵浦光 (ω_3) 在 $7^1S_0-9^1P_1$ 跃迁的蓝端调谐时产生四波和频光 ($\omega_4 = 2\omega_1 + \omega_3$), 其波长在 125nm 附近具有可调谐性。

四波和频是一个三阶非线性光学效应, 它对应三阶非线性极化率 $\chi^{(3)}(-\omega_4, \omega_1, \omega_1, \omega_3)$, 可由三阶非线性极化率的普遍表达式中推出, 后者的严格表达式共有 48 项^[12]。对于如图 1 所示的具有双光子共振和单光子共振增强的四波和频过程, 可以忽略大部分的非共振项, 得到

$$\chi^{(3)}(-\omega_4, \omega_1, \omega_1, \omega_3)$$

$$= \frac{Ne^4}{4\hbar^3} \sum_n \{ (r)_{9^1P_1-6^1S_0}(r)_{9^1P_1-7^1S_0}(r)_{7^1S_0-n} \\ (r)_{n-6^1S_0} \} / \{ (\omega_{n-6^1S_0} - \omega_1)(\omega_{7^1S_0-6^1S_0} - 2\omega_1 - i\Gamma_{7^1S_0})(\omega_{9^1P_1-6^1S_0} - \omega_4 - i\Gamma_{9^1P_1}) \}, \quad (1)$$

其中 $\omega_{n-6^1S_0}$, $\omega_{7^1S_0-6^1S_0}$ 和 $\omega_{9^1P_1-6^1S_0}$ 分别表示相应能级间的跃迁频率, $\Gamma_{7^1S_0}$ 与 $\Gamma_{9^1P_1}$ 分别为 7^1S_0 、 9^1P_1 两能级的阻尼系数, $(r)_{n-6^1S_0} \cdots$ 表示相应能级间跃迁矩阵元, N 为汞原子密度, e 为电子电荷, (1) 式中的求和号表示对所有可能的中间态 $|n\rangle$ 求和。

利用(1)式, 可以在一些近似条件下求解波动方程, 推出四波和频过程输出光强 (I_4) 表达式。在平面波情形下, 利用慢变振幅和小信号近似, 文献[7]给出 I_4 的表达式

$$I_4 \propto L^2 |\chi^{(3)}(-\omega_4, \omega_1, \omega_1, \omega_3)|^2 I_1^2 I_3 \sin^2 \left(\frac{\Delta k L}{2} \right), \quad (2)$$

其中 L 为热管炉中汞蒸汽的有效作用长度, I_1 为泵浦光 (ω_1) 的光强, I_3 为泵浦光 (ω_3) 的光强, 而 Δk 为四波和频过程的波矢失配。在共线情况下,

$$\Delta k = k_4 - (2k_1 + k_3) = \frac{n_4 \omega_4}{c} - \left(\frac{2n_1 \omega_1}{c} + \frac{n_3 \omega_3}{c} \right) \\ = \Delta n_4 \omega_4, \quad (3)$$

式中 k_i 和 n_i ($i = 1, 2, 4$) 分别为第 i 束激光的波矢与其在介质中传播时的折射率。在本实验中, $n_1 = n_3 \approx 1$, $n_4 = 1 + \Delta n_4$ 。 Δn_4 为 $6^1S_0-9^1P_1$ 单光子跃迁引起的介质折射率的变化。由 Sellmeier 方程^[14]得到

$$\Delta n_4 = \frac{N r_e}{2\pi} \frac{\rho_{6^1S_0} f_{6^1S_0-9^1P_1}}{\lambda_{6^1S_0-9^1P_1}^2 - \lambda_4^2}, \quad (4)$$

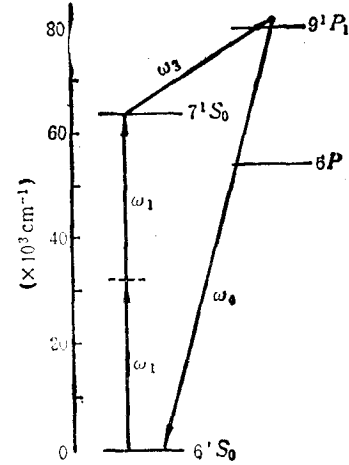


图 1 产生四波和频的部分汞原子能级 $\omega_4 = 2\omega_1 + \omega_3$

其中 r_e 为电子经典半径, $\rho_6^1s_0$ 为 6^1S_0 能级的粒子数布居, $f_6^1s_0 \rightarrow 9^1P_1$, $\bar{\lambda}_6^1s_0 \rightarrow 9^1P_1$ 为所示两能级间跃迁的振子强度和跃迁波数, $\bar{\lambda}_4$ 为和频光 (ω_4) 所对应的波数.

实际工作中通常用透镜将泵浦光聚焦, 以提高在汞蒸汽中的光强 I_1 和 I_3 , 从而获得高的泵浦功率. 在此情况下需要修正平面波近似下的结果. 文献[13]利用傅里叶变换方法得到聚焦高斯光束的情况下 I_4 的表达式. 当聚焦后高斯光束的共焦参数 b 与非线性介质有效长度 L 相比并不是非常小的情况下, I_4 的表达式仍可以近似地表示为(1)式, 只需将式中 Δk 用 Δk_{eff} 代替, 而

$$\Delta k_{\text{eff}} = \Delta k + \frac{4}{b}. \quad (5)$$

事实上影响相位匹配的因素有三个: 一是(4)式所决定的汞蒸汽的色散; 二是缓冲气体氩带引入的色散; 第三个因素是以上讨论中未考虑的, 即两束泵浦光偏离共线传输而以微小角度在介质中相交时带进的修正. 在实验结果讨论时, 将对影响相位匹配的所有因素进行详细分析.

三、实验装置

图2中 DYE1 是由一台调 Q YAG:Nd³⁺ 激光的二次谐波泵浦的 DCM 染料激光器 (DATACHROM-5000, 法国 Quantel 公司). 在波长 $\lambda_L = 625.5\text{nm}$ 处输出单脉冲能量为 8mJ 左右, 激光脉宽为 10ns, 线宽为 0.5cm^{-1} . DYE2 是一台自制的一级放大染料激光器, 其泵浦光是泵浦 DYE1 剩余的一部分 $1.06\mu\text{m}$ YAG:Nd³⁺ 激光经一 KDP 晶体倍频而得到, DYE2 也使用 DCM 染料, 在 623.0nm (ω_3) 附近输出能量为 0.5mJ, 线宽为 0.3cm^{-1} . 由 DYE1 出射的激光经另一 KDP 晶体(即图2中所示)倍频为 312.8nm 附近可调谐紫外相干辐射 (ω_1), 倍频晶体的转换效率约为 10%. 反射镜 M_3 — M_5 为一光学延时器以使 ω_1 , ω_3 最终能同时到达汞热管炉 (HPO) 中心. 热管炉的入射窗片由石英制成, 炉内还充有一定气压的氩气用来做匹配气体并保护两个窗片, 通常热管炉内汞蒸汽的有效长度约为 5cm. 为使 ω_1 , ω_3 接近共线, 用一石英棱镜把 ω_1 和 ω_3 折向同一方向. 在热管炉前, 一焦距为 23cm 的石英透镜把 ω_1 , ω_3 聚焦到热管炉中心. 通过远场发散角测量,

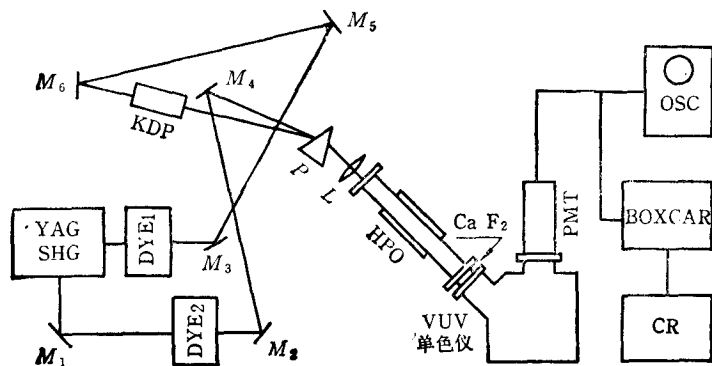


图2 实验装置

算出泵浦光在热管炉内的共焦参数 b 约为 2cm。在热管炉与真空紫外单色仪之间,有一可透过真空紫外的氟化钙窗片隔开。真空单色仪是美国 ARC 公司的 0.25m VM-502 型。单色仪出射狭缝后,装有太阳盲光电倍增管 (PMT),为日本 HAMAMATSU 的 R1459 型。四波和频产生的真空紫外输出信号经 PMT 输出后同时送入示波器和 BOXCAR 积分器。最后信号由记录仪 (CR) 记录。实验中示波器与 BOXCAR 积分器由一光电二极管接收光信号而实现同步。

四、实验结果与讨论

实验研究围绕提高四波和频输出光强 I_4 和扩大其调谐范围两个方向进行。充分利用非线性极化率 $\chi^{(3)}(-\omega_4, \omega_1, \omega_1, \omega_3)$ 的共振增强效应可大大提高四波和频过程的输出光强 (I_4)。

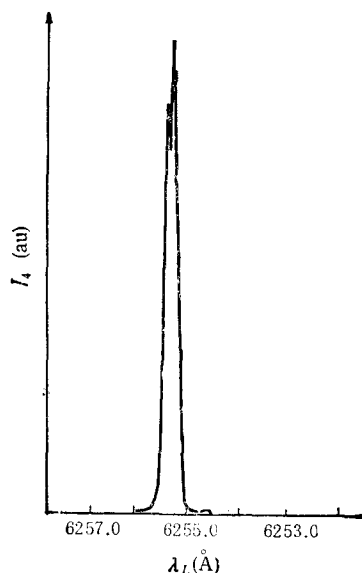


图3 四波和频的 $6^1S_0-7^1S_0$ 双光子共振增强
 $P_{Hg} = 1.6\text{Torr}$; $P_{Ar} = 12\text{Torr}$; DYE1 能
 量为 7.5mJ; DYE2 能量为 0.5mJ;
 $\lambda_3 = 623.1\text{nm}$

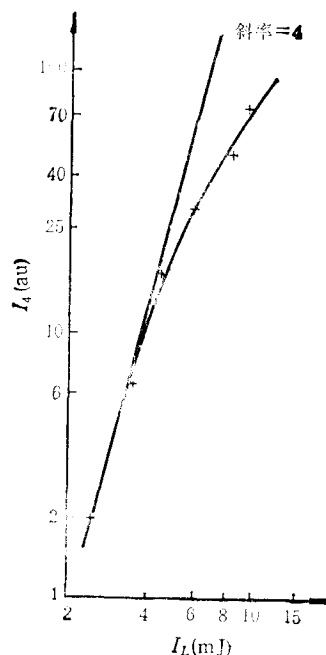


图4 四波和频的真空紫外输出能量与 DYE1 能
 量关系 $P_{Hg} = 1.6\text{Torr}$; $P_{Ar} = 12\text{Torr}$; DYE2
 能量为 0.5mJ; $\lambda_3 = 623.1\text{nm}$

图3记录了固定 ω_3 波长扫描 ω_1 所得到的共振增强曲线。其半极大值全宽度 (FWHM) 为 0.03nm (相对于 λ_L), 相当于 ω_4 处 3cm^{-1} 的宽度。对于 ω_4 的 FWHM 的基本贡献来自 DYE1 的 2.0cm^{-1} , DYE2 的 0.3cm^{-1} , 同位素线宽 0.3cm^{-1} 及小于 0.1cm^{-1} 的自然线宽与多普勒线宽。显然图3中的共振已出现饱和,这是因为在焦点附近,泵光能量密度高达 $10^{10}\text{W}/\text{cm}^2$ 的数量级,由此引起的双光子共振的三光子电离和功率加宽等导致双光子共振的饱和。然而,即使出现饱和,从双光子共振曲线的宽度可以看出,通过扫

描泵浦光 ω_1 可实现的 I_4 的调谐范围非常小。通常把 ω_1 调到严格的双光子共振上, 利用 ω_3 的扫描而达到调谐输出波长的目的。

图 4 为四波和频的输出光强 (I_4) 与染料激光光强 (I_L) 的关系曲线。因为紫外倍频 KDP 晶体的转换效率只有 10% 左右, 其紫外输出光强 (I_1) 应正比于 I_L 的平方。于是由(2)式, I_4 与 I_L 应该有四次方依赖关系。由图 4 可以看出, 当 $I_L > 4\text{mJ}$ 时, 实验点开始偏离四次方依赖关系, 表明输出出现饱和。图 3 对应的染料激光能量为 7.5mJ, 明显处在饱和区域。由于饱和现象的存在, 依靠提高染料激光强度 I_L 而增加四波和频的输出将大受影响。

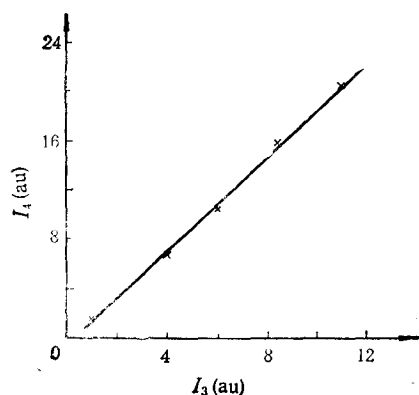


图 5 四波和频的真空紫外输出能量与 DYE2 能量关系 $P_{Hg} = 1.6\text{Torr}$;
 $P_{Ar} = 35\text{Torr}$; DYE1 能量为 8mJ;
 $\lambda_1 = 623.1\text{nm}$

图 5 为四波和频输出光强 (I_4) 与另一泵浦光光强 (I_3) 的关系曲线。可以看出, 在 DYE2 的输出范围内, 输出一直没有饱和, 因此可以通过提高 I_3 而大大增加真空紫外输出能量。

四波和频输出与泵浦光 (ω_3) 的波长依赖关系比较复杂, 因为非线性极化率 $\chi^{(3)}(-\omega_4, \omega_1, \omega_1, \omega_3)$ 的单光子共振增强效应、最佳相位匹配和四波和频输出的调谐范围都与泵浦光 (ω_3) 的波长有关。

由(1)式, 在双光子严格共振条件下, ω_3 越接近 $\omega_3^1P_1-7^1S_0$ (从而 ω_4 越接近 $\omega_3^1P_1-6^1S_0$), 将出现明

显的单光子共振增强效应。但由 Sellmeier 方程知, 汞蒸汽对 ω_4 的折射率的影响随之增大 (即 $|\Delta n_4|$ 增大), 为了维持最佳相位匹配条件, 必须降低汞蒸汽密度。这又反过来减小汞蒸汽的四波和频非线性极化率 $\chi^{(3)}(-\omega_4, \omega_1, \omega_1, \omega_3)$ 。有两个方法可以有助于这个矛盾的解决。其一是提高匹配气体 (氙气) 压强, 利用其正色散抵消汞蒸汽负色散的增加; 另一方案是让两束泵浦光以微小角度在汞蒸汽中交叉而不再共线。

在本实验中氙气具有正色散特性, 它引起的波矢失配 Δk_{Ar} 为一个正值且与氙气压强成正比。本实验观察过满足最佳相位匹配时 ω_3 波长与氙气压强的依赖关系, 发现随着氙气压强的增加, 最佳 ω_3 波长向长波移动而靠近 $7^1S_0-9^1P_1$ 跃迁波长。但在几百托的氙气压强改变之下, 移动范围仅为 0.3nm 左右 (相对于 ω_3)。因此, 在实验中采取固定 P_{Ar} 而通过调节两束泵浦光交叉角来影响最佳相位匹配。

如图 6 所示, 由两泵浦光的微小交叉将引入一附加波矢失配 Δk_{cross} ,

$$\Delta k_{cross} = 2\pi(2\lambda_1)(1 - \cos\theta_1) + 2\pi(\lambda_3)(1 - \cos\theta_2), \quad (6)$$

其中 λ_1 和 λ_3 分别为泵浦光 ω_1 和 ω_3 所对应的波数, θ_1, θ_2 如图 6 所示。

由(6)式知, Δk_{cross} 始终为非负值。另外, θ_1 和 θ_2 均可以用两泵浦光波矢间夹角 α 来表示, 因此可由(6)式计算出不同 α 对应的 Δk_{cross} 。计算表明, 微小的交叉角就可以产生较大的 Δk_{cross} , 实验过程中, α 角的调节对四波和频输出的影响非常大。

综合以上讨论, 有效波矢失配

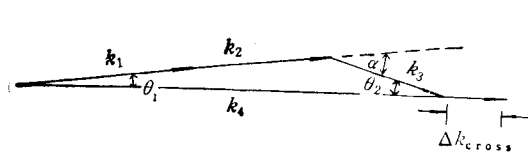


图6 非共线相位匹配

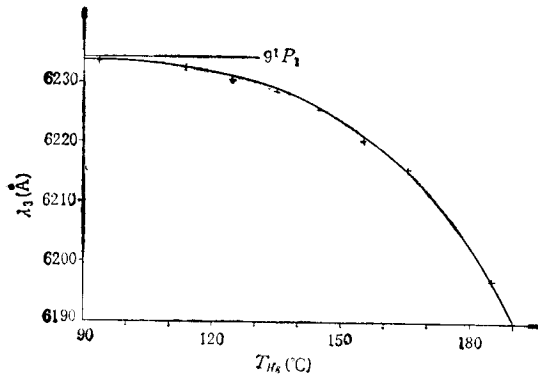


图7 四波和频输出峰值波长位置 λ_3 随汞蒸汽温度 T_{Hg} 变化关系 $\lambda_L = 625.5\text{nm}$; $P_{Ar} = 30\text{Torr}$; DYE1 能量为 7.5mJ ; DYE2 能量为 0.07mJ ; $\alpha = 1.4^\circ$

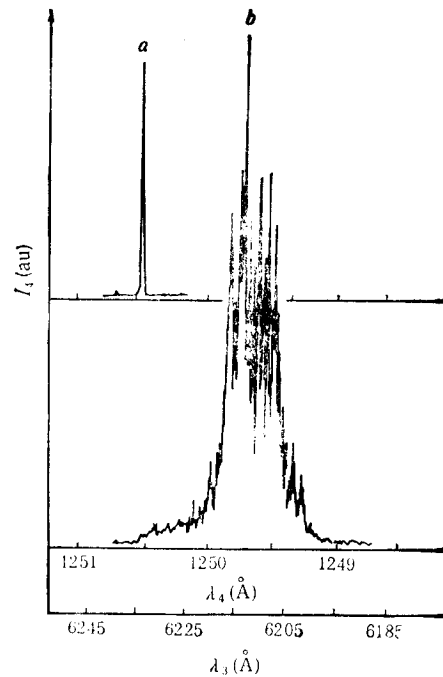


图8 四波和频的真空紫外输出 $\lambda_L = 625.5\text{nm}$; $P_{Ar} = 40\text{Torr}$; DYE1 能量为 7.5mJ ; DYE2 能量为 0.07mJ ; $T_a = 94^\circ\text{C}$; $T_b = 165^\circ\text{C}$

$$\Delta k_{eff} = \Delta n_4 \omega_4 + \frac{4}{b} + \Delta k_{Ar} + \Delta k_{cross} \quad (7)$$

而最佳相位匹配条件为 $\Delta k_{eff} = 0$ ，按(2)式，这时四波和频输出在其调谐曲线上达到极大。将 Sellmeier 方程代入(7)式后发现：当两束泵光(即 ω_1 和 ω_3)入射夹角 α 和聚焦情况确定，氙气压强又一定时，四波和频输出的上述极值对应波长(即 λ_4 ，在严格双光子共振四波和频过程中，它将与泵光波长 λ_3 有一一对应关系)将由汞原子密度 N 确定。后者取决于一定温度下汞的饱和蒸汽压强，于是四波和频输出峰值波长将随汞蒸汽温度而变。

图7表示四波和频输出峰值位置(用 ω_3 的波长表示)随汞蒸汽温度变化的情形。图7中“+”表示实验点。每一实验点对应一确定温度下扫描 ω_3 得到的 VUV 激光调谐曲线峰值波长的测量。图7中曲线为最佳相位匹配条件下按(7)式拟合得到的。拟合时有关参数分别为 $b = 2\text{cm}$ ， Δk_{Ar} 由氙气色散公式推出为 0.5 ，最后设 $\alpha = 1.37^\circ$ ，按(6)式算得 $\Delta k_{cross} = 23.1$ 。此外，汞的饱和蒸汽压数据取自文献[15]。图7表明理论与实验结果符合较好。

ω_3 波长接近 $7^1S_0 - 9^1P_1$ 共振时，还将影响到真空紫外输出 I_4 的调谐范围。根据小信号理论，见(2)式，调谐范围将取决于 $\text{sinc}^2(\Delta k_{eff}L/2)$ 函数的主峰所对应的 $\Delta k_{eff}L$ 变化范围($\approx 4\pi$)。当靠近单光子共振时，根据(4)式，汞蒸汽色散急剧上升，对应上述 $\Delta k_{eff}L$ 确定范围的 ω_3 的波长变化范围(即 I_4 的调谐范围)将明显减小。

图8为两不同温度下的 VUV 输出调谐曲线。图8中曲线 a 对应 94°C ，曲线 b 对应

165℃. 从两条曲线比较中可以看出. 在不同温度下调节 ω_3 时, VUV 输出调谐范围不同. 由图 7, 温度越高, 满足最佳相位匹配条件的 ω_3 将越偏离单光子共振, 由于汞蒸汽的色散减小, 因而可调谐的范围越宽; 反之, 温度越低时, 调节 ω_3 的 VUV 输出范围越小. 图 8 表明, 调节 ω_3 可获得可调谐 VUV 输出, 扩大汞蒸汽温度使用范围, 可以扩大 VUV 波长覆盖范围. 本实验中汞蒸汽的温度范围在 94—184℃ 之间, 结合扫描 W_1 所得 VUV 输出波长范围为 124.80—125.06nm.

另外一种可以增大调谐范围的有效方法是增大泵浦能量. 实验发现, 在 DYE2 输出能量为 0.07mJ 时, 只是在 9^1P_1 的蓝端观察到输出信号. 值得注意的是, 在另一个实验中, DYE2 输出能量为 0.5mJ 时, 在红端也有小信号输出, 其强度约为蓝端信号强度的几十分之一. Wallenstein^[5] 等人分析了这种现象, 认为是在汞蒸汽密度存在梯度的区域中依赖光强的折射率变化引起的非线性相移造成的. 从扩展调谐范围的角度看, 增加入射强度成为扩展调谐范围的一种有效方法. 利用 DYE1 输出的 KDP 倍频后剩余的 625.5nm 激光为第二个泵浦光时, 在 7^1S_0 — 9^1P_1 红端有非常强的输出^[16], 充分说明通过增加 DYE2 能量增大四波和频输出调谐范围的可行性.

五、结 语

本文研究了利用 6^1S_0 — 7^1S_0 双光子共振与 7^1S_0 — 9^1P_1 单光子共振增强的汞的四波和频过程. 着重分析了小信号情况下影响相位匹配的诸因素, 提出了获得高输出功率与大调谐范围四波和频输出的可行方法. 这些工作对于理解四波和频过程和利用四波和频方法产生更短波长的真空紫外激光辐射将有所帮助.

张晓明参加了部分研究工作, 夏宗炬老师曾给我们热情的帮助, 特表示衷心感谢.

- [1] John E. Reintjes, *Nonlinear Optical Parametric Processes in Liquids and Gases*, Academic Press, INC. (1984).
- [2] X. F. Li *et al.*, *Phys. Rev.*, **A39**(1989), 5751.
- [3] A. G. McPherson *et al.*, *J. Opt. Soc. Am.*, **B4**(1987), 595.
- [4] R. Mahon and F. S. Tomkins, *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-18**(1982), 913.
- [5] R. Hilbig and R. Wallenstein, *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-19**(1983), 1759.
- [6] P. R. Herman and B. P. Stoicheff, *Opt. Lett.*, **10**(1985), 502.
- [7] 黄显玲、夏宗炬、邹英华, *物理报学*, **39**(1990), 1385.
- [8] R. Hilbig *et al.*, *AIP Conference Proceedings: Laser Techniques in the Extreme Ultraviolet*, OSA, Boulder Colorado, (1984), (119) (1984), 1.
- [9] B. P. Stoicheff *et al.*, in *Proceedings of the Topical Meeting on Laser Techniques for Extreme Ultraviolet Spectroscopy*, AIP, New York, (2) (1982), p. 485.
- [10] T. Trical, M. J. J. Vrakking, E. F. Cromwell, Y. T. Lee and A. H. Kung, *Phys. Rev.*, **A39**(1989), 2948; T. Trical, E. F. Cromwell, Y. T. Lee and A. H. Kung, *J. Chem. Phys.*, **91**(1989), 6006.
- [11] A. V. Smith and W. J. Alford, *Phys. Rev.*, **A33**(1986), 3172; W. J. Alford and A. V. Smith, *Phys. Rev.*, **A36**(1987), 641.
- [12] Y. Prior, *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-20**(1984), 37.
- [13] G. C. Bjorklund, *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-11**(1975), 287.
- [14] R. B. Miles and S. E. Harris, *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-9**(1973), 470.
- [15] John L. Margrave, *The Characterization of High-temperature Vapors*, New York, Wiley, (1967). p. 478.

[16] 张晓明、朱宝强、邹英华, 光学学报待发表.

GENERATION OF TUNABLE VUV LASER NEAR 125nm BY FOUR-WAVE SUM MIXING IN Hg VAPOR

ZHANG YU-KE ZHU BAO-QIANG ZOU YING-HUA

Department of Physics, Peking University, Beijing, 100871

(Received 18 December 1990)

ABSTRACT

Tunable VUV laser ($\omega_4 = 2\omega_1 + \omega_3$) in the range of 124.80—125.06nm is generated by four-wave sum mixing in Hg vapor with Ar as buffer gas, when one of the pump beams (ω_1) is tuned exactly to 6^1S_0 — 7^1S_0 two-photon resonance and another pump beam (ω_3) on the blue side of 7^1S_0 — 9^1P_1 transition. The experimental results are analysed with the small signal four-wave sum mixing theory. The factors affecting the best phase matching condition and the methods to expand the tunable range of VUV output in the weak pump case are discussed.

PACC: 4265K