

# Hg 蒸汽中通过双光子共振四波差频 产生调谐真空紫外辐射

黄显玲 夏宗炬 邹英华

北京大学物理系,北京,100871

1989 年 9 月 29 日收到

利用 Hg 原子  $6^1S_0-6^1D_2$  和  $6^1S_0-6^3D_2$  双光子共振的四波差频 ( $2\omega_1-\omega_2$ ), 获得了真空紫外相干辐射 ( $\omega_3$ ). 当入射光之一 ( $\omega_1$ ) 波长调谐时, 产生的真空紫外光也是调谐的, 调谐范围为 184.9—187.5nm. 本文对非线性频率变换过程的机理, 如双光子和单光子共振增强效应, 相位匹配等进行了研究. 对影响转换效率的有关竞争过程和饱和效应作了分析. 利用产生的调谐真空紫外辐射记录了空气中 O<sub>2</sub> 分子的吸收谱.

PACC: 4265K; 3220J; 5170

## 一、引 言

近年来, 对短波长 (UV, VUV, XUV 和软 X 射线) 激光的产生日益引起重视<sup>[1]</sup>. 用三级非线性效应 (三次谐波, 双光子共振的四波和频或差频) 可以在气态介质中产生波长在 200nm 以下甚至 100nm 以下的相干光.

为了产生波长尽可能短的相干光, 通常采用高电离电位的原子气体, 如惰性气体和 Hg 原子等某些金属蒸汽作为非线性介质. Hg 蒸汽中的四波参量过程, 双光子共振的四波和频和差频等已有一些报道<sup>[2]</sup>, 获得了脉冲峰值功率为千瓦数量级的真空紫外辐射. 当采用不同染料激光作为晶体的二次谐波泵浦源时, 产生的真空紫外辐射的波长覆盖范围已相当可观, Herman 等人<sup>[2]</sup>甚至报道了用四波和频方法产生 105—87.5nm 的短波长辐射.

本文报道在 Hg 蒸汽中利用  $6^1S_0-6^1D_2$  和  $6^1S_0-6^3D_2$  双光子共振的四波差频产生真空紫外辐射的工作. 着重研究了这一非线性频率变换的物理机理, 包括双光子共振和单光子共振增强, 相位匹配的方法以及影响转换效率的竞争过程和饱和效应等. 这些知识对于进一步在 Hg 蒸汽中通过四波和频获得更短波长的调谐相干辐射的研究是有益的.

## 二、原 理

图 1 为 Hg 原子中四波差频过程和有关能级的示意图.

若丹明 6G 染料激光在 KDP 晶体中倍频产生的 280nm 附近调谐的紫外辐射, 作为与 Hg 原子  $6^1S_0-6^1D_2$  或  $6^1S_0-6^3D_2$  双光子共振的泵浦源 ( $\omega_1$ ), 另一束入射光 ( $\omega_3$ ) 由同一若丹明染料激光器或另一台染料激光器提供.  $\omega_3$  接近  $6^1D_2-6^1P_1$  或  $6^3D_2-6^1P_1$  单光子共振. Hg 蒸汽中四波差频过程产生真空紫外相干光( $\omega_4$ ) 输出. 当  $\omega_3$  由另一台激光器提供时, 通过它的调谐, 并保持双光子共振的条件下, 可以获得可调谐的真空紫外辐射.

入射光可表示为

$$\begin{aligned} E(t) = & \frac{1}{2} E_1 \exp(-i\omega_1 t + i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}) \\ & + \frac{1}{2} E_3 \exp(-i\omega_3 t + i\mathbf{k}_3 \cdot \mathbf{r}) + \text{c.c.} \end{aligned} \quad (1)$$

通常引入三级非线性极化率  $\chi^{(3)}(-\omega_4, \omega_1, \omega_1, -\omega_3)$ , 将三级非线性极化强度  $P^{(3)}$  表示为

$$\begin{aligned} P^{(3)}(\omega_4) = & \frac{1}{2} \{ \chi^{(3)}(-\omega_4, \omega_1, \omega_1, -\omega_3) E_1 E_1 E_3^* \\ & \cdot \exp[-i(2\omega_1 - \omega_3)t + i(2\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_3) \cdot \mathbf{r}] + \text{c.c.} \}. \end{aligned} \quad (2)$$

$\chi^{(3)}(-\omega_4, \omega_1, \omega_1, -\omega_3)$  的普遍表达式具有 48 项<sup>[3]</sup>, 但考虑到上述双光子和单光子共振, 可以将其中绝大部分贡献比较小的项略去. 采用 Feynman 图<sup>[4]</sup>的方法可以计算非线性极化率. 与图 1 中表示的四波差频过程对应的 Feynman 图如图 2 所示.

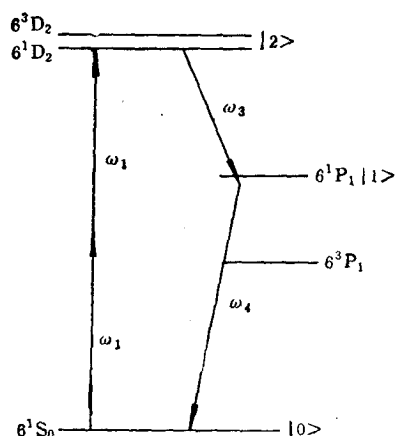


图 1 Hg 原子的部分能级和双光子共振四波差频过程

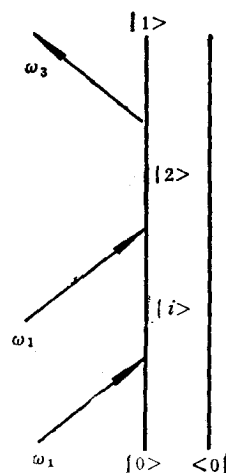


图 2 双光子共振四波差频的 Feynman 图

根据由 Feynman 图求非线性极化率的简单法则, 立即可写出这一过程对应的三级非线性极化率

$$\begin{aligned} \chi^{(3)}(-\omega_4, \omega_1, \omega_1, -\omega_3) = & \frac{e^4 N}{4\hbar^3} \\ & \cdot \sum_i \frac{(r)_{01}(r)_{12}(r)_{2i}(r)_{i0}\rho_{00}^{(0)}}{(\omega_{i0} - \omega_1 - i\Gamma_{i0})(\omega_{20} - 2\omega_1 - i\Gamma_{20})(\omega_{10} - \omega_4 - i\Gamma_{10})}, \end{aligned} \quad (3)$$

式中  $e$  为电子电荷,  $(r)_{i_0}$  等为相应跃迁对应的矩阵元, 而  $\Gamma_{i_0}$  等为相应能级间的阻尼系数, 它与能级寿命和 Hg 蒸汽中的缓冲气体的种类和气压有关, 最后  $N\rho^{(0)}$  为热平衡时  $6^1S_0$  态的集居数, 式中  $|i\rangle$  表示  $6^1P_1$  和  $6^3P_1$  态对非线性极化率都有贡献, 一般说后者的贡献要小得多。

现在可以用经典电磁理论处理四波差频过程. 在 Maxwell 电磁理论中非线性极化强度  $P^{(3)}(\omega_4)$  以场源形式出现在波动方程中, 如果入射波在 Hg 蒸汽中的发散角不太大, 或者说它们的共焦参数比 Hg 蒸汽区长度大时, 可以用(1)式表示的平面波描述参与过程的激光束. 假定出射波  $(\omega_4)$  沿  $Z$  向传播, 在慢变化振幅近似下, 波动方程可写作

$$\frac{2E_4}{2Z} = -i \frac{2\pi\omega_4^2}{c^2 k_4} \chi^{(3)}(-\omega_4, \omega_1, \omega_1, -\omega_3) E_1^2 E_3^* \exp[i(\Delta k)_z \cdot Z], \quad (4)$$

式中  $\Delta k = k_4 - 2k_1 + k_3$ , 称为波矢失配。

通常在气态介质中转换效率都不高(一般都小于  $10^{-4}$ ), 求解(4)式时, 可认为入射波振幅不变, 这就是所谓小讯号近似, 由于入射面 ( $Z = 0$ )  $E_4 = 0$ , 不难解出出射光强

$$I_4 = \frac{256\pi^4 \omega_4^2}{n_1^2 n_3 n_4 c^4} |\chi^{(3)}(-\omega_4, \omega_1, \omega_1, -\omega_3)|^2 I_1^2 I_3 \left( L \frac{\sin(\Delta k)_z L/2}{(\Delta k)_z L/2} \right)^2. \quad (5)$$

(5)式等号右端最后一个因数与相位匹配状况有关. 当  $\Delta k = k_4 - 2k_1 + k_3 = 0$  时, 此因数等于  $L^2$ . 表示  $I_4$  将正比于介质长度的平方, 这种情况称之为相位匹配. 在图 1 所示的情况, 介质色散将主要由  $0 \rightarrow 1$  跃迁决定. 由计算介质折射率的 Sellmeier 方程可知, 只要  $\omega_4$  落在  $0 \rightarrow 1$  跃迁的红端, 四波差频过程不可能实现共线相位匹配. 这种相位失配也不能依靠充入惰性气体来克服, 因为后者也表现正色散特性. 若  $\omega_1$  和  $\omega_3$  以小角度在介质内部交叉重迭, 有可能实现相位匹配。

Sellmeier 方程计算的是介质的线性折射率. 气态介质中很容易产生各种光场感生折射率变化, 由于相位匹配的状况对折射率的微小改变都十分敏感, 在考虑相位匹配时, 应仔细分析各种可能出现的光场感生折射率变化的效应。

### 三、装 置

图 4 中染料激光器(1)(DYE1) 为一台用调 QYAG:Nd<sup>3+</sup> 激光的二次谐波泵浦的若丹明 6 G 染料激光器 (DATACHROM-5000, 法国 Quantel 公司). 532nm 的泵浦光脉冲能量最高可达 350mJ, 脉冲重复频率为 10cps. 染料激光在波长 560.6nm 附近输出能量为 40mJ, 脉冲宽度为 10ns, 激光线宽约  $0.1\text{cm}^{-1}$ . 经过一组反射镜  $M_2$ ,  $M_3$  和  $M_4$  进入 KDP 倍频晶体得到波长为 280nm 附近的紫外光  $\omega_1$ , 倍频效率为 10% 左右. 当在一定范围内调谐 DYE1 时,  $\omega_1$  可落在 6 S-6D 双光子共振跃迁频率上. 染料激光器(2)(DYE2) 是一台自制的一级放大染料激光器. 振荡级采用了双光栅 Littrow 结构, 通过改变其中一块光栅的倾角来调节输出波长. 这台染料激光器的泵浦光由 DYE1 泵浦源的一部分基波(1.06  $\mu\text{m}$ )能量经另一 KDP 晶体倍频后提供, 其 532nm 光脉冲能量可达 50mJ. DYE2 使用的染料也是若丹明 6 G, 在工作波长 562.3nm( $\omega_3$ ) 处的脉冲能量为 0.4mJ, 脉宽为 10ns, 线宽约为  $0.3\text{cm}^{-1}$ . 反射镜  $M_2-M_4$  构成一套光学延迟器, 保证两束入射光 ( $\omega_1$  和

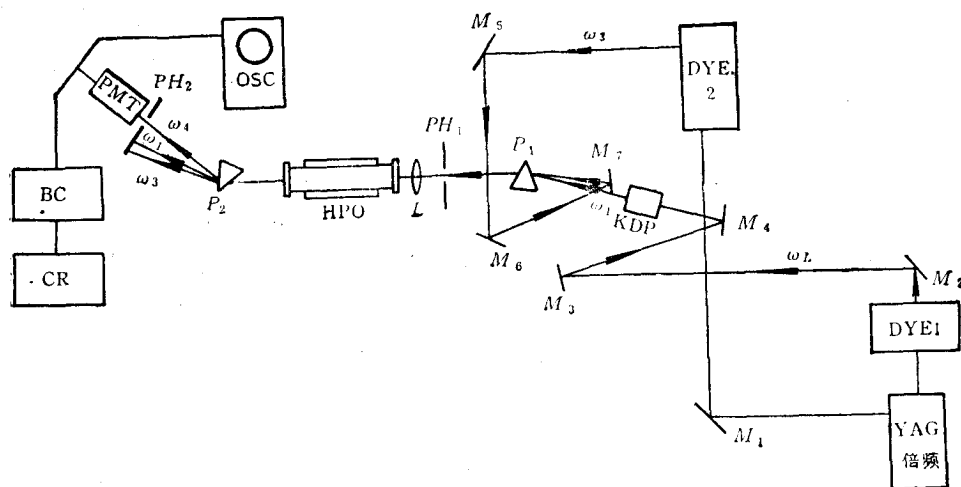


图3 实验装置

$\omega_3$ ) 的光脉冲能够同时到达热管炉 (HPO) 的中心。为了让两束光在热管炉内共线, 利用了石英棱镜的色散。具体说, 只需要分别调节两组反射镜  $M_3, M_4$  及  $M_6, M_7$ , 让  $\omega_1$  和  $\omega_3$  分别以适宜的角度入射, 可经过棱镜  $P_1$  实现共线传播。  $L$  为石英棱镜, 焦距为 23cm, 将  $\omega_1$  和  $\omega_3$  聚焦到热管炉的中心。透镜前的光阑  $PH_1$  挡去倍频后剩余的约 560nm 染料激光。热管炉长为 40cm, 内径为 2 cm, 两端各为一块石英窗片, 炉内除 Hg 蒸汽外还充有纯 He 作为缓冲气体。炉内 Hg 蒸汽的有效长度为 2 cm 左右。通过对  $\omega_1$  和  $\omega_3$  的远场发散角的测量, 可算得它们在炉中的共焦参数分别为 2.6cm 和 5.2cm, 因而将它们按平面波处理是合理的, 热管炉中出射的四波差频产生的真空紫外光 ( $\omega_4$ ) 与入射光 ( $\omega_1, \omega_3$ ) 通过另一块石英棱镜  $P_2$  的色散而分开。通过棱镜最小偏向角的计算确定  $\omega_4$  的出射方向。光阑  $PH_2$  用来挡掉  $\omega_1, \omega_3$  和大部分背景光, 让真空紫外光  $\omega_4$  进入 PMT, 即太阳盲光电倍增管 (R1459, 日本 HAMAMATSU)。差频光信号经 PMT 输出后同时送到监视示波器 (OSC) 和 Boxcar 积分器 (BC) 上, 最后由记录仪 (CR) 记录下来。示波器和 Boxcar 积分器均由 YAG: Nd<sup>3+</sup> 激光器给出的脉冲信号实现同步触发。

还采用过另一种实验安排。将紫外倍频晶体 KDP 后剩余的波长为 560nm 的染料激光作为四波差频的入射光  $\omega_3$ 。于是 DYE2 延迟器和石英棱镜  $P_1$  等不再需要, 但需将光束  $\omega_1$  (也即  $\omega_3$ ) 与热管炉调至大致共轴, 实验装置的其余部分保持不变。

#### 四、实验结果与讨论

图 4 为记录到的相应于  $6^1S_0-6^1D_2$  和  $6^1S_0-6^3D_2$  两种双光子共振增强的真空紫外输出。记录这两条曲线的实验条件是相同的。由图 4 可见, 在  $6^1S_0-6^1D_2$  双光子共振附近真空紫外辐射强度高, 而且共振曲线有明显的饱和, 而  $6^1S_0-6^3D_2$  曲线的半极大值全宽度 (FWHM) 只有 0.009nm, 饱和效应很不明显。

图 5 表示真空紫外辐射与  $\omega_3$  的光强依赖关系。图 5 中显示的一次方依赖关系与(5)

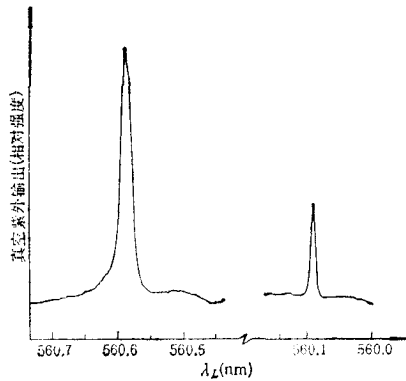


图4 四波差频过程的  $6^1S_0-6^1D_2$  和  $6^1S_0-6^3D_2$  的双光子共振增强  $T_c = 150^\circ\text{C}; 40\text{Torr}$  的 He; DYE1 能量为 30mJ; DYE2 能量为 0.4mJ; DYE2 波长为 562.3nm

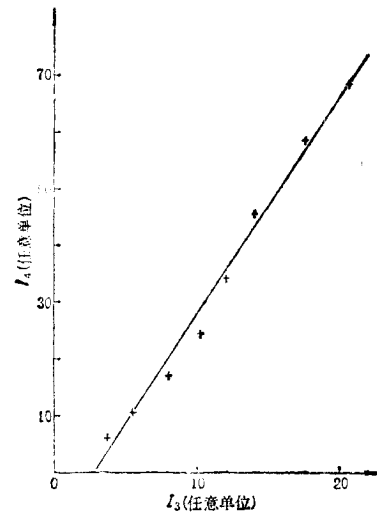


图5 真空紫外辐射( $I_4$ )与差频光( $I_3$ )的光强关系  $T_c = 150^\circ\text{C}; 40\text{Torr}$  He; DYE1 能量为 17mJ; DYE2 波长为 568.5nm

式的预言是一致的。

为了研究饱和效应,适当改变实验装置。如果  $\omega_3$  不由 DYE2 提供,而是 KDP 紫外倍频晶体后剩余的染料激光(来自 DYE1),则  $\omega_1$  与  $\omega_3$  严格共线传播进入热管炉。

为了消除饱和效应,将 DYE1 的脉冲能量衰减到小于 1 mJ。

图 6 表示这时真空紫外输出光强  $I_4$  与 DYE1 激光光强  $I_L$  的双对数关系。图中的点为实验数值,由图 6 可见,当  $I_L < 0.4\text{mJ}$  时,  $I_4$  与  $I_L$  十分符合五次方的依赖关系。如果注意到  $I_4$  是  $I_L$  经过倍频得到,考虑到在低功率入射下紫外倍频晶体的低的转换效率,不难推论这一实验结果符合(5)式的预言。这种依赖关系表明饱和效应已经消除。

在 PMT 前适当衰减真空紫外光强,并通过示波器监视,保证光电倍增管不被饱和,并尽量减小 Boxcar 的时间常数,记录到 DYE1 激光脉冲能量为 0.4mJ 时,真空紫外辐射的双光子共振增强曲线如图 7 所示。此曲线的 FWHM 为 0.007nm(对  $\lambda_L$  而言),相当于  $6^1S_0-6^1D_2$  双光子共振半极大值全宽度为  $0.9\text{cm}^{-1}$ 。其中包括 Hg 原子的同位素线移的贡献。天然 Hg 包括有 198, 199, 200, 201, 202 和 204 等同位素。根据消多普勒增宽的双光子共振谱线实验<sup>[5]</sup>,同位素线移对双光子共振的 FWHM 有  $0.3\text{cm}^{-1}$  左右的贡献。考虑到 DYE1 线宽将给出约  $0.5\text{cm}^{-1}$  贡献,以及小于  $0.1\text{cm}^{-1}$  的自然宽度和多普勒增宽的贡献,图 7 确实表示了饱和效应已经完全消除。

图 7 显示出双光子共振响应的明显不对称,在红端真空紫外强度下降要缓慢得多。这表明双光子共振引起的光学 Kerr 效应对四波差频过程相位匹配的强烈影响。

Hg 原子  $6^1S_0-6^1P_1$  跃迁的振子强度相当大( $\sim 0.39$ )<sup>[6]</sup>,而且  $\omega_4$  与此跃迁仅差  $568.9\text{cm}^{-1}$ ,在用 Sellmeier 公式计算 Hg 蒸汽的线性折射率时,可以发现只有  $\omega_4$  处的折射率

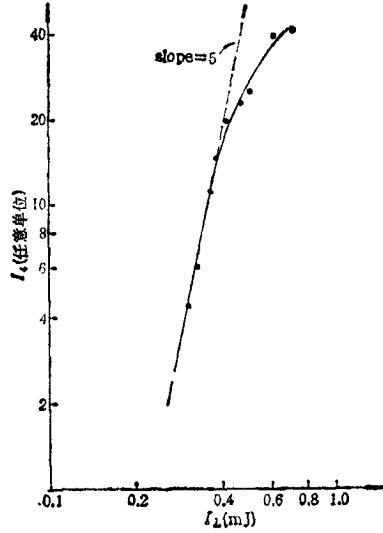


图6 真空紫外辐射与染料激光的能量关系  
 $T_c = 150^\circ\text{C}$ ; 40Torr He; DYE1 波长为 560.6nm

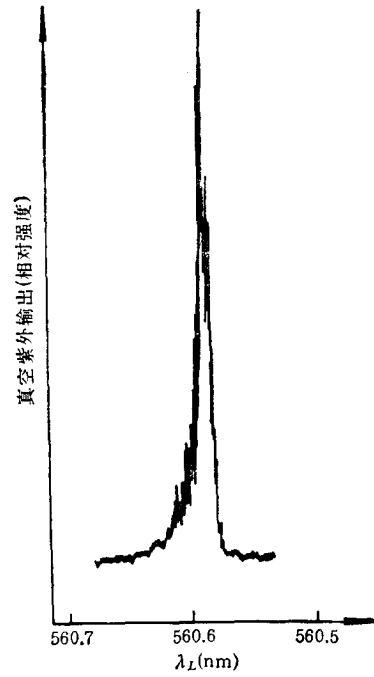


图7 四波差频过程的  $6^1S_0-6^1D_2$  双光子共振增强(非饱和状态)  $T_c = 150^\circ\text{C}$ ; 40Torr He; DYE1 能量为 0.4mJ

明显偏离 1.

$$\Delta n = n_4 - 1 = N \frac{r_c}{2\pi} \frac{f_{10}}{\bar{\nu}_{10}^2 - \bar{\nu}_4^2}, \quad (6)$$

式中  $r_c = 2.818 \times 10^{-3}\text{cm}$ ,  $f_{10}$  为  $6^1S_0-6^1P_1$  跃迁振子强度,  $\bar{\nu}_{10}$  和  $\bar{\nu}_4$  分别为以  $\text{cm}^{-1}$  为单位的  $6^1S_0-6^1P_1$  跃迁的波数和  $\omega_4$  对应的波数. Hg 蒸汽在四波差频实验中呈现正色散特性, 在入射波 ( $\omega_1$  和  $\omega_3$ ) 共线情况下波矢失配  $\Delta k = \omega_4 \Delta n / c$ , 这种波矢失配是不可能通过充入惰性气体来消除的, 因为在我们的波段, 惰性气体也表现正色散特性.

虽然双光子共振 Kerr 效应引起的折射率变化是非线性效应, 但在严格双光子共振下还是不可忽略其影响, 若将它引起的折射率变化表示为  $\Delta n'$ , 则

$$\Delta n' = 2\pi \text{Re} \{ \chi^{(3)}(-\omega_1, \omega_1, \omega_1, -\omega_1) \} \cdot |E_1|^2, \quad (7)$$

式中  $E_1$  为  $\omega_1$  的场振幅,  $\chi^{(3)}(-\omega_1, \omega_1, \omega_1, -\omega_1)$  为  $6^1S_0-6^1D_2$  双光子共振的非线性极化率, 可以通过密度矩阵运动方程微扰计算或 Feynman 图方法求出<sup>[7]</sup>

$$\begin{aligned} \chi^{(3)}(-\omega_1, \omega_1, \omega_1, -\omega_1) &= \frac{e^4 N \rho_{00}^{(0)}}{4\hbar^3} \left| \sum_i \frac{2(r)_{0i}(r)_{i2}}{\omega_{i0} - \omega_1} \right|^2 \\ &\cdot \frac{(\omega_{20} - 2\omega_1) + i\Gamma_{20}}{(\omega_{20} - 2\omega_1)^2 + \Gamma_{20}^2}. \end{aligned} \quad (8)$$

考虑到双光子共振 Kerr 效应, 波矢失配改写为

$$\Delta k = \frac{\omega_4 \Delta n}{c} - 2 \frac{\omega_1 \Delta n'}{c}. \quad (9)$$

显然在双光子共振的红端有利于波矢失配的减小,从而增强真空紫外输出功率,因此引起了图 7 记录的曲线的不对称。

从应用的角度,希望获得可调谐的真空紫外辐射。由光子能量守恒,  $\omega_4 = 2\omega_1 - \omega_3$ , 因此原则上调谐  $\omega_1$  或  $\omega_3$  都可以实现  $\omega_4$  的调谐,但由于双光子共振增强的响应非常窄(见图 4),通过  $\omega_1$  调谐,只能使真空紫外辐射具有十分窄的调谐范围。由于  $\omega_4$  可以偏离  $\omega_{10}$  单光子共振较远,不会强烈影响真空紫外辐射的光强。一个具有实用价值的方法是调谐  $\omega_3$ 。

实验证实,只要 DYE1 的能量比较高、并调谐到  $6^1S_0-6^1D_2$  严格双光子共振,在 DYE2 的整个调谐范围(580—550nm)内都有真空紫外辐射产生,其调谐范围为 184.9—187.5nm。为了显示产生的调谐真空紫外辐射在光谱学上的应用,记录了长为 30cm 的大气中  $O_2$  的吸收谱,如图 8 所示。这是属于  $O_2$  分子  ${}^3\Sigma_u^- - {}^3\Sigma_g^-$  跃迁的 Schumann-Runge 带<sup>[8]</sup>。在上述调谐范围内包含两个序列的振动带,其中的转动结构清晰可见。

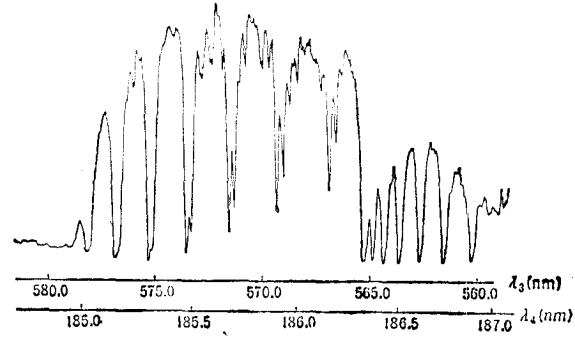


图 8 真空紫外辐射的调谐特性和  $O_2$  的真空紫外吸收谱  
 $T_c = 150^\circ\text{C}$ ; 40Torr He; DYE1 能量为 27mJ; DYE2  
 能量为 1.4mJ

## 五、结 语

研究表明,在 Hg 蒸汽中双光子共振的三级非线性效应可以有效的产生真空紫外辐射,尽管由于 Hg 原子的光谱参数的知识还比较缺乏,导致实验结果的定量分析存在一定困难,我们的研究还是表明理论与实验结果是相符的。

虽然已经观察到饱和效应,但交流斯塔克效应尚未观察到。这表明提高入射波 ( $\omega_1$  和  $\omega_3$ ) 功率,可进一步提高真空紫外辐射强度和扩展调谐范围。在上述四波差频的具体情况下,也是有利于减小波矢失配的,因为光学 Kerr 效应和基态集居数的减少都有利于相位匹配的实现。

本文的研究不难推广到 Hg 蒸汽中的其它四波差频和和频实验。双光子共振可以由  $6^1S_0$  至许多 S 和 D 态,而可以利用高激发的 P 态实现单光子共振,因而在更短波长产生调谐相干辐射是很有希望的。

- [1] John E. Reintjes, *Nonlinear Optical Parametric Processes in Liquids and Gases*, Academic Press, INC. (1984).
- [2] F.S. Tomkins and R. Mahon, *Opt. Lett.*, **6**(1981), 179; J. Bokor *et al.*, *Opt. Lett.*, **6**(1981), 182; R. Mahon and F.S. Tomkins, *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-18**, (1982), 913; R. Hilbig and R. Wallenstein, *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-19**, (1983), 1759; A.V. Smith and W.J. Alford, *J. Optic. Soc. Amer.*, **4**(1987), 1765; P.R. Herman and B.P. Stoicheff, *Opt. Lett.*, **10**(1985), 502.
- [3] Y. Prior, *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-20**(1984), 37.

- [4] Y. Yee and T.K. Gustafson, *Phys. Rev.*, **A18**(1978), 1597.  
[5] A.V. Smith and W.J. Alford, *J. Optic. Soc. Amer.*, **4**(1987), 1765.  
[6] A. Lurio, *Phys. Rev.*, **140**(1965), A1505.  
[7] K. Shimoda, *High-resolution laser spectroscopy* Chapter 8, Springer, Berlin, Heidelberg, New York, (1976).  
[8] 王国文编著, 原子与分子光谱导论, 北京大学出版社, (1985), 206 页.

## TUNABLE VACUUM-ULTRA VIOLET RADIATION GENERATED BY TWO-PHOTON RESONANT FOUR-WAVE DIFFERENCE MIXING IN Hg VAPOR

HUANG XIAN-LING    XIA ZONG-JU    ZOU YING-HUA  
*Department of Physics, Peking University, Beijing, 100871*

(Received 29 September 1989)

### ABSTRACT

Vacuum-ultra violet radiation is generated by  $6^1S_0-6^1D_2$  or  $6^1S_0-6^3D_2$  two photon resonant four-wave difference mixing ( $\omega_4=2\omega_1-\omega_3$ ) in Hg vapor. VUV radiation is tunable when one of the input wave ( $\omega_3$ ) is tuned, the tuning range is 184.9—187.5 nm. The mechanism of this frequency conversion, for example, the two-photon and single-photon resonant enhancement and phase matching have been investigated. The competing processes and saturation effect on conversion efficiency have been analyzed. Using the generated tunable VUV radiation, we have recorded the absorption spectrum of  $O_2$  in air.

**PACC:** 4265K; 3220J; 5170