

在 Ne 的第一共振态以下通过四波和频 产生可调谐 VUV 相干辐射*

王鹏谦 田测产 孙 亨

(北京大学物理系, 北京 100871)

(1996 年 3 月 18 日收到)

利用一台染料激光器的输出作为基波, 通过非共振四波和频过程在 Ne 的第一共振态以下产生了 116.6—119.2 nm 的可调谐 VUV 相干辐射. 这是利用低阶的非线性光学过程在 Ne 的正色散区产生可调谐的 VUV 相干辐射. 由于在这一波段 Ne 的色散很小, 使得四波和频过程具有较高的转换效率. 实验观察到在较小介质密度下, 四波和频信号与介质密度的平方成正比. 如果提高 Ne 的介质密度, 估计和频过程的转换效率可以提高两个数量级.

PACC: 4265M; 3280K

1 引 言

真空紫外(VUV, 100—200 nm)和极紫外(XUV, 10—100 nm)波段的相干辐射光源对于原子分子的高能态光谱、等离子体物理、材料科学以及生命科学的研究有着十分重要的意义, 因而人们一直在寻求产生这一波段可调谐相干辐射的途径. 在气体介质中利用非线性光学频率变换过程产生真空紫外和极紫外波段的相干辐射, 是近年来经过不断探索并已取得进展的一种有效方法. 为了获得尽量强的产生光输出, 在这种方法中通常采用聚焦光束作为入射光, 而根据相位匹配理论, 聚焦光束中的和频过程只有在波矢失配 $\Delta k < 0$ 这一区域, 即介质的负色散区才能产生较高功率的输出光^[1]. 因此, 已经报道的产生可调谐短波长相干辐射的工作大多集中在介质的负色散区, 这些负色散区一般位于介质共振能级的高能侧或介质电离限以上, 结果导致 VUV/XUV 波段相干光的产生出现许多空白区(即不能产生相干光输出的介质正色散区), 使得实际应用受到了很大限制. 然而, 在介质的正色散区产生和频信号并不是绝对不可能的. 本文作者曾经报道过用非共振四波和频方法(FWSM)在非线性介质 Kr, Ar 的第一共振态以下的正色散区产生可调谐 VUV 相干辐射的工作^[2,3]. 虽然在介质的第一共振态以下的正色散区通过和频过程产生短波长相干辐射相对比较困难, 但在另一方面, 由于在这一正色散区介质的色散以及非线性极化率的变化比较缓慢, 因而可望产生较宽带的连续可调的短波长相干辐射输出, 这对实际应用具有重要意义.

* 国家高技术研究发展计划及国家自然科学基金资助的课题.

与 Ar, Kr 和 Xe 等介质相比, Ne 具有较高的第一共振能级 (Ne 3s[3/2, 1], 74.4 nm) 以及较高的电离限, 因而常被用作产生高次谐波的非线性介质^[4], 而对于 Ne 中的低阶过程, 虽然有人报道通过三次谐波 (THG) 在其共振能级高能侧的负色散区产生可调谐的 XUV 相干辐射^[5] 以及通过三阶过程在其第一共振态以下产生不可调谐的 VUV/XUV 相干辐射^[6], 但在 Ne 的第一共振态以下, 尚未见有关产生可调谐相干辐射的报道. 其原因在于, 与 Ar, Kr 和 Xe 相比, Ne 的非线性极化率要小得多. 尽管如此, 由于 Ne 的第一共振态较高, 对于只用一台染料激光器, 通过三次谐波或四波混频过程产生 80—140 nm 波段相干辐射的工作来说, Ne 是很有实用价值的介质, 这一波段尤其对研究分子的电子态光谱有重要用途. 由于在 VUV 波段 Ne 的色散很小, 其和频过程的转换效率也不会像人们预期的那么低. 本文报道的就是在 Ne 的第一共振态以下的正色散区通过四波和频过程产生 VUV 相干辐射输出的工作.

2 实验装置

实验中使用一台由调 Q 的 Nd:YAG 激光 (Quantel) 的二倍频光抽运的染料激光器 (Datachrome). 使用 RhB 染料, 输出波长在 590 nm 附近可调, 功率约为 2 MW, 重复频率为 10 Hz, 脉冲宽度约为 10 ns. 将染料激光器的输出作为基波, 设其频率为 ω_{dye} . 此基波先经过一块长 9 mm 的 BBO ($\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$) 晶体倍频, 其倍频光频率 $\omega_{\text{UV}} = 2\omega_{\text{dye}}$, 倍频效率约为 20%. 为使入射光更好地聚焦, 先将基波和倍频光经一焦距为 5 cm 的凹透镜扩束, 再由一焦距为 10 cm 的凸透镜经入射窗会聚于介质中. 实验中介质为与激光脉冲同步的 Ne 的脉冲气束. 聚焦光束的共焦参数估计为 1 mm, 焦点处的最大功率密度估计为 10^{11} W/cm^2 . 在气束中光与介质相互作用, 通过非共振四波和频过程 $\omega_{\text{VUV}} = 2\omega_{\text{UV}} + \omega_{\text{dye}}$ 产生 VUV 波段的短波长相干辐射. 产生光经一 VUV 单色仪 (Acton VM502) 分光, 再由一太阳盲光电倍增管 (Hamamatsu R1459) 探测. 光电倍增管的输出信号先经一电流放大器 (SR570) 放大, 再由一高速数据采样系统进行采集. 整个作用区与探测区分别由一台扩散泵和一台分子泵保持高真空. 实验中有介质气束时的系统背景真空度为 10^{-3} Pa 量级.

实验中 Ne 介质的脉冲气束是由一自制的压电陶瓷脉冲喷阀提供的, 这种喷口技术是目前非线性光学方法产生 VUV/XUV 波段相干辐射工作中最有效的无窗技术. 实验中由阀电源控制气流脉冲与入射光脉冲同步到达阀喷口下的作用区. 介质的喷气方向与光束的传播方向相互垂直, 入射光束一般聚焦在气体中心. 阀内介质气压由一稳压装置保持恒定, 并由一电阻式气压计 (HLP-2) 测量其气压值. 我们虽然不能直接测量作用区中气体的介质密度, 但由以前的工作可知, 在实验中气束的介质密度与阀内气压成正比^[7], 其密度比约为 4%, 由此得出作用区的介质粒子数密度可以达到 $10^{18}/\text{cm}^3$ 量级.

3 理 论

本实验中的四波和频过程可以用以微扰论为基础的传统非线性光学理论来描述^[1]. 在入射基波及其倍频光的作用下, 介质中感生出三阶非线性极化强度, 以此非线性极化强

度为场源得到新的相干光输出. 实验中入射基波可以取作最低阶的高斯光束, 这时四波和频输出的功率为

$$I_g = \left(\frac{12\pi \times 10^7}{c} \right) \left| \chi^{(3)}(-\omega_{UV}; \omega_{dye}, \omega_{dye}, \omega_{UV}) \right|^2 \frac{k_g k_{UV}^2 k_{dye}}{b} \times N^2 I_{UV}^2 (I_{dye} - I_{UV}) F(b\Delta k), \quad (1)$$

其中 I 是光功率, 下标 g 代表产生光, c 是光速, $\chi^{(3)}$ 是四波和频过程的非线性极化率, k 是波矢, b 是共焦参数, N 是光束焦点处的介质粒子数密度, Δk 是光束焦点处的波矢失配, F 是相位匹配函数. 因为在晶体倍频效率较低时, 倍频光功率正比于入射基波功率 I_{dye} 的平方, (1) 式可以简化成

$$I_g \propto N^2 \left| \chi^{(3)} \right|^2 I_{dye}^4 (I_{dye} - I_{UV}) F(b\Delta k). \quad (2)$$

相位匹配函数与光束的共焦参数、聚焦位置以及介质的密度分布等几何因素有关, 一般可以表示成 $b\Delta k$ 的函数. 在本实验中近似地设入射基波与其倍频光都聚焦于介质的中心. 脉冲喷阀所喷出的气体密度在光传播方向上可以取作 Lorentz 分布^[8], 表示为

$$S(z) = \frac{1}{1 + \left(\frac{2z}{L} \right)^2}, \quad (3)$$

其中 L 是气体介质分布的半值全宽度, 实验测得约为 1 mm . 在这样的聚焦状况以及气体介质密度分布下, 相位匹配函数可以表示为^[1]

$$F(b\Delta k) = \left| \frac{L}{b} \int_{-\frac{\pi}{2}}^{\frac{\pi}{2}} \frac{\exp\left(-i \frac{\Delta k L}{2} y\right)}{\left(1 + i \frac{L}{b} \tan y\right)^2} dy \right|^2. \quad (4)$$

在 $b/L=1$ 时, 按(4)式计算了 F 函数随 $b\Delta k$ 的变化, 结果如图 1 所示. 由图中明显看出, 对于和频过程, 只有在 $\Delta k < 0$, 即介质的负色散区才能有较大的产生光输出. 这就是过去非线性光学方法产生短波长相干辐射多局限于介质负色散区的原因.

对于气体介质而言, 波矢失配可以表示成 $\Delta k = NC$, 其中 C 是单个原子引起的波矢失配, 对于本实验中的四波和频过程有

$$C = \frac{2\pi}{N} \left(\frac{n_g}{\lambda_g} - \frac{2n_{UV}}{\lambda_{UV}} - \frac{n_{dye}}{\lambda_{dye}} \right) = \frac{2\pi}{N\lambda_{dye}} (5n_g - 4n_{UV} - n_{dye}), \quad (5)$$

其中 n 是当介质密度为 N 时光的折射率. 按 Sellmeier 方程, 有

$$n = 1 + \frac{Nr_e}{2\pi} \sum_i \frac{f_i}{\lambda_i^{-2} - \lambda^{-2}} + \frac{N}{2\pi^2} \int \frac{\sigma d\tilde{\nu}_i}{\tilde{\nu}_i^2 - \tilde{\nu}^2}, \quad (6)$$

其中 $r_e = 2.818 \times 10^{-13} \text{ cm}$ (电子经典半径), λ_i 是第 i 个共振能级的共振波长, f_i 是其振子强度. $\tilde{\nu}_i$ 是电离限以上用波数表示的波长, σ 是电离截面. 利用文献[9]给出的振子强度以及文献[10]给出的光电离截面, 我们通过计算得到 Ne 在 120 nm 附近 C 的值约为 $5 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$.

由(2)式可知,实验中可望通过调节阀内气压的大小使相位失配 Δk 达到最佳值,从而使 $N^2 F(b\Delta k)$ 达到最大,这时四波和频过程具有最大的转换效率.对本实验来说,在上面所估计的 C 值下,达到最佳 $b\Delta k$ (约为 2) 所需要的阀内气压约为 2.5×10^6 Pa,而实验中测量阀内气压的气压计的测量范围只有 $0-1.2 \times 10^5$ Pa,在这样小的阀内气压下,作用区的 $b\Delta k$ 值在 $0-0.07$ 之间变化.由图 1 可知,这时 $F(b\Delta k)$ 几乎是一个常数 $F(0)$,即相位匹配函数在正色散区的最大值.这样,在本实验的阀内气压范围内,输出四波和频的功率应与阀内气压的平方成比例.这一点在实验中已得到了验证.

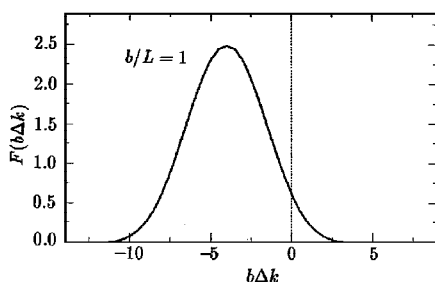


图 1 按(4)式计算的 $b/L=1$ 时 $F(b\Delta k)$ 随 $b\Delta k$ 的变化

4 实验结果与讨论

在每一个入射基波下我们仔细调节 BBO 晶体,以获得最大的倍频光 ω_{UV} .当染料激光器输出的基波 ω_{dye} 在 $583-596$ nm 调谐时,我们通过四波和频在 Ne 介质中得到了

$116.6-119.2$ nm 的可调谐相干辐射输出.图 2 给出了产生光的信号强度随波长的变化,同时也给出了入射基波的功率随其波长的变化.测量时阀内气压为 1.0×10^5 Pa.可以看出,产生波的调谐范围是由入射基波的调谐范围决定的.如果入射基波可以在 $400-700$ nm 之间连续可调,并且有 1.5 MW 以上的输出功率时,利用这种方法可望在 Ne 介质中获得 $80-140$ nm 的可调谐 VUV/XUV 相干辐射.在实验中单色仪的出射狭缝约为 0.01 mm,因而所探测到的和频信号的信噪比是很高的.

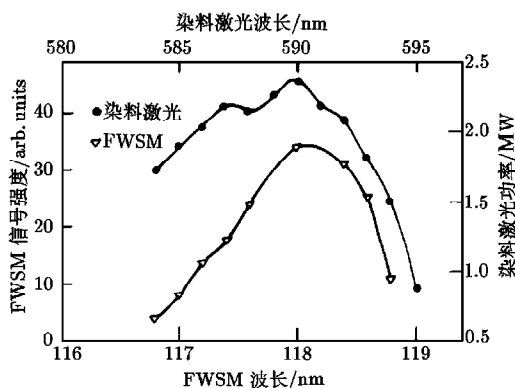


图 2 Ne 中四波和频信号强度以及入射基波功率随波长的变化

图 3 给出实验测得的四波和频输出信号随阀内气压的变化,测量时产生光波长分别为 118.3 和 117.8 nm.正如理论所预期的那样,因为 $F(b\Delta k)$ 在所测量的气压范围内近似为一常数,输出信号近似与阀内气压的平方成正比.如果将阀内气压再增加一个数量级,那么四波和频的输出信号可望增大 100 倍左右.

图 4 用对数坐标给出 Ne 中四波和频信号随入射基波功率的变化,测量时输出波长为 117.8 nm,阀内气压为 1.0×10^5 Pa.从图中可以看出,输出 VUV 相干辐射的信号强度

与入射基波的功率成一定的次方关系.由(2)式可知,这个次方数应略小于 5.实际测得四波和频输出约与入射基波功率的 4 次方成正比,这与理论预期一致.作为比较,图中同时给出了在介质 Xe 中对同一四波和频过程的测量结果,测量时输出波长为 118.9 nm, 阀内气压为 4.1×10^4 Pa.可以看出,两种介质中四波和频的输出对入射基波功率有着相同的依赖关系.图中 Ne 和 Xe 中的和频信号是在不同的单色仪狭缝宽度和不同的光束与介质气束相对几何位置下测量的,因而两信号的相对大小没有意义.与以前的工作^[2]相比,我们估计 Ne 中的四波和频的转换效率约为 10^{-9} ,这个值比 Xe 中的相应值大约要低两个数量级,而与 Ar 中的转换效率在同一数量级.因为 Ne 的第一共振态比 Ar 的高得多,在测量波长范围内,Ne 的非线性极化率估计比 Ar 小一个数量级,所以一般认为 Ne 中的转换效率要小得多.但是,由于在此波段 Ne 中的色散 ($C \approx 5 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$) 比 Ar ($C \approx 2 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$) 要小得多,使得 Ne 中四波和频过程总保持在 $b\Delta k = 0$ 附近,因而相位匹配函数 $F(b\Delta k)$ 几乎取其在正色散区的最大值,结果使得在 Ne 中有与在 Ar 中相近的四波和频转换效率.

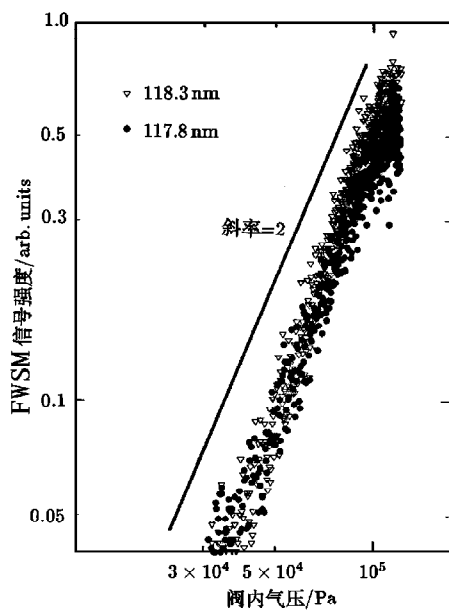


图3 Ne 中四波和频信号强度随阀内气压的变化 产生光波长分别为 118.3 和 117.8 nm

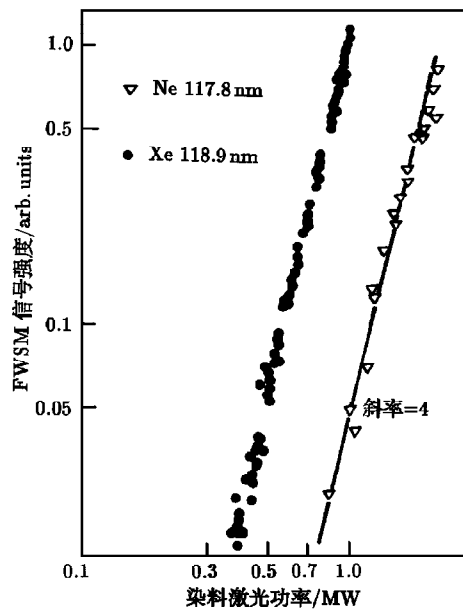


图4 Ne 和 Xe 中四波和频信号强度随入射基波功率的变化 Ne 的产生光波长为 117.8 nm, 阀内气压为 1.0×10^5 Pa; Xe 的产生光波长为 118.9 nm, 阀内气压为 4.1×10^4 Pa

5 结 论

我们利用一台染料激光器的输出,通过非共振四波和频过程在 Ne 的第一共振态以

下产生了 $116.6\text{--}119.2\text{ nm}$ 的可调谐 VUV 相干辐射. 由于在这一波段 Ne 的色散很小, 使得其四波和频过程的相位失配很小, 因而转换效率与 Ar 中的同一过程的效率相当. 因为在实验提供的介质气压范围内四波和频的输出信号与介质气压的平方成正比, 提高 Ne 的气压可以使输出信号增大两个数量级. 利用本文报道的实验方法, 只用一台染料激光器, 当入射光在 $400\text{--}700\text{ nm}$ 可调谐时, 可望在 Ne 中获得 $80\text{--}140\text{ nm}$ 连续的可平滑调谐的 VUV/XUV 相干辐射.

感谢北京大学物理系夏宗炬、邹英华两位老师在实验工作中所给予的指导和帮助.

- [1] A. Lago, G. Hilber and R. Wallenstein, *Phys. Rev.*, **A36**(1987), 3827.
- [2] Cechan Tian, Pengqian Wang and Taoheng Sun, *Opt. Commun.*, **100**(1993), 204.
- [3] 田渊产、王鹏谦、孙亨, 中国科学, A 辑, **24**(1994), 389.
- [4] J. J. Macklin, J. D. Kmetec and C. L. Gordon, *Phys. Rev. Lett.*, **70**(1993), 766.
- [5] R. Hilbig, A. Lago and R. Wallenstein, *Opt. Commun.*, **49**(1984), 297.
- [6] C. Y. She and J. Reintjes, *Appl. Phys. Lett.*, **31**(1977), 95.
- [7] Cechan Tian, Jing Li, Pengqian Wang *et al.*, *Phys. Rev.*, **A50**(1994), 1133.
- [8] D. S. Bethune and C. T. Rettner, *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-23**(1987), 1348.
- [9] Y. M. Aleksandrov *et al.*, *Opt. Spectr.*, **54**(1983), 4.
- [10] G. V. Marr and J. B. West, *Atom. Data and Nucl. Data tables*, **18**(1976), 497.

THE GENERATION OF TUNABLE VUV COHERENT RADIATION BY FOUR-WAVE SUM-MIXING BELOW THE FIRST RESONANCE LEVEL OF Ne

WANG PENG-QIAN TIAN CE-CHAN SUN TAO-HENG

(Department of Physics, Peking University, Beijing 100871)

(Received 18 March 1996)

ABSTRACT

Using the output of one dye laser as the fundamental wave, we have generated tunable VUV coherent radiation from 116.6 nm through 119.2 nm by nonresonant four-wave sum-mixing process below the first resonance level of Ne. The conversion efficiency was found to be comparatively high because of the very small dispersion in this range. We found that the four-wave sum-mixing output was proportional to the square of the gas density we offered. If we increase the gas density of Ne, the conversion efficiency is estimated to be improved by two orders.

PACC: 4265M; 3280K