

# 关于用混频法产生相干真空 紫外调谐辐射的若干问题

李彬学 黄永楷

(中国科学院上海光机所)

**提要:** 本文对四波混频法获得连续可调谐真空紫外相干辐射已有的理论和一些实验结果作简单描述, 分析和讨论了与高效率产生真空紫外辐射相关的一些重要物理问题。

## Problems on generation of continuously tunable VUV coherent radiation by four wave-mixing

Li Binxue, Huang Yongkai

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica)

**Abstract:** The theory and experimental results on acquiring VUV coherent sources by four wave-mixing process are briefly described. An analysis of the important aspects for effective generation of VUV coherent radiation by FWM is presented.

### 一、引言

采用激光在气体中的非线性四波混频产生 VUV (真空紫外) 相干辐射, 是获得连续可调谐窄带 VUV 光源的有效途径之一。由于自发辐射系数和频率三次方成正比以及技术上的限制, 利用普通激励方式在 VUV 谱区产生大范围连续调频的激光器遇到较大的困难, 至今尚未成功。非线性四波混频可观的转换效率, 以及较易获得窄带与可调谐性, 得到了广泛的重视。1971年, New 和 Ward 首先用这种方法, 在几种气体中进行了非线性频率上转换<sup>[1]</sup>。到 1980 年为止用这种方法获得

的 VUV 相干辐射已经覆盖了 110 nm 至 210 nm 的谱区。

采用蒸气(或气体)非线性四波混频获得 VUV 相干辐射, 最常用的过程是  $2\omega_1 + \omega_2$ 。在这一过程中, 许多因素的影响和各种过程的竞争限制了转换效率。本文对这一转换过程中的一些重要物理问题, 作一初步的分析和讨论。

### 二、非线性极化率

根据微扰理论给出的结果<sup>[2]</sup>, 当入射束 ( $\omega_1$ ) 与原子的某一能级接近共振时, 如果只

收稿日期: 1985年1月21日。

考虑主要能级的贡献, 则过程  $2\omega_1 + \omega_2$  相应的三阶极化率为:

$$\chi^{(3)}(-\omega_s, \omega_1, \omega_1, \omega_2) \sim \frac{\mu_{01}^\alpha \mu_{12}^\beta \mu_{2s}^\gamma \mu_{s0}^\delta}{\begin{cases} (\omega_{s0} - \omega_s - i\Gamma_{s0}) \\ (\omega_{20} - 2\omega_1 - i\Gamma_{20}) \\ (\omega_{10} - \omega_1 - i\Gamma_{10}) \end{cases}} \quad (1)$$

式中 0 为基态能级, 1、2、s 表示主要贡献能级。其中 2 是双光子共振能级。 $\mu_{01}^\alpha$  是基态  $\rightarrow 1$  态跃迁的偶极矩阵元的  $\alpha$  分量,  $\omega_{10}$  是相应的频率,  $\Gamma_{10}$  是跃迁的线宽。如图 1 所示。

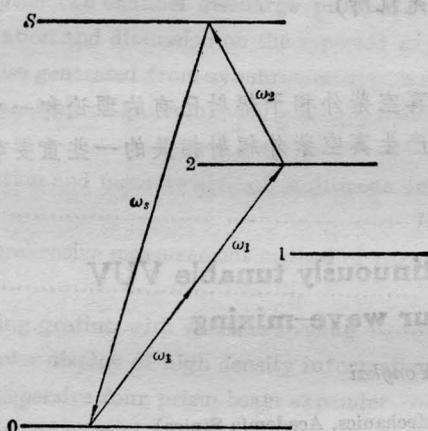


图 1 四波混频有关能级图

(1) 式描述的每个原子贡献是那些在原子第一电离势以上无混合态的情况。对于某些碱金属和所有的碱土金属, 由于组态相互作用, 在第一电离势以上存在自电离态, 对  $\chi^{(3)}$  的影响较大, 必须加以考虑。采用 Armsstrong 和 Wynne 的结果<sup>[8]</sup>:

$$\chi^{(3)}(-\omega_s, \omega_1, \omega_1, \omega_2) = \frac{\mu_{01}\mu_{12}}{(\omega_{20} - 2\omega_1 - i\Gamma_{20})(\omega_{10} - \omega_1 - i\Gamma_{10})} \times \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\mu_{0\psi}\mu_{\psi 2}d\omega}{(\omega - \omega_s - i\Gamma(\omega))} \quad (2)$$

式中,  $\psi$  为未扰动连续态;  $\Gamma(\omega)$  为自电离能级宽度;  $\omega - \omega_s$  为 Fano 共振频率<sup>[4]</sup>。

(1) 式和 (2) 式都预示  $\chi^{(3)}$  存在共振增强。由于分母实部常比虚部大几个量级, 因而  $\chi^{(3)}$  的增强是很显著的。Hodgson 等观察到约  $10^4$  的双光子共振增强, 同时也观察到附加的自电离共振增强<sup>[5]</sup>。然而在一般情况

下, 严格共振引起比较显著的吸收, 会导致入射强度降低和位相匹配条件的破坏。因此, 常常人为地使入射束稍偏离双光子共振, 以避免上述不利因素。入射波的单光子共振增强是不适宜的, 因为一级过程的几率远远大于三级过程, 严重的单光子吸收会使入射光强度下降到不足以产生非线性效应。相比而言, 自电离态由于很宽, 吸收较小, 对混频过程的影响相应比较小。

(1) 式和 (2) 式分子部分的偶极矩阵元乘积, 对不同工作物质有时差别可达数个量级。因此, 选取合适的工作物质是重要的。即使对于同一种介质, 选取不同的双光子共振能级亦会给出相当不同的  $\chi^{(3)}$ , 合理地组合重要的矩阵元, 会使转换更为有利。

### 三、非线性介质的选择

工作气体除了要使其  $\chi^{(3)}(-\omega_s, \omega_1, \omega_1, \omega_2)$  尽可能地大之外, 还要根据希望产生的 VUV 辐射的波段、调谐特性, 及实验技术方面的考虑来确定。

如果只要单频输出或窄带调谐, 可以采用碱金属蒸气三倍频 (THG)。碱土金属蒸气适于产生 100 nm 到 200 nm 之间的连续可调谐 VUV 相干辐射, Mg、Ca、Sr、Zn<sup>[6]</sup> 都是合适的蒸气。更短的 (100 nm 以下) 波长可采用 Ar、Kr、Xe 等惰性气体来产生<sup>[7]</sup>, 它们的  $\alpha^{(3)}$  较碱金属约小 5 个量级<sup>[8]</sup>, 一般采用增加入射功率的方法来提高转换效率 ( $10^8$  W 以上)。

VUV 的输出强度与粒子数密度的平方成正比, 采用惰性气体作为工作物质, 很容易实现高密度工作。金属蒸气的饱和蒸气压视工作温度而定。

根据四波混频的理论, 过程  $2\omega_1 + \omega_2$  应满足最优位相匹配条件方能获得高转换效率。如果不能满足位相匹配条件, 则必须进行位相匹配。考虑到这一点, 选用的工作物

质必须在所关心的 VUV 波段具有缓变的  $\Delta K(\omega)$ ,

$$\Delta K(\omega) = K_s - 2K_1 - K_2 \quad (3)$$

式中  $K_1$ 、 $K_2$ 、 $K_s$  为入射波和产生的 VUV 波的波矢。从 Sellmeier 公式出发,利用已获得的实验数据,作出了元素 Sr 的  $\Delta K(\omega)$  示意曲线,它们在一些波段是适于位相匹配的。如图 2 所示。

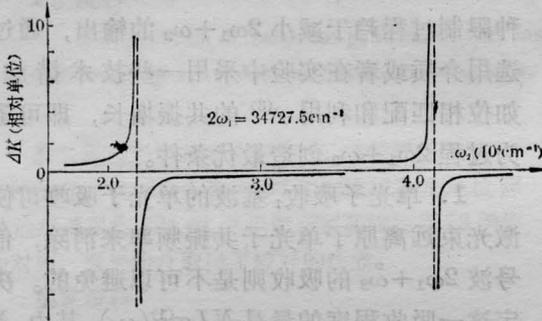


图 2 Sr 的位相匹配示意图

技术上获得适量碱金属和碱土金属蒸气比用 Hg 和惰性气体时困难,需有良好温度特性的热管炉来产生<sup>[9]</sup>,特别是对碱土金属,由于饱和蒸气压比较低,工作时要求的温度比较高(1000°C),相比而言,采用惰性气体只要具有透光窗口的密封盒即可,方便易行。

进行入射激光束的高效率频率上转换,要求所有原子的贡献相长叠加,即要求入射波和产生的波满足相位匹配条件,位相匹配条件的满足与否,决定了能否实现高的转换效率。

#### 四、位相匹配

根据四波混频的小信号理论,在入射平面波无衰减的情况下,当  $\Delta K = 0$  时,有最大信号输出;而在高斯光束入射的情况下,最优  $\Delta K$  条件为:

$$b\Delta K = -2 \quad (4)$$

式中  $b$  是高斯束的共焦参数。

在  $\Delta K$  和粒子数密度成正比的情况下,

必须将  $N$  和  $\Delta K$  一起最优化<sup>[10]</sup>。这将给出不同的匹配条件。

大多数介质很难通过选择工作频率来使最优  $\Delta K$  条件满足,特别是在调谐的情况下,更需要进行适当的位相匹配。

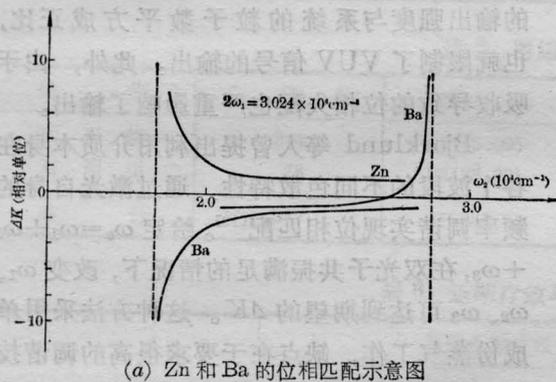
最常用的位相匹配方法是添加惰性气体,加入的惰性气体使入射波在混合区的  $\Delta K$  发生变化。根据工作蒸气的  $\Delta K$  以及期望的最优值,在相应的波段上选择惰性气体的压力,可以满足最优条件的要求。Harris 首先采用了这一方法<sup>[11]</sup>。这种方法的局限性在于:由于惰性气体具有很短的共振波长,对一定压力的蒸气所需的惰性气体压力较高,会使混合气体中形成二聚体和准分子的机会增多,从而会强烈吸收入射波。但 VUV 辐射的输出强度与系统的粒子数平方成正比,也就限制了 VUV 信号的输出。此外,由于吸收导致的位相失配也严重影响了输出。

Bjorklund 等人曾提出利用介质本身在各个波段的不同色散特性,通过激光自身的频率调谐实现位相匹配<sup>[12]</sup>。给定  $\omega_s = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$ ,在双光子共振满足的情况下,改变  $\omega_1$ 、 $\omega_2$ 、 $\omega_3$  可达到期望的  $\Delta K$ 。这种方法采用单成份蒸气工作,缺点在于要求很高的调谐技术,实现比较困难。此外,需同时采用三台激光器,并且要求工作蒸气可以简化成四能级系统。在要求输出连续可调的情况下,不宜采用这种方法。

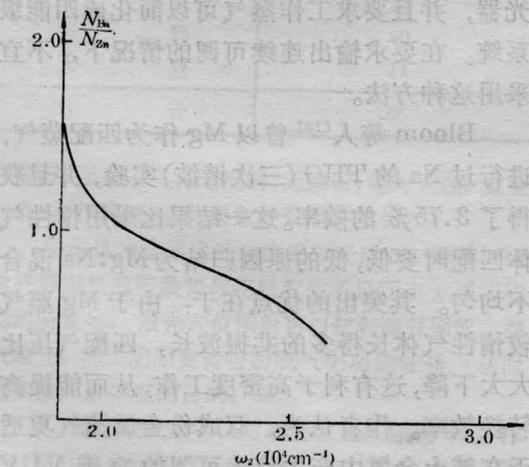
Bloom 等人<sup>[13]</sup>曾以 Mg 作为匹配蒸气,进行过 Na 的 THG (三次谐波)实验,并且获得了 3.75% 的效率。这一结果比采用惰性气体匹配时要低,低的原因归结为 Mg:Na 混合不均匀。其突出的优点在于:由于 Mg 蒸气较惰性气体长得多的共振波长,匹配气压比大大下降,这有利于高密度工作,从而能提高转换效率。作者认为,双成份金属蒸气更适于在碱土金属中产生连续可调的窄带 VUV 输出。首先,碱土金属在 VUV 波段的  $\Delta K$  曲线有许多变化缓慢的波段,选择适当的匹配

蒸气可以在相当宽的频率范围内保持小的失配;其次,除了可以匹配外,有可能使匹配气体也产生信号输出。我们采用 Sellmeirre 公式,略去自电离态的效应,作出了 Ba 和 Zn 的  $\Delta K_{Zn}$  和  $\Delta K_{Ba}$  对调谐频率  $\omega_2$  的关系曲线(图 3)。从这些曲线可以看出,它们适于进行位相匹配,如果能使两者同时具有双光子共振增强,则它们就能同时产生输出。另外,碱土金属比较稳定,高温下工作时形成二聚体的机会比碱金属要少得多,预计只要避开基波的单光子吸收,可以使系统密度尽可能高(提高温度),这样,会更有利于获得高的转换。结论的准确性有待今后的实验验证。

位相匹配条件一般情况下是不能由前面提到的简单表达式来给出的,应计及其它过



(a) Zn 和 Ba 的位相匹配示意图



(b) Ba 和 Zn 的粒子数密度比曲线

图 3

程的影响,其中较为重要的是吸收,以及三阶过程强度相关的折射率。在要求不破坏位相匹配条件和不显著减少入射波强度的要求下,这些过程构成了对混频过程的各种限制。

## 五、限制过程

激光在介质中的四波混频,是在各种不同过程的竞争中获得优势而输出信号的。各种限制过程趋于减小  $2\omega_1 + \omega_2$  的输出,通过选用介质或者在实验中采用一些技术措施,如位相匹配和利用  $\chi^{(3)}$  的共振增长,即可望为过程  $2\omega_1 + \omega_2$  创造最优条件。

1. 单光子吸收:基波的单光子吸收可使激光束远离原子单光子共振频率来消除,信号波  $2\omega_1 + \omega_2$  的吸收则是可以避免的。决定这一吸收程度的量是  $NL\sigma^{(1)}(\omega_s)$ ,其中,  $N$  为粒子数密度,  $L$  为工作蒸气区长度,  $\sigma^{(1)}(\omega_s)$  是  $\omega_s$  波的单光子吸收截面。在四波耦合方程中,在平面波入射的前提下,考虑单光子吸收衰减,可以求得信号波强度  $I_s$  与  $\Delta K$  及初始入射波强度的关系:

$$I_s \sim \frac{\left\{ \begin{aligned} & [1 + e^{-2N\sigma^{(1)}(\omega_s)L} - 2e^{-\sigma^{(1)}(\omega_s)NL} \\ & \cos \Delta K L \end{aligned} \right\} N^2 I_{10}^2 I_{20}}{[N\sigma^{(1)}(\omega_s)]^2 + (\Delta K)^2} \quad (5)$$

上式在  $\sigma^{(1)}(\omega_s)NL \ll 1$  时,给出熟知的小信号无吸收的结果:

$$I_s \sim I_{10}^2 I_{20} N^2 \text{sinc}^2 \frac{\Delta K L}{2} \quad (6)$$

在  $N\sigma^{(1)}(\omega_s)L \gg 1$  的情况下:

$$I_s \sim \frac{N^2 I_{10}^2 I_{20}}{[N\sigma^{(1)}(\omega_s)]^2 + (\Delta K)^2} \quad (7)$$

由(5)式可以看出,  $\omega_s$  的吸收导致比无吸收小的  $I_s$ , 而且相位匹配条件也不再是  $\Delta K = 0$ , 而且给出了完全不同的匹配关系。在极端情况下,则给出(7)式的色散线型。避免  $\omega_s$  的吸收可设法使关系  $N\sigma^{(1)}(\omega_s)L \ll 1$  得到满足。特别是在高密度下工作时,应当考虑这一关系的要求。

2. 双光子吸收: 基波的双光子吸收会导致: ① 基态的粒子数减少; ② 入射波光强下降; 基态粒子数下降会降低 VUV 输出; 激发态的布居会导致位相匹配条件的破坏从而降低 VUV 输出, 同时会导致其他过程的发生, 例如激光过程等。这些过程的竞争效应也会导致 VUV 输出下降, 由于双光子吸收截面在共振条件下增大以及吸收速率与入射强度的平方成正比关系, 因而这是一种可以与入射波单光子吸收影响相比的过程。

我们在单独考虑  $\omega_1$  波的双光子吸收时, 在平面波小信号条件下, 求解了四波耦合方程。当双光子吸收截面很小, 因而可以忽略时:

$$I_s \sim I_{10}^2 J_{20}^2 N^2 \text{sinc}^2 \frac{(\Delta K - 2I_m(A_1)E_{10}^2)L}{2} \quad (8)$$

式中,  $A_1 = i \frac{\omega_1}{2\varepsilon_0 n_{\omega_1} c} [K(\omega_1) \chi^{(3)}(-\omega_1, \omega_1, -\omega_1, \omega_1)]$ ;  $n_{\omega_1}$  为  $\omega_1$  波的线性折射率;  $K(\omega_1)$  为  $2\omega_1 + \omega_2$  过程的  $K$  因子, 为一常数;  $\varepsilon_0$  为真空介电常数;  $c$  为真空光速; 这一结果表明三阶非线性折射率影响计及后, 会产生一  $\Delta K$  的位移。

考虑到双光子吸收:

$$I_s \sim \left[ \int_0^L dz' \int_0^{z'} dz \frac{e^{-i\Delta K z + i\Delta\phi(z)}}{1 - 2E_{10}^2 \text{Re}(A_1)z} \right]^2 I_{10}^2 I_{20} \quad (9)$$

式中,  $E_{10}$  是  $\omega_1$  波的入射场振幅;

$$\Delta\phi(z) = \frac{I_m(A_1)}{\text{Re}(A_1)} \ln(1 - 2\text{Re}(A_1)E_{10}^2 z) \quad (10)$$

从(9)式和(10)式出发, 即使在  $2\text{Re}(A_1)E_{10}^2 L \ll 1$  的情况下, 也可以得出明显的双光子饱和效应。此时  $I_s$  与  $I_{20}$  成正比, 然而与  $I_{10}$  的关系是一个比较复杂的关系。

结果表明, 双光子吸收效应对 VUV 输出的影响是很强烈的。

既要减小双光子吸收, 又要利用共振增强, 可以考虑使双光子共振束  $2\omega_1$  偏离共振

几个能级线宽。在实验条件许可的情况下, 可以采用非共振四波混频, 由于非共振时的双光子饱和光强比较高, 因而允许通过加大入射束的功率来提高转换效率。此外, 根据 E. A. Stapperts<sup>[14]</sup> 的讨论, 在双光子共振情况下, 对于低密度系统, 双光子泵浦转换器效率与多普勒宽度和激光束的线宽之积成反比。因而线宽窄的激光束有利于减小双光子共振吸收, 在高密度系统中, 吸收主要取决于压力加宽和激光线宽, 小的压力加宽有利于减少双光子吸收。Harris 和 Bloom 用假定的四能级系统, 得到过同样的结论<sup>[15]</sup>。因而可以肯定, 采用双蒸气匹配系统对于减少双光子吸收是有利的。以前采用惰性气体进行位相匹配曾获得过 VUV 信号随匹配气体气压升高而下降的结果。被归结为压力加宽影响。

3. 其他过程: 非线性效应不仅导致吸收, 还会引起折射率的变化, 使得折射率与光强相关。这种影响除了引起位相匹配条件的变化而影响输出外, 由于高斯光束的径向相关的强度分布, 会导致入射激光束的聚焦或者散焦, 从而破坏混频过程。在强度比较高的情况下这一问题变得更突出。Puell<sup>[16]</sup> 在分析的基础上得到了由于三阶光强相关折射率影响产生自聚焦效应的临界功率  $P_{cr}$  和聚焦位置  $Z_F$ , 它们分别表示为

$$P_{cr} = \frac{(1.22\lambda)^2 c \pi \varepsilon_0}{64 n_2} \quad (11)$$

式中,  $n_2 = \frac{3}{8} \chi^{(3)}(-\omega, \omega, -\omega, \omega) / n_0$ ,  $n_0$  为线性折射率,  $\lambda$  为入射波长。

$$Z_F = \frac{\pi w_0^2}{\lambda \left( \frac{P}{P_c} \right)^{1/2} - 1} \quad (12)$$

式中  $P$  为入射功率;  $w_0$  为高斯光束束腰半径。如果计及到五阶项, 在一定强度下则会出现散焦。非线性折射率从三阶起逐级变符号, 随入射强度的增加, 聚焦和散焦效应交替占主导地位。在一般的实验条件下, 只要入射功率不很高 (比如小于  $10^7$  W), 实际可以不考

虑。在高入射强度下,可以利用相邻级的相反效应来避免之。

多光子电离是一比较复杂的效应,影响比较严重时,可以完全破坏混频的条件。实验和理论的出入比较大。在采用碱金属进行UV段波长的产生时,这一效应具有显著影响。采用碱土金属时,由于相对稳定,在入射强度不高时这一效应并不显著。

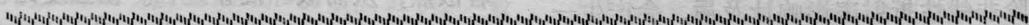
二聚体效应只对碱金属比较重要,采用碱土金属和惰性气体,可以不考虑这一效应。

从上面的讨论可以看出,在进行非线性四波混频产生VUV相干辐射时,主要的限制过程是吸收及其相关的非线性折射率的影响。在考虑最优工作条件时,应计及这些限制过程。C.R. Vidal曾建议,可以在计及所有的限制过程的影响后再进行位相匹配<sup>[17]</sup>。

### 参 考 文 献

- [1] G. H. C. New, J. F. Ward; *Phys. Rev. Lett.*, 1967, **11**, 556.  
[2] P. N. Butcher, *Nonlinear Optics Phenomena*, Ohio State Uni. Columbus Ohio, 1965, p. 75.

- [3] J. A. Armstrong, J. J. Wynne; *Phys. Rev. Lett.*, 1974, **33**, 1183.  
[4] U. Fano; *Phys. Rev.*, 1961, **124**, 1866~1878.  
[5] R. T. Hodgson *et al.*; *Phys. Rev. Lett.*, 1974, **32**, 343.  
[6] M. Matsuoka; *Opt. Commun.*, 1975, **15**, 84~86.  
[7] R. Hilbig, R. Wallenstein; *Opt. Commun.*, 1983, **44**, 283., R. Wallenstein; *Opt. Commun.*, 1980, **33**, 119., R. Hilbig, R. Wallenstein; *Appl. Opt.*, 1982, **21**, 913.  
[8] 赵理曾, 聂玉昕; 《量子电子学》, 1984, **1**, No. 4, 217.  
[9] C. R. Vidal, J. Cooper; *J. Appl. Phys.*, 1969, **40**, 3370.  
[10] G. C. Bjoklund; *IEEE J. Quant. Electr.*, 1975, **QE-11**, 287~296.  
[11] S. E. Harris, R. Miles; *Appl. Phys. Lett.*, 1971, **19**, 385.  
[12] G. C. Bjoklund; *Appl. Phys. Lett.*, 1976, **29**, 729.  
[13] D. M. Bloom *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1973, **22**, 301.  
[14] E. A. Stappaerts *et al.*; *IEEE J. Quant. Electr.*, 1976, **QE-12**, 330~333.  
[15] S. E. Harris, D. M. Bloom; *Appl. Phys. Lett.*, 1974, **24**, 229.  
[16] H. Puell, C. R. Vidal; *Opt. Commun.*, 1975, **27**, 165~170.  
[17] C. R. Vidal; *Appl. Opt.*, 1980, **19**, 3897.



(上接第280页)

致谢意。本工作得到张义德、李军建同志的协助,一并致谢。

### 参 考 文 献

- [1] J. M. Austin, A. L. S. Smith; *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 1972, **5**, 468~475,  
[2] J. A. Macken *et al.*; *Bull. Am. Phys. Soc.*, 1967, **12**, 669.  
[3] Corrin, S. J. B. Corrigan; *J. Chem. Phys.*, 1969, **50**, 2570~2574.  
[4] Gasilevich E. S. *et al.*; *Soviet Phys-Technical Physics*, 1969, **14**, 86~91.  
[5] B. G. Buser, J. J. Sullivan; *J. Appl. Phys.*,

1970, **41**, No. 2, 472.

- [6] Karube, Eiso Yamaka; *J. Appl. Phys.*, 1970, **41**, 2031~2042.  
[7] Austin J. M., A. L. S. Smith; *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 1972, **5**, 468~475.  
[8] 金蕊文; 《四川激光》, 1980, No. 4.  
[9] 王欲知; 真空技术, 1980年, 四川人民出版社, p. 259.  
[10] Smith A. L. S., J. M. Austin; *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 1974, **1**, 314~322.  
[11] Merle N. Hirsh, H. J. Oskam; *Gaseous Electronics*, **1**, Electrical Discharges, Academic Press, 1978, Cpt. 2, Part 2.3 & 2.4.