

# 由双光子共振激发钾蒸气产生红外受 激辐射以及紫外和可见相干辐射\*

王祖赓 唐小玲<sup>†</sup> 张开昌 郑一善  
(华东师范大学物理系)

## 提 要

当双光子共振激发钾原子到7S能级时,测得了一系列位于红外区的光泵受激辐射和串级受激辐射。由光泵受激辐射与泵浦光的双光子共振四波混频过程,产生了对应于6P-4S和5P-4S的强相干辐射。而这两个相干辐射又具有泵浦光的作用,通过接联的四波混频过程产生位于紫外和可见区的许多相干辐射。文中对测到的红外受激辐射以及紫外和可见相干辐射的产生过程进行了讨论。

## 一、引 言

运用光泵产生受激辐射以及由混频过程获得新的相干辐射是人们长期以来感兴趣的研究课题。在金属蒸气中,由钠、钾、钡和铯等原子的双光子激发,通过四波混频等过程,已观察到许多相干辐射<sup>[1~5]</sup>。

在本工作中,我们利用YAG激光泵浦的染料激光器,将钾原子由基态4S双光子激发到7S。以红外探测器接收由7S发出的光泵红外受激辐射和一系列串级受激辐射;用光电倍增管探测由这些红外受激辐射与泵浦束四波混频作用所产生的强紫外相干辐射;以及由该紫外相干辐射作为泵浦束,通过接联的四波混频过程所产生的紫外和可见相干辐射。

本文对测到的位于1.18~7.89 μm区的十条红外受激辐射作了标识;对所产生的位于345.3 nm~560.3 nm区的三十余条相干辐射线的形成过程作了讨论。

## 二、实 验

实验装置如图1所示。由脉冲YAG二倍频激光器1泵浦染料激光器2,在使用DCM染料时,在660.0 nm附近的输出能量约为5 mJ,激光输出线宽约为0.01 nm。

由聚焦透镜将染料激光束会聚到装有钾的热管炉4的中心。热管炉长650 mm,直径为25 mm,加热区长250 mm。热管炉的入射和出射端分别装有石英和CaF<sub>2</sub>窗片。用自动控温仪将热管炉加热到400°C,这时所对应的钾原子的浓度为 $10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 。

由热管炉前向出射的定向红外,可见和紫外辐射信号呈现一光斑,在离热管炉中心约

收稿日期:1986年2月4日;收到修改稿日期:1986年4月22日

\* 中国科学院科学基金资助的课题。

<sup>†</sup> 陕西师范大学物理系研究生。

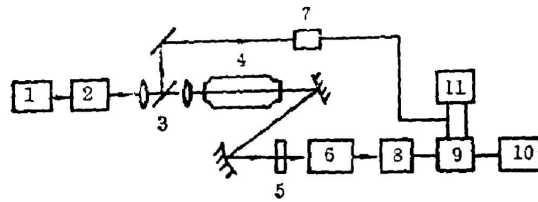


Fig. 1 Experimental setup

1—Nd:YAG laser; 2—Dye laser; 3—lens; 4—heat-pipe oven; 5—filters;  
6—grating monochromator; 7—triggering detector; 8—signal detector;  
9—signal processing system; 10—Chart recorder; 11—oscilloscope.

1 m 处, 光斑半径约为 3 mm。这些受激辐射和相干辐射信号经滤光片组 5 后进入单色仪 6 进行光谱分析。对于红外、可见和紫外区的不同信号分别选用适当的带通滤光片组, 以滤去剩余的泵浦光, 并保留待分析波段的信号。从单色仪出射的红外波段的信号由 PbS 探测器或高莱池接收, 可见和紫外波段的信号由光电倍增管接收后, 经信号处理系统 9 后由记录仪 10 记录, 并由示波器 11 观察。探测器 7 接收微量泵浦光以提供信号处理系统和示波器所需的触发信号。

### 三、结果和讨论

图 2 为钾原子的部分能级图<sup>[7]</sup>。当泵浦光束的输出波长  $\lambda_L$  调谐到 660.45 nm 时, 钾原子

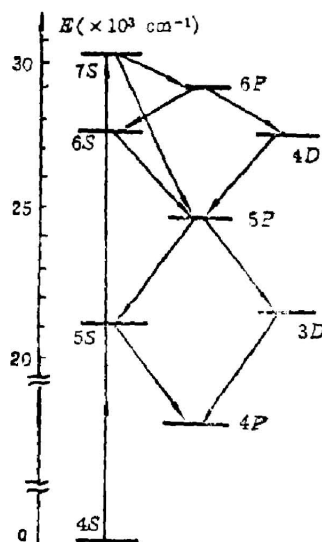


Fig. 2 Energy level diagram of potassium and two-photon pumped stimulated radiation

由基态 4S 双光子共振激发到 7S 态, 从热管炉前向出射的定向辐射光谱成分, 经仔细测量和计算, 按其产生的过程可分为以下几类。

#### 1. 双光子共振泵浦受激辐射

钾原子由双光子共振激发到 7S 态, 形成了 7S 态与 6P 态, 以及 7S 与 5P 态之间的布居反转, 从而分别产生了 7.89  $\mu\text{m}$  和 1.80  $\mu\text{m}$  的受激辐射。来自 7S 态的受激辐射又使 6P 态获得了大量布居, 并形成了 6P 态和 6S 态, 6P 态与 4D 态之间的布居反转, 从而产生了 6.43  $\mu\text{m}$  和 6.21  $\mu\text{m}$  的第一级串级受激辐射。同样, 还存在第二级、第三级和第四级的串级受激辐射。实验中测得了如图 2 所示的四级串级受激辐射, 第四级串级受激辐射的终态为 4P。为明确起见, 可将双光子共振泵浦以及由 7S 到 6P 的受激辐射和相应的第一级串级受激辐射过程表达为

$$K(4S) + 2\omega_L \longrightarrow K^*(7S), \quad (1)$$

$$K^*(7S) \longrightarrow K^*(6P) + \omega(7S - 6P, 7.89 \mu\text{m}), \quad (2)$$

$$K^*(6P) \begin{cases} K^*(6S) + \omega(6P - 6S, 6.43 \mu\text{m}), & (3) \\ K^*(4D) + \omega(6P - 4D, 6.21 \mu\text{m}). & (4) \end{cases}$$

表 1 中列出了实验中测得的 10 个受激辐射和串级受激辐射的波长,并标注了它们所对应的能级跃迁。

## 2. 双光子共振四波混频产生的相干辐射

由上述双光子共振受激辐射波与泵浦光波相互作用的四波混频过程产生紫外区的相干辐射,其混频形式为

$$\omega_P = 2\omega_L - \omega_S, \quad (5)$$

式中,  $\omega_L$  为泵浦光频率,  $\omega_S$  为双光子共振受激辐射或串级受激辐射频率,  $\omega_P$  为混频过程所产生的相干辐射频率。表 2 中列出了实验中测得的属于这种混频方式的 9 条相干辐射线,其中第一列为实验测得的相干辐射波长值,第二列是由(5)式计算所得的相干辐射波长值,

Table 1 Stimulated and cascade stimulated radiation and corresponding transitions by two-photon, resonant pumping

No.	corresponding transition	theor. value ( $\mu\text{m}$ )	exp. value ( $\mu\text{m}$ )
1	7S→6P	7.89534	7.89
2	6P→6S	6.42252	6.42
3	6P→4D	6.21288	6.21
4	4D→5P	3.73412	3.73
5	6S→5P	3.66227	3.66
6	5P→3D	3.14154	3.14
7	5P→5S	2.70739	2.71
8	7S→5P	1.80046	1.80
9	5S→4P	1.25256	1.25
10	3D→4P	1.17729	1.18

Table 2 UV coherent radiation generated in two-photon resonant four-wave mixing

No.	exp. value $\lambda$ (nm)	theor. value $\lambda$ (nm)	form of mixing	relative intensity
1	344.66	344.67	$2\omega_L - \omega_S(7S-6P_{3/2})$	80.0
2	344.76	344.74	$2\omega_L - \omega_S(7S-6P_{1/2})$	76.0
3	404.42	404.41	$2\omega_L - \omega_S(7S-5P_{3/2})$	64.0
4	404.76	404.72	$2\omega_L - \omega_S(7S-5P_{1/2})$	61.0
5	348.75	348.76	$2\omega_L - \omega_S(6P-4D)$	15.0
6	348.15	348.12	$2\omega_L - \omega_S(6P-6S)$	20.0
7	363.00	362.96	$2\omega_L - \omega_S(6S-5P)$	8.5
8	362.30	362.26	$2\omega_L - \omega_S(4D-5P)$	6.0
9	369.05	369.02	$2\omega_L - \omega_S(5P-3D)$	4.5

第三列为混频形式, 第四列注明了各相干辐射的相对强度。我们注意到, 由从7S出发的双光子共振受激辐射波与泵浦波混频所产生的相干辐射的强度最强(表2中序号为1~4的项即为这类相干辐射); 由第一级串级辐射波与泵浦光波混频所产生的相干辐射强度次为(表2中序号为5~6的项); 由第二级(或第三级)串级辐射波的混频过程所产生的相干辐射的强度最弱(表2中序号为7~9的项), 而与第四级串级辐射波相关联的相干辐射在实验中没有测到。

由非线性光学的极化理论, 四波混频过程  $\omega_P = 2\omega_L - \omega_S$  的极化强度为

$$P^{(3)}(\omega_P) = \epsilon_0 \chi^{(3)}(-\omega_P, \omega_L, \omega_L, -\omega_S) E_L^2(\omega_L) E_S^*(\omega_S), \quad (6)$$

这里,  $E_L(\omega_L)$  和  $E_S(\omega_S)$  分别是激光场和由双光子激发产生的受激辐射场的电场强度,  $\chi^{(3)}$  是该过程的三阶极化率

$$\chi^{(3)}(-\omega_P, \omega_L, \omega_L, -\omega_S) = K \frac{N}{\hbar^3} \sum_{ijkl} \frac{R_{ij} R_{kl} R_{lm} R_{jk}}{(\Omega_i - \omega_L)(\Omega_j - 2\omega_L)(\Omega_k - \omega_P)}, \quad (7)$$

这里  $N$  是原子的密度,  $R_{ij}$  是能级  $i$  与能级  $j$  之间的电偶极矩阵元,  $\Omega_i = [(E_i - E_j)/\hbar] - i\Gamma_i$  是复数频率,  $\Gamma_i$  是与能级  $i$  的寿命和弛豫等有关的量,  $K$  是一个数因数。从(6)式可看出四波混频产生的相干场的极化强度与该过程的极化率  $\chi^{(3)}$ 、参与混频的激光场的平方  $E_L^2$  及受激辐射场  $E_S$  成正比。表2中的序号为1~4的项所列的四个相干辐射, 其对应的  $\chi^{(3)}$  都分别有两个共振增强项, 即  $\Omega_{7S} - 2\omega_L$ ,  $\Omega_{6P_{1/2}} - \omega_P$ ;  $\Omega_{7S} - 2\omega_L$ ,  $\Omega_{6P_{3/2}} - \omega_P$ ;  $\Omega_{7S} - 2\omega_L$ ,  $\Omega_{5P_{1/2}} - \omega_P$ ;  $\Omega_{7S} - 2\omega_L$ ,  $\Omega_{5P_{3/2}} - \omega_P$ 。另外受激辐射场  $E_S[\omega_S(7S-6P)]$  和  $E_S[\omega_S(7S-5P)]$  是表1所列辐射中最强的两个, 因而这四条相干辐射线很强。而序号为5~6的项所列的辐射强度次之是由于  $\chi^{(3)}$  的表达式中分别有一个共振项  $\Omega_{7S} - 2\omega_L$  和一个近共振项  $\Omega_{6P} - \omega_P = 342 \text{ cm}^{-1}$  或  $\Omega_{6P} - \omega_P = 292 \text{ cm}^{-1}$ , 且第一级串级受激辐射场强  $E_S[\omega_S(6P-6S)]$  和  $E_S[\omega_S(6P-4D)]$  较受激辐射场强  $E_S[\omega_S(7S-6P)]$  和  $E_S[\omega_S(7S-5P)]$  弱。表2中所列的最后两条相干线(序号为9~10)的强度很弱, 是由于  $\chi^{(3)}$  的表达式中仅有一个共振项以及第二级和第三级串级受激发射场更弱的原因。

图3示出了产生  $344.6 \text{ nm}(6P_{3/2} - 4S)$  和  $344.7 \text{ nm}(6P_{1/2} - 4S)$  相干辐射线的双光子共振四波混频方式。

### 3. 以 $\omega_P$ 为泵浦束的二次混频相干辐射

由(5)式所产生的对应于频率为  $\omega_P = \omega(6P-4S)$  和  $\omega'_P = \omega(5P-4S)$  的强相干辐射, 可作为第二次产生四波混频的泵浦束。这时它以单光子的形式泵浦钾原子, 并在样品炉中与前节中所述的光泵受激辐射和串级受激辐射发生混频, 从而产生一系列位于紫外和可见区的相干辐射。其混频形式为

$$\omega_C = \omega_P - \omega'_S \mp \omega''_S \quad (8)$$

式中  $\omega'_S$  和  $\omega''_S$  为表1中所列受激辐射或串级受激辐射,  $\omega_C$  为第二次四波混频所产生的相干辐射。例如,  $\omega'_S = \omega_S(6P-6S)$ ,  $\omega''_S = \omega_S(5S-4P)$ , 而  $\omega_P = 2\omega_L - \omega_S(7S-6P)$ , 则由(8)式所表达的混频方式可产生波长为  $513.5 \text{ nm}$  的相干辐射, 图4示意了这种二次四波混频方式。该过程的极化强度由下式给出

$$P^{(3)}_{(\omega_C)} = \epsilon_0 \chi^{(3)}(-\omega_C, \omega_P, -\omega'_S - \omega''_S) E_P(\omega_P) E_{S'}^*(\omega'_S) E_{S''}^*(\omega''_S), \quad (9)$$

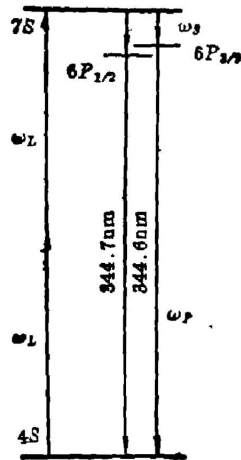


Fig. 3 Mixing scheme for generating 344.6 nm and 344.7 nm coherent radiation lines

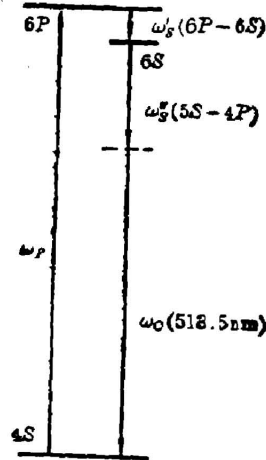


Fig. 4 Mixing scheme for generating 513.5 nm coherent radiation line

$$\chi^{(3)}(-\omega_0, \omega_P, -\omega'_S, -\omega''_S) = K' \frac{N}{\hbar^3} \sum_{ijk} \frac{R_{0i} R_{ij} R_{jk} R_{kp}}{(\Omega_i - \omega_P)(\Omega_j - \omega_P + \omega''_S)(\Omega_k - \omega_0)} \quad (10)$$

对  $\omega''_S$  前为“+”的混频形式，只需相应改变上述表达式(9)式和(10)式中的  $\omega''_S$  变为“- $\omega''_S$ ”， $E_{S''}^*(\omega''_S)$  变为其复共轭  $E_{S''}(\omega''_S)$  的形式就可求得。

表3中列出了实验测得的另外22条相干辐射线。它们是以  $\omega_P$  或  $\omega'_P$  为泵浦束的四波混频过程所产生的。表中第三列给出了所测得的相干辐射所对应的混频方式。可以清楚地看到，凡是以  $\omega_P(4S-6P)$  为泵浦束，并且至少有一个是表1中的第一级串级受激辐射(即  $\omega_S(6P-6S)$  或  $\omega_S(6P-4D)$ ) 参与混频，那么往往不仅能在实验中测得相应的二次四波混频相干辐射，而且信号还是较强的(表3中序号为1~14的项)。事实上，在  $\omega_P(4S-6P)$  对样品再次泵浦的情况下， $\omega_S(6P-6S)$  和  $\omega_S(6P-4D)$  的辐射又得到了共振加强。另外，从(10)式可知，对这十四个相干辐射，其  $\chi^{(3)}$  都有两个共振增强项。在表3中序号为15~22项所列出的8个相干辐射信号是较弱的。从它们所对应的混频形式可看出它们有的虽然以  $\omega_P(4S-6P)$  为泵浦束，但被增强的第一级串级辐射没有参与混频，或者是(8)式中的  $\omega''_S$  前取了“+”号， $\chi^{(3)}$  的表达式中原来两个共振项，现在成为一个共振项和一个非共振项；有的以  $\omega_P(4S-5P) = 2\omega_L - \omega_S(7S-5P)$  为泵浦束，显然，该辐射比起  $\omega'_P(4S-6P) = 2\omega_L - \omega_S(7S-6P)$  来要弱很多。

总之，上述实验事实恰恰与理论相符。由(9)和(10)式知二次四波混频产生的相干辐射场的强弱，与参与混频的泵浦场强受激辐射场强和该过程的极比率成正比；若泵浦场或受激辐射场弱，则混频产生的相干场就弱；另外，若极化率表达式中所含共振项少，则相干辐射场就弱。反之亦然。

图5画出了产生544.9 nm相干辐射的混频形式。显然，这种混频形式所产生的相干辐射

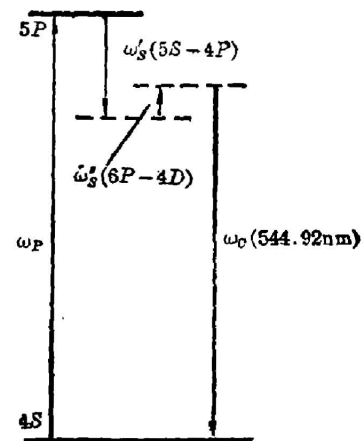


Fig. 5 Mixing scheme for generating 544.92 nm coherent radiation line

Table 3 Coherent radiation generated through the second four-wave mixing processes  
(pumping beam:  $\omega_P=2\omega_L-\omega_S(7S-6P)$  or  $\omega'_P=2\omega_L-\omega_S(7S-5P)$ )

No.	exp. value $\lambda$ (nm)	theor. value $\lambda$ (nm)	form of mixing	relative intensity
1	345.30	345.27	$\omega_P-\omega_S(6P-4D)+\omega_S(6P-6S)$	12.0
2	381.82	381.80	$\omega_P-\omega_S(7S-6P)-\omega_S(6P-6S)$	30.0
3	382.60	382.57	$\omega_P-\omega_S(7S-6P)-\omega_S(6P-4D)$	27.5
4	386.10	386.09	$\omega_P-2\omega_S(6P-6S)$	25.0
5	386.90	386.87	$\omega_P-\omega_S(6P-6S)-\omega_S(6P-4D)$	26.5
6	387.70	387.66	$\omega_P-2\omega_S(6P-4D)$	25.0
7	403.60	403.55	$\omega_P-\omega_S(6P-6S)-\omega_S(4D-5P)$	25.0
8	405.25	405.29	$\omega_P-\omega_S(6P-4D)-\omega_S(6S-5P)$	25.0
9	412.00	411.96	$\omega_P-\omega_S(6P-6S)-\omega_S(5P-3P)$	15.5
10	412.90	412.86	$\omega_P-\omega_S(6P-4D)-\omega_S(5S-3D)$	14.0
11	420.82	420.79	$\omega_P-\omega_S(6P-6S)-\omega_S(5P-5S)$	13.5
12	421.76	421.73	$\omega_P-\omega_S(6P-4D)-\omega_S(5P-5S)$	10.5
13	513.55	513.54	$\omega_P-\omega_S(6P-6S)-\omega_S(5S-4P)$	10.0
14	514.90	514.87	$\omega'_P-\omega_S(5P-5S)-\omega_S(6P-4D)$	8.0
15	373.10	373.08	$\omega'_P-\omega_S(6P-4D)+\omega_S(5P-5S)$	3.0
16	481.15	481.20	$\omega_P-\omega_S(7S-5P)-\omega_S(4D-5P)$	4.5
17	505.90	505.93	$\omega_P-\omega_S(7S-5P)-\omega_S(5P-5S)$	4.0
18	531.62	531.58	$\omega'_P-\omega_S(6S-5P)-\omega_S(5P-3D)$	3.0
19	546.45	546.49	$\omega_P-\omega_S(6S-5P)-\omega_S(5S-4P)$	3.5
20	544.90	544.92	$\omega'_P-\omega_S(5S-4P)+\omega_S(6P-4D)$	2.5
21	560.30	560.27	$\omega'_P-\omega_S(5P-5S)-\omega_S(5P-3D)$	3.0
22	376.18	376.14	$\omega_P-\omega_S(5S-4P)+\omega_S(7S-5P)$	1.5

是弱的。

图 6 中示出了所测得的部分相干辐射线。各谱线所对应的混频形式一并在图 6 中标出。

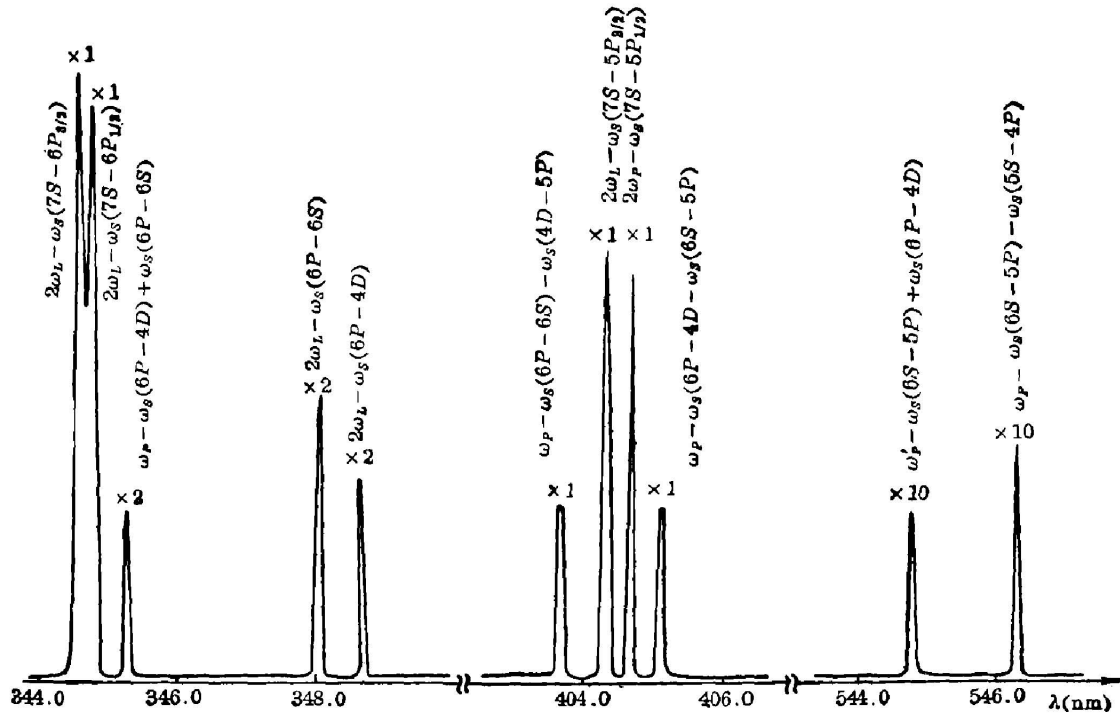


Fig. 6 Part of coherent radiation lines

#### 四、结 语

在本工作中，由双光子共振激发钾原子到 7S 能级，测到了 10 个位于红外区的双光子共振泵浦受激辐射和多串级受激辐射。由双光子共振四波混频过程，产生了 9 个紫外相干辐射。其中最强的两个相干辐射  $\omega_P = 2\omega_L - \omega_S(7S - 6P)$  和  $\omega'_P = 2\omega_L - \omega_S(7S - 5P)$  又可作为新的泵浦束激发钾原子，并由二次四波混频过程探测到 22 个位于紫外和可见的相干辐射。

#### 参 考 文 献

- [1] W. Hartig; *Appl. Phys.*, 1978, **15**, No. 4 (Apr), 427.
- [2] P. -L. Zhang, Y. -J. Wang, A. L. Schawlow; *J. O. S. A.*, 1984, **1**, No. 1 (Mar), 9.
- [3] C. E. Skinner, H. P. Palenius; *Opt. Commun.*, 1976, **18**, No. 3 (Aug), 335.
- [4] J. Heinrich, W. Behmenburg; *Appl. Phys.*, 1980, **23**, No. 3 (Nov), 333.
- [5] A. V. Smith, J. F. Ward; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1981, **QE-17**, No. 4 (Apr), 525.
- [6] A. N. Nesmyanov; *Vapor Pressure of the Chemical Elements*, (translated and edited by J. I. Carasso, Academic Press, New York, 1963).
- [7] S. Bashkin, J. O. Stoner, Jr., *Atomic Energy-Level and Grotrian Diagrams, Vol. II*, (North-Holland, Amsterdam, 1978).

**Generation of IR stimulated radiation and UV, violet  
coherent radiation by two-photon resonance  
pumping in K vapor\***

WANG ZUGENG, TANG XIAOLING†, ZHANG KAICHANG AND ZHENG YISHANG  
(*Department of Physics, East China Normal University*)

(Received 4 February 1986; revised 22 April 1986)

**Abstract**

A series of IR stimulated and cascade stimulated radiation ( $\omega_S$ ) were detected when the  $7S$  state of potassium was populated by two-photon resonance excitation. Nine UV coherent radiation lines ( $\omega_P$ ) were generated through the two-photon resonant four-wave mixing  $\omega_P = 2\omega_L - \omega_S$ . By the second four-wave mixing process  $\omega_C = \omega_P - \omega'_S \mp \omega''_S$ , a series of UV and violet coherent radiation were formed. The schemes for generating IR stimulated and UV, violet coherent radiation were discussed in this paper.

---

\* Project Supported by the Science Fund of Chinese Academy of Science.

† Permanent address: Department of Physics, Shan Xi Normal University.