

# 汞蒸汽中双光子共振四波和频 产生 125 nm 的相干辐射\*

张晓明 朱宝强 邹英华  
(北京大学物理系, 北京 100871)

## 提 要

利用汞原子  $6^1S_0-7^1S_0$  双光子共振四波和频产生了 125 nm 的相干辐射。对双光子共振增强效应、双光子共振克尔(Kerr)效应进行了研究。讨论了平面波和聚焦情况下最佳相位匹配的条件。实验中还观测到了四波参量振荡和四波差频的信号输出。

关键词: 四波和频、真空紫外相干辐射。

## 一、引 言

利用气态介质的非线性效应是一种产生极短波长激光的相当有效方法<sup>[1,2]</sup>。金属蒸汽或惰性气体中的三阶非线性过程已有许多成功的实验报道, 如以汞蒸汽的双光子共振四波混频的实验产生了极紫外相干辐射<sup>[3,4]</sup>。

本文报道利用汞原子  $6^1S_0-7^1S_0$  的双光子共振四波和频, 在以氩为缓冲气体和聚焦情况下最佳相位匹配不能满足时获得 125 nm 的相干辐射。并讨论了相位失配的影响等。

## 二、理 论

图 1 是与四波和频过程有关的汞原子能级图。以 DCM 染料激光经 KDP 晶体倍频后产生的在 312.76 nm 附近可调谐的激光, 作为一束泵浦光( $\omega_1$ ), 实现汞原子  $6^1S_0-7^1S_0$  双光子共振, 而倍频后剩余的 625.52 nm 附近的激光作为另一束泵浦光( $\omega_3$ )。此两束泵浦光( $\omega_1$  和  $\omega_3$ ) 在汞蒸汽中是严格共线的。泵浦光  $\omega_3$  在  $7^1S_0-9^1P_1$  跃迁的红端近共振。获得: 四波和频( $\omega_4=2\omega_1+\omega_3$ ) 输出波长在 125 nm 附近; 四波参量振荡过程( $\omega'_4=2\omega_1-\omega'_3$ ) 产生的信号对应  $6^1S_0-6^1P_1$  跃迁, 其波长在 185 nm 附近, 而其中  $\omega'_3$  接近  $7^1S_0-6^1P_1$  跃迁频率; 四波差频( $\omega''_4=2\omega_1-\omega_3$ ) 输出在 208 nm 处。

入射光表示为

$$E(t) = (1/2)E_1 \exp(-i\omega_1 t + ik_1 r) + (1/2)E_3 \exp(-i\omega_3 t + ik_3 r) + c.c., \quad (1)$$

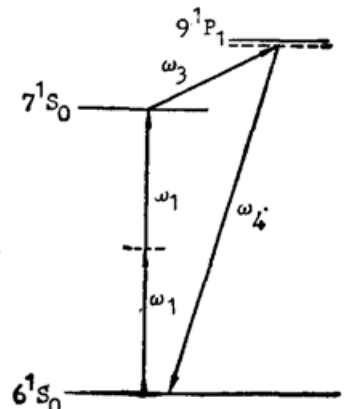


Fig. 1 Partial mercury energy-level diagram showing four-wave sum frequency mixing process

由于四波和频是三阶非线性过程, 其三级非线性极化强度表示为

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

式中三级非线性极化率  $\chi^{(3)}(-\omega_4, \omega_1, \omega_1, \omega_3)$  的普遍表达式有 48 项, 考虑到共振增强, 可略去贡献较小的项。得四波和频过程所对应的非线性极化率\*<sup>[5]</sup>

$$\chi^{(3)}(-\omega_4, \omega_1, \omega_1, \omega_3) = \frac{N e^4}{4 \hbar^3} \left[ \sum_i \frac{\gamma_{02} \gamma_{21} \gamma_{1i} \gamma_{i0} \rho_{00}^{(0)}}{(\omega_{i0} - \omega_1 - i\Gamma_{i0}) (\omega_{20} - 2\omega_1 - i\Gamma_{20}) (\omega_{10} - \omega_4 - i\Gamma_{10})} \right], \quad (3)$$

式中  $N\rho_{00}^{(0)}$  为汞原子在基态的粒子密度, 脚标  $i$  表示可能的中间态,  $\gamma_{02}$  等为跃迁矩阵元, 而  $\Gamma_{i0}$  等为阻尼系数。

在麦克斯韦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。当入射光的共焦参数  $b$  大于汞蒸汽的有效长度  $L$  时, 可采用(1)式的平面波近似。假定光束沿  $z$  方向传播, 在慢变化振幅近似下, 波动方程为

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial E_4}{\partial z} &= i \frac{2\pi\omega_4^2}{c^2 k_4} \chi^{(3)}(-\omega_4, \omega_1, \omega_1, \omega_3) E_1^2 E_3 \exp(-i\Delta k z), \\ \Delta k &= k_4 - 2k_1 - k_3. \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

在小讯号近似下, 即认为入射波振幅不变, 解得出射光强为

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

在文本的四波和频实验中, 只有在  $\omega_4$  处的折射率明显偏离 1。则

$$\Delta k = (\omega_4 \Delta n / c) - 2(\omega_1 \Delta n' / c). \quad (6)$$

(6)式第一项表示线性折射率变化  $\Delta n$  引起的波矢失配, 用 Sellmeier 公式<sup>[9]</sup> 计算  $\Delta n$

$$\Delta n = n_4 - 1 = N \frac{r_e f_{10}}{2\pi(\nu_{10}^2 - \nu_4^2)}, \quad (7)$$

式中  $r_e = 2.818 \times 10^{-13}$  cm,  $N = 3.927 \times 10^{16}$  cm<sup>-3</sup>,  $f_{10}$  为  $6^1S_0 - 9^1P_1$  跃迁振子强度, 取为 0.07,  $\nu_{10}$  和  $\nu_4$  分别为以 cm<sup>-1</sup> 为单位的  $6^1S_0 - 9^1P_1$  跃迁的波数和  $\omega_4$  所对应的波数, 计算得  $\Delta n = 2.235 \times 10^{-5}$ 。

$\omega_4$  落在  $6^1S_0 - 9^1P_1$  跃迁的红端, 所以汞原子表现为正色散, 无法依靠  $\omega_1$  和  $\omega_3$  的交叉非共线相位匹配或充入氢气(也是正色散)作缓冲气体实现相位匹配。

第二项表示双光子共振克尔效应对折射率的贡献。  $\Delta n'$  为由双光子共振克尔效应引起的折射率改变, 可表示为<sup>[8]</sup>

$$\left. \begin{aligned} \Delta n' &= 2\pi R e \{ \chi^{(3)}(-\omega_1, \omega_1, \omega_1, -\omega_1) \} \cdot |E_1|^2, \\ \chi^{(3)}(-\omega_1, \omega_1, \omega_1, -\omega_1) &= \frac{e^4 N \rho_{00}^{(0)}}{4 \hbar^3} \left| \sum_i \frac{2\gamma_{0i} \gamma_{i2}}{\omega_{i0} - \omega_1} \right|^2 \frac{(\omega_{20} - 2\omega_1) + i\Gamma_{20}}{(\omega_{20} - 2\omega_1)^2 + \Gamma_{20}^2}, \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

式中  $\chi^{(3)}(-\omega_1, \omega_1, \omega_1, -\omega_1)$  为  $6^1S_0 - 7^1S_0$  双光子共振的非线性极化率。从以上的分析看出, 在双光子共振红端 ( $2\omega_1 < \omega_{20}$ ), 克尔效应引起的波矢改变能够使波矢失配减小, 这将引起四波和频双光子共振增强曲线的不对称, 即双光子共振红端有更高的功率输出。

\* 假定所有光场线偏振方向相同。

### 三、实验装置

图 2 所示为产生双光子共振四波和频的实验装置。用调 Q YAG 激光器的二次谐波泵浦 DCM 染料激光器在波长 625.5 nm 附近最高输出为 20 mJ, 重复频率 10 pps, 脉宽 10 ns, 激光线宽  $0.5 \text{ cm}^{-1}$ 。热管炉 (HPO) 入射端为石英窗片, 出射端为氟化钙窗片, 炉内充有氩气作为缓冲气体。在本实验中氩气压强比汞蒸汽压高得多, 热管炉中汞蒸汽的有效作用区只有中央约 2~3 cm。VM 502 为 0.2 m 真空紫外单色仪。PMT 为太阳盲光电倍增管。单色仪的入口与热管炉的出射端真空密封连接, 整个光电倍增管被罩在真空套中, 与单色仪出口相通。并使单色仪及光电倍增管系统的真空度保持在  $7.0 \times 10^{-2} \text{ Pa}$  以上。染料激光经 KDP 晶体倍频后, 用焦距为 23 cm 的石英透镜 L 聚焦, 使倍频光和剩余基频光的焦点落在热管炉的有效作用区的中心(两束泵浦光的共焦参数分别为 3 cm 和 3.5 cm 左右), 并与热管炉和单色仪共轴。光电倍增管的输出信号经积分器 (Boxcar) 处理后由记录仪 (CR) 记录下来。示波器 (OSC) 用于监视光电倍增管的输出。积分器和示波器由快速二极管实现同步。

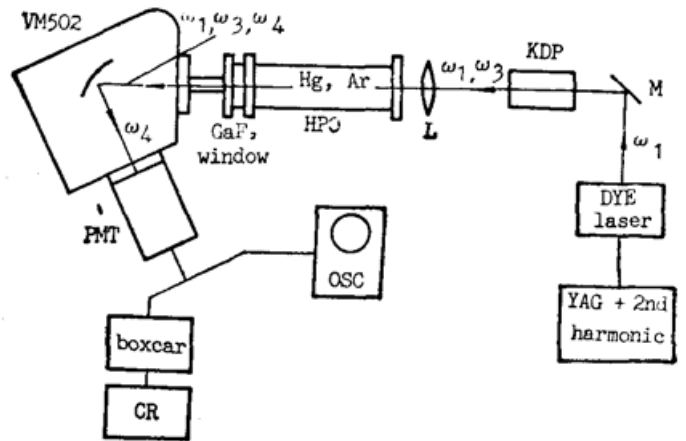


Fig. 2 Experimental arrangement

### 四、实验结果与分析

将染料激光调谐到  $6^1S_0-7^1S_0$  严格双光子共振的波长上, 从汞蒸汽中记录到三个波长

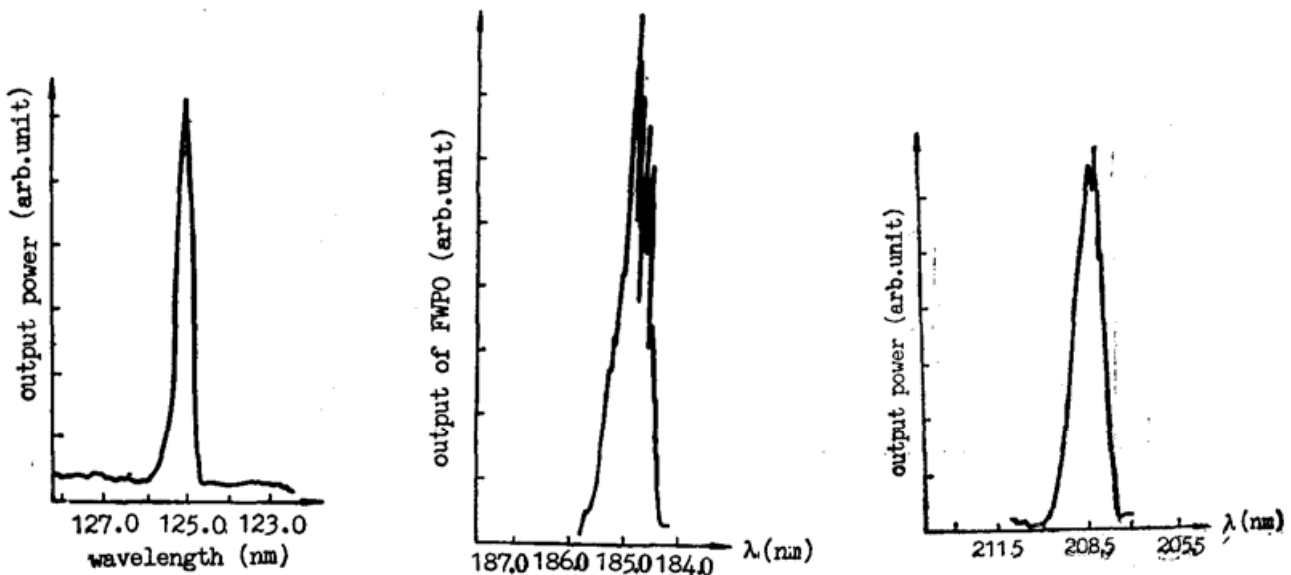


Fig. 3 Signal of four-wave sum frequency mixing, parametric oscillation and difference frequency mixing

的相干辐射，它们是中心波长在 125.1 nm 附近测得的扫描真空紫外单色仪记录到的四波和频输出的讯号(如图 3 所示)，和在 185 nm 和 208 nm 波长处观察到的四波参量振荡和四波差频的讯号，由于碱金属蒸汽中的四波参量振荡已有许多报道<sup>[7]</sup>，汞蒸汽中的四波参量振荡应有相似的物理过程。在汞蒸汽中  $6^1S_0-6^1D_2$  和  $6^1S_0-6^3D_2$  双光子共振四波差频过程作者曾作过详细报道<sup>[8]</sup>。因此本文着重研究四波和频过程\*。

1. 四波和频输出与激光波长的关系

为了研究四波和频过程的双光子共振增强效应，调谐染料激光波长，使泵浦光( $\omega_1$ )的波长通过汞原子  $6^1S_0-7^1S_0$  的双光子共振，图 4 表示四波和频输出与染料激光波长的关系。曲线显示出响应的半值全宽为  $1.2 \text{ cm}^{-1}$ 。相当于  $6^1S_0-7^1S_0$  双光子共振线宽为  $5.0 \text{ cm}^{-1}$ 。这个宽度远远超出了天然汞中六种同位素的同位素线移、染料激光线宽，多普勒效应和自然宽度等给出的贡献。说明已经出现了明显的双光子共振饱和效应。曲线在双光子严格共振点(染料激光波长 = 625.52 nm)两端出现明显不对称：蓝端曲线下降很陡，而红端曲线下降明显变缓。验证了前面理论分析所预言的由双光子共振克尔效应引起的折射率变化有利于红端的四波和频输出。

2. 四波和频输出与激光能量的关系

图 5 表示四波和频输出与染料激光的能量关系。当染料激光能量小于 6 mJ 时，显示五次方依赖关系。由于染料激光倍频晶体(KDP)的转换效率不高，倍频输出与基波呈现平方关系，这里的五次方依赖关系表明四波和频过程的能量(或功率)依赖关系符合(5)式的预期

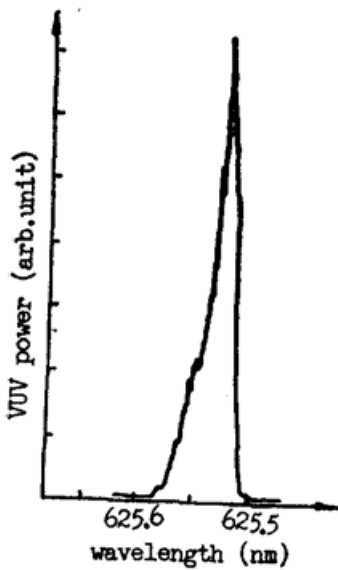


Fig. 4  $6^1S_0-7^1S_0$  two-photon resonant enhancement of our wave sum frequency mixing  
( $T=135^\circ\text{C}$ ,  $P_{\text{Ar}}=3990\text{Pa}$ , dye laser energy 20 mJ)

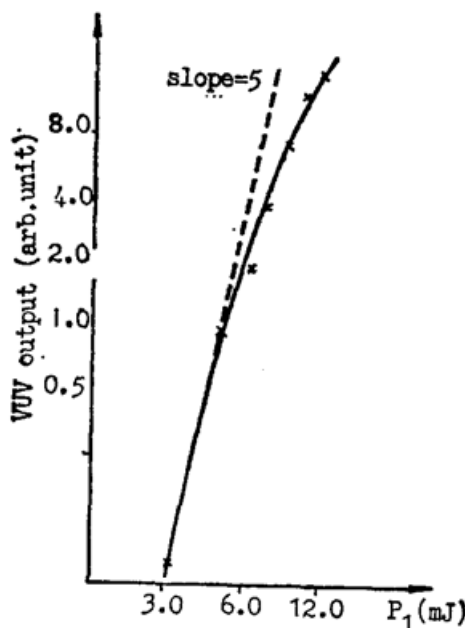


Fig. 5 Dependence of four wave sum frequency mixing signal on dye laser energy  
( $T=135^\circ\text{C}$ ,  $P_{\text{Ar}}=2660\text{Pa}$ )

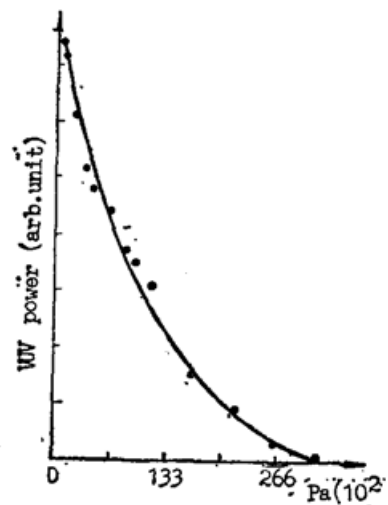


Fig. 6 Effect of Ar pressure on four-wave sum frequency mixing power  
( $T=135^\circ\text{C}$ , dye laser energy 20 mJ)

\* 在下面的实验中，若无特殊说明，都是将真空紫外单色仪波长固定在 125.1 nm，而且出入狭缝均调至 0.5 mm 宽。

结果。当能量进一步提高时,曲线偏离五次方关系,小讯号近似不再成立。图 4 显示的双光子共振饱和效应是实验点偏离五次方关系的原因之一。

### 3. 缓冲气体 Ar 的气压对四波和频输出的影响

前面已经论述,由于四波和频输出波长落在  $6^1S_0-9^1P_1$  跃迁的红端,相位匹配不能实现,具有正色散的氩气不利于提高四波和频输出功率。图 6 表示的结果验证了这个预言。为了获得较高的真空紫外相干辐射功率,氩气气压应尽可能低,但不能低于炉中汞蒸汽饱和气压,以免汞在热管炉窗片上凝结而降低透过率。

张玉珂曾参加部分工作,夏宗炬也给予过大力协助,作者表示衷心感谢。

### 参 考 文 献

- [1] F. S. Tomkins, R. Mahon; *Opt. Lett.*, 1981, **6**, No. 4 (Apr), 179~181.
- [2] W. Jamroz, P. E. La Rocque *et al.*; *Opt. Lett.*, 1982, **7**, No. 12 (Dec), 617~619.
- [3] R. Hilbig, R. Wallenstein; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1983, **QE-19**, No. 12 (Dec), 1759~1770.
- [4] P. R. Herman, B. P. Stoicheff; *Opt. Lett.*, 1985, **10**, No. 10 (Oct), 502~504.
- [5] T. K. Yee, T. K. Gustafson; *Phys. Rev. (A)*, 1978, **A18**, No. 4 (Oct), 1587~1617.
- [6] G. Bjorklund; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1975, **QE-11**, No. 6 (Jun), 287~296.
- [7] 朱宝强,夏宗炬等;《物理学报》,1991, **40**, No. 6 (Jun), 926~934.
- [8] 黄显玲,夏宗炬等;《物理学报》,1990, **39**, No. 9 (Sep), 1385~1392.
- [9] R. B. Miles, S. E. Harris; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1973, **QE-9**, No. 4 (Apr), 470~484.

## Generation of coherent radiation near 125 nm by two-photon resonant four-wave sum mixing in Hg vapor

ZHANG XIAOMING, ZHU BAOQIANG AND ZOU YINGHUA  
(Department of Physics, Beijing University, Beijing 100871)

(Received 21 October 1990; revised 2 May 1991)

### Abstract

Coherent radiation near 125 nm is generated by  $6^1S_0-7^1S_0$  two-photon resonant four-wave sum mixing ( $\omega_4 = 2\omega_1 + \omega_3$ ) in Hg vapor. The two-photon resonant enhancement and two-photon resonant Kerr effect have been investigated. The optimum phase-matching conditions of plane wave and focusing beam have been analysed. The signals of four-wave parametric oscillation and four-wave difference frequency mixing have also been observed.

**Key words:** FWM, VUV coherent radiation.