

# He/K 系统两步激励产生极紫外相干辐射 机制中的斯托克斯及反斯托克斯 竞争过程

赵利 王骥 马祖光

(哈尔滨工业大学光电子技术研究所, 哈尔滨 150006)

**摘要** 讨论了 He/K 混合蒸汽中两步激励产生极紫外(XUV)相干辐射机制中存在的斯托克斯及反斯托克斯跃迁过程。计算了有关跃迁的振子强度、极紫外辐射过程及其竞争过程的受激拉曼散射增益系数和阈值。结果表明, 其中 64.3 nm 极紫外相干辐射的产生过程与其竞争过程相比, 具有最大的增益及最小的阈值; 但到能级  $K[3p^54s^2\ ^2P_{3/2, 1/2}]$  的反斯托克斯跃迁及到能级  $K[3p^53d(^3P)4s^2\ ^2P_{3/2, 1/2}]$  的斯托克斯跃迁将对其中 59.8 nm 极紫外相干辐射的产生构成严重竞争。

**关键词** He/K 混合蒸汽, 两步激励, 极紫外相干辐射。

## 1 引言

短波长激光是当前激光研究中的一个重要课题。目前产生短波长激光的主要技术途径, 均需要高功率激光作泵浦源。文献[1]提出在碱金属蒸汽中, 首先将能量储存在原子的四重亚稳态, 两步激励低激发产生极紫外相干辐射方案吸引了众多研究者。1983 年, Papanyan<sup>[2]</sup> 等人提出, 在 He/K 混合蒸汽中, 利用钾原子  $K[3p^53d4s\ ^4P_{3/2}]$  四重亚稳态作为储能能级, 第一步激励采用放电激励, 储能态的粒子数布居通过  $He^+(2\ ^3S)$  与基态钾原子的近共振能量转移碰撞来完成。第二步利用 498 nm 染料激光或 1.209 μm 激光泵浦, 经由中间能级  $K[3p^6(4s4p\ ^1P)\ ^2P_{3/2}]$  及  $K[3p^5(4s4p\ ^3P)\ ^2P_{3/2}]$ , 通过受激共振反斯托克斯拉曼散射跃迁到下能级  $K[3p^64p\ ^2P_{3/2}]$  分别产生 59.8 nm 及 64.3 nm 极紫外相干辐射方案。但在该方案中尚有诸多物理问题须进一步讨论<sup>[3]</sup>, 如近共振能量转移碰撞截面、中间能级的自电离及辐射寿命以及跃迁到其它能级的斯托克斯及反斯托克斯竞争过程等。

本文主要讨论这些竞争过程, 采用 Cowan 程序在 Sun-Ⅲ 小型机上计算了相应跃迁的振子强度, 并由给出了极紫外相干辐射过程及其竞争过程的增益系数, 计算了这些跃迁过程的泵浦阈值。

## 2 相应跃迁振子强度

利用 Cowan 程序, 在 Sun-Ⅲ 小型机上对钾原子电离态激发参数进行计算。计算的相关能级的能量值如表 1 所列, 表中同时列出了 Mansfield 采用 Hartree-Fock 方法的计算值及其由钾蒸汽中电子发射谱确定的实验值<sup>[4]</sup>。表 2 列出了有关跃迁振子强度的计算值。

Table 1. Ecitation energy values  $E$  ( $\text{cm}^{-1}$ ) of the potassium atom

Energy levels	$E_{\text{theo}}$ ( $\text{cm}^{-1}$ )	$E_{\text{exp}}$ (Ref. [4]) ( $\text{cm}^{-1}$ )	$E_{\text{theo}}$ (Ref. [4]) ( $\text{cm}^{-1}$ )
$3p^54s^2 {}^2P_{\frac{1}{2}}$	151574	151008	152037
${}^2P_{\frac{3}{2}}$	153538	153085	154112
$3p^53d4s {}^4P_{\frac{3}{2}}$	159667	159678	159641
${}^4P_{\frac{5}{2}}$	160199	160245	160193
$3p^53d({}^3P)4s {}^2P_{\frac{1}{2}}$	164400	162404	164527
${}^2P_{\frac{3}{2}}$	164987	163006	165150
$3p^53d({}^1D)4s {}^2D_{\frac{3}{2}}$	173876	173198	173990
${}^2D_{\frac{5}{2}}$	174002	173371	174182
$3p^5(4s4p {}^3P) {}^2P_{\frac{1}{2}}$	165796	168515	164147
$3p^5(4s4p {}^1P) {}^2P_{\frac{1}{2}}$	178748	180315	176758
$3p^64p {}^2P_{\frac{1}{2}}$	12985	12985 <sup>[5]</sup>	
${}^2P_{\frac{3}{2}}$	13039	13043 <sup>[5]</sup>	

Table 2. Transition oscillator strength  $f$  of potassium atom

Transition	$\lambda$ (nm)	$f_{\text{theo}}$
$3p^5(4s4p {}^3P) {}^2P_{\frac{1}{2}} \rightarrow 3p^53d4s {}^4P_{\frac{3}{2}}$	1209	0.0061
$3p^64p {}^2P_{\frac{1}{2}}$	64.3	0.1084
${}^2P_{\frac{3}{2}}$		0.2711
$3p^54s^2 {}^2P_{\frac{1}{2}}$	571.2	0.0185
${}^2P_{\frac{3}{2}}$	648.1	0.0022
$3p^53d({}^3P)4s {}^2P_{\frac{1}{2}}$	1636	0.0013
${}^2P_{\frac{3}{2}}$	1815	0.0037
$3p^5(4s4p {}^1P) {}^2P_{\frac{1}{2}} \rightarrow 3p^53d4s {}^4P_{\frac{3}{2}}$	498.3	0.0001
$3p^64p {}^2P_{\frac{1}{2}}$	59.8	0.0077
${}^2P_{\frac{3}{2}}$		0.1475
$3p^54s^2 {}^2P_{\frac{1}{2}}$	341.2	1.4780
${}^2P_{\frac{3}{2}}$	367.2	0.9144
$3p^53d({}^3P)4s {}^2P_{\frac{1}{2}}$	558.3	0.1460
${}^2P_{\frac{3}{2}}$	577.7	0.6495
$3p^53d({}^1D)4s {}^2D_{\frac{3}{2}}$	1405	0.0009
${}^2D_{\frac{5}{2}}$	1440	0.0016

## 3 增益与阈值

根据跃迁振子强度及能级值, 可计算产生极紫外辐射过程及其竞争过程的增益, 进而讨论各过程的竞争关系。近共振条件下, 受激电子拉曼散射增益系数为<sup>[6]</sup>:

$$G_R = g_R N I,$$

$$g_R = \frac{2\pi r_e^2 c^2}{\hbar} \frac{f_1 f_2 \omega_R}{\Gamma_R \Omega_1 \Omega_2 (\Delta\omega)^2} \quad (1)$$

式中  $N$  为粒子数反转密度,  $I$  为泵浦光强,  $\Omega_1$ 、 $\Omega_2$  及  $f_1$ 、 $f_2$  分别为对应跃迁的跃迁频率及振子强度,  $\omega_R$  为拉曼跃迁频率,  $\Gamma_R$  可取为拉曼线宽, 经典电子半径  $r_e \approx 2.82 \times 10^{-15}$  m.

设泵浦辐射为衍射极限的高斯光束, 传播于 Z 轴方向, 在  $Z = 0$  处进入蒸汽, 在  $Z = f$  处收敛至焦点, 在  $Z = L$  处离开蒸汽, 则按通常放大噪声到可探测水平需增益  $\sim \exp(30)$ , 泵浦功率阈值为:

$$P_{th} = \frac{\pi c}{6\mu_0 |\chi_R| K^2 \omega_s^2} \left[ 1 + \left( 1 + \frac{K \ln [P_{sth}/P_s(0)]^{1/2}}{\tan^{-1}(L/b)} \right)^2 \right] \quad (2)$$

$$K = \omega_s/\omega_0, \quad b = \frac{2\pi\omega_0^2}{\lambda_s}$$

式中  $b$  为共焦参数,  $\omega_0$  为束腰尺寸,  $\chi_R$  为介质磁化率, 按其与增益的关系求值较为方便, 其与增益系数的关系为:

$$\chi_R = \frac{\epsilon_0 c^2}{-3\omega_s} n_s n_p g_R N \quad (3)$$

对典型的气体和蒸汽, 折射率可取  $n_s \doteq n_p \doteq 1$ .

取  $\Gamma_R = 3 \times 10^{10}$  s<sup>-1</sup> (1 cm<sup>-1</sup>),  $\Delta\omega = 1.2\pi \times 10^{11}$  s<sup>-1</sup>. 由表 2 中振子强度及波长计算增益系数  $g_R$ , 假定粒子数密度  $N = 8 \times 10^{17}$  m<sup>-3</sup> [2], 分别取  $b = L$  及  $b = L/10$  两种情况计算散射阈值, 所得增益系数  $g_R$  及泵浦功率阈值如表 3 所列, 在表 3 中经中间能级  $3p^5(4s4p\ ^3P)\ ^2P_{3/2}$  和

Table 3. Gain coefficients  $g_R$  and thresholds  $P_{th}$  of the relative SRS processes

scattering processing	lower energy level	wavelength (nm)	$g_R$ ( $W^{-1} \cdot m^4$ )	$P_{th}$ (W)	
				$b = L$	$b = L/10$
A	$3p^64p\ ^2P_{3/2}$	64.3	$1.06 \times 10^{-29}$	$3.83 \times 10^4$	$3.5 \times 10^4$
	$3p^54s^2\ ^2P_{3/2}$	571.2	$7.22 \times 10^{-31}$	$1.59 \times 10^6$	$1.3 \times 10^6$
	$3p^54s^2\ ^2P_{1/2}$	648.1	$8.58 \times 10^{-22}$	$1.41 \times 10^7$	$1.2 \times 10^7$
	$3p^53d(^3P)4s\ ^2P_{1/2}$	1636	$5.07 \times 10^{-32}$	$4.95 \times 10^7$	$4.55 \times 10^7$
	$3p^53d(^3P)4s\ ^2P_{3/2}$	1815	$1.44 \times 10^{-31}$	$1.89 \times 10^7$	$1.75 \times 10^7$
B	$3p^64p\ ^2P_{1/2}$	59.8	$3.90 \times 10^{-32}$	$5.69 \times 10^6$	$4.0 \times 10^6$
	$3p^54s^2\ ^2P_{3/2}$	341.2	$3.91 \times 10^{-31}$	$1.53 \times 10^6$	$1.3 \times 10^6$
	$3p^54s^2\ ^2P_{1/2}$	367.2	$2.42 \times 10^{-31}$	$2.6 \times 10^6$	$2.27 \times 10^6$
	$3p^53d(^3P)4s\ ^2P_{1/2}$	558.3	$3.87 \times 10^{-32}$	$2.26 \times 10^7$	$2.05 \times 10^7$
	$3p^53d(^3P)4s\ ^2P_{3/2}$	577.7	$1.72 \times 10^{-31}$	$5.25 \times 10^6$	$4.8 \times 10^6$
	$3p^53d(^1D)4s\ ^2D_{3/2}$	1405	$2.39 \times 10^{-34}$	$7.9 \times 10^9$	$7.55 \times 10^9$
	$3p^53d(^1D)4s\ ^2D_{5/2}$	1440	$4.24 \times 10^{-34}$	$4.56 \times 10^9$	$4.36 \times 10^9$

$3p^5(4s4p\ ^1P)\ ^2P_{3/2}$  的受激拉曼散射过程分别被定义为过程 A 和过程 B. 可以看出, 对过程 A, 受激光产生 64.3 nm 极紫外辐射的拉曼散射增益最大, 增益系数比其它竞争过程至少大一个量级, 且受激散射阈值最小. 因此, 方案中经由中间能级  $3p^5(4s4p\ ^3P)\ ^2P_{3/2}$  的受激拉曼散射将主要产生 64.3 nm 的极紫外相干辐射, 这正是人们所期望的结果. 但对过程 B, 产生 59.8 nm 极紫外辐射的受激拉曼散射增益系数并不最大 ( $3.9 \times 10^{-32}$  W<sup>-1</sup> · m<sup>4</sup>) 如果反转粒子数密度为  $N = 8 \times 10^{17}$  m<sup>-3</sup>, 泵浦光功率密度为  $\sim 10^{15}$  W · m<sup>-2</sup>, 增益约为 30 m<sup>-1</sup>, 到下能级  $3p^54s^2\ ^2P_{3/2}, 1/2$ ,

$3p^53d(^3P)4s^2P_{1/2, 3/2}$  等 4 个能级的散射过程将会对 59.8 nm 极紫外辐射的产生构成严重竞争，且到下能级  $3p^54s^2\ ^2P_{3/2, 1/2}$  的增益系数比其它跃迁过程的增益系数高出近一个量级(分别为  $3.91 \times 10^{-31}$  及  $2.42 \times 10^{-31} \text{ W}^{-1} \cdot \text{m}^4$ )，在上面所述的反转粒子数密度及泵浦功率条件下，增益分别为  $310 \text{ m}^{-1}$  及  $194 \text{ m}^{-1}$ 。因此，在 B 过程中将主要产生 341.2 nm 及 367.2 nm 的受激散射。而根据计算所得散射阈值，产生 59.8 nm 辐射的阈值与产生 341.2 nm 及 367.2 nm 辐射的阈值处于同一个量级。因此，在该机制中，由于竞争过程的存在，用 498 nm 激光泵浦，通过受激共振反斯托克斯拉曼散射产生 59.8 nm 极紫外相干辐射将十分困难。

**结 论** 根据钾原子的能级结构，He/K 混合蒸汽中两步激励产生 59.8 nm 及 64.3 nm 极紫外相干辐射机制中，有许多到其它能级的斯托克斯及反斯托克斯散射将会对极紫外辐射的产生构成竞争。对这些受激拉曼散射过程的增益及阈值的计算表明，产生 64.3 nm 极紫外辐射过程与其相应竞争过程相比，增益系数最大，且阈值最低。因此其它散射过程将不会对其构成有威胁的竞争。但到下能级  $3p^54s^2\ ^2P_{3/2, 1/2}$  的受激拉曼散射，其增益系数比产生 59.8 nm 极紫外辐射的增益系数高出近一个量级，且散射阈值处于相同量级，这不仅对 59.8 nm 极紫外相干辐射的产生构成了严重竞争，而且有可能使 59.8 nm 极紫外相干辐射产生的可能性很小。

### 参 考 文 献

- [1] S. E. Harris, Proposal for a 207-Å laser in lithium. *Opt. Lett.*, 1980, 5(1): 1~3
- [2] V. O. Papanyan, A. E. Martirosyan, Frank K. Tittle, Collisionally excited XUV laser. *IEEE J. Quant. Electron.*, 1983, QE-19(12): 1835~1840
- [3] Zhao Li, Zhu Ruiyi, Liu Xuelong et al., Further study of two-step excitation of He/K mixture vapour for producing Coherent XUV radiation. *Proc. SPIE*, 1992, 1726: 523~528
- [4] M. W. D. Mansfield, T. W. Ottley, The identification of low energy K and Ca<sup>+</sup> autoionizing levels observed in electron impact experiments. *Proc. Roy. Soc. London. (A)*, 1979, 365: 413~424
- [5] C. E. Moore, *Atomic Energy Levels*, 1958, Vol. 1 Nat. Bureau of Standards, Circular 467, Gov. Print Office, Washington, D. C.
- [6] D. C. Hanna, M. A. Yuratich, D. Cotter, *Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules*, Chap. 5, 6, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, New York 1979

### Stokes and Anti-Stokes Competition Processes of Producing XUV Coherent Radiation by Two-Step Excitation in He/K Mixture Vapour

Zhao Li      Wang Qi      Ma Zuguang

(Institute of Opto-Electronics, Harbin Institute of Technology, Harbin 150006)

(Received 1993; revised 1993)

**Abstract** Stokes and anti-Stokes competing processes of producing XUV coherent radiation by two-step excitation in He/K mixture vapour was discussed. The relative transition oscillator strengths, SRS gain coefficients and thresholds were calculated. The processes of producing 64.3 nm coherent radiation has the larger gain coefficient and less threshold compared with those competing processes. But the anti-Stokes processes to level  $K[3p^54s^2\ ^2P_{3/2, 1/2}]$  and the stokes processes to levels  $K[3p^53d(^3P)4s^2P_{1/2, 3/2}]$  will compete seriously with the producing process of 59.8 nm XUV coherent radiation.

**Key words** He/K mixture vapour, two-step excitation, XUV coherent radiation.