

用强度相关折射率效应实现位相匹配

李彬学 黄永楷 立 群 刘亚波

(中国科学院上海光机所)

提要: 提出了一种用强度相关折射率效应进行谐波和混频过程的位相匹配方法。首次在 Ba 蒸气中实现了三次谐波的位相匹配。

Phase matching by intensity-dependent refraction index

Li Binxue, Huang Yongkai, Li Qun, Liu Yashu

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

Abstract: Phase matching for harmonics and frequency mixing by intensity-dependent refraction index effects is presented, in this way phase-matched third harmonic generation in Ba vapor has been realized for the first time.

在气体或金属蒸气中采用非线性频率上转换产生紫外或真空紫外相干辐射, 要求合适的位相匹配。最常用的方法是添加适量的缓冲气体作波矢补偿^[1], 但这种做法有一定的局限性^[2]; 尤其是高次谐波和混频产生极紫外相干辐射, 由于波长短, 目前尚缺少合适的匹配方式^[3]。本文提出利用非线性折射率效应进行位相匹配的原理, 并在金属 Ba 蒸气的三次谐波实验中实现了这种匹配。

一、匹配原理

以三次谐波过程为例。入射场在介质中产生的基波(频率为 ω) 和谐波(3ω) 的非线性极化矢量在气体情况下可表示成^[4]:

$$\begin{aligned}
 P_{\omega}^{NL} &= (3/4)\chi^{(3)}(-\omega; \omega, -\omega, \omega) |E_{\omega}|^2 E_{\omega} \\
 &\quad + (3/8)\chi^{(3)}(-\omega; \omega, \omega, \omega - \omega, -\omega) \\
 &\quad \times |E_{\omega}|^4 E_{\omega} + \dots \\
 P_{3\omega}^{NL} &= (1/4)\chi^{(3)}(-3\omega; \omega, \omega, \omega) E_1 E_1 E_1 \\
 &\quad + (3/4)\chi^{(3)}(-3\omega; \omega, -\omega, 3\omega) \\
 &\quad \times |E_{\omega}|^2 E_{3\omega} + \dots
 \end{aligned} \tag{1}$$

式中 E_{ω} 、 $E_{3\omega}$ 为基波和谐波场的复振幅; P_{ω}^{NL} 、 $P_{3\omega}^{NL}$ 为相应的非线性极化矢量。

在非共振情况下, 谐波过程总是伴随非线性折射率效应。在入射场较强的情形下这种效应将影响谐波过程的位相匹配条件, 即可能使其偏离最佳波矢失配 $(\Delta k)_{opt}$ 。

谐波和基波波矢差:

$$\Delta k = (6\pi/\lambda) \Delta n \tag{2}$$

式中 Δn 为折射率差; λ 是入射波长。

收稿日期: 1986年8月6日。

由(1)和(2)可得非线性折射率效应引起的波矢失配:

$$\Delta k^{NL} = [3/4(n_{3\omega} + n_{\omega})][\text{Re}\chi^{(3)}(-3\omega) - \text{Re}\chi^{(3)}(-\omega)]|E_{\omega}|^2 \quad (3)$$

式中 $n_{3\omega}$ 、 n_{ω} 为谐波和基波的线性折射率, $\text{Re}\chi^{(3)}(-\omega)$ 是主要贡献项极化率的实部。这里只考虑三阶效应。

由(3)可见, Δk^{NL} 的正负符号取决于相关极化率的符号, 这又与入射波和原子相关能级的失谐情况有关, 可通过选择介质或入射波长来获得正号或负号; Δk^{NL} 的大小对给定入射波长和介质, 可通过改变入射场强来改变。因此, 总失配量 $\Delta k = \Delta k^L + \Delta k^{NL}$ 可通过选择入射波长或介质, 由改变入射场的强度, 利用强度相关折射率效应实现最佳波矢失配。

对高次谐波和混频过程亦可作类似的考虑。

二、Ba 蒸气中三次谐波过程中的位相匹配

考虑 Ba 原子中 $1.054 \mu\text{m}$ 锁模激光三次谐波的位相匹配, 相关能级如图 1 所示。

先计算线性波矢失配。

根据计算金属蒸气线性折射率的 Sellmeier 公式^[4]:

$$n(\lambda) - 1 = (N r_e / 2\pi) \sum_j [P(\dot{i}) f_{ij}] / [(1/\lambda_{ij}^2) - (1/\lambda^2)] \quad (4)$$

和振子强度实验值的计算^[5]得:

$$\Delta k^L = 4.864 \times 10^{-16} N (\text{cm}^{-1}) \quad (5)$$

(4)式中 N 为粒子数密度; $P(\dot{i})$ 为能级布居权重; f_{ij} 为 $\dot{i} \rightarrow j$ 能级跃迁的振子强度; r_e 为经典电子半径; λ_{ij} 为 $\dot{i} \rightarrow j$ 能级的跃迁波长。

(5)式中 N 的单位为 cm^{-3} 。

现在计算非线性折射率效应引起的波矢失配。

根据入射波长和原子能级的失谐情况,

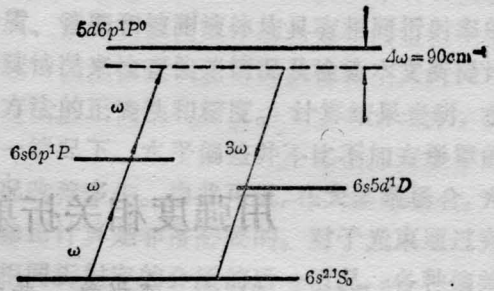


图 1 Ba 原子中三次谐波相关的能级图

对 n 个重要的极化率进行计算^[6]。计算表明, 仅需考虑 $\text{Re}\chi^{(3)}(-3\omega; \omega, -\omega, 3\omega)$ 的贡献:

$$\begin{aligned} \text{Re}\chi^{(3)}(-3\omega; \omega, -\omega, 3\omega) \\ = -2.8338 \times 10^{-44} (\text{MKS 单位}) \end{aligned}$$

由(3)式得

$$\Delta k^{NL} = -1.435 \times 10^{-34} N P_{\omega} / S (\text{m}^{-1}) \quad (6)$$

式中 S 为入射光束截面积; P_{ω} 为入射光功率, 这样, 总波矢失配为:

$$\Delta k = \Delta k^L + \Delta k^{NL} \quad (7)$$

由给定条件下的最佳匹配条件 $(\Delta k)_{opt}$, 可由(7)式确定匹配时的光功率。

本实验条件下, 根据[7]:

$$b \Delta k = -4 \quad (8)$$

b 为共焦参数, $b = 380 \text{ cm}$

$$(\Delta k)_{opt} \approx -0.01 \text{ cm}^{-1} \quad (9)$$

最后算得匹配的光功率为

$$P_{\omega}^{opt} = 8.66 \times 10^8 \text{ W} \quad (10)$$

计算时取 $N = 10^{21} / \text{m}^3$; $S = 2.5 \times 10^{-6} \text{ m}^2$ (本实验条件参见下节)。

三、实验和实验结果

实验装置如图 2 所示。

基波光源为磷酸盐钽玻璃染料被动锁模激光系统, 最大输出为 10^9 W , 脉宽 20 ps , 光束发散度 1.5 mrad 。采用焦长为 1000 mm 的透镜将其聚焦到热管炉中, 在 1200 K 左右热管中 Ba 的原子密度约为 10^{21} m^{-3} ; 产生的三次谐波 (351.3 nm) 经 $1.054 \mu\text{m}$ 全反膜滤



图2 实验装置图

1—磷酸盐钼玻璃锁模激光系统; 2—分束片; 3, 6—滤光片; 4—聚焦凸透镜(1000 mm); 5—热管炉; 7—柱透镜; 8—光谱仪; 9—功率计

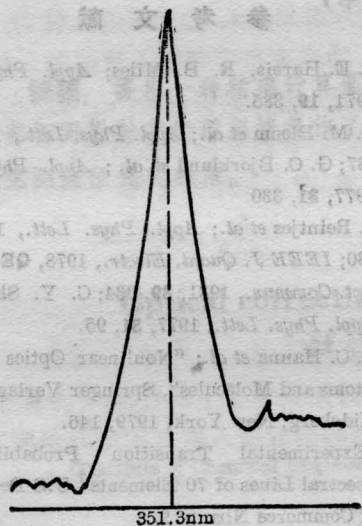


图3 Ba中三次谐波光谱

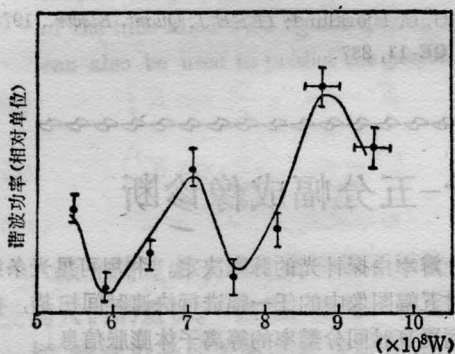


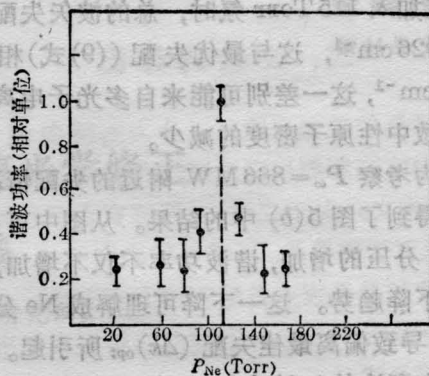
图4 谐波功率随基波功率变化测量结果

图中实线为计及多光子电离效应和强度相关折射率效应计算的结果

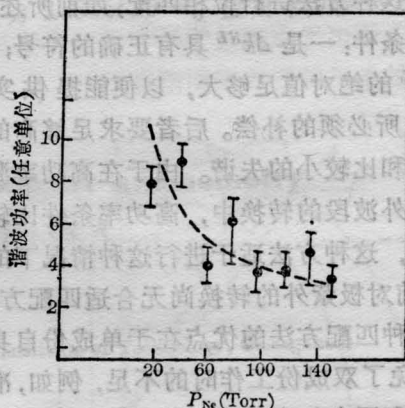
去基波进入光谱仪,由摄谱法测量。

三次谐波的黑度扫描谱如图3所示。

改变放大器的工作电压以改变入射光功率,测量了三次谐波功率随入射功率的变化规律,如图4所示。最大谐波功率约 10^5 W。



(a) 1000 MW 时的测量结果



(b) 870 MW 时的测量结果

图5 位相匹配示意图

随 Ne 分压升高,谐波输出呈下降趋势,如虚线所示

图4中呈现的振荡上升在于强度相关折射率的影响,此现象从三次谐波小信号理论的结果 $P_{3\omega} \sim P_{\omega}^3 \sin^2(\Delta kL/2)/(\Delta kL/2)^2$ 可以得到解释。按照实验条件下 $L=18$ cm(蒸气长度)及由(10)式给出的光功率,算得谐波振荡周期数为1.64,与测量结果相符。

在最大入射功率 10^9 W 和匹配功率两种情况下,在热管中充以惰性气体 Ne 以改变谐波过程的波矢匹配,结果见图5(a)、(b)。

当 Ne 分压在 $P_{Ne}=115$ Torr 附近时,谐波输出获得了可观的增强效应。表示此时已经出现位相匹配,相应的波矢失配量为 $\Delta k_{Ne} = 0.1 \text{ cm}^{-1}$ 。由于最佳失配量 $(\Delta k)_{opt} < 0$,因而 Ba 蒸气在所给条件下对三次谐波过程具有负色散特性。根据 $\Delta k_{Ne} = 0.1 \text{ cm}^{-1}$ 以及(5)、(6)、(7)式计算的 $(\Delta k)_{Ba} = \Delta k^L + \Delta k^{NL}$

知,在加入 115 Torr 氖时,总的波矢失配为 -0.026 cm^{-1} ,这与最优失配((9)式)相差 0.01 cm^{-1} ,这一差别可能来自多光子电离效应导致中性原子密度的减少。

为考察 $P_{\omega} = 866 \text{ MW}$ 附近的失配情况,测量得到了图 5(b) 中的结果。从图中可见,随 Ne 分压的增加,谐波功率不仅不增加,反而呈下降趋势。这一下降可理解成 Ne 分压增加,导致偏离最佳失配 $(\Delta k)_{\text{opt}}$ 所引起。这说明在所论的入射功率下,实现了位相匹配。

用这种方法进行位相匹配,如前所述,需要两个条件:一是 Δk^{NL} 具有正确的符号;二是 Δk^{NL} 的绝对值足够大,以能提供实现 $(\Delta k)_{\text{opt}}$ 所必须的补偿。后者要求足够高的入射功率和比较小的失谐。由于在高功率激光向极紫外波段的转换中,高功率条件比较容易满足,这种方法适于进行这种情况下的匹配。目前对极紫外的转换尚无合适匹配方法。

这种匹配方法的优点在于单成份自身匹配,避免了双成份工作时的不足,例如,准分子形成和压力加宽等会引起效率下降^[2]。

顺便提出,当利用强度相关折射率效应进行位相匹配时,位相匹配曲线即为谐波、基波功率变化关系曲线(参见图 4 所示)。

根据本实验的基波、谐波波长、强度以及原子能级特点,影响转换效率和过程是基波光束引起 Ba 原子发生非共振五光子电离所致,电离引起基波强度下降使得谐波随基波功率上升变慢。但电离过程导致中性原子数下降,产生的光电子以及光电子引起的能级加宽效应对谐波过程不产生不利的影

参 考 文 献

- [1] S. E. Hareis, R. B. Miles; *Appl. Phys. Lett.*, 1971, **19**, 385.
- [2] D. M. Bloom *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1975, **26**, 687; G. C. Bjorklund *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1977, **31**, 330.
- [3] J. Reintjes *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1977, **30**, 480; *IEEE J. Quant. Electr.*, 1978, **QE-14**, 581; *Opt. Commun.*, 1981, **39**, 334; C. Y. She *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1977, **31**, 95.
- [4] D. C. Hanna *et al.*; "Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules", Springer Verlag, Berlin Heidelberg, New York, 1979, 146.
- [5] "Experimental Transition Probability for Spectral Lines of 70 Elements". U.S. Department of Commerce Nbs. p. 9.
- [6] P. N. Butcher; "Nonlinear Optics Phenomena", Ohio State Univ. Columbus Ohio, 1965, p. 75.
- [7] G. C. Bjorklund; *IEEE J. Quant. Electr.*, 1975, **QE-11**, 287.

激光产生等离子体的光探针-五分幅成像诊断

在上海光机所的六路钹玻璃激光等离子体物理实验装置上,用其中的一路激光(波长 $1.064 \mu\text{m}$, 脉宽 250 ps (FWHM))经 KDP 晶体倍频后在二甲亚砜(DMSO)液体中产生的受激后向喇曼散射(波长为 $0.6298 \mu\text{m}$, 脉宽大于 50 ps (FWHM), 能量大于 $200 \mu\text{J}$)作为探针光脉冲,总体转换效率约千分之一。该探针光经过一个五路分光延迟器产生五束平行的、相互延时为 1.0 ns 左右的可调节探针光束,再经一个五棱镜使该五束光以彼此间很小的夹角入射到等离子体靶上,然后由成象透镜($f/2$)和五棱镜组合系统得到五幅不同时刻的等离子体图像。根据实验要求,可以分别得到等离子体的干涉图或阴影图。整体放大率约 10 倍左右,空间分辨率约 $10 \mu\text{m}$,而

时间分辨率由探针光的脉宽决定。利用可见光条纹相机对五幅图像中的任一幅进行快速时间扫描,能够得到更高时间分辨率的等离子体膨胀信息。

我们采用上述系统已成功地进行了点聚焦和线聚焦激光与平面金属靶间相互作用的诊断实验,得到了激光产生等离子体的动力学过程、等离子体中不均匀性结构的产生和发展等方面的大量数据。这一系统不仅能用于激光产生等离子体的诊断研究上,也能用于其它对称的快速运动微小物体的测量上,并可进一步提高分幅数。

(中国科学院上海光机所 江志明 张伟清

钱爱娣 陈时胜 徐至展

1987年5月11日收稿)