

# 高功率激光在铯金属蒸气中产生三阶谐波\*

郭大浩 王声波 吴鸿兴\*\*

(中国科技大学物理系, 合肥 230026)

曾和平 林福成

(中国科学院上海光机所, 上海 201800)

邢锦云

(中国科技大学结构分析中心, 合肥 230026)

**摘要** 讨论了在铯(Cs)原子蒸气中的光学三阶谐波的产生。理论分析表明, 铯的非线性极化率系数  $\chi^{(3)}(3\omega)$  在  $\lambda = 1.0790 \mu\text{m}$  处存在双光子共振增强效应, 给出了为达到位相匹配所需的温度。实验获得了  $1.0790 \mu\text{m}$  光波作用于 Cs 所产生的三阶谐波谱线(359.7 nm)的照片。

**关键词** 三阶谐波, 金属蒸气, 双光子共振增强效应

## 1 引 言

一个原子在强激光场作用下, 可以通过非线性过程吸收多个光子 ( $nh\nu$ ), 然后可能发生两种过程: 其一是导致原子的电离甚至多次电离, 此时伴有一个或多个电子发射, 即多光子电离过程; 其二是发射一个高能光子 ( $h\nu' = nh\nu$ ), 此时为谐波发射过程。当原子密度增大至  $10^{17} \sim 10^{18}$  原子  $\text{cm}^{-3}$  时, 可以增加谐波发射的强度<sup>[1]</sup>。在金属蒸气中, 利用共振增强效应, 可使非线性极化率提高几个量级<sup>[2,3]</sup>。同时, 碱金属原子对紫外至真空紫外光波基本上是透明的, 即对三阶谐波的再吸收很小。实验和理论均已证明, 在金属蒸气中充入适量缓冲气体, 或利用不同金属混合蒸气, 可以比较方便地控制非线性频率转换所必须的位相匹配条件<sup>[4]</sup>。另一方面, 金属蒸气的损伤阈值高, 与常用的固体倍频材料如 KTP、BBO 等晶体材料比较, 更适于作强激光的频率上转换介质。近来, 利用超短超强激光更是在等离子体中产生了高达三阶的极高次谐波<sup>[5]</sup>, 表明利用非线性光学过程是获得相干 X 光源的重要途径, 已引起高度重视。

我们通过理论分析和计算, 选用了 Cs 原子蒸气, 它在  $1.0790 \mu\text{m}$  光波处存在双光子共振增强效应, 利用本实验室的万兆瓦可调谐钎玻璃激光装置(华光装置)<sup>[6]</sup>调谐到所需波长  $1.0790 \mu\text{m}$  处, 作用于 Cs 蒸气首次获得了其三阶谐波(359.7 nm)的光谱照片。

\* 本课题由国家自然科学基金及中国科技大学青年科研基金资助。

\*\* 戴宇生、夏小平、陈明松同志参加了本工作。

收稿日期: 1994 年 2 月 17 日; 收到修改稿日期: 1994 年 6 月 21 日

## 2 理论分析

### 2.1 Cs 原子的三阶非线性极化率系数

Cs 原子的有关能级结构如图 1 所示。假设入射基波(频率  $\omega$ )的光场为平面波,其电场强度  $E(t)$  可表示为

$$E(t) = \frac{1}{2}(E_0 e^{-i\omega t} + E_0^* e^{i\omega t}) \quad (1)$$

在介质中相应的三阶非线性极化率  $P^{(3)}(t)$  为

$$P^{(3)}(t) = \frac{1}{2}P_0^{(3)}(e^{-i3\omega t} + e^{i3\omega t}) \quad (2)$$

这里

$$P_0^{(3)} = N\chi^{(3)}(3\omega)E_0^3/4 \quad (3)$$

式中  $N$  为介质(这里是 Cs)原子数密度,  $\chi^{(3)}(3\omega)$  为三阶非线性极化率系数。根据文献[3]中的非线性光学理论,  $\chi^{(3)}(3\omega)$  可表示成

$$\chi^{(3)}(3\omega) = \frac{1}{\hbar^3} \sum_g \sum_{abc} \mu_{ga} \mu_{ab} \mu_{bc} \mu_{cg} \rho_{gg} A_{abc} \quad (4)$$

这里,  $\mu_{ij}$  是偶极矩阵元,  $\rho_{gg}$  是基态能级占有率, 而  $A_{abc}$  是频率因子, 且

$$A_{abc} = \frac{1}{(\omega_{ag} - 3\omega)(\omega_{bg} - 2\omega)(\omega_{cg} - \omega)} + \frac{1}{(\omega_{ag} + \omega)(\omega_{bg} + 2\omega)(\omega_{cg} + 3\omega)} \\ + \frac{1}{(\omega_{ag} + \omega)(\omega_{bg} + 2\omega)(\omega_{cg} - \omega)} + \frac{1}{(\omega_{ag} + \omega)(\omega_{bg} - 2\omega)(\omega_{cg} - \omega)} \quad (5)$$

式中  $\omega_{ij}$  是原子跃迁几率, 设入射光场在  $z$  方向线性极化, 且取  $\mu_{ij} = e\langle i|z|j\rangle$ 。

我们把式(5)分为共振  $A_{abc}^R$  及非共振  $A_{abc}^{NR}$  两部分(在双光子近共振时)

$$A_{abc} = A_{abc}^R + A_{abc}^{NR} \quad (6)$$

令  $g = 6s$ ,  $b = 7s$ , 则有

$$A_{abc}^R = \frac{1}{(\omega_{7s,6s} - 2\omega)} \left[ \frac{1}{(\omega_{a,6s} - 3\omega)(\omega_{c,6s} - \omega)} + \frac{1}{(\omega_{a,6s} + \omega)(\omega_{c,6s} - \omega)} \right] \quad (7)$$

$$A_{abc}^{NR} = \frac{1}{(\omega_{7s,6s} + 2\omega)} \left[ \frac{1}{(\omega_{a,6s} + \omega)(\omega_{c,6s} + 3\omega)} + \frac{1}{(\omega_{a,6s} + \omega)(\omega_{c,6s} - \omega)} \right] \quad (8)$$

考虑在双光子共振时,  $\omega_{7s,6s} - 2\omega \approx 0$ , 我们有

$$\frac{A_{abc}^R}{A_{abc}^{NR}} > \frac{(\omega_{7s,6s} + 2\omega)}{(\omega_{7s,6s} - 2\omega)} = \frac{\lambda + 2\lambda_{7s,6s}}{\lambda - 2\lambda_{7s,6s}} \quad (9)$$

也即

$$A_{abc}^R \gg A_{abc}^{NR} \quad (10)$$

例如, 对于 Cs 原子,  $\lambda_{7s,6s} = 0.5395 \mu\text{m}$ , 当基波波长  $\lambda = 1.0790 \mu\text{m}$  时有双光子共振吸收。显然(10)式成立。即使在入射光偏离共振的一定范围, 如在  $\lambda - 2\lambda_{7s,6s} = 10 \text{ nm}$  时, 此时  $\lambda + 2\lambda_{7s,6s} = 2148 \text{ nm}$ , 即  $A_{abc}^R/A_{abc}^{NR} > 200$ , (10) 式也仍成立。因此, 在我们的实验中, 可以忽略频率因子中非共振项的影响, 即可令

$$A_{abc} \approx A_{abc}^R \quad (11)$$

上述处理方法其本质为非线性光学中常采用的旋转波近似, 这样一来, 式(4)可改写为

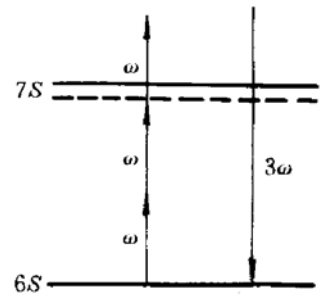


Fig. 1 Level scheme of Cs

$$\chi^{(3)}(3\omega) = \frac{1}{\hbar^3} \frac{1}{(\omega_{7s,6s} - 2\omega)} \sum_g \sum_{a,b,c} \mu_{ga} \mu_{ab} \mu_{bc} \mu_{cg} \rho_{gg} \times \left[ \frac{1}{(\omega_{ag} - 3\omega)(\omega_{cg} - \omega)} + \frac{1}{(\omega_{ag} + \omega)(\omega_{cg} - \omega)} \right] \quad (12)$$

若把式中除了  $1/(\omega_{7s,6s} - 2\omega)$  以外的乘积因子用系数  $A(\omega)$  来表征, 则有

$$\chi^{(3)}(3\omega) = \frac{1}{(\omega_{7s,6s} - 2\omega)} A(\omega) \quad (13)$$

由于实验中激光频率是在双光子共振吸收条件附近,  $A(\omega)$  可近似视为常数。在此近似条件下, 我们利用文献[3]的表 2 中当基波为  $1.064 \mu\text{m}$  时得到的  $\chi^{(3)}(3\omega)$  值〔在此称其为  $\chi_0^{(3)}(3\omega)$ 〕来求出与其他波长  $\lambda$  对应的  $\chi^{(3)}(3\omega)$  值, 即

$$\frac{\chi^{(3)}(3\omega)}{\chi_0^{(3)}(3\omega)} = \frac{1 - 2\lambda_{7s,6s}/1.064}{1 - 2\lambda_{7s,6s}/\lambda} \quad (14)$$

式中

$$\chi_0^{(3)}(3\omega) = -1.17 \times 10^{-32} \text{ (esu)} \quad (15)$$

从而可以得到

$$\chi^{(3)}(3\omega) = \frac{1.649 \times 10^{-34}}{1 - 1.079/\lambda} \text{ (esu)} \quad (16)$$

$\lambda$  是以  $\mu\text{m}$  为单位的基波波长。由式(16)可给出图 2 的关系曲线。

### 2.2 位相匹配

在平面波近似下, 忽略基波的损耗, 三阶谐波的功率  $p^{(3)}$  可表示为<sup>[7]</sup>

$$p^{(3)} \propto |\chi^{(3)}(3\omega)|^2 l^2 \frac{p^3}{A} \left[ \frac{\sin(l\Delta k/2)}{l\Delta k/2} \right]^2 \quad (17)$$

其中  $p$  为基波功率,  $A$  为光束有效截面,  $l$  为作用区长度,  $\Delta k$  是基波与谐波位相差, 它与两波的折射率之关系为

$$\Delta k = 3k(\omega) - k(3\omega) = 3[n(\omega) - n(3\omega)](\omega/c) \quad (18)$$

很明显, 为了得到较高的谐波功率, 要求实现位相匹配, 即要求  $\Delta k = 0$ , 也即希望  $n(\omega) = n(3\omega)$ 。

但是, 由于色散, 在纯的 Cs 蒸气中, 不可能有  $n(\omega) = n(3\omega)$ 。为了达到位相匹配, 我们采用在 Cs 蒸气室中充入适量的缓冲气体氙(Xe)的办法, 利用氙的正常色散来补偿铯的反常色散。氙的折射率由经验公式给出:

$$n_{\text{Xe}}(\lambda) - 1 \cong \left[ \frac{393235}{46.3012 - 10^{-8}/\lambda^2} + \frac{393235}{59.5779 - 10^{-8}/\lambda^2} + \frac{7366100}{139.8310 - 10^{-8}/\lambda^2} \right] \times 10^{-8} \quad (19)$$

式中  $\lambda$  以  $\text{cm}$  为单位, 而铯原子蒸气的色散关系可从标准的 Sellmeier 公式得出

$$n_{\text{Cs}}(\lambda) - 1 = \frac{Nr_s}{2\pi} \sum_i \frac{f_i}{[(1/\lambda_i)^2 - (1/\lambda)^2]} \quad (20)$$

这里,  $r_s = 2.818 \times 10^{-13} \text{ cm}$ ,  $\lambda_i$  为第  $i$  个跃迁的波长,  $f_i$  为第  $i$  个跃迁的振子强度。对于基波的  $\lambda = 1.064 \mu\text{m}$  而言, 位相匹配要求 Xe 与 Cs 的分压比为

$$P_{\text{Xe}}/P_{\text{Cs}} = 658 \quad (21)$$

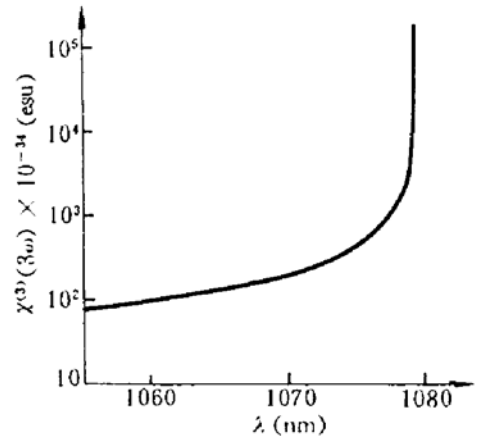


Fig. 2 Calculated nonlinear susceptibility  $\chi^{(3)}(3\omega)$  of Cs versus wavelength  $\lambda$ , while  $\chi^{(3)}(3\omega)$  at  $1.064 \mu\text{m}$  in Table 2 of ref. [3] is used

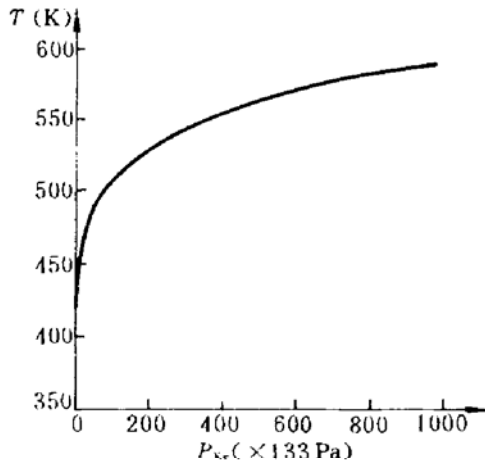


Fig. 3 The relationship of temperature  $T$  and Xe gas pressure  $P_{Xe}$  when phase matching is achieved, where  $T$  is the temperature of the Cs vapor cell into which Xe gas is incorporated

金属蒸气在压力约为 133 Pa 时,其压力与温度有如下近似关系

$$P_{Cs}(\text{Pa}) = \frac{1}{133} \exp\left[-\frac{a}{T} + d\right] \quad (22)$$

式中常数  $a = 8827.38$ ,  $d = 16.0007$ , 这样, 充入一定量 Xe 气后, 通过调节温度, 便可以控制位相匹配条件。图 3 给出了在位相匹配时温度  $T$  与  $P_{Xe}$  的关系。

可是在实验中系统的温度不容易保持绝对恒定。这就将带来一定的位相失配, 如果  $\Delta k$  允许变化范围为  $\delta(\Delta k) = \pi/l$ ,  $l$  为作用区有效长度, 则温度变化范围为

$$\delta T = \frac{1.35 \times 10^{16}}{Nl} T \left(\frac{a}{T} - 1\right)^{-1} \quad (23)$$

这里, Cs 原子密度  $N$  与其蒸气压力  $P_{Cs}$  的关系为

$$N = 9.66084 \times 10^{18} \frac{P_{Cs}(\text{Pa})}{133T} \text{ cm}^{-3} \quad (24)$$

若令  $N = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ,  $l = 20 \text{ cm}$ ,  $T = 500 \text{ K}$ , 则  $\delta T \approx 2 \text{ K}$ 。

### 3 实验装置及实验结果

图 4 为实验装置的示意图。其中, 激光束来自本实验室的万兆瓦可调谐钕玻璃激光装置(华光装置), 其输出激光峰值功率可达  $10^{10} \text{ W}$  量级, 脉冲宽度为 4 ns, 光束口径为  $\phi 45 \text{ mm}$ 。实验时, 激光波长调谐到  $\lambda = 1.0790 \mu\text{m}$ , 激光能量经取样平板反射入 PT-1C 型体吸收能量计, 主激光束通过透镜 1 聚焦于金属蒸气室中心, 焦斑处功率密度约为  $10^{11} \sim 10^{12} \text{ Wcm}^{-2}$ , 通过作用区后, 基波与谐波都通过透镜 2 恢复为接近于平行光束并经过分光镜只让谐波进入光谱仪。谐波光线由紫外 II 型感光谱板(对 300~500 nm 响应)记录下来, 谱板冲洗后由黑度扫描仪处理得到相应的黑度扫描曲线。

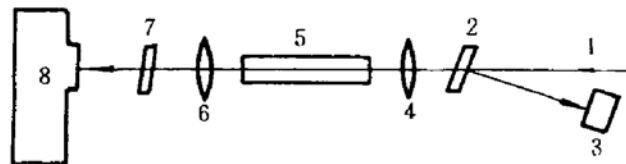


Fig. 4 The scheme of experimental setup

1, laser beam; 2, glass plate; 3, energy meter; 4, lens 1; 5, metal vapor cell; 6, lens 2; 7, spectroscopy; 8, spectrograph

图 4 中的金属蒸气室采用  $\phi 50 \times 380 \text{ mm}$  的熔石英玻璃做成, 两端面是平面平行光学玻璃板, 室内封入 1 g Cs 金属(装在小安瓿内), 蒸气室先抽真空至  $1.33 \times 10^{-3} \text{ Pa}$ , 再充入 39.9 kPa 的氙气后密封好, 然后设法打破小安瓿, 在熔石英管外加热, 当管内温度达到  $253 \text{ }^\circ\text{C}$  左右时进行实验。

图 5 是本实验中得到的由  $1.0790 \mu\text{m}$  基波作用于 Cs 原子蒸气所产生的三阶谐波谱线的

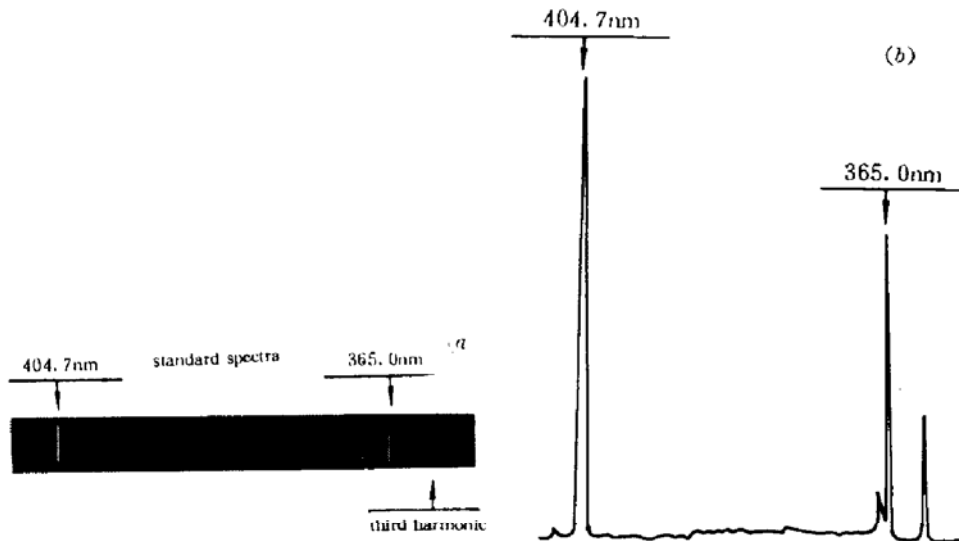


Fig. 5 Experimentally recorded spectrum showing the third harmonic generation at 365.0 nm

照片及相应的黑度扫描曲线,在图中标明波长为 365.0 nm 及 404.7 nm 的谱线是 3 W 低压汞灯发射的二条在紫外区的线状谱(曝光时间约 20 s),以此作为定标谱线,据此算出位于其右的较短较淡的谱线所对应波长应为 359.8 nm,它与基波 1.0790  $\mu\text{m}$  的三阶谐波的理论值 359.7 nm 相当吻合[实验所用光栅光谱仪为 WP-1 型,其分辨率为 0.75 nm/mm。图中照片(a)与谱板同等大小,(b)是缩小了的]。

## 4 讨 论

4.1 本实验所记录到的谱线从谱板上曝光痕迹的形状及位置来看肯定是三阶谐波谱线,但不是太强,其主要原因可能是因为反应室内 Cs 原子密度不够高。这是因为,在充氙气时由于条件所限只充入了 39.9 kPa 氙气,因而相应的位相匹配要求只加温到 253  $^{\circ}\text{C}$ ,这样室内 Cs 原子密度应为  $N = 8.4 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ ,未能达到前述的  $10^{17} \sim 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  的要求。

4.2 用熔石英玻璃做反应室,Cs 原子蒸气易附着在窗及管子内壁,这样,一方面,入射激光束与附着在窗内表面的 Cs 原子相互作用并形成烧结,致使窗的透光性大大降低;另一方面,室内 Cs 的回收率越来越小,Cs 原子密度很快降低下来,因此该反应室很快就不能再使用。看来,必须用不锈钢热管炉才能做成可重复多次使用的反应室。

4.3 三阶谐波产生的过程还受到几种竞争过程的制约。首先,前述的多光子电离过程是它的一个竞争“对手”;其次,强激光会导致原子能级加宽,这会抑制非线性极化率共振增强效应;第三,非线性 Kerr 效应会改变介质折射率从而破坏位相匹配条件,而温度控制不准确也会破坏位相匹配条件;第四,另一个较严重的影响来自铯蒸气中的  $\text{Cs}_2$  分子,当温度在 250  $^{\circ}\text{C}$  附近时估计  $\text{Cs}_2$  分子浓度可达  $10^{13} \text{ cm}^{-3}$ , $\text{Cs}_2$  分子被激发会导致分子扩散带跃迁辐射,这无疑会削弱三阶谐波产生过程。这一竞争过程已在实验中被观察到,即得到了  $\text{Cs}_2$  分子扩散带跃迁所辐射的准连续谱,而此时谱板上没有出现三阶谐波的线状谱。

## 参 考 文 献

- 1 A. L. Huillier, L. A. Lompré, G. Mainfray. Multiphoton ionization and harmonic generation at high laser intensities. Atomic Physics II, World Scientific, 1989. 325~336

- 2 S. E. Harris, R. B. Miles. Proposed third harmonic generation in phase-matched metal vapors. *Appl. Phys. Lett.*, 1971, **19**(10): 385~387
- 3 R. B. Miles, S. E. Harris. Optical third-harmonic generation in alkali metal vapors. *IEEE J. Quant. Electr.*, 1973, **QE-9**(4): 470~484
- 4 D. M. Bloom, J. F. Young, S. E. Harris. Mixed metal vapor phase matching for third-harmonic generation. *Appl. Phys. Lett.*, 1975, (7): 390
- 5 B. Luther-Davies, E. G. Gamalii, Y. Wang *et al.*. Matter in ultrastrong laser fields. *Sov. J. Quant. Electr.*, 1992, **22**: 289
- 6 吴鸿兴, 郭大浩, 王声波 等. 万兆瓦可调谐窄线宽新型钨玻璃激光装置. *中国科学(A 辑)*, 1991, (8): 883~889
- 7 沈元壤 著, 顾世杰 译. 非线性光学原理, 北京: 科学出版社, 1987. 91~114

## Third-harmonic Generation in Cesium Metal Vapor under Action of High Power Laser

Guo Dahao Wang Shengbo Wu Hongxing

(Department of Physics, University of Science and Technology of China, Hefei 230026)

Zeng Heping Lin Fucheng

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Shanghai 201800)

Xing Jinyun

(Centre of Structure Analysis, University of Science and Technology of China, Hefei 230026)

**Abstract** Optical third-harmonic generation in Cesium metal vapor is discussed in this paper. The theoretical analysis shows that there is a two-photon resonance enhancement effect for nonlinear susceptibility  $\chi^{(3)}(3\omega)$  of Cesium at wavelength 1.0790  $\mu\text{m}$ . The temperature which is necessary to achieve phase matching is given. It's the first time that the third-harmonic spectral line (359.7 nm) of the fundamental wave 1.0790  $\mu\text{m}$  in Cesium vapor is photographed experimentally.

**Key words** third-harmonic, cesium vapor, two photon resonant enhancement effect