

钠金属蒸气中三次谐波的产生

邱佩华 立 群 王文耀
(中国科学院上海光学精密机械研究所)

提 要

利用锁模红外微微秒脉冲系列,在热管炉中的钠氙相位匹配混合气体中,观察到微微秒三次谐波的产生。其波长为 3518 Å,三次谐波的功率达 2.5 MW,基波到三次谐波的转换效率为 5×10^{-4} 。

一、引 言

由于很多材料在紫外和真空紫外波段有吸收,所以在这一光谱范围内,强超短脉冲光源是研究时间分辨谱必不可少的工具。利用超短脉冲激光在碱金属蒸气中产生紫外和真空紫外波长的超短脉冲已有很多报道。1975年 S. E. Harris 和他的同事^[1]在 Rb 和 Xe 混合气体中获得了 10% 的基波到三次谐波的转换效率。在近红外和可见光谱区中,碱金属蒸气的三阶极化率 $\chi^{(3)}$ 比惰性气体的大 10^5 倍左右。且碱金属蒸气在紫外和真空紫外光谱区吸收系数很小,所以在相位匹配情况下可实现有效的高转换,而目前所有的晶体,在短于 2000 Å 已不透明。金属蒸气击穿功率高于晶体,而击穿并不破坏气体介质,且工作体积可做的很大。所以金属蒸气相对于晶体来说,在紫外尤其在真空紫外光谱区有较大的优越性。

二、相 位 匹 配

在混合气体中实现相位匹配的概念是 J. A. Armstrong 等人提出的^[2],而碱金属蒸气和惰性气体的混合系统的相位匹配是 S. E. Harris 和 R. B. Miles 提出^[3],由 J. F. Yong 等人在实验上证实^[4]。

在晶体中高次谐波的产生是利用晶体的双折射来实现相位匹配,但在液体和气体中利用介质的反常色散实现基波和谐波的相位匹配^[5,6]。如果泵浦光频率选择低于钠的共振频率($\lambda = 5890 \text{ \AA}$),而三次谐波的频率高于这一频率,则相位匹配是可能的。碱金属蒸气具有反常色散性质。它对于基频波($\lambda = 1.06 \mu\text{m}$)比对三次谐波有较大的折射率($n_1 > n_3$),而氙气与之相反($n_1 < n_3$)。通过 Na-Xe 气体按一定比例混合,可实现相位匹配条件:

$$\Delta k = 3k_1 - k_3 = \frac{3\omega}{c} (n_1 - n_3) = 0. \quad (1)$$

$\chi^{(1)}(q\omega)$ 的实部与介质的折射率 n_q 有如下关系:

$$n_q^2 - 1 = 4\pi \sum_i N_i \text{Re}[\chi^{(1)}(q\omega)], \quad (2)$$

这里 N 是单位体积内的碱金属原子数, q 等于 1 或 3。因为气体的折射率近似为 1, 于是 Na-Xe 混合气体的折射率 n_q 可写成:

$$n_q \simeq 1 + 2\pi \{N_{\text{Na}} \cdot \text{Re}[\chi_{\text{Na}}^{(1)}(q\omega)] + N_{\text{Xe}} \text{Re}[\chi_{\text{Xe}}^{(1)}(q\omega)]\}. \quad (3)$$

从等式(1)和(3)获得相位匹配比率为:

$$\frac{N_{\text{Xe}}}{N_{\text{Na}}} = \frac{\text{Re}[\chi_{\text{Na}}^{(1)}(\omega) - \chi_{\text{Na}}^{(1)}(3\omega)]}{\text{Re}[\chi_{\text{Xe}}^{(1)}(3\omega) - \chi_{\text{Xe}}^{(1)}(\omega)]}. \quad (4)$$

利用理想气体方程 $P = NkT$ 可以获得氙气的密度 N_{Xe} 。钠原子的密度 N_{Na} 从蒸气压力计算中得到:

$$N_{\text{Na}} = 9.66084 \times 10^{18} \times P/T, \quad (5)$$

式中 P 以 Torr 为计算单位, T 是绝对温度。钠蒸气的压力 P 由(6)式给出:

$$P \simeq \exp\left[-\frac{a}{T} + d\right], \quad (6)$$

式中 a 和 d 是常数, 对于钠其值分别为 12423.3 和 17.3914。对于相位失配 Δk , 可由密度比给出:

$$\Delta k = \frac{3\omega}{c} \cdot 2\pi [\chi_{\text{Xe}}^{(1)}(\omega) - \chi_{\text{Xe}}^{(1)}(3\omega)] \left[N_{\text{Xe}} - N_{\text{Na}} \left(\frac{N_{\text{Xe}}}{N_{\text{Na}}} \right)_V \right] = D \left[N_{\text{Xe}} - N_{\text{Na}} \left(\frac{N_{\text{Xe}}}{N_{\text{Na}}} \right)_V \right]. \quad (7)$$

(7)式中 $D = \frac{3\omega}{c} \cdot 2\pi [\chi_{\text{Xe}}^{(1)}(\omega) - \chi_{\text{Xe}}^{(1)}(3\omega)]$ 是一个常数。Xe 的一级极化率 $\chi_{\text{Xe}}^{(1)}$ 可以从[6]给出的实验公式计算得出:

$$\chi_{\text{Xe}}^{(1)}(q\omega) = \frac{1}{2\pi N_{\text{Xe}}} \left\{ \frac{393235}{46.3012 - 10^{-8}/\lambda^2} + \frac{393235}{59.5779 - 10^{-8}/\lambda^2} + \frac{7366100}{139.8310 - 10^{-8}/\lambda^2} \right\} \times 10^{-8}. \quad (8)$$

当波长 λ 以厘米为单位时, (8)式中大括号内的式子代表折射率, 为无量纲的数字。当 $\lambda = 1.055 \mu\text{m}$ 时, $D = -3.6282$ 。利用文献[6]给出的跃迁矩阵元的值, 代入熟知的一级极化率公式便可求出 $\chi_{\text{Na}}^{(1)}$ 。于是得到

$$\chi_{\text{Na}}^{(1)}(\omega) = 35.5156 \times 10^{-24} \text{ esu}, \quad \chi_{\text{Na}}^{(1)}(3\omega) = -12.455 \times 10^{-24} \text{ esu}$$

和

$$\left(\frac{N_{\text{Xe}}}{N_{\text{Na}}} \right)_V = 148.9.$$

三、三次谐波的转换效率

当忽略二级 Kerr 效应和在光束传播方向上蒸气密度的梯度, 同时只考虑基波 E_1 到三次谐波 E_3 的转换很小时 ($E_3 \ll E_1$), 基波、受激谐波和物质相互作用的耦合波方程的解给出三次谐波的强度 Φ_3 为:

$$\Phi_3 = \left(\frac{4\pi^2 k_3}{\omega} \right)^2 (n_1 n_3)^{-3} \cdot N^2 \cdot L^2 |\chi^{(3)}(3\omega)|^2 \cdot |I(\Delta k, b, z)|^2 \cdot \Phi_1^3, \quad (9)$$

式中 I 就是 Ward 和 New^[7] 给出的相位匹配积分。它考虑了失配 Δk 和光束参数 b 所造成的影响:

$$I(\Delta k, b, z) = \int_{z_1}^{z_2} \frac{e^{i\Delta k z}}{(1+iz/b)^2} dz. \quad (10)$$

对于平面波近似($b \gg L$), I^2 简化为 $\frac{\sin \Delta k L/2}{\Delta k L/2}$ 。为了用基波功率 W_1 来表示三次谐波的功率 W_3 , 将(9)式对空间坐标积分则得出:

$$W_3 = \frac{1}{3} \left(\frac{4\pi k_1 k_3}{cb} \right)^2 (n_1 n_3)^{-3} \cdot N^2 \cdot L^2 |\chi^{(3)}(3\omega)|^2 \left(\frac{\sin \Delta k L/2}{\Delta k L/2} \right)^2 \cdot W_1^3. \quad (11)$$

根据转换效率 η 的定义可以写成:

$$\eta = \frac{1}{3} \left(\frac{4\pi k_1 k_3}{cb} \right)^2 (n_1 n_3)^{-3} \cdot N^2 \cdot L^2 |\chi^{(3)}(3\omega)|^2 \cdot \left(\frac{\sin \Delta k L/2}{\Delta k L/2} \right)^2 \cdot W_1^2. \quad (12)$$

从(12)式看出, 转换效率 η 与金属蒸气密度 N , 激活介质的长度 L , 三阶非线性极化率 $\chi^{(3)}(3\omega)$, 基波功率密度 W_1 和相位匹配因子 $\left(\frac{\sin \Delta k L/2}{\Delta k L/2} \right)$ 乘积的平方成正比。所以为了提高转换效率 η , 不但要提高 N 、 L 和 W_1 的值, 而且要实现相位匹配条件。

四、实验装置和结果

1. 实验装置

研究 Na-Xe 混合气体中产生三次谐波的实验装置示于图 1。实验装置由微微秒激光系统、热管炉和探测装置组成。所用的主被动锁模钕玻璃激光系统输出波长为 $\lambda = 1.055 \mu\text{m}$, 功率为 10^9 W 。这一光束经透镜 L_1 ($f = 50 \text{ cm}$) 聚焦到含有 Na 和氙气的热管炉内。透镜 L_2 ($f = 50 \text{ cm}$) 使光束复原, 滤光片 F_2 滤掉基波而让三次谐波透过。光电二极管 PD1 和 PD2 分别测出基波和三次谐波的功率。光谱仪 SP 拍摄三次谐波的光谱。热管炉的内径为 20 mm , 长为 450 mm , 内衬有 100 目的不锈钢网, 两端为石英窗口。管外面加热丝与窗口之间缠有冷却水管, 炉内充有一定压力的氙气和填充固态钠。炉子加热后, 热管两端空间的氙气是冷的, 中间部分钠融化后, 湿润了不锈钢网, 使一部分钠变成蒸气, 充满炉心。当钠蒸气向两端运动, 遇到冷的氙气, 使其重新凝结为液体钠, 沉落在不锈钢网上。由于毛细作用, 液体钠沿网重新流回到炉中心, 形成循环过程, 并确保窗口不被钠污染。

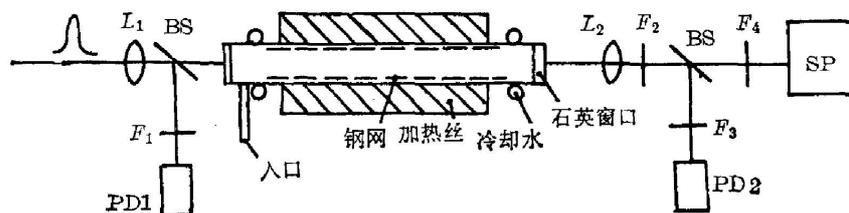


图 1 实验装置图

Fig. 1. Schematic diagram of experimental set-up

2. 实验结果

实验获得了红外超短脉冲的三次谐波。在底片上拍了汞灯和三次谐波的光谱线(见图 2)。谱线, 定出三次谐波的波长为 $\lambda = 3518 \text{ \AA}$ 。实验中所用的参数为: 氙气气压 $P_{\text{Xe}} = 4 \text{ Torr}$, 共焦光束参数 $b = 95 \text{ cm}$, 热管炉的有效长度 $L = 18 \text{ cm}$ 。在这种情况下满足平面

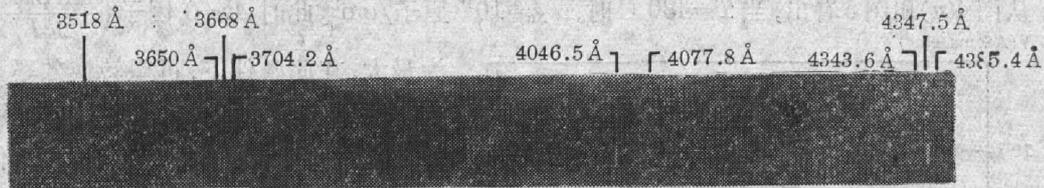


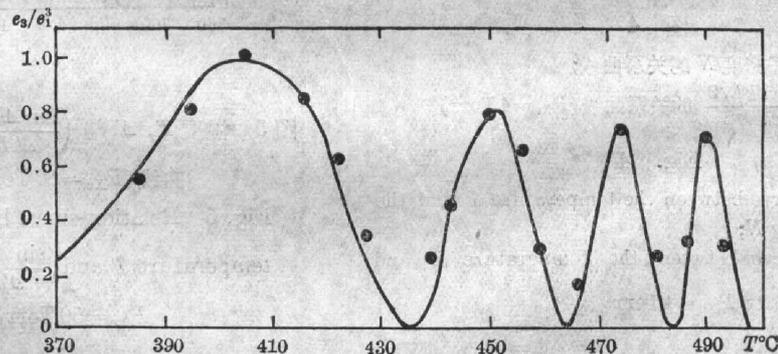
图2 三次谐波和汞灯谱线的照片

Fig. 2 Photo of the third harmonic and Hg-lamp lines

波近似 $b \gg L$ 。基波到三次谐波的转换效率 η 遵从等式(12)。在(12)式中除了常数外, W_1 和 W_3 可以测得, N 和 Δk 利用(5)、(6)、(7)和(8)式可计算求得。因而可以画出 W_3/W_1^3 与 Δk 或与 T 的关系曲线。在实验中我们通常测得的不是 W_1 和 W_3 , 而是直接测量的能量 e_1 和 e_3 。设基波功率 W_1 是一高斯函数, 即 $W_1(t) = W_1 e^{-(t/\tau)^2}$, 于是通过对(12)式的积分可以给出三次谐波的能量 e_3 为:

$$e_3 = \frac{\pi}{3\sqrt{3}} \left(\frac{4k_1 k_3}{cb\tau} \right)^2 (n_1 n_3)^{-3} \cdot N^2 \cdot L^2 |\chi^{(3)}(3\omega)|^2 \cdot \left(\frac{\sin \Delta k L/2}{\Delta k L/2} \right)^2 \cdot e_1^3. \quad (13)$$

故在图3中我们给出 e_3/e_1^3 的实验和相应的理论曲线。对 e_3/e_1^3 的值进行归一化。图中 Xe 气压 $P_{Xe} = 4 \text{ Torr}$ 。从图3看出理论值与实验值相符。实验中, 三次谐波的功率可达 2.5 MW。当温度 $T = 405^\circ\text{C}$ 时, 获得的极大转换效率为 $\eta = 5 \times 10^{-4}$ 。

图3 归一化能量比 e_3/e_1^3 与温度 T 的关系曲线

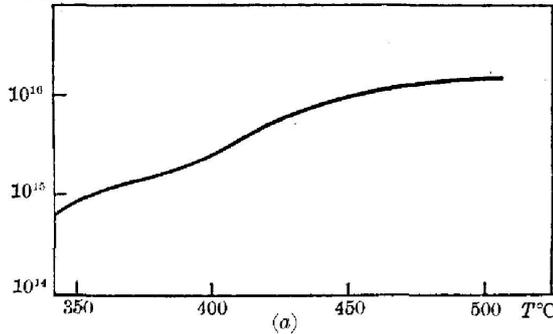
—为理论计算值; ●为实验值

Fig. 3 The relation-curve between the normalized energy-ratio e_3/e_1^3 and temperature T . The solid curve is the theoretical value and the solid circle are the experimental values

为了获得高的转换效率, 必须改变实验参数。从(13)式看出, 对于确定的介质, $\chi^{(3)}$ 是一常数, 基波功率也不可能有很大的变化。为了获得高的转换效率 η , 必须提高 N_{Na} , 增长激活介质的长度 L 和选择最佳的相位匹配因子 $\left(\frac{\sin \Delta k L/2}{\Delta k L/2} \right)$ 。

当 $L = 18 \text{ cm}$, $P_{Xe} = 4 \text{ Torr}$ 时, 计算钠蒸气密度 N_{Na} 和相位匹配因子 $\left(\frac{\sin \Delta k L/2}{\Delta k L/2} \right)$ 与钠蒸气温度 T 的关系示于图4(a)和4(b)中。当 $\Delta k = 0$ 时, 这两条曲线的乘积并不是一个理想的极大值。当 Xe 气的压力为 $P_{Xe} = 50 \text{ Torr}$ 时, T 与 $\left(\frac{\sin \Delta k L/2}{\Delta k L/2} \right)$ 及 Δk 之间的关系示于图5。

从图4(a)和图5看出,当 $T=430^{\circ}\text{C}$ 时, $N_{\text{Na}}=10^{16}$ 原子/ cm^3 。此时 $\Delta k=0$,因子 $\left(\frac{\sin \Delta k L/2}{\Delta k L/2}\right)$



为最大,在此条件下,可望转换效率 η 能提高16倍,并可达1%量级。这说明提高 P_{Xe} ,就要求提高 N_{Na} 以达到相位匹配条件,从而必须提高工作温度 T 。但是Xe气的压力 P_{Xe} 不能提得过高,否则会引起实验值偏离理论值。

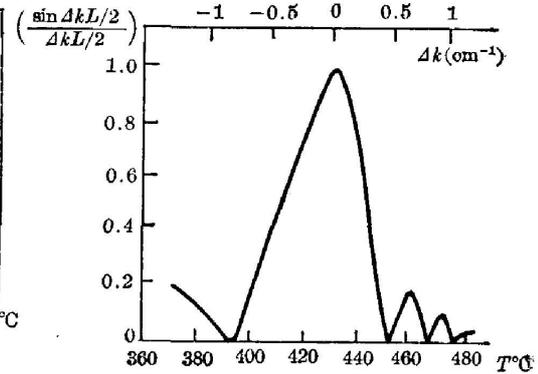
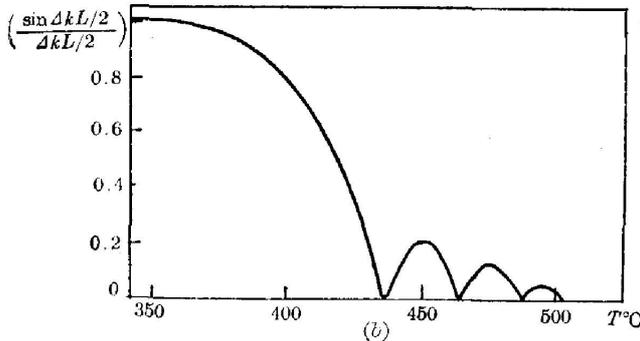


图 4

- (a) 温度 T 与原子密度 N 的关系曲线;
(b) 温度 T 与 $\left(\frac{\sin \Delta k L/2}{\Delta k L/2}\right)$ 的关系曲线 ($P_{\text{Xe}}=4\text{Torr}$)

Fig. 4

- (a) Relation-curve between the temperature T and the atom-density N ;
(b) Relation-curve between the temperature T and $\left(\frac{\sin \Delta k L/2}{\Delta k L/2}\right)$ for $P_{\text{Xe}}=4\text{Torr}$

图 5 温度 T , Δk 与 $\left(\frac{\sin \Delta k L/2}{\Delta k L/2}\right)$ 的关系曲线 ($P_{\text{Xe}}=50\text{Torr}$)Fig. 5 Relation-curve between the temperature T and $\left(\frac{\sin \Delta k L/2}{\Delta k L/2}\right)$ for $P_{\text{Xe}}=50\text{Torr}$

还有一个影响转换效率的不容忽视的因素,即热管炉内轴向温度的均匀性。它直接影响到相位匹配因子。尤其是对于 L 比较小的热管炉,更不容易实现在整个长度上温度的恒定。轴向温度梯度会大大地降低转换效率。为了实现炉内温度高度均衡,人们已采用了同心双层热管炉^[8]。在这样的热管炉中,人们将外层炉内的碱金属加热到沸点,从而在内外炉壁上形成一稳定的沸点温度层,它隔绝了内外部分的热交换,而确保内层炉温度的恒定。利用这一点人们已达到了百分之几到10%的转换效率。

作者衷心感谢周平同志在制作真空系统和金属蒸气工作中给予的大力帮助。

参 考 文 献

- [1] D. M. Bloom, G. W. Bekkers *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1975, **26**, No. 12 (Jun), 687.
[2] J. A. Armstong, N. Bloembergen *et al.*; *Phys. Rev.*, 1962, **127**, No. 6 (Sep), 1918.
[3] S. E. Harris, R. B. Miles; *Appl. Phys. Lett.*, 1971, **19**, No. 10 (Nov), 385.

- [4] J. F. Young *et al.*; *Phys. Rev. Lett.*, 1971, **27**, No. 23 (Dec), 1551.
[5] P. P. Bey, J. F. Guiliant *et al.*; *Phys. Rev. Lett.*, 1967, **19**, No. 15 (Oct), 819.
[6] W. I. Wiese, M. W. Smith *et al.*; *Atomic Transition Probabilities* Vol. II, Sodium Through Calcium A Critical Data Compilation, AD-696884.
[7] J. F. Ward, G. H. New; *Phys. Rev.*, 1969, **185**, No. 1 (Sep), 57.
[8] D. C. Hanna, M. A. Yuratich *et al.*; «*Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules*», (Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, New York, 1979, Springer Series in Optical Sciences), 154.

Third harmonic generation in Na-metal vapor

QIU PEIHUA LI QUN AND WANG WENGYAO

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

(Received 29 August 1983; revised 21 November 1983)

Abstract

By using the infrared picosecond pulse train of mode-locked laser, we observed the generation of third harmonic picosecond pulse at wavelength 3518 \AA in phase-matched gas-mixture of Na and Xe in a heat-pipe oven. The third harmonic light has been achieved to a power of 2.5 megawatt. Conversion efficiency from the fundamental to the third harmonic is 5×10^{-4} .