

УДК 535.37

ЭФФЕКТИВНАЯ ГЕНЕРАЦИЯ ТРЕТЬЕЙ ГАРМОНИКИ В СМЕСИ Rb-Xe В ЦЕЛЬНОНАГРЕВАЕМОЙ ОТПАЯННОЙ САПФИРОВОЙ КЮВЕТЕ В УСЛОВИЯХ ФАЗОВОГО СОГЛАСОВАНИЯ

Д.Г.САРКИСЯН, А.С.САРКИСЯН

Институт физических исследований НАН Армении

Б.А.ГЛУШКО

Институт им. Вейцмана, Израиль

(Поступила в редакцию 22 июля 1996 г.)

Впервые получена генерация третьей гармоники (ГТГ) в смеси паров Rb-Xe в условиях фазового согласования с использованием цельнонагреваемой отпаянной сапфировой кюветы нового типа. Достигнута максимальная эффективность преобразования по энергии 4% для импульса, находящегося в цуге пикосекундных импульсов YAG:Nd³⁺ лазера. Нелинейный отклик среды (ГТГ), индуцированный в среде цугом пикосекундных импульсов, позволяет определить и разграничить влияние конкурирующих процессов, таких, как, многофотонная ионизация, фазовое рассогласование из-за Керр-эффекта, самофокусировка, дефокусировка и фазовая самомодуляция.

Введение

Ранее было показано [1-6], что повышение эффективности процессов генерации третьей гармоники ($\eta=3-10\%$) и смешения частот достигается при использовании лазерных импульсов высокой мощности ($P \geq 10^7-10^8$ Вт) в смеси паров щелочных металлов с буферным газом, обеспечивающим фазовое согласование. Дальнейшее проведение этих исследований для реальных применений ограничивалось по нескольким причинам. Наиболее серьезной среди них являлось использование металлических кювет с охлаждаемыми окнами сложной конструкции [7,8], в которых для получения однородного столба атомных паров значительной длины необходимы система откачки и охлаждение окон кюветы. Полная длина таких кювет может достигать $\sim 1-1.5$ м [2,3]. Для обеспечения условия фазового согласования необходимо относительно большое

давление буферного газа, что ведет к сильной и необратимой утечке паров щелочного металла из нагретого центра кюветы и осаждению их в холодной зоне вблизи окон. Это уменьшает время работы кюветы до нескольких часов [2,3].

Отметим, что использование смеси газов для ГТГ в ряде случаев имеет преимущества по сравнению с ГТГ в нелинейных кристаллах, в первую очередь, для получения с помощью ГТГ излучений в УФ и ВУФ областях спектра, а также для ГТГ широкополосных импульсов, имеющих ультракороткую длительность.

В настоящей работе обсуждается генерация третьей гармоники в отпаянной сапфировой кювете, специально разработанной для ГТГ.

Экспериментальные результаты

Была разработана и изготовлена высокотемпературная сапфировая оптическая кювета, описанная ранее в [9,10]. В отличие от предыдущей конструкции она заполнена одновременно щелочным металлом (Rb) и буферным газом (Xe). Аппаратура, используемая для изготовления кюветы, позволяет заполнить в нее до 2 атм. буферного газа (при 300К). Отпаянная сапфировая кювета (ОСК), используемая в наших экспериментах, имела следующие параметры: длина — 27 см, диаметр — 1.3 см, $P(\text{Xe})=400$ Торр ($T=300\text{K}$). Отполированные сапфировые окна прозрачны в области 150нм–7мкм и во избежание двулучепреломления, сориентированы таким образом, что ось Z перпендикулярна плоскости окна. ОСК помещалась в теплоизолированную нагреваемую кварцевую трубку. Пикосекундный YAG:Nd^{3+} лазер работал на TEM_{00} моде и генерировал цуг из 7-8 импульсов, длительностью 30 пс, с интервалом между импульсами ≈ 7 нс. Полная энергия цуга составляла 4 мДж.

Генерируемая в кювете третья гармоника и небольшая часть энергии пучка накачки направлялись на коаксиальный фотоэлемент ФК-26, сигнал которого регистрировался на скоростном осциллографе С7-19 (рис. 1). Временное разрешение системы составляло 0.3 нс. Временная задержка в 3 нс между импульсами накачки и третьей гармоники (ТГ) позволяет регистрировать на осциллографе каждый импульс ТГ после соответствующего импульса накачки. Регистрирующая система откалибрована так, что 1 Вольт на осциллограмме соответствовал

энергиям 16 нДж и 300 нДж для длин волн 350 нм и 1.064 мкм соответственно. Для удобства измерений на пути излучений ТГ и накачки, поступающих на фотоэлемент, установлены фильтры, позволяющие менять отношение ТГ/накачка.

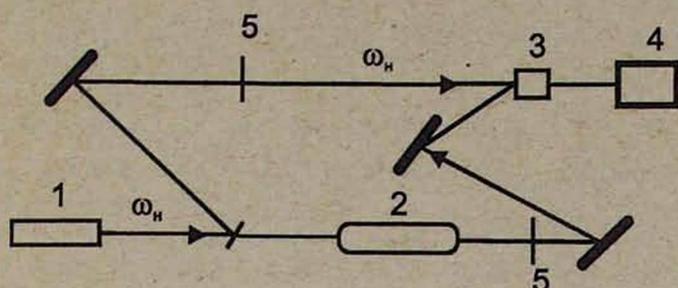


Рис.1. Экспериментальная схема для ГТГ цугом пикосекундного YAG:Nd³⁺ лазера в фазово-согласованной смеси Rb-Xe. 1 - пикосекундный YAG:Nd³⁺ лазер, 2 - кювета со смесью Rb-Xe, 3 - коаксиальный фотоэлемент ФК-26, 4 - осциллограф С7-19, 5 - фильтры.

В эксперименте по ГТГ лазерное излучение фокусировалось линзой ($f = 33$ см) в площадку $3.5 \cdot 10^{-4} \text{ см}^2$ (диаметр пучка в перетяжке $d_0 = 2.1 \cdot 10^{-2}$ см) в середину ОСК со смесью Rb-Xe с длиной однородного столба паров 27 см (полная длина кюветы). Условие фазового согласования достигалось простым подбором температуры (следовательно, и давления паров Rb). Оптимальная температура составила 600 К, что соответствовало $P_{\text{Rb}} = 2$ Торр ($N_{\text{Rb}} = 3.4 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$). Температурная зависимость энергии ТГ показана на рис. 2. До отпайки давление Xe в кювете было равно 400 Торр при комнатной температуре. Это соответствует $N_{\text{Xe}} = 1.3 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$. Следовательно, отношение концентраций компонент для фазового согласования находится в точном согласии с предыдущими измерениями [3]. Интенсивность в расчете на один импульс в цуге $5 \cdot 10^{10} \text{ Вт/см}^2$ (максимальная энергия импульса 0.6 мДж) была достаточна для достижения высокой эффективности преобразования [1-3]. В то же время эта интенсивность близка к пределу, определяемому фазовым рассогласованием, обусловленным Керр-эффектом и многофотонной ионизацией (МИ).

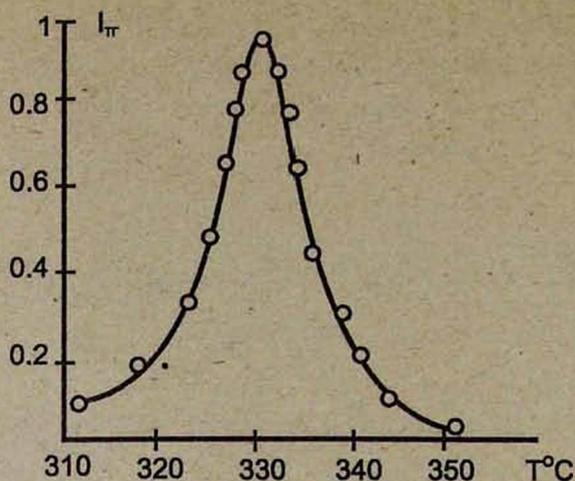


Рис.2. Зависимость интенсивности ТГ от температуры кюветы со смесью Rb-Xe.

Измерения энергии импульса ТГ относительно энергии накачки за одну лазерную вспышку были получены сравнением амплитуд импульсов цугов ТГ и накачки. Осциллограммы на рис.3а,б взяты для энергий накачки, значительно различающихся (более чем на 20%), что позволяет увидеть динамику зависимости ТГ от энергии накачки на входе. Максимальная эффективность преобразования составила 4% для импульса 14 на рис.3а (энергии накачки и ТГ были 0.6 мДж и 24 мкДж соответственно). Эффективность преобразования для всего цуга импульсов составила ≈2%. Подробный анализ рис.3а,б,с, приведенный ниже, объясняет уменьшение эффективности преобразования по сравнению с одиночным импульсом влиянием конкурирующих процессов.

Оптимизация эффективности преобразования. Анализ экспериментальных данных

Эффективность преобразования в излучение ТГ зависит от входных параметров накачки, условий фазового согласования и геометрии взаимодействия. Предполагая гауссовское временное распределение импульса, для эффективности преобразования по энергии, в единицах СИ для мощности, и в единицах СГСЭ для λ , χ , b и N из [3] имеем:

$$\eta_E \approx \frac{1}{3\sqrt{3}} \left| \frac{\chi_T^{(3)} NP}{4\lambda^2} \right|^2 \frac{2}{b^2} |F(b\Delta k, f, L)|^2, \quad (1)$$

где N – плотность атомов, P – мощность накачки, L – длина кюветы, $\chi_T^{(3)}(3\omega)$ – нелинейная восприимчивость, ответственная за процесс ГГГ, $F(b\Delta k, f, L)$ – интеграл фазового согласования (ФС), описывающий условие ФС и режим фокусировки [11], b – конфокальный параметр, $\Delta k = 6\pi/\lambda[n(3\omega) - n(\omega)]$ – расстройка волновых векторов, $n(\omega)$, $n(3\omega)$ – показатели преломления волны накачки и генерируемой волны, f – фокусное расстояние. Зависимость эффективности преобразования от расстройки для сфокусированных пучков определяется интегралом фазового согласования, величина которого зависит от степени фокусировки [11]. Из выражения (1) для параметров эксперимента $b=7$ см, диаметр пучка ≈ 2 мм, энергия данного импульса в цуге ≈ 0.6 мДж ($P=20$ МВт), $f=33$ см, $F=5,6$ имеем $\eta^{\text{теор}} \approx 3\%$, что хорошо согласуется с экспериментальной величиной $\eta^{\text{экc}} \approx 4\%$.

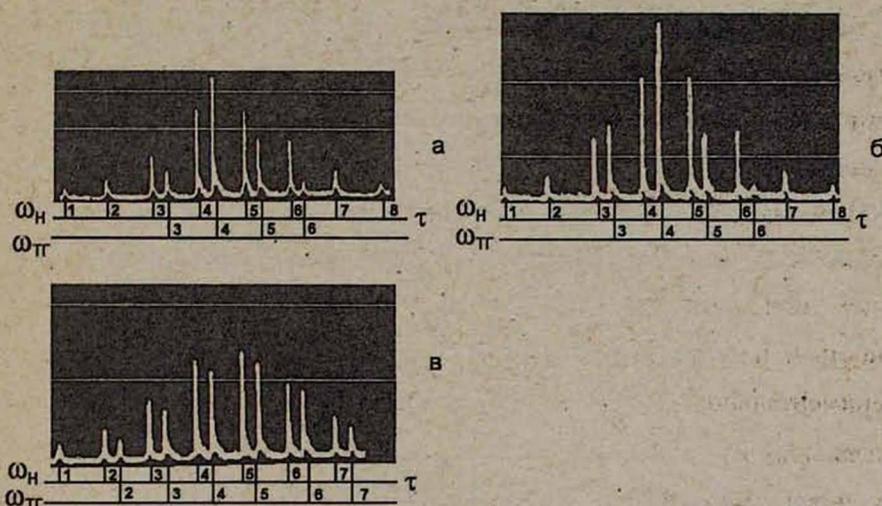


Рис.3. Осциллограммы цугов накачки $\omega_H(\omega_p)$ и третьей гармоники $\omega_{ГГ}(\omega_{ГГ})$, полученные: За,б – в смеси Rb-Xe; Зв – в кристаллах KDP.

Процесс ГГГ оптимизируется максимизацией величины интеграла фазового согласования F . В пределе сильной фокусировки интеграл вычисляется точно и равен

$$\left| F(b\Delta k, f; L) \right|_{\max} \approx \pi b / eL; \quad L/b \gg 1; \quad b/\Delta k = -2. \quad (2)$$

Подробные расчеты величины F для различных случаев фокусировки выполнены в [11].

Таким образом, ключевым параметром для улучшения эффективности преобразования является мощность пучка накачки, а не интенсивность. Оптимизируем данное выражение. Предположим, что максимальное значение NP определяется фазовой расстройкой из-за Керр-эффекта:

$$\Delta n(I_H) \approx n_2 |E|^2 \approx 1.3 \cdot 10^{-2} \chi_s^{(3)} (\text{СГСЭ}) I_H, \quad (3)$$

где $\chi_s^{(3)}(3\omega)$ - восприимчивость третьего порядка, ответственная за Керр-эффект, I_H - интенсивность накачки. Тогда для режима жесткой фокусировки величина η , согласно [3], достигает своего максимального значения, определяемого пределом Керр-эффекта:

$$\eta_{\max} \approx \left| \chi_T^{(3)} / \chi_S^{(3)} \right|^2. \quad (4)$$

Таким образом, важным параметром, который характеризует ожидаемую максимальную эффективность ГТГ, является величина (4). Для выбранной нами системы уровней атомов Rb и для накачки с $\lambda=1.064$ мкм, согласно [3], величина (4) составляет 5%.

Известно [12], что высокая концентрация металлического пара приводит к появлению димеров, которые сильно поглощают частоту накачки или генерируемую частоту. Поэтому имеется оптимальная плотность N паров активных атомов, которая, как правило, определяется экспериментально. Оптимальная концентрация буферного газа определяется из условия фазового согласования $b\Delta k=2$ [11] (случай жесткой фокусировки).

Метод диагностики среды на основе генерации ТГ пучком УКИ накачки

При взаимодействии интенсивного лазерного излучения со средой одновременно могут протекать такие нелинейные процессы, как возбуждение среды, МИ, фазовая самомодуляция, самофокусировка и дефокусировка [8]. Поскольку они действуют совместно, то, как правило, трудно выявить их относительное влияние.

Используемый нами метод [13,14] позволяет "прощупывать"

нелинейный отклик среды (например, с помощью ТГ) каждые несколько наносекунд в течение времени взаимодействия с цугом ультракоротких импульсов (УКИ). Эффекты самовоздействия проявляются только в течение времени взаимодействия (пс масштаб), в то время как релаксация среды после возбуждения и МИ длится ~ 1 нс + 1 мкс [15,16]. Следовательно, для этих эффектов имеет место эффект аккумуляции (например, истощение атомов в основном состоянии, вызванное первым импульсом, обусловит изменение нелинейного отклика среды для второго импульса и т. д.). Следовательно, изучая динамику отклика нелинейной среды, можно выявить не только относительное влияние этих эффектов, но также оценить их вероятность.

Известно [17], что длительность УКИ может зависеть от номера импульса в цуге. Было проведено специальное контрольное возбуждение ТГ в последовательно расположенных кристаллах, чтобы показать, что в нашем случае длительность импульса не зависит от номера импульса в цуге (рис.3в). Из осциллограммы видно, что импульсы равной энергии (например, 3 и 6), взятые из передней и хвостовой части цуга, генерировали импульсы ТГ также равной энергии (амплитуды). Поскольку сигнал ТГ зависит от мощности (интенсивности) накачки, это является подтверждением того, что длительность импульсов по всему цугу одинакова (эффективность преобразования в ТГ с помощью двух кристаллов KDP составила 10%).

Обсуждение

Проанализируем динамику зависимости импульсов ТГ от накачки при изменении энергии импульса накачки вдоль цуга. Импульс накачки №4 (рис.3а) с амплитудой, в два раза превышающей амплитуду импульса накачки №3 (табл.1); генерирует импульс ТГ, в 5 раз превышающий импульс ТГ для 3-го импульса накачки. Следовательно, энергетическая зависимость ТГ близка к закону $I_{ТГ} \sim I_n^3$, что указывает на слабое влияние конкурирующих процессов. Для импульса накачки №4, в два раза превышающего импульс накачки №3 (см. рис.3б), генерируется импульс ТГ $A_{ТГ4}$, который по амплитуде только в 2.4 раза больше, чем $A_{ТГ3}$.

Следовательно, здесь четко проявляется действие ограничивающих

процессов. Оно становится более четко выраженным для импульсов 5, 6 и 7. Эти импульсы с той же энергией, что и соответствующие импульсы в начале цуга (4, 3 и 2), генерируют значительно меньшую ТГ. Из таблицы 1 видно, что ограничивающий процесс имеет время релаксации большее, чем временной интервал в цуге между лазерными импульсами. Такое поведение четко показывает, что основное влияние на среду оказывает МИ, так как, если бы основным ограничивающим фактором являлись процессы самовоздействия, которые действуют только в течение импульса, то тогда отклик ТГ для импульсов одинаковой энергии, взятых из начала и конца цуга, был бы одинаковым. Следовательно, основным ограничивающим процессом является МИ, которая осуществляется первыми несколькими импульсами и приводит к истощению заселенности атомного уровня для последующих импульсов. Предположим, что основной вклад в МИ дает процесс 4-х фотонной ионизации с вероятностью $\Omega_{\text{ион}} = 10^{-38} I_{\text{н}}^4$ [15]. Для длительности одиночного импульса $\tau_{\text{н}} = 30$ пс соответствующее число ионизованных атомов пренебрежимо мало ($\Omega_{\text{ион}} \tau_{\text{н}} \approx 10^{-9}$) и не может реально воздействовать на процесс ТГ. Учитывая укорочение импульсов ТГ и накачки из-за МИ [16], можно оценить интенсивность ТГ: 10^9 Вт/см². Она достаточна для двухфотонной ионизации (ДИ), индуцированной одним фотоном ТГ и одним фотоном накачки. Используя осциллограммы рис.3а,б и связывая уменьшение амплитуды ТГ только с истощением основного уровня, можно оценить вероятность ДИ. Это представляет интерес, поскольку в литературе нет данных о вероятности ДИ для нашего случая.

Табл. 1. Относительная энергия накачки и третьей гармоники цуга пикосекундного YAG:Nd³⁺ лазера в смеси Rb-Xe.

Относит. амплитуда	$\frac{A_{\text{н4}}}{A_{\text{н3}}}$	$\frac{A_{\text{ТГ4}}}{A_{\text{ТГ3}}}$	$\frac{A_{\text{н5}}}{A_{\text{н4}}}$	$\frac{A_{\text{ТГ5}}}{A_{\text{ТГ4}}}$	$\frac{A_{\text{н6}}}{A_{\text{н5}}}$	$\frac{A_{\text{ТГ6}}}{A_{\text{ТГ5}}}$	$\frac{A_{\text{н6}}}{A_{\text{н3}}}$	$\frac{A_{\text{ТГ6}}}{A_{\text{ТГ3}}}$
	3а. ГТГ в Rb-Xe	2,1	5,0	0,97	0,48	0,63	0,25	1,28
3б. ГТГ в Rb-Xe	2,1	2,4	1,0	0,37	0,56	0,19	1,17	0,17
3в. ГТГ в кристалле	1,68	1,8	1,04	1,06	0,71	0,73	1,25	1,38

Вероятность ДИ $\Omega_{\text{ион}} = a \cdot I_{\text{Н}} \cdot I_{\text{ТГ}}$, где a – коэффициент поперечного сечения. Число ионизованных атомов равно $N_{\text{ион}} \approx \Omega_{\text{ион}} N_0 \tau_{\text{Н}}$ [8]. Истощение числа атомов N_0 приводит к уменьшению сигнала ТГ. Нетрудно показать [14], что

$$A_{\text{ТГ5}} / A_{\text{ТГ4}} = [(N_0 - N_{\text{ион}}) / N_0]^2.$$

Выражая значение $N_{\text{ион}}$ через $A_{\text{ТГ5}} / A_{\text{ТГ4}}$ и подставляя в формулу для $\Omega_{\text{ион}}$, для коэффициента поперечного сечения получим

$$a \approx \frac{1 - (A_{\text{ТГ5}} / A_{\text{ТГ4}})^{1/2}}{\eta_{\text{ТГ}} \cdot \tau_{\text{Н}} \cdot I_{\text{Н}}^2}, \quad (5)$$

и для ДИ следует $\Omega_{\text{ион}} \approx 10^{-10} I_{\text{Н}} I_{\text{ТГ}}$. Поскольку время восстановления ионизованной среды значительно больше, чем интервал между импульсами в цуге (7 нс), то для МИ должен иметь место эффект аккумуляции и, следовательно, к концу цуга будет отклонение ТГ от закона $I_{\text{ТГ}} \sim I_{\text{Н}}^3$. При рассмотрении последовательности отношений, взятых из рис. 3а, ясно виден эффект аккумуляции к концу цуга.

Заключение

Продемонстрирована эффективная ГТГ излучения пс YAG:Nd³⁺ лазера при использовании специально разработанной ОСК, заполненной фазово-согласованной смесью Rb-Xe. Достигнута эффективность преобразования 4% для 2 Торр Rb и 400 Торр Xe. Разработанная ОСК имеет значительные преимущества по сравнению с единственной альтернативой – металлической кюветой, широко используемой во всем мире. Она не требует вакуумной откачки и охлаждения окон, обеспечивает однородное распределение смеси, отсутствует конвекция и конденсация паров на окнах, обеспечивается значительно большая концентрация паров, надежность и компактность (что важно, помимо ГТГ, и для других задач). Дальнейшее увеличение эффективности ГТГ может быть осуществлено следующим путем: а) увеличением концентрации Xe, что позволит работать с большей концентрацией Rb, б) генерацией ТГ одиночным УКИ вместо цуга УКИ во избежание отрицательного влияния

МИ, с) увеличением длины ОСК. Разработанная ОСК со смесью Rb-Xe может быть успешно использована для ГТГ перестраиваемого излучения 0.79–1 мкм (Ti: сапфировый лазер).

Идентифицирован процесс, ограничивающий эффективность ГТГ, которым является двухфотонная ионизация атомов рубидия, и оценена ее вероятность.

Авторы признательны Е.Пашаян за помощь при подготовке рукописи.

ЛИТЕРАТУРА

1. R.Miles, S. E. Harris. IEEE Journal of Quantum Electr., QE-9, 470 (1973).
2. D.M.Bloom, G. W. Bekkers, I. F. Young, S. E. Harris. Appl. Phys. Lett., 26, 687 (1975).
3. H.Puell, K. Spanner, W. Falkenstein, W. Kaiser, C. R. Vidal. Phys. Rev., A 14, 2240 (1976).
4. K.N.Drabovich, D. I. Metchkov, V.M. Mitev, L.I. Pavlov, K.V. Stamenov. Opt. Comm., 20, 350 (1977).
5. D.M.Bloom, J.F. Young, and S.E. Harris. Appl. Phys. Lett., 27, 390 (1975).
6. A.H.Kung, J.F. Young, and S.E. Harris. Appl. Phys. Lett., 22, 301 (1973).
7. C.R.Vidal, J. Cooper. J. Appl. Phys., 40, 3370 (1969).
8. С.А.Бахрамов, Г.Х.Тартаковский, П.К.Хабибуллаев. Нелинейные резонансные процессы и преобразование частоты в газах. Ташкент, "Фан", 1981, 160 с.
9. B.Glushko, B. Kryzhanovsky, and D. Sarkisyan. Phys. Rev. Lett., 71, 243 (1993).
10. Д.Г.Саркисян. Квантовая электроника, 15, 2358 (1988); Д.Г. Саркисян, А.С. Саркисян. Квантовая электроника, 19, 399 (1992).
11. G.G. Bjorklund. IEEE Journal of Quantum Electron., QE-11, 287 (1975).
12. В.Демтредер. Лазерная спектроскопия: Основные принципы и техника эксперимента, М., Наука, 1985.
13. V. Avakyan, B. Kryzhanovsky, D. Sarkisyan. Opt. Comm., 74, 223 (1989).
14. Ю.П. Малакян, Д.Г. Саркисян, А.С. Саркисян. Квант. электроника, 18, 938 (1990).
15. J.F. Reintjes. Nonlinear Optical Parametric Processes in Liquids and Gases. Academic Press Inc., New-York, 1984.
16. K. Miyazaki, H. Kashiwagi. Phys. Rev., A 18, 635 (1978).
17. "Сверхкороткие световые импульсы" (под ред. С. Шапиро), М., "Мир", 1981.

ԵՐՐՈՐԴ ՀԱՐՄՈՆԻԿԻ ԱՐԳՅՈՒՆԱՎԵՏ ԳԵՆԵՐԱՅՈՒՄԸ Rb-Xe
ԽԱՈՆՈՒՐԴՈՎ ԼՅՎԱՏ ԱՊԱԶՈՐՎԱՏ ԵՎ ԱՄԲՈՂՁՈՎԻՆ
ՏԱԶԱՅՎՈՂ ՇԱՓՅՈՒՐԵ ԱՆՈԹԻ ՄԵՁ ՓՈՒԼՍԵՒՆ
ՀԱՄԱՁԱՅՆԵՅՎԱԾՈՒԹՅԱՆ ՊԱՅՄԱՆՆԵՐՈՒՄ

Դ.Հ. ՍԱՐԳՍՅԱՆ, Հ.Ա. ՍԱՐԳՍՅԱՆ, Բ.Ա. ԳԼՈՒՇԿՈ

Առաջին անգամ ստացվել է երրորդ հարմոնիկի գեներացումը (ԵՀԳ) Rb-Xe գոլորշիների խառնուրդում փուլային համաձայնեցվածության պայմաններում օգտագործելով ամբողջովին տաքացվող նոր տիպի շափյուղե անոթ: Հաջողվել է ստանալ ըստ էներգիայի փոխակերպման առավելագույն 4% արդյունավետություն այն իմպուլսի համար, որը գտնվում է YAG:Nd լազերի պիկովայրկյանային իմպուլսների ցուգում: Միջավայրի ոչ գծային արձագանքը (ԵՀԳ), որը մակածվում է միջավայրում պիկովայրկյանային իմպուլսների ցուգով, թույլ է տալիս որոշել և նվազեցնել միաժամանակ առաջացող մրցակցող այնպիսի պրոցեսների սահմանափակող ազդեցությունը, ինչպիսիք են բազմաֆոտոն իոնացումը, Կեռի երևույթի պատճառով փուլային անհամաձայնեցվածությունը, ինքնաֆոկոսացումը և փուլային ինքնամոդուլացումը:

EFFICIENT THIRD HARMONIC GENERATION IN A SEALED-OFF
WHOLE-HEATED SAPPHIRE CELL FILLED WITH A PHASE-
MATCHED Rb-Xe MIXTURE

D.H. SARKISYAN, A.S. SARKISYAN, B.A. GLUSHKO

Third harmonic generation (THG) in a phase-matched mixture for the first time has been produced by utilizing a new type of the sealed-off sapphire cell. Maximum energy conversion with the efficiency of 4% for the pulse of train of mode-locked YAG: Nd³⁺ laser has been achieved. The nonlinear medium response (THG) induced by a train of ps pulses allows one to determine and discriminate between limiting influence of simultaneously occurring processes such as multiphoton ionization, Kerr-effect induced phase-mismatching, self-focusing, and self-phase modulation.