

文章编号: 0258-7025(2002)11-0979-04

超短脉冲强激光场中氙的高次谐波

夏元钦, 陈建新, 王 骐

(哈尔滨工业大学光电子技术研究所, 可调谐激光技术国家级重点实验室, 黑龙江 哈尔滨 150001)

提要 在静态气室中, 利用线偏振的掺钛蓝宝石(Ti:sapphire)超短脉冲激光(中心波长 795 nm, 脉宽 105 fs, 重复频率 10 Hz, 单脉冲能量 50 mJ), 获得氙气中 5~17 次(40~160 nm)谐波的软 X 射线激光辐射。实验中着重观察了高次谐波谱线强度随激光强度的变化规律, 由于激光强度已经接近甚至超过饱和, 高次谐波谱相对强度随入射激光强度增加而增长到一定程度后开始下降, 同时观察到介质的离子谱, 证实了高次谐波谱的产生与离子辐射之间的转换关系。

关键词 超短脉冲激光, 氙气, 高次谐波

中图分类号 TN 241 **文献标识码** A

High-order Harmonics in Xe Using Intense Ultra-short Laser Pulses

XIA Yuan-qin, CHEN Jian-xin, WANG Qi

(The National Key Laboratory of Tunable Laser Technology, Institute of Opto-Electronic Technology, Harbin Institute of Technology, Harbin, Heilongjiang 150001)

Abstract In static gas target, the 5th~17th(40~160 nm) high harmonic generation soft X-ray laser radiation has been obtained using linearly-polarized Ti:sapphire ultra-short laser pulses(central wavelength is 795 nm, pulse duration is 105 fs, repetition rate is 10 Hz and one pulse energy is 50 mJ). The change of high harmonic spectra intensities vs input laser power is especially observed. Because the incident laser intensities verge on or even exceed the saturation intensities in this experiment, the high-order harmonic intensities begin to decrease after increase with incident laser power increase, and the ion spectra of gas have been observed in the same time, which verify the conversion relationship between the high harmonic generation and ion spectra radiation.

Key words ultra-short laser pulses, xenon, high-order harmonic generation

1 引 言

八十年代中期以前, 由于激光脉宽较宽, 只能得到级次很低的谐波, 理论和实验都停留在微扰阶段。自从 1987 年 Mcpherson 等^[1]利用激光和稀有气体相互作用观察到非微扰的高次谐波辐射以来, 人们利用超强、超短脉冲激光在激光强度高于 10^{13} W/cm² 情况下, 在各种气体介质中可以观察到短于 10 nm, 高于 100 次的高次谐波辐射^[2~4], 为探索新型的软 X 射线相干光源提供了新的途径。另外, 利用

高次谐波辐射是实现飞秒激光脉冲输出的首选光源^[5]。由于中性氙的电离能比较低, 因而在中性氙气中不太可能获得级次特别高的谐波辐射。J. Zhou 研究脉冲宽度对谐波效率影响时, 利用 25 fs/805 nm 的掺钛蓝宝石(Ti:sapphire)激光在氙中获得 29 次的谐波发生, 同样条件可以在氙中获得高达 135 次的谐波信号^[2], 目前 Michigan 大学的实验小组^[4]利用脉宽 26 fs, 波长 780 nm 激光脉冲与 He 相互作用产生 297 次谐波, 波长 2.73 nm, 已经进入“水窗”波段。我国对高次谐波的研究在理论和实验上

收稿日期: 2001-09-04; 收到修改稿日期: 2001-11-16

基金项目: 国家 863 高技术计划激光技术主题、国家自然科学基金(69688003)资助项目。

作者简介: 夏元钦(1968—), 男, 哈尔滨工业大学电子科学与技术系副教授, 博士, 主要从事超短脉冲强激光驱动的 X 射线激光研究。E-mail: xslaser-lab@hotmail.com

也取得了很多进展,中国科学院上海光学精密机械研究所的强光实验室对氙气及氙气中的高次谐波辐射进行了研究^[6~8]。该研究小组利用脉宽 45 fs,功率 2 TW 的激光,在 Ar 中观察到的最高次谐波为 81 次(9.7 nm)。

根据 J. Krause^[9]的公式 $E_{\max} = I_p + 3.17 U_p$, 为获得最短波长的高次谐波(即最大的光子能量),取决于原子或分子的电离能 I_p 以及激光场中电子的有质动能 U_p , 而

$$U_p(\text{eV}) = 9.33 \times 10^{-14} (1 + \alpha^2) \times [I(\text{W/cm}^2)]^{1/2} \lambda^2(\mu\text{m}) \quad (1)$$

其中 e 为电子的电荷, m_e 为电子质量, I 为激光强度, ω 为角频率, α 为偏振参数($\alpha = 0$ 时线偏振, $\alpha = 1$ 时圆偏振)。从上面的公式可以看出,要得到波长尽可能短的高次谐波,应该使用长波长的激光抽运,而且作用介质的电离能应尽可能地高。根据 Britton Chang^[10]的有关原子电离的理论,饱和激光强度 I_s 关系式如下

$$I_s = \frac{1.69 \times 10^{12} I_p^{(3+a)}}{\{\ln[2.29c\tau \times 3^{2n^*-1} G_{lm} C_n^* I_p / \lambda_0] - \ln(1-p)\}^2} \quad (2)$$

其中, p 为原子的电离几率, c 为光速, τ 为入射激光的脉宽, λ_0 为入射激光的波长, a 为修正因子。因此要提高产生的高次谐波辐射级次,一般需利用超短脉冲激光。由于高次谐波产生的效率非常低,需要一定的激光功率才能产生;另一方面,激光的脉冲宽度直接影响介质的饱和光强,如果饱和光强提高,高次谐波辐射级次自然也就提高了。

本文利用线偏振的 Ti:sapphire 超短脉冲激光,在氙中获得 5~17 次谐波辐射,同时分析了高次谐波辐射谱随激光强度的变化规律。

2 实验装置

实验装置如图 1 所示,气体靶室置于真空室内,气体靶室采用由入射孔阑与出射孔阑及入射孔阑与出射孔阑之间的支架所组成的非对称的可压缩式结构。入射孔阑与出射孔阑两个端面上黄铜皮的间距从 1~10 mm 连续可调,黄铜皮的厚度为 0.1 mm,黄铜皮使得靶室内部与真空室相隔离。飞秒激光系统产生的超短脉冲激光通过焦距为 350 mm 的非球面聚焦透镜入射到靶室内,聚焦系统是焦距 350 mm 的非球面聚焦透镜,材料使用的是熔石英(一级)。对 $\lambda_0 = 795 \text{ nm} \pm 10 \text{ nm}$ 镀增透膜。在靶室两

端铜皮上产生自准直的两个小气孔,产生的谐波辐射信号经真空紫外单色仪分光后,被探测器接收。

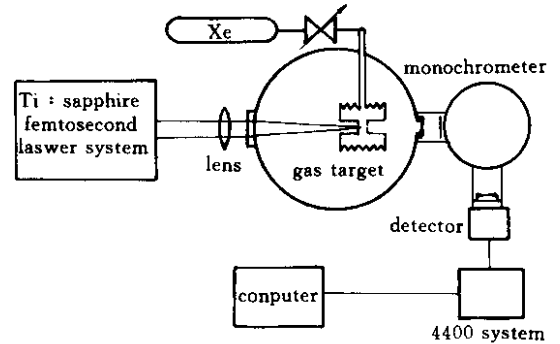


图 1 高次谐波观测实验装置及布局

Fig. 1 Experimental setup to observe high-order harmonic spectra

实验用飞秒激光器为美国光谱物理公司生产的掺钛蓝宝石飞秒激光系统。Tsunami 输出脉宽 80 fs,重复频率 82 MHz 的超短脉冲种子激光,经放大器展宽、放大和压缩,激光器输出参数如下:单脉冲能量 50 mJ,脉宽 105 fs,重复频率 10 Hz,中心波长 795 nm(可调)激光水平线偏振。采用的分光装置是 VSN-515 型 0.5 m 真空紫外单色仪,单色仪由入射狭缝、反射式光栅和出射狭缝组成,光栅的闪耀波长为 70 nm。单色仪入射狭缝和出射狭缝的宽度由 5 μm ~ 3 mm 可调,可通过狭缝处的测微计精确地调节狭缝的宽度;狭缝的高度由 1~20 mm 可调。当单色仪狭缝的宽和高分别为 10 μm 和 4 mm 时,在 121.6 nm 处的分辨率为 0.05 nm。探测器是中心波长为 70 nm 的 R595 无窗光电倍增管,在无窗光电倍增管加 -1600 V 电压条件下信号放大倍数为 10^6 。由靶室出射的谐波辐射通过单色仪出射狭缝处的探测器进行放大,最后由 4400 信号检测和分析系统(Boxcar 门积分器)以及计算机对其时间积分谱进行测量、记录、分析及处理。实验过程中保持光电倍增管的真空度低于 $1.33 \times 10^{-2} \text{ Pa}$,以免光电倍增管损坏。

3 实验结果及分析

氙在强激光场中静态平均的非线性电极化率是 $4.044(\times 10^{-24} \text{ cm}^3)$,比 Ar 和 N_2 (分别为 1.6411 和 1.7404)要高许多,因而利用氙气产生的高次谐波辐射强度应该比利用其他气体产生的高次谐波信号强。在整个实验过程中,气体靶室内的充气气压保持在

1.75 kPa 不变,即保持气体密度不变。依次改变入射激光的能量,获得的实验结果如图 2 所示。

1) 当入射激光能量比较高时(45 mJ),第 11 次及 13 次谐波之间有一个不规则的谱线(或谱带),波长在 65 nm 左右。我们认为随着入射激光的能量的增大,激光功率密度已经超过了 Xe 原子的饱和激光强度,而中性 Xe 原子电离能比较小,因电离产生了离子谱。

2) 随着入射激光能量的增高,各谐波辐射谱中同次谐波信号(5~15 次)的相对强度也随着增强。

从整体上来看,Xe 的 7 次(113.6 nm)谐波信号总是较其他的谐波信号强。而 Xe 的 7 次(113.6 nm)谐波信号并不在单色仪以及探测器的中心波长(70 nm)处。这是由于强激光的作用,使得 Xe 原子的能级发生移动,即动态 Stark 位移,于是 Xe 的第一电离能由 12.13 eV 变为 $12.13 \text{ eV} + U_p$,而第 7 次谐波所对应的光子能量小于但接近于 Xe 的第一电离能,因此将引起光子共振,从而使第 7 次谐波信号增强。

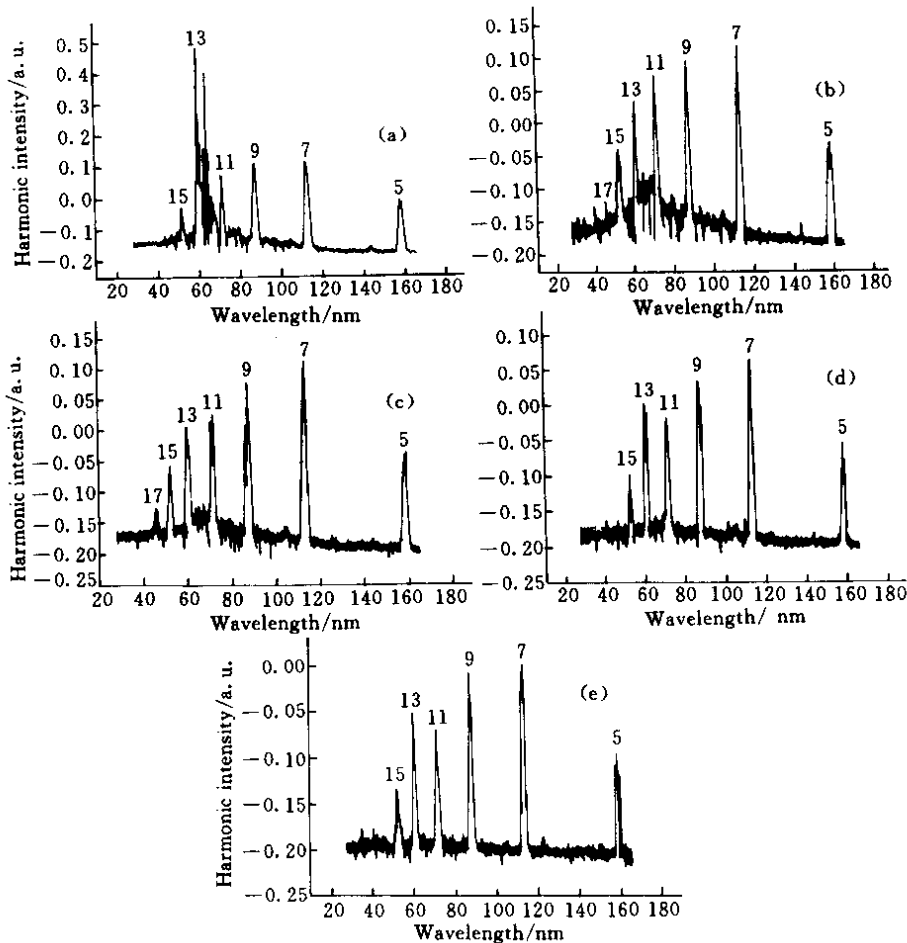


图 2 中心波长 795 nm 飞秒激光在气压为 1.75 kPa 的 Xe 气中的高次谐波线偏振激光能量 (a)45 mJ (b)37.5 mJ (c)26 mJ (d)17 mJ (e)9 mJ

Fig.2 High-order harmonic in Xe by 795 nm fs laser pulse with pressures of 1.75 kPa linearly-polarized laser energy is :(a)45 mJ ;(b)37.5 mJ ;(c)26 mJ ;(d)17 mJ ;(e)9 mJ

3) 无论入射激光能量大小,始终没有观察到在 Kr 及 Ar 中已观察到的 21 次谐波^[11,12],在入射激光能量为 37.5 mJ 及气压 1.75 kPa 情况下观测到的最高级次的谐波为 17 次(波长 46.8 nm)或 19 次(波长 41.8 nm),19 次谐波并不太明显,而且没有

探测到更高级次的谐波,原因可能是 19 次甚至 21 次谐波太靠近截止波长,转换效率降低,另一方面探测系统对于在 40 nm 以下的信号响应灵敏度降低。比较图 2(a)和(b)及其他几个图可以看出当激光能量增大到 45 mJ 时,17 次谐波的信号反而淹没了,

这是因为随着入射激光能量的增加,激光聚焦后功率密度增大,超过中性 Xe 的饱和激光强度,导致作用区内自由电子的急剧增加,使得激光在介质中传播的折射率和色散的改变,增加了新的相位失配,转换效率急剧下降。另一方面,入射激光能量增加,使得噪声增强,信号可能被噪声淹没。

4) 当激光波长一定时,随着激光功率密度增大,最大的谐波级次也增大,使平台展宽,同时,在平台区内的各个谐波级次强度也略有增长,如果想得到 I_{q+2} 与 I_q 近乎相等的高次谐波谱,基频波光强 I 需满足

$$I^2 \approx (1/2\pi)^2 |\chi^{(q)}/\chi^{(q+2)}|^2 \quad (3)$$

非线性极化率 $\chi^{(q)}$ 与低一阶极化率 $\chi^{(q-1)}$ 的比值 $|\chi^{(q)}/\chi^{(q-1)}| \sim 1/E_{in}^{[13]}$, E_{in} 为原子内库仑电场。这就要求入射的基频光有接近原子库仑场的场强。因而要获得级次很高的高次谐波,非线性介质的电离阈值要高,同时基频光必须有足够的光强。

图 3 是 Xe 中产生的高次谐波谱的相对强度随入射的基频激光能量的变化关系曲线,气体气压为 1.75 kPa,激光能量变化范围从 9 ~ 45 mJ。由于 Xe 气的饱和光强比较低,此时的功率密度已经接近并且有可能超过饱和光强,从图可以看出高次谐波谱的相对强度随激光能量变化已经比较缓慢,且有下降的趋势。激光强度超过饱和激光强度以后,由于原子的电离和气体介质的击穿,击穿效应破坏了光与原子相互作用的相干性,而产生的大量电子使得有效光强降低,使得高次谐波饱和,更高次谐波不能发生。从转换效率角度来看,当激光强度增加到一定程度以后,不会提高谐波的转换效率,相反会降低谐波的转换效率。

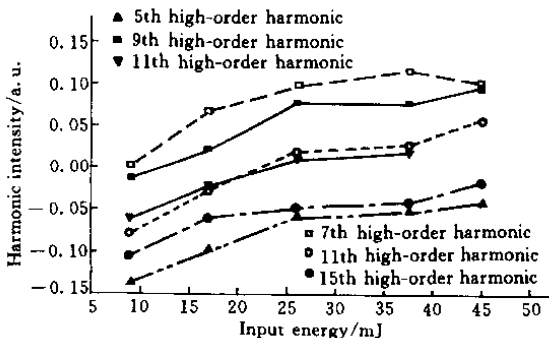


图 3 Xe 高次谐波辐射相对强度随激光能量变化的关系曲线

Fig.3 High-order harmonic intensity in Xe dependence of laser energy

参 考 文 献

- 1 A. Mcpherson, G. Gibson, H. Jara *et al.*. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1987, **4**(4): 595 ~ 601
- 2 J. Zhou, J. Peatross, M. M. Murnane *et al.*. Enhanced high-harmonic generation using 25 fs laser pulses [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1996, **76**(5): 752 ~ 755
- 3 J. J. Macklin, J. D. Kmetec, C. L. Gordon III. High-order harmonic generation using intense femtosecond pulses [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, **70**(6): 766 ~ 769
- 4 Zenghu Chang, Andy Rundquist, Haiwen Wang *et al.*. Generation of coherent soft X-rays at 2.7 nm using high harmonics [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1997, **79**(16): 2970 ~ 2976
- 5 Philippe Antoine, Anne L' Huillier, Maciej Lewenstein. Attosecond pulse trains using high-order harmonics [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1996, **77**(7): 1234 ~ 1237
- 6 Liu Yaqing, Xu Zhizhan, Zhai Kai *et al.*. High-order harmonic generation in Ar nobles gases [J]. *Acta Optica Sinica* (光学学报), 2000, **20**(1): 8 ~ 13 (in Chinese)
- 7 Zhizhan Xu, Yingsong Wang, Kan Zhai *et al.*. Direct experimental evidence of influence of ionizations on high-order harmonic generation [J]. *Opt. Comm.*, 1998, **158**: 89 ~ 92
- 8 Yingsong Wang, Yaqing Liu, Xiaodong Yang *et al.*. Spectral splitting in high-order harmonic generation [J]. *Phys. Rev. A*, 2000, **62**(6): 063806-1 ~ 063806-4
- 9 J. Krause, K. J. Schafer, K. C. Kulander. High-order harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1992, **68**(24): 3535 ~ 3538
- 10 Britton Chang, P. R. Bolton, D. N. Fittinghoff *et al.*. Closed-form solutions for the production of ions in the collisionless ionization of gases by intense lasers [J]. *Phys. Rev. A*, 1993, **47**(5): 4193 ~ 4203
- 11 Chen Jianxin, Xia Yuanqin, Yao Qin *et al.*. High harmonic generation in N₂ using intense fs laser pulses [J]. *Acta Optica Sinica* (光学学报), 2002, **22**(6): 650 ~ 653 (in Chinese)
- 12 Wang Qi, Chen Jianxin, Chen Deying *et al.*. Study of high-order harmonic generation in Kr [J]. *Chinese J. Lasers* (中国激光), 2001, **A28**(9): 793 ~ 796 (in Chinese)
- 13 Peng Huimin, Wang Shiji, Qiu Yubo *et al.*. X-ray Lasers. Beijing: Defense Industry Publishing Company, 1997. 481 ~ 552 (in Chinese)