

文章编号: 0258-7025(2004)Supplement-0161-03

# 静态气体相位匹配高次谐波研究

谢新华, 曾志男, 李儒新, 陈 戌, 徐至展

(中国科学院上海光学精密机械研究所强光光学重点实验室, 上海 201800)

**摘要** 对低能量飞秒激光脉冲和静态氩气相互作用下产生相位匹配高次谐波进行了实验研究。在激光脉冲能量为 0.55 mJ 的情况下, 获得了转化效率  $1 \times 10^{-7}$  的相位匹配 27 次谐波。分析了高次谐波光谱在不同氩气压强下的蓝移和展宽特性。并且观察到高次谐波的源尺寸在相位匹配条件下明显增大现象。

**关键词** 非线性光学; 高次谐波; 相位匹配; 频谱特性; 空间分布

中图分类号 O437

文献标识码 A

## Phase-Matched High-Order Harmonic Generation in Static Gas

XIE Xin-hua, ZENG Zhi-nan, LI Ru-xin, CHEN Shu, XU Zhi-zhan

(Key Laboratory for High Intensity Optics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics,  
The Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

**Abstract** Phase-matched high-order harmonic generation in Ar gas-filled cell was investigated experimentally. The phase-matched 27th order harmonic driven by a commercially available solid-state femtosecond laser system at 0.55 mJ/pulse energy level and 1 kHz repetition rate was obtained. Spectral blueshift and broadening of high-order harmonics were analyzed. Moreover, the source size of high-order harmonic generation was enhanced under the phase-matching condition.

**Key words** nonlinear optics; high-order harmonic generation; phase-matched; spectral properties

当线偏振的超强超短激光脉冲和惰性气体相互作用时, 会产生波长在极紫外甚至软 X 射线范围的高次谐波<sup>[1,2]</sup>。因其易于在小型的实验台上产生, 而且相干性及方向性极好, 因此高次谐波产生相干短波光源极具发展前景。

### 1 实验装置

本文对低能量飞秒激光在氩气盒子中产生的高次谐波进行了实验研究。实验装置如图 1 所示, 主要由激光系统、聚焦光路、气体靶室和 X 射线谱仪<sup>[3]</sup>组成。实验中所用是商品化的小型飞秒激光系统 (Spectra Physics Splitfire 50 fs) 工作在波长 800 nm, 脉宽 50 fs, 单脉冲能量 0.55 mJ, 重复率 1 kHz。激光系统输出光斑大小为 7 mm 的高斯光束。用于过滤驱动激光的铝膜厚度为 600 nm。聚焦薄透镜焦距为 240 mm, 气体盒子的长度为 20 mm。X 射线谱仪在水平方向为空间分辨, 在垂直方向为频谱分辨。

由飞秒激光系统产生的激光脉冲经过透镜, 聚

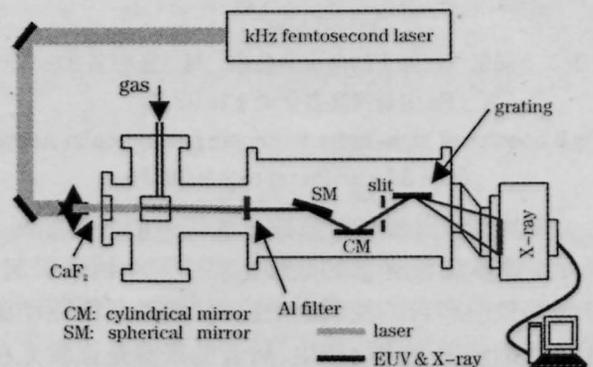


图 1 小型化气体高次谐波产生实验装置

Fig.1 Experimental setup of high-order harmonic generation in noble gas-filled cell

焦在靶室中固定的气体盒子内, 与惰性气体发生相互作用, 产生方向性极好的高次谐波辐射, 然后, 高次谐波穿过铝膜部分进入 X 射线谱仪, 而激光被铝膜完全挡掉, 最后, 高次谐波在光栅 (1200 线/mm) 的色散和前面球面镜及柱面镜的作用下, 通过调节 X 射线 CCD 的上下位置, 便可在监视器上观察到不

基金项目: 国家自然科学基金 (批准号: 69925513 和 19974058), 国家重点基础研究项目 (批准号: G1999075200) 资助课题。

作者简介: 谢新华 (1980-), 男, 中国科学院上海光学精密机械研究所硕士研究生, 主要从事超短激光脉冲与物质相互作用研究。Email: xiexh@siom.ac.cn

同级次的高次谐波图像。

### 2 分析和讨论

在氩气中获得了从 21 次 (38.1 nm) 到 33 次 (24.2 nm) 的高次谐波, CCD 上获得的图像如图 2 所示。实验测出了氩气气压由  $2.7 \times 10^3$  Pa 变化至  $2.1 \times 10^4$  Pa 的高次谐波谱, 图 3 所示为不同氩气压强下的高次谐波谱, 实验产生相位匹配 27 次 (29.6 nm) 和 29 次 (27.6 nm) 谐波的最佳压强分别约为  $7.3 \times 10^3$  Pa 和  $1.2 \times 10^4$  Pa。氩气气压为  $7.3 \times 10^3$  Pa 时, 27 次谐波获得了最高的强度, 对应转化效率为  $1 \times 10^{-7}$ 。

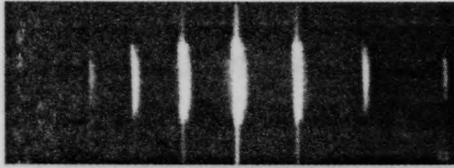


图 2 高次谐波在 CCD 上的图像

Fig.2 Image of high-order harmonics on the CCD plate

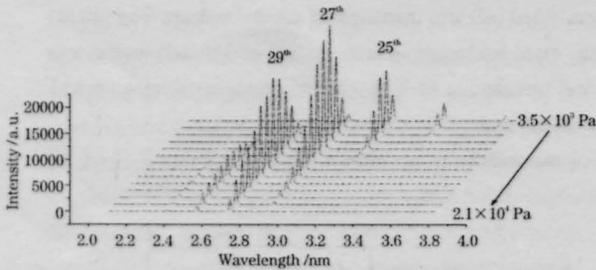


图 3 不同氩气压强下的高次谐波谱。氩气压强从  $3.5 \times 10^3$  Pa 由低到高变化到  $2.1 \times 10^4$  Pa

Fig.3 Spectra of high-order harmonic generation in Ar gas from  $3.5 \times 10^3$  Pa up to  $2.1 \times 10^4$  Pa

高次谐波光谱的蓝移随氩气压强的变化如图 4 所示。高次谐波光谱的蓝移主要由两个因素引起, 非绝热效应和自相位调制效应<sup>[6]</sup>。前者是因驱动激光电场的快速变化而产生, 后者的来源是强激光在电离介质中的传播效应。在实验中, 由于激光的功率密度远低于氩气饱和电离的功率密度, 所以高次谐波主要在激光脉冲的峰附近产生, 而激光电场在

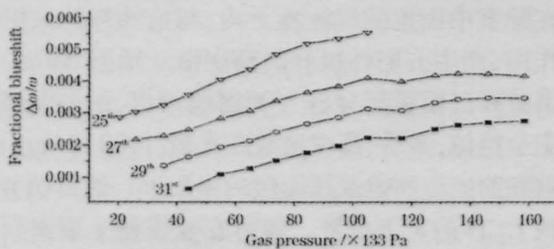


图 4 不同氩气压强下高次谐波光谱的相对蓝移

Fig.4 Spectral fractional blueshift of high-order harmonic generation in Ar gas

峰附近的变化很小, 从而可以忽略高次谐波因非绝热效应引起的光谱蓝移。由自相位调制引起的高次谐波光谱的相对蓝移量为<sup>[4]</sup>  $\frac{\Delta\omega}{\omega} = \frac{L_{med}}{2n_e c} \cdot \frac{dn_e}{dt}$  其中  $c$  为光速,  $n_{cr} = \frac{\epsilon_0 m_e \omega^2}{e^2}$  为等离子体临界密度,  $m_e$  为电子质量,  $\omega$  为激光频率,  $n_e$  为电离产生的自由电子数密度, 可由 ADK 公式<sup>[9]</sup>计算得到。所以对于  $q$  次谐波有  $\frac{\Delta\omega_q}{\omega_q} \propto \frac{n_e}{q^2}$ , 即光谱的相对蓝移量与  $q$  的平方成反比, 与自由电子数密度成正比。实验所得的变化趋势与之吻合。

高次谐波光谱的展宽随氩气压强的变化如图 5 所示。主要有两个因素对高次谐波光谱的宽度产生影响。其一, 由于自相位调制效应对驱动激光的光谱展宽; 其二, 来源于不同电子路径产生的高次谐波。对驱动激光, 由自相位调制引起的光谱的展宽相对量  $\frac{\Delta\omega}{\omega} = \frac{n_2 P_0}{c S \tau} L_{med}$ , 其中  $n_2, P_0, \tau$  分别是非线性折射系数、激光峰值功率和激光脉冲宽度,  $S$  为焦点的有效面积, 即能产生高次谐波的面积。因为产生不同级次的谐波所需的驱动激光临界功率密度不同, 所以焦点的有效面积对不同级次谐波不相同。级次越高, 有效面积就越小。从而在相同的实验条件下, 越高级次谐波的相对光谱展宽就越大。而  $n_2$  随气体压强增高而增大, 所以气体压强越高, 高次谐波的光谱展宽就越大。另一方面, 文献[5]指出, 高次谐波的产生在半个光周期内来自于不同的两个电子路径, 而且来源于不同路径的高次谐波的相位匹配条件不一样。在实验中, 当气体压强很低的时候, 由两个路径产生的高次谐波均未获得相位匹配, 所以高次谐波的光谱很宽。而因为来自长路径的高次谐波的相位变化比短路径的要大得多, 所以当气体压强增高到一定程度时, 只有短路径产生的高次谐波获得了相位匹配, 强度得到了很大的提高, 而长路径产生的高次谐波因其相位的变化无法实现相位匹配, 强度

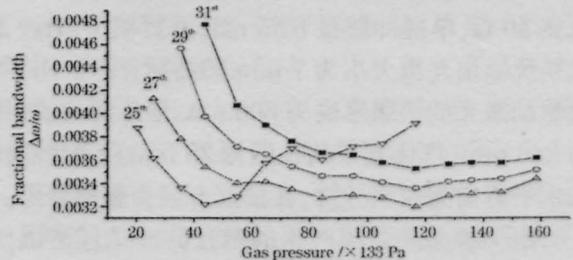


图 5 不同氩气压强下高次谐波光谱的相对展宽

Fig.5 Spectral fractional broadening of high-order harmonic generation in Ar gas

可以忽略,从而高次谐波的光谱展宽较气体压强低时小。而氩气压强达到一定程度时,由自相位调制效应产生的光谱展宽将起主导作用。正如实验结果所示,高次谐波的光谱展宽先变小,然后气体压强很高时,光谱展宽量随压强增高而变大。图5中25次谐波没有获得很好的相位匹配,所以变化比其他几个级次剧烈。

在实验中发现了相位匹配高次谐波的源尺寸

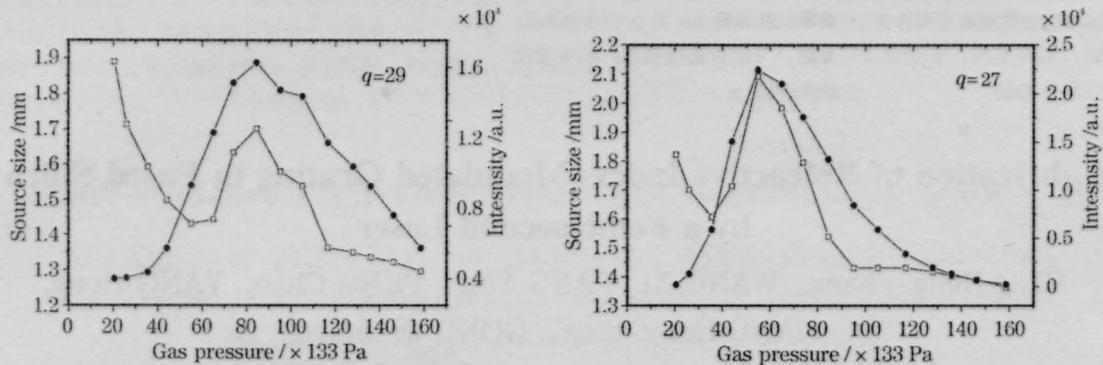


图6 27次和29次谐波源尺寸及强度随氩气压强的变化

Fig.6 Source sizes and intensities of the 27th and 29th order harmonic in different Ar gas density

实验中, CCD 表面的分布直接和高次谐波在气体盒子产生时的空间分布相关, 所以 CCD 上获得的尺寸大小变化反映了高次谐波的源尺寸变化。驱动激光的功率密度空间分布为高斯分布。在已知的实验中<sup>[7]</sup>, 高次谐波在 CCD 上的强度分布也是很好的高斯分布。然而, 如图7所示, 实验所得的相位匹配高次谐波的强度空间分布不是高斯分布, 而是平顶型。

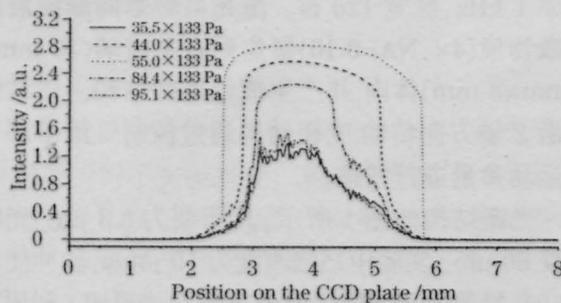


图7 不同氩气压强下27次谐波的强度在 CCD 上的空间分布

Fig.7 Spatial distribution of intensity of the 27th order harmonic generation in the CCD plate

因为高次谐波的产生对驱动激光的功率密度特别敏感<sup>[10]</sup>, 所以高次谐波强度的空间分布与驱动激光的功率密度分布紧密相关。在相同的气体压强下, 高次谐波的产生有一个最优化的驱动激光功率密度。因此, 当气体压强增高时, 在焦点中心产生的高

(在 CCD 上的半高全宽) 和非相位匹配情况不同。高次谐波源尺寸随氩气压强变化的曲线如图6所示, 在相位匹配情况下, 高次谐波的源尺寸增大了很多, 对27次和29次谐波的增大大约分别为30%和20%。图7所示为高次谐波在 CCD 表面的强度分布。由图中可以看出在非相位匹配的高次谐波源尺寸相对小, 而相位匹配的高次谐波源尺寸相对较大, 强度分布很光滑, 且有很陡峭的边缘。

次谐波将先获得相位匹配。而当气体压强继续增高时, 由焦点中心外环产生的高次谐波获得最佳的相位匹配, 而焦点中心已不具最佳的相位匹配条件。这样, 由外环产生的高次谐波强度的增加要比中心的大, 正如图7所示, 从而使得高次谐波的源尺寸变大。因此, 相位匹配高次谐波的强度空间分布将不再是高斯分布。

## 参考文献

- 1 T. Brabec, F. Krausz. Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics[J]. *Rev. Mod. Phys.*, 2000, **72**: 545-592
- 2 Ch. Spielmann, N. H. Burnett, S. Sartania *et al.*. Generation of coherent X-rays in the water window[J]. *Science*, 1997, **278**: 661-667
- 3 R. Li, P. Fan, Z. Xu *et al.*. J. Optics, Space resolved spectrograph for laser induced plasma diagnostic[J]. *Optics*, 1994, **25**: 143-150
- 4 H. J. Shin, D. G. Lee, Y. H. Cha *et al.*. Generation of nonadiabatic blueshift of high harmonics in an intense femtosecond laser field[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1999, **83**: 2544-2548
- 5 M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov *et al.*. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields [J]. *Phys. Rev. A*, 1994, **49**: 2117-2128
- 6 M. V. Ammosov, N. B. Delone, V. P. Krainov. Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field[J]. *Sov. Phys. JETP*, 1986, **64**: 1191
- 7 N. Milosevic, A. Scrinzi, T. Brabec. Numerical characterization of high harmonic attosecond pulses[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2002, **88**: 093905-093909