

采用多喷嘴阵列产生高亮度高次谐波

张路遥^{1,2}, 戴 晔¹, 郑颖辉^{2*}, 曾志男², 李儒新²

¹上海大学理学院, 上海 200444;

²中国科学院上海光学精密机械研究所强场激光物理国家重点实验室, 上海 201800

摘要 采用长焦距透镜与连续介质气体靶是目前高亮度高次谐波产生实验中谐波产率较高的方案, 在长焦距透镜方案中进一步探索使用准相位匹配技术, 有望在连续介质靶的基础上进一步提高高次谐波信号的强度。根据准相位匹配技术, 设计了一种多喷嘴阵列气体靶, 通过模拟计算的方法, 对比传统连续介质气体靶与多喷嘴气体靶这两种方案, 从理论上证实多喷嘴气体靶可以实现谐波信号强度的进一步提升。

关键词 超快光学; 高次谐波; 准相位匹配; 多喷嘴阵列

中图分类号 O437.1

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201744.1001002

Bright High-Order Harmonic Generation via Multi-Jet Arrays

Zhang Luyao^{1,2}, Dai Ye¹, Zheng Yinghui², Zeng Zhinan², Li Ruxin²

¹College of Science, Shanghai University, Shanghai 200444, China;

²State Key Laboratory of High Field Laser Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China

Abstract Combining a long-focus lens with a continuous medium gas target is a scheme with high conversion efficiency in high-order harmonic generation. The quasi-phase matching technique is applied to this scheme. It is expected to further improve high-order harmonic signal intensity. A multi-jet arrays gas target is applied to the generation of high-order harmonic, which is designed according to the quasi-phase matching technique. It is theoretically confirmed by numerical simulation that the multi-jet arrays gas target could improve the harmonic signal intensity compared with traditional continuous medium gas target.

Key words ultrafast optics; high-order harmonic; quasi-phase matching; multi-jet arrays

OCIS codes 320.7085; 270.6620; 190.2620

1 引 言

高次谐波是激光与物质的高度非线性作用产生的相干性极好的极紫外或 X 射线源^[1-3]。与其他极紫外光源(如自由电子激光器、X 射线激光器和同步加速轨道辐射)相比,高次谐波具有很好的方向性、相干性,超短脉冲持续时间和宽的可调谐等优良特性,可以应用于极紫外抽运光谱学^[4],阿秒脉冲的产生^[5],极紫外光刻技术^[6],以及作为自由电子激光器的种子光^[7]等。然而,高次谐波产生过程是高度非线性和非微扰的^[8],所以产生谐波的效率较低,这极大地限制了其应用,因此,增加高次谐波的转换效率和增强单脉冲能量是至关重要的。

收稿日期: 2017-05-02; **收到修改稿日期:** 2017-05-25

基金项目: 国家自然科学基金(11127901, 11227902, 11574332, 1151101142)、中国科学院战略性先导科技专项(XDB16)、中国科学院青年创新促进会(2011189)

作者简介: 张路遥(1992—),男,硕士研究生,主要从事高次谐波方面的研究。E-mail: shuzhangly@163.com

导师简介: 曾志男(1976—),男,研究员,博士生导师,主要从事高次谐波方面的研究。

E-mail: zhinan_zeng@mail.siom.ac.cn

* **通信联系人.** E-mail: yzheng@siom.ac.cn

在如何提高高次谐波的产生效率方面,国内外同行尝试了多种方法。Ditmire 等^[9]在实验中改变激光波长、聚焦条件和峰值激光强度等多个参数,在波长 20 nm 附近获得了能量为 60 nJ 的单个谐波,此时谐波产率为 10^{-7} 。Constant 等^[10]考虑到谐波产生过程中的再吸收现象,使用内壁光滑的毛细管波导,通过优化气压,使谐波产率提高至 4×10^{-5} 。Takahashi 等^[11-13]通过在相位匹配条件下使用焦距为 5 m 的松聚焦方法,可以尽可能地提高驱动激光能量,从而获得了较高的谐波能量。利用单脉冲能量为 20 mJ 的驱动激光与 10 cm 长氩气介质相互作用在 27 级次(29.6 nm)得到能量为 0.3 μJ 的软 X 射线辐射^[11],单脉冲能量为 16 mJ 的激光与 14 cm 长氩气介质相互作用在 13 级次(62 nm)得到了能量为 4.7 μJ 的谐波^[12],以及单脉冲能量为 50 mJ 激光与 5 cm 长氩气介质相互作用在 59 级次(13.5 nm)获得了能量为 25 nJ 的谐波^[13]。另外,毛细管波导也被应用于高次谐波准相位匹配实验中。Paul 等^[14]在高次谐波实验中使用内径调制周期为 1 mm,调制深度为 10%,共计 10 个周期充满氩气的毛细管波导,在 47 eV 附近谐波产率提升了 4 倍。Willner 等^[15]利用准相位匹配技术,在实验中使用 Ar 喷嘴与 H₂ 喷嘴交替阵列方案结合紧聚焦条件,将谐波产率提升了 3 倍。

随着高功率飞秒激光技术的发展,太瓦(TW, 10^{12} W)以及拍瓦(PW, 10^{15} W)激光^[16]系统的出现,采用长焦距松聚焦方式产生高亮度高次谐波是一种必然的趋势。本文通过理论模拟设计了一种多喷嘴阵列气体靶,提出在采取松聚焦条件下尽可能提高驱动激光能量的基础上,采用设计的多喷嘴阵列气体靶,优化阵列中各喷嘴的长度、气压和喷嘴间距等参数,实现准相位匹配,从而获得高亮度的高次谐波输出。与传统的连续介质气体靶相比,针对特定级次谐波(27 次)设计的多喷嘴阵列气体靶可以将谐波信号强度再进一步提高 3 倍。

2 基本原理

高次谐波的转换效率非常低,这主要是由于高次谐波的产生过程是高度非线性和非微扰的。此外,传播过程中的相位失配和介质对谐波的吸收也严重影响了谐波的产率。相位匹配技术和准相位匹配技术都可以用来减小相位失配对谐波产率的影响。

在高次谐波产生和传输过程中,当传输一定的介质长度且基频光与谐波的相位差达到 $\Delta\varphi = \pi$ 时,即达到相位匹配的极限,此时介质的长度称为相干长度 $L_c = \pi/\Delta k$,其中 $\Delta k = k_q - qk_f$ 是基频光与谐波的波矢 k 矢量失配, Δk 为对应的波数, q 为谐波的级次。基频光与谐波之间的相位失配主要有中性原子色散、等离子体色散、原子偶极相位引起的相位失配和几何相位引起的相位失配,这 4 项的相位失配表达式为

$$\Delta k = \frac{2\pi}{\lambda} q(1 - \eta)P \Delta n + P\eta N_{\text{atm}} r_e \lambda \left(\frac{1}{q} - q \right) + \alpha_j \frac{dU_p/\omega_1}{dz} + q \frac{2}{b[1 + (2z/b)^2]}, \quad (1)$$

式中 ω_1 为基频波的角频率, λ 为基频波的波长, η 为电离率, P 为气压(以标准大气压为单位,一个标准大气压等于 101325 Pa), Δn 为在一个大气压下由于中性原子色散导致的基频波与谐波的折射率之差, N_{atm} 为在一个大气压下的原子数密度, r_e 为经典电子半径, α_j 为相位系数, U_p 为自由电子在基频场中的有质动力势, b 为几何聚焦的共焦参数(即瑞利长度的两倍)。因为只有满足相位匹配条件时才能获得较好的谐波信号,故相位失配应尽可能小。这些影响相位失配的因素由气压、焦点与介质相对位置、聚焦后峰值功率等参数共同决定。因此在实验中需要综合考虑这些因素的影响,选择合适的实验条件来满足相位匹配条件。

当介质长度超过相干长度,由于相位失配的缘故,谐波信号开始下降。例如,激光脉冲在传输过程中出现的自散焦效应等造成的波面变化会引起相位失配,而毛细管波导效应则可以在一定程度上抵消自散焦引起的相位失配。选择不同半径的毛细管,调整介质气体压强就可以控制某些级次谐波的相位匹配^[17]。另外,克尔效应引起的自聚焦和电子的自散焦使得激光脉冲在传播过程中产生的自引导效应,可以消除自散焦效应,也可以实现相位匹配。与毛细管波导相同,自引导效应对相位匹配条件的控制可以简单地通过调节气体压强来实现。通过长焦距松聚焦方式,可以大幅度减小波面变化,从而在很长的介质内实现相位匹配。这是高功率飞秒激光产生高亮度高次谐波的重要方法。

此外,通过准相位匹配技术实现相位匹配也是提高高次谐波产率的重要方法。使用内径周期变化的毛细管对激光强度进行调制,可以实现准相位匹配^[14]。但是高强度的激光对毛细管的损伤导致毛细管准相位匹配方案的使用寿命很有限^[15]。基于高功率太瓦和拍瓦飞秒激光技术^[16]的发展,利用长焦距松聚焦方案

产生高次谐波已成为必然趋势。本文结合长焦距松聚焦方案和准相位匹配技术,采用自由传播的激光和多喷嘴阵列的方案,进一步提高高亮度高次谐波信号的强度,避免毛细管损坏等限制。

在定量层面上,模拟过程中只有考虑到高次谐波产生过程中的电离、谐波产生、吸收、传播等情况,才最接近实际情况。这需要同时求解激光脉冲和高次谐波脉冲的传播方程,以及精确计算高次谐波的微观偶极矩。模拟中使用的程序根据文献[18]给出的脉冲传播的三维方程编写。1994年 Shkolnikov 等^[19]在理论上得出通过对相互作用介质密度进行周期性调制可以实现准相位匹配的结论。本文通过设计多喷嘴阵列气体靶,对相互作用区域介质密度进行调制,从而实现准相位匹配。

图 1 为设计的多喷嘴阵列气体靶示意图。本文探索两种不同的气流控制方案,分别是等压多喷嘴阵列气体靶和不等压多喷嘴阵列气体靶。

1) 等压多喷嘴阵列气体靶。多个大小一致的喷嘴整齐排列,喷嘴内径与相邻喷嘴之间的间隔相等。将所有喷嘴连接至同一个进气阀,则每一个喷嘴出射相同的气压,从而实现介质气体密度周期性变化。但介质对于基频光的非线性作用,导致在传播方向上的激光强度逐渐减弱,相位匹配条件不是常数,进而限制了多喷嘴方案中喷嘴的数目。

2) 不等压多喷嘴阵列气体靶。每一个喷嘴单独连接一个进气阀,第一个喷嘴气压固定,从第二个喷嘴开始,比较不同气压下谐波信号的强度,选取最优化的信号强度对应的气压,依次确定之后的每一个喷嘴气压。

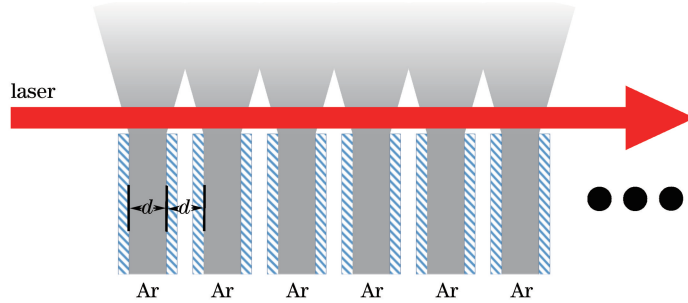


图 1 多喷嘴阵列气体靶
Fig. 1 Multi-jet arrays gas target

3 模拟结果及讨论

理论模拟使用脉宽为 25 fs 的激光,中心波长为 800 nm,峰值光强为 $2.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$,聚焦后焦斑的直径为 500 μm ,由此可以计算出单脉冲能量为 9.8 mJ。模拟中焦点位于气体靶中心位置之前 5 mm。模拟时采用了 3 种不同的气体靶:

1) 传统连续介质气体靶,气压为 13.3 kPa,长度为 12 mm,以此气体靶为基准来比较多喷嘴阵列气体靶对谐波信号强度的提升;

2) 等压多喷嘴阵列气体靶,在实验过程中,任意改变喷嘴间隔和内径非常困难,能够精确优化的是气压和激光脉冲的光强、焦点位置等,所以在实验过程中通过数值模拟难以精确地优化喷嘴间隔、内径等参数。最终确定的喷嘴参数为:喷嘴内径为 0.5 mm,喷嘴间隔为 1 mm,共计 12 个喷嘴,气压为 13.3 kPa;

3) 不等气压多喷嘴阵列气体靶,在等压多喷嘴阵列气体靶的基础上改变气压,第一个喷嘴气压为 13.3 kPa,其后的每个喷嘴气压均根据前一个喷嘴的优化结果代入来获得,最终获得的各个喷嘴的气压分别为 13.3,18.1,12.5,3.2,1.3,18.1,18.1,18.1,18.1,18.1,18.1,18.1 kPa。

27 级次的谐波模拟结果如图 2 所示。蓝色(圆形)、红色(三角形)和绿色(菱形)曲线分别表示传统连续介质气体靶、12 个等压喷嘴气体靶和 12 个不等气压气体靶中 27 级次谐波信号强度随传播距离的变化趋势。由模拟结果可得,等压多喷嘴气体靶相对于传统连续靶谐波信号强度提升约 2 倍。在不等气压气体靶的模拟中,根据 27 级次谐波信号的强度来优化各个喷嘴的气压,可以使谐波信号强度进一步提升。

图 3 表示 3 种不同气体靶在传播 12 mm 距离后最终产生的谐波谱图。蓝色(圆形)、红色(三角形)和绿色(菱形)曲线分别表示传统连续介质气体靶、12 个等压喷嘴气体靶和 12 个不等气压气体靶中获得的最终

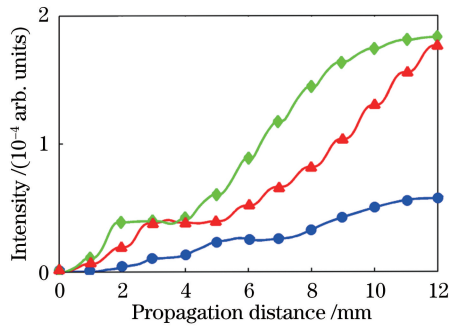


图 2 3 种不同气体靶情况下 27 次谐波信号的强度随传播距离的变化

Fig. 2 27th harmonic intensity in the case of three different gas targets versus propagation distance

谐波谱图。从图 3 可以看到,针对 27 次谐波,等压和不等压多喷嘴阵列气体靶产生的谐波信号强度几乎相同,均为连续介质气体靶产生的谐波信号强度的 3 倍。针对 29 次谐波,等压多喷嘴阵列气体靶产生的谐波信号强度是连续介质气体靶的 2.2 倍,而不等压多喷嘴阵列气体靶产生的谐波信号强度却只是连续介质气体靶的 1.7 倍。另外,从整体谐波谱上看,对于连续介质气体靶,谐波能量集中在 31 级次附近,并且 31 次与相邻级次(33 次)谐波信号的强度比为 1.3,而多喷嘴阵列气体靶通过准相位匹配,将能量优化集中到了 27 和 29 级次,比如等压多喷嘴阵列气体靶,27 和 29 次与相邻级次(31 次)谐波信号的强度比为 3.2。这说明采用多喷嘴阵列气体靶,相比传统连续介质气体靶,不仅可以提高谐波信号强度,还可以通过优化的相位匹配选择某一两个级次的谐波,从而实现高亮度的单色高次谐波相干光源。

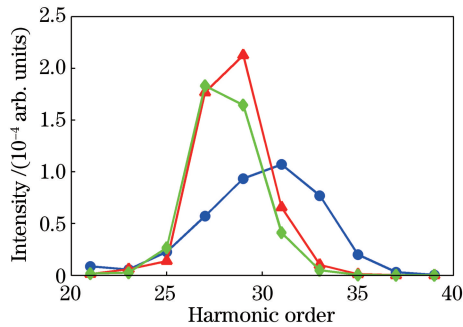


图 3 3 种不同气体靶在传播 12 mm 距离后的模拟谐波谱图

Fig. 3 Simulated harmonic spectra with three different gas targets at 12 mm propagation distance

该方案结合长聚焦透镜方案,可以允许更高的驱动激光能量,在传统的连续介质气体靶基础上谐波的输出能量提高了 2 倍左右。这对于高亮度的谐波辐射来说已经有很可观的提升。例如,针对 27 次(29.6 nm)的谐波,目前已利用 5 m 的长焦距透镜、20 mJ 的驱动激光实现 0.3 μ J 的谐波输出^[11],如果采用本文设计的多喷嘴阵列气体靶,其谐波能量可进一步提升 2 倍,这意味着 30 nm 的谐波辐射进入微焦量级,将满足具有时间分辨的相干 X 射线衍射成像等诸多应用中的需求。另外,随着精密机械加工和 3D 打印技术的发展,加工这种多喷嘴阵列的气体靶已成为可能,且该方案简单可靠,易实现。

4 结 论

通过理论模拟设计了一种多喷嘴阵列气体靶,在采取松聚焦条件下尽可能提高驱动激光能量的基础上,采用多喷嘴阵列气体靶,优化阵列中各喷嘴的长度、气压和喷嘴间距等参数,实现准相位匹配,得到的谐波信号强度比传统的连续介质气体靶提升了 2 倍,从而获得高亮度的高次谐波输出。据报道松聚焦和连续介质气体靶的方案已获得了较好的谐波信号强度,将多喷嘴阵列气体靶应用于松聚焦条件下可进一步提升谐波信号强度,这使高次谐波满足更多的应用需求。

参 考 文 献

- [1] Ditmire T, Gumbrell E T, Smith R A, *et al.* Spatial coherence measurement of soft X-ray radiation produced by high order harmonic generation[J]. *Physical Review Letters*, 1996, 77(23): 4756-4759.
- [2] Bellini M, Lynga C, Tozzi A, *et al.* Temporal coherence of ultrashort high-order harmonic pulses[J]. *Physical Review Letters*, 1998, 81(2): 297-300.
- [3] Salieres P, L' Huillier A, Lewenstein M. Coherence control of high-order harmonics [J]. *Physical Review Letters*, 1995, 74(19): 3776-3779.
- [4] Ishikawa K, Midorikawa K. Two-photon ionization of He^+ as a nonlinear optical effect in the soft-X-ray region[J]. *Physical Review A*, 2002, 65(4): 043405.
- [5] Mairesse Y, De Bohan A, Frasinski L J, *et al.* Attosecond synchronization of high-harmonic soft X-rays[J]. *Science*, 2003, 302(5650):1540-1543.
- [6] Krasnoperova A A, Rippstein R, Flamholz A, *et al.* Imaging capabilities of proximity X-ray lithography at 70 nm ground rules[C]. *SPIE*, 1999, 3676: 24-39.
- [7] Zeitoun P, Faivre G, Sebban S, *et al.* A high-intensity highly coherent soft X-ray femtosecond laser seeded by a high harmonic beam[J]. *Nature*, 2004, 431(7007): 426-429.
- [8] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, *et al.* Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields[J]. *Physical Review A*, 1994, 49(3): 2117-2132.
- [9] Ditmire T, Crane J K, Nguyen H, *et al.* Energy-yield and conversion-efficiency measurements of high-order harmonic radiation[J]. *Physical Review A*, 1995, 51(2): R902-R905.
- [10] Constant E, Garzella D, Breger P, *et al.* Optimizing high harmonic generation in absorbing gases: Model and experiment[J]. *Physical Review Letters*, 1999, 82(8): 1668-1671.
- [11] Takahashi E, Nabekawa Y, Otsuka T, *et al.* Generation of highly coherent submicrojoule soft X rays by high-order harmonics[J]. *Physical Review A*, 2002, 66(2): 021802.
- [12] Takahashi E, Nabekawa Y, Midorikawa K. Generation of 10- μJ coherent extreme-ultraviolet light by use of high-order harmonics[J]. *Optics Letters*, 2002, 27(21): 1920-1922.
- [13] Takahashi EJ, Nabekawa Y, Midorikawa K. Low-divergence coherent soft X-ray source at 13 nm by high-order harmonics[J]. *Applied Physics Letters*, 2004, 84(1): 4-6.
- [14] Paul A, Bartels R A, Tobey R, *et al.* Quasi-phase-matched generation of coherent extreme-ultraviolet light [J]. *Nature*, 2003, 421(6918): 51-54.
- [15] Willner A, Tavella F, Yeung M, *et al.* Coherent control of high harmonic generation via dual-gas multijet arrays[J]. *Physical Review Letters*, 2011, 107(17): 175002.
- [16] Chu Y, Liang X, Yu L, *et al.* High-contrast 2.0 petawatt Ti:sapphire laser system[J]. *Optics Express*, 2013, 21(24): 29231-29239.
- [17] Monot P, Auguste T, Lompré L A, *et al.* Focusing limits of a terawatt laser in an underdense plasma[J]. *Journal of the Optical Society of America B-Optical Physics*, 1992, 9(9): 1579-1584.
- [18] Milosevic N, Scrinzi A, Brabec T. Numerical characterization of high harmonic attosecond pulses[J]. *Physical Review Letters*, 2002, 88(9): 093905.
- [19] Shkolnikov P L, Lago A, Kaplan A E. Optimal quasi-phase-matching for high-order harmonic generation in gases and plasma[J]. *Physical Review A*, 1994, 50(6): R4461-R4464.