

# 强场高次谐波辐射过程中的相位匹配\*

王迎松 徐至展 刘亚青 翟 侃 李学信 杨晓东 张正泉 张文琦

(中国科学院上海光学精密机械研究所强光光学开放研究实验室, 上海 201800)

**摘 要** 从实验上定性地研究了强场谐波辐射过程中位相匹配的作用与影响, 主要通过改变气体密度、激光强度和光束的共焦参数来研究相位匹配对高次谐波辐射的影响。从改善高次谐波辐射过程中的相位匹配来考虑, 气体密度和激光强度都有一最佳值。利用大的共焦参数, 可以明显改善相位匹配, 提高谐波输出的转换效率。

**关键词** 高次谐波, 相位匹配, 转换效率。

## 1 引 言

近几年来, 由于超短超强激光技术的飞速发展<sup>[1]</sup>, 谐波辐射的研究已经发生了质的飞跃<sup>[2]</sup>。现在, 聚焦后的激光功率密度已达到甚至超过  $10^{15} \text{ W/cm}^2$ , 甚至达到或超过了原子内部的库仑场强, 为研究超强激光场中原子的非微扰行为提供了强有力的技术手段。目前, 利用超短超强激光脉冲与原子气体相互作用产生高次谐波辐射的理论研究和实验研究正在受到人们的广泛关注<sup>[2]</sup>, 因为, 高次谐波的产生是获得相干的极紫外(XUV)和 X 射线辐射的主要途径, 也是最有前途的途径之一。

获得更短波长的谐波和提高谐波的转换效率是目前高次谐波研究的主要方向。鉴于目前产生高次谐波辐射的效率很低(在 10 nm 量级, 仅为  $10^{-11} \sim 10^{-9}$ ), 要想使高次谐波辐射的研究走向实用化, 提高谐波的转换效率就显得尤为重要。而相位匹配这一因素直接影响谐波辐射的能量转换效率与谐波场的时间特性和空间特性<sup>[2-7]</sup>。如果能够实现平台区内各级次谐波的相位同步, 将大大有利于人们获得相干亚飞秒脉冲<sup>[8]</sup>这一梦想的实现。本文主要从实验上定性地研究了相位匹配对高次谐波产生的影响。

## 2 相位匹配的基本理论

强场高次谐波的产生可以从两个方面来考虑: 一是单个原子对超短超强激光场的响应, 它决定了高次谐波辐射谱的基本特征(如高次谐波谱中平台区的出现), 人们提出的许多关于单原子响应的理论模型<sup>[9, 10]</sup>, 都与实验观察到的现象符合得很好; 二是宏观介质的集体效应对谐波场输出的影响, 也就是相位匹配因素的影响。为了在高次谐波产生过程中能尽量多地

\* 中国科学院“九五”基础性研究重大项目。

收稿日期: 1998-08-25

把驱动场的能量耦合到谐波场中去,就必须尽可能地减小驱动场与谐波场之间的相位差。从本质上讲,造成相位失配的原因有两个<sup>[3]</sup>:一是宏观介质的色散,主要是介质电离产生的自由电子引起的色散(对不同级次的谐波,介质的折射率不同,从而造成相位的变化不一致);二是激光光束的几何聚焦造成的作用区域激光能量分布的不均匀,这也会导致附加的相位失配。

第  $q$  次谐波辐射的相位失配<sup>[2]</sup>

$$\Delta k_q = \Delta k_q^e + \Delta k_q^f, \quad (1)$$

其中,  $\Delta k_q^e = \frac{\omega_p^2(q^2 - 1)}{2q\omega c}$  为自由电子引起的相位失配。 $\omega_p = \sqrt{\frac{4\pi e^2 N_e}{m_e}}$  为等离子频率,  $\omega$  为入射基频激光的频率,  $c$  为真空中的光速,  $e$  为电子电荷,  $N_e$  为电子密度,  $m_e$  为电子质量。一般说来  $q^2 \gg 1$ , 因此不难得到

$$\Delta k_q^e = \frac{2\pi e^2 N_e q}{m_e \omega c}, \quad (2)$$

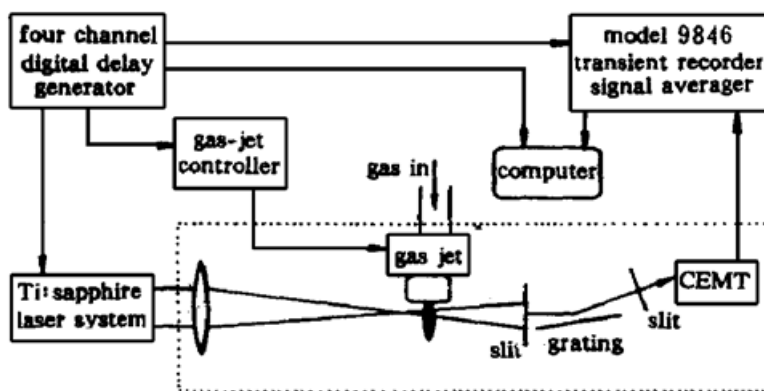
$$\Delta k_q^f = \frac{2(q - 1)}{b}. \quad (3)$$

这里  $\Delta k_q^f$  为光束的几何聚焦造成的相位失配,  $b$  为光束的共焦参数。由此可见,相位失配是随着谐波的级次线性递增的。这也是难以观察到较高级次谐波的一个重要原因。从(2)式还可以看出,用较高频率的激光作为驱动场,有利于改善相位匹配。

必须指出的是,在整个实验过程当中,气体靶位于激光焦点后的 3 mm 处,而并不是焦点处,这也正是从改善谐波产生过程中的相位匹配这一角度考虑的。关于焦点与气体靶的相对位置对谐波辐射的影响,我们做过简单的实验,发现当激光的焦点位于气体靶前约 3 mm 处时,所产生的谐波信号较强,这与其他实验小组报道的结果<sup>[3]</sup>是完全一致的。

### 3 实验装置

实验是在本实验室的 45 fs-2 TW ( $10^{12}$  W) 钛宝石激光装置<sup>[11]</sup>上进行的。整个实验系统由



钛宝石激光装置、真空系统、脉冲气体阀、单色仪、通道电子倍增管和数据采集系统组成,如图 1 所示。其中,45 fs-2 TW 激光装置基本参数为:光束直径 50 mm、脉冲能量 120 mJ、脉冲重复频率 10 Hz、中心波长 785 nm、线宽 18 nm、脉冲宽度 43.5 fs。实验过程中所用的激光脉冲能量为 10~60 mJ。所用的聚焦透镜的焦距  $f = 500$  mm,其孔径为 50 mm。光轴到气体喷嘴口的距离为 2 mm,焦点位于喷嘴中心前 3 mm 处。用 CCD 探测器测得焦点处的光斑尺寸为  $150 \mu\text{m}$ ,激光强度为  $10^{14} \sim 10^{16} \text{ W/cm}^2$ 。光栅是 300 l/mm 和 1200 l/mm 的镀金掠入射反射式光栅。

Fig. 1 Typical experimental setup for high-harmonic generation (HHG). All of the components within the dashed frame are localized in the vacuum chamber

尺寸为  $150 \mu\text{m}$ ,激光强度为  $10^{14} \sim 10^{16} \text{ W/cm}^2$ 。光栅是 300 l/mm 和 1200 l/mm 的镀金掠入射反射式光栅。

## 4 实验结果与分析

### 4.1 气体密度对相位匹配的影响

以氩气为非线性工作介质, 在保持入射激光能量(激光强度)和其他条件不变的情况下, 对不同背景气压(亦即不同的气体密度)下的高次谐波辐射进行了研究。图 2 是当激光能量为 15 mJ, 背景气压分别为 0.15 MPa、0.25 MPa、0.35 MPa 和 0.50 MPa 时测得的高次谐波辐射谱(谐波信号是用 Boxcar 门积分器记录的, 难以观察到较高级次的谐波辐射)。

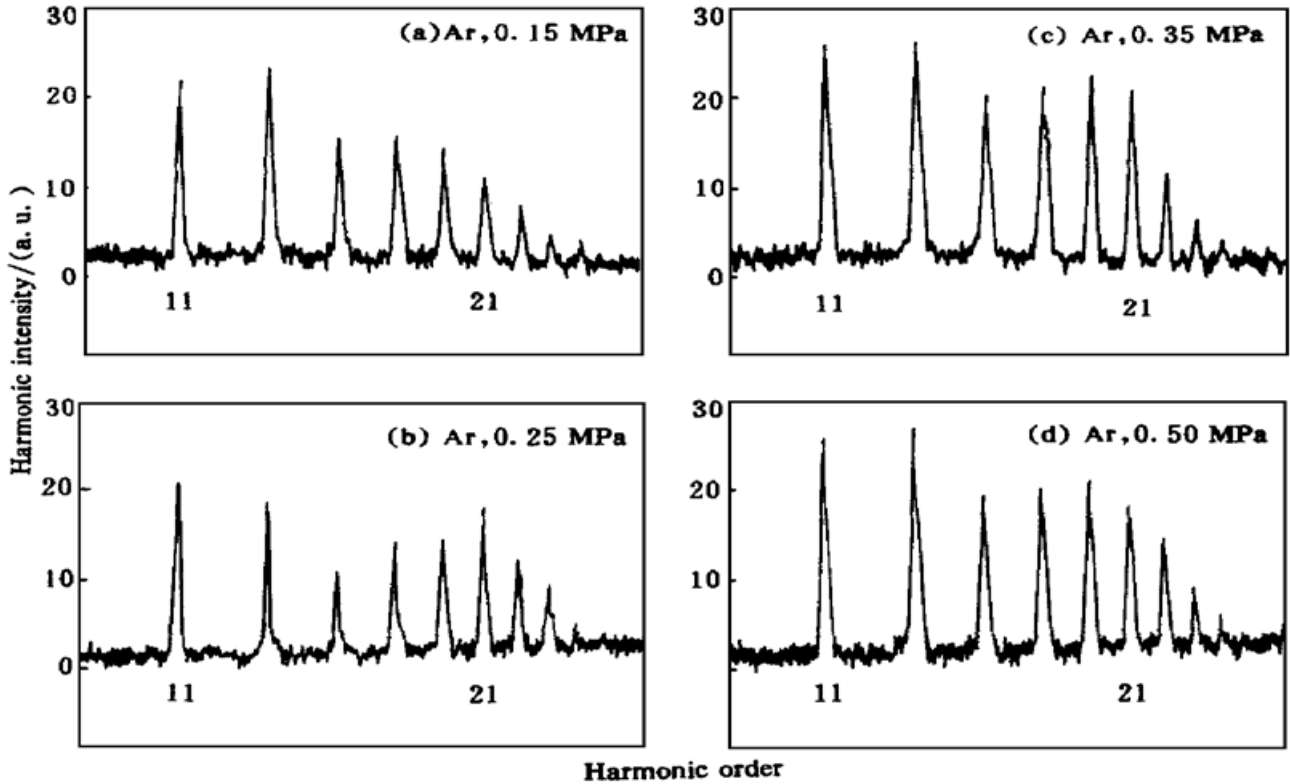


Fig. 2 Harmonic spectra observed in Ar at different backing pressures with 15 mJ incident laser pulse energy. Backing pressure is (a) 0.15 MPa; (b) 0.25 MPa; (c) 0.35 MPa and (d) 0.50 MPa, respectively

从图 2 可以看出, 在激光强度和其他条件不变的情况下, 气体密度的变化对高次谐波辐射信号的影响不大。主要原因是, 在实验过程中, 气压的变化范围不够大, 以致没有观察到谐波辐射对气体密度的明显的依赖关系。高次谐波辐射是一个相干辐射过程, 其辐射的第  $q$  阶谐波场的强度  $I_q$  与参与作用的粒子数密度的平方成正比<sup>[2]</sup>:

$$I_q \propto |N^{(q)} \chi|^2 I_1 |L|^2 |F_q|^2, \quad (4)$$

式中,  $N$  为粒子数密度,  $\chi^{(q)}$  为  $q$  阶非线性极化率密度,  $I_1$  为驱动场的强度,  $L$  为有效作用区间长度,  $|F_q|$  为相位匹配因子。由(4)式可以看出, 当相位匹配因子  $|F_q| = 1$  时, 也就是完全实现相位匹配时, 谐波强度与粒子数密度的平方成正比。但由于相位失配的存在, 而且相位匹配因子与粒子数密度有关, 使得谐波强度与粒子数密度的关系复杂化。再者, 粒子数密度越大, 工作介质就越容易电离, 这样会造成两个不利的后果: 一是自由电子的增加, 引起附加的相位失配, 从(2)式可以看出, 自由电子引起的相位失配与自由电子的粒子数密度是成正比的; 二是会对入射的驱动场和产生的谐波场造成散射, 使真正参与谐波产生的粒子数并没有得到明显增加。因此在某一激光强度范围内, 气体密度有一个最佳值。从实验角度来考虑, 过高的背景气压对真空系统造成很大的负担, 因此以后的实验都是在背景气压为 0.2~

0.25 MPa的条件下进行的。

#### 4.2 激光强度对相位匹配的影响

在激光与惰性气体相互作用的过程中,只有在激光强度足够高时才会有明显的谐波辐射现象,一般来说,谐波辐射的强度会随着激光能量的增加而增加,并且较高级次的谐波只有在较高的激光强度下才能获得。

但这是不是说明,只要激光强度足够高,就可以获得足够强的高次谐波输出呢?为此,以氖气为非线性工作介质,对不同激光强度下的高次谐波辐射进行了研究。不同激光强度下氖气的高次谐波辐射谱如图3所示,所用的激光脉冲能量分别为30 mJ、45 mJ和57 mJ。

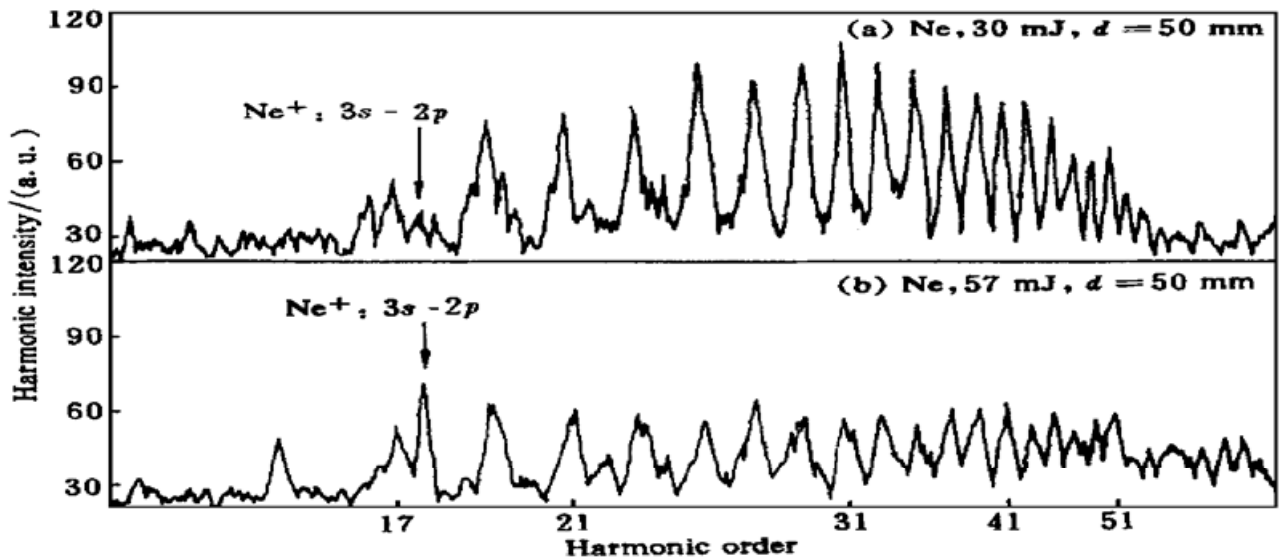


Fig. 3 Harmonic spectra observed in Ne with different laser energy, (a) 30 mJ and (b) 57 mJ. The backing pressure is 0.2 Mpa

从图3可看出:激光强度越高,  $\text{Ne}^+ \cdot 3S-2P$  线越强,谐波辐射信号就越弱。 $\text{Ne}^+ \cdot 3S-2P$  线的强度与  $\text{Ne}^+$  的粒子数密度成正比。因此,  $\text{Ne}^+ \cdot 3S-2P$  线越强,就意味着激光使 Ne 原子电离产生的自由电子粒子数密度越大。这说明,激光强度过高,对高次谐波辐射是不利的。从(2)式可知,自由电子引起的相位失配与自由电子的粒子数密度成正比。激光强度超过一定范围时,激光强度越高,会使工作介质电离得越充分,产生的自由电子就会越多,这对高次谐波辐射过程中的相位匹配是极为不利的。

不难看到激光强度对高次谐波辐射的影响:增加激光强度对获得更高级次谐波输出是有利的,并且在某一强度范围内会提高输出谐波场的强度;激光强度的增加对相位匹配的改善和转换效率的提高不利。原因在于:激光强度越高,气体就越容易电离,产生的自由电子就会越多。而自由电子一旦增多,会直接导致严重的相位失配,谐波辐射的转换效率就大大降低。从这一角度来看,在高次谐波产生过程中,提高谐波级次与提高谐波输出的能量转换效率是相矛盾的。此外,气体介质电离产生的自由电子会造成入射基频激光束的散焦,降低激光的峰值强度,使得真正参与谐波辐射的激光强度并没有得到相应提高<sup>[7]</sup>。电离还会造成用于产生谐波信号的介质损耗,不仅使得参与谐波辐射的原子粒子数密度降低,也会使得真正参与谐波辐射的激光强度无法达到其峰值强度,这都会导致所产生的谐波信号强度的降低。

#### 4.3 共焦参数对相位匹配的影响

由光束的几何聚焦引起的相位失配由(3)式确定。共焦参数  $b$  越大,  $\Delta k'_q$  就越小,即弱聚焦(亦即大的共焦参数)条件会大大改善高次谐波产生过程中的相位匹配。如果光束是近衍射极

限的, 那么光束聚焦后的焦斑尺寸  $w_0$  与所用透镜的焦距  $f$  和光束的直径  $d$  有如下关系:  $w_0 \propto f/d$ , 而  $b \propto \omega^2/\lambda$ , 所以采用长焦距透镜或限制入射光束的尺寸, 可以获得大的共焦参数。如果光束是非衍射极限的, 聚焦后的焦斑尺寸对入射光束孔径的变化并不敏感, 可以近似地认为焦斑尺寸是不变的(对同一聚焦透镜)。但仍然可以通过减小入射光束的孔径来增大共焦参数, 从而改善相位匹配, 提高高次谐波辐射的能量转换效率。如图 4 所示, 假设在改变入射光束的孔径时, 焦点处的光斑大小保持不变, 根据光束共焦参数的定义<sup>[2]</sup>, 当入射光束的孔径由  $d_0$  减小到  $d_1$  时, 共焦参数相应地由  $b_0$  增大到  $b_1$ 。我们以氖气为非线性工作介质, 保持背景气压为 0.2 MPa, 分别用直径为 20 mm 和 30 mm 的光阑插入光路中, 并改变激光的能量, 使得通过两种光阑的能量均为 30 mJ。观察到的高次谐波辐射谱如图 5 所示。

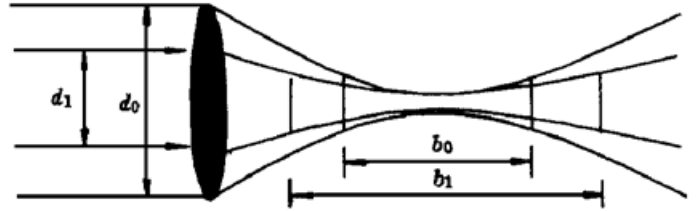


Fig. 4 The variation of confocal parameter with the incident laser beam diameter of non-diffraction limited

可以看出, 入射光束孔径越小, 产生的谐波场的强度越大, 相位匹配得到了明显的改善。这说明, 利用弱聚焦条件(亦即大的共焦参数)可以明显改善高次谐波辐射过程中的相位匹配。

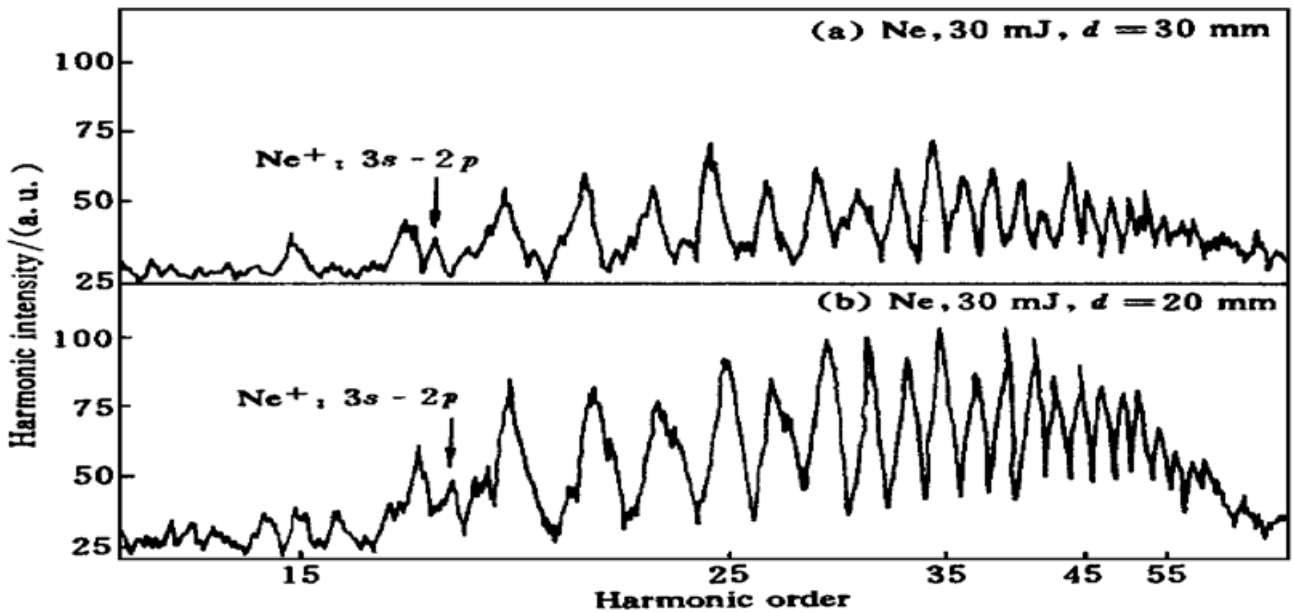


Fig. 5 Harmonic spectra observed in Ne with different laser beam diameter, (a) 30 mm and (b) 20 mm. The backing pressure is 0.2 MPa

## 5 讨 论

由(2)式和(3)式, 可以看出:

- 1) 当共焦参数足够大时, 相位失配主要来源于介质电离产生的自由电子的影响;
- 2) 用较高频率的激光有利于削弱介质电离对相位匹配的不利影响, 这也是利用近紫外激光(如 248 nm KrF 激光)来产生高次谐波可以获得较高转换效率的重要原因;
- 3) 为获得更高级次(更短波长)的谐波辐射, 不得不以牺牲能量转换效率作为代价。高次谐波辐射的截止频率  $\nu_c$  由下式决定<sup>[2]</sup>:

$$h\nu_c = I_p + 3.17U_p, \quad (5)$$

其中,  $I_p$  为原子的电离势,  $U_p = I/4\omega^2$  为自由电子在激光场中的有质动力能,  $I$  为激光场的强度,  $\omega$  为激光场的圆频率。从(5)式可知, 截止频率与所用的激光强度成正比, 与激光频率的平方成反比。而由前面实验结果得知, 过高的激光强度和过低的激光频率对相位匹配的改善是不利的。由于对于同一种元素, 离子进一步电离的电离势要比中性原子的一阶电离势高得多, 于是可以利用介质电离产生的离子来获得更高级次的谐波, 并且我们在实验上已经观察到了这一现象(将另文报道)。这时, 自由电子导致的相位失配占主导地位, 光束的几何聚焦造成的相位失配可以忽略不计; 但由于介质电离产生的自由电子密度有限, 因此仍然可以观察到离子产生的谐波辐射。

**结 论** 1) 谐波场的强度与气体密度(或参与作用的粒子数密度)的关系不是线性的, 气体密度存在一最佳值; 2) 从改善相位匹配的角度出发, 为获得较高的能量转换效率, 激光强度不宜过高, 但若是为了获得更高的截止频率, 则另当别论; 3) 高次谐波实验在弱聚焦(大的共焦参数)条件下进行会明显改善相位匹配, 提高能量转换效率; 4) 利用较高频率的激光代替低频率激光与气体相互作用, 也可以使相位匹配得到改善, 获得较高强度的高次谐波。

近年来, 人们在理论和实验研究上都发现, 利用双色场来产生高次谐波<sup>[2, 12, 13]</sup>, 可以明显提高谐波的转换效率, 其根本原因正是在于利用双色场可以大大改善谐波产生过程中的相位匹配。

在整个实验过程中, 得到了王文耀、江云华、陆海鹤和印定军等的大力协助, 作者在此表示衷心的感谢。

### 参 考 文 献

- [1] Perry M D, Mourou G. Terawatt to petawatt subpicosecond lasers. *Science*, 1994, **264**(5161): 917~924
- [2] Protopapas M, Keitel C H, Knight P L. Atomic physics with super intensity lasers. *Rep. Prog. Phys.*, 1997, **60**(4): 389~486
- [3] Balcou Ph, L'Huillier A. Phase-matching effects in strong field harmonic generation. *Phys. Rev. (A)*, 1993, **47**(2): 1447~1459
- [4] L'Huillier A, Schafer K J, Kulander K C. High-order harmonic generation in xenon at 1064 nm: the role of phase matching. *Phys. Rev. Lett.*, 1991, **66**(17): 2200~2203
- [5] Salieres P, L'Huillier A, Lewenstein M. Coherence control of high-order harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 1995, **74**(19): 3776~3779
- [6] Peatross J, Meyerhofer D D. Intensity-dependent atomic-phase effects in high-order harmonic generation. *Phys. Rev. (A)*, 1995, **52**(5): 3976~3987
- [7] Kenzo Miyazaki, Kideyuki Takada. High-order harmonic generation in the tunneling regime. *Phys. Rev. (A)*, 1995, **52**(4): 3007~3021
- [8] Antoine Ph, Milosevic D B, L'Huillier A *et al.*. Generation of attosecond pulses in macroscopic media. *Phys. Rev. (A)*, 1997, **56**(6): 4960~4969
- [9] Burke Ritchie. Semiclassical theory of strong-field harmonic generation. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1991, **8**(12): 2493~2496
- [10] Kulander K C, Shore B W. Generation of optical harmonic by intense pulse of laser radiation. *J. Opt.*

*Soc. Am. (B)*, 1990, 7(4) : 502~ 508

- [11] 徐至展, Vigroux L, Saviot F 等. 输出 2 TW/45 fs 的掺钛蓝宝石超短脉冲强激光系统. 中国科学(A 辑), 1997, 27(7) : 640~ 645
- [12] Perry M D, Crane J K. High-order harmonic emission from mixed fields. *Phys. Rev. (A)*, 1993, 48(6) : R4051~ R4054
- [13] Watanabe S, Kondo K, Nabekawa Y *et al.*. Two-color phase control in tunneling ionization and harmonic generation by a strong laser field and its third harmonic. *Phys. Rev. Lett.*, 1994, 73(20) : 2692~ 2695

## Phase-Matching Effect in High-Order Harmonic Generation

Wang Yingsong    Xu Zhizhan    Liu Yaqing    Zhai Kan    Li Xuexin  
Yang Xiaodong    Zhang Zhengquan    Zhang Wenqi

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

(Received 25 August 1998)

**Abstract** The phase-matching effect on high-order harmonic generation was studied by using a 45 fs-2 TW Ti:sapphire laser pulses, especially the effect of gas density, laser intensity and confocal parameter. It is found that there are an optimal gas density and an optimal laser intensity with regards to the improvement of phase-matching. The weak focusing geometry is more favorable for higher conversion efficiency than the tight one.

**Key words** high-order harmonic generation, phase matching, conversion efficiency.