

氩气中高次谐波辐射的研究

刘亚青 徐至展 翟 侃 李学信 王迎松 宋向阳 张文琦 张正泉

(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 报道了在 45 fs-2 TW 激光装置上以 Ar 惰性气体为介质产生高次谐波的实验结果。实验中通过研究气体密度和激光能量对谐波辐射的影响, 找到了适当的气体密度和激光能量范围, 并在 Ar 气中观察到 81 次(9.7 nm)的谐波辐射, 这是迄今为止, 人们在 Ar 气中所能观测到的最短波长的谐波辐射, 经分析表明, 高于 57 次的谐波是由 Ar 离子产生的。

关键词 高次谐波, 惰性气体, 飞秒激光。

1 引 言

自 1987 年 Mcpherson 等人^[1]在激光和气体相互作用的实验中观察到非微扰的高次谐波辐射以来, 作为一种高亮度的相干 X 射线光源, 高次谐波的研究在短短的 10 年时间里, 随着超短超强激光技术的发展^[2], 取得了令人振奋的进展。到目前为止, 世界上有几个著名的实验室已能观测到气体中波长短于 10 nm 的谐波辐射^[3-7], 而其中最短波长是在 He 气中产生的 2.7 nm 的谐波辐射^[8], 这一波长已进入水窗波段, 为 X 射线显微成像的最终实现提供了新的光源途径。另外, 谐波这种相干光源已被作为一种探测手段用于激光等离子体动力学过程的研究^[9]。

对于强激光在气体中的高次谐波产生, 人们关心的问题主要有两个。一是从微观的角度出发, 研究如何使谐波辐射向更短波长方向推进。根据 Kulander 的理论^[10], 在气体中利用高次谐波辐射可获得的最大光子能量为 $h\nu = I_p + 3.17U_p$, 其中 I_p 和 U_p 分别为原子(离子)的电离能和电子在激光场中获得的最大动能, U_p 的表达式为: $U_p = 9.33 \times 10^{-14} I_s (\text{W/cm}^2) \lambda^2 (\mu\text{m})$, I_s 为介质的饱和激光强度, 这一结论在实验中已被证实^[3, 4]。因此提高谐波次数, 使谐波辐射向更短波长区域推进, 就必须从 I_p 或 U_p 这两个方面入手。二是从宏观角度出发, 考虑如何使谐波信号足够强, 以至于使之能被探测到, 甚至能达到实用化的要求, 这个问题除了要考虑参与谐波辐射的粒子数目、以及粒子的非线性极化率之外, 更重要的是研究谐波在传播过程中的相位匹配, 这主要和实验参数如激光的共焦参数 b 以及气体长度 L 等有关^[11]。

本文的工作是在非线性极化率较高的 Ar 气中实现中心波长为 785 nm、脉宽为 45 fs 的钛宝石激光的极高次谐波辐射, 主要研究了气体密度和激光能量对谐波辐射的影响。

2 实验安排

高次谐波实验装置如图 1 所示, 主要由 45 fs 钛宝石激光器、电磁驱动脉冲气阀、单色仪、通道电子倍增管和瞬态信号采集器或 Boxcar 门积分器组成。

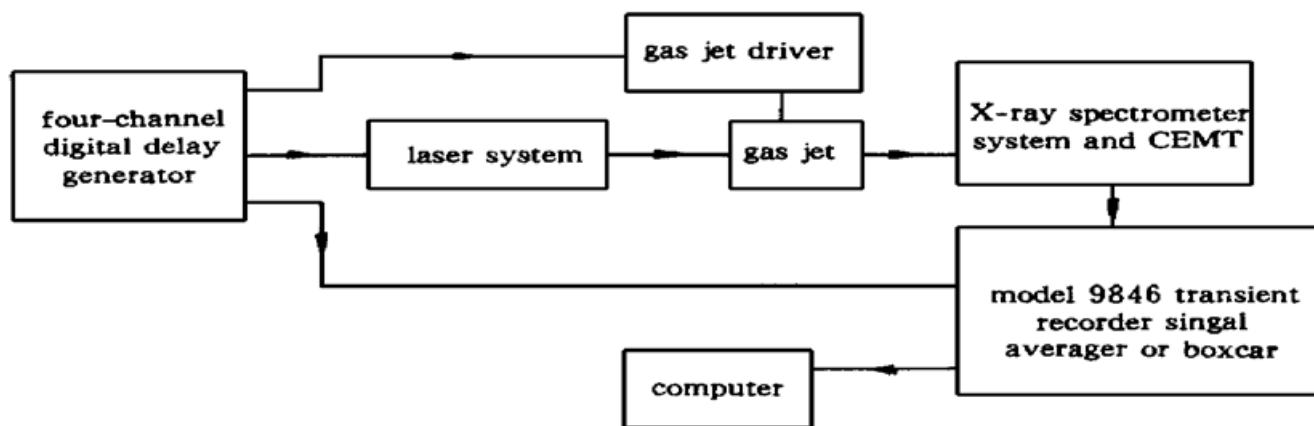


Fig. 1 Experimental setup of harmonic generation

2.1 激光系统

实验所用激光系统是由中国科学院上海光机所强光光学开放研究实验室与法国 B. M. I 公司联合研制的 45 fs-2 TW 级超短超强钛宝石激光器。它是用功率为 5 W 的 Ar^+ 激光器抽运锁模钛宝石激光振荡器, 产生 30 fs 的种子光, 再经脉冲展宽器(光栅对)展宽至 200 ps, 展宽后的脉冲首先由再生放大器放大到 4 mJ, 再由前置放大器放大到 20 mJ, 最后由主放大器放大到 220 mJ, 然后由脉冲压缩器(光栅对)把脉冲压缩, 最后可得到光束直径为 50 mm、脉冲最大能量为 120 mJ、中心波长为 785 nm、脉宽为 45 fs、工作频率为 10 Hz 的激光输出。

2.2 光学聚焦系统

激光的聚焦是由焦距为 50 cm 的复合透镜实现的。激光聚焦到脉冲气阀喷口下方约 2 mm 处, 气体位于激光焦点之后 2~3 mm 的位置, 激光和气体相互作用区的光斑直径约为 150 μm , 由于光斑较大, 所以有利于谐波辐射^[11]。在激光能量为几十毫焦耳时, 可以获得 $10^{15} \text{ W}/\text{cm}^2$ 以上的打靶功率密度。

2.3 电磁驱动脉冲气阀

实验所用电磁驱动脉冲气阀是由中国科学院上海光机所设计的, 它具有工作性能稳定、气体脉冲持续时间可调的特点。实验中采用了喷口直径为 0.5 mm 的喷嘴, 气体背景压力在 0.15 MPa 到 0.5 MPa 内可调, 典型的喷气时间为 200 μs 。

2.4 光谱仪与信号记录系统

实验所用光谱仪是 Minuteman Laboratories 公司生产的 Model 310G 一米掠入射单色仪。谱仪由入射狭缝、反射式镀金光栅(300 l/mm)和出射狭缝组成。由于谐波信号和入射光在同一方向传输, 强大的入射光可能损坏光谱仪中的光学元件, 于是将谱仪的入射狭缝放在距气阀 450 mm 的位置, 以此来保护光栅不受损伤。经谱仪色散的谐波信号由沿罗兰圆移动的出射狭缝逐一取出, 并经通道电子倍增管放大, 最后用 Boxcar 门积分器或瞬态信号采集器记录。

2.5 真空系统

由于气体喷嘴喷气时, 靶室真空从 $1.33 \times 10^{-3} \text{ Pa}$ 降至 $1.33 \times 10^{-2} \text{ Pa}$, 为了尽量减少气体介质对软 X 波段的谐波信号的吸收, 并保证通道电子倍增管在高压工作状态下不被击穿,

必须保持探测系统处于 1.33×10^{-3} Pa 左右的高真空状态下, 于是我们采用差分抽运真空系统, 即将喷气室和谱仪靶室用宽 $500 \mu\text{m}$ 、长 5 mm 的狭缝隔开, 并分别抽真空, 以保持作用区有较高的气体密度, 有利于谐波发射, 而探测区又有很高的真空度, 以保证探测系统的安全运行。

3 实验结果与分析

3.1 背景气压的选择以及气体密度对谐波辐射的影响

在研究气体密度对高次谐波辐射的影响、寻找最佳的工作背景气压时, 用 Boxcar 门积分

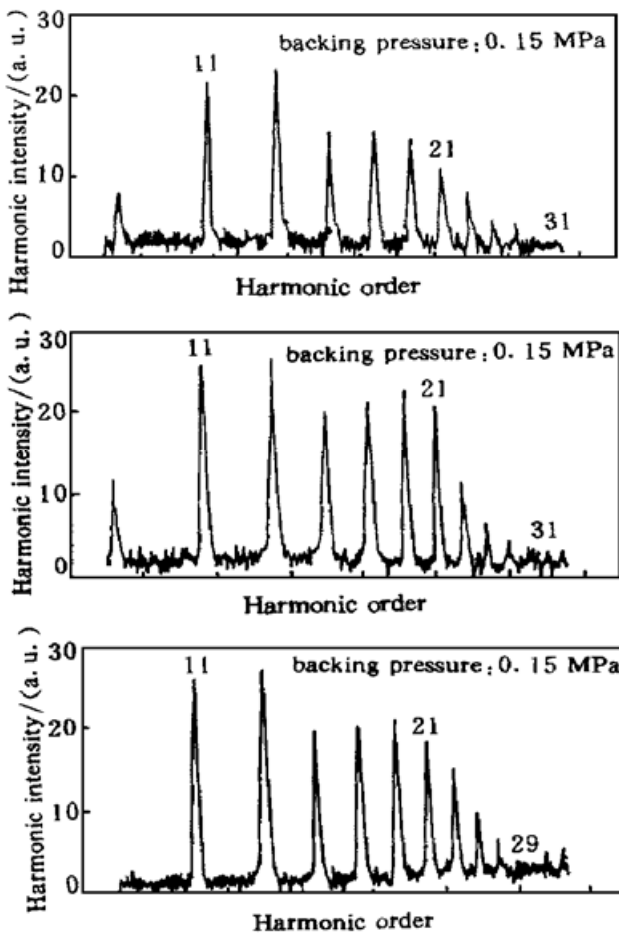


Fig. 2 The typical harmonic spectra at different gas densities

器作为单色仪的信号记录系统。在保持激光能量 15 mJ 不变的情况下, 脉冲气阀的背景压力分别取 0.15 MPa 、 0.25 MPa 和 0.5 MPa 进行谐波测量。此时在距喷口下方 2 mm 处, 气体压力分别为 1.5 kPa 、 2.5 kPa 和 5.1 kPa ^[12] (气体压力大相对应的气体密度也高)。图 2 是在上述条件下得到的典型谐波辐射图, 从图中可看出, 背景气压从 0.15 MPa 上升至 0.25 MPa 时, 谐波信号有所增强, 而背景气压从 0.25 MPa 升至 0.5 MPa 时, 谐波信号的强度几乎没有变化。这说明谐波辐射强度正比于气体密度的平方^[13] 这一结论在气体密度上升到一定范围时就不再适用了, 这和文献[7]中得到的实验结果相类似。原因主要是在激光与靶相互作用的过程中, 气体密度超过一定值后, 如继续升高, 气体电离的几率增大, 电子产额也将迅速增加, 而电子密度增加, 就会使谐波在传播过程中相位失配变得明显^[11], 从而影响谐波信号的强度。另外, 随着气体密度的上升, 使得背景气体对谐波信号的吸收也迅速增加^[14], 从而抑制了谐波辐射强度随气体密度的平方上升的趋势。为了使实验中谐波信号足够强,

气体密度不能太低, 但从上面的分析可以看出气体密度过高对谐波信号的增强并无益处, 所以在以后的实验中我们选择气体喷嘴的背景压力为 0.25 MPa 。

3.2 激光能量对谐波辐射的影响

在保持气体背景压力为 0.25 MPa 的情况下, 分别取激光能量为 10 mJ 、 20 mJ 、 30 mJ 和 40 mJ , 相应的光功率密度分别为 $1.25 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ 、 $2.50 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ 、 $3.75 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ 和 $5.00 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ 。从图 3 可以看到, 在这 4 种不同的激光功率密度下, 谐波辐射从第 11 次到第 21 次有一个平台出现, 而 23 次以后的谐波信号, 其强度迅速下降, 这和理论^[10] 预言是一致的, 即强激光在气体中的谐波产生必须用非微扰理论来解释才是合理的。我们还发现, 不论激光功率密度如何变化, 第 11 次谐波信号总是较其他次数的谐波信号强, 主要原因是: 由于强激光的作用, 使得 Ar 原子的能级发生移动^[15] (动态斯塔克位移), 于是 Ar 原子的

第一电离能变为 $15.8 \text{ eV} + U_p$, 而第 11 次谐波所对应的光子能量小于但接近 Ar 原子的第一电离能, 因此有可能引起多光子共振, 从而使第 11 次谐波信号增强。从图 3 中还可看出, 随着激光功率密度的上升, 同次谐波信号增强, 且功率密度越高, 能测到的谐波次数也越高, 这说明要想得到较高次、较强的谐波发射, 入射激光能量不能太低。

3.3 Ar 气中极高次谐波的产生

从研究激光能量对谐波辐射的影响中发现, 虽然入射激光功率密度 ($> 10^{15} \text{ W/cm}^2$) 远比

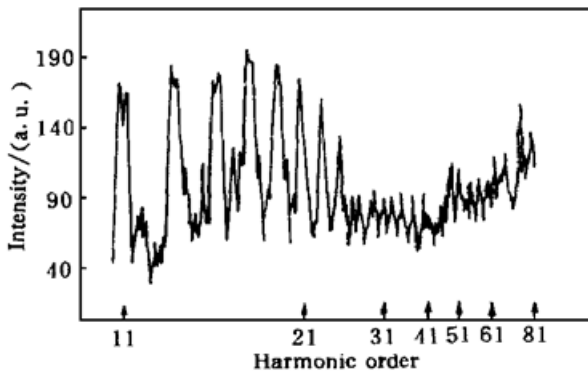


Fig. 4 The typical harmonic spectra obtained in Ar atoms and its ions using 45 fs laser pulses

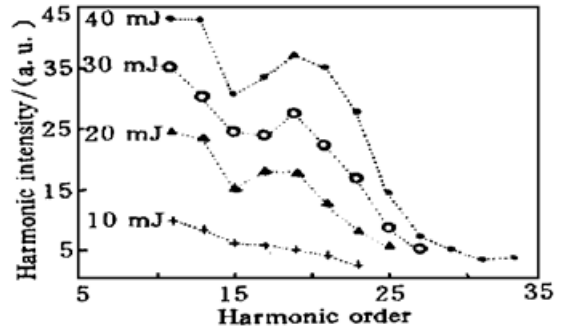


Fig. 3 The intensities of harmonic in Ar gases at different laser energies

文献[13]中提到的 $3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 高, 但我们所能观测到的谐波次数比文献[13]中的低。这可能是由于实验所用的探测器灵敏度不够, 于是改用瞬态信号采集器取代 Boxcar 门积分器, 这样经通道电子倍增管放大的信号能被进一步放大。图 4 是改用瞬态信号采集器之后, 当入射激光能量为 30 mJ 时, 在 Ar 气中探测到的高次谐波辐射图。图中可清楚分辨的谐波次数达到 81 次 (9.7 nm), 81 次之后的谐波信号分辨不是很清楚, 但从信号的位置和变化趋势看, 有可能存在更高次的谐波信号。

在 Ar 气中探测到钛宝石激光的 81 次谐波辐射, 到目前为止还是第一次, 以前密西根大学用

25fs 的钛宝石激光在 Ar 气中获得 61 次谐波辐射^[5], 文献[5]中认为这些谐波都是由原子产生的; 瑞典 Lund 技术研究所用 150 fs 的钛宝石激光在 Ar 气中获得 65 次谐波辐射^[16], 在他们的文章中表明前 33 次是由原子产生的, 之后的谐波是由离子产生的。我们之所以能在 Ar 气中探测到如此短波长的谐波辐射, 原因主要有以下几个方面:

1) Ar 原子本身能产生的谐波次数由于激光脉冲变短而被提高。

2) 激光脉冲越短, 原子在电离之前所能承受的激光强度越高, 于是在电离之前原子能吸收更多的光子, 使辐射谐波的次数也升高^[17]。

3) 谐波的最高光子能量 $h\nu = I_p + 3.17U_p$, 其中 $U_p \propto I_s (\text{W/cm}^2) \lambda^2 (\mu\text{m})$, 以前人们通过选择介质种类或用波长较长的激光作基频光这两种办法提高激光饱和强度 I_s , 从而提高谐波次数。后来 Britton Chang^[18] 在有关原子电离的理论计算中指出, I_s 不但与介质有关, 还和入射激光的脉宽 τ 有关, I_s 与 τ 的关系式为:

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

式中 E_p (eV) 为原子的电离能, 对于 Ar 原子, 第一电离能取 15.8 eV, p 为原子的电离几率, 这里取 0.98, c (m/s) 为光速, τ (s) 为入射激光的脉宽, λ_0 (m) 为入射激光的波长。根据文献[19], 对于 Ar 气 $n^* = 0.93$, $G_{lm} = 3$, $C_n^* i^* \approx 2$, $\alpha \approx 0.5$ 为修正因子^[18]。针对本文的激光器, $\tau = 45 \text{ fs}$, $\lambda_0 = 785 \text{ nm}$, 计算得 Ar 原子的饱和强度 $I_s = 4.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 比文献[13]中不考虑激光脉宽时计算的 Ar 原子的 $I_s = 3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 高出一个数量级, 这使谐波最高光子

能量达到 90 eV, 即在 45 fs 钛宝石激光的作用下, 中性 Ar 气中谐波的截止次数可达 57 次, 远比文献[13]中的 33 次要高。

4) Ar 气中的 Ar 离子也参与了谐波辐射。由于我们实验所用的激光能量为 30 mJ, 相对应的功率密度为 $3.75 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$, 这远远超过了 Ar 原子在该激光作用下的饱和强度, 因此介质中有大量的离子, 虽然激光场由于电子的屏蔽作用有所下降, 但 Ar 离子仍能感受到较高的场强, 从而使得 Ar^+ 发射的谐波存在。虽然离子的非线性极化率小以及电子引起相位失配这两个因素在一定程度上减弱了 Ar^+ 发射的谐波信号, 但只要离子数目在介质中占相当比例, 且探测系统灵敏度高, 是完全有可能被观测到的。另外, 上面对原子的有关截止波长的讨论同样也适用于 Ar^+ , 所不同的是由于 Ar^+ 的电离能比 Ar 原子的高出许多, 所以 Ar^+ 的谐波截止次数将远比 Ar 原子的高, 这进一步说明我们在 Ar 气中观测到 81 次谐波是合理的。

从上面的分析可以得出的结论是: 在 30 mJ、45 fs 的钛宝石激光作用下, Ar 气产生的谐波中, 高于 57 次的谐波一定是由离子产生的。

结 论 本论文系统报道了 45 fs-2 TW 超短超强激光在 Ar 中产生高次谐波的实验结果, 如气体密度和激光能量对谐波辐射的影响, 以及在适当的气体密度和激光能量下, 该激光在 Ar 气中实现 81 次谐波辐射, 经分析表明, 高于 57 次的谐波是由 Ar 离子产生的。

参 考 文 献

- [1] Mcpherson A, Gibson G, Jara H *et al.*. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1987, **4**(4) : 595~ 601
- [2] Perry M D, Mourou G. Terawatt to petawatt subpicosecond lasers. *Science*, 1994, **246**(5161) : 917~ 924
- [3] Maklin J J, Kmetec J D, Gordon III C L. High-order harmonic generation using intense femtosecond pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, **70**(6) : 766~ 769
- [4] L'Huillier A, Balcou P. High-order harmonic generation in rare gases with a 1-ps 1053-nm laser. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, **70**(6) : 774~ 777
- [5] Zhou J, Peatross J, Murnane M M *et al.*. Enhanced high-harmonic generation using 25 fs laser pulse. *Phys. Rev. Lett.*, 1996, **76**(5) : 752~ 755
- [6] Miyazaki K, Takada H. High-order harmonic generation in the tunneling regime. *Phys. Rev. (A)*, 1995, **52**(4) : 3007~ 3021
- [7] Preston S G, Sanpera A, Zepf M *et al.*. High-order harmonics of 248.6-nm KrF laser from helium and neon ions. *Phys. Rev. (A)*, 1996, **53**(1) : R31~ R34
- [8] Chang Zenghu, Rundquist A, Wang Haiwen *et al.*. Generation of coherent soft X-rays at 2.7 nm using high harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 1997, **79**(16) : 2967~ 2970
- [9] Theobald W, Habner R, Wulker C *et al.*. Temporally resolved measurement of electron densities with high harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 1996, **77**(1) : 298~ 301
- [10] Krause J, Schafer K J, Kulander K C. High-order harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime. *Phys. Rev. Lett.*, 1992, **68**(24) : 3535~ 3538
- [11] Protopapas M, Keitel C H, Knight P L. Atomic physics with super-high intensity lasers. *Rep. Prog. Phys.*, 1997, **60**(4) : 429~ 436
- [12] Bethune D S, Rettner C T. Optical harmonic generation in nonuniform gaseous media with application to frequency tripling in free-jet expansions. *IEEE J. Quantum. Electron.*, 1987, **QE-23**(8) : 1348~ 1360

- [13] Li X F, Huillier A L, Ferray M *et al.*. Multiple-harmonic generation in rear gases at high laser intensity. *Phys. Rev. (A)*, 1989, **39**(11) : 5751~ 5761
- [14] Elton R C. *X-Ray Laser*, New York: Academic Press, Inc., 1990.
- [15] Burnett K, Reed V C, Knight P L. Atoms in ultra-intense laser fields. *J. Phys. (B): Mol. Opt. Phys.*, 1993, **26**(3) : 561~ 598
- [16] Wahlstrom C G, Larsson J, Persson A *et al.*. High-order harmonic generation in rear gases with an intense short-pulse laser. *Phys. Rev. (A)*, 1993, **48**(6) : 4709~ 4720
- [17] Christov I P, Zhou J, Peatross J *et al.*. Nonadiabatic effects in high-harmonic generation with ultrashort pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 1996, **77**(9) : 1743~ 1746
- [18] Chang Britton, Bolton P R, Fittinghoff D N *et al.*. Closed-form solutions for the production of ions in the collisionless ionization of gases by intense lasers. *Phys. Rev. (A)*, 1993, **47**(5) : 4193~ 4203
- [19] Ammosov M V, Bolton N R, Fittinghoff D N. Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field. *Sov. Phys. JETP*, 1986, **64**(6) : 1191~ 1194

High-Order Harmonic Generation in Ar Noble Gases

Liu Yaqing Xu Zhizhan Zai Kai Li Xuexin Wang Yingsong
Song Xiangyang Zhang Wenqi Zhang Zhengquan

(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 experimental results of high-order harmonic generation in Ar noble gases using an 45 fs, 785 nm Ti:sapphire laser pulse are presented. The effects of gas densities and pulse intensities on harmonic emission are studied, The harmonic generation up to order 81 (9.7 nm) under optimum experimental condition is observed, which is to date the shortest wavelength harmonic emission in Ar noble gases. Analyses show that the harmonics higher than order 57 are generated from Ar^+ .

Key words high-order harmonic generation, noble gases, fs-Ti:sapphire laser.