

文章编号: 0253-2239(2001)05-0534-04

掺钛蓝宝石飞秒激光在氦气中的高次谐波*

王 骥 夏元钦 陈德应 卢兴发 吴小燕 陈建新

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

摘要: 利用中心波长在 780 nm 线偏振的掺钛蓝宝石超短脉冲激光, 在氦气中观察到 40 nm~110 nm 第 7~19 次谐波的软 X 射线激光辐射, 把中心波长调至 795 nm 时再次观察到相同的现象, 特别是观察到谱线的移动, 证实观察到的谱线是高次谐波, 实验中还观察了谱线强度随气压的变化规律。

关键词: 掺钛蓝宝石超短脉冲激光; 氦气; 高次谐波; X 射线激光辐射

中图分类号: O437 文献标识码: A

相干辐射光源波长的拓宽在量子电子学领域是一个重要目标, 而向超紫外(XUV)波段延伸有两种机制, 一种是获得直接激光辐射; 另一种是在气相介质中使用非线性上转换技术获得高次谐波^[1], 而且人们使用不同类型的激光器诸如钨玻璃、氟化氢、掺钛蓝宝石等分别在 He、Ne、Ar 等惰性气体以及 N₂、O₂ 等气体中获得低于 10 nm、高于 140 次以上的谐波^[2~8]。一般来说, 气体介质中的高次谐波, 即使是三次和五次谐波效率也是很低的, 所以要获得高次谐波需要短脉冲、高峰值功率的光源作为抽运光源^[1,9]。本文报道波长分别为 780 nm 和 795 nm 的掺钛蓝宝石飞秒激光在氦中 40 nm~110 nm 范围内高次谐波的产生。

1 实验系统

光源为美国 Spectra-Physics 公司生产的掺钛蓝宝石飞秒激光系统, 激光参数为: 单脉冲能量 50mJ, 脉宽 105 fs, 重复频率 10Hz, 中心波长 795 nm(可调), 水平线偏振。本次实验使用的激光能量 44mJ, 经过反射镜几次折返, 到达焦点处能量为 34 mJ。聚焦系统是焦距为 75 mm 的单透镜, 焦斑直径 $D=150 \mu\text{m}$ 。抽运激光经聚焦透镜后首先在靶室的两黄铜薄片上现场钻出入射针孔与出射针孔, 两黄铜薄片的间距为 3 mm, 通过 DL-4 型真空计测量靶室内的真空度。飞秒激光系统出射的线偏振激光经扩束聚焦系统聚焦于真空室的靶室内, 由靶室出射的

短波长 X 射线激光经 VSN515 型真空紫外单色仪分光后通过单色仪出射狭缝处的探测器进行放大, 在本装置中探测器是由日本滨松公司生产的中心波长为 70 nm 型号为 R595 的无窗光电倍增管, 最后由 4400 信号检测和分析系统对 X 射线辐射谱线的时间积分谱进行测量。实验系统布局如图 1 所示。

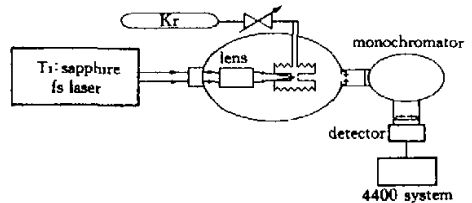


Fig. 1 Schematic of the experimental setup

2 谱线定标

在进行氦气的高次谐波以前, 用 N₂ 作初步实验, 抽运激光为线偏振光, 入射能量为 34 mJ, 且靶室内的气压为 0.98 kPa~1.09 kPa 时, 用真空紫外单色仪对氦气的辐射谱线进行扫描, 利用 4400 系统测得的氦气 30 nm~110 nm 区域荧光辐射谱如图 2(a)所示。将测得的氦气辐射谱与 Chichkov 等人^[10]实验中测得的相应波长范围内的 N₂ 的辐射谱进行比较。图 2(b)为 Chichkov 等人测得的结果, 将我们在图 2(a)中测得的氦辐射谱中波长为 68.68 nm 的谱线对应到 Chichkov 等人实验中测得的波长为 68.57 nm 的谱线(该谱线的准确数值在文献中已给出)之后, 在表 1 中给出了我们测得的各谱线与 Chichkov 等人测得的各谱线的对应情况, 其中 λ_R 和 λ_E 分别为参考文献和我们实验中测得的谱线波

* 国家科委 863 高技术项目激光技术主题、国家自然科学基金(69688003)资助课题。

收稿日期: 2000-05-22; 收到修改稿日期: 2000-07-31

长, R 为 $|\lambda_E - \lambda_R|$ 与 λ_R 的比值。由表 1 可看到各条谱线符合得很好, 就此完成了对单色仪的初步标定, 即单色仪读数为 686.8(68.68 nm) 的位置对应的谱

线波长为 68.57 nm, 图 2(c) 是根据初步标定谱线位置平移了的 N_2 的发射谱, 下面给出的实验谱图都是初步标定后的结果。

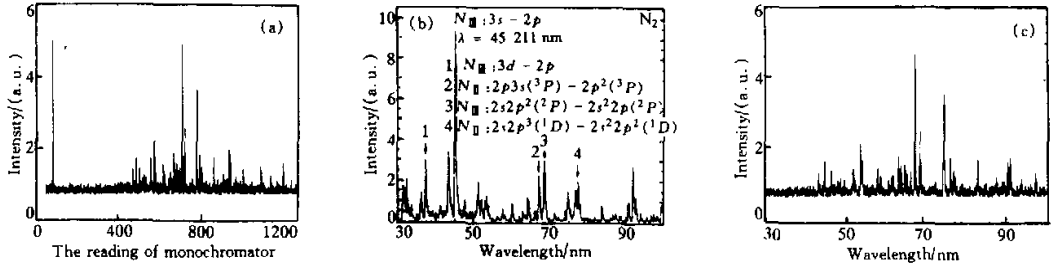


Fig. 2 The calibration of monochromator with the emission spectrum of N_2 . (a) The observed emission spectrum of N_2 gas, the energy is 34 mJ, the pressure is about 0.98 kPa~1.09 kPa. (b) The emission spectrum of N_2 measured by Chichkov^[10]. (c) The emission spectrum being moved of N_2 gas

Table 1 Comparison of the measured spectrum with the spectrum in reference literature

λ_R /nm	43.52	45.21	51.97	53.80	67.17	68.57	74.51	76.34	76.90	83.24	90.28	91.26
λ_E /nm	43.41	44.93	52.02	54.06	67.18	68.57	74.30	75.97	76.85	82.73	90.21	90.81
R /%	0.25	0.62	0.10	0.48	0.01	0	0.28	0.48	0.07	0.61	0.08	0.49

3 氦气高次谐波实验结果

实验结果如图 3 和图 4 所示, 在图 3 和图 4 中出现的各条谱线比较有规律, 即由长波长向短波长方向, 各谱线之间的间隔依次减小, 而且在抽运光为

线偏振的情况下, 谱线的强度明显大于抽运光为圆偏振光时谱线的强度, 初步推断上述的各条谱线为抽运激光的高次谐波。当抽运光的能量为 20 mJ 左右, 此时焦斑处激光强度为 10^{15} W/cm² 左右。我们知道当频率为 ω 的脉冲激光强度达到 10^{15} W/cm² 的量级, 聚焦辐照稀有气体原子可以产生频率为 $N\omega$ 的谐波发射而 N 可高达 100^[11]。

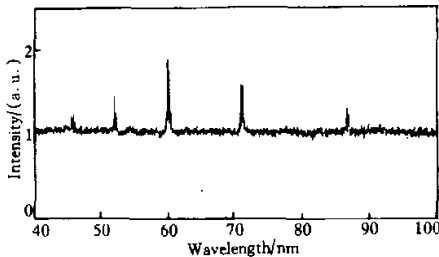


Fig. 3 The observed emission spectrum of Kr gas. The energy is 20 mJ, the pressure is 0.54 kPa

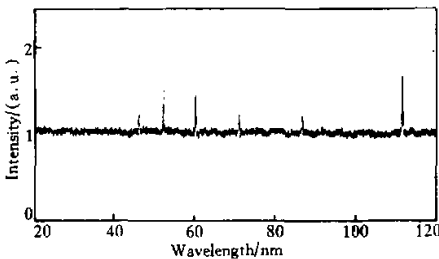


Fig. 4 The observed emission spectrum of Kr gas. The energy is 23 mJ, the pressure is 1.60 kPa

为了考察上述的各条谱线是否为抽运飞秒激光的高次谐波, 将飞秒激光系统出射激光的各级次谐波与实验中测得各条谱线的波长进行了对比, 在上述的几个实验中, 抽运飞秒激光的中心波长为 780 nm。在表 2 给出了该中心波长的各高次谐波的波长与实验中测得各条谱线波长的对应情况。由于在气体这类具有中心反射对称性的介质中, 只存在奇数次谐波, 所以谐波的级次从第 7 次到第 19 次, 其中 λ_X 与 λ_E 为谐波的波长和实验中测得各谱线波长, 由表 2 可看到各条谱线符合得很好。

为了进一步验证在上述采用氦气靶的实验中所测得各条谱线是飞秒激光的高次谐波, 在将抽运飞秒激光的波长改为 795 nm 的情况下, 重新对氦气的辐射谱线进行了测量, 实验中抽运激光为线偏振光, 靶室窗口处的激光能量为 45 mJ, 靶室内的气压为 1.60 kPa, 其余的实验条件与上述实验中的相同, 测量结果如图 5 所示。

Table 2 Mapping the experiment-acquired spectrum to high-order harmonics by wavelength

harmonic order	19	17	15	13	11	9	7
λ_x/nm	41.05	45.88	52.00	60.00	70.91	86.67	111.43
λ_E/nm	41.00	45.86	52.02	60.05	70.89	86.64	111.48
deviation / %	0.12	0.04	0.038	0.08	0.02	0.03	0.045

由图 5 可以看到,在波长分别为 46.51 nm、52.64 nm、60.94 nm、72.14 nm、88.22 nm、89.85 nm、94.63 nm、100.01 nm、102.48 nm、113.35 nm、116.16 nm、123.29 nm、134.00 nm 和 139.91 nm 处有谱线出现,其中 46.51 nm、52.64 nm、60.94 nm、113.35 nm、116.16 nm 和 123.29 nm 处的谱线较

强。在表 3 中给出了抽运波长为 795 nm 各高次谐波的波长与实验中测得的部分谱线波长的对应情况,可以看到,相对于中心波长为 780 nm 时的测量结果,谱线的位置有所移动,且各条谱线符合得很好。各谱带随抽运激光波长变化有规律的移动证实了我们在图 3 至图 5 的实验中获得的 40 nm ~ 110 nm 的谱是抽运激光在氦气中的高次谐波谱。

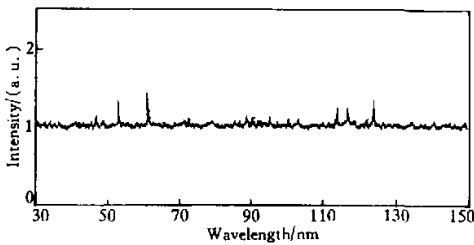


Fig.5 The observed emission spectrum of Kr gas. The energy is 45 mJ, the pressure is 1.60 kPa

Table 3 Mapping the experiment-acquired spectrum to high-order harmonics by wavelength

harmonic order	17	15	13	11	9	7
λ_x/nm	46.76	53.00	61.15	72.24	88.33	113.57
λ_E/nm	46.51	52.64	60.94	72.14	88.22	113.35
deviation / %	0.53	0.68	0.34	0.13	0.12	0.19

在靶室气压逐渐减小的实验条件下,对氦气的辐射谱进行了多次测量,结果如图 6 所示。

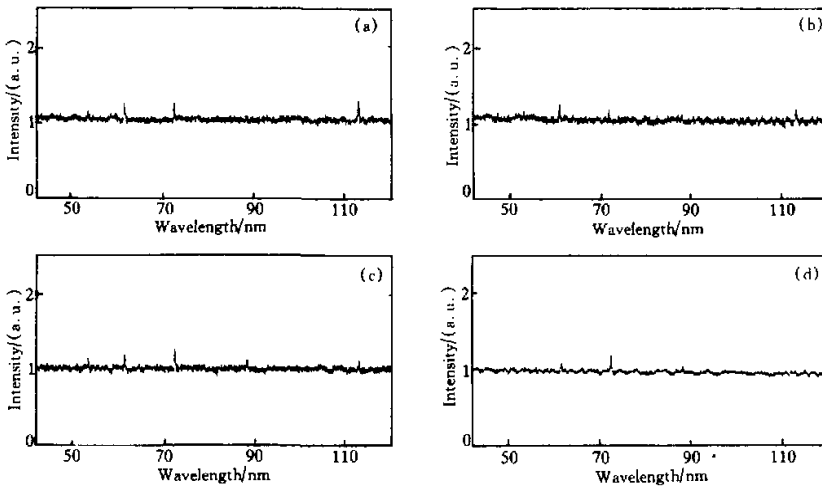


Fig.6 The observed emission spectrum of Kr gas. (a) The gas pressure is 1.33 kPa; (b) The gas pressure is 1.06 kPa; (c) The gas pressure is 0.80 kPa; (d) The gas pressure is 0.27 kPa. Linearly polarized laser energy is 23 mJ

讨论 由于抽运激光的能量有所提高,聚焦后的激光强度有所增大,从而使得隧道电离过程等可以与高次谐波过程相比拟,所以在图 5 中出现抽运飞秒激光各高次谐波的同时,也出现了其它波长的谱线。在激光强度由 10^{13} W/cm^2 逐渐增大时,随着光强提高,将伴有多光子电离及隧道电离发生,对于稀有气体,多光子电离的饱和光强在 10^{14} W/cm^2 左右,当激光强度超过介质中多光子电离的饱和光强值时,

则会导致原子电离。所以在激光强度为 10^{15} W/cm^2 左右时,氦气原子将被电离并伴有多光子电离及隧道电离发生,目前的激光强度能够产生 4 价的氦离子,当气体原子被电离之后,仍然有高次谐波发生。但同时因为高次谐波的发生与多光子电离或隧道电离是个竞争过程,也就是说当高次谐波的过程较强时,相应的多光子电离或隧道电离过程将受到抑制。所以在我们的实验中,高次谐波的谱线较强,是由于

高次谐波的产生过程强于多光子电离或隧道电离过程,在图5的实验中,由于激光强度的提高使得多光子电离或隧道电离过程增强,所以不仅有高次谐波的谱线出现,而且也有相应的通过多光子电离或隧道电离过程产生的离子谱线出现。

虽然图3和图4中的两次实验,由于单色仪的狭缝宽度不同,使谱线的强度不便于直接比较,但是由这两次的实验结果可以看到,上述几条谱线有较好的可重复性。

由图6可以看到,在靶室气压由1.33 kPa降至0.27 kPa的过程中,相对于靶室气压为1.60 kPa时的测量结果(图4),谱线强度都有所降低,在靶室气压为1.60 kPa时,各谱线的强度增大较为明显,即在上述的靶室气压范围内,气压越高越有利于高次谐波的产生。对工作气体为稀有气体的高次谐波实验,为有效地产生高次谐波,一般维持粒子数密度为 $10^{17} \text{ cm}^{-3} \sim 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ (相应的气压为0.399 kPa~4.106 kPa),所以在我们的实验中,在靶室气压较低(最高为1.60 kPa)时,谱线强度也较弱。

感谢北京大学孙陶亨教授与作者就高次谐波方面有关问题进行的有益探讨和给予的帮助。

参 考 文 献

[1] Hirakawa Y, Okada T, Maeda M *et al.*. Coherent

extreme-ultraviolet generation at 64 nm by efficient frequency tripling of an ArF laser. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1997, **14**(5):1029~1034

- [2] 徐至展,张正泉,李学信等. 利用超强光场产生的高次谐波获得相干软 X 射线辐射. *光学学报*, 1997, **17**(7):957~958
- [3] L'Huilier A, Balcou P. High-order harmonic generation in rare gases with a 1-ps 1052 nm laser. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, **70**(6):774~777
- [4] Macklin 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
- [5] Miyazaki K, Takada H. High-order harmonic generation in the tunneling regime. *Phys. Rev. (A)*, 1995, **52**(4):3007~3021
- [6] Wahlstrom C G, Larsson J, Persson A *et al.*. High-order harmonic generation in rare gases with an intense short-pulse laser. *Phys. Rev. (A)*, 1993, **48**(6):4709~4720
- [7] Preston S G, Sanpera A, Zepfetal M. High-order harmonic of 248.6-nm KrF laser from helium and neon ions. *Phys. Rev. (A)*, 1996, **53**(1):R31~R34
- [8] Nagata Y, Midorikawa K, Obara M *et al.*. High-order harmonic generation by subpicosecond KrF excimer laser pulses. *Opt. Lett.*, 1996, **21**(1):15~17
- [9] Ubachs W, Eikema K S E, Hogervorst W. Narrow-band extreme-ultraviolet laser radiation tunable in the range 90.5~95 nm. *Appl. Phys. (B)*, 1993, **57**(6):411~416
- [10] Chichkov B N, Egbert A, Eichmann H *et al.*. Soft-X-Ray lasing to the ground states in low-charged oxygen ions. *Phys. Rev. (A)*, 1995, **52**(2):1629~1639
- [11] 彭惠民,王世绩,邱玉波等. X 射线激光. 北京:国防工业出版社, 1997.

High-Order Harmonic Generation in Krypton with Femtosecond Ti:Sapphire Laser

Wang Qi Xia Yuanqin Chen Deying Lu Xingfa Wu Xiaoyan Chen Jianxin
(The National Key Laboratory of Tunable Laser Technology, Institute of Opto-Electronic Technology,
Harbin Institute of Technology, Harbin 150001)
(Revised 22 May 2000; revised 31 July 2000)

Abstract: Soft X-ray laser radiation ranged from 40 nm to 110 nm is obtained by the 7th to the 19th order harmonic generation in krypton with femtosecond Ti:sapphire laser operating at 780 nm, and the same phenomena especially the spectral shift is observed after the central wavelength of Ti:sapphire laser is tuned to 795 nm. So the high order harmonic generation is confirmed. The spectrum change pumped by linear polarization laser and the spectrum intensity change with gas pressure are also observed.

Key word: femtosecond Ti:sapphire laser; krypton; high-order harmonic generation; soft X-ray laser radiation