

文章编号: 0253-2239(2002)01-0010-04

超短强激光作用下空气的三次谐波辐射*

钟方川 胡雪原 邓 健 王益民 江云华 王文跃 张正泉 李儒新 徐至展

(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: 进行了飞秒强激光与自由空气和充气毛细管相互作用产生三次谐波的实验研究, 成功地获得了功率达 0.17 GW、重复频率为 10 Hz 的紫外三次谐波信号。谐波的转换效率达到 0.04%。对自由空气和充气毛细管中的谐波转换效率和谐波空间分布特性进行了比较。实验表明微毛细管虽然使谐波转换效率略有降低, 但能有效地改善谐波的空间分布, 使其更好地满足实际应用的需要。

关键词: 飞秒强激光; 谐波; 微毛细管

中图分类号: O437 文献标识码: A

1 引 言

在超短超强激光与物质相互作用的各种非线性现象中, 谐波辐射引起了人们广泛的兴趣^[1]。因为发展紫外乃至 X 射线波段的超短脉冲光源对原子、分子、固体以及生物过程的时域分析至关重要^[2], 许多应用, 如光分子的超快化学动力过程等都需要这种紫外波段的超快光源, 因此产生和研究高亮度紫外光源的特性具有重要的应用价值。随着近红外 800 nm 附近波段的超短激光系统从产生到放大等方面技术的不断进步和完善, 利用 800 nm 的超短激光脉冲与物质相互作用来实现频率的上转换是获得这种光源的有效途径。这样的光源不但比同步辐射光源经济和方便, 而且其超短的时间尺度和超高的亮度更是同步辐射光源无法比拟的。利用强场高次谐波平台区谐波级次分布规律与激光纵模结构的惊人相似和超宽的谐波辐射, 通过锁定各谐波相位甚至有可能获得阿秒量级的超短脉冲^[3], 为人们研究物质世界提供更锐利的工具。因此细致深入地研究超短超强脉冲的谐波发生机理和特性很有必要。

气体作为谐波发生的常用介质之一, 特别适合作为上述超短超强脉冲作用下谐波辐射的介质, 固体介质不能承受超高光功率密度的辐照, 而气体的破坏阈值高, 并且自身具有可修复性, 因此采用气体介质的谐波发生具有较好的重复性。此外气体介质还可在较大程度上避免有限的相位匹配带宽以及由于群速度色散导致的基频光和谐波的脉冲波包出现

时间分离(temporal walk-off)等并发症。虽然气体由于极化率张量系数较小导致其谐波发生的转换效率比固体低, 但是考虑到超短超强激光能够提供的高功率光源, 采用气体介质还是能够获得很好的效果。近年来气体高次谐波的深入研究表明这是实现台式高亮度相干紫外光源的可行途径。对于气体中三次谐波的深入研究将有助于理解其它高阶奇次谐波发生的动态过程, 寻找提高三次谐波转换效率的途径也对提高其它高阶奇次谐波的转换效率有指导意义。因此已有许多有关超短超强脉冲下的三次谐波辐射的实验研究^[4~8], 人们提出了很多方案来努力提高气体三次谐波的转换效率。目前已有在空气中的转换效率高于 0.1% 的报道^[5]。

本文报道我们进行的飞秒强激光与空气相互作用产生三次谐波的实验。我们对有无微毛细管下的谐波特性进行了对比研究。

2 实验安排

实验是在中科院上海光机所强光光学开放实验室进行的。所用的激光系统为脉宽 45 fs、中心波长 785 nm、重复频率 10 Hz 的钛宝石飞秒 TW 激光器^[9]。实验光路如图 1。来自 TW 激光器的激光脉冲经聚焦后与微毛细管内或自由空间里的空气相互作用产生三次谐波。在微毛细管下, 激光聚焦到毛细管的前端口, 由成像放大和 CCD 组成的监视系统对耦合情况进行监测, 以保证激光能量完全注入毛细管内。为了获得信号, 实验时对毛细管和激光进行了仔细的准直使两者严格共轴。产生的谐波信号经熔石英透镜收集和聚焦, 最后用光纤光谱仪和

* 国家高技术 863-410 资助课题。

收稿日期: 2001-01-15; 收到修改稿日期: 2001-03-09

CCD 分别对信号的频谱和空间形状进行测量。光路中用四块对抽运光高透、对紫外高反的平面镜对比谐波强度高得多的抽运光进行衰减,并在探测系统前用滤片进一步对抽运光和谐波信号进行衰减,以保证探测系统的安全工作。

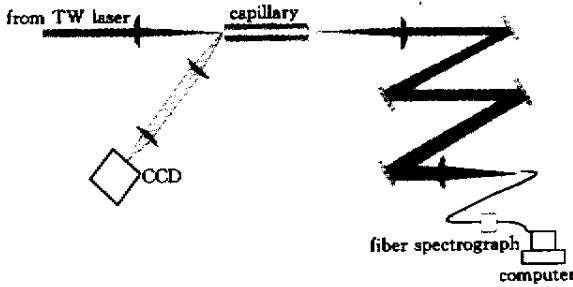


Fig. 1 The experimental setup for THG

3 实验结果

实验时激光能量为 1 mJ ~ 20 mJ,对应聚焦后的光强为 2×10^{13} W/cm² ~ 4×10^{14} W/cm²。图 2 为典型的光纤光谱仪测得的信号频谱。可见在频谱上除了抽运光的频谱外,还出现了紫外波段的 264nm 的三次谐波信号,表明飞秒激光与空气作用后成功地产生了谐波。

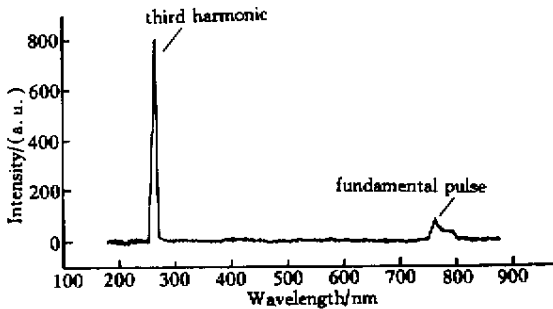


Fig. 2 THG signal measured by spectrometer

对不同抽运激光能量和有无毛细管下的谐波频谱进行了测量。所用的毛细管是内径为 $\phi 500 \mu\text{m}$ 、长度为 30 mm 的玻璃毛细管。由于光纤谱仪能够同时接收到基频光和三次谐波信号,在对谱仪和所用的衰减片、滤片进行标定后,由测量的基频光和三次谐波信号的相对强度可以标定出三次谐波的转换效率。

图 3 给出了飞秒强激光与自由空气或充气毛细管相互作用产生的三次谐波转换效率随抽运激光能量的变化,其中去曲线为实验数据的二次拟合。由图 3 表明转换效率先是随能量增加,随后趋向饱和。这一规律与文献 6 的结果一致。从图 3 可见,在自

由空气中的转换效率最大达到了 0.04%,相应的三次谐波能量为 8 μJ 。我们这一结果与其它小组的结果基本一致^[5,6]。假设谐波的脉宽也为 45 fs (事实上谐波的脉宽要比基波窄^[5]),则谐波的功率可达 0.17 GW。同时由图 3 看出在有毛细管的情况下,谐波的转换效率略低于自由空气中的转换效率,最高为 0.027%,但是转换效率随能量增长的饱和趋势要比自由空气缓慢。

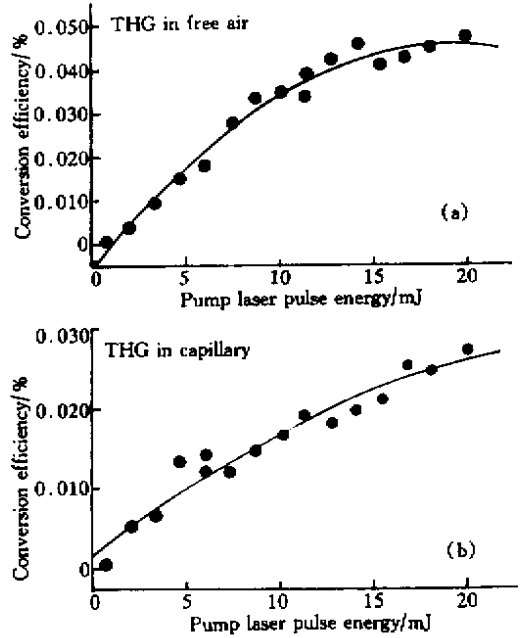


Fig. 3 The conversion efficiency of THG (● experiment, — fit). (a) In free air; (b) In capillary

我们用 CCD 对三次谐波的空间分布进行了测量。图 4 为自由空气中和充气毛细管中的三次谐波信号的典型焦斑,其中图 4(b)外围的光晕是未衰减掉的基频光。自由空气中的三次谐波的椭圆形状是由于抽运光在空气传输中受到非线性调制及本来可能存在的象散造成的。可以看出在自由空气中,抽运光空间不对称性对谐波的光场分布影响很大。而从图 4(b)可见经过毛细管的约束作用,谐波的焦斑明显比自由空间中的信号规则得多,其空间分布基本上是轴对称的,从图上给出的空间分布轮廓线可见其模式基本上为 E_{11} 模,这与理论上给出的在光纤中光波能量主要分布在 E_{11} 模等低阶模式中的结果一致^[10]。由上面得知毛细管的存在将使谐波转换率略有降低,但是它将大大改善谐波光场的空间分布,因此利用充气微毛细管来实现用于实际应用的紫外相干光源具有其优势,特别是抽运光在空间上具有较为严重的畸变时,优势更明显。

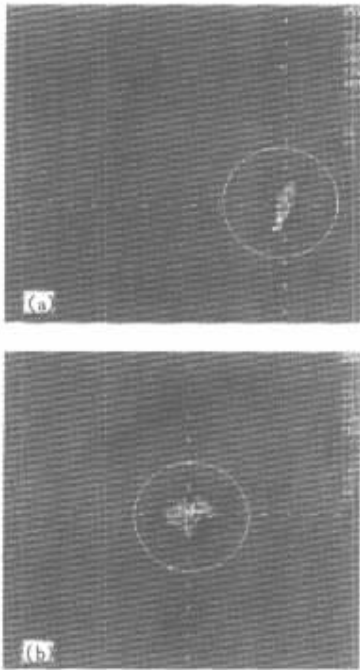


Fig.4 Beam spot of THG. (a) In free air ;(b) In capillary

4 讨 论

由非线性光学理论可知,三次谐波转换效率为^[11]

$$\eta = \frac{1}{3^{3/2}} \frac{\omega_3^2}{n_3 n_1^3 c^4 \epsilon_0^2} \left| \chi^{(3)}(\omega_3, i\omega_1, \omega_1, \omega_1) \right|^2 \times I_{10}^2 \frac{\sin^2(\Delta kz/2)}{(\Delta kz/2)^2}, \quad (1)$$

其中 $\omega_1, \omega_3, n_1, n_3$ 分别为基频和三次谐波的频率及相应的空气对其的折射率, $\Delta k = k_3 - 2k_1$, k_1, k_3 为基频和三次谐波的波矢, $\chi^{(3)}(\omega_3, i\omega_1, \omega_1, \omega_1)$ 为非线性三阶极化率, I_{10} 为抽运基频光的光强, c 为光速, ϵ_0 为真空中的介电常数, z 为传输距离。因此如果没有其他因素的干扰,转换效率应该与光强的平方成正比,转换效率随光强的变化是一向上的抛物线。然而从实验数据来看随着光强的增加,转换效率趋于饱和。这说明存在许多非线性因素制约了转换效率的进一步提高,其中光场电离产生的等离子体的影响可能最为显著,故而靠单纯地提高光强并非是获得高效三次谐波的有效手段,必须设法减少各种不利因素的作用,例如在不牺牲非线性张量的前提下寻找一些电离率较低的气体介质,或者采用一些反常色散的介质来补偿不利因素带来的影响。

由(1)式知,利用强激光与物质相互作用产生

相干谐波辐射的非线性过程中,相位匹配是影响谐波转换效率的重要因素。在微毛细管下,考虑到电离并认为在毛细管内光场以 E_{11} 模传播,则相位失配可写为^[12]

$$\Delta k = k_3 - 3k_1 = \frac{2\pi \times 3}{\lambda} (n_3 - n_1) + \frac{(3^2 - 1)N_e r_e \lambda}{3} + \frac{1}{4\pi a^2} \left(3n_1 - \frac{n_3}{3} \right) u_{11}^2 \lambda, \quad (2)$$

其中 λ 为基频光的波长, N_e 为气体电离后的电子密度, $r_e = 2.82 \times 10^{-13}$ cm 为经典电子半径, a 为毛细管的半径。 u_{11} 为对应 E_{11} 模的模式本征值。(2)式中右边第一、二、三项分别对应由气体色散、自由电子、毛细管造成的相位失配。对于光 $\lambda = 785$ nm 波段的三次谐波实验,由于空气的 n_3 大于 n_1 ^[13],充气毛细管的存在将导入额外的相位失谐量,所以转换效率将比自由空气下略低,我们的实验结果与理论是吻合的。为了改善相位失配,需选择 n_3 小于 n_1 的介质来进行实验,或采用基频光和其二次谐波共同抽运^[14],使气体色散和毛细管造成的相位失配能互为补偿。在高次谐波实验中,由于由气体介质色散造成的相位失配为负,故毛细管引起的正的相位失配正好与之补偿,从而能有效地提高谐波的转换效率^[15]。

结论 进行了飞秒强激光与自由空气和充气毛细管相互作用产生三次谐波的实验研究,成功地获得了功率达 0.17 GW、重复频率为 10 Hz 的紫外三次谐波。对自由空气和充气毛细管中的谐波的转换效率和谐波的空间分布特性进行了比较。在自由空气下转换效率随能量的增加将趋于饱和,说明存在许多非线性因素限制了转换效率的进一步提高。在自由空气下转换效率最高可达 0.04%。实验还表明微毛细管虽然使谐波转换效率略有降低,但能有效地改善谐波的空间分布,使其更好地满足实际应用的需要。

参 考 文 献

- [1] 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
- [2] Barbara P, Fujimoto J, Knox W et al.. *Ultrafast Phenomena X*. Berlin: Springer-Verlag, 1996
- [3] Antoine P, Milosevic D B, L'Huillier A et al.. Generation of attosecond pulse in macroscopic media. *Phys. Rev. (A)*, 1997, **56**(6): 4960 ~ 4969
- [4] Siders W, Turnet III N C, Downer M C et al.. Bule-

- shifted third-harmonic generation and correlated self-guiding during ultrafast barrier suppression ionization of subatmospheric density noble gases. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1996, **13**(2) 330 ~ 335
- [5] Backus S, Peatross J, Zeek Z *et al.*. 16-fs, 1- μ J ultraviolet pulses generated by third-harmonic conversion in air. *Opt. Lett.*, 1996, **21**(9) 665 ~ 667
- [6] Fedotov A B, Koroteev N I, Loy M N T *et al.*. Saturation of third-harmonic generation in a plasma of self-induced optical breakdown due to the self-action of 80-fs light pulses. *Opt. Commun.*, 1997, **133**(1) 587 ~ 595
- [7] Tamaki Y, Midorikawa K, Obara M. Phase-matched third-harmonic generation by nonlinear phase shift in a hollow fiber. *Appl. Phys. (B)*, 1998, **67**(1) 59 ~ 63
- [8] Durfee III C G, Backus S, Kapteyn H C *et al.*. Intense 8-fs pulse generation in the deep ultraviolet. *Opt. Lett.*, 1999, **24**(10) 697 ~ 699
- [9] Xu Zhizhan, Wang Yingsong, Zhai Kan *et al.*. Experimental study of high-order harmonic generation in Ar and Ne gases with 45 fs Ti:sapphire intense laser source. *Science in China* (中国科学), 1999, **29**(3):270 ~ 275 (in Chinese)
- [10] Marcattili E A J, Schmeltzer R A. Hollow metallic and dielectric wave-guides for long distance optical transmission and lasers. *The Bell Sys. Tech. J.*, 1964, **43**:1783 ~ 1809
- [11] Lehmeier H J, Leupacher W, Penzkofer A. Nonresonant third order hyperpolarizability of rare gases and N₂ determined by third harmonic generation. *Opt. Commun.*, 1985, **56**(1) 67 ~ 73
- [12] Zhong Fangchuan, Deng Jian, Qing Ling *et al.*. Characteristics of high harmonics generated in a gas filled microcapillary. *Chinese Journal of Lasers*, 1999, **B8**(6): 531 ~ 537
- [13] Peck E R, Reeder K. Dispersion of air. *J. Opt. Soc. of Am.*, 1972, **62**(8) 958 ~ 962
- [14] Durfee III C G, Backus S, Murnane M M *et al.*. Ultra-broadband phase-matched optical parametric generation in the ultraviolet by use of guided waves. *Opt. Lett.*, 1997, **22**(20):1565 ~ 1567
- [15] Rundquist A, Durfee III C G, Chang Zenghu *et al.*. Phase-matched generation of coherent soft X-ray. *Science*, 1998, **280**(5368):1412 ~ 1415

Third Harmonic Generation in Air Through Interaction with Ultrashort Intense Laser Pulses

Zhong Fangchuan Hu Xueyuan Deng Jian Wang Yimin Jiang Yunhua Wang Wenyue
Zhang Zhengquan Li Ruxin Xu Zhizhan

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

(Received 15 January 2001; revised 9 March 2001)

Abstract: Generation of the third harmonic from the interaction between femtosecond intense laser pulses and atmosphere air is studied. The UV third harmonic with power as high as 0.17 GW and 10HZ repetition is obtained successfully. An efficiency of third-harmonic generation is up to 0.04%. The conversion efficiency and mode structure of the harmonics generated in free air and microcapillary are compared. The experimental results show that the conversion efficiency of THG is a little lower in capillary, but its radial profile is improved effectively which will benefit to practical application.

Key words: femtosecond intense laser; harmonics; micro-capillary