

文章编号 : 0253-2239(2002)06-0650-04

# 飞秒激光脉冲在氮气中产生高次谐波的实验研究<sup>\*</sup>

陈建新 夏元钦 姚 琴 王 骥

(哈尔滨工业大学光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:** 报道了以氮气为介质产生高次谐波的实验结果。实验中主要研究了不同的气体密度、不同入射激光能量和不同偏振对高次谐波辐射强度及谐波级次的影响。并从理论上进行了定性分析。分析结果表明:要想得到较高次、较强的谐波辐射,必须反复进行实验,确定最佳的激光能量和气体密度,以减少由于自由电子密度的提高而导致的相位失配的影响。

**关键词:** 高次谐波;氮气;气体密度;入射激光能量

中图分类号:TN248 文献标识码:A

## 1 引 言

自从 Mcpherson 等<sup>[1]</sup>于 20 世纪 80 年代后期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<sup>[1]</sup>,超短超强激光技术和高次谐波的研究取得了令人振奋的进展。国际上已有几个实验室利用谐波辐射获得了波长短于 10 nm 的相干辐射<sup>[2~5]</sup>,其中 Michigan 大学的实验小组利用脉宽仅为 26 fs 的 780 nm 激光脉冲与 He 相互作用,观察到了 297 次谐波辐射(2.73 nm)<sup>[4]</sup>,Vienna 技术大学的实验小组利用脉宽仅为 5 fs 的 780 nm 激光脉冲与 He 相互作用,观察到的谐波辐射波长也小于 3 nm<sup>[5]</sup>。最近几年我国对高次谐波的研究在理论和实验上也取得了很大的进展<sup>[6~9]</sup>。其中中国科学院上海光学精密机械研究所强激光光学开放研究实验室报导了氩气中高次谐波的辐射<sup>[9]</sup>,观察到的最高次谐波为 81 次(9.7 nm)。目前,产生高次谐波的工作物质主要是惰性气体,包括它们的离子,还有它们的原子团簇<sup>[10]</sup>,对双原子分子气体如 H<sub>2</sub>、O<sub>2</sub>、N<sub>2</sub> 等产生的高次谐波的研究较少<sup>[3,11~13]</sup>。其中加拿大 Laval 大学 Chin 小组所作的系列工作,主要是以皮秒级的染料激光器(594 nm)和亚皮秒级的 Ti:sapphire/Nd:glass 激光器(1053 nm)对双原子分子和惰性气体的高次谐波的产生进行测量及理论计算。

本文的工作是利用中心波长为 795 nm、脉宽为 105 fs 的掺钛蓝宝石飞秒激光系统对双原子分子氮气的高次谐波辐射进行了实验研究,主要研究了不

同气体密度、不同入射激光能量和不同偏振对高次谐波辐射强度及谐波级次的影响。

## 2 实验装置

产生氮气的高次谐波实验装置如图 1 所示。整个实验系统由购于美国光谱物理公司的激光脉冲宽度为 105 fs 的掺钛蓝宝石飞秒激光系统、真空系统、美国 Acton 公司的 VSN-515 型 0.5 m 真空紫外单色仪、日本滨松公司生产的型号为 R595 无窗光电倍增管、boxcar 门积分器组成。其中,飞秒激光器的基本参数为:输出光束直径为 26 mm、脉冲能量约为 60 mJ、激光脉冲的重复频率为 10 Hz、脉冲宽度为 105 fs,中心波长为 795 nm。实验中,为了研究不同激光脉冲能量对谐波辐射的影响,所用的激光脉冲能量分别为 9 mJ、25 mJ、36.5 mJ、40 mJ。打开靶室充气口与高压气瓶真空管道之间的气体微调阀,靶室内开始充气,靶室内所充的气体通过入射针孔与出射针孔向靶室外的真空室内泄漏,通过调节微调阀控制靶室内的气压,并维持靶室内的气压动

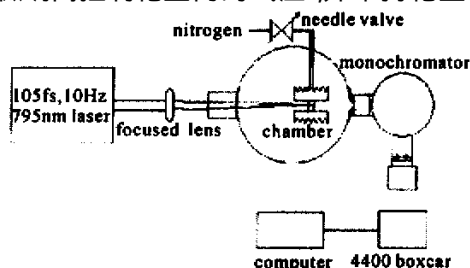


Fig. 1 The experimental setup of high-order harmonic generation in N<sub>2</sub>

<sup>\*</sup> 国家科委 863 高技术计划激光技术主题资助课题。

E-mail: jianxchen122@hotmail.com

收稿日期: 2001-05-14; 收到修改稿日期: 2001-06-19

态平衡,通过 DL-4 型真空计测量靶室内的真空度。激光的聚焦是由焦距为 320 mm、孔径为 35 mm 的非球面聚焦透镜和焦距为 350 mm、孔径为 50 mm 的双凸透镜完成的。激光和气体相互作用区的光斑直径约为  $140\ \mu\text{m}$ ,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。

### 3 实验结果与分析

#### 3.1 激光能量对氮气高次谐波辐射的影响

实验中,保持气压不变的情况下,入射激光能量分别为 9 mJ 和 40 mJ 时,测得的实验结果如图 2 和图 3 所示。从图 2 和图 3 可以看到,在激光能量较低时,谐波各级次的辐射强度较弱,但当激光强度足够高时,观察到的谐波级次在逐渐提高。

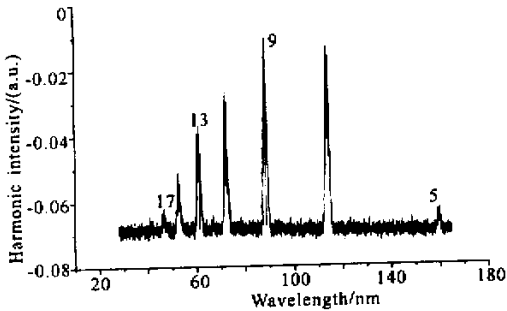


Fig. 2 The harmonic emission spectrum of Kr gas. The energy is 9 mJ, the pressure is 1.03 kPa

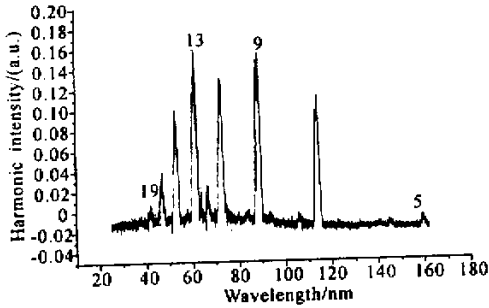


Fig. 3 The harmonic emission spectrum of Kr gas. The energy is 40 mJ, the pressure is 1.03 kPa

图 4 给出了激光能量为 9 mJ、25 mJ、36.5 mJ,气压为 1.03 kPa 时,氮气的第 7 次~第 17 次谐波的强度随着入射激光能量的变化。从图中可以看出,随着激光能量的提高,同次谐波信号增强。这说明要想得到较高次、较强的谐波辐射,入射激光能量不能太低。但并不是说,激光能量越高越好。其主要原因是,激光能量越高,气体就越容易电离,产生的自由电子就会越多,自由电子一旦增多,会直接导

致严重的相位失配,谐波辐射的转化效率就大大降低。在本实验中,由于激光能量不能再进一步提高,并没有观察到由于激光能量的提高,严重的相位失配导致的谐波辐射转化效率的降低。已经有文献对惰性气体的高次谐波辐射强度受激光能量的影响进行了报道<sup>[14,15]</sup>。

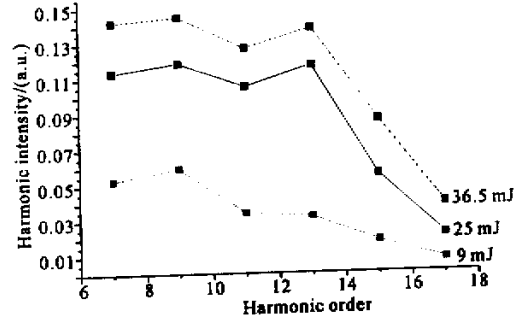


Fig. 4 The influence of different laser energy on the intensity of different harmonic order of  $\text{N}_2$

#### 3.2 气体密度对氮气谐波辐射的影响

在激光能量较低,如只有 9 mJ 时,氮气的第 7 次~第 17 次谐波随气体密度变化的规律基本相同,即随着气体密度的增大,谐波辐射的强度也随之提高,在气体密度从 0.14 kPa、0.25 kPa、1.03 kPa 到 2.13 kPa 变化过程中,谐波辐射的强度一直在提高,并没有出现最佳的气体密度值。其主要原因是:高次谐波辐射是一个相干辐射过程,其辐射的第  $q$  阶谐波的强度  $I_q$  与参与作用的离子数密度的平方成正比<sup>[16]</sup>。由于入射激光能量太低,气体电离的几率很小,即使气体密度增加,电子密度的大小也不会影响谐波信号的强度,在此条件下,谐波辐射强度正比于气体密度的平方。

当激光能量提高到 25 mJ、36.5 mJ、40 mJ 时,氮气的各级次谐波随气体密度变化的规律发生改变,氮气的第 7 次谐波随气体密度变化的规律并没有随激光能量的增加发生改变,仍然遵循着谐波辐射的强度随气体密度的增大而提高的规律。氮气的第 9 次谐波在激光能量为 25 mJ 时,与第 11 次~第 17 次相同,在气压为 1.03 kPa 时,谐波辐射最强,即出现了最佳的气体密度值,但当激光能量增加到 36.5 mJ 和 40 mJ 时,氮气的第 9 次谐波没有出现最佳的气体密度值,且谐波辐射的强度也没有随气体密度的增大而提高。当激光能量提高到 25 mJ、36.5 mJ、40 mJ 时,氮气的第 11 次~第 17 次谐波辐射在气压为 1.03 kPa 时,谐波辐射最强。图 5 给

出了激光能量为 36.5 mJ、气压为 1.03 kPa 时测得的谐波辐射。图 6 给出了激光能量为 36.5 mJ,氮气的第 7 次~第 17 次谐波辐射强度随气压的变化规律。从上面的实验结果可以看到,当激光强度达到一定值时,随着气体密度的增加,电子密度对谐波辐射的影响变得明显,也就是由于谐波在传播过程中相位失配的原因,使得谐波强度与离子数密度的关系复杂化,导致气体密度发生变化时,氮气的各级次谐波变化规律不同。

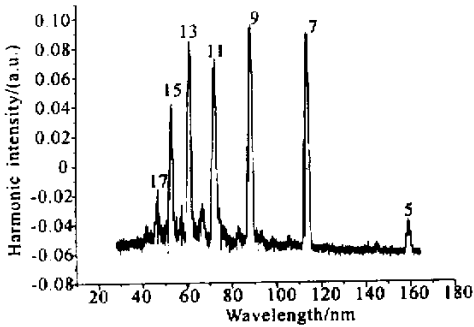


Fig. 5 The harmonic emission spectrum of Kr gas. The energy is 36.5 mJ, the pressure is 1.03 kPa

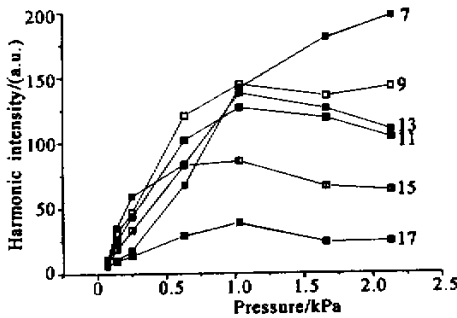


Fig. 6 The changeable laws of the harmonic intensity from the seventh to the seventieth order with different gas pressure. The laser energy is 36.5 mJ.

### 3.3 激光偏振对高次谐波辐射的影响

实验中,我们对气压为 1.03 kPa 和 0.63 kPa,激光能量为 32 mJ,抽运激光分别为线偏振和近圆偏振时氮的高次谐波信号进行了测量,如图 7~图 10 所示。从图中可以看到,在相同的激光能量和气压下,不同偏振对高次谐波的影响较大,在近圆偏振的情况下,各谐波信号的相对强度减弱,有的谐波信号已经观测不到。(说明:在图 8 和图 10 中,由于测量时激光器输出信号漂移较大,因此出现了除高次谐波以外的噪声)。

在以氮气为实验介质的同时,也进行了惰性气体

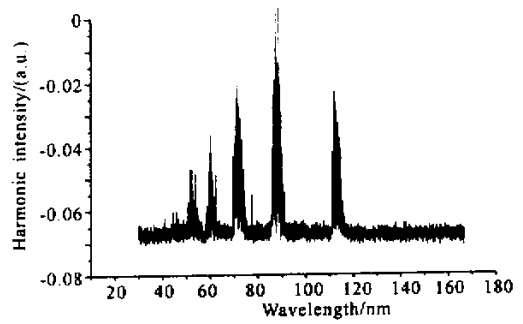


Fig. 7 The pumping laser is circular polarization, the laser energy is 32 mJ, the pressure is 1.03 kPa

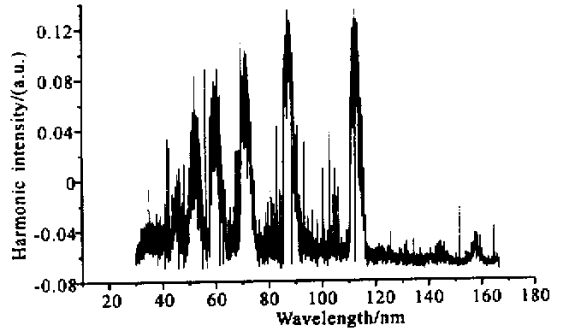


Fig. 8 The pumping laser is linearly polarization, the laser energy is 32 mJ, the pressure is 1.03 kPa

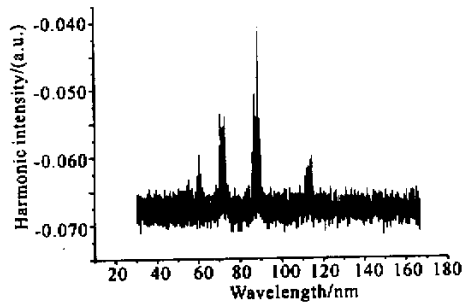


Fig. 9 The pumping laser is circular polarization, the laser energy is 32 mJ, the pressure is 0.63 kPa

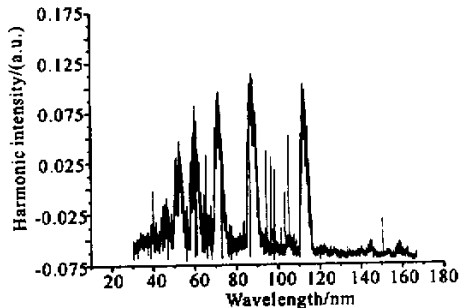


Fig. 10 The pumping laser is linearly polarization, the laser energy is 32 mJ, the pressure is 0.63 kPa

(He, Ne, Ar, Kr, Xe)的高次谐波实验,在实验中发现,所选用的介质对高次谐波的辐射影响不大。

结论 在激光与氮气的相互作用过程中,入射激光能量与气体密度对各级次高次谐波辐射强度是有影响的。这种影响并非单纯的线性关系。因此,要想得到较高次、较强的谐波辐射,有必要反复进行实验,确定最佳的激光能量和气体密度,以减少由于自由电子密度的提高而导致的相位失配的影响。

### 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] Zhou J, Peatross J, Murnane M M *et al.*. Enhanced high-harmonic generation using 25 fs laser pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 1996, **76**(5):752~755
- [3] 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
- [4] 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
- [5] Schnurer M, Spielmann C, Wobrauschek P *et al.*. Coherent 0.5-keV X-ray emission from helium driven by a sub-10-fs laser. *Phys. Rev. Lett.*, 1998, **80**(15):3236~3239
- [6] Qu Weixing, Yu Wei, Hu Suxing *et al.*. High-order Harmonics from two-level atoms in laser field with low-frequency. *Acta Physica Sinica*(物理学报), 1998, **47**(9):1458~1463(in Chinese)

- [7] Shen Baifei, Yu Wei, Zeng Guihua *et al.*. Harmonic generation due to relativistic effects. *Chinese Journal of Lasers*(中国激光), 1997, **A24**(3):242~246(in Chinese)
- [8] Wang Yingsong, Xu Zhizhan, Liu Yaqing *et al.*. Phase-matching effect in high-order harmonic generation. *Acta Optica Sinica*(光学学报), 2000, **20**(1):1~7(in Chinese)
- [9] Liu Yaqing, Xu Zhizhan, Zai Kai *et al.*. High-order harmonic generation in Ar noble gases. *Acta Optica Sinica*(光学学报), 2000, **20**(1):8~13(in Chinese)
- [10] Donnelly T D, Ditmire T, Neuman K *et al.*. High-order harmonic generation in atom clusters. *Phys. Rev. Lett.*, 1996, **76**(14):2472~2475
- [11] Chin S L, Golovinski P A. High harmonic generation in the multiphoton regime: correlation with polarizability. *J. Phys. (B)*, 1995, **28**(1):55~63
- [12] Chin S L, Liang L, Decker J E *et al.*. Tunnel ionization of diatomic molecules by an intense CO<sub>2</sub> laser. *J. Phys. (B)*, 1992, **25**(10):L249~L255
- [13] Liang Y, Augst S, Chin S L *et al.*. High harmonic generation in atomic and diatomic molecular gases using intense picosecond laser pulses: A comparison. *J. Phys. (B)*, 1994, **27**(20):5119~5130
- [14] Wang Yingsong, Xu Zhizhan, Liu Yaqing *et al.*. Phase-matching effect in high-order harmonic generation. *Acta Optica Sinica*(光学学报), 2000, **20**(1):1~7(in Chinese)
- [15] Xu Zhizhan, Wang Yingsong, Zhai Kan *et al.*. Direct experimental evidence of influence of ionizations on high-order harmonic generation. *Opt. Commun.*, 1998, **158**(12):89~92
- [16] Protopapas M, Keitel C H, Knight P L. Atomic physics with super intensity lasers. *Rep. Prog. Phys.*, 1997, **60**(4):389~486

## High Harmonic Generation in N<sub>2</sub> Using Intense fs Laser Pulses

Chen Jianxin Xia Yuanqin Yao Qin Wang Qi

(National Key Laboratory of Tunable Laser Technology, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001)

(Received 14 May 2001; revised 19 June 2001)

**Abstract:** The experimental results of high-order harmonic generation in diatomic molecular N<sub>2</sub> are presented. The effects of different gas density, different laser energy and different laser polarization on harmonic emission and harmonic order are mainly studied in the experiment. At the same time, the results are analyzed theoretically. It is indicated that the confirmation of the optimal gas density and the incident laser energy are needed in order to get the stronger harmonic emission and to avoid the phase mismatch caused by density increasing of the free electrons.

**Key words:** high-order harmonic generation; diatomic molecular N<sub>2</sub>; gas densities; incident laser energy