

文章编号: 0253-2239(2010)01-0304-06

氮气中非共线双光丝诱导的轴向三次谐波调制的实验研究

吴 洪 杨铁军 王燕玲 丁良恩

(华东师范大学物理系, 精密光谱科学与技术国家重点实验室, 上海 200062)

摘要 采用等频非共线双光丝诱导的方法, 在氮气中对轴向三次谐波光谱的调制进行了实验研究。其中光丝由中心波长 820 nm、脉宽 70 fs、重复频率 10 Hz、单脉冲能量分别为 3 mJ 和 7 mJ 的诱导光和激发光, 经凹面镜非共线聚焦到氮气样品池中形成。实验中发现, 当两束激光在时空交叠时, 激发光束轴向三次谐波光谱的强度、中心波长和谱宽强烈地依赖于双光束间的时间延迟和气压。伴随延迟量的变化, 实验中出现了光谱增强以及光谱加宽、变窄的现象。在氮气气压约为 0.16 MPa, 诱导光束超前约 20 fs 时, 非共线双光束激发可使激发光轴向三次谐波信号强度提高约 60 倍, 同时其谱宽由 15 nm 加宽至 25.8 nm, 频率带宽达 100 THz。

关键词 超快光学; 频谱展宽; 非线性效应; 等离子体通道; 三次谐波; 谐波增强

中图分类号 O437.5 文献标识码 A doi: 10.3788/AOS20103001.0304

Experimental Research on the Modulation of On-Axis Third Harmonic induced by Dual Non-Collinear Filaments in Nitrogen Gas

Wu Hong Yang Tiejun Wang Yanling Ding Liang'en

(State Key Laboratory of Precision Spectroscopy, Department of Physics, East China Normal University, Shanghai 200062, China)

Abstract A third harmonic generation method using dual non-collinear laser filaments of equal wavelength was applied to experimentally study the spectral properties of the on-axis third harmonic generation in nitrogen gas. The filaments were generated by non-collinear focusing two beams with 820 nm of central wavelength, 70 fs of duration, 10 Hz of repetition, 3 mJ and 7 mJ of single pulse energy into a nitrogen gas cell, using a concave mirror. When the two laser beams were overlapped both in time and space, the intensity, central wavelength and spectral width of the harmonic signal were found to be strongly dependent on the gas pressure and time delay of the two fundamental beams. The enhancement, spectral broadening/narrowing of the third harmonic spectra were observed when changing the time delay of the two fundamental beams. When the pressure of nitrogen gas about 0.16 MPa, and the inducing beam advanced the stimulating beam of about 20 fs, the on-axis third harmonic signal on the stimulating beam side was enhanced of about 60 times, while its spectral width was broadened from 15 nm to 25.8 nm, and 100 THz in frequency domain.

Key words ultrafast optics; spectral broadening; nonlinear effects; plasma channel; third harmonic; harmonic enhancement

收稿日期: 2009-03-23; 收到修改稿日期: 2009-04-08

基金项目: 国家 973 计划(2006CB0806001)、教育部长江学者和创新团队发展计划和上海市重点学科建设项目(B408)资助课题。

作者简介: 吴 洪(1980—), 男, 博士研究生, 主要从事超快强激光技术方面的研究。E-mail: wuhong@ecnu.cn

导师简介: 丁良恩(1949—), 男, 研究员, 博士生导师, 主要从事超快强激光技术和量子信息光学等方面的研究。

E-mail: leding@phy.ecnu.edu.cn

1 引 言

气体中三次谐波产生 (THG)^[1,2] 是一种基本的光学频率非线性转换过程,被认为是一种得到高亮度、高相干紫外和 X 射线光源^[3] 非常有前景的途径,引起了研究者的极大兴趣。然而对许多应用来说,获得高谐波转换效率仍是一种挑战。为了提高三次谐波 (TH) 的转换效率,人们已经使用了多种方法,比如在预激发的气体^[4] 中,或利用分子气体中的瞬态双折射现象^[5,6] 来获得谐波增强。Chen 等^[7,8] 报道了在团簇气体中实现了三次和五次谐波的增强。近年来,光丝中的谐波产生和增强^[9,10] 现象得到了研究和发展。实验^[11,12] 和理论^[13,14] 上已经证明,光丝的产生主要受制于光学克尔透镜效应和由多光子电离所产生的低密度等离子体的散焦效应。这两种机制的动态平衡可产生直径只有几十到几百微米的长等离子体通道,并将光丝中的光强限制在约 $5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ^[15,16], 足以支持三次及更高次谐波的产生^[17]。一般而言,在谐波产生过程中,紧聚焦有助于获得高的功率密度,但也同时导致了很短的作用长度。而谐波转换效率不仅依赖于激光强度,也受到有效作用长度的制约。在成丝过程中,基波强度受到钳制,其光场相位也呈现缓变趋势,进而导致三次谐波和基波之间出现相位锁定^[18], 这使得有效作用长度得到延长。所以从激发光强和作用长度这两个意义上说,气体中光丝的形成有利于三次谐波的产生,可以提高谐波转换效率。

然而,光丝中实际得到的三次谐波转换效率并不是常数,虽然总效率在基频光入射功率较低时能达到约 0.3%^[18]; 但当激发光功率比自聚焦阈值功率高许多倍时,转换效率反而开始下降,且产生的三次谐波演化为空间上分离的两部分,即轴向的光斑和围绕轴向光斑的环状结构。在这种情形下,随着激发光功率的提高,环状三次谐波的饱和转换效率约为 10^{-4} , 但轴向三次谐波的转换效率仅为 $10^{-6} \sim 10^{-5}$ ^[17,19]。由此可见,提高三次谐波转换效率(尤其是轴向三次谐波)不能通过一味地增加基频光的功率来实现。

最近, Hartinger 和 Bartels^[20] 采取等频双光束非共线聚焦的方案,利用较强的光束诱导等离子体,对探测光及其三次谐波间的相位失配进行扰动,改变双光束时间延迟和背景气压等条件,在 SF_6 , CO_2 和 N_2O 等气体中实现了探测光的三次谐波增强。但当两束激光在时空上交叠时,谐波的增强现象涉及到与分子取向^[21] 有关的延迟克尔效应^[22] 和光丝相干的空间调制^[23~26] 等效应,显得复杂而多变,理

论解释有待进一步深入研究。

我们使用两束等频飞秒激光在氮气样品池中非共线聚焦分别成丝,其中选取了全强度的 30% 作为诱导光束,剩余的 70% 作为激发光束,并对激发光束轴向的三次谐波进行了实验研究。重点研究了双光束时间延迟和背景气压对激发光束轴向三次谐波调制的影响。实验发现,激发光束轴向三次谐波的强度可增加近 60 倍,同时其带宽 (FWHM) 可从约 66 THz (15 nm) 显著加宽至约 100 THz (25.8 nm)。结果表明,非共线双光丝激发方案对氮气中轴向三次谐波具有明显的增强和调制作用,谐波的频谱特性也得到很大改善,显示了其在高亮度短脉冲紫外光源产生方面的潜在前景。

2 实验设置

实验光路如图 1 所示,改造过的钛宝石 (Ti:sapphire) CPA 激光系统^[27,28] 输出中心波长 820 nm、脉宽 70 fs (FWHM)、重复频率 10 Hz、单脉冲能量 10 mJ 的线偏振激光脉冲,经分束片 (BS) 以 3:7 的比例分成两束,其中反射光 (单脉冲强度 3 mJ, 作为诱导光) 经过精密光学延迟线 DS (精度 $0.1 \mu\text{m}$, 驱动电机: LTA-HS, Newport, Inc.) 上的直角镜,与透射光 (单脉冲强度 7 mJ, 作为激发光) 由焦距 $f=0.75 \text{ m}$ 的凹面镜 (CM), 以 6.7 mrad 的夹角入射到 84 cm 长的氮气样品池中。实验中的零延迟点通过使用一块 0.3 mm 厚的 BBO 晶体,以和频的方式确定。样品池的两端用 0.5 mm 厚的布儒斯特角紫外石英窗片密封,其后放置了三块中心波长 266 nm, 45° 紫外高反镜来抑制基波信号。在紫外高反镜的后面安装了一个光阑 A 以阻挡谐波的环状结构,并使激发光束谐波的轴向部分通过,实验中所有的测量均在这一侧进行。在探测前预先使用焦距 $f=15 \text{ cm}$ 的熔石

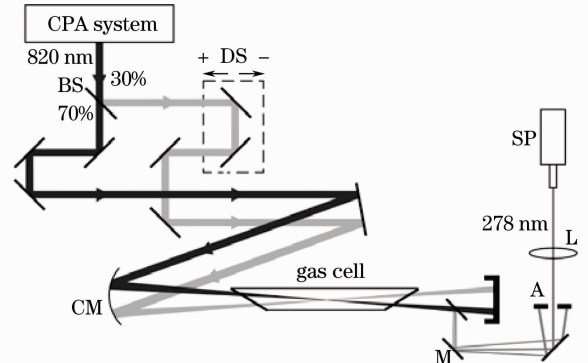


图 1 实验装置简图

Fig. 1 Schematic diagram of the experimental setup

英透镜 L 对谐波信号进行聚焦,将 TH 谐波焦斑直径控制在几十微米,以保证激发光束轴向的谐波信号能耦合进光纤光谱仪 (SP) (HR2000, Ocean Optics, Inc.) 的探头。

3 实验结果及讨论

氮气中的自聚焦阈值功率约为 3 GW (0.1 MPa 下)^[18], 而实验选取的诱导光束和激发光束的峰值功率分别达到了约 43 GW 和 100 GW, 所以两束光均能分别产生光丝。激发光束单独注入时, 可以观察到在氮气中产生了长约 20 cm 的明亮光丝。借助于荧光纸屏, 可以在谐波分离镜 M 与光阑 A 之间观察到典型的轴向和环状结构。当诱导光入射到氮气池中, 并和激发光束在时间和空间上交叠时, 样品池中的光丝和纸屏上的荧光变得更亮; 通过 HR2000 光纤光谱仪则观察到了显著的谐波信号增强。零延时和 0.16 MPa, 两种情况下的典型谐波光谱如图 2 所示。图中, 激发光束单独作用时的谐波峰值为 0.15, 而双光束共同作用时的谐波峰值为 10, 出现了显著的增强。由于缺乏灵敏可靠的紫外功率计或校准过的光电倍增管^[17,29], 相对强度是通过在频域内将光谱信号积分获得的^[30]。增强倍数 α 被定义为

$$\alpha = E_{\text{dual}}/E_{\text{single}}$$

式中 E_{dual} 为双光束时的 TH 能量, E_{single} 为激发光束单独作用时的 TH 能量, 则对应图 2, 强度增强达到约 67 倍。这里由于谱线形状相似, 所以相对强度的比值近似于谱线峰值比。通过阻挡激发光束的方法, 验证了仅有诱导光时对观测到的三次谐波产生

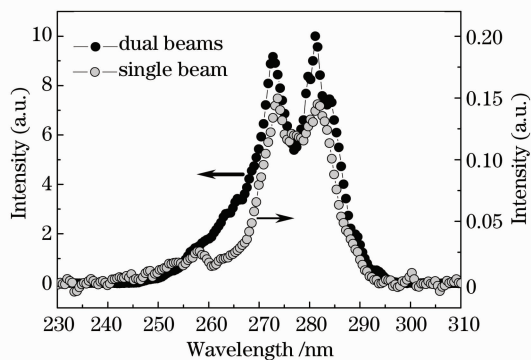


图 2 0.16 MPa, 零延时下双光束和单激发光束产生的典型三次谐波光谱

Fig. 2 Typical spectra of the TH respectively generated by dual beams and single stimulating beam with about 0.16 MPa gas pressure and zero relative time delay

并无贡献。

3.1 谐波光谱和延时的关系

通过改变图 1 中的光学延迟线 DS, 对激发光束轴向谐波与双光束延迟间的关系进行了实验研究。图 3 是实验获得的双光束延时和激发光束轴向谐波强度、中心波长与带宽的关系, 误差主要来自于基频光的抖动。当诱导光在时间上超前于激发光束时, 延时为正, 反之延时为负。图 3(a) 中的强度是将光谱在频域内积分获得的。注意到激发光束轴向三次谐波的强度受到延时的强烈调制, 其中最大的轴向谐波信号出现在 $\tau \approx 0$ 附近。而在大延迟 (如 ± 400 fs) 情形下, 图 3(a) 的右侧明显较左侧强, 其强度比值达到 5.8 倍。对应大的正延迟, 诱导光显著超前于激发光, 激发光仅能与诱导光产生的等离子体通道相遇; 而在大的负延迟时, 激发光束显著超前于诱导光, 无法与诱导光或其等离子体通道相互作用, 此时接收到的谐波信号和仅有激发光束时无法区分。图 3(a) 中两翼的差别表明预制备的等离子体通道对三次谐波存在增强作用, 此结论和文献^[20]一致。

在稳定的两翼之间, 光谱的强度和谱宽更加复杂多变。在频域内, 选取使两侧积分值相等的位置作为中心波长, 可以得到谐波中心波长和延时的关系 [图 3(b)]; 图 3(c) 则显示了相应的带宽变化。伴随延迟量的变化, 观察到了光谱增强以及光谱加宽、变窄的现象。可以发现中心波长和带宽的变化规律

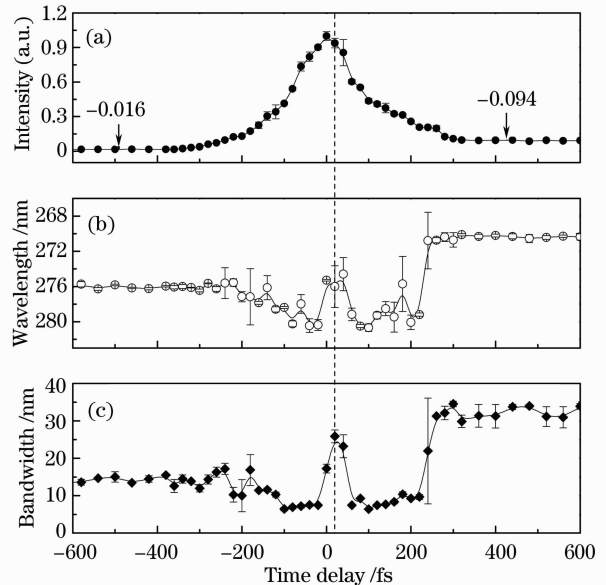


图 3 轴向三次谐波的强度 (a)、中心波长 (b) 以及带宽 (c) 和延迟的关系

Fig. 3 Relative intensity (a), central wavelength (b) and bandwidth (c) of on-axis third harmonic wave versus time delay

基本一致,当改变延时导致谐波中心波长红移时,谐波的谱宽减小;当谐波中心波长蓝移时,相应的谱宽增加。大的正延迟阶段,谐波的谱宽最宽,中心波长的蓝移也最明显,但此时强度较低。而在延时 20 fs 处的谐波谱宽达到了 25.8 nm,光强则接近最大。

随着诱导光束的逐渐超前,轴向谐波信号的谱宽和中心波长均发生改变。延时 400 fs 时,谐波信号的谱宽达到 30 nm,底部覆盖了从 250~290 nm 的范围。从谱宽和强度两方面综合考虑,图中诱导光超前 20 fs 处(图 3 中虚线位置)的信号是最优的。

图 4 选取了改变延迟时部分有代表性的光谱,

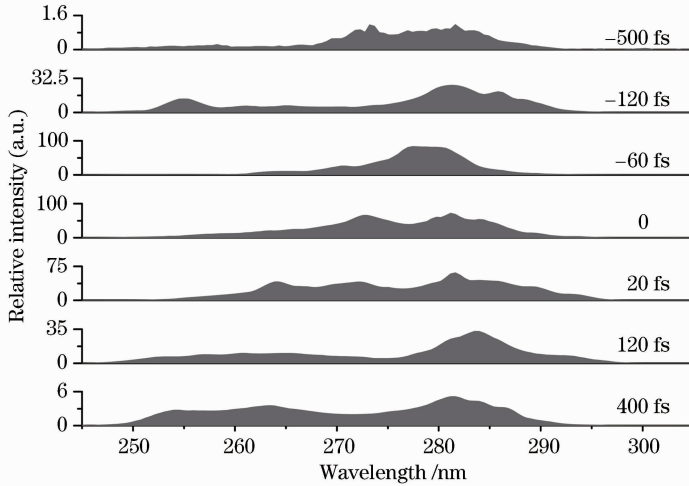


图 4 不同延时下的部分典型光谱

Fig. 4 Some typical on-axis third harmonic spectra at different time delay

3.2 谐波光谱和增强随背景压强的变化

背景压强的改变影响着三次谐波产生中的相位匹配和气体的非线性系数。图 5 显示了使用 $f=0.75$ m 聚焦镜时,在不同背景压强下测得的零延时谐波光谱信号。实验中样品池的气压可以在

0.1~0.2 MPa 的范围内变化。从图中可以看出双光束条件下的谐波谱宽比单光束情形一般要宽,且存在一定的蓝移。由于等离子体通常对光丝中的谱线蓝移有很大贡献,结果表明等离子体通道在等频双光束非共线聚焦的三次谐波调制现象中起重要作用。

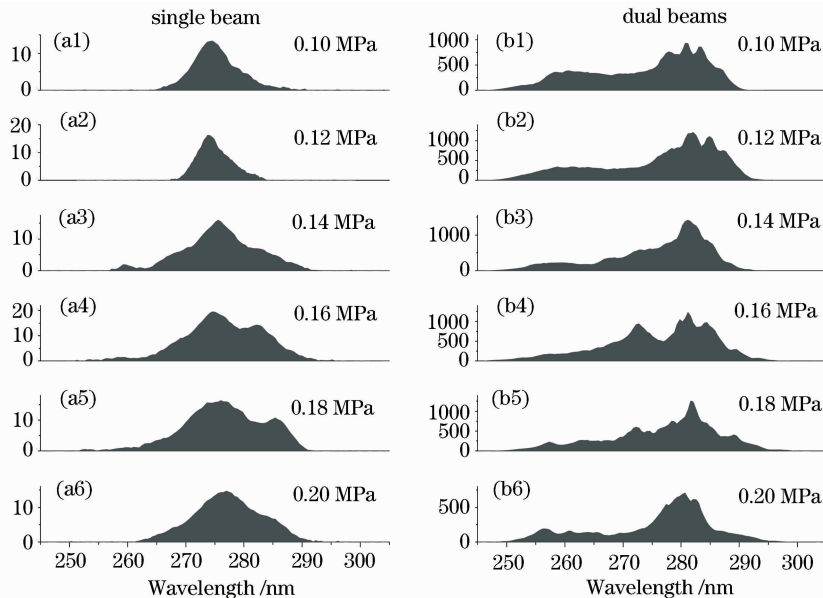


图 5 不同氮气池气压条件下记录到的谐波光谱。单激发光束(a1)~(a6)和双光束(b1)~(b6)的情形

Fig. 5 Recorded third harmonic spectra in nitrogen gas cell at different gas pressure. The pictures represent the results of single stimulating beam (a1)~(a6) and dual-beam (b1)~(b6) conditions

从图 5 中得到背景压强和谐波强度之间的关系如图 6(a) 所示。图中显示出高倍率的增强, 误差的来源主要是入射红外基频光的波动。两条曲线所表现出的趋势存在较大差异, 注意到单激发光束轴向谐波信号在 0.16 MPa 时达到最大值(约 0.85), 而双光束谐波信号则在 0.12~0.16 MPa 的范围内达到最大(约

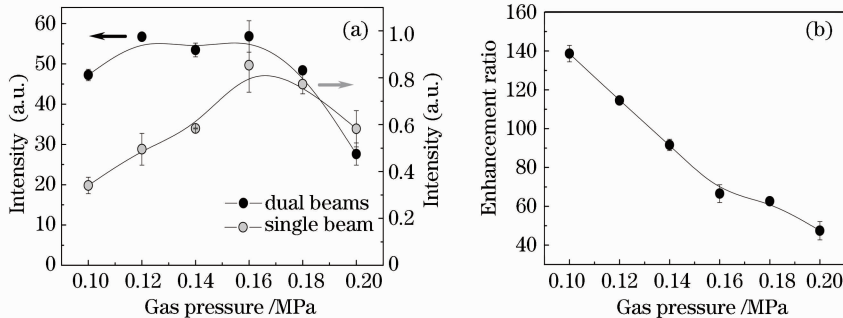


图 6 (a)单激发光束/双光束脉冲谐波能量和气压之间的关系;(b)增强因子随气压的变化

Fig. 6 (a) Energy of TH emission respectively generated by single stimulating beam and dual beams as a function of pressure; (b) Enhancement ratio as a function of gas pressure

4 结 论

采用等频双光束非共线聚焦成丝方法, 在氮气中进行了轴向三次谐波调制的实验研究。在氮气气压为约 0.16 MPa、诱导光超前激发光约 20 fs 时, 获得最佳轴向三次谐波信号, 其强度较单激发光束提高近 60 倍, 同时谐波谱宽由 15 nm 展宽至 25.8 nm, 对应频域带宽达 100 THz, 为支持超短紫外激光脉冲的产生提供新的途径。

实验同时发现, 两束激光在时空交叠区内的强度-延迟曲线半峰全宽位置对应着延迟约 ± 100 fs, 和入射激光的脉宽大体相当; 激发光束轴向的三次谐波光谱受到强烈的调制。伴随延迟量的变化, 观察了光谱增强以及光谱加宽、变窄的现象。这表明光场之间的相互作用在激发光束轴向谐波的调制过程中起重要作用。但目前对该时空交叠区光谱调制现象涉及到分子取向和光丝空间调制, 其分析需要开展更深入细致的理论和实验工作。

参 考 文 献

- Zhong Fangchuan, Hu Xueyuan, Deng Jian *et al.*. Third harmonic generation in air through interaction with ultrashort intense laser pulses[J]. *Acta Optica Sinica*, 2002, **22**(1): 10~13
- 钟方川, 胡雪原, 邓健等. 超短强激光作用下空气的三次谐波辐射[J]. *光学学报*, 2002, **22**(1): 10~13
- Zhu Changjun, Qin Yuandong, Yang Hong *et al.*. Third-order harmonic generation in atmospheric air with focused intense femtosecond laser pulses[J]. *Chin. Phys. Lett.*, 2001, **18**(1):

56)。图 6(b) 显示在同样的气压范围内的增强比例变化, 当气压从 0.1 MPa 增加至 0.2 MPa 时, 由于 0.10~0.16 MPa 范围内主激发光束谐波强度的增加, 以及 0.16~0.2 MPa 范围内谐波强度的同步减小, 增强比例迅速从 139 下降至 47。其中 0.16 MPa 的情形对应着图 2 的实验结果。

- 57~59
- E. J. Takahashi, T. Kanai, K. L. Ishikawa *et al.*. Coherent water window X-ray by phase-matched high-order harmonic generation in neutral media [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2008, **101**(25): 253901
- A. B. Fedotov, A. N. Naumov, V. P. Silin *et al.*. Third-harmonic generation in a laser-pre-excited gas: the role of excited-state neutrals[J]. *Phys. Lett. A*, 2000, **271**(7): 407~412
- R. A. Bartels, N. L. Wagner, M. D. Baertschy *et al.*. Phase-matching conditions for nonlinear frequency conversion by use of aligned molecular gases[J]. *Opt. Lett.*, 2003, **28**(5): 346~348
- K. Hartinger, S. Nirmalgandhi, J. Wilson *et al.*. Efficient nonlinear frequency conversion with a dynamically structured nonlinearity[J]. *Opt. Express*, 2005, **13**(18): 6919~6930
- Y. M. Chen, M. Y. Hsu, Y. H. Hsieh *et al.*. Enhancement of high-harmonic generation by laser-induced cluster vibration[J]. *Opt. Lett.*, 2007, **32**(18): 2714~2716
- C. C. Kuo, C. H. Pai, M. W. Lin *et al.*. Enhancement of relativistic harmonic generation by an optically preformed periodic plasma waveguide[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2007, **98**(3): 033901.1
- N. Kortsalioudakis, M. Tatarakis, N. Vakakis *et al.*. Enhanced harmonic conversion efficiency in the self-guided propagation of femtosecond ultraviolet laser pulses in argon[J]. *Appl. Phys. B*, 2005, **80**(2): 211~214
- H. R. Lange, A. Chiron, J. F. Ripoche *et al.*. High-order harmonic generation and quasiphase matching in xenon using self-guided femtosecond pulses[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1998, **81**(8): 1611~1613
- H. Yang, J. Zhang, W. Yu *et al.*. Long plasma channels generated by femtosecond laser pulses[J]. *Phys. Rev. E*, 2001, **65**(1): 016406
- S. L. Chin, F. Theberge, W. Liu. Filamentation nonlinear optics[J]. *Appl. Phys. B*, 2007, **86**(3): 477~483
- P. Sprangle, J. R. Penano, B. Hafizi. Propagation of intense short laser pulses in the atmosphere[J]. *Phys. Rev. E*, 2002, **66**(4): 046418
- T. A. Pitts, T. S. Luk, J. K. Gruetzner *et al.*. Propagation of

- self-focusing laser pulses in atmosphere: experiment versus numerical simulation[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2004, **21**(11): 2008~2016
- 15 J. Kasparian, R. Sauerbrey, S. L. Chin. The critical laser intensity of self-guided light filaments in air[J]. *Appl. Phys. B*, 2000, **71**(6): 877~879
- 16 A. Becker, N. Aközbeek, K. Vijayalakshmi *et al.*. Intensity clamping and re-focusing of intense femtosecond laser pulses in nitrogen molecular gas [J]. *Appl. Phys. B*, 2001, **73**(3): 287~290
- 17 F. Théberge, N. Aközbeek, W. Liu *et al.*. Third harmonic beam profile generated in atmospheric air using femtosecond laser pulses[J]. *Opt. Commun.* 2005, **245**(1-6): 399~405
- 18 N. Aközbeek, A. Iwasaki, A. Becker *et al.*. Third-harmonic generation and self-channeling in air using high-power femtosecond laser pulses [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2002, **89**(14): 143901
- 19 M. Kolesik, E. M. Wright, A. Becker *et al.*. Simulation of third-harmonic and supercontinuum generation for femtosecond pulses in air[J]. *Appl. Phys. B*, 2006, **85**(4): 531~538
- 20 K. Hartinger, R. A. Bartels. Enhancement of third harmonic generation by a laser-induced plasma[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2008, **93**(15): 151102
- 21 F. Calegari, C. Vozzi, S. Gasilov *et al.*. Rotational raman effects in the wake of optical filamentation[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2008, **100**(12): 123006
- 22 N. Aközbeek, M. Scalora, C. M. Bowden *et al.*. White-light continuum generation and filamentation during the propagation of ultra-short laser pulses in air [J]. *Opt. Commun.* 2001, **191**(3-6): 353~362
- 23 T. T. Xi, X. Lu, J. Zhang. Interaction of light filaments generated by femtosecond laser pulses in air [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2006, **96**(2): 025003
- 24 Y. Y. Ma, X. Lu, T. T. Xi. Filamentation of interacting femtosecond laser pulses in air[J]. *Appl. Phys. B*, 2008, **93**(2-3): 463~468
- 25 Y. Y. Ma, X. Lu, T. T. Xi *et al.*. Potential fields of merging and splitting filaments in air[J]. *Chin. Phys.*, 2007, **16**(9): 2731~2736
- 26 A. A. Ishaaya, T. D. Grow, S. Ghosh *et al.*. Self-focusing dynamics of coupled optical beams[J]. *Phys. Rev. A*, 2007, **75**(2): 023813
- 27 Liang Min, Li Wenxue, Hu Wanyue *et al.*. Studies on 5 TW/40 fs table-top Ti:sapphire laser system[J]. *Acta Optica Sinica*, 2006, **26**(1): 81~85
梁 敏,李文雪,胡婉约 等. 5 TW /40 fs 级台式钛宝石激光系统研究[J]. *光学学报*, 2006, **26**(1): 81~85
- 28 Hu Wanyue, Wang Eryu, Li Wenxue *et al.*. Aberration-free stretcher based on concentric diffraction for sub-10 fs pulses[J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, **27**(1): 181~186
胡婉约,王二玉,李文雪 等. 适用于亚 10 fs 的共心衍射无像差展宽器[J]. *光学学报*, 2007, **27**(1):181~186
- 29 F. Théberge, N. Aközbeek, W. Liu *et al.*. Conical emission and induced frequency shift of third-harmonic generation during ultrashort laser filamentation in air[J]. *Opt. Commun.*, 2007, **276**(2): 298~304
- 30 S. A. Trushin, S. Panja, K. Kosma *et al.*. Supercontinuum extending from >1000 to 250 nm, generated by focusing ten-fs laser pulses at 805 nm into Ar[J]. *Appl. Phys. B*, 2005, **80**(4): 399~403