

# 飞秒强激光脉冲驱动 Ne 高次谐波蓝移产生相干可调谐极紫外光实验研究\*

卢发铭<sup>1)</sup> 夏元钦<sup>1)†</sup> 张盛<sup>2)</sup> 陈德应<sup>1)</sup>

1) (哈尔滨工业大学可调谐激光技术国家级重点实验室, 哈尔滨 150080)

2) (哈尔滨工业大学物理系, 哈尔滨 150080)

(2012年6月5日收到; 2012年7月19日收到修改稿)

本文对不同气压以及入射激光强度下 Ne 相位匹配高次谐波的光谱蓝移特性进行了实验研究. 利用气体盒装置, 在谐波平台区域获得最大谐波蓝移为 0.13 nm, 在谐波截止区获得的最大蓝移为 0.07 nm. 实验结果表明, 通过调节气体盒内气压以及入射激光强度, 即改变气体盒中自由电子密度, 有利于实现高次谐波光谱蓝移.

**关键词:** 飞秒激光, 高次谐波, 蓝移, Ne

**PACS:** 42.65.Ky, 32.80.Fb, 42.50.Hz

**DOI:** 10.7498/aps.62.024212

## 1 引言

飞秒激光与原子、分子非线性相互作用产生的高次谐波在时间和空间上具有良好的相干性, 是一种很有应用前景的真空紫外 (vacuum ultraviolet, VUV) 以及极紫外光源 (extreme ultraviolet, XUV)<sup>[1]</sup>. 高次谐波的相干性以及脉冲持续时间短等特点使其应用于诸多研究领域: 非线性光学<sup>[2]</sup>, 分子成像<sup>[3]</sup>, 超快分子动力学<sup>[4,5]</sup>等. 高次谐波产生过程可以用经典的三步模型<sup>[6]</sup>进行描述: 首先, 超短强激光脉冲与原子相互作用时激光场会极大改变原子内部的库伦势, 使束缚电子在激光作用下量子隧穿已经扭曲的库伦势垒进入连续态; 随后被电离出的自由电子在激光场中被加速或者减速; 最后, 当激光场反向时会驱动自由电子返回母体离子, 并与其发生碰撞复合, 同时辐射出高能光子. 发射的谐波光子能量等于原子电离能以及自由电子在激光场中振荡获得的动能之和, 可以获得的最大的谐波光子能量为  $I_p + 3.17U_p$ , 其中  $I_p$  为原子电离能,  $U_p$  为优质动力势. 由于这种辐射每半个光学周期重复一次,

所以辐射出的光谱呈现出基频光频率奇数倍的频率梳.

微观上, 高次谐波过程依赖于产生的量子路径, 比如谐波经由短轨道或长轨道产生; 宏观上, 基频光与谐波光间的位相匹配, 气体介质电离等会影响高次谐波的转换效率. 其中, 谐波蓝移是 Lewenstein 模型中所预言的气体介质电离的一个重要结果<sup>[7]</sup>. 因此, 我们不必改变飞秒激光光谱即可实现调谐过程. 原理上, 通过高次谐波的蓝移我们可以获得可调谐的相干极紫外光源<sup>[8-12]</sup>. Wahlström 等人研究了脉冲阀产生 Ar 和 Xe 高次谐波辐射的蓝移. 当改变飞秒激光功率密度, Xe 高次谐波在 52 nm 波段移动了 0.15 nm. 此外, 通过改变充气气压, 在上述波段获得在 0.23 nm 蓝移. 当 Ar 作为气体介质时, 通过改变飞秒激光强度, 获得展宽的 19 次高次谐波谱<sup>[8]</sup>. Wahlström 等人认为, 气体介质电离时其折射率会发生变化, 这使得在电离介质中传输的激光产生光谱调制, 即自相位调制 (self-phase modulation, SPM); 而谐波蓝移正是这种自相位调制的结果. 然而, Kan 等<sup>[9]</sup>研究表明由于谐波位相对激光强度具有依赖性, 那么原子对激光场的非绝热响应使得在

\* 国家自然科学基金 (批准号: 10774033) 资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: xiayuanqin@hit.edu.cn

快速增加的激光电场中会发生谐波蓝移现象. 随后, Shin 等<sup>[10]</sup>在实验上首次获得 Ar 高次谐波的非绝热蓝移. Altucci 等<sup>[11]</sup>通过改变脉冲阀相对于激光焦点的位置, 实现对低于 20 nm 波段的谐波辐射的连续调谐. 因此, 通过精确控制高次谐波的蓝移过程, 我们能获得可调谐相干短波长 XUV 光源. 目前, 多数研究小组采用脉冲阀装置, 但是脉冲阀的重复频率低, 限制了对高重频激光脉冲的使用. 此外, 采用脉冲阀装置难以精确估算气体密度. 与脉冲阀相比, 在气体盒内容易获得高的气体密度. 而且, 气体盒可以增加激光与气体的相互作用区域, 提高谐波光子通量, 有利于获得强的高次谐波辐射. Reitze 等<sup>[12]</sup>结合整形激光脉冲和进化策略算法获得气体盒中 Ar 高次谐波波长的调谐, 并且提高了谐波光子通量. 据我们所知, 目前未见有关气体盒中 Ne 高次谐波蓝移研究结果的报道.

利用气体盒装置, 本文研究了 Ne 高次谐波 17—32 nm 波段辐射光谱的蓝移特性. 通过对激光强度以及充气气压的调节, 在平台区实现谐波的最大蓝移为 0.13 nm. SPM 是导致光谱蓝移的主要原因. 实验结果表明改变气压和入射激光强度即可获得连续的谐波蓝移, 从而实现连续可调谐的相干 XUV 辐射.

## 2 实验装置

高次谐波辐射实验装置主要由飞秒激光系统, 真空靶室以及软 X 射线平场光栅谱仪组成, 装置如图 1 所示. 实验所采用的激光系统为 Coherent 公司的掺钛蓝宝石飞秒激光系统, 输出激光的中心波长 800 nm, 能量为 1.65 mJ, 脉宽 40 fs, 激光重复频率为 1 kHz. 激光由焦距为 400 mm 的透镜聚焦于 5 mm 长气体盒中. 与气体样品发生作用. 相互作用区域激光功率密度约为  $2.40 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ . 我们采用真空波纹管把气体样品导入气体盒中, 通过调节靶室外的微调阀旋钮, 可以精确控制充气气压. 此外, 数字真空计可以实时监测输入的气压值. 气体盒两端采用薄铜片密封, 由于气体盒位于激光焦点附近, 所以聚焦的飞秒激光在气体盒前后表面的铜片上打出两个小孔. 飞秒激光与气体样品相互作用产生的高次谐波与飞秒激光一起通过小孔, 经由分辨率为 0.01 nm 的软 X 射线平场光栅谱仪成像于 CCD 相机, 最后由计算机进行图像采集. 位于真空靶室与平场光栅谱仪间厚度为 500 nm 的铝膜, 可

以滤除 800 nm 基频光, 防止 CCD 发生饱和, 并允许波长大于 17 nm 的谐波光子透过.

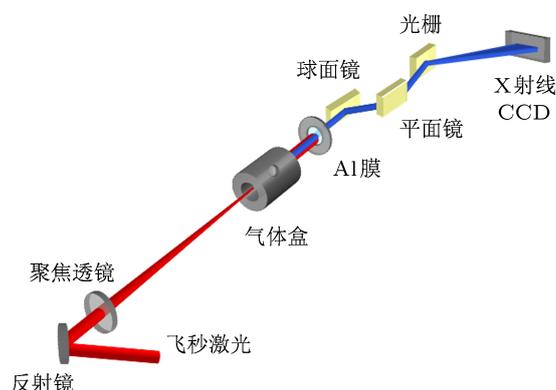


图 1 产生高次谐波辐射光谱蓝移的实验装置图

## 3 实验结果与讨论

图 2 为典型的 Ne 高次谐波辐射光谱, 高次谐波级次为 25—47 次, 相应的波长范围为 32—17 nm. 从图中可以看出, 由于铝膜的吸收边效应, 导致波长短于 17 nm 的谐波光子无法通过铝膜, 因此实验获得的最高谐波级次为 47 次.

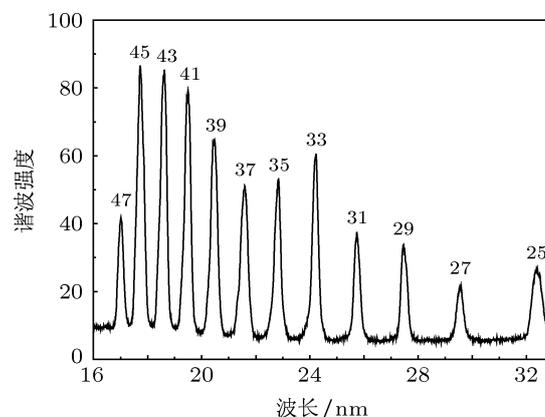


图 2 Ne 高次谐波辐射光谱, 激光强度为  $I = 2.40 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , 气压为 28.0 Torr (1 Torr =  $1.33322 \times 10^2 \text{ Pa}$ )

### 3.1 充气气压对高次谐波蓝移的影响

图 3 为 25—47 次高次谐波强度随充气气压的变化关系, 充气气压分别为 7.6 Torr, 17.7 Torr, 28.0 Torr, 34.7 Torr, 48.0 Torr, 56.0 Torr, 68.2 Torr, 激光强度均为  $I = 2.40 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ . 考虑到真空靶室内过高的气体压强会损坏真空分子泵以及电离真空计, 因此实验过程中充气气压不高于 70.0 Torr. 从图中可以看出, 各级次谐波对气压的依赖性展现出相似的变化, 只是不同的谐波级次有不同的优化气

压值.

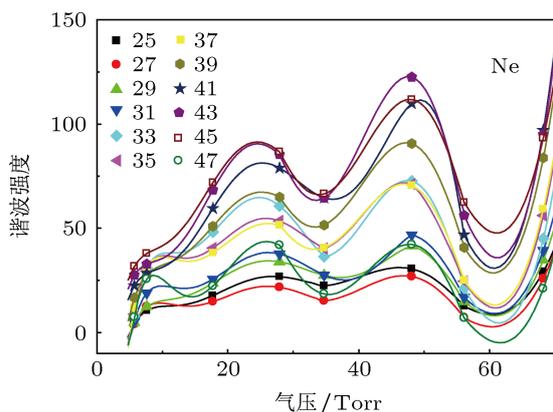


图3 25—47次高次谐波辐射强度随充气气压的变化

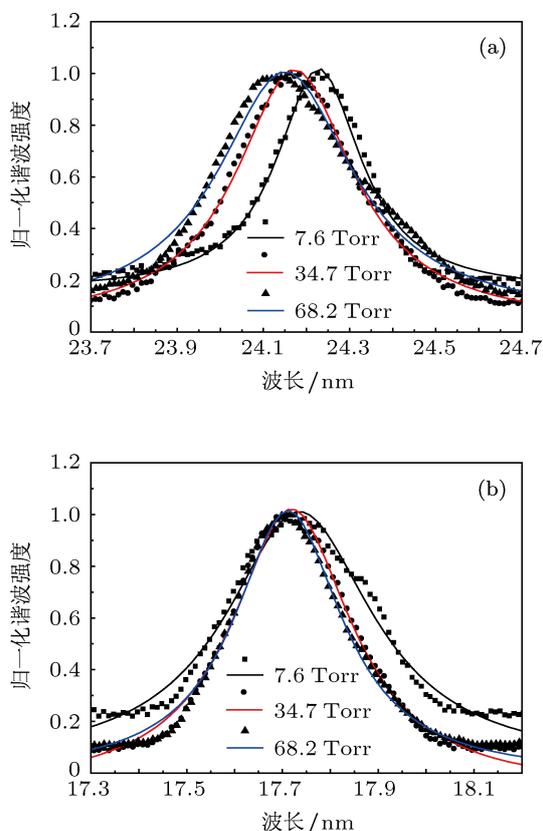


图4 Ne的(a)33次和(b)45次谐波在不同气压条件下的归一化强度光谱分布,激光强度为 $I = 2.40 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$

当充气气压超过 50.0 Torr 时, 谐波强度呈降低趋势. 导致谐波强度随气压的增加而下降的原因是: 由于自由电子位相匹配效应会直接影响谐波的转换效率, 增加气压值会产生大量的自由电子, 一方面有助于增强高次谐波辐射, 另一方面大量的自由电子会导致气体介质折射率发生变化, 使得聚焦激光散焦, 降低了焦点附近的激光功率密度, 减小高次谐波强度. 一旦气压超过最优气压值, 气体电

离产生过多的自由电子, 引起自由电子位相失配, 从而降低了高次谐波的转换效率. 此外, 过高的气压产生的气体色散效应也会使谐波位相失配, 进一步降低谐波辐射强度.

产生高次谐波蓝移的原因有两个: 激光脉冲在气体电离介质中传输时产生的自相位调制 (SPM) 导致谐波发生蓝移; 此外, 快速增加的激光电场产生非绝热效应也会引起谐波蓝移现象.

我们研究了充气气压对 Ne 的平台区和截止区高次谐波光谱蓝移的影响. 图 4 为强度归一化的谐波光谱随充气气压的变化关系, 谐波光谱进行强度归一化是为了更清晰显示谐波的移动范围. 图 4(a) 对应 33 次谐波, 代表平台区, (b) 对应 45 次谐波, 代表截止区; 充气气压分别为 7.6 Torr, 34.7 Torr, 68.2 Torr, 激光强度为  $2.40 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ .

从图 4(a) 可以看出, 当气压从 7.6 Torr 上升到 68.2 Torr, 33 次谐波发生明显的蓝移, 移动约为 0.13 nm, 27—39 次谐波变化趋势相似. 产生以上实验结果的原因是: 当激光在快速电离的介质中传播时, 自由电子产生的折射率变化对激光波长进行调制, 即 SPM 产生了高次谐波蓝移.

### 3.2 激光强度对高次谐波蓝移的影响

图 5 为 25—45 次高次谐波强度随激光强度的变化关系, 激光强度分别为  $I = 1.59 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ,  $I = 1.89 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ,  $I = 2.12 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ . 从图中可以看出, 随着激光强度的增加, 出现了更高的谐波级次. 激光强度的增加可以明显增强各级次谐波的辐射强度, 特别是对于截止区的谐波.

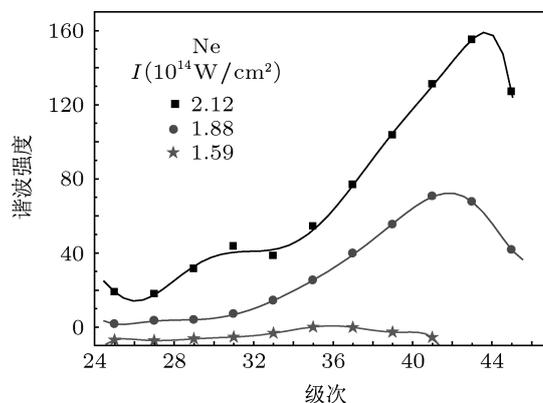


图5 25—45次谐波辐射强度随激光强度的变化, 充气气压为 24.8 Torr

我们研究了激光强度对 Ne 的平台区和截止区高次谐波光谱蓝移的影响. 图 6 为高次谐波随激光

强度变化的光谱分布, 绿线用来标记未移动的谐波波长. 从图中可以看出, 当激光强度逐渐增强时, 各级次谐波发生蓝移.

图 7 为强度归一化谐波光谱随激光强度的变化关系, 图 7(a) 对应 33 次谐波, 代表平台区, (b) 对应 45 次谐波, 代表截止区, 激光强度分别为  $I = 1.59 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ,  $I = 1.89 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ,  $I = 2.12 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ . 从图 7(a) 中可以看出, 当激光强度从  $1.59 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  增加到  $2.12 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , 33 次谐波发生蓝移, 移动距离约为 0.07 nm. 从图 7(b) 中可以看出, 当激光强度为  $1.59 \times 10^{14}$  时, 没有 45 次谐波信号. 激光强度从  $1.59 \times 10^{14}$  上升到  $2.12 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , 45 次谐波移动 0.05 nm.

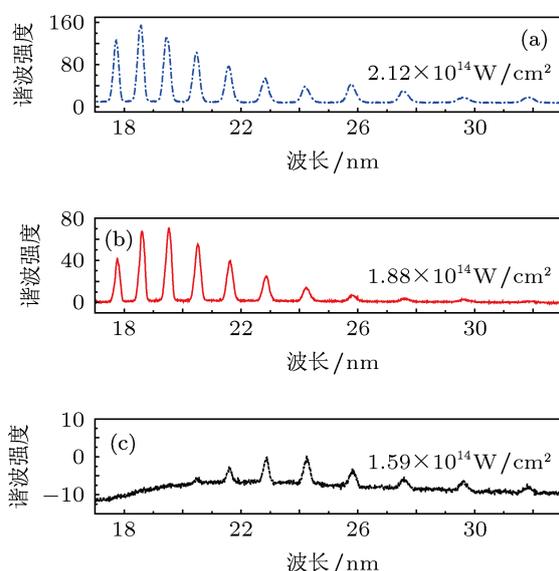


图 6 不同激光强度下的高次谐波光谱蓝移, 充气气压为 24.8 Torr

非绝热效应产生的谐波蓝移需要飞秒激光强度远高于饱和光强, 此时谐波的产生时刻远远早于激光电场的峰值时刻, 这反应了原子在大幅度变化的激光电场中的特性<sup>[10]</sup>. 由于实验采用的激光强度远低于光场感应电离的饱和强度, 大多数谐波在激光电场峰值附近时刻产生; 所以实验中激光强度

变化导致谐波光谱蓝移的原因仍然是 SPM 效应.

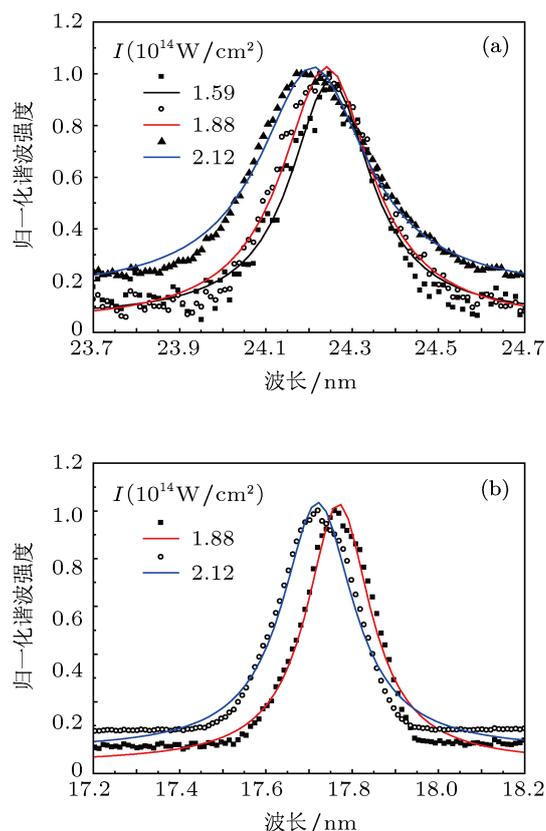


图 7 不同激光强度下 Ne 的 (a) 33 次和 (b) 45 次归一化强度谐波光谱分布, 充气气压为 24.8 Torr

## 4 结论

实验采用高重频 (1 kHz) 飞秒激光脉冲在气体盒中产生相位匹配的 Ne 高次谐波辐射. 通过研究不同充气气压和激光强度对高次谐波光谱蓝移的影响, 找到合适的实验条件, 获得谐波最大蓝移为 0.13 nm. 本文实验条件下, 导致产生高次谐波光谱蓝移的主要原因是 SPM 效应. 实验结果表明通过调节气体盒内气压和入射激光强度可产生连续的谐波调谐, 证实了通过控制高次谐波的蓝移获得连续调谐相干 XUV 光源的合理性.

感谢哈尔滨工业大学物理电子学段小明老师和鲁振中博士的讨论和帮助.

- [1] Protopapas M, Keitel C H, Knight P L 1997 *Rep. Prog. Phys.* **60** 389  
 [2] Hasegawa H, Takahashi E J, Navekawa Y, Ishikawa K L, Midorikawa K 2005 *Phys. Rev. A* **71** 023407  
 [3] Itatani J, Zeidler D, Levesque J, Spanner M, Villeneuve D M, Corkum P B 2004 *Nature* **432** 867

- [4] Wagner N L, Wüest A, Christov I P, Popmintchev T, Zhou X B, Murnane M M, Kapteyn H C 2006 *Proc. Natl. Acad. Sci.* **103** 13279  
 [5] Baker S, Robinson J S, Haworth C A, Teng H, Smith R A, Chirilă C C, Lein M, Tisch J W G, Marangos J P 2006 *Science* **312** 424  
 [6] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994

- [7] Lewenstein M, Balcou Ph, Ivanov M Yu, Huillier A L', Corkum P B 1994 *Phys. Rev. A* **49** 2117
- [8] Wahlström C G, Larsson J, Persson A, Starczewski T, Svanberg S 1993 *Phys. Rev. A* **48** 4709
- [9] Kan C, Capjack C E, Rankin R 1995 *Phys. Rev. A* **52** R4336
- [10] Shin H J, Lee D G, Cha Y H, Hong K H, Nam C H 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 2544
- [11] Altucci C, Bruzzese R, Lisio C de, Nisoli M, Stagira S, Silvestri S De, Svelto O, Boscolo A, Ceccherini P, Poletto L, Tondello G, Villoresi P 1999 *Phys. Rev. A* **61** 021801-1
- [12] Reitze D H, Kazamias S, Weihe F, Mullot G, Douillet D, Augé F, Albert O, Ramanathan V, Chambaret J P, Hulin D, Balcou P 2004 *Opt. Lett.* **29** 86

# Investigation of tunable coherent XUV light source by high harmonics generation using intense femtosecond laser pulses in Ne\*

Lu Fa-Ming<sup>1)</sup> Xia Yuan-Qin<sup>1)†</sup> Zhang Sheng<sup>2)</sup> Chen De-Ying<sup>1)</sup>

1) (National Key Laboratory of Science and Technology on Tunable Laser, Harbin Institute of Technology, Harbin 150080, China)

2) (Department of Physics, Harbin Institute of Technology, Harbin 150080, China)

(Received 5 June 2012; revised manuscript received 19 July 2012)

## Abstract

The blueshift properties of high-harmonic generation with phase matching of different filling pressures and laser intensities are experimentally investigated in this paper. The laser blueshift generated in gas cell, with about 0.13 nm in plateau and 0.07 nm in cutoff is obtained. The blueshift is influenced by simply changing the filling pressure and laser intensity, namely, by varying the density of free electrons in gas cell.

**Keywords:** femtosecond laser, high harmonic generation, blueshift, Ne

**PACS:** 42.65.Ky, 32.80.Fb, 42.50.Hz

**DOI:** 10.7498/aps.62.024212

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10774033).

† Corresponding author. E-mail: xiayuanqin@hit.edu.cn