

5 fs驱动激光脉冲的高次谐波选择性优化*

汪礼锋 贺新奎† 滕浩 运晨霞 张伟 魏志义

(中国科学院物理研究所, 北京凝聚态国家实验室, 北京 100190)

(2014年5月9日收到; 2014年6月17日收到修改稿)

研究了在紧聚焦实验条件下, 采用5 fs激光脉冲与氩气相互作用产生的高次谐波特性. 通过优化系统色散、气体靶气压与位置等参数, 观察到在60—73 eV波段范围内高次谐波光谱接近一个量级的增强. 进一步通过对单原子模型和传播方程的数值求解及模拟相位匹配实验参数下高次谐波的产生过程, 发现相位匹配在所观察到的实验现象中起着关键作用, 得到了理论上与实验规律一致的结果.

关键词: 极紫外激光, 高次谐波, 超快光谱

PACS: 41.50.+h, 42.65.Ky, 78.47.J-

DOI: 10.7498/aps.63.224103

1 引言

自1988年首次发现高次谐波(high-order harmonic generation, HHG)以来^[1], 其作为新型的相干极紫外(XUV)光源以及阿秒激光脉冲(attosecond pulse)源^[2,3]而受到广泛关注. 相比同步辐射加速器和自由电子激光(free electron laser, FEL)这两种目前最主要的XUV及X射线光源, HHG在时间和空间相干性方面都有非常好的特性. 我们知道, 同步辐射光源是非相干光源, 尽管FEL产生的X射线具有很好的空间相干性, 但由于难以控制的时间抖动使得其时间相干性很差. 基于经典和半量子的理论^[4,5], HHG的产生可以分成三步: 第一步电子通过隧穿电离的方式离开母核; 接着在强激光场中被加速; 最后在激光电场反向时, 以一定的概率与母核碰撞, 将从电场中获得的能量以XUV光子的形式发射出来, 对于某一固定能量的XUV光子, 在一个周期内有两种不同轨道的电子对其有贡献, 根据两种电子在真空中飞行的时间可以分为“长轨道”和“短轨道”电子. 因此通过HHG产生的X射线很好地继承了驱动激光的光学性质, 不仅

具有很好的时间相干性, 同时产生的X射线发散角很小, 空间相干性优良. 但HHG也有其难以克服的缺点, 由于产生效率非常低, 一般仅为 10^{-6} , 从而使其实用价值大打折扣. 为了得到实用化的相干X射线光源, 近年来人们结合HHG较好的光学性质及FEL高效率的优点, 将利用HHG产生的X射线作为种子光注入到FEL中, 从而提高产生的X射线的强度和相干性^[6], 但实现这种方法成本很大. 目前最常见的HHG方法是用飞秒强激光场与惰性气体相互作用的极端非线性过程, 由于惰性气体的对称性特性, 所产生的光谱是处于极紫外到软X射线波段的奇次谐波: 在前几个低阶部分, 其与普通的非线性谐波的产生一样, 光谱强度随级次剧烈下降; 接着在一个很大范围内, 谐波的强度几乎不随阶次发生改变, 也就是所谓的“平台区”; 在光谱的最后部分, 谐波强度再次急剧下降, 被称为“截止区”.

正是由于比较低的产生效率, 基于HHG的X射线源一个主要缺点就是强度弱, 在很大程度上限制了其使用范围. 为了提高HHG的效率, 人们研究了很多方法, 主要包括单原子效率的提高和整个介质的集体效应, 即相位匹配效应. 从宏观角度看,

* 国家重点基础研究计划(批准号: 2013CB922402)、国家自然科学基金国际合作项目(批准号: 61210017)和国家自然科学基金(批准号: 11374356)资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: xinkuihe@iphy.ac.cn

实验观察到的XUV信号来源于每一个原子产生的XUV光的相干叠加. 所以在HHG产生过程中, 良好的相位匹配至关重要. 通常引起相位失配的因素主要包括偶极子引入的相位^[7]、长短轨道选择^[8], 驱动激光Gouy相位^[9]、自由电子引入的色散以及中性原子气体的色散^[10]以及气体吸收^[11]等, 都对XUV信号起了关键的调制作用. 在实验上, 为了优化偶极相位关系, 人们一般会选择将气体靶置于焦点之后, 从而选择出短轨道产生的HHG^[12]; 为了补偿中性原子气体所引入的正色散, 需要控制电离率, 使得电离导致的自由电子所引入的负色散与之抵消. 进一步, 为优化单个阿秒脉冲的产生, 通过调整实验参数包括气体靶的厚度与气压都可以改善单个阿秒脉冲的时间特性^[13].

针对HHG效率的问题, 本文以中心波长800 nm、单脉冲能量0.3 mJ、脉宽5 fs的飞秒钛宝石放大激光为光源, 通过其与氙气的相互作用, 开展了HHG的优化研究. 实验上借助气体靶位置不同所引入的不同相位匹配条件, 在60—73 eV波段观察到了X射线的优化输出, 获得接近一个量级的强度增加. 同时结合理论分析和数值模拟计算, 证实了这一波段的显著增强来自良好的相位匹配效应.

2 实验结果

目前常规的飞秒放大激光是不能直接产生小于10 fs的激光脉冲. 为了得到少周期的结果, 如图1所示, 我们以一台基于CPA (chirped pulse amplification) 技术的1 kHz重复频率商用飞秒钛宝石放大激光器 (femtopower compact PRO, femtolasers productions GmbH) 为对象, 对其输出的激光脉冲进行压缩研究. 使用1000 mm焦距的聚焦透镜将其输出的单脉冲能量0.8 mJ、脉宽25 fs的激光导入内径250 μm 、长度100 cm、充有氙气的空心光纤中, 通过差分抽泵的方式利用自相位调制 (self-phase modulation) 效应将光谱展宽, 覆盖范围从500—950 nm波段, 这样的宽光谱足够支持5 fs脉冲产生. 在此基础上设计选用色散优化的啁啾镜组合压缩光谱展宽后的啁啾脉冲, 通过精细调节

驱动激光在空气中传播距离、光学介质中的传输距离 (如尖劈插入量) 等参数, 获得了单脉冲能量0.3 mJ、脉宽小于5 fs的准单周期激光脉冲^[14]. 进一步将这一准单周期激光脉冲用焦距为350 mm的凹面银镜聚焦到真空腔中与氙气相互作用, 实验中所用的准静态气体靶厚度为1 mm, 氙气气压大约为20 Torr. 获得的HHG相干辐射与基频光一起同向传播, 本文用200 nm厚的铝膜滤去基频光和低阶HHG. 最后由1200 lines $\cdot\text{mm}^{-1}$ 刻线的镀金光栅与X射线CCD组成的平场光谱仪实现对HHG光谱的测量.

对于HHG, 人们常通过改变气体靶气压、长度, 聚焦激光的强度、聚焦条件等进行优化. 在本文的实验中, 由于聚焦镜焦距相对较短, 聚得比较紧, 气体靶相对于焦点位置的变化会大幅度地改变实验条件, 因此, 我们研究了这一因素在HHG优化中的作用. 实验中激光聚焦的共焦长度为8 mm, 在这一范围内移动气体靶, 测量相应的高次谐波谱, 实验结果如图2所示. 从单幅HHG光谱来看, 低能部分的发散角比较小, 在接近截止区的区域 (75 eV), HHG发散角随着阶次的增加而增加. a, b和c三条曲线依次对应于气体靶位置向后远离焦点的三个位置得到的光谱. 可以看出在60—73 eV的区域, HHG谱的强度发生剧烈改变, 在靠近焦点位置处比远离焦点位置的光谱强度增加了9.6倍 (70 eV处), 而低能量部分的信号强度几乎没有改变, 显示出60—73 eV这一区域的选择性增强, 而且这一部分接近截止区的光谱强度也比平台区的光谱强度要高大约3倍. 一般来说, 随着气体靶接近焦点, 与气体相互作用的光场强度会快速增加, 所产生的谐波级次会显著增加, 同时HHG的强度也会增强. 在本文的实验中, 由于铝膜的吸收, 截至频率的变化无法观察到, 我们只能看到强度的变化, 低级次部分增强并不明显, 在高级次部分的显著增强应该这是由于这一光谱范围内相位匹配条件的显著改善而引起的. 另外, 光谱中53 eV附近的凹陷来源于所谓的库珀凹陷 (cooper minimum) 现象^[15], 同样也可以看到, 在这一区域光谱强度没有发生显著变化.

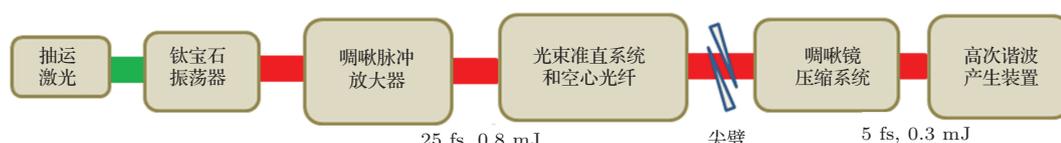


图1 激光系统装置结构图

3 分析与讨论

高次谐波辐射可以认为是单个原子在强激光场中的效应与原子气体集合所辐射的 X 射线相干叠加两个过程的综合结果. 对于单原子效应, 最著名的经典模型就是强场近似下的“三步”模型, 能够给出与实验符合的截止区能量; 在考虑 X 射线相干叠加机制时, 宏观的传播效应会对实验结果起到明显作用. 通过改变实验条件, 我们发现, 随着气体靶位置向焦点方向移动, 激光的光强会增大, 从而延伸单原子效应下的 HHG 光谱截止区的位置; 随

着光强增强, 氙气在激光场中电离产生的自由电子密度会增加, 从而影响等离子体所引入的负色散量; 同时, 假定驱动激光为高斯光束, 在气体靶不同位置处, 光场不同的波前会发生不同程度的弯曲, 而这个相位面也会改变高次谐波产生过程中相位匹配的关系. 为了确认实验中 HHG 光谱选择性增强的物理机理, 我们对实验条件下 HHG 产生过程进行了详细的模拟. 对于单原子近似下高次谐波的产生, 使用的是强场近似下的偶极振子模型^[16], 在忽略除基态以外其他束缚态贡献的条件下, 求解偶极振子, 对其做傅里叶变换, 得到高次谐波光谱. 偶极振子 d_{nl} 表达式为

$$d_{nl}(t) = 2\text{Re} \left\{ i \int_{-\infty}^t dt' \left(\frac{\pi}{\varepsilon + i(t-t')/2} \right)^{3/2} \times E(t') \times d[p_{\text{st}}(t', t) - A(t')] \right\} \exp \left[- \int_{-\infty}^t w(t') dt' \right], \quad (1)$$

$$\times \exp[-iS_{\text{st}}(t', t)] d^*[p_{\text{st}}(t', t) - A(t)]$$

其中 $E(t)$ 和 $A(t)$ 分别为驱动激光的电场与矢势, p_{st} 和 S_{st} 是静态动量和作用量, d 是束缚态跃迁矩阵元, w 是原子在激光场下的电离率. (1) 式包含了 HHG 产生的基本过程: 电子在 t' 时刻以 $E(t') \times d[p_{\text{st}}(t', t) - A(t')]$ 的概率从基态隧穿电离到连续态; 当电子处于真空态中时忽略原子库仑势的作用, 将其作为一个自由粒子, 在光场加速并获得相应的相位积累 $\exp[-iS_{\text{st}}(t', t)]$; 在 t 时刻, 粒子以 $d^*[p_{\text{st}}(t', t) - A(t)]$ 的概率回到基态, 并将在电场中获得的能量以 XUV 光子的形式辐射出来. 其中 $\left(\frac{\pi}{\varepsilon + i(t-t')/2} \right)^{3/2}$ 是来源于鞍点近似 (saddle point approximation), ε 是一个正的无穷小量, 而基态原子数在光场中的电离所引入的修正部分 $\exp[-\int_{-\infty}^t w(t') dt']$ 是基于 ADK (Ammosov, Delone and Krainor) 模型^[15]. 数值模拟中, 根据激光参数尽可能重复实验结果, 设定激光光强为 $4 \times 10^{14} \text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$, 脉宽为 5 fs, 光腰为 25 μm , 准静态气压为 20 Torr. 为了比较长短轨道对 HHG 光谱结构的影响, 通过设定偶极振子公式中的积分时间上下限, 分离出一个周期内的长短轨道作用. 图 3(a) 给出的是一个周期内两条轨道作用下不同气体靶位置的 HHG 光谱; 图 3(b) 中只包含一条短轨道的影响: 在只考虑单原子效应情况下, HHG 光谱平台区没有明显的奇次谐波的结构, 而是呈现出很多噪音的状态, 一个很重要的原因就是长短轨道之间相互干涉的结果, 所以在平台区这个效应显得越加明显, 而在接近截止区, 两种情况下都给出相

对可分辨的光谱. 同时在接近截止区的位置能够看出有明显的由于驱动激光光强所引入的光谱强度的变化, 但是单原子效应下, 截止区附近的光谱强度无法显现出和平台区的光谱强度相当甚至如实验中观察到的更强的结构.

进一步, 我们数值求解了在傍轴近似和柱对称近似下描述传播效应的耦合麦克斯韦 (Maxwell) 方程^[15], 使用的是克罗克-尼克尔森 (Crank-Nicholson) 差分方法. 需要注意的是, 随着驱动光场电离氙气产生等离子体, 自由电子不仅会影响 HHG 产生的相位匹配关系, 同时也会改变驱动光场的传播过程, 导致驱动激光波前的相位畸变, 模拟过程也包含了这个效应. 在选择与图 2 相同的模拟参数并考虑包括驱动光场相位、等离子体效应等因素后, 图 4(a) 给出了很好分辨的 HHG 阶次: 通过移动 1 mm 气体靶, 在焦点后 1.5 mm 处 HHG 谱中截止区 (50 eV) 的信号强烈的增加, 并且也超过了平台区的 HHG 光谱强度, 这意味着在这个位置相位匹配关系能被很好地满足. 接近截止区的 XUV 光谱得到接近一个量级的增强, 这与实验结果在趋势和量级上是符合的. 为了能够比较更多的细节, 在图 4(b) 和 (c) 中给出了实验和理论模拟的两个阶次的比较. 由图中可以看出, 在接近截止区的阶次 (65 eV 和 40 eV) 都随着气体靶靠近焦点位置而强烈增加, 而低能量区域的阶次 (43 eV 和 22 eV) 也呈现出类似的变化趋势.

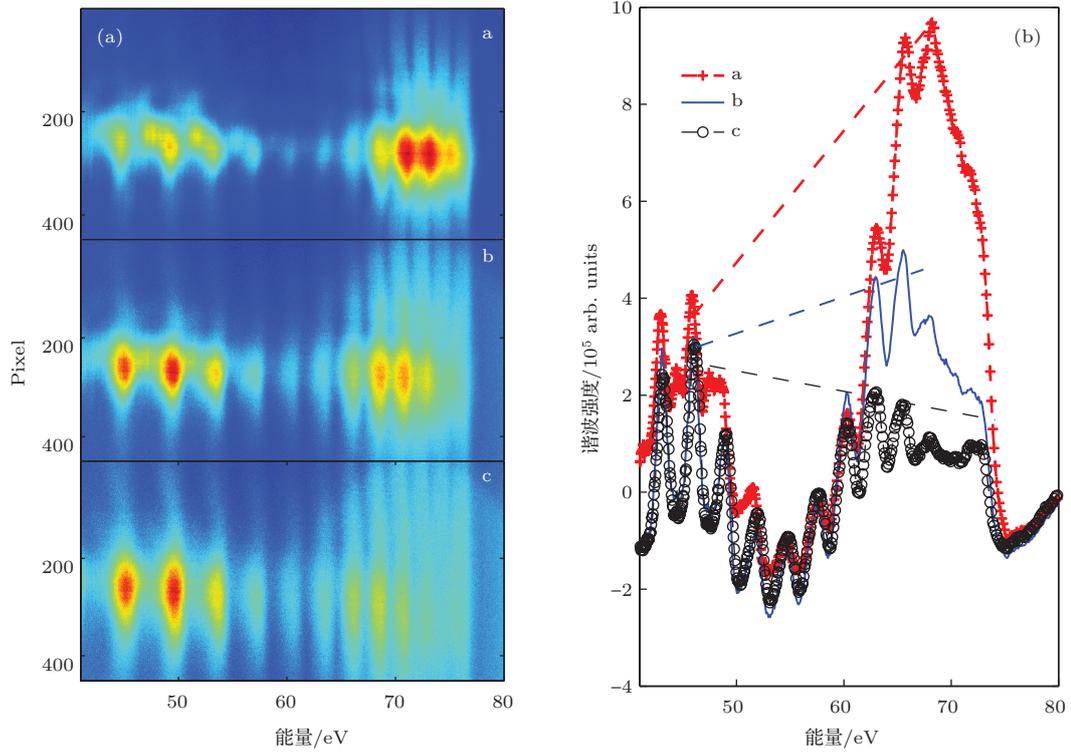


图2 (网刊彩色) 实验上观察到的由气体靶位置引入的相位匹配光谱 (a) a, b 和 c 分别对应于三个不同的气体靶位置, 其中 c 位置离气体靶最远, 在 70 eV 附近的强度比较弱, 随着气体靶位置向焦点靠近 a 位置处, 截止区附近的强度有明显上升; (b) 对空间位置积分之后的一维 HHG 光谱

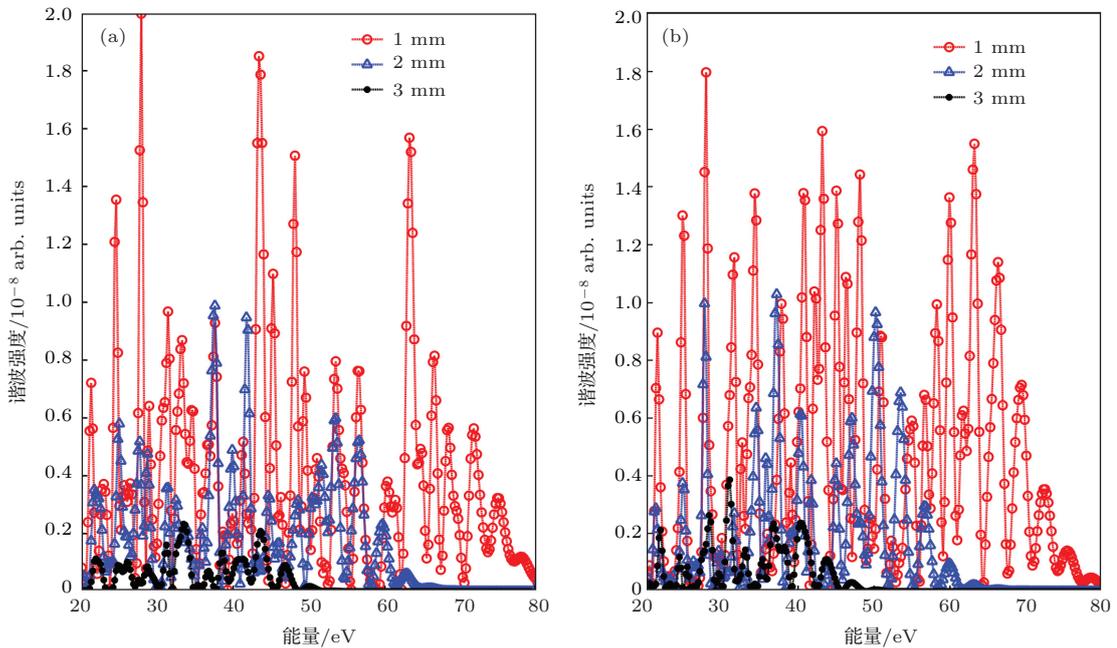


图3 (网刊彩色) 基于单原子模型模拟的三个位置下的 HHG 谱 其中驱动激光的光强 $4 \times 10^{14} \text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$, 脉宽 5 fs, 光腰为 $25 \mu\text{m}$, 充气气压为 20 Torr; 为了比较电子长短轨道对 HHG 结构的影响, (a) 中包含一个周期内的长、短轨两条轨道的效应, (b) 给出的是只包含一条短轨道的高次谐波光谱

理论模拟能给出实验结果的典型特征, 其中误差来源是多方面的: 相对于含时薛定谔方程, 经典单原子模型是一个很好的近似, 但是对于低能量区域的 HHG, 由于原子的库仑势在产生过程中的影

响, 会出现较大误差; 对于产生 HHG 的光强范围 ($10^{14} \text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$), ADK 模型不能够精确描述惰性气体的电离率, 从而引入误差; 实验中空心光纤之后的驱动激光光束在空间和时间上都不是完美的高

次型脉冲, 模拟中按照高斯型脉冲描述的电场振荡结构和激光相位都会与实验参数发生一定的偏差, 从而导致 HHG 光谱的结构发生不同; 还有一点就是在准静态的气体靶中, 气压是随空间发生改变的, 而目前还没有一个有效的办法能够真正测量气体靶内的气压分布, 这也会导致模拟结果与实验观测发生不同. 尽管如此, 我们依然通过选择合适的参数, 给出了与实验观测结果相同物理趋势的模拟, 并确定接近截止区部分光谱显著高于平台区光谱强度的原因是 HHG 产生过程中的宏观效应导致的, 而在这一区域接近一个量级的增强幅度也很好地与实验相吻合.

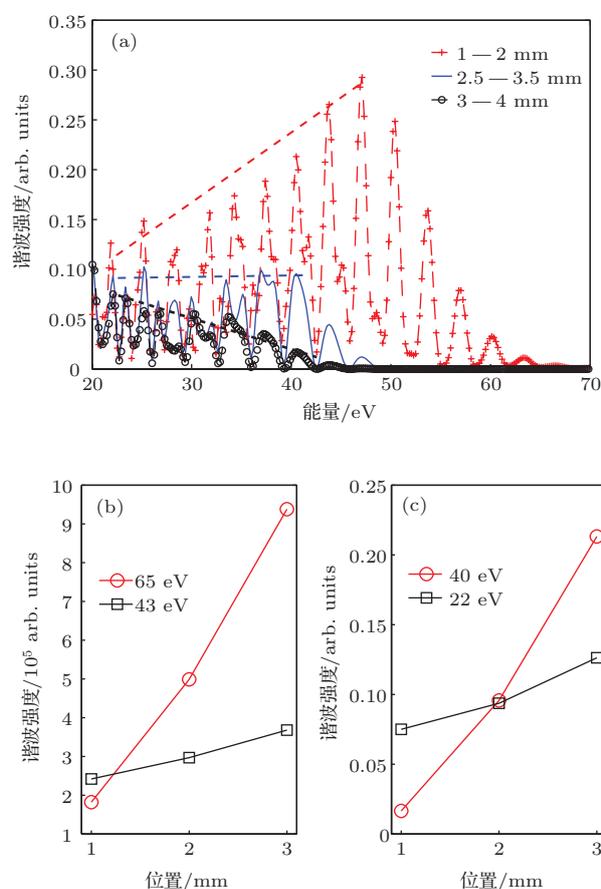


图4 (网刊彩色) 求解耦合麦克斯韦方程数值结果 (a) 三个不同气体靶位置的高次谐波谱, 实验参数参考图2; (b) 实验上观察到的43 eV和65 eV两个阶次随气体靶位置的强度; (c) 数值模拟得到的22 eV和40 eV两个阶次随气体靶位置的强度, 可以看出, 接近截止区的两个阶次(实验上的65 eV和理论上的40 eV)都会随着气体靶的位置而发生明显改变, 而在平台区的两个阶次(实验上的43 eV和理论上的22 eV)在移动气体靶的过程中都没有显著的变化

HHG 作为一个类激光的 X 射线源具有广泛的应用需求, 其中 20—80 eV 波段是原子、分子以及固

体中超快探测所需要的优选波段. 不管是对于其中某个波长或者是拥有宽光谱的阿秒脉冲, 这一波段都有大量的应用工作, 主要是因为它对应于很多原子的内层激发态, 对于内壳层的俄歇过程等动力学探测都很适合. 因此这一波段也常被用作 FEL 种子进一步放大^[6], 使其更加实用. 我们获得优化增强的 60—73 eV 正好处于这一波段, 具有广泛的潜在应用.

4 结 论

HHG 作为目前相干性最佳的 XUV 源和阿秒激光脉冲得到人们广泛的重视, 并已应用于衍射成像、原子分子光谱、阿秒抽运探测^[17,18]等实验研究中. 但是由于其效率不高而导致 XUV 通量相对较低, 严重限制了进一步应用. 因此根据应用的不同, 对特定的波段进行选择性优化具有重要的意义. 本文利用单脉冲能量为 0.3 mJ 的 5 fs 近单周期超短激光脉冲紧聚焦到 1 mm 的准静态氩气靶中所产生的 HHG, 通过仔细调节气体靶位置, 实现了对 60—73 eV 波段的 HHG 光谱的优化, 获得近一个量级的强度提高. 进一步通过数值模拟单原子效应与传播方程后, 在截止区接近 50 eV 的光谱范围内得出了与实验特征相符合的实验结果, 确定宏观相位匹配关系在实验现象中起着关键作用. 这对于进一步优化由 HHG 产生的这一波段的 XUV 相干辐射具有重要的意义.

感谢陈京研究员、王兵兵研究员及叶蓬、钟诗阳等的有益讨论和帮助.

参考文献

- [1] Ferray M, L’Huillier A, Li X-F, Lompre L, Mainfray G, Manus C 1988 *J. Phys. B* **21** L31
- [2] Gibson E, Paul A, Wagner N, Tobey R, Gaudiosi D, Backus S, Christov I, Aquila A, Gullikson E, Attwood D, Murnane M, Kapteyn H 2003 *Science* **302** 95
- [3] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [4] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [5] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M, L’Huillier A, Corkum P B 1994 *Phys. Rev. A* **49** 2117
- [6] Togashi T, Takahashi E, Midorikawa 2011 *Opt. Express* **19** 317
- [7] Lewenstein M, Salières P, L’Huillier A 1993 *Phys. Rev. A* **48** 3433
- [8] Antoine P, L’Huillier A, Lewenstein M 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 1234

- [9] Lindner F, Paulus G, Walther H, Baltuška A, Goulielmakis E, Lezius M, Krausz F 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 113001
- [10] Gaarde M, Tate J, Schafer K 2008 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **41** 132001
- [11] Ruchon T, Hauri C, Varjú K, Mansten E, Swoboda M, López-Martens R, L' Huillier A 2008 *New J. Phys.* **10** 025027
- [12] Salières P, L' Huillier A, Lewenstein M 1995 *Phys. Rev. Lett.* **74** 3776
- [13] Li X, Wang G, Zhou X 2014 *Chin. Phys. B* **23** 013102
- [14] Zhang W, Teng H, Yun C X, Zhong X, Hou X, Wei Z Y 2010 *Chin. Phys. Lett.* **27** 054211
- [15] Higuier J, Ruf H, Thire N, Cireasa R, Constant E, Cormier E, Descamps D, Mevel E, Petit S, Pons B, Mairesse Y, Fabre B 2011 *Phys. Rev. A* **83** 053401
- [16] Priori E, Cerullo G, Nisoli M, Stagira S, Silvestri S, Villoresi P, Poletto L, Ceccherini P, Altucci C, Bruzzese R, Lisio C 2000 *Phys. Rev. A* **61** 063801
- [17] Ravasio A, Gauthier D, Maia F 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 028104
- [18] Poletto L, Villoresi P, Benedetti E, Ferrari F, Stagira S, Sansone G, Nisoli M 2011 *Opt. Lett.* **32** 2897

Tunable optimization of high-order harmonic generation driven by 5 fs laser pulses*

Wang Li-Feng He Xin-Kui[†] Teng Hao Yun Chen-Xia Zhang Wei Wei Zhi-Yi

(Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, the Chinese Academy of Sciences,
Beijing 100190, China)

(Received 9 May 2014; revised manuscript received 17 June 2014)

Abstract

The characteristics of high-order harmonic generation (HHG) driven by 5 fs laser pulses interacting with argon under tightly focused geometry are investigated in this paper. By carefully optimizing parameters like dispersion, gas pressure and gas cell position, the enhanced HHG with nearly one order of magnitude in a range of 60–73 eV is observed. Based on single atom approximation and Maxwell propagation equations, numerical simulation is conducted to compare with the experimental characterization with proper parameter. It is proved that the phase-matching plays a crucial role in this phenomenon showing that the theoretical results are in agreement with the experimental results.

Keywords: X-ray, high-order harmonic generation, ultrafast spectroscopy

PACS: 41.50.+h, 42.65.Ky, 78.47.J-

DOI: 10.7498/aps.63.224103

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2013CB922402), the Funds for International Cooperation of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 61210017), and General Program of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11374356).

[†] Corresponding author. E-mail: xinkuihe@iphy.ac.cn