

双色飞秒强激光作用下的CO₂分子高次谐波

卢发铭¹, 张 盛², 夏元钦¹, 陈德应¹

(1. 哈尔滨工业大学 光电子技术研究所 可调谐气体激光技术国家级重点实验室, 黑龙江 哈尔滨 150080; 2. 哈尔滨工业大学 物理系, 黑龙江 哈尔滨 150082)

摘 要: 实验研究了双色场条件下 CO₂ 分子高次谐波辐射, 通过改变充气气压获得偶次谐波最大为 28th。此外, 通过变化气体盒内激光焦点位置从而显著改变 24th 谐波光子能量。实验发现在气体盒内谐波强度存在两个极大值, 这是因为不同区域内相位匹配出现长短轨道选择的结果。实验结果表明, 双色场驱动分子高次谐波可成为具有发展前景的多波长可调谐相干 XUV 光源。

关键词: 双色飞秒激光; 高次谐波; CO₂

中图分类号: O434 文献标志码: A 文章编号: 1007-2276(2014)01-0077-04

High harmonic generation in CO₂ using two-color femtosecond laser

Lu Faming¹, Zhang Sheng², Xia Yuanqin¹, Chen Deying¹

(1. National Key Laboratory of Tunable Laser Technology, Institute of Opto-Electronics, Harbin Institute of Technology, Harbin 150080, China; 2. Department of Physics, Harbin Institute of Technology, Harbin 150080, China)

Abstract: High harmonic generation driven by two-color laser field in CO₂ molecules were investigated experimentally. The optimized intensity of the 24th harmonic was obtained by changing filling gas pressure. In addition, harmonic output was improved by moving the laser focus with respect to the gas cell. There are two maximum values in two regions. The result is ascribed to different phase matching in the gas cell, favoring long and short electron trajectories during high harmonic generation respectively. The experiment results indicate that molecular high harmonic generated in two-color field may be a promising multi-wavelength tunable coherent XUV source.

Key words: two-color femtosecond laser; high harmonic generation; CO₂

收稿日期: 2013-05-05; 修订日期: 2013-06-03

基金项目: 国家自然科学基金项目(10774033)

作者简介: 卢发铭(1981-), 男, 博士生, 主要从事强场物理方面的研究。Email: lufaming2011@gmail.com

导师简介: 夏元钦(1968-), 男, 教授, 主要从事超快激光光谱、强场物理以及非线性光学方面的研究。Email: xiahit@126.com

0 引言

飞秒强激光具有超短脉宽、超高峰值功率等优异特性,从而使其在非线性光学^[1],材料加工^[2-3],产生超连续谱^[4]等方面具有广泛应用。飞秒激光与原子或分子非线性相互作用产生高次谐波。高次谐波源在时间和空间上具有良好的相干性,是一种很有前景的 XUV 光源^[5]。高次谐波应用于许多领域,诸如分子成像^[6]以及超快分子动力学^[7]等。产生高次谐波的过程可以用经典三步模型^[8]描述:首先,原子最外层电子在强激光脉冲作用下隧穿被扭曲的库仑势垒进入连续态;随后电子在激光场中被加速或减速;最后,当激光场反向时驱动自由电子返回母体离子,并与之发生复合碰撞,同时辐射出高能光子。由于这种辐射在激光脉冲的每半个光学周期内重复一次,所以辐射出的光谱就会呈现出基频光频率奇数倍的频率梳。高次谐波的截止频率是 $I_p+3.17U_p$, I_p 为原子电离能, U_p 为优质动力势。以往对高次谐波辐射研究主要集中在 He, Xe 等稀有气体。近年来,分子高次谐波诸如 N_2 , O_2 , CO_2 甚至多原子分子高次谐波越来越吸引研究人员的注意。其中,简单的线性三原子分子 CO_2 容易被激光场准直,特别是其分子轨道中的最高已占轨道 (HOMO) 类似于 O_2 分子的 π_g 结构。因此, CO_2 被广泛用于分子结构,双中心干涉以及超快电子动力学研究^[9-11]。

然而,应用领域需要有效的、强的高次谐波辐射源。为了提高谐波效率,人们采用许多方法,比如毛细管波导^[12]或者使用长脉冲阀^[13]。近年来,采用基频光及其二次谐波组成的双色激光场^[14]作为驱动源可以显著提高谐波的转换效率。

文中对双色激光场驱动的 CO_2 分子高次谐波辐射进行了实验研究。在不同充气气压条件下获得 28th 谐波输出。通过调节激光焦点与气体盒相对位置,实现对 24th 谐波的强度调谐。实验证明了采用双色场驱动的 CO_2 分子高次谐波辐射可实现多波长可调谐相干 XUV 源。

1 实验装置

双色场条件下 CO_2 分子高次谐波辐射实验装置如图 1 所示。实验中所用的飞秒激光脉冲能量 2.1 mJ,

脉宽 40 fs,重频 1 kHz。厚度为 200 μm 的 BBO 晶体(I 型)位于 400 mm 聚焦透镜之后 20 cm, BBO 晶体的倍频效率大约 12%。BBO 倍频后产生的倍频光偏振方向与基频光偏振方向正交。倍频光与基频光聚焦进 5 mm 气体盒中产生高次谐波辐射。气体盒被放置在真空平移台上,通过步进电机控制平移台运动,从而改变激光焦点在气体盒内的位置。随后产生的高次谐波经软 X 射线平场光栅谱仪成像于 CCD 相机,最后由计算机采集图像。实验过程中 500 nm 厚的铝箔位于真空靶室与平场光栅谱仪之间,滤除基频光与倍频光以防止 CCD 过饱和。通过控制飞秒激光脉冲以及气体靶的参数,可以优化双色场条件下的高次谐波辐射。通常这些参数包括激光能量、脉宽,基频光与倍频光之间的相对位相和偏振,以及气体靶密度、长度、位置等。文中通过改变充气气压,气体盒与激光焦点间的相对位置来优化双色场高次谐波信号,增加谐波的转换效率。

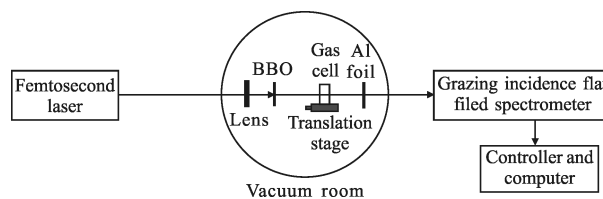


图 1 双色场条件下 CO_2 高次谐波辐射实验装置图

Fig.1 Experimental setup for high harmonic generation in CO_2 driven by two-color laser field

2 实验结果与讨论

笔者开展双色场条件下 CO_2 分子高次谐波辐射实验,获得了 18th-33rd 高次谐波辐射,其中偶次谐波最大级次为 28th。图 2 为不同气压条件下强度归一化的 24th 高次谐波辐射。从图中可以看出,谐波强度随着充气气压的增加而显著提高,当充气气压在 2.5 torr (1 torr=133.3 Pa) 附近,谐波强度达到极大值。当气压继续增大,谐波强度反而下降,当气压超过 9.0 torr, 24th 谐波信号很微弱。当气压超过优化气压时气体密度增大,由于过高的气体密度会吸收谐波,减小了产生的谐波辐射,导致谐波消失。此外,气压增大使电离产生的自由电子数增加,过大的等离子体密度加剧了激光散焦,从而减少作用区域的激光功率密度,不利于高次谐波产生。在优化气压附近,谐波强度随气压变化明显。笔者通过调

节气体压强可以实现不同级次的高次谐波强度增加,从而可以优化高次谐波辐射。

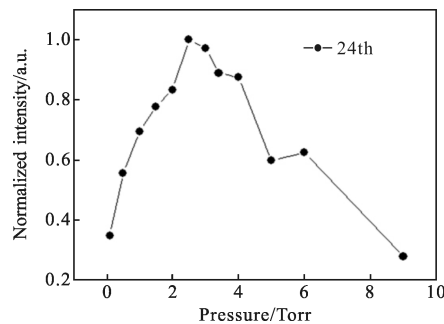


图 2 不同气压条件下 24th 高次谐波归一化强度

Fig.2 Normalized 24th harmonic intensity as a function of CO₂ gas pressure

图 3 为归一化的 24th 谐波强度随气体盒位置变化关系,充气气压 1.6 Torr。Z=0 表示激光焦点在气体盒中心位置,Z 越大表示激光焦点更靠近气体盒末端位置,Z 越小表示激光焦点更靠近气体盒入射前端。从图中可以看出:(1) 24th 谐波在两个区域可以获得极大值。更高的谐波强度位于 Z=2.5 mm,稍弱的谐波强度位于 Z=-3.75 mm。这表明观察到的现象是由不同的相位调制所致,分别有利于谐波产生过程中长轨道和短轨道的选择。情况类似参考文献[15]中所报道的半无限气体盒中 He 的高次谐波辐射。(2) 在气体盒靠近中心的位置,谐波强度明显降低,这是由于在这个区域有诸多导致位相失配效应的影响。(3) 谐波强度随着 Z 值的改变而明显变化。图 3 中两个极大值的出现可能是谐波产生过程中传输效应影响。由于气体盒中气体密度大,实验所用的透镜焦距长等特点,导致产生大量的自由电子,电子等离子体导致的光束散焦是传输过程的主要特征。笔者认为相位匹配在决定高次谐波辐射特性方面起到重要作用。强激光驱动产生的高次谐波在电离介质中传播具有很强的自相位调制。暂时性的相位调制有助于相位匹配机制,并能确定有利于好的相位匹配条件的产生,并增强谐波信号。这进一步说明相位调制在高次谐波产生中的重要性。而当激光焦点处于气体盒中心附近时,气体盒中介质在整个传输距离中可能被完全电离,气体分子被消耗,用以产生谐波的气体分子数减少,最终导致谐波强度下降,在图 3 中出现一个谷值。

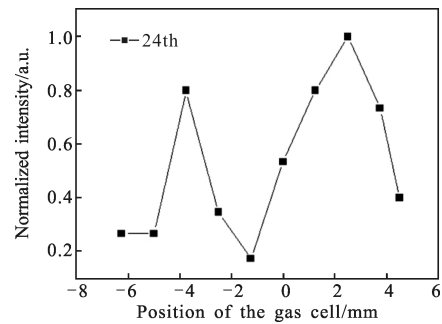


图 3 激光焦点在气体盒内不同位置时 24 次高次谐波归一化强度

Fig.3 Normalized 24th harmonic intensity in CO₂ as a function of the position Z of the gas cell with respect to the laser focus

3 结论

实验研究了充气压强以及激光焦点位置对双色激光场 CO₂ 分子高次谐波辐射的影响。实验结果表明通过选择适当的压强和焦点位置可以显著增强发射的谐波光子能量。这对于 XUV 辐射应用以及了解高次谐波产生的物理机制有着重要意义。

参考文献:

- [1] Hasegawa H, Takahashi E J, Navekawa Y, et al. Multiphoton ionization of He by using intense high-order harmonics in the soft-x-ray region[J]. *Phys Rev A*, 1993, 71: 023407.
- [2] Jiang Tao, Zhao Qingliang, Dong Zhiwei, et al. Interaction mechanism of femtosecond laser and wide band-gap material [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2010, 39(6): 1044-1048. (in Chinese)
姜涛, 赵清亮, 董志伟, 等. 飞秒激光与宽带隙材料相互作用机理研究[J]. *红外与激光工程*, 2010, 39(6): 1044-1048.
- [3] Jiang Tao, Zhao Qingliang, Fan Rongwei, et al. Ablation characteristics of femtosecond laser on wide band-gap ceramics [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2012, 41(2): 387-392. (in Chinese)
姜涛, 赵清亮, 樊荣伟, 等. 飞秒激光在宽带隙陶瓷表面的烧蚀特性 [J]. *红外与激光工程*, 2012, 41(2): 387-392.
- [4] Li Bin, Fang Xiaohui, Liu Bowen, et al. Research on 7.45 W supercontinuum generation by femtosecond laser[J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2012, 41(8): 2012-2016. (in Chinese)
李斌, 方晓惠, 刘博文, 等. 飞秒激光产生 7.45 W 超连续光谱实验 [J]. *红外与激光工程*, 2012, 41(8): 2012-2016.
- [5] Protopapas M, Keitel C H, Knight P L. Atomic physics with super-high intensity lasers [J]. *Rep Prog Phys*, 1997, 60:

- 389–486.
- [6] Itatani J, Levesque J, Zeidler D, et al. Tomographic imaging of molecular orbitals [J]. *Nature*, 2004, 432: 867–871.
- [7] Nicholas L, Wagner, Andrea Wüest, et al. Monitoring molecular dynamics using coherent electrons from high harmonic generation [J]. *Proc Natl Acad Sci*, 2006, 103: 13279–13285.
- [8] Corkum P B. Plasma perspective on strong-field multiphoton ionization [J]. *Phys Rev Lett*, 1993, 71 (13): 1994–1997.
- [9] Smirnova O, Mairesse Y, Patchkovskii S, et al. High harmonic interferometry of multi-electron dynamics in molecules [J]. *Nature(London)*, 2009, 460: 972–977.
- [10] Vozzi C, Calegari F, Benedetti E, et al. Controlling two-center interference in molecular high harmonic generation [J]. *Phys Rev Lett*, 2005, 95: 153902.
- [11] Vozzi C, Calegari F, Benedetti E, et al. Probing two-center interference in molecular high harmonic generation [J]. *J Phys B: At Mol Opt Phys*, 2006, 39: S457–466.
- [12] Pfeifer T, Kemmer R, Spitzenpfeil R, et al. Spatial control of high-harmonic generation in hollow fibers [J]. *Opt Lett*, 2005, 30(12): 1497–1499.
- [13] Kim H T, Kim I J, Lee D G, et al. Optimization of high-order harmonic brightness in the space and time domains[J]. *Phys Rev A*, 2004, 69: 031805(R).
- [14] Bandrauk A D, Chelkowski S, Yu H, et al. Enhance harmonic generation in extended molecular systems by two-color excitation[J]. *Phys Rev A*, 1997, 56: R2537.
- [15] Teichmann S, Hannaford P, Dao L V. Phase-matched emission of few high-harmonic orders from a helium gas cell [J]. *Applied Phys Lett*, 2009, 94: 171111.