

靶源位置对强场高次谐波相位匹配的影响*

王 超¹, 康轶凡², 白永林¹, 王屹山³, 徐 鹏¹, 王向林³

(1. 中国科学院 西安光学精密机械研究所, 中科院超快诊断技术重点实验室, 西安 710119;

2. 空军工程大学 理学院, 西安 710051;

3. 中国科学院 西安光学精密机械研究所, 瞬态光学与光子技术国家重点实验室, 西安 710119)

摘 要: 为提高强激光场与惰性气体靶作用产生的孤立阿秒激光脉冲的能量,给出了一种实现高次谐波过程中最佳谐波相位匹配的定量实验方法。研究了气体靶源与高斯型驱动激光场聚焦点相对空间位置对谐波相位匹配及谐波产率的影响,得出了其最佳相位匹配位置始终位于驱动激光场聚焦点后 3~5 mm,而在聚焦点之前的位置区域,严重的高次谐波相位失配导致谐波产率非常低。同时,在最佳相位匹配条件下,高次谐波场与驱动场具有相类似的空间强度分布特性,该结果印证了目前通常采用的高次谐波场为高斯光束的假设。

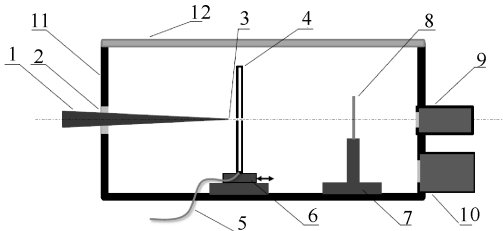
关键词: 极端非线性光学; 高次谐波产生; 相位匹配; 孤立阿秒脉冲; 气体靶

中图分类号: O437 **文献标志码:** A **doi:**10.11884/HPLPB201830.180096

载波-包络相位(CEP)锁定的少周期超强光脉冲技术的出现,使得光学已经从微扰非线性光学机制阶段^[1-5]进入非微扰非线性光学机制-强场非线性光学机制阶段,其中最引人注目的研究成果当属新型光源——极紫外/X射线孤立阿秒光脉冲源技术的实现^[5]。自此,从物理学、化学到材料学、信息处理等领域,都掀起了阿秒研究热潮^[6-8]。目前,惰性气体原子强场高次谐波过程已被证明为产生阿秒脉冲源的主要物理机制。强场高次谐波过程的本质是基于强光场隧穿电离效应的频率变换过程,也即光场电离高次谐波过程。这意味着,无论采用哪种孤立阿秒光脉冲技术(孤立阿秒脉冲的产生方法主要有振幅选通^[9]、电离选通^[10]、偏振选通^[11]、双光选通^[12]、广义双光选通^[13]、以及被称为“阿秒灯塔”效应的非共线选通^[14]),高次谐波过程中的相位匹配问题都是不可回避的,它通过影响多原子体系的宏观响应而决定着高次谐波过程的效率。根据光场电离“三步模型”理论^[15],该相位匹配问题涉及多种微观因素:驱动场;高次谐波场;光场电离过程形成的等离子体。而在宏观层面,这些因素则直接取决于驱动场与气体靶的空间耦合情况。无疑,对此进行完备准确的理论分析几乎是不可能的。至今,理论上更多偏重于对某一种影响因素的研究^[16-17],实验上往往直接给出高次谐波过程结果,而对更重要的相位匹配实现过程则有意或无意地给予回避,这使得尽管该类新型高次谐波阿秒脉冲光源已进入应用领域,但其中高次谐波相位匹配优化方法仍然很不明朗。本文通过研究高次谐波过程产率与气体靶源相对高斯型驱动激光场聚焦点空间位置的依赖关系,给出了一种实现强激光场气体靶作用高次谐波过程最佳相位匹配的实验方法。

1 实验装置

本文设计的强场气体靶作用高次谐波过程实验装置如图 1 所示。中心波长约 800 nm、宽度为 4.6 fs 的飞秒脉冲的测量曲线如图 2 所示。增透型石英窗用以使飞秒脉冲从外部大气环境进入真空环境,同时提高其透过率。镍管用以容纳从惰性气体管道输送进来的惰性气体,如氦气或氖气,作为极紫外/X射线高次谐波的产生源。三维高精度调整台用以实验中三维调整镍管相对于飞秒驱动场聚焦点的空间位置。滤光片用以在过滤掉残余的驱动光辐射。X射线 CCD 探测器用以探测



1- CEP stabilized few-cycle femtosecond laser centered at around 780 nm,
2- antireflective type quartz window, 3- focus of femtosecond laser pulse,
4- drilled hollow-core nickel tube, 5- inert gas pipeline,
6- 3D high precision stage, 7- filter holder,
8- metal film filter, 9- X-ray CCD detector,
10- turbo pump, 11- vacuum chamber, 12- acrylic chamber cover

Fig. 1 Schematic diagram of the HHG chamber

图 1 高次谐波实验真空腔示意图

* 收稿日期:2018-04-03; 修订日期:2018-05-04

基金项目:国家自然科学基金项目(11675258; 61690222; 11505289);中国科学院国家外国专家局创新团队国际合作伙伴计划项目
作者简介:王 超(1980—),男,博士,从事强场阿秒激光及高时空分辨光电探测研究;goodwang@foxmail.com。

高次谐波,记录其强度和光束轮廓。真空泵用以维持系统处于所需真空状态。真空腔透明密封盖方便在真空环境下监视驱动脉冲的聚焦情况。

2 实验方法及结果

2.1 飞秒驱动脉冲“聚焦点”的确定

这一步是在大气环境中进行的。在驱动脉冲进入真空腔室之前,首先必须估计并保证镍管和金属滤波片均不在光脉冲传播光路上,以免高强度激光导致的损坏。聚焦脉冲将形成空气击穿等离子体,颜色为蓝紫色(如图3所示),黑暗条件下即可大致确定等离子体纵向中点,即为驱动脉冲的“聚焦点”。在高次谐波实验中,经空心光纤展宽和啁啾镜组合光学系统后驱动场的功率为0.9 W,脉冲重复频率为1 kHz,脉冲光谱范围400~1000 nm(光子能量在1.2~3.0 eV),聚焦点处光斑估算约为50 μm ,对应的峰值聚焦光强度约为 $4.3 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ 。

2.2 靶源位置的“粗调”及激光钻孔

以确定的飞秒脉冲“聚焦点”为基准,调节过程依次为:①将镍管放置在“聚焦点”后激光场的瑞利长度范围内,但同时要保证此时镍管不在飞秒脉冲光路上(也即横向偏离飞秒脉冲)。实验中,镍管为中空圆柱形,外径2.5 mm,内径2.0 mm。②降低飞秒脉冲功率,将镍管缓慢移至飞秒脉冲光路上,使得飞秒脉冲光斑位于镍管横向中心。在移动过程中要时刻观察镍管,以保证镍管不被激光烧蚀。③盖上真空腔室密封盖以减弱空气扰动对飞秒驱动场指向的影响,将飞秒脉冲功率缓慢升高至实验值,对镍管进行钻孔以形成光路。期间要保持飞秒光路指向稳定,以保证镍管钻孔形状的规整。钻孔结束后,如果远场出现小孔衍射图像(如图4所示),则说明钻孔过程顺利完成。④钻孔结束后,关闭飞秒脉冲源,用酒精清理真空腔中的烧蚀物。

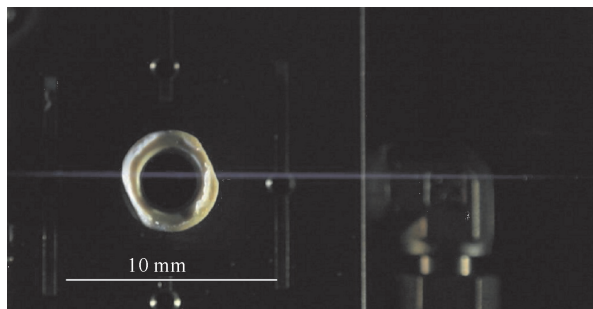


Fig. 3 Strong laser driven air breakdown plasma

图3 强激光诱导空气击穿

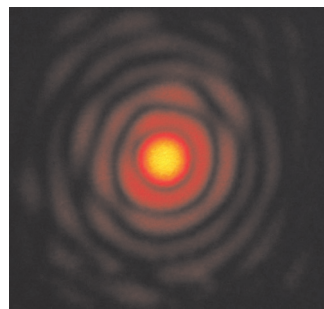


Fig. 4 Pinhole diffraction image from the laser drilled nickel tube

图4 镍管激光钻孔后的远场图样

2.3 靶源位置的“微调”及谐波相位匹配

该部分用以调整确定靶源相对飞秒驱动场聚焦点的空间位置,实现最佳的高次谐波过程相位匹配和最高效的谐波转换输出。具体步骤依次为:①将金属滤波片置于光脉冲传播光路上或将滤波片安装在固定架上。实验中采用的是厚度为0.15 μm 的Zr薄膜,目的是过滤掉高次谐波过程剩余的近红外飞秒驱动场。②启动真空泵使系统逐渐达到实验所需真空度,真空度应在 $2 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ 量级甚至更高。③开启飞秒脉冲源并将功率调至实验值,开启惰性气体管道控制阀,启动CCD采集高次谐波光束轮廓及强度信息。因惰性气体中氙气的高次谐波谱相对较宽,有利于产生更短阿秒脉冲,实验中我们选用的惰性气体是氙。④通过三维高精度调整台前后微调镍管的位置,同时每一位置处也扫描惰性气体的流量,以获得最佳的高次谐波强度信息,达到最佳谐波相位匹配,实现近红外电磁波向高次谐波的最高效率变换。

镍管靶源在不同位置处的相对谐波强度比较如图5所示,0位置对应于飞秒驱动场聚焦点。可知在前述实验条件下,当靶源放置在驱动场聚焦点后约4 mm处可获得最佳的谐波相位匹配及最高效率的频率转换过程。而在聚焦点之前的位置区域,高次谐波过程的耦合效率非常低,也即驱动场聚焦点两侧的高次谐波过程呈

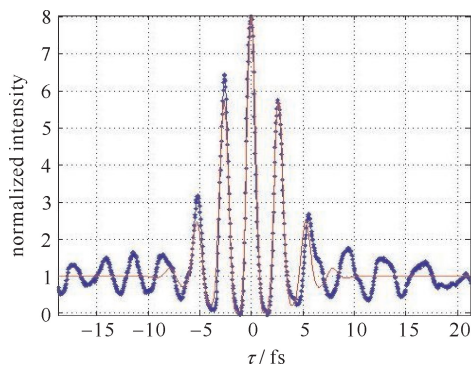


Fig. 2 Autocorrelation trace of laser pulse width measurement

图2 激光脉宽自相关测量曲线

现出显著的不对称性,这与已有文献[16]的理论分析结果是不同的。其原因在于:文献[16]的理论分析并没有考虑高次谐波产生过程中的宏观传播效应,也即忽略了等离子体对高次谐波相位匹配的影响,而实际实验中则并非如此。高次谐波远场轮廓与气体靶的位置也极为敏感,如图 6~7 所示:当气体靶从飞秒脉冲场聚焦点后 4 mm 改变为 2.5 mm 时,其光场轮廓变化很小,但两位置产生的高次谐波的远场轮廓则变化较大(已将透射过 Zr 薄膜的飞秒场作为背景而减去)。据此可知,在实现最佳相位匹配的条件下,谐波场与驱动场具有相类似的空间强度分布特性(注:实验中这里没有进行相关定量研究)。该结果是目前通常采用的高次谐波场为高斯光束的假设提供了实验依据。同时,联立图 5~7 可看出,当气体

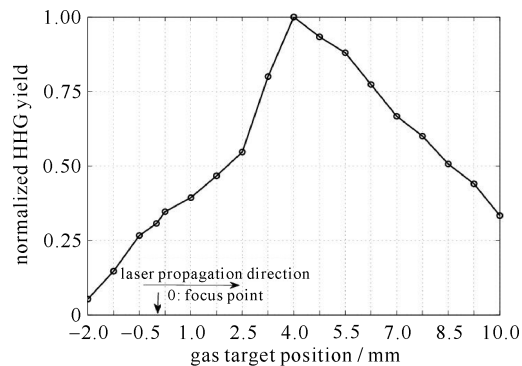
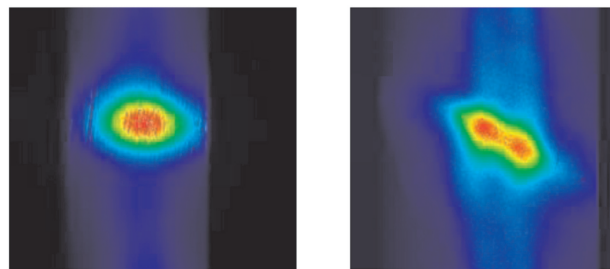


Fig. 5 Dependence of high-order harmonics yield on gas target position

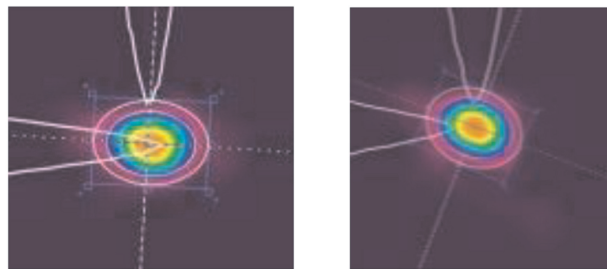
图 5 高次谐波产率与气体靶位置的关系



(a) 4 mm after driving laser focus (b) 2.5 mm after driving laser focus

Fig. 6 Beam profiles of the high-order harmonics

图 6 高次谐波光束远场轮廓



(a) 4 mm after its focus

(b) 2.5 mm after its focus

Fig. 7 Beam profiles of the driving laser

图 7 飞秒场光束轮廓

靶放在飞秒场更强的位置时(2.5 mm 处),其高次谐波产率反而更低,只有最佳相位匹配是谐波产率的 50%。这里需要指出的是,高阶谐波谱经由掠入射平场光谱仪分析,在 75~110 eV 范围内,如图 8 所示。

这里需要说明的是,实验中也尝试采用了不同内径尺寸的镍管靶源,实验数据将在其他地方给出。针对不同的强场与气体靶作用条件,尽管最佳谐波相位匹配位置、谐波强度、相应靶源压强有所不同,但是该位置位于驱动场聚焦点后的特性始终没有改变。这说明该结论具有普遍性。另外,从图 5 可看出,谐波产生过程对驱动场聚焦点位置非常敏感,因而靶源位置微调时在谐波产率峰值位置要尽量提高扫描精度。

3 结 论

本文给出了一种实现强激光场气体靶作用高次谐波过程最佳谐波相位匹配的实验方法,通过实验和方法相穿插的方式,研究了气体靶与驱动场聚焦点相对空间位置对高次谐波产生效率的影响,得出最佳相位匹配位置始终位于高斯型驱动场聚焦点后 3~5 mm。同时也认为,在实现最佳相位匹配的条件下,驱动场及对应谐波场具有相类似的空间分布特性,该结果是目前通常采用的高次谐波场为高斯光束的假设提供了实验依据。该方法及相关研究结果对高次谐波产生、高脉冲能量孤立阿秒脉冲技术有重要的指导意义。

参考文献:

- [1] 周洪军, 钟鹏飞, 郑津津, 等. 不同厚度 Al 滤片对 17~33 nm 高次谐波抑制的定量研究[J]. 光学 精密工程, 2007, 15(7): 1016-1020. (Zhou Hongjun, Zhong Pengfei, Zheng Jinjin, et al. Quantitative research on higher order harmonic suppression in 17~33 nm with different thickness Al filters. Optics and Precision Engineering, 2007, 15(7): 1016-1020)
- [2] 卢发铭, 张盛, 夏元钦, 等. 双色飞秒强激光作用下的 CO₂ 分子高次谐波[J]. 红外与激光工程, 2014, 43(1): 77-80. (Lu Faming, Zhang Sheng, Xia Yuanqin, et al. High harmonic generation in CO₂ using two-color femtosecond laser. Infrared and Laser Engineering, 2014, 43

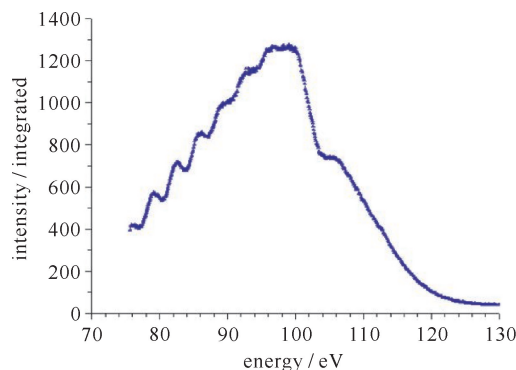


Fig. 8 Spectrum of high-order harmonics

图 8 高次谐波谱

(1): 77-80)

- [3] 秦沛, 任玉, 刘丽炜, 等. 金属纳米颗粒等离激元共振增强非线性介质谐波的发展现状[J]. 中国光学, 2016, 9(2): 213-225. (Qin Pei, Ren Yu, Liu Liwei, et al. Development of plasmon-resonance of metal nanoparticles enhanced harmonic generation in nonlinear medium. Chinese Optics, 2016, 9(2): 213-225)
- [4] 龚梓博, 陆星, 施可彬, 等. 光学频率梳非线性传输及其在相位噪声探测中的应用[J]. 中国光学, 2015, 8(1): 39-44 (Gong Zibo, Lu Xing, Shi Kebin, et al. Nonlinear propagation of optical frequency comb and its application in phase noise detection. Chinese Optics, 2015, 8(1): 39-44)
- [5] Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics[J]. Review of Modern Physics, 2009, 81(1): 163-234.
- [6] Calegari F, Ayuso D, Trabattoni A, et al. Ultrafast electron dynamics in phenylalanine initiated by attosecond pulses[J]. Science, 2014, 346(6207): 336-339.
- [7] Despre V, Marciniak A, Loriot V, et al. Attosecond hole migration in Benzene molecules surviving nuclear motion[J]. The Journal of Physical Chemistry Letters, 2015, 6: 426-431.
- [8] 李儒新, 程亚, 冷雨欣, 等. 超快光学与超强激光技术前沿研究[J]. 中国科学: 信息科学, 2016, 46(9): 1236-1254. (Li Ruxin, Cheng Ya, Leng Yuxin, et al. Frontiers in ultrafast optics and ultra-intense laser technology. Scientia Sinica Informationis, 2016, 46(9): 1236-1254)
- [9] Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, et al. Single-cycle nonlinear optics[J]. Science, 2008, 320(5883): 1614-1617.
- [10] Ferrari F, Calegari F, Lucchini M, et al. High-energy isolated attosecond pulses generated by above-saturation few-cycle fields[J]. Nature Photon, 2010, 4(12): 875-879
- [11] Sansone G, Benedetti E, Calegari F, et al. Isolated single-cycle attosecond pulses[J]. Science, 2006, 314 (5798): 443-446.
- [12] Zhao K, Zhang Q, Chini M, et al. Tailoring a 67 attosecond pulse through advantageous phase-mismatch[J]. Optics Letters, 2012, 37 (18): 3891-3893.
- [13] Feng X, Gilbertson S, Mashiko H, et al. Generation of isolated attosecond pulses with 20 to 28 femtosecond lasers[J]. Physical Review Letters, 2009, 103: 183901.
- [14] Vincenti H, Quere F. Attosecond lighthouses: how to use spatiotemporally coupled light fields to generate isolated attosecond pulses[J]. Physical Review Letters, 108(11): 113904.
- [15] Corkum P B. Plasma perspective on strong-field multiphoton ionization[J]. Physical Review Letters, 1993, 71(13): 1994-1997.
- [16] Saleeres P, L'Huilier A, Lewenstein M. Coherence control of high-order harmonics[J]. Physical Review Letters, 1995, 74(19): 3776-3779.
- [17] Gragossian A, Seletskiy D V, Sheik-Bahae M. Classical trajectories in polar-asymmetric laser fields: synchronous THz and XUV emission [J]. Scientific Reports, 2016, 6: 34973.

Effect of target position on phase matching in high-order harmonic generation

Wang Chao¹, Kang Yifan², Bai Yonglin¹, Wang Yishan³, Xu Peng¹, Wang Xianglin³

(1. Key Laboratory of Ultra-fast Photoelectric Diagnostics Technology, Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710119, China;

2. School of Science, Air Force Engineering University, Xi'an 710051, China;

3. State Key Laboratory of Transient Optics and Photonics, Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710119, China)

Abstract: This paper presents an experimental method to realize the best high-order harmonic generation(HHG) phase matching in the interaction of strong optical field and gas target. By studying the effects of the relative location between gas target source and Gaussian-type driving field focus on the harmonic phase matching, conclusions are obtained that the optimum position of gas target for phase matching is always 3-5 mm behind the focal point of the driving field, with much lower HHG yield before the focus caused by serious harmonic phase mismatch. At the same time, in the optimum relative position, the driving field and the high-order harmonic field have similar spatial distribution characteristics, providing the experimental basis for the commonly used assumptions of Gaussian beam for high-order harmonic field.

Key words: extreme nonlinear optics; high-order harmonic generation; phase matching; isolated attosecond pulse; gas target

PACS: 42.55.-f; 42.65.-k