

CNIC-01312

CAEP-0001

中国核科技报告

CHINA NUCLEAR SCIENCE AND TECHNOLOGY REPORT

在强场中产生相干高次谐波的
真空紫外~软 X 射线源的进展评述

A REVIEW ON ADVANCE OF COHERENT HIGH-
ORDER HARMONIC GENERATION IN STRONG
FIELDS FOR VUV~SOFT X-RAYS SOURCE

(In Chinese)



中国核情报中心
原子能出版社

China Nuclear Information Centre
Atomic Energy Press

图书在版编目 (CIP) 数据

中国核科技报告 CNIC-01312 CAEP-0001: 在强场中
产生相干高次谐波的真空紫外~软 X 射线源的进展评述
/孙景文著. —北京: 原子能出版社, 1998. 12

ISBN 7-5022-1942-0

I. 中... II. 孙... III. 核技术-研究报告-中国 IV. TL-

2

中国版本图书馆 CIP 数据核字 (98) 第36629号

在强场中产生相干高次谐波的
真空紫外~软 X 射线源的进展评述

孙景文著

©原子能出版社, 1998

原子能出版社出版发行

责任编辑: 李曼莉

社址: 北京市海淀区阜成路 43 号 邮政编码: 100037

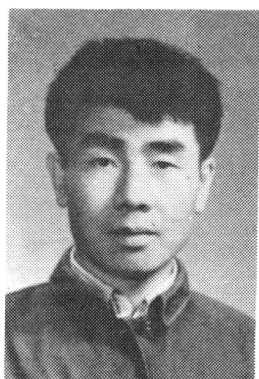
中国核科技报告编辑部排版

核科学技术情报研究所印刷

开本 787×1029 1/16 • 印张 1 • 字数 23 千字

1998年12月北京第一版 • 1998年12月北京第一次印刷

定价: 5.00 元



孙景文：中国工程物理研究院科技信息中心研究员，1964年毕业于哈尔滨工业大学精密仪器系。

SUN Jingwen: Professor of Centre of Science and Technology Information, China Academy of Engineering Physics. Graduated from the Department of Precision Instrument, Haerbin Institute of Technology in 1964.

CNIC-01312

CAEP-0001

在强场中产生相干高次谐波的 真空紫外~软 X 射线源的进展评述*

孙景文

(中国工程物理研究院, 成都, 610003)

摘 要

评述了用不同的激光系统在强场中获得高次谐波的最近进展, 研究了激光脉冲宽度、激光波长(从近红外到紫外波段)和原子系统对产生的光子数和得到的最大能量的影响, 产生的谐波强烈地与聚焦条件相关。基于不同文献的试验结果, 完成了特征谐波分布的讨论, 包括宽坪、交流 Stark 效应在坪台形成过程中的作用, 基波与产生的谐波的相关性。

*本文主要根据 K.Miyazaki 和 Ph Balcou 等人的 28 篇参考文献作编译评述。

A Review on Advance of Coherent High-order Harmonic Generation in Strong Fields for VUV~Soft X-rays Source

(In Chinese)

SUN Jingwen

(China Academy of Engineering Physics, Chengdu, 610003)

ABSTRACT

The recent advances Concerning high-order harmonic generation results obtained with different laser systems in strong laser-fields are reviewed. The influence of the laser pulse width, the excitation wavelength (from the near infrared to the ultraviolet) and the atomic systems on the number of photons produced and on the maximum energy attained are investigated. Harmonic generation also depends strongly on the focusing conditions. Based on the experimental results form different references, a discussion is made on the characteristic harmonic distribution including a broad plateau, the role of ac stark effects in the plateau formation, the fundamental-wavelength dependence of harmonic generation.

引言

超短脉冲强激光的最近发展使激光能产生 $10^{14} \sim 10^{18} \text{ W/cm}^2$ 的光强, 当原子暴露于强激光场, 原子便产生一种与时间相关的偶极子力矩并以入射激光频率的奇数倍 $n\omega$ 发出谐波辐射, 这种过程被称为光学谐波振荡 (Optical Harmonic Generation(OHG))。在低到中等激光强度(即 $10^{13} \sim 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $0.248 \mu\text{m} \sim 1 \mu\text{m}$ 波长)和脉冲宽度 $1 \sim 40 \text{ ps}$ 情况下已进行了充分地研究^[1]。但是, 现在的激光系统可以产生超过 10^{17} W/cm^2 的光强, 而且脉冲宽度为 $0.1 \sim 1.0 \text{ ps}$ 。最近, 由几个研究小组已完成的短脉冲实验, 已观测到关于原子及其若干电离阶段在超过饱和强度下在稀有气体中产生的高次谐波^[2-4]。因此, 人们在高度地关注着由极高亮度的强激光在气体介质中产生的高次谐波真空紫外和软 X 射线源。用 Nd:YAG^[5] 和玻璃^[6, 7]、K₂F^[8, 9]、染料^[3]和 Ti: 蓝宝石激光^[10]完成了高次谐波振荡的许多试验, 而且至今产生的最高次(最短的波长)谐波辐射是用 Ti: 蓝宝石激光(806 nm)脉冲^[10]在 Ne 中的 109 次谐波(7.4 nm)。在谐波振荡过程中最显著的性能是一个坪, 在这个坪区的上述谐波的强度处在一个数量级的范围内。包含一个宽坪的典型的谐波分布是由 Saclay 小组用皮秒 Nd:YAG 和玻璃激光脉冲^[7, 8]观测到的, 而且同时也由 Miyazaki 等人用亚皮秒染料激光脉冲观测到了^[3]。从理论上研究了坪的形成, 很多成果已应用于高强度下非线性光学的新领域^[11-15]。高次谐波的产生为在超紫外线(XUV)和软 X 射线光谱区研究可调谐的相干辐射能提供了一种良好的途径。这种谐波的坪特性是相干辐射向短波区的一种可能的延伸, 就强辐射场与原子气体的详细的非线性相互作用而论, 仍然有许多问题要研究。

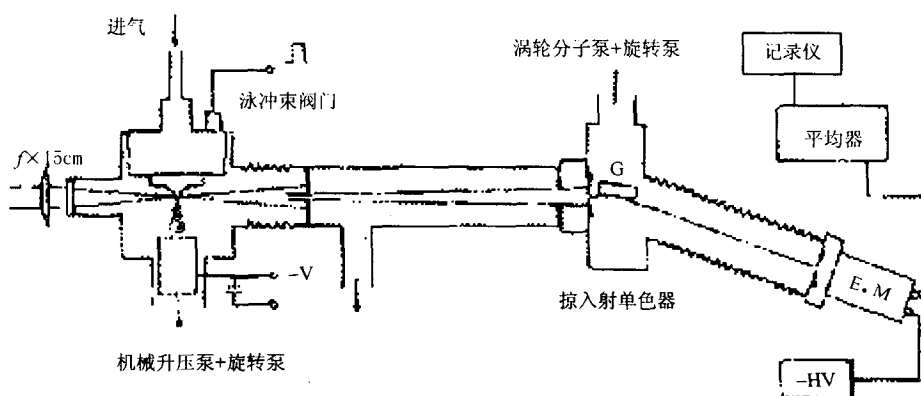


图1 谐波振荡实验装置

G——光栅; E.M.——电子倍增器; HV——高压电源。

1 高次谐波振荡实验装置

由倍频、锁模 Nd:YAG 激光脉冲泵浦的直线空腔染料激光产生亚皮秒 616 nm 辐射。染料激光脉冲由三级放大器以 10 Hz 放大到 2 mJ 能量, 脉冲为约 800 fs。为产生亚皮秒 UV 脉冲, 染料激光在 0.5 mm 厚的 BBO(2, 5-二-(4-联二苯基)恶唑)晶体中倍频。约 100 μJ 的 308 nm 脉冲由两个 XeCl 激光放大器放大到约 30 mJ^[6]。利用在稀有气体喷射过程中产生的 3 次和 5 次谐波通过去本底自相关法已能可靠地测量放大的紫外激光脉冲宽度为 380 fs。关于谐波振荡实验装置如图 1 所示。用焦距为 15 cm 的 CaF_2 透镜把线极化的染料激光或 XeCl 激光的输出光束聚焦进入超声原子束。关于 616 nm 辐射聚焦束的共焦参数是 8.2 mm, 308 nm 辐射聚焦束的共焦参数是 3.7~4.5 mm, 取决于束的发散度, 它远比 1 mm 的相互作用长度大。实际上, 激光共焦参数 b 规定为 2 倍瑞利长度, 在该距离范围内焦点截面增加一倍。在 616 nm 情况下非线性介质中最大的聚强度是 $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 在 308 nm 情况下为约 10^{16} W/cm^2 。整个试验在相互作用区中的气体密度是固定的, 对于 He 估计是 $4.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, 对于 Ne, 气体密度是 $2.7 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, 而对于 Ar、Kr 和 Xe 是 $4.3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 。在原子束的下游, 电极要面对通过多光子电离(MPI)和非线性介质的电介质击穿产生的要探测的离子。

2 在 616 nm 激光下的谐波分布

图 2 给出了 He 中产生的高次谐波的例子。在 He 中测到的最高次谐波(最短波长)是 41 次谐波(15.0 nm), 在 Ne 中为 37 次谐波(16.6 nm), 在 Ar 中为 19 次谐波(32.4 nm), 在 Kr 中为 17 次谐波(36.2 nm)和在 Xe 中为 13 次谐波(47.4 nm)。小谐波信号的探测极限由随机噪声控制, 或许大部分是由于多光子电离(MPI)或由随后的电介质击穿。在最高的基波强度下, 可在上述全部稀有气体中探测到离子信号。在 Xe 中观测可看到电介质击穿并伴随有大量的随机噪声。

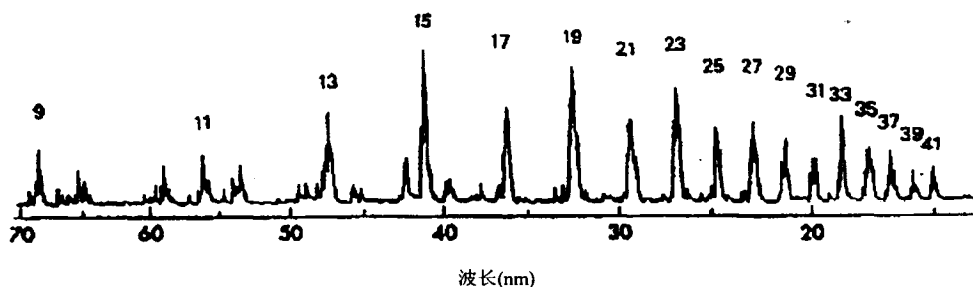


图 2 在 He 中用 616 nm 激光观察到的高次谐波光谱

光谱的峰值由谐波级次标记, 未标注的峰值是由光栅的次级衍射形成的。

图 3 中给出在 He 和 Ne 中(a) 与在 Ar、Kr 和 Xe 中(b)标定的谐波分布。在 He 和 Ne 中, 3 次谐波最强, 然后从 3 次到 9 次开始减少, 在 11 次谐波处出现强度最小值, 此处

接近电离极限(IL)的能区。然后较高次谐波再次增强。在 He 中 13~37 次谐波为一宽的坪台, Ne 中 13~33 次谐波为一宽坪, 在此坪区内谐波信号在一个量级之内。在 Ar、Kr 和 Xe 中观测到的谐波分布类似于在 He、Ne 中的情况: 强度从 3 次谐波开始减少, 而坪区由接近电离极限(IL)处的 7 次谐波之前开始。

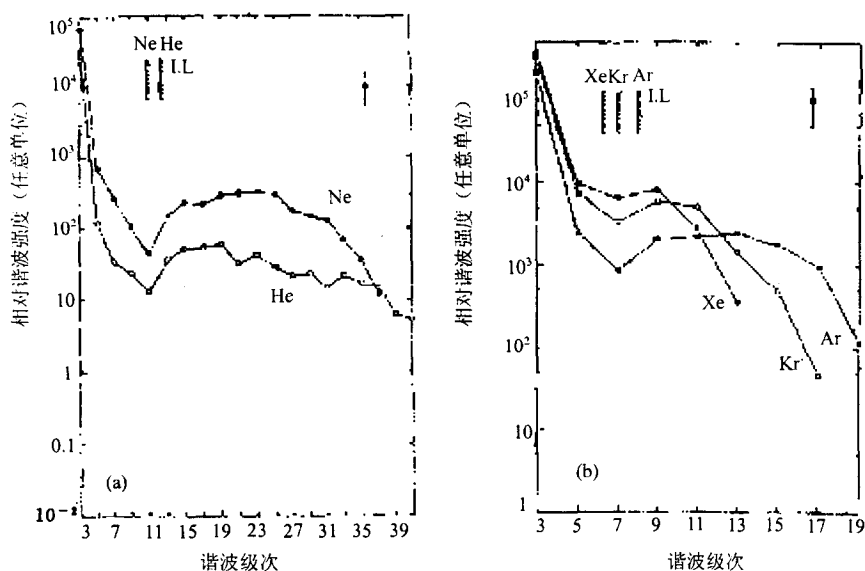


图 3 (a)在 He 和 Ne 中的谐波分布与(b)在 Ar、Kr 和 Xe 中的谐波分布

对于 He、Ne、Ar、Kr 和 Xe 中的光强分别为 $I=1.4$ 、 1.9 、 1.9 、 1.5 和 2.0×10^{14} W/cm²。为了比较, 把(a)和(b)中的谐波强度以同样的相对标尺绘出。I.L 为电离极限。

可清楚地看出在这类谐波分布中有一种系统趋势。从 He 到 Xe, 低次谐波(3~9 次)的强度随原子序数而增加。较高次谐波和坪区宽度随原子序数增加而减少。对于较重的原子可探测到的谐波级次部分由多光子电离和电介质击穿所限制。这些结果强有力地说明谐波辐射主要是由中性原子的非线性产生的。在这方面, 高次谐波振荡和特征谐波分布应理解为由强辐射场引起原子单电子偶极子的固有特性^[11~15]。

3 坪区的形成

在图 3 中我们注意到, 在全部稀有气体中, 坪都是从强度最小值开头并且围绕接近电离极限(IL)的能区开始形成。为了更详细地理解这种现象, Miyazaki 等人测量了基波强度 I 与接近 Ar 的电离极限处产生的谐波频谱的相关性, 结果如图 4 所示。每次谐波强度在弱场极限中从不遵循光强 I 的简单功率定律。在最低的强度值 $I=1.7 \times 10^{13}$ W/cm² 处既没有观测到强度的最小值, 也没有观测到谐波坪台。通过增加光强, 刚好在电离极限之上, 9 次谐波迅速增加超过了 7 次谐波。在进一步增加 I 的情况下, 9 次谐波减少了 I 与增长

速率的相关性, 而 11 次和随后的 13 次谐波迅速地形成一坪区。该结果说明这个坪是由入射的强场引起的, 并且是由于原子的电子对强激光脉冲的无扰动非线性响应的结果^[17]。

为了看到增加光强 I 对谐波分布的单原子响应的影响, Miyazaki 等人用由 Becker 提出的原子模型^[14]完成了无扰动计算, 并结合考虑了无激发态。对于 He、Ne 和 Ar 的计算结果提供了较粗的坪台形成特性或在高次谐波中增强了强度 I 的相关性。这已由 Kulander 等人在 616 nm 对于 Ne 的详细的无扰动计算作了说明^[18]。而对于 Xe 和原子模型在 1.064 nm 情况下由几位作者作了解释^[11~15]。他们在理论与实验之间的定性符合得出了一个结论:

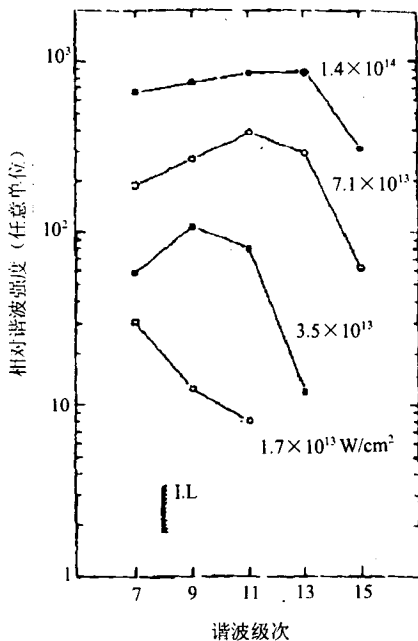


图 4 在几种基本强度下在 Ar 中的谐波分布

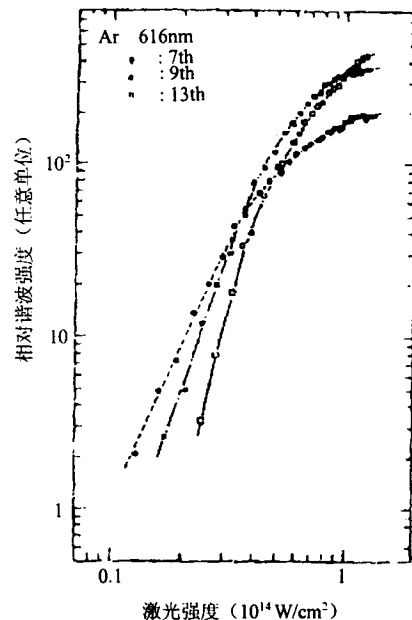


图 5 作为激光强度函数的谐波强度

坪台主要是由于原子对强辐射场的无扰动性非线性响应。非线性偏振正比于单原子响应变化, 随入射强场迅速减少, 而在谐波频率单原子发射具有弱强度相关性, 高次谐波的弱强度相关性似乎可由图 4 给出的结果支持。为了知道详细的强度 I 的相关性和电离极限能区产生的每次谐波的特性, 可按 I 的函数测量谐波强度, 关于 Ar 的 7 次、9 次和 13 次谐波的结果如图 5 所示, 它与图 4 的结果是一致的。在 $I < \sim 3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 的范围, 高次谐波较弱, 并且随 I 的增加而迅速增加, 7 次谐波迅速减少增长率, 形成图 3(b)中的最小值。对于 $I > \sim 3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 首先开始饱和。在 $I \approx 7 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 左右倾向于饱和。与此形成对比, 一直到可和 9 次谐波比较(或高于 9 次谐波), 13 次谐波随着 I 的增加而相当快地继续增加, 但在最高强度下谐波进入饱和区。注意在图 5 中对每次谐波, 谐波以特有的方式随着 I 的增加而增加。与此相反, 在最高强度下, 不同次的谐波缓慢地增加, 在电离极限远高于 Ar 的 Ne 中, 可观测到谐波类似的 I 的

相关性。在图 3(a)中 11 次谐波代表最小值, 随着 I 的增加, 它的增长率更迅速地减少。对于在最高强度下形成的坪区, 13 次谐波超过 11 次谐波。

4 Stark 效应的作用

根据这些结果, 人们可以注意到每种非线性介质的原子结构的重要性。高强度下的谐波振荡与强激光脉冲和原子的相互作用过程中阈值以上的电离(ATI)密切相关^[12, 19]。此外观测到的坪区形成过程可以借助参考 ATI 结果来说明, 尤其是要考虑 Stark 效应。众所周知, 在强辐射场中稀有气体原子的激发态和电离极限借助于光的微扰或有质动力能量 $E_p \sim e^2 E_0^2 / 4m\omega^2$ 要向接近于高能量进行 Stark 漂移, 此处 E_0 是在频率 ω 处激光的峰值电场, 而 m 和 e 是电子质量与电荷^[20]。在 $I = 5.7 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 情况下, E_p 的漂移变成等于入射光子能量 2.0 eV。例如在 $I \approx 6.6 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 和 $I \approx 1.8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 情况下, Ar 的电离极限漂移分别超过 9 次和 11 次谐波能量。对于在图 4 中的强度 I 的情况下, Ar 的激发态和 I.L 漂移在图 6 中以图解法给出。

在单激光脉冲中许多激发态和 I.L 的时间漂移对所涉及的谐波振荡过程提供两种重要的影响。其中之一是在谐波辐射中的时间和空间上的相位变化, 这些相位变化是从正在漂移的激发态的能区产生的。当激发态与谐波光子能量交叉时, 由于反常色散, 谐波辐射在折射率方面经受迅速而又很大的改变。因为许多漂移的激发态引起迅速和多重的折射率变化, 则在谐波辐射与由基波引起的非线性偏振之间导致在时间和空间上大的相位不匹配, 而且从这种(共振)区产生的谐波的快速增长可能被抑制。正如在图 6 中所看到的, 在低强度情况下, 在 Ar 中 9 次谐波是在电离极限之上的区域产生的。在激发态和 I.L 的漂移过程中, 随着时间的增加, 在 $I > 6.6 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 的情况下, 9 次谐波的光子能量落在共振区。这种光强 I 近似对应于图 4 和图 5 中迅速减少的与 I 相关的增长率。对于 7 次谐波, 即使在较低的光强 I 情况下, 折射率的变化应该是相当大的, 因为 7 次谐波最初不可能高效地产生, 这就导致在图 4 和 5 中给出的 7 次谐波所特有的光强 I 的相关性产生最小谐波值。除了由文献^[21, 22]所讨论的强场效应外, 在相位匹配中应考虑由于 Stark 漂移引起的折射率变化, 尤其是对于由共振区产生的谐波, 以及在特征谐波分布中所得到的结构。

交流 Stark 漂移的另一个效应是较高次谐波的共振增强。例如, 在 I 近似于 $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$

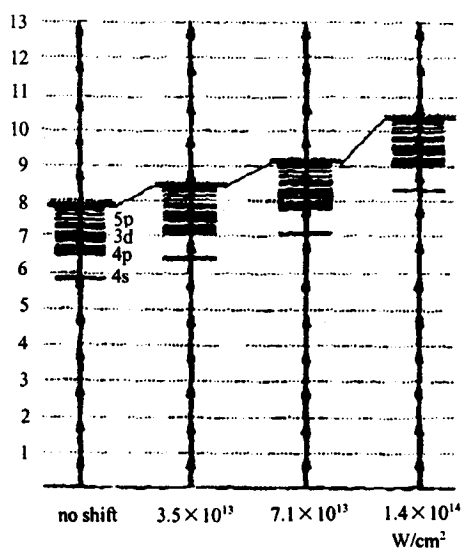


图 6 激发态的交流 Stark 漂移和 Ar 的电离极限随激光强度增加

情况下, Ar 的漂移的激发态在激光脉冲的发展过程期间与多个(7~11)基频光子处于共振。动力学共振可能对在漂移的电离极限以上产生的较高次谐波的有效增强有贡献, 此处由于漂移的激发态折射率将会很小。在图 4 中, 在 $I=1.7\sim3.5\times10^{13}\text{ W/cm}^2$ 范围, 在 Ar 中 9 次谐波可能通过 7 个和 8 个光子共振而增强, 在更高的光强下可能发生由 7~10 个光子共振增强 11 次谐波。

5 用 308 nm 激光产生谐波

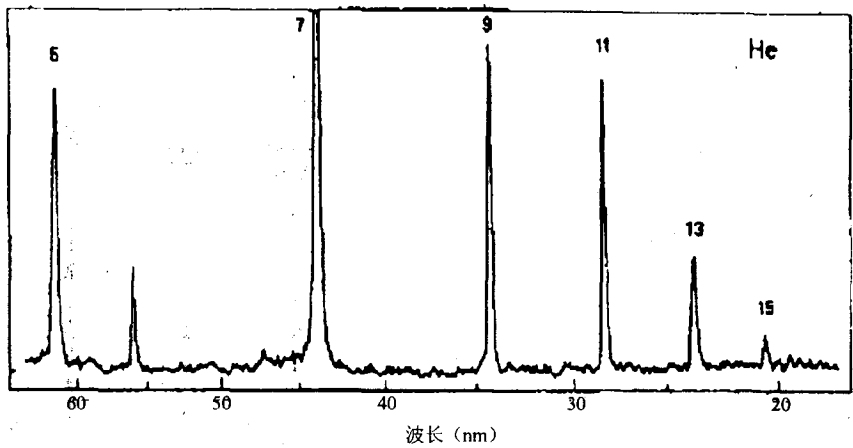


图 7 在 He 中用 308 nm 激光观测到的谐波光谱
光谱峰值由谐波级次来标记。

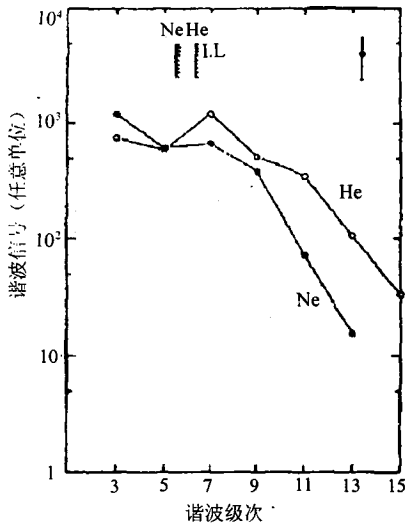


图 8 用 308 nm 激光在 He 和 Ne 中观测到的谐波分布
对于 He 和 Ne 中的光强 $I=2.5$ 和 $2.8\times10^{15}\text{ W/cm}^2$

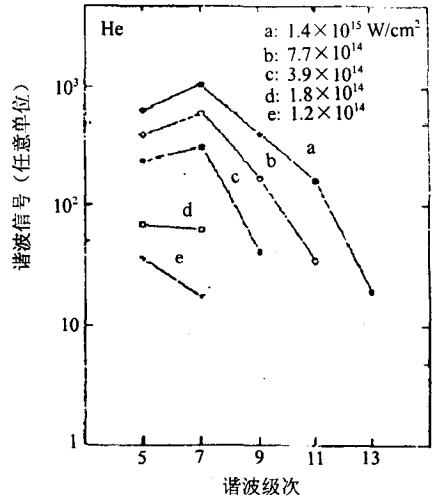


图 9 在 He 中随激光强度增加的谐波分布

为了说明谐波振荡与基波的相关性,可用亚皮秒 XeCl (308 nm)激光脉冲为例,在 He 中观测到的谐波谱的一个例子如图 7 所示,而在图 8 中给出 I 近似于 $3 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ 情况下在 He 和 Ne 中的标定的谐波分布。用 308 nm 辐射观测到的最高次谐波在 He 中是 15 次谐波(20.5 nm),在 Ne 中是 13 次谐波(23.7 nm),在 Ar、Kr 和 Xe 中是 9 次谐波(34.2 nm)。产生的高次谐波比用可见光激光脉冲更加有效,但在所用的最高光强度下在全部稀有气体中都观测到了介质击穿。注意,在图 8 中,在 He 中的最强的谐波信号是 7 次谐波,它是在接近电离极限(I.L)的能区产生的,从 3 次谐波到 11 次谐波有一个类坪台分布区,而较高次谐波随谐波级次的增加而单调减少。在 Ne 中也观测到了类似的分布,7 次谐波也相当强,但是把这些与用可见的染料激光观测到的对比,围绕着电离极限没有形成宽的坪区。对于 Ar、Kr 和 Xe,在 I 近似于 $3 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ 下观测到的分布在较高次谐波中单调减少。

图 9 中给出了几种光强 I 下 He 的谐波分布,在 $I < 2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 下观测到 3~5 次谐波,随着光强 I 的增加,7 次谐波迅速地增加一直到超过 5 次谐波。但是,谐波分布在 7 次谐波处有一峰值,一直到 $2.5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ 并没有随 I 的增加而改变,而每次谐波随着 I 的增加而明显地增加。在 Ne 中也观测到了类似的谐波辐射特性。正如在第 5 节中所讨论的,在 I 近似于 $2.5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ 的紫外光强下,我们可以预期交流 Stark 漂移约为 22 eV。在 He 中,在 $I = 1.1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 情况下,当紫外激光聚焦进入 He 束的中心区域时,5 次谐波信号最大,而 He 束的中心可能与峰值离子信号的位置是相同的。但是在图 10 中,在 $I = 3.4 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ 情况下,在介质中观测到可见的强电介质击穿,紫外辐射聚焦进入 He 束产生的谐波效率低于聚焦在除了 He 束中心以外的部分。利用 616 nm 的辐射,对于 Kr 和 Xe 观测到了类似结果,但是对于 He 和 Ne,可见波段的激光并没有产生双峰的谐波信号。

这些结果表明,强多光子电离(MPI)再加上电介质击穿把在非线性介质中的强度 I 限制在一个远低于所用或预估的数值上,并且对于高次谐波的有效增长阻止了大的漂移。通常电介质击穿的时间演变破坏了入射场的相干性或相干的相互作用过程。在图 9 之中可以看出对于在 He 中形成谐波分布的有效强度 I 应约略低于 $4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$,即使在较高的光强下,在电介质开始击穿之前预计有 3~4 eV 的漂移。这种漂移在 He 和 Ne 中借助 5~6 个光子共振可以增强 7 次谐波。然而,借助于动力学共振来有效地产生较高次谐波是十分小的,这就产生了如图

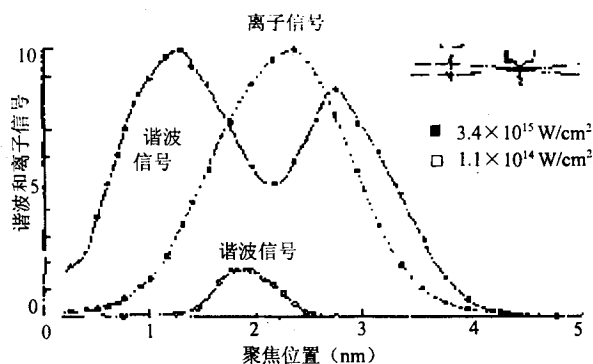


图 10 作为 308 nm 激光聚集位置的函数的谐波与离子信号
共焦参数是 4.5 mm。

8 中所示的谐波分布。在用 KrF 强激光脉冲产生谐波振荡过程中由于电介质击穿无疑应产生同样的限制过程^[8, 9], 关于这些实验已使用过很高的强度 $10^{16} \sim 10^{18} \text{ W/cm}^2$, 在电离极限附近的谐波分布中并没有观测到宽的坪台。

最近, Krause 等人^[23]已指出离子对高次谐波的产生可能有大的贡献, 因为他们发现在这些实验结果与被观测的最高次谐波的理论预估之间的一些偏离。但是, 目前在 308 nm 情况下观测的结果表明高次谐波主要由中性原子产生的, 而且在激光脉冲的演变过程中产生的离子不会对谐波振荡有明显地贡献。

6 $b^3\tau$ 定律

在大部分研究中, 关于谐波产生的坪区和低于电离原子所需的强度(饱和强度)下, 人们发现光子数按 $b^3\tau$ 变化, τ 表示脉冲宽度, b 为激光共焦参数。实际上, 在强度高于或可与饱和强度比较的情况下, 在更复杂的类型中, 脉冲宽度起作用, 在这种 τ 定标过程中, 只考虑它的部分影响。类似地, b^3 定标定律仅对“严密的”聚焦几何学是正确的。这种以严密聚焦为转移的弱表示法实际上取决于(谐波)过程中级次 q : 在所研究的部分实验中, 对于足够高的非线性级次, 几何学属于严密聚焦型的一类, 便应用 b^3 定标。为了比较在不同类型的聚焦几何学与脉冲宽度条件所得到的结果, 我们不采用光子数(N_q)而简化为以光子/ $\text{cm}^3 \cdot \text{ps}$ 为单位的光子数($N_q/b^3\tau$)来代表光子通量(每秒), 该光子通量是在 1 cm 的共焦参数情况下的激光聚焦几何学得到的。这种定标允许我们独立地讨论高能光子的产生与转换效率的最佳化的不同参量的作用, 通常这两种要求是矛盾的。

另一种困难在于这些结果是在不同的激光强度下获得的。我们可以发现有意义的比较不能在同样的激光强度下来完成, 但是围绕饱和强度, 电离的几率接近 1。的确, 在饱和强度之上, 谐波是由中性原子产生的, 因为在该强度范围内介质导致转换被耗尽。

我们的结论是应该使用激光短脉冲、长波、具有高电离能的原子核素(如 Ne 和 He)以便产生高能光子。相反, 为使转换效率最佳化要求用类 Xe 重原子、短波长(尤其是对于低次谐波)和弱聚焦几何条件。目前在这些系列实验中最显著的结果是在 Ne 中用

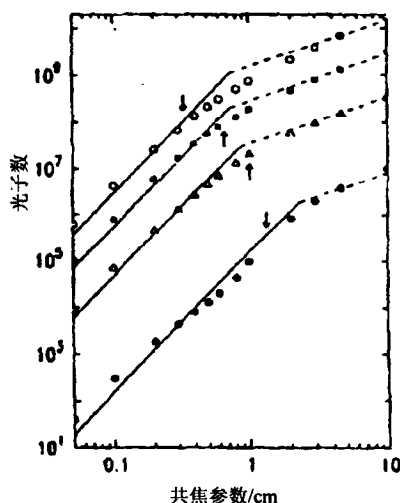


图 11 在 7 次(空圆)、13 次(全方)、19 次(空三角)和 25 次(实圆)谐波频率下作为共焦参数 b 的函数的计算的光子数

箭头指明共焦参数 b_q , 它标志着从 b^3 区(实线)向线性区(虚线)过渡。该计算是在 15 毛 (1 毛=133.3224 Pa)、0.8 mm 的 Xe 气喷嘴中对于 1.2 ps 脉冲和峰值强度为 $4 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 的情况下完成的。

1053 nm 钼玻璃激光得到 53 次谐波, 在较高频段实际上受单色器限制, 它的 19 次谐波观测到 4×10^8 光子, 它是在 Xe 中产生的, 入射功率约 6 GW, 其转换效率约为 5×10^{-7} 。

Lompre 等人用 1064 nm 激光在 Xe 中完成的实验中指出, 谐波与聚焦条件密切相关^[24], 发现坪区的谐波遵循 b^3 指数定律。相对谐波强度分布、坪的详细特性和截止位置在激光共焦参数为 b 的情况中, 其变化不超过 6 倍。在相互作用区存在的 q 次谐波场 E_q 的强度正比于非线性介质中形成的相干长度, 该相干长度(L_{coh})可能是由于在介质中的色散($L_{\text{coh}}^{\text{disp}} = \pi / \Delta K$, 式中 ΔK 为相位不重合)和由于入射辐射的聚焦($L_{\text{coh}}^{\text{foc}} = b \tan[\pi / (q-1)] / 2$), 通常后者的影响占主要部分。当 $L_{\text{coh}}^{\text{disp}} > L > L_{\text{coh}}^{\text{foc}}$, 像在大部分实验情况中一样, 当介质的电离不重要时, 谐波场 E_q 按 b 定标, 因此谐波场的强度 $|E_q|^2 \propto b^2$, 而空间积分强度 I_q (或光子数 N_q) 按 b^3 变化。另一方面, 当 $L < L_{\text{coh}}^{\text{foc}}$, E_q 与 b 无关, 积分强度变成正比于 b 。当 b/L 增加时, 我们从 b^3 方式(相干长度小于介质长度)转换为线性方式(弱聚焦, 在相位上, 谐波场属于驱动偏振项)。

当 $L \approx L_{\text{coh}}^{\text{foc}}$, 即 $b \approx b_q = 2L / \tan[\pi / (q-1)]$, 在这两种方式之间有一种过渡, 在这种情况下, 我们预期光子数变化迅速地小于 b^3 指数定律, 但是仍然不是线性的。关于 0.08 cm 的相互作用长度 L , 过渡共焦参数 b_q 对于 7 次谐波从 0.3 cm 变化到 25 次谐波的 1.2 cm。过渡方式的 q 相关性意味着存在一个共焦参数范围, 对于此范围, 高次谐波变化要比低次谐波变化更快, 因此, 对于弱聚焦几何条件, 这种坪区应当更显著。注意, 对于 101 次谐波(同样的 0.08 cm 的介质长度)过渡共焦参数约 5 cm。这就是说由于严密聚焦 b^3 方式是相位匹配的一种标志, 即使入射场只是很弱地聚焦也适合于这些很高次谐波过程。

上述讨论只是在无扰动方式才是正确的, 在这种激光强度下谐波变化要比扰动 I_q 指数定律慢得多。现在引入第三个长度 L_{amp} , 在这个长度范围内集中了偏振幅度的 90%, 一般说来, 在无扰动区, $L \leq L_{\text{amp}}$, L_{amp} 并不起作用而且使用前面的论证。与此相反, 在扰动区和足够高的非线性级次, L_{amp} 变得很小, $L > L_{\text{amp}}$, $L_{\text{coh}} \approx L_{\text{amp}}$, 谐波振荡随聚焦条件变成更复杂的级次相关的变化。

为了检验上述对无扰动区的简单论证, 用 1 μm 完成了在 Xe 中得到的光子数的数值计算, 从 $b=0.05\sim 10$ cm 米改变不同的聚焦参数。首先求解以旁轴近似表示的传输方程:

$$\nabla_{\perp}^2 E_q + 2iK_q \frac{\partial E_q}{\partial Z} + 2K_q \Delta K_q E_q = -4\pi(q\omega/c)^2 p_q \quad (1)$$

式中 E_q 是 q 次谐波场慢变化的包络线, K_q 是在谐波频率 $q\omega$ 处的波矢量, Z 为传播方向, ΔK_q 是在入射场与驱动场之间的相位失配值, p_q 为激光引起的非线性极化的 q 次谐波分量的慢变化包络线。方程(1)以圆柱坐标(r, z)表示, 算符 $\nabla_{\perp}$ 表示在横坐标 r 方向起作用的拉普拉斯算子。极化强度 p_q 是原子密度(可能由多光子电离耗尽)与原子偶极矩 $d(t)$ 的第 q 个付里叶分量乘积, 该值是通过数值积分 Schrodinger 方程得到的。为了在激光脉冲期间以时间 t 为序求解方程(1), 通过在空间和时间上积分 $|E_q(r, z, t)|^2$ 得到在每个激光脉冲所发

射的谐波光子数 N_q :

$$N_q = \frac{c}{4\hbar q \omega} \int |E_q(r, z, t)|^2 r dr dt \quad (2)$$

在 Xe 中用 1.2 ps 的入射激光, 其激光强度为 $4 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, 由脉冲气体 Xe 喷射所施加的原子密度被看作一种截断的洛伦兹分布, 具有 0.08 cm 的半高宽和 0.16 cm 的全宽, 峰值原子密度是 $5.3 \times 10^{17} \text{ 原子/cm}^3$, 估计饱和强度是 $6 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 。假定入射激光束是高斯光束而且在非线性介质中传输并不改变。图 11 按照共焦参数的函数从顶部到底部依次给出 7 次、13 次、19 次和 25 次谐波频率的光子数, 这些点指明了数值计算结果。分别由实线和虚线表示 b^3 和 b 指数定律。对于 7 次、13 次、19 次和 25 次谐波, 用箭头分别指出过渡共焦参数 b_q 等于 0.3、0.6、0.9 和 1.2 cm。它们近似与谐波随 b 变化的弯曲位置重合, 表明几何学的变化, 在不是考虑到色散(ΔK)的影响就是考虑极化幅度的实际变化(仅由特征长度 L_{amp} 确定)的十分简单的论证情况下, 前面引入了 b^3 定标律。但是, 发现这些简单的论证和定标与这些更精确而又严格的计算十分符合。

注意, 为了使转换效率最佳化, 要规定谐波能量与入射能量的比值, 并不需要超出这两种几何形状之间的过渡区。最佳的共焦参数是 q 相关因子 b_q 。

当介质变成有意义的电离, 由于自由电子通过色散的变化, 则相干长度占优势。 $L_{\text{coh}} = \pi / \Delta k_{fe}$ 和 $\Delta k_{fe} = 2\pi e^2 N_e (q^2 - 1) / mcq\omega$, 式中 N_e 为电子密度, e 和 m 为电子电荷和质量, 但是对于从中性介质产生谐波的结论并没有任何改变。

7 脉冲宽度和原子系统的影响

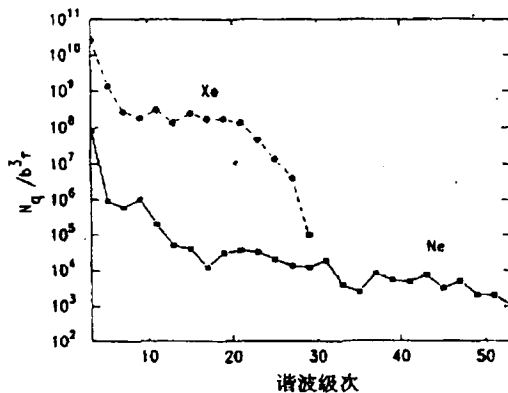


图 12 在 Xe 中用 36 ps Nd-YAG 激光在 $4 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 情况下得到的结果(圆点)与用 1.2 ps 钕玻璃激光在 $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 情况下的结果(方块)之间的比较

图中以简化光子数绘出, $\tau = 1.2 \text{ ps}$, $b = 0.5 \text{ cm}$ 和 $\tau = 36 \text{ ps}$, $b = 0.15 \text{ cm}$ 。

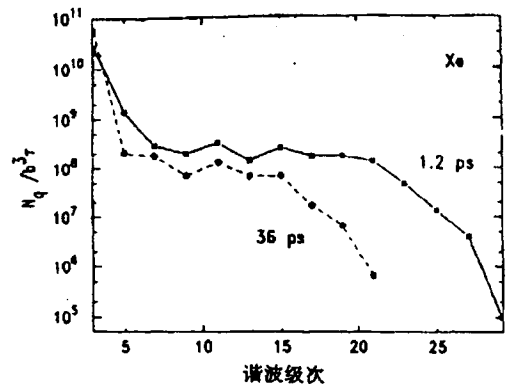


图 13 用 1.2 ps 钕玻璃激光在 Xe 中在 $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 下得到的结果(圆点, $b = 0.5 \text{ cm}$) 与在 Ne 中在 $5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 情况下得到的结果(方块, $b = 1.6 \text{ cm}$)之间的比较

通过比较不同脉冲宽度的结果来说明激光脉冲宽度对谐波产生的影响(见图 12), 一种是用 36 ps Nd-YAG 激光, 光强为 $4 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ (在饱和强度之上)得到的结果, 另一种是用 1.2 ps 钕玻璃激光在 $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (1.2 ps, 在饱和强度之上)情况下得到的结果。我们利用 $b^3 \tau$ 定标律将曲线归一化, 因此这种比较强调由于使用短脉冲增加饱和强度的影响。当脉冲宽度从 36 ps 减少到 1.2 ps 坪区并没有受多少影响。由于在这些谐波上所产生的强度, 1.2 ps 的谐波强度比 36 ps 的高, 这些谐波稍有增加。但是, 谐波坪的范围从 36 ps 的 21 次谐波增加到 1.2 ps 的 29 次谐波。为产生高次谐波就要强调尽可能使用短脉冲的优点。

在图 13 中比较了用同样的激光系统分别在 $5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 和 $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 强度下在 Ne 和 Xe 中得到的光子数。这种差别是显著的, 并且指出为产生高能光子必须采用轻的稀有气体如像 Ne 和 He。另一方面, 通过使用类 Xe 的更为极化的原子可得到更好的效率。为了在高光子能量下(50 eV 或更高)得到高效率, 相互作用几何学必须最佳化, 以便补偿单个原子的相对弱的响应。

8 激光波长和原子系统的影响

图 14 中举例说明激光波长对谐波振荡的影响。此处, 我们比较了使用短脉冲激光在 1053 nm(黑方块)、616 nm(空心圆)和 308 nm(空方)波长下得到的结果(激光脉冲宽度分别为 1.2、2 和 1.4 ps)。逐渐减少的光子数($N_q/b^3 \tau$)按光子能量的函数曲线。对于 1053 nm、616 nm 和 308 nm 波长的全部结果都分别是在 $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 、 $5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 和 $3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 的饱和强度之上得到的。如欲达到较高的激光强度, 可用较长的波长, 使用 $f=200 \text{ mm}$ 的透镜, 聚焦几何学的变化导致谐波分布更快地减少。从这三种结果的比较指出: (I) 坪特性在 1053 nm 情况下很显著, 在较短的激光波长下坪消失了。对于较短的波长, 随着谐波级次的增加, 谐波强度减少得很快。(II) 当使用短的入射波长时, 低能光子转换效率高, 高能光子转换效率低。对于较长的入射波长, 激光~原子互作用状态离开扰动极限更强烈, 坪台更明显而且可以更有效地产生高次谐波, 且可获得更短波长的辐射^[25]。

该结论似乎与 Sarukura 等人 (1991 年)得到的结果矛盾^[26], 他利用很高的激光强度(约 10^{17} W/cm^2)

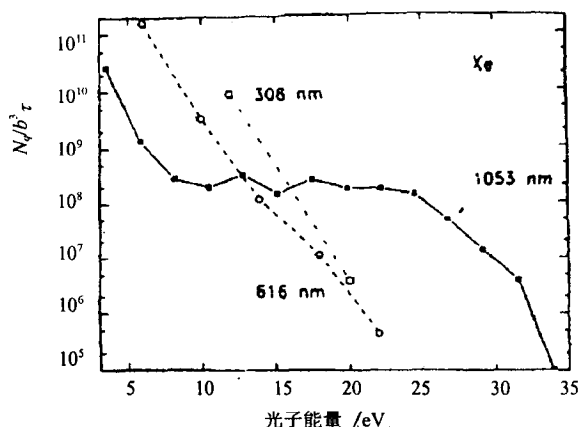


图 14 在 Xe 中激光参数分别为 1053 nm、 $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (全方, $b=0.5 \text{ cm}$, $\tau=1.2 \text{ ps}$), 616 nm、 $5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ (空圆, $b=0.2 \text{ cm}$, $\tau=2 \text{ ps}$) 和 308 nm、 $3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ (空方, $b=0.4 \text{ cm}$, $\tau=1.4 \text{ ps}$) 情况下得到的结果之间的比较

和 300 fs 脉冲宽度的 248 nm 准分子激光观测到 25 次谐波(125 eV), 而 Macklin 等人(1992 年)用 800 nm Ti 兰宝石啁啾激光观测到 170 eV 的高次谐波^[25]。但是由 Krause 等人^[27](1992) 的计算指出 Sarukura 等人的实验中的谐波发射可能是由于离子而非中性原子。离子比中性原子更难电离, 可以产生更高次谐波。Krause 等人指出任何坪的最大宽度应近似等于(以能量为单位) $I_p + 3U_p$, I_p 为电离能, U_p 为在饱和强度下的有质动力能量, 有质动力能量 U_p 定义为 $e^2 E^2 / 4m\omega^2$, 此处 e 、 m 为电子的电荷和质量, E 为场强和 ω 为激光光子能量。 U_p 的 ω^{-2} 相关性意味着使用长激光波长应产生较大的坪台和更高的光子能量。另一方面, U_p 随强度的线性相关性意味着较难电离的原子种类也会导致较高的谐波发射能量。因此 Jeffrey 等人又给出坪宽度及强度和简单的定标律关系^[28], 而且在坪中的最大高次谐波(即开始截止处的谐波)能量由

$$E_{\max} \approx I_p + 3\tilde{u}_p \quad (3)$$

十分精确地给出, 式中 $\tilde{u}_p = I / 4\omega^2$ 是电离电位的有质动力漂移(Ponderomotive shift), I 是激光强度, ω 是频率, 因子 3 是由经验确定的。该公式表明截止谐波线性地与原子的电离电位(I_p)和激光强度 I 成正比, 而且当 $\tilde{u}_p$ 较大时, 强烈地依赖于波长。

在目前的实验强度范围内($10^{13} \sim 10^{15}$ W/cm²), 单原子的响应强烈地依赖于激光波长, 而且离子可以对谐波谱做出重大贡献。应着重指出只有在由离子在焦点体积中所承受的激光峰值强度等于或超过离子的饱和强度时(He⁺的饱和强度为 4×10^{15} W/cm²), 来自离子的贡献才能变成与来自中性原子的贡献相比。

9 结 论

在本文中, 我们指出并讨论了在指定频率或光子能量下产生光子数的各种最佳途径。为了产生高能光子必须使用短激光脉冲、长激发波长和具有高电离能量的原子种类(如 Ne 与 He)。与此相反, 转换效率的最佳化要求用类 Xe 重原子、短波长(对于低次谐波过程)与弱聚焦几何学。由于聚焦, 则基本长度是相干长度。但是, 过渡共焦参数 b_q 正比于相互作用长度 L 。因为在较长的相互作用长度下, 即使对于较弱的聚焦几何学, b^3 定标定律也是正确的。同时增加共焦参数和介质长度可能是得到较高转换效率的途径之一。

一个正在研究的课题是原子密度对谐波的影响。在这种密度下, 由于在中性或部分电离的介质中的色散, 因此聚焦在纯几何学效应方面相位匹配效应将占优势。对于谐波信号与原子密度的相关性, 则 N^2 的指数定律将不再正确。

Balcou 等人用 1053 nm 激光在 2×10^{14} W/cm² 强度下在 Xe 中得到的 19 次谐波(光子能量 22 eV), 其光子数达到 4×10^8 光子, 其脉冲宽度小于 0.5 ps, 它的光谱宽度约为 0.5 Å, 它的发散为几 mrad, 而源的直径几 μm , 在表 1 中我们指出 22 eV 的发散辐射的特征。表中的数据表明这种超紫外线(XUV)源具有十分感兴趣的特性。光子通量(N_q/τ_q , τ_q 是 q 次