

空气中激光等离子体通道的三次谐波光谱特性研究

李海宁, 张丽平, 吴洪, 李贤, 丁良恩*

华东师范大学光谱学与波谱学教育部重点实验室, 华东师范大学物理系, 上海 200062

摘要 对不同条件下强激光在空气中形成等离子体通道的三次谐波光谱特性进行了研究。单脉冲能量 12 mJ, 脉宽 30 fs, 重复频率 10 Hz, 中心波长 795 nm 的飞秒激光脉冲经 0.5 m 焦距的凹面镜聚焦, 在空气中形成了等离子体通道, 并在前向观测到谱线半峰全宽 (FWHM) 为 15 nm 的三次谐波。随着脉冲啁啾的变化, 三次谐波的光谱出现红移或蓝移, 当激光脉冲附带 $+1.3 \times 10^{15} \text{ fs}^{-2}$ 的二阶色散时, 三次谐波谱线红移且谱峰强度增长了两倍。同时, 通过改变可编程声光色散滤波器 (AOPDF) 光谱调制的位置 (Hole position), 三次谐波的光谱也发生频移。

关键词 三次谐波; 等离子体通道; 可编程声光色散滤波器

中图分类号: O437

文献标识码: A

文章编号: 1000-0593(2008)06-1201-04

引言

随着啁啾脉冲放大 (CPA) 技术的不断发展, 激光功率得到了很大的提高, 使得强激光在气体中传播时也能产生明显的非线性效应, 如自聚焦^[1, 2]、自相位调制^[3, 4]、四波混频^[5, 6]、受激拉曼辐射等。1995 年, Braun^[7]等第一次发现超快强激光在空气中传播时形成了 20 m 的稳定的等离子体通道, 由于其在诱导闪电^[8-10]、大气污染监测^[10, 11]等领域潜在的应用前景, 引起了各国科研人员很大的兴趣。但是等离子体通道内部非线性效应十分复杂, 至今人们还没有比较完整的理论解释, 普遍认为^[12]超快飞秒激光在气体中传播时, 由于气体的非线性效应产生克尔效应自聚焦使激光功率密度不断增加。当激光功率密度达到气体的电离阈值时, 气体电离形成低密度的等离子体对光束产生散焦作用, 聚焦和散焦的动态平衡使激光在气体中传播时形成很长的等离子体通道。

当超快强激光在空气形成等离子体通道时, 由于克尔效应, 三次谐波相位匹配的条件可写为

$$n_0(\omega) + n_2 I(\omega) - n_e / 2 n_{\text{crit}}(\omega) = n_0(3\omega) - n_e / 2 n_{\text{crit}}(3\omega) \quad (1)$$

其中 n_0 为空气的折射率, n_2 为非线性折射率系数, n_e 为等离子体的电子密度, n_{crit} 为等离子体的临界密度。由于基频光的强度远大于三次谐波的强度, 因此 (1) 式中忽略了与三次谐波强度有关的克尔自聚焦项。等离子体通道内的电子密度 n_e 约为 $10^{16} \sim 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ^[7], 由 (1) 可得到当基频光功率密度达到 $10^{13} \sim 10^{14} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ 时将满足空气中三次谐波相位匹配

条件^[13]。而等离子体通道内激光强度可达到 $10^{14} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ ^[14], 满足产生三次谐波相位匹配的条件, 同时等离子体通道的长度远超过衍射极限, 这些都为三次谐波的产生创造了良好的条件。在相位匹配条件下的三次谐波辐射公式为^[15]

$$I_{3\omega}(z) = \frac{(3\omega)^2}{n_{3\omega} n_{\omega}^3 \epsilon_0 c^4} I_{\omega} (l_{\text{eff}})^2 \quad (2)$$

式中 $l_{\text{eff}} = x_{\text{eff}} Z$ 为有效作用长度。三次谐波的强度正比于激光强度和有效作用长度乘积的平方 $((I_{\omega} l_{\text{eff}})^2)$ 。短焦距聚焦时, 激光功率密度大而有效作用长度短, 长焦距聚焦时, 激光功率密度小而有效作用长度长, 所以, 对于一定的激光条件, 存在一个最佳焦距, 使三次谐波的转换效率达到最大值^[13]。

由于超短脉冲具有较宽的频谱, 通过控制 CPA 系统中的色散元件可以获得啁啾脉冲。不同啁啾的脉冲在传播过程中产生频谱调制^[16], 红光在前的正啁啾脉冲与蓝光在前的负啁啾脉冲也会分别影响基频光中各频谱的三次谐波转换效率。目前啁啾对三次谐波谱线影响的研究还比较少。

另外, 基频脉冲的光谱可呈现高斯型、双曲正割型等, 其对产生的三次谐波频谱分布的影响也有待进一步研究。

目前普遍使用的钛宝石 CPA 系统中心波长在 800 nm 附近, 其产生的三次谐波在 266 nm 附近, 仍可在空气中传播, 便于测量。同时三次谐波辐射作为各向同性介质中最低阶次的谐波辐射, 对它的研究有助于其他的高次辐射的研究, 因此气体中三次谐波辐射的研究受到越来越多的关注。本文主

收稿日期: 2007-03-11, 修订日期: 2007-06-26

基金项目: 国家重点基础研究发展计划 (973) 项目 (2006CB806001) 资助

作者简介: 李海宁, 女, 1983 年生, 华东师范大学物理系硕士研究生

*通讯联系人 e-mail: leding@phy.ecnu.edu.cn

要研究了飞秒强激光在空气中经不同曲率的凹面镜聚焦成丝后产生的三次谐波光谱;使用焦距为 0.5 m 凹面镜聚焦时不同啁啾对三次谐波谱线的影响;还发现通过改变 AOPDF 光谱调制的位置,三次谐波的光谱发生频移。

1 实验及结果分析

实验采用改造过的商用钛宝石飞秒激光系统,实验装置示意图如图 1 所示,该系统由脉宽小于 12 fs 的振荡源(Compact Pro, Femtolasers GmbH),自建展宽器^[17],可编程声光色散滤波器(AOPDF)^[18, 19]和 TSA-25 系统中的再生放大器、两通放大器及压缩器组成。我们在 AOPDF 控制软件中合理设置了预补偿激光系统各阶残留色散的值:延迟:2 668 fs;二阶色散: - 5415 fs²;三阶色散: - 10 548 fs³;四阶色散: - 16 000 fs⁴,以补偿激光系统中的残留色散,获得脉宽更窄的脉冲。AOPDF 的光谱调制曲线与系统输出激光的光谱如图 2 所示。光谱调制曲线在 795 nm 处带有宽度为 30 nm、深度为 70 % 高斯形孔,有效的抑制了光谱窄化效应。输出光光谱中间凹陷呈双曲正弦型,中心波长 795 nm,用 Ocean Optics 公司生产的光纤光谱仪 HR2000 测得输出谱线半峰全宽(FWHM)为 45 nm。激光脉宽约 30 fs,重复频率为 10 Hz,单脉冲能量约 12 mJ。

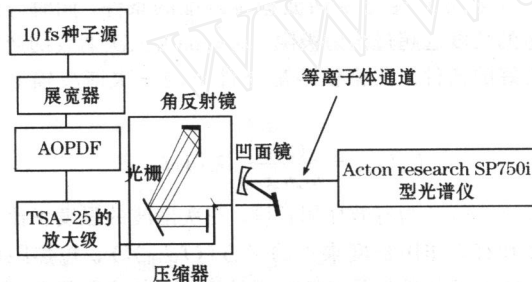


Fig. 1 Experiment scheme

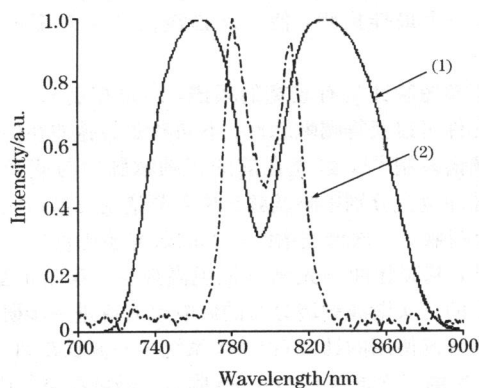


Fig. 2 (1) spectral modulation curve of AOPDF and (2) spectrum of the output pulse

1.1 不同焦距情况下的三次谐波光谱

压缩后的激光分别使用焦距 2.5, 1, 0.5 m 凹面镜聚焦,避免了使用透镜聚焦时材料色散引起脉冲展宽。聚焦后形成等离子体细丝并伴随光学非线性效应,成丝结束后光信号收集进入 Acton Research 公司的 SP-750i 型光栅光谱仪,使用

光电倍增管模式探测,实验结果如图 3 所示,其中(a)为 250 ~ 1 000 nm 整个波段的光谱,(b)为 265 nm 附近的三次谐波光谱。

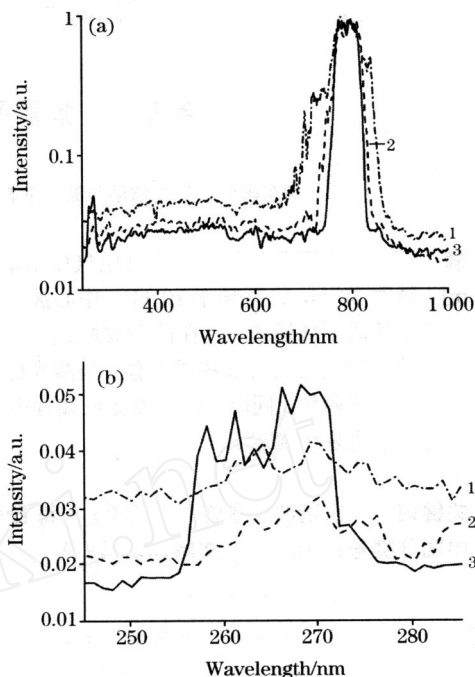


Fig. 3 Spectra of the fundamental continuum(a) and the TH(b) at different focal length
1: 2.5 m; 2: 1 m; 3: 0.5 m

从图中可以看出,使用焦距 2.5 m 的凹面镜聚焦时,基频光谱得到了很大的展宽(720 ~ 850 nm),同时紫外呈现宽范围的超连续谱,但并不能观察到明显的三次谐波光谱;使用焦距 1 m 的凹面镜聚焦时,基频光谱展宽逐渐减弱,同时紫外波段超连续谱的强度也逐渐减弱,三次谐波的光谱逐渐明显;当使用焦距为 0.5 m 的凹面镜聚焦时,基频光谱基本没有展宽,此时三次谐波的光谱强度增强,谱宽约 15 nm。

普遍认为这是由于自相位调制(SPM)产生附加频率造成了频谱展宽。频谱的进一步展宽可认为是由于多光子泵浦的参量过程。在一个大气压的气体介质中,当两个泵浦光子夹角很小约几个 mrad 时^[20],较容易满足四波混频相位匹配的条件,产生不同于泵浦光频率的信号光和空闲光光子。使用长焦距凹面镜聚焦时,光束会聚和发散的角度较小,容易满足四波混频相位匹配的条件,产生紫外波段的频谱形成超连续谱。因此,在实验中较长焦距聚焦时,光谱展宽明显并形成超连续谱。

而三次谐波的产生和光谱展宽形成超连续谱是不同的非线性过程。在我们的实验条件下使用 0.5 m 焦距的凹面镜聚焦时,激光强度和有效作用长度乘积的平方最大,此时三次谐波的光谱强度增强。

1.2 不同啁啾对三次谐波的影响

通过改变压缩器中光栅和角反射镜之间的距离可以改变脉冲所携带的啁啾量。脉冲宽度最窄时,近似为脉冲附带的

二阶色散量 (GVD) 为 0 fs^2 的理想情况。随着压缩器中光栅和角反射镜之间的距离减小, 脉冲的正色散量依次增加, 脉冲中红光在前蓝光在后, 脉冲携带正啁啾; 反之随着两者之间的距离增加, 脉冲的负色散量依次增加, 脉冲中蓝光在前红光在后, 脉冲携带负啁啾。在使用焦距为 0.5 m 的凹面镜聚焦的情况下, 随着正负啁啾逐渐增加, 三次谐波光谱变化如图 4 所示。脉冲最窄为 30 fs 时即 $\text{GVD} = 0 \text{ fs}^2$ 时, 三次谐波光谱中心在 265 nm 附近, 谱线中间平坦并没有像基频光光谱一样呈双曲正割型。随着正啁啾的增大[图 4(a)], 大于 265 nm 的光谱强度明显增强, 当脉冲的正色散量达到 $1.3 \times 10^5 \text{ fs}^2$ 时, 在 268 nm 附近出现尖锐的光谱峰, 此时三次谐波谱峰的强度相对于 $\text{GVD} = 0 \text{ fs}^2$ 时增长了两倍。随着负啁啾逐渐增大[图 4(b)], 三次谐波光谱在 265 nm 处出现凹陷, 在 260 nm 附近出现谱峰, 而大于 265 nm 的光谱强度明显减弱。这主要是由于基频光对三次谐波的调制作用, 正啁啾时基频光脉冲中中波波段的的光在脉冲前沿, 大于 795 nm 的光较易产生三次谐波; 负啁啾时基频光脉冲中短波波段的的光在脉冲前沿, 小于 795 nm 的光较易产生三次谐波。实验表明, 处于脉冲前沿的光易获得比较大的三次谐波转换效率, 脉冲附带适量的正色散时有利于增强三次谐波谱峰的强度, 产生尖锐的三次谐波光谱峰。

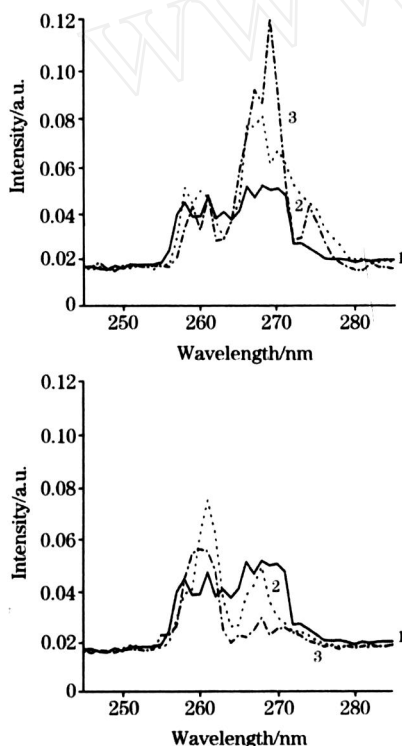


Fig 4 Spectra of TH obtained with varying the chirp of the pulse

1: $\text{GVD} = 0 \text{ fs}^2$; 2: $\text{GVD} = 8.8 \times 10^4 \text{ fs}^2$; 3: $\text{GVD} = 1.3 \times 10^5 \text{ fs}^2$

2.3 AOPDF 的参数对三次谐波的影响

在使用 0.5 m 焦距凹面镜聚焦, 脉宽 30 fs 的情况下, 改变 AOPDF 的参数得到基频光谱[图 5(a)]及对应的三次谐波光谱[图 5(b)], 其中实线为 AOPDF 不进行光谱调制的情

况; 点线和点划线为改变 AOPDF 的参数 (Hole position) 分别使光谱调制曲线中高斯型的孔中心在 800 nm 和 790 nm 的情况。当不对光谱进行调制时, 压缩后的光谱明显变窄, 产生的三次谐波光谱也明显变窄, 谱线中心在 265 nm 左右。当调制谱线 Hole position 在 790 nm 时, 输出光光谱右边锋高时, 三次谐波的谱线红移; 当调制谱线 Hole position 在 800 nm 时, 输出光光谱左边锋高时, 三次谐波的谱线蓝移。同时相对于前面调制谱线 Hole position 在 795 nm 的时候, 三次谐波谱峰更加尖锐。说明可编程声光色散滤波器可在一定范围内控制三次谐波光谱谱峰的位置。

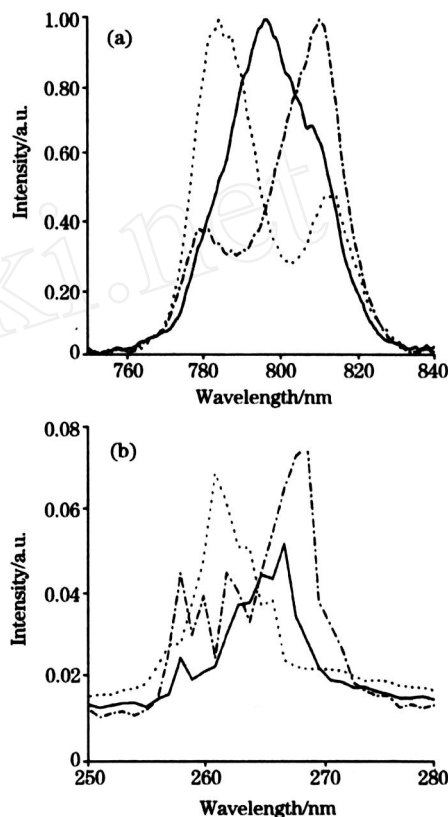


Fig 5 Spectra of fundamental wave and TH with varying the setup of AOPDF

2 结 论

我们对光谱呈双曲正割型的飞秒脉冲在空气中形成等离子体通道的三次谐波光谱进行了研究。单脉冲能量 12 mJ , 脉宽 30 fs , 重复频率 10 Hz , 中心波长 795 nm 的飞秒激光脉冲经 0.5 m 焦距的凹面镜聚焦, 在空气中形成了等离子体通道, 并在前向观测到谱线半峰全宽 (FWHM) 为 15 nm 的三次谐波。随着脉冲啁啾的变化, 三次谐波的光谱出现红移或蓝移, 当激光脉冲附带 $+1.3 \times 10^5 \text{ fs}^2$ 的二阶色散时, 三次谐波谱线红移且谱峰强度增长了两倍。同时, 通过改变可编程声光色散滤波器 (AOPDF) 光谱调制的位置 (Hole position), 三次谐波的光谱也发生频移。空气中三次谐波产生的实验研究, 对进一步发展紫外甚至 X 射线范围短波辐射的光谱操控技术有很好的参考价值。

参 考 文 献

- [1] Glowina J H, Arjavalingham G, Sorokin P P, et al. Opt. Lett., 1986, 11: 79.
- [2] Corkum P B, Rolland C. Int. J. Quantum Chem., 1989, 25: 2534.
- [3] Penzkofer A, Laubereau A, Kaiser W. Phys. Rev. Lett., 1973, 31: 863.
- [4] Smith W L, Liu P, Bloembergen N. Phys. Rev. Lett. A, 1977, 15: 2396.
- [5] Fork R L, Shank C V, Irlimann C, et al. Opt. Lett., 1983, 8: 1.
- [6] Francois V, Ilkov F A, Chin S L. Opt. Commun., 1993, 99: 241.
- [7] Braun A, Korn G, Liu X, et al. Opt. Lett., 1995, 20: 73.
- [8] Zhao M X, Diels J C, Wang C Y, et al. IEEE J. Quantum Electron, 1995, 31: 599.
- [9] Brinkmann U. Laser Focus World, 1999, 35: 59.
- [10] ZHAO Shang-hong, SHI Lei, LI Yur-jiang, et al (赵尚弘, 石磊, 李玉江, 等). Laser Technology (激光技术), 2003, 27: 256.
- [11] Kasparian J, Rodriguez M, Meunier G, et al. Science, 2003, 301(5629): 61.
- [12] La Fontaine B, Vidal F, Jiang Z, et al. Phys. of Plasma, 1999, 6: 1615.
- [13] Yang H, Zhang J, Zhang J, et al. Phys. Rev. E., 2003, 67: R15401.
- [14] Nibbering E T J, Curley P F, Grillon G, et al. Opt. Lett., 1996, 21: 62.
- [15] Banks P S, Feit M D, Perry M D. J. Opt. Soc. Am. B, 2002, 19: 102.
- [16] MIAO Hong-li, WANG Jing, MENG Ji-wu (苗洪利, 王晶, 孟继武). Spectroscopy and Spectral Analysis (光谱学与光谱分析), 2003, 23(1): 38.
- [17] HU Wan-yue, WANG Er-yu, LI Wen-xue, et al (胡婉约, 王二玉, 李文雪, 等). Acta Optica Sinica (光学学报), 2007, 27: 1.
- [18] WANG Er-yu, HU Wan-yue, LI Wen-xue, et al (王二玉, 胡婉约, 李文雪, 等). Acta Optica Sinica (光学学报), 2006, 26: 12.
- [19] LIU Lan-qin, PENG Han-sheng, WEI Xiao-feng, et al (刘兰琴, 彭翰生, 魏晓峰, 等). Acta Physica Sinica (物理学报), 2005, 54: 2764.
- [20] Nishioka H, Ueda K I. Appl. Phys. B, 2003, 77: 171.

Study on Spectral Characteristics of Third-Order Harmonic Emission of Plasma Channels in Atmosphere

LI Hai-ning, ZHANG Li-ping, WU Hong, LI Xian, DING Liang-en *

Key Laboratory of Optical and Magnetic Resonance Spectroscopy, Department of Physics, East China Normal University, Shanghai 200062, China

Abstract The authors observed the spectrum of third-order harmonic (TH) emission of the plasma channel in atmosphere by focused ultra-short laser pulses under various conditions. The authors used pulsed Ti: sapphire chirped pulse amplification (CPA) femtosecond laser system, with the central wavelength at 795 nm, repetition rate of 10 Hz, pulse duration of 30 fs and the pulse energy of 12 mJ, focused by a concave mirror with the focal length of 0.5 m, which can generate about $10^{13} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ of power intensity. Under this condition, the dynamic balance between nonlinear Kerr self-focusing and plasma defocusing can support a long plasma channel in the interaction of the high intense laser pulses and gaseous media, and the interaction length between the laser pulse and air is greatly elongated, which is helpful to generating third-order harmonic emission. The full width at half maximum (FWHM) of the generated third-order harmonic spectrum is 15 nm with the central wavelength at 265 nm in the forward direction. The spectra of third-order harmonic emission red shift when the laser pulse is positive chirped. On the contrary, the spectra of third-order harmonic emission blue shift when the laser pulse is negative chirped. Proper dispersion can increase the intensity of third-order harmonic spectrum peak and sharpened the spectrum peak. With the group velocity dispersion (GVD) of the pulses equal to $+1.3 \times 10^5 \text{ fs}^2$, the peak of third-order harmonic spectrum red shifts and the group velocity dispersion of laser pulses equals to zero fs^2 . The experiment shows that the rising wing of pulses can obtain higher third-order harmonic conversion efficiency than the falling edge of the pulses. In addition, acoustic-optic programmable dispersive filter (AOPDF) in the laser system can control the spectrum shape of the laser. Changing the hole position of acoustic-optic programmable dispersive filter can also shift the spectrum shape of third-order harmonic emission in a certain range. Studies on spectral characteristics of the third-order harmonic emission in plasma channels at atmosphere are very useful to developing the technology of tuning the radiation in generation of ultraviolet or even soft X-ray domain.

Keywords Third-order harmonic emission; Plasma channels; Acoustic-optic programmable dispersive filter

* Corresponding author

(Received Mar. 11, 2007; accepted Jun. 26, 2007)