

# High Harmonic Generation

José Maria Cruz (90409), Miguel Rebelo (90419), Tomás Lopes (90428)

*Laboratório de Física Experimental Avançada - Grupo 4E - 2019/2020*

---

## Resumo

O fenómeno HHG permite, através da incidência de um laser num gás nobre, extrair harmónicas com múltiplos inteiros ímpares da frequência do laser original.

Estudou-se a geração de harmónicas através da interação de um feixe de radiação infravermelha com um gás de Xénon, usando condições experimentais ideais para otimização de imagem, tendo-se obtido uma maior emissão para uma pressão de  $\approx 3 \text{ mbar}$ .

Foi ainda possível obter o espectro de harmónicas para o gás estudado recorrendo a duas fendas de Young colocadas na trajetória do laser, em que a ordem da harmónica mais intensa observada foi de 27 vezes a frequência do laser.

---

## 1 Introdução Teórica

### 1.1 Fenómeno HHG

O HHG consiste num processo que resulta da interação de um pulso de laser com um gás nobre. Para observar este fenómeno é necessário utilizar um pulso de laser infravermelho de alta intensidade e coerente, a partir do qual conseguimos criar um campo elétrico intenso ( $\approx 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ ).

O espectro HHG de frequências consiste numa emissão elevada de harmónicas de baixa frequência, seguida de um Plateau onde a intensidade das harmónicas é aproximadamente constante e acabando num *cut-off* muito acentuado a partir de uma certa frequência:

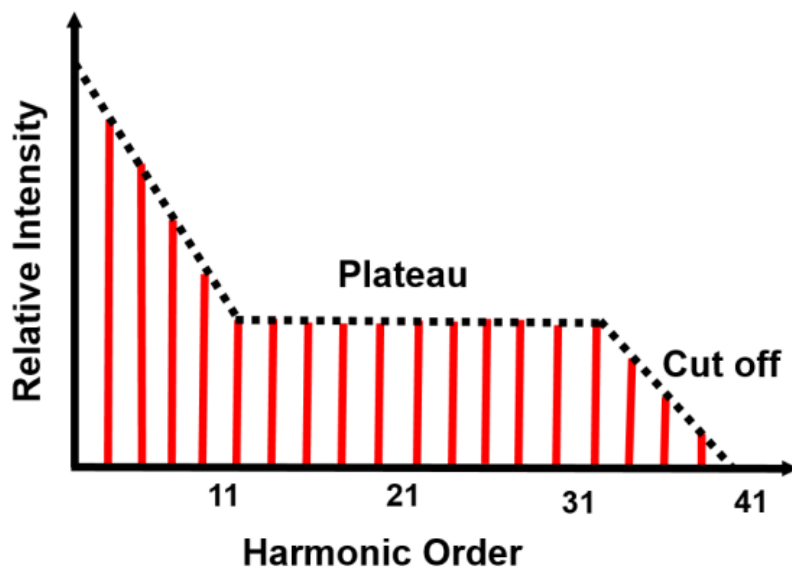
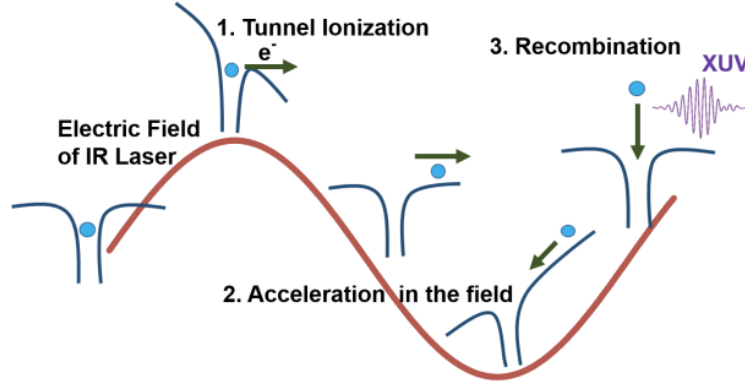


Figura 1: *Espectro HHG*

A criação de uma harmónica é explicada pelo **Modelo de Corkum**, ilustrado na seguinte imagem:



**Figura 2:** *Modelo de Corkum*

Os eletrões dos átomos do gás estão ligados ao núcleo a partir do potencial de Coulomb. Quando estão sujeitos ao campo elétrico gerado pelo laser, o potencial é deformado e permite (por efeito de túnel) a libertação de um eletrão de um átomo do gás. Este eletrão é então acelerado pelo campo elétrico gerado pelo laser, que é dado pela expressão:

$$E(t) = E_0 \cos(\omega_0 t) \quad (1)$$

A energia cinética do eletrão ejetado, sob o efeito do campo elétrico do laser ao longo do tempo, é então dada por:

$$K(t) = 2U_p [\sin(\omega_0 t)]^2 \quad U_p = \frac{e^2 E_0^2}{4m\omega_0^2} \quad (2)$$

onde  $e$  e  $m$  correspondem à carga e massa do eletrão, respetivamente.

Após um curto período de tempo, o eletrão é finalmente captado pelo átomo, emitindo um fóton. A energia do fóton emitido após a recombinação do eletrão com o núcleo do átomo é a soma da energia cinética  $K(t_r)$  no instante  $t_r$  em que o eletrão é captado com a energia potencial de ionização  $I_p$  dos átomos do gás:

$$E_r = \hbar\omega = K(t) + I_p \quad (3)$$

sendo que a energia máxima que o fóton pode ter é dada por:

$$E_{max} = 3.17 U_p + I_p \quad (4)$$

a partir da qual se pode obter a frequência de *cut-off*.

São emitidos fótons a cada meio período de onda do laser, com fases alternadas, pelo que vamos apenas observar harmónicas ímpares.

### 1.1.1 Otimização de Imagem e Phase Matching

Para se observar este fenómeno, podemos otimizar os resultados obtidos para as harmónicas alterando as seguintes condições experimentais:

- Constituição do gás: Para gases mais pesados é necessário menos energia para ocorrer ionização;
- Pressão do gás: No caso de um gás muito diluído, ocorre pouca ionização e obtém-se uma imagem pouco visível. No entanto, para elevadas pressões, obtemos uma imagem de má qualidade;
- Diâmetro, energia do laser e distância de foco: Para energias demasiado baixas, pode não haver ionização e não se observar uma imagem. No entanto, para energias muito altas, pode ocorrer a formação de um plasma;
- Duração do pulso: É necessário uma duração curta de forma a que a harmónica gerada não interaja com o próprio gás;

Temos ainda de verificar que acontece "Phase Matching": Devido a termos um meio de propagação não linear, no qual o índice de refração depende do comprimento de onda da radiação, a radiação do laser e as harmónicas geradas vão-se propagar a velocidades diferentes, podendo ficar fora de fase, sendo que as harmónicas mais altas começam a interferir destrutivamente. Para ser então possível observar um maior número de fótons XUV, as harmónicas geradas em diferentes posições do gás têm de ter uma interferência construtiva entre si e devem manter-se em fase com o laser ao longo da direcção de propagação do mesmo.

A diferença de fase observada é quantificada pelo fator de phase mismatch  $\Delta k$ . Os dois componentes mais relevantes deste fator são o neutral phase mismatch  $\Delta k_n$  causado pelo meio gasoso em si e o plasma phase mismatch  $\Delta k_p$  causado devido á ionização dos átomos por ação do laser (Note-se que foram desprezados os fatores de atomic phase mismatch e o geometrical phase mismatch). Temos então:

$$\Delta k = \Delta k_n + \Delta k_p \quad \Delta k_p = \frac{N_{atm}}{p_{atm}} p \eta \lambda r_e \frac{1 - q^2}{q} \quad \Delta k_n = \frac{2\pi q}{\lambda p_{atm}} p (n(\lambda) - n(\lambda_q)) (1 - \eta)$$

onde  $p$  é a pressão do gás,  $N_{atm}$  é a densidade atómica em condições standard de temperatura e pressão,  $p_{atm}$  é a pressão atmosférica,  $\eta$  é a fracção de ionização,  $r_e$  é o raio clássico do eletrão,  $q$  é a ordem da harmónica,  $\lambda$  é o comprimento de onda do laser,  $n(\lambda)$  é o índice de refração para a radiação do laser e  $n(\lambda_q)$  é o índice de refração para a radiação da harmónica  $q$ . Note-se que para as altas harmónicas  $\Delta K_n$  é positivo enquanto que  $\Delta K_p$  é negativo.

Neste estudo, o único parâmetro que se fez variar foi a pressão na célula de gás de Xénon, sendo o modelo teórico que então descreve o fluxo de fótons  $N_{out}$  para a harmónica  $q$  dado por:

$$N_{out} \propto \rho^2 A_q^2 \frac{4L_{abs}^2}{1 + 4\pi^2 \frac{L_{abs}^2}{L_{coh}^2}} \left( 1 + \exp\left\{-\frac{L_{med}}{L_{abs}}\right\} - 2 \cos\left(\frac{\pi L_{med}}{L_{coh}}\right) \exp\left\{-\frac{L_{med}}{2L_{abs}}\right\} \right)$$

em que temos:

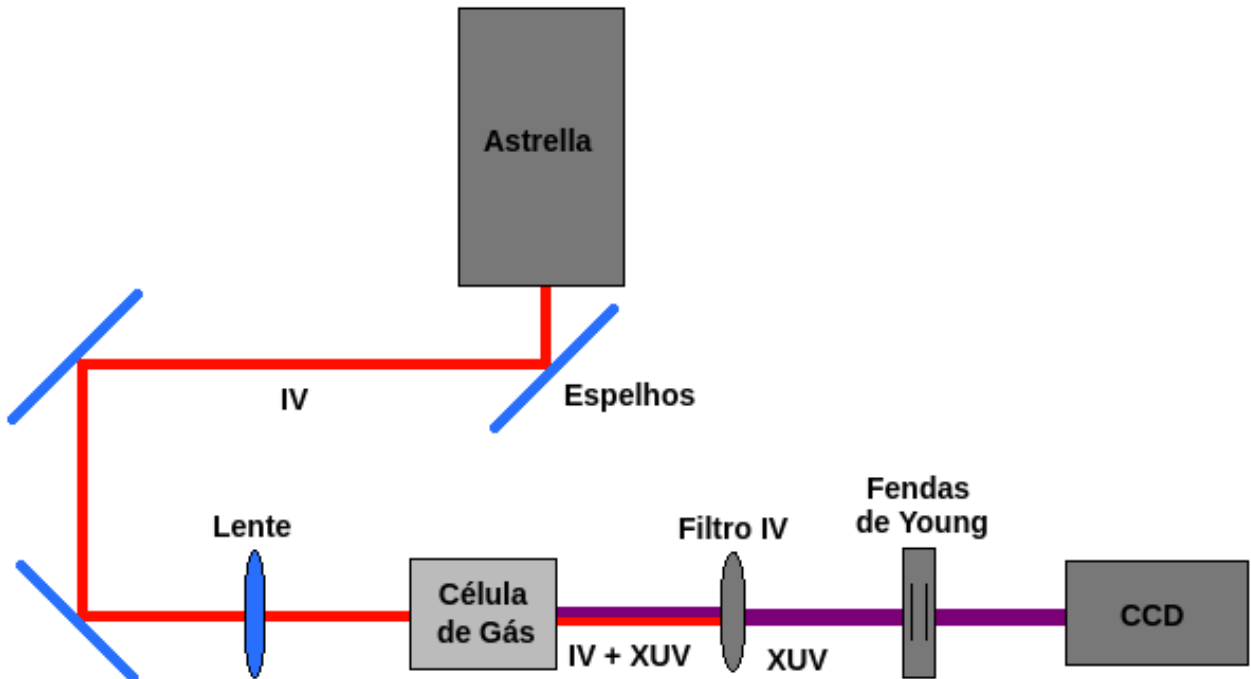
$$\rho = \frac{p}{R_s T} \quad L_{coh} = \frac{\pi}{\Delta k} \quad L_{abs} = 5.86308 \times 10^{-05} \frac{p_{atm}}{p}$$

onde  $R_s$  é a constante dos gases ideias,  $T$  é a temperatura ambiente,  $A_q$  é a amplitude da resposta atómica à frequência da harmónica  $q$  e  $L_{med}$  é o comprimento da célula de gás.

## 2 Procedimental Experimental

### 2.1 Montagem Experimental

A montagem consiste num laser de alta intensidade ( $10^{14} \text{W.cm}^{-2}$ , 1000 tiros por segundo) de radiação infravermelha com  $\lambda = 800 \text{ nm}$  ( $f_{laser} = 0.375 \text{ PHz}$ ), uma câmara de vácuo onde está colocada a célula de gás onde o laser irá incidir, um filtro de radiação infravermelha de Alumínio (espessura de 100 nm), um CCD e um conjunto de lentes e espelhos que têm como objetivo guiar e alinhar o laser, como se pode observar na seguinte figura:



Inicialmente, alinharam-se os espelhos de forma a ter um laser centrado com o CCD.

De seguida, colocou-se a câmara com a célula de gás na trajetória do laser. Para preparar a célula de gás, regulou-se a pressão do mesmo com recurso a outro computador e colocou-se a célula numa câmara, gerando vácuo dentro da mesma com recurso a uma bomba de vácuo.

Colocou-se também antes da célula de gás uma lente convexa com distância focal de 15 *mm*, de forma a focar o laser na célula e gerar mais facilmente as harmónicas.

Por fim, entre a célula do gás e o CCD usou-se também um filtro de alumínio de 100 *nm* de espessura, de forma a filtrar a radiação infravermelha residual resultante do laser. Utilizou-se também um sistema composto por duas fendas de Young, tendo sido possível variar as suas posições nos eixos vertical e horizontal, bem como as suas dimensões.

Para esta experiência utilizou-se um CCD de  $1024 \times 1024$  pixels de  $\Delta x = 13.5 \mu m$ , ligando-o a um computador para adquirir os dados. [4]

## 2.2 Obtenção do Espetro de HHG

Para se conseguir observar e discernir as várias harmónicas geradas pelo gás recorreu-se à difração por duas fendas de Young e, como dito anteriormente, foi possível dimensionar as fendas de maneira a otimizar o espetro observado. A otimização resultou em fendas com uma largura de  $2\mu m$ , altura de  $300\mu m$ , distância entre fendas  $d = 100\mu m$  e uma distância ao CCD de  $z = 25cm$ . A imagem resultante no CCD é um espetro 2D. Com recurso ao software *ImageJ* é possível seleccionar a zona luminosa da imagem, sendo feita uma média em *y* da intensidade e obtendo-se um espetro de difração a uma dimensão. De seguida, é aplicada uma Transformada Rápida de Fourier (FFT) ao espetro obtido para o decompor nas suas várias frequências constituintes e assim detetar as várias harmónicas presentes. O eixo horizontal apresentado nas FFT é um eixo convertido de frequência espacial para frequência ótica e foi usada a seguinte relação para a conversão [2]:

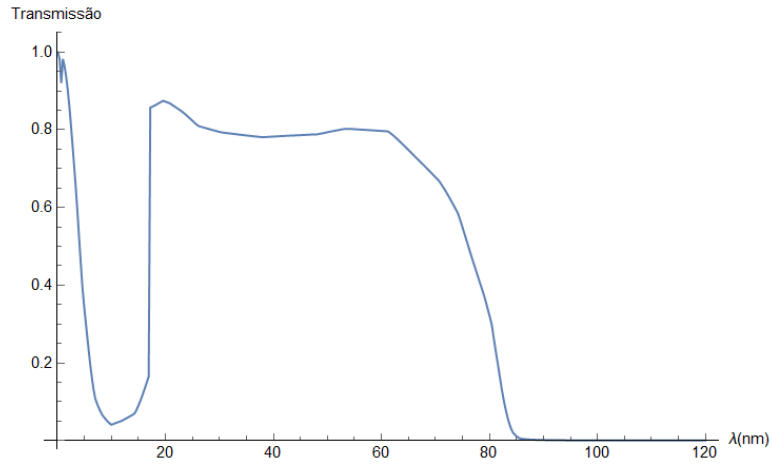
$$f_n = \frac{ncz}{N_{px} * d * \Delta x} \quad (5)$$

Onde *n* é o pixel 0, 1, 2, ...1023, e  $N_{px}$  são os 1024 pixels. Os tempos de aquisição foram escolhidos de maneira a não saturar o CCD (o que acontece às  $2^{16}$  contagens).

## 3 Análise de Dados

### 3.1 Padrão de Difração e Espetro HHG

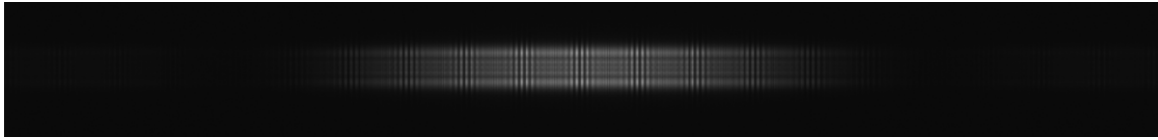
Começou-se por descrever a capacidade de transmissão/blindagem do filtro de alumínio utilizado:



**Figura 3:** *Transmissão do Filtro para vários comprimentos de onda. Dados de [4].*

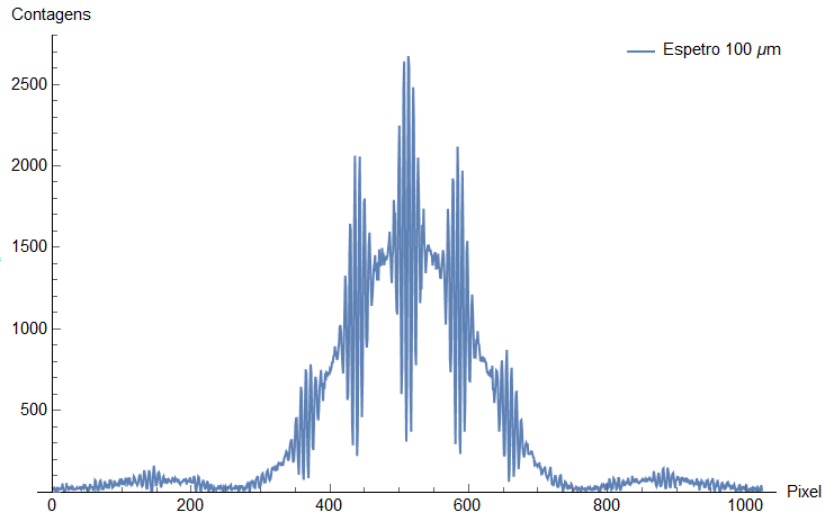
Espera-se que este apenas transmita apreciavelmente até  $\approx 84$  nm, impondo assim um limiar mínimo em frequência de 3.57 PHz, de maneira a que radiação IV do laser seja blindada pelo filtro. A radiação que consegue atravessar é ainda atenuada de cerca de 80%.

Abaixo mostra-se um exemplo de uma imagem que se obtém no CCD:



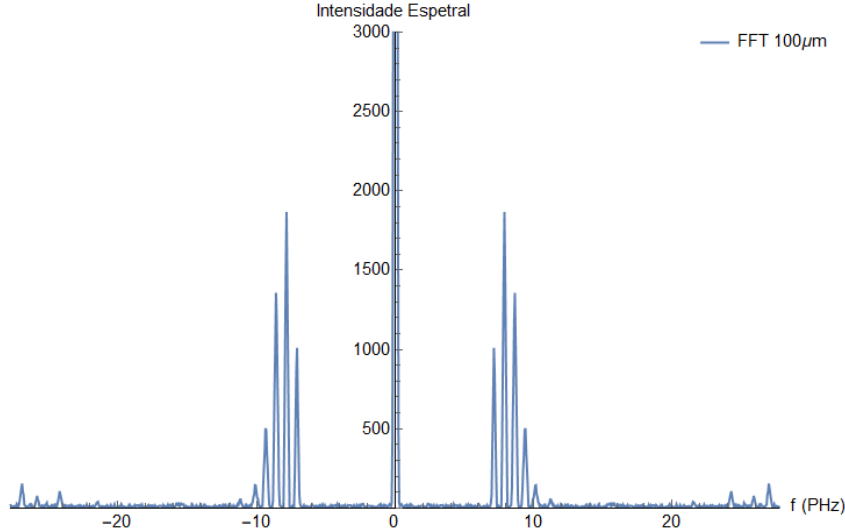
**Figura 4:** *Imagem no CCD para uma pressão de Xénon de  $P=3.0$  mbar, 200 tiros*

Observou-se que, para todas as imagens, estava associado um ruído médio de 5 contagens por tiro em cada pixel. Este ruído foi estimado fazendo uma média das contagens da parte não luminosa da imagem, afastada do espectro. Sendo assim, para os espectros obtidos foi subtraído este background, tendo-se obtido, para uma pressão de 20 mbar e 500 tiros, o seguinte espectro de difração:

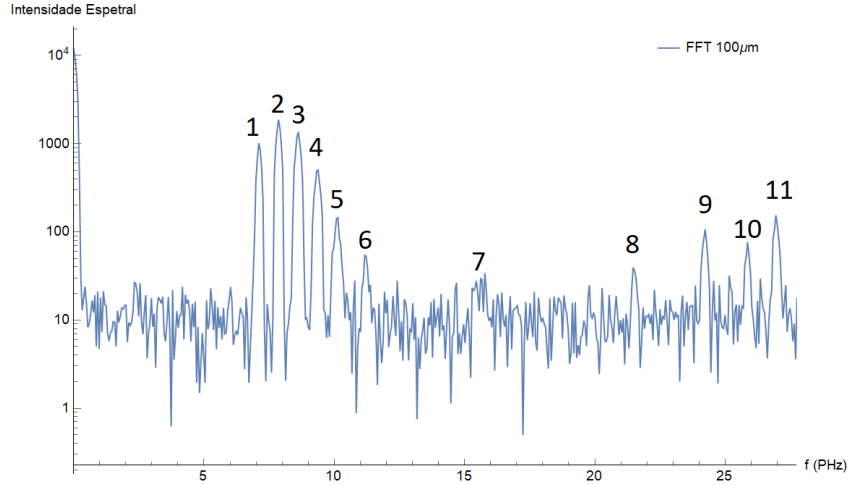


**Figura 5:** *Espectro de difração.  $P = 20$  mbar. 500 tiros*

Verifica-se um padrão de difração característico de duas fendas, onde se tem vários máximos e mínimos inseridos num envelope corresponde à curva de difração de apenas uma fenda. Além disso, constata-se que o ruído foi eliminado com sucesso, visto que o mínimo de contagens é praticamente nulo. De seguida aplicou-se a FFT a este conjunto de pontos e, usando a equação (5), obtiveram-se os seguintes espectros de HHG:



**Figura 6:** *FFT do padrão de difração.  $P = 20\text{mbar}$*



**Figura 7:** *FFT do padrão de difração.  $P = 20\text{mbar}$ . Escala logarítmica*

Desde logo denotam-se algumas características inerentes à FFT: O gráfico obtido é simétrico segundo a origem e em 0 Hz existe um pico muito pronunciado, o chamado pico DC. Observa-se também uma estrutura típica de um espectro de HHG, com vários picos entre 7 PHz e 12 PHz, situados na região dos XUV. Esta estrutura é semelhante à Figura 1 onde há um pico mais pronunciado e picos sucessivamente menos intensos. Contudo, não é possível observar uma zona de picos de intensidade constante - *plateau* - nem é possível discernir qual é a frequência de *cut-off*.

Observando a tabela abaixo, estes picos correspondem às harmónicas 19, 21, 23, 25, 27 e 30 ( $\frac{f_{pico}}{f_{Laser}}$ ) que, aparte da última, são todas ímpares como esperávamos. Veio-se a confirmar mais tarde que o pico nº 6 (a "harmónica" par) não é de facto um pico resultante de HHG pois não está presente noutros espetros obtidos na secção **3.2**. Parece ainda existir uma harmónica 41, contudo, dada a sua intensidade muito reduzida, nada se pode concluir sobre ela.

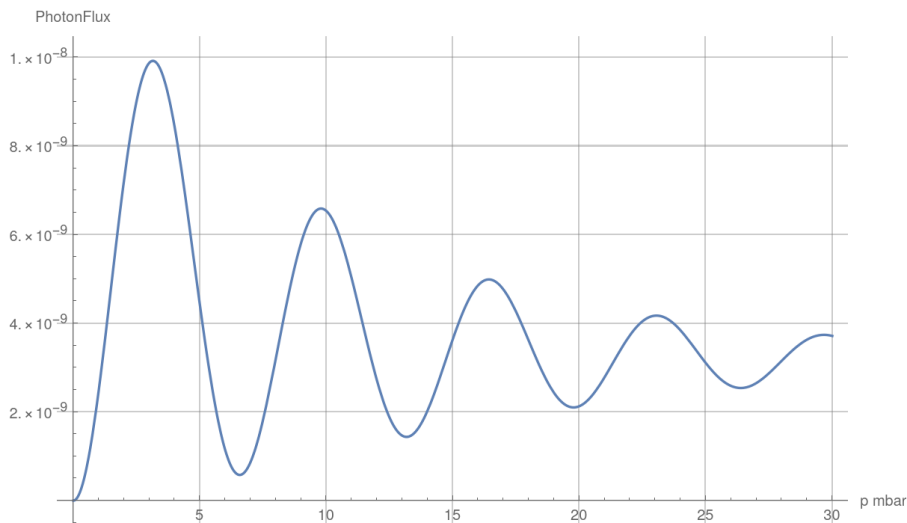
Nas frequências mais altas aparecem ainda cerca de 4 picos (8 a 11) mais energéticos que, não sendo originadas por HHG, podem ser frequências associadas à eletrónica do aparato experimental, sendo que, antes da harmónica 19 não parece haver qualquer pico de intensidade apreciável (fora o DC), demonstrando que o filtro está a blindar com sucesso os IV remanescentes da luz do laser.

Pico #	Frequência $\pm 0.05$ (PHz)	Harmónica
1	7.10	19
2	7.86	21
3	8.62	23
4	9.38	25
5	10.14	27
6	11.17	30
7	15.45	41

**Tabela 1:** *Harmónicas observadas*

## 3.2 Estudo da variação da pressão

Para além dos valores que são tabelados, para obtermos uma figura teórica para  $N_{out}$ , foram utilizados os valores de  $\eta = 0.03$ ,  $\lambda = 800nm$ ,  $n(\lambda) = 1.00068509$ ,  $T = 300K$ ,  $A_q = 1$  pois não foi considerado o atomic phase mismatch e  $L_{med} = 1cm$ . Para além disso decidiu-se maximizar a harmónica 21 com índice de refração de 0.9998488. Obteve-se assim o seguinte gráfico:



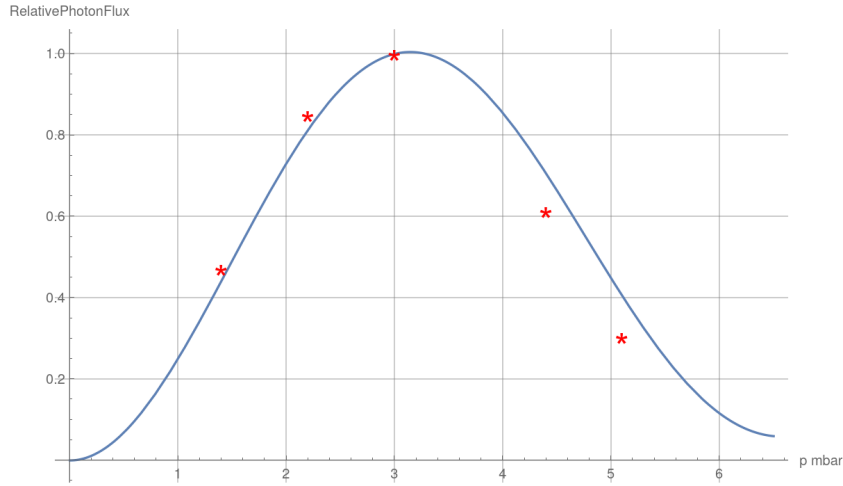
**Figura 8:** *Pressão Teórica*



O facto de haver vários picos parece indicar que as harmónicas geradas interferem construtivamente e destrutivamente duma maneira cíclica com a pressão e que portanto as velocidades do laser e das harmónicas ficam em fase e desfasadas da mesma forma.

Foram então estudadas experimentalmente pressões próximas do valor máximo teórico, aproximadamente 3 *mbar*, sendo estas 1.4, 2.2, 3.0, 4.4, 5.1 *mbar*, com 200 tiros para cada medição. Tal como na secção anterior foi removido o ruído de cada imagem obtida. Embora a equação teórica seja relativa ao pico de intensidade  $q = 21$ , assumiu-se que houve um aumento igual de intensidade para todas as harmónicas. Assim, bastou somar o número de contagens em todo o CCD, para descobrir os efeitos da pressão no fluxo de fotões.

Abaixo encontra-se o gráfico dos pontos experimentais e da curva teórica. Note-se que como a expressão teórica apenas nos permite obter um fator de proporcionalidade, teve-se que estudar o fluxo de fotões relativo, usando como referência o valor obtido para a pressão de 3.0 *mbar* (pois foi o valor onde obtivemos o máximo experimental).



**Figura 9:** *Pressão Experimental*

Qualitativamente os dados experimentais parecem adequar-se à curva teórica, havendo possivelmente um maior desvio em relação ao esperado para as pressões mais elevadas.

Quantitativamente foi calculado o desvio dos pontos à curva:

$$\sigma = \sqrt{\frac{\sum_n (x_{nExp} - x_{nTeo})^2}{n}} = 0.065$$

Embora tenhamos tido um pequeno desvio ao teórico, que se poderá dever a, na expressão teórica, terem sido desprezados os fatores de fase de Gouy e atómico. No entanto, considera-se que o modelo é adequado para estimar a pressão para o qual o fluxo é máximo, sendo que para a expressão utilizada o máximo encontra-se nos 3.14 *mbar*.

## 4 Conclusão

Com esta atividade experimental foi possível estudar o fenômeno HHG e verificar a geração de harmônicas ímpares na região dos XUV a partir da incidência de um laser de radiação infravermelha num gás de Xénon. Mostrou-se também que usando duas fendas de Young é possível obter um espectro de HHG. Além disso, foi também estudada a otimização das harmônicas geradas, maximizando o número de fótons emitidos pelo gás, minimizando o *phase mismatch* introduzido pelo gás e pela ionização a laser do meio gasoso. Usando a pressão do gás como parâmetro de *phase matching* para a harmônica de ordem 21, obteve-se uma intensidade máxima para uma pressão de  $p \approx 3$  mbar.

## Referências

- [1] Koliyadu, Jayanath (2018). Spatio-temporal characterization of high harmonic generation for plasma diagnostics;
- [2] Bartels, R. A (2002). Absolute determination of the wavelength and spectrum of an extreme-ultraviolet beam by a Young's double-slit measurement;
- [3] Ishikawa, K. (2010). High Harmonic Generation <https://www.intechopen.com/books/advances-in-solid-state-lasers-development-and-applications/high-harmonic-generation>;
- [4] [https://henke.lbl.gov/optical\\_constants/filter2.html](https://henke.lbl.gov/optical_constants/filter2.html)
- [5] Lytle, A.L. (2008). Phase Matching and Coherence of High-Order Harmonic Generation in Hollow Waveguides [https://jila.colorado.edu/sites/default/files/2019-05/lytle\\_thesis.pdf](https://jila.colorado.edu/sites/default/files/2019-05/lytle_thesis.pdf)