

Control of Enhanced High-Order Harmonic Generation in a Multi-Cycle Laser Field

Yuan Luo, Haixia Luo, Yongli Yu*

College of Mathematics, Physics and Electronic Information Engineering, Wenzhou University, Wenzhou Zhejiang
Email: ylyu@wzu.edu.cn

Received: Nov. 16th, 2018; accepted: Nov. 28th, 2018; published: Dec. 5th, 2018

Abstract

By using strong-field approximation, we theoretically investigate the selective enhancement of high-order harmonic generation in a small spectral range driven by a multi-cycle three-color laser field which is composed of an 800 nm laser pulse, a 1600 nm laser pulse and a 2400 nm laser pulse. The results show that a narrow-bandwidth spectrum can be selectively enhanced with the intensity increased by nearly one order of magnitude compared to the adjacent harmonics, which can be attributed to the modified electron trajectories in the three-color field. Furthermore, it is revealed that the central wavelength of the enhanced spectrum can be effectively tuned by changing the time delay between laser pulses of different colors.

Keywords

Multi-Cycle Laser Field, Enhanced High-Order Harmonic Generation, Quantum Path Control

多周期强激光场中高次谐波选择性增强

罗元, 罗海霞, 于永丽*

温州大学, 数理与电子信息工程学院, 浙江 温州
Email: ylyu@wzu.edu.cn

收稿日期: 2018年11月16日; 录用日期: 2018年11月28日; 发布日期: 2018年12月5日

摘要

本文利用强场近似理论模型, 研究了多周期激光场中原子高次谐波的选择性增强。结果表明, 利用多周期的800 nm、1600 nm及2400 nm的组合脉冲, 谱段的谐波强度可以增强达一个数量级, 并且调节脉

*通讯作者。

冲间的延迟时间可以改变增强谐波的中心频率。通过时间频率分析,研究了该谐波增强的物理机制。

关键词

多周期激光脉冲, 高次谐波增强, 量子轨道控制

Copyright © 2018 by authors and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

随着激光技术的快速发展,强激光与物质相互作用得到了越来越多的关注。高次谐波是强激光场与原子分子等物质相互作用产生的高能光子辐射,是目前获得台式相干远紫外(XUV)光源、阿秒脉冲光源的有效途径[1] [2] [3]。因此,高次谐波研究在探索原子分子结构、电子的超快动力学过程等方面具有重要的应用价值。

目前,原子分子高次谐波得到了广泛深入的研究。实验结果表明典型的高次谐波谱中首先谐波强度会随着谐波级次增加迅速降低,然后各谐波级次强度保持平稳,形成一高次谐波谱的平台区,最后谐波强度在某一级次迅速下降形成高次谐波谱的截止区。理论方面,半经典三步模型很好解释了高次谐波产生物理过程,首先强激光场中电子通过隧穿电离离开母核,然后电离电子在强激光场中加速,最后电子以一定的概率与母核结合,同时将在电场中获得的能量以光子的形式辐射出来[4] [5]。在一个激光周期内,根据电子在激光场中的飞行时间可以分为“长轨道”和“短轨道”,两种轨道的电子与母核结合辐射的谐波相干叠加。因此,为获得超短的单个阿秒脉冲,研究人员相继提出了偏振方向相同的双色或多色激光场方案[6] [7] [8]、偏振门[9] [10]等方案来扩展高次谐波截止区、选择量子路径,从而获得超连续谱。

另一方面,单色极紫外光源在相干成像、自由电子激光器种子光、纳米光刻等方面具有重要的应用价值,也受到关注,实验及理论方面有重要的研究进展。实验方面,例如,R. Bartels等人利用变形镜优化驱动800 nm激光脉冲的啁啾特性,获得了27次谐波的达8倍的增强,相邻的25次、27次谐波也有一定程度增强[11]。Wei等首次提出利用偏振方向垂直的800 nm主脉冲与400 nm、267 nm的控制脉冲组合的多色激光场,通过宏观相位匹配和原子内相位匹配技术,获得增强的18次谐波,强度增强达两个数量级并且相邻谐波强度被抑制,从而获得可调谐的单色极紫外相干辐射输出[12]。理论方面,不同研究组提出利用周期量级的两次或三色激光场方案,获得增强的窄带高次谐波[13] [14] [15]。Zeng等人提出利用偏振方向相同的3飞秒800 nm激光脉冲与400 nm激光脉冲的组合激光脉冲驱动产生了高次谐波的选择性增强[13]。Yao等人提出利用偏振方向垂直的周期量级激光脉冲组合而成激光场控制高次谐波辐射时间获得了高次谐波选择性增强[14]。虽然目前实验室中可以获得周期量级激光脉冲,但实验条件要求比较苛刻,实现起来有难度。

在本文中,我们提出了一多周期的三色激光脉冲方案,获得窄带、可调谐的增强高次谐波。结果表明通过控制脉冲间的延迟时间,可以使高次谐波的不同谱段增强达一个数量级。时频分析结果表明电子的运动轨道得到了有效控制。

2. 理论模型

本文基于单原子高次谐波产生的强场近似理论模型[16],求得激光场中偶极矩,偶极矩经傅里叶变换

后得到高次谐波谱。偶极矩的表达式为

$$x(t) = i \int_0^\infty d\tau \left(\frac{\pi}{\varepsilon + i\tau/2} \right) d_x^*(p_{st}(t, \tau) - A_x(t)) d_x(p_{st}(t, \tau) - A_x(t - \tau)) \times E(t - \tau) \exp[-iS_{st}(t, \tau)] \exp\left(-\int_{-\infty}^t w(t') dt'\right) + c.c \quad (1)$$

其中, $E(t)$ 、 $A(t)$ 分别为驱动激光脉冲电场与矢势, $\tau = t - t'$ 为电子在激光场中的运动时间。 $w(t)$ 为电子在激光场中的隧穿电离率, 利用 ADK 电离理论模型计算[4]。 p_{st} 、 S_{st} 是采用鞍点近似后动量与准经典作用量, 表达式分为:

$$p_{st}(t, \tau) = \int_{t-\tau}^t dt' A(t')/\tau \quad (2)$$

$$S_{st}(t, \tau) = I_p - \frac{1}{2} p_{st}^2(t, \tau) + \frac{1}{2} \int_{t-\tau}^t dt' A_x^2(t') \quad (3)$$

d 为跃迁矩阵元, 本文中采用类氢原子的跃迁矩阵元, 表达式为

$$d(p) = i \frac{2^{7/2} (2I_p)^{5/4}}{\pi} \frac{p}{(p^2 + 2I_p)^3} \quad (4)$$

I_p 为电离势。

3. 窄带高次谐波增强及分析

在模拟计算中, 我们采用的激光场由波长分别为 800 nm、1600 nm 及 2400 nm 的激光脉冲组成。脉冲宽度分别为 16 fs、32 fs 以及 48 fs, 即脉冲宽度为各自光周期的 6 倍。激光强度分别为 2.2×10^{14} W/cm²、 1.0×10^{14} W/cm² 及 1.0×10^{14} W/cm²。组合激光场表达式为:

$$E_s = E_1 \exp[-2 \ln(2) \cdot t^2/\tau_1^2] \cdot \cos(\omega_1 t) + E_2 \exp[-2 \ln(2) \cdot t^2/\tau_2^2] \cdot \cos(\omega_2 t) + E_3 \exp[-2 \ln(2) \cdot (t + T_d)^2/\tau_3^2] \cos(\omega_3 (t + T_d)) \quad (5)$$

其中, E_1 、 E_2 及 E_3 分别为 800 nm、1600 nm 及 2400 nm 激光脉冲电场振幅, ω_1 、 ω_2 及 ω_3 分别为三激光脉冲的角频率, τ_1 、 τ_2 及 τ_3 分别为三激光脉冲半高全宽。 T_d 为 2400 nm 的激光脉冲与另外两激光脉冲之间的延迟时间。

首先, 经参数优化后, 延迟时间 T_d 选为 1.55 fs, 此三激光组合脉冲作用下, 氖原子(Ne)高次谐波谱如图 1 所示。从图 1 可以清楚看出, 高次谐波截止区光子能量高达 550 电子伏特(eV), 但 190 eV 附近的高次谐波强度增强达一个数量级。为了给出更清楚的图像, 图 1 中的插图给出了线性标度下 190 eV 附近增强的高次谐波图像。如图所示, 增强部分的谐波谱比较光滑, 谱宽度约为 4 eV, 经傅里叶变换后则可以得到一亚周期量级的阿秒脉冲。

3.1. 延迟时间对增强谱段的影响

为了进一步研究增强的高次谐波谱与延迟时间之间的关系, 图 2 给出不同延迟时间下线性标度的增强部分的高次谐波谱图。图 2(a)中延迟时间改变范围为 1.15 fs~1.95 fs, 相邻谱之间的时间间隔为 0.25 fs。显然, 随着延迟时间的增加, 增强谱中心频率逐渐增大, 当延迟时间达 1.95 fs 时, 谐波谱强度明显降低, 并且谐波峰分裂为多个。图 2(b)中延迟时间改变范围为 8.95 fs~9.75 fs。即当延迟时间超过 2400 nm 的一个光周期左右时, 高次谐波谱依然可以得到增强。这是因为本研究利用的是多周期激光脉冲, 相对单周

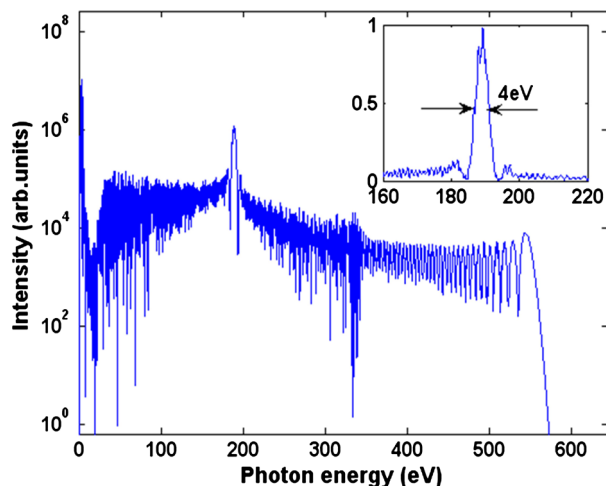


Figure 1. High-order harmonic spectrum driven by the laser field synthesized by a 16 fs, 800 nm pulse, a 32 fs, 1600 nm pulse and a 48 fs, 2400 nm laser pulse. Inset: The enhanced harmonic spectrum in a linear scale

图 1. 三色激光场中高次谐波谱，插图为线性标度下增强部分的高次谐波谱

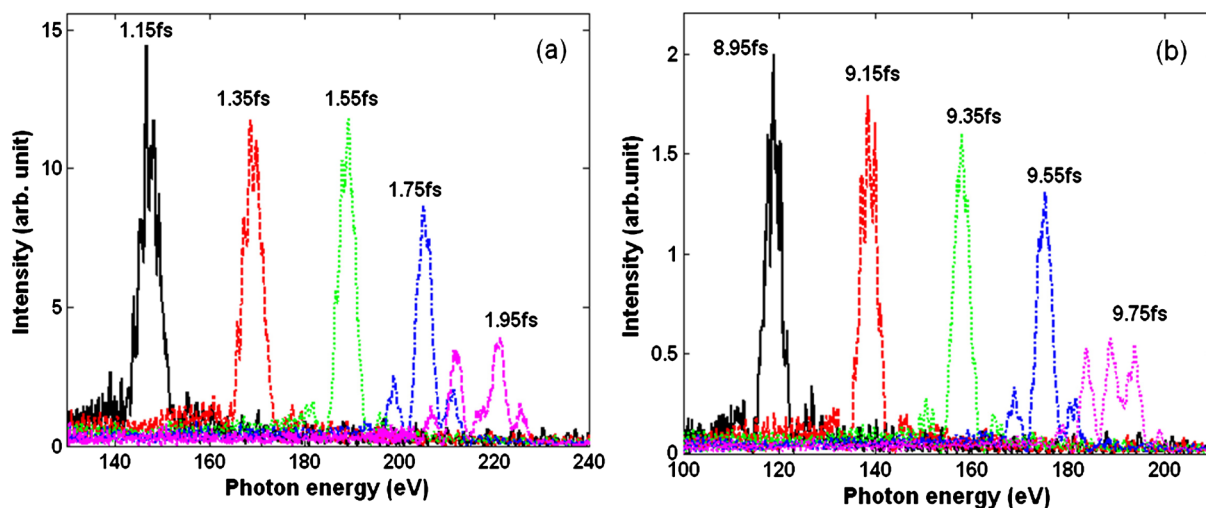


Figure 2. The enhanced high-order harmonic spectra at different time delays: (a) 1.15 fs~1.95 fs and (b) 8.95 fs~9.75 fs

图 2. 不同延迟时间增强的高次谐波谱

期及周期量级的激光脉冲而言，激光脉冲相邻周期的激光峰值强度下降比较缓慢。由此可知，采用多周期激光场，可以增大延迟时间的调节范围，降低实验的操作难度。

为了理解此现象的物理本质，我们对不同延迟时间的偶极矩响应做了时间-频率分析。图 3 给出了高次谐波谱段中不同频率的 XUV 光子发射时间，图 3(a)~(c)中，对应的延迟时间分别为 1.35 fs、1.55 fs 和 1.75 fs，图 3(d)~(f)中，对应的延迟时间为 9.15 fs、9.35 fs 和 9.55 fs。图中横轴表示返回到母核的电子与母核结合时的辐射的 XUV 光子能量，纵轴表示 XUV 光子的发射时间。显然，在图 3(a)~(f)的图像中，同一频率的光子都对应两个辐射时间，即短电子轨道及长电子轨道，长轨道的辐射的谐波强度较短轨道低得多。最突出的特点在短轨道中，出现了一折叠区，在此区域中，辐射同一频率光子的电子轨道增加，即沿这些量子轨道返回的电子都辐射出相同能量的光子，光子能量恰好与图 2 中相同延迟时间下增强的谐波能量对应。因此，高次谐波谱中的增强谱段是这些量子轨道发生相长干涉的结果。并且，随着延迟时间的增加，量子轨道之间不但发生相长干涉，还有相消干涉，引起了增强谱的分裂。

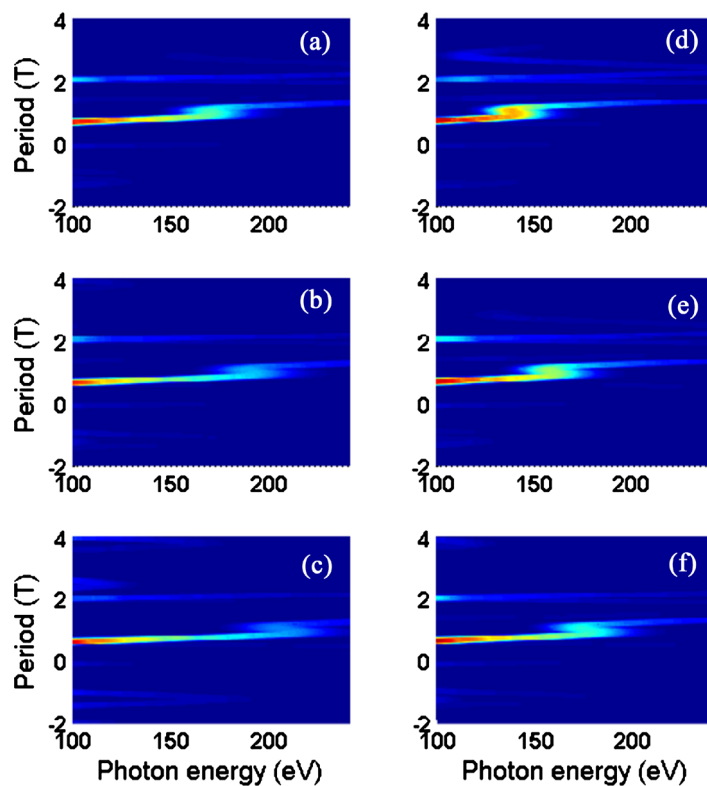


Figure 3. Time-frequency analyses corresponding to high-order harmonic spectrum in **Figure 2** at the time delays of (a) 1.35 fs, (b) 1.55 fs, (c) 1.75 fs, (d) 9.15 fs, (e) 9.35 fs, (f) 9.55 fs.

图 3. 不同延迟时间对应的时间 - 频率分析, 延迟时间分别为(a) 1.35 fs, (b) 1.55 fs, (c) 1.75 fs, (d) 9.15 fs, (e) 9.35 fs, 9.55 fs

3.2. 脉冲宽度对增强谱段的影响

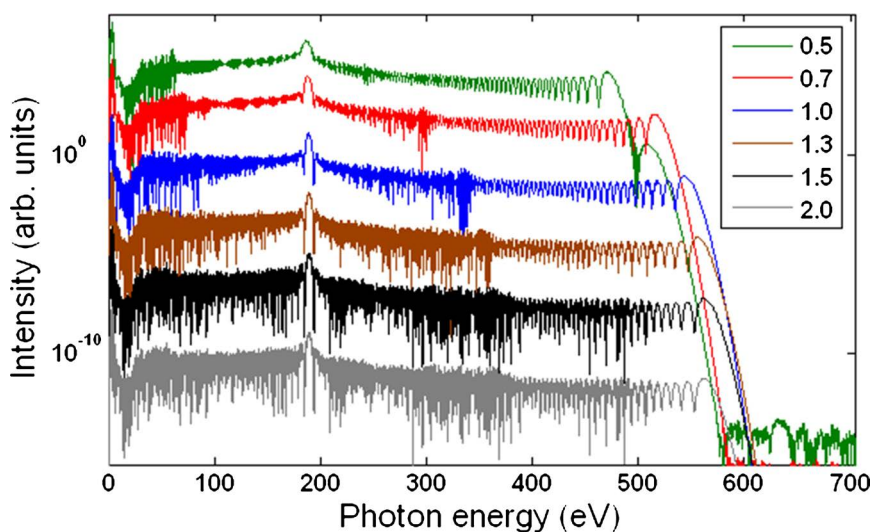


Figure 4. High-order harmonic spectrum driven by three-color field of the different durations ($R = 0.5 \sim 2.0$)

图 4. 不同脉冲宽的三色激光场驱动的高次谐波谱

图 4 给出了高次谐波谱随三激光场脉冲宽度的变化图。此时三激光场脉冲宽度表示为 $6 \times R$, 即三激

光脉冲宽度同时变化, 光周期为各自光周期的 $6R$ 倍, 其中 R 取值范围为 $0.5\sim 2.0$ 。为了看的更清晰, 不同 R 所对应的高次谐波谱被人为的依次往下移动了两个数量级。如图中所示, 在脉冲宽度长达 12 倍的光周期时, 依然有高次谐波增强现象, 并随着脉冲宽度的增加, 谱增强的位置几乎没变, 但谱宽度逐渐变小, 调制加深。

4. 结论

本文在理论上研究了多周期激光场中窄带宽、可调谐的高次谐波的选择性增强。结果表明通过调节波长 2400 nm 的激光脉冲与另 800 nm、1600 nm 激光的延迟时间, 可以产生不同中心波长的窄带的高次谐波增强, 增强的谐波宽度约为 4 eV。另外研究了三激光脉冲宽度对高次谐波增强的影响, 发现当三激光脉冲同倍数变化时, 增强谱段的频率不变, 与相邻谐波相比的相对强度随着激光周期增大而降低, 但激光脉冲为 12 个光周期, 谐波依然可以被增强。因此, 我们提出了一个有效的窄带增强的高次谐波方法, 此方法在实验上具有更强的实际操作性及更好的灵活性。

基金项目

国家自然科学基金(11347191)、温州大学实验室开放项目(17SK36)、温州大学创新创业项目。

参考文献

- [1] Krausz, F. and Ivanov, M. (2009) Attosecond Physics. *Reviews of Modern Physics*, **81**, 163. <https://doi.org/10.1103/RevModPhys.81.163>
- [2] Jin, C., Wang, G., Wei, H., *et al.* (2014) Waveforms for Optimal Sub-KeV High-Order Harmonics with Synthesized Two- or Three-Colour Laser Fields. *Nature Communications*, **5**, 4003. <https://doi.org/10.1038/ncomms5003>
- [3] Chini, M., Zhao, K. and Chang, Z. (2014) The Generation, Characterization and Applications of Broadband Isolated Attosecond Pulses. *Nature Photonics*, **8**, 178-186. <https://doi.org/10.1038/nphoton.2013.362>
- [4] Corkum, P.B. (1993) Plasma Perspective on Strong Field Multiphoton Ionization. *Physical Review Letters*, **71**, 1994-1997. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.71.1994>
- [5] Schafer, K.J., Yang, B., DiMauro, L.F. and Kulander, K.C. (1993) Above Threshold Ionization beyond the High Harmonic Cutoff. *Physical Review Letters*, **70**, 1599-1602. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.70.1599>
- [6] Yu, Y., Song, X., Fu, Y., *et al.* (2008) Theoretical Investigation of Single Attosecond Pulse Generation in an Orthogonally Polarized Two-Color Laser Field. *Optics express*, **16**, 686-694. <https://doi.org/10.1364/OE.16.000686>
- [7] Yuan, H., He, L., Wang, F., *et al.* (2017) Generation of Isolated Attosecond Pulses in a Multi-Cycle Inhomogeneous Two-Color Field without CEP Stabilization. *Optical and Quantum Electronics*, **49**, 214. <https://doi.org/10.1007/s11082-017-1048-x>
- [8] 葛鑫磊. 少周期激光脉冲附加太赫兹场对高次谐波发射的影响[J]. 原子与分子物理学报, 2018(35): 993-998.
- [9] Kim, I.J., Kim, C.M., Kim, H.T., *et al.* (2005) Highly Efficient High-Harmonic Generation in an Orthogonally Polarized Two-Color Laser Field. *Physical Review Letters*, **94**, Article ID: 243901. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.94.243901>
- [10] Goulielmakis, E., Schultze, M., Hofstetter, M., *et al.* (2008) Single-Cycle Nonlinear Optics. *Science*, **320**, 1614-1617. <https://doi.org/10.1126/science.1157846>
- [11] Bartels, R., Backus, S., Zeek, E., *et al.* (2000) Shaped-Pulse Optimization of Coherent Emission of High-Harmonic Soft X-Rays. *Nature*, **406**, 164-166. <https://doi.org/10.1038/35018029>
- [12] Wei, P., Miao, J., Zeng, Z., *et al.* (2013) Selective Enhancement of a Single Harmonic Emission in a Driving Laser Field with Subcycle Waveform Control. *Physical review letters*, **110**, Article ID: 233903. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.110.233903>
- [13] Zeng, Z., Cheng, Y., Fu, Y., *et al.* (2008) Tunable High-Order Harmonic Generation and the Role of the Folded Quantum Path. *Physical Review A*, **77**, Article ID: 023416. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.77.023416>
- [14] Yao, J., Cheng, Y., Chen, J., *et al.* (2011) Generation of Narrow-Bandwidth, Tunable, Coherent XUV Radiation Using High-Order Harmonic Generation. *Physical Review A*, **83**, Article ID: 033835. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.83.033835>

-
- [15] Peng, D., Pi, L.W., Frolov, M.V., *et al.* (2017) Enhancing High-Order-Harmonic Generation by Time Delays between Two-Color, Few-Cycle Pulses. *Physical Review A*, **95**, Article ID: 033413. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.95.033413>
- [16] Brabec, T. and Krausz, F. (2000) Intense Few-Cycle Laser Fields: Frontiers of Nonlinear Optics. *Reviews of Modern Physics*, **72**, 545-591. <https://doi.org/10.1103/RevModPhys.72.545>

知网检索的两种方式:

1. 打开知网页面 <http://kns.cnki.net/kns/brief/result.aspx?dbPrefix=WWJD>
下拉列表框选择: [ISSN], 输入期刊 ISSN: 2164-5450, 即可查询
2. 打开知网首页 <http://cnki.net/>
左侧“国际文献总库”进入, 输入文章标题, 即可查询

投稿请点击: <http://www.hanspub.org/Submission.aspx>

期刊邮箱: oe@hanspub.org