优化双色激光场产生高次谐波转化效率的理论研究

王国利*, 董小敏, 赵松峰, 周效信

西北师范大学物理与电子工程学院, 甘肃省原子分子物理与功能材料重点实验室, 兰州 730070

* 联系人, E-mail: wanggl@nwnu.edu.cn

2016-02-05 收稿, 2016-03-14 修回, 2016-03-15 接受, 2016-05-10 网络版发表

国家自然科学基金(11364038, 11264036, 11164025)和甘肃省高等学校基本科研业务费专项基金资助

摘要 利用遗传算法优化单原子高次谐波场的强度, 得到了最优双色激光场的波形. 在800~3000 nm波长范围内, 该双色场产生高次谐波的转换效率可提高一个数量级以上. 进一步模拟了单双色场中单原子和宏观高次谐波场的转换效率随激光波长 λ 的依赖关系. 对单原子谐波场而言, 波长标度律为 $\lambda^{-5} \sim \lambda^{-8}$, 与已有结果符合得很好. 而宏观谐波谱的强度随激光波长衰减得更快, 其标度律为 $\lambda^{-8} \sim \lambda^{-13}$. 与单色场相比, 虽然双色场中的标度律未得到改善, 但是谐波转换效率提高很大.

关键词 遗传算法, 双色激光场, 高次谐波, 转化效率

高次谐波(high-order harmonic generation, HHG)是一种强飞秒激光与物质相互作用而产生的物理现象. 当强激光场作用于原子时, 原子中的束缚电子会通过隧穿电离进入连续态, 然后在激光场中运动而获得动能, 当激光场反向时, 该电子返回到原子核附近并以一定的几率复合到基态而发射出高能光子——高次谐波^[1,2]. 高次谐波具有非常好的相干性, 并且展现了从可见光到真空紫外甚至软X射线光辐射的宽频平台区域, 因而具有十分重要的应用价值, 如其已成功应用于阿秒科学^[3]、衍射成像^[4]、共振磁散射^[5]等多个学科领域.

目前, 制约高次谐波实际应用的一个因素是它的转化效率很低, 对于常用的Ti:Sapphire激光而言其值通常小于 10^{-5} ^[6-8]. 当使用中红外激光脉冲时, 高次谐波的截止位置可得到有效扩展(其 $\propto I\lambda^2$, I 为激光场电场分量的强度, λ 为激光波长), 但是谐波场的强度会快速衰减, 如采用2100 nm的激光驱动Xe, Kr和Ar气体, 谐波的转换效率仅为 10^{-9} ^[9]. 因此, 如何提高谐波的转化效率是强场物理的一个重要研究课

题^[10].

从宏观角度来看, 实验产生的高次谐波是每一个原子产生光辐射的相干叠加. 叠加过程中, 相位匹配会受到激光强度、气体压强等因素的影响. 因此, 可通过两种途径来提高谐波场的强度. 一方面, 可以优化实验条件, 比如选择合适的压强、气体靶长度及位置等参数来得到最强的谐波场^[11-14]. 这种方法主要用于实验中, 缺点是很难同时优化多个参数, 对理论模拟而言, 这种优化过程相当耗时. 另一种方法即优化激光场的波形^[15-17]. 通过合理选择两束或多束激光脉冲的强度、波长、相位, 控制电子长短轨道的相对贡献、运动时间、电离速率来增强单原子辐射谐波的强度.

人们已经对单原子谐波转换效率随激光波长的变化关系进行了大量理论研究^[18-28], 一般认为谐波场强度会按 $\lambda^{-5} \sim \lambda^{-7}$ 的标度律快速衰减. 个别的实验研究^[29-31]结果表明, 宏观谐波场的衰减速度会更快. 另外, 双色场中高次谐波的转化效率也得到了少数工作的研究^[32,33]. 而宏观高次谐波场的转化效率随

引用格式: 王国利, 董小敏, 赵松峰, 等. 优化双色激光场产生高次谐波转化效率的理论研究. 科学通报, 2016, 61: 1808-1815

Wang G L, Dong X M, Zhao S F, et al. The high-harmonic conversion efficiencies in optimized two-color laser pulses (in Chinese). Chin Sci Bull, 2016, 61: 1808-1815, doi: 10.1360/N972015-01451

波长的变化规律仍有待进一步的深入研究.

因此, 本文将在较大的激光波长范围内(800~3000 nm), 利用遗传算法优化单原子谐波场的强度得到最优双色激光场的波形, 在此基础上比较了单原子在单色场和双色场中产生高次谐波的转化效率随激光波长的变化关系, 最后讨论了宏观谐波谱的转化效率问题.

1 理论方法

单原子在给定激光场中产生的高次谐波谱利用强场近似(strong field approximation, SFA)^[34]计算得到, 其中原子在激光场中产生的偶极矩为

$$x(t) = i \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \left(\frac{\pi}{\varepsilon + i\tau/2} \right)^{3/2} d^* [P_{st}(t, \tau) + A(t)] a^*(t) e^{-iS_{st}(t, \tau)} \\ \times d [P_{st}(t, \tau) + A(t - \tau)] E(t - \tau) a(t - \tau) + c.c.,$$

$E(t)$ 是驱动激光的电场, $A(t)$ 是矢势,

$$a(t) = \exp \left[-\frac{1}{2} \int_{-\infty}^t w(\tau) d\tau \right]$$

是原子的基态振幅, 电离速率 $w(t)$ 可由ADK模型^[35,36]计算得到, d 是原子从基态到连续态的偶极跃迁矩阵元. 正则动量 P_{st} 和半经典作用量 S_{st} 可由

$$P_{st}(t, \tau) = -\frac{1}{\tau} \int_{t-\tau}^t dt'' A(t''),$$

$$S_{st}(t, \tau) = \int_{t-\tau}^t dt'' \left\{ \frac{1}{2} [P_{st} + A(t'')]^2 + I_p \right\}$$

计算得到, I_p 是原子的电离势. 高次谐波谱 $y(\omega) \propto \omega^4 |x(\omega)|^2$, $x(\omega)$ 是 $x(t)$ 的傅里叶变换.

双色激光场的电场分量可表示为

$$E(t) = f(t) [E_1 \cos(\omega_1 t + \varphi_1) + E_2 \cos(\omega_2 t + \varphi_2)],$$

其中, E_i , ω_i , φ_i ($i=1, 2$)分别为基频场和附加场的电场振幅、激光频率和载波相位, $f(t)$ 为脉冲包络. 对于给定的基频波长 λ_1 和总的激光场强 I , 参数 E_1 , E_2 , ω_2 , φ_2 (取 $\varphi_1=0$)通过遗传算法^[37]优化特定的目标函数得到. 遗传算法是一种借鉴生物界的进化规律而来的随机搜索的算法, 能很好地解决最优化问题. 该算法的基本思想是: 开始随机产生一组初始种群(个体), 对于选中的染色体进行交叉、变异等操作后产生后代, 然后计算适应度值来选择符合条件的后代, 对于不符合条件的后代进行淘汰. 经过若干代遗传后, 该算法会最终收敛于条件最好的染色体, 得到最优解. 为了保证与单色场产生的谐波具有相同的截止位置,

在本优化中采用的适应度函数为截止位置附近谐波

场强, $F = \int_{\omega_{\text{cut-off}} - \Delta\omega}^{\omega_{\text{cut-off}} + \Delta\omega} y(\omega) d\omega$. 优化中最大代数为4000,

每代的个体数为8, 取限制条件 $E_1^2 + E_2^2 = I$.

双色场的参数确定后, 通过求解麦克斯韦方程得到宏观高次谐波谱^[12], 从而可确定宏观谐波的发射效率随激光波长的变化关系.

2 结果与讨论

在基频场波长 λ_1 为800~3000 nm、激光总场强 I 为 $3 \times 10^{14} \sim 4 \times 10^{14}$ W/cm²的范围内我们优化了双色场的参数, 激光脉冲取flat-top的包络(具有0.45 τ 的高斯型上升沿和下降沿, τ 为总脉宽), 脉宽取为 $3T$ (T 为基频场光学周期). 结果表明, 优化双色场的波形比较稳定, 附加场的波长 λ_2 变化范围为 $\lambda_1/3 \sim \lambda_1/2.8$ 、场强 $I_2 = I_1/5 \sim I_1/3$ 、相位 φ_2 取 $1.5\pi \sim 1.6\pi$. 图1(a)比较了两种优化电场的波形, 其中一种电场取 $\lambda_2 = \lambda_1/3$, $I_2 = I_1/5$, $\varphi_2 = 1.6\pi$, 另外一种电场取参数 $\lambda_2 = \lambda_1/2.8$, $I_2 = I_1/3$, $\varphi_2 = 1.5\pi$. 可以看出, 这两种电场主要在下降沿存在一定的区别, 由于高次谐波的发射主要集中在电场的中央部分, 所以它们产生的高次谐波谱不会有明显的差别. 与单色场相比, 双色场的周期未发生变化, 但是峰值强度得到了较大程度的增强. 通过分析电子在电场中运动获得的动能随电离时刻和复合时刻的变化关系可知(图1(b)), 具有最大动能的电子在双色激光场中运动的时间约为0.6 T , 与其在单色场中运动的时间(0.65 T)一致. 据此可以推测, 原子在优化双色场中由于具有更高的电离速率而会产生更强的高次谐波场. 图1(c)和(d)分别给出了Ne原子在波长为 $\lambda_1 = 1600$ nm、场强为 $I = 3 \times 10^{14}$ W/cm²的单色场和双色场中产生高次谐波的时频分析结果. 虽然在本文的优化过程中并未像Jin等人^[15]那样考虑电子长短轨道的贡献, 但是从图中可以看出, 优化双色场中电子短轨道的贡献还是比长轨道得到了明显的增强, 由于短轨道电子的波包扩散要远小于长轨道电子的波包扩散, 这也有助于谐波场的提高. 同时, 这也表明即使考虑宏观效应后, 也可以保证双色场产生的谐波场强度有较大幅度提高, 因为传播效应通常会滤去长轨道产生的谐波^[38].

图2(a)~(c)展示了双色场和单色场产生的单原子高次谐波谱与激光波长和场强的依赖关系. 图2(a)比较了1600 nm, 3×10^{14} W/cm²的单色场和具有相同能

图1 (网络版彩色)(a) 单色场和优化的双色激光场的波形; (b) 电子在总强度为 $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 、波长 λ_1 为 1600 nm 的双色场中获得的返回动能随电离(t_i)和复合时刻(t_r)的变化关系; (c)和(d) 单色场和双色场分别产生高次谐波的时频分析

Figure 1 (Color online) (a) The waveforms of single-color and optimized two-color field; (b) dependence of the kinetic energy on the ionization times t_i and emission times t_r for the optimized field with the total intensity of $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ and fundamental wavelength of 1600 nm; (c) and (d) the time-frequency analysis of the harmonic spectra generated by single 1600 nm and optimized field, respectively

量的双色场产生的谐波谱, 为了便于比较, 图中也给出了对谐波谱平滑处理以后的曲线. 每种电场产生谐波谱的截止位置都为 250 eV, 但是经过优化以后, 双色场产生的谐波谱强度整体提高了约 25 倍(单双色场中的电离几率由 0.23% 增强至 2.4%). 而且, 优化双色场的效果明显好于常用的满足二倍频关系的双色场($I_1 = 2.6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $I_2 = 0.4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $\varphi_2 = 0.24\pi$). 当波长增长至 2000 nm 时, 截止位置扩展至 380 eV, 双色场中谐波强度提高了约 22 倍(图 2(b))(与 1600 nm 相比, 电离几率略有增加). 当场强增强至 $4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时, 截止位置提高至 325 eV, 原子在单双色场中的电离几率也随之增大(但是增强程度逐渐减弱, 单双色场中分别为 1.6% 和 13.9%), 谐波场的提高有所减缓, 但仍然达到了 15 倍(图 2(c)). 图 2(d) 比较了基频波长为 2000 nm、靶中心处场强为 $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 的单色场和双色场产生的近场宏观高次谐波谱. 计算中, 各激光脉冲的束腰为 40 μm , 长为 1 mm、压强为 3 Torr (1 Torr = 133.3 Pa) 的气体靶放置在激光焦点 1.5 mm 之后, 气体靶中心处的电场与优化电场波形保持

一致. 可以看出, 考虑传播效应后, 双色场产生谐波场的强度仍然得到了明显的增强(在 250 eV 附近提高了 30 倍), 说明优化的双色场可以通过实验产生的高次谐波来验证.

下面比较单色场和双色场产生单原子高次谐波的转化效率随激光波长的变化规律. 利用强场近似研究单原子谐波场随激光波长的标度律的有效性已在文献[24]中给出了很好的证明. 已有的研究表明, 能量范围和谐波场的定义方式会对标度律 λ^{-x} 产生重要的影响. 对于计算转换效率的谐波场强度来说, 本文采用如下定义^[28]:

$$\Delta y = \frac{1}{\tau} \int_{E_1}^{E_2} y(E) dE,$$

即原子在单位时间内辐射出的处于能量范围 $[E_1, E_2]$ 中的谐波总能量, 其中 $y(E)$ 是能量为 E 的谐波强度. 图 3(a) 计算了激光波长在 800~3000 nm 范围内 Ne 原子辐射出 30~50 eV 间隔内的谐波能量随激光波长的变化关系. 单色场中, 该能量范围谐波的转化效率随 $\lambda^{-5.1}$ 规律衰减, 该值与已有的结果^[28] 符合得很好. 随

图2 (网络版彩色)不同激光波长和强度的单色场与优化的双色场产生Ne原子高次谐波谱的比较. (a) $I=3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $\lambda_i=1600 \text{ nm}$; (b) $I=3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $\lambda_i=2000 \text{ nm}$; (c) $I=4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $\lambda_i=1600 \text{ nm}$; (d) 两种电场在长为1 mm、压强为3 Torr的Ne气中产生的宏观高次谐波谱

Figure 2 (Color online) The comparison of HHG spectra for different wavelengths and intensities. (a) $I=3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $\lambda_i=1600 \text{ nm}$; (b) $I=3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $\lambda_i=2000 \text{ nm}$; (c) $I=4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $\lambda_i=1600 \text{ nm}$; (d) the macroscopic HHG spectra of Ne generated from 1 mm gas jet with gas pressure of 3 Torr

着激光波长逐渐变长, 原子的电离几率随之增大, 双色场产生谐波场的增强程度逐渐减小, 如波长为800 nm时谐波场可增强45倍, 而3000 nm时则提高11倍. 因此, 虽然在优化的双色场中谐波的转化效率得到了最大程度的提高(一个量级以上), 但是与单色场相比, 转化效率随激光波长衰减得反而更快($\lambda^{-6.3}$). 由于两种场中电子运动的时间相差不大, 所以引起的波包扩散也相差不大. 但是由于两种场中长短轨道的贡献不同, 则会导致不同的标度律. Austin等人^[24]研究了转换效率中不同电子轨道的贡献, 结果表明, 对于某一给定能量的光子, 其对应长、短轨道的波长标度律分别为 $\lambda^{-4.1}$ 和 $\lambda^{-8.5}$. 图1反映出优化双色场中电子短轨道的贡献要大于单色场, 所以会导致谐波场更加快速地衰减. 图3(b)比较了截止位置附近30 eV间隔内谐波场随激光波长的标度律. 与电离阈值附近相比, 该能量范围的谐波强度随波长衰减得更快, 在单色场和双色场中分别标度为 $\lambda^{-7.2}$ 和 $\lambda^{-7.7}$, 非常接近于文献[24]中给出的 $\lambda^{-7.6}$. 图3(c)讨论了谐波平台中间区谐波场的转化效率, 能量积分范围为

$2U_p \sim 2U_p + 40 \text{ eV}$ ($U_p = I/4\omega^2$, 为自由电子在激光场中的有质动力能). 该区域单色场和双色场中的标度律非常接近, 分别为 $\lambda^{-7.9}$ 和 $\lambda^{-8.1}$. 应该指出, 在文献[32]中提出利用红外激光和掺钛蓝宝石激光形成的组合场($\lambda+800 \text{ nm}$)来提高谐波的转化效率, 得到了很好的标度律(对于低能谐波可达 λ^{-3}). 但是对于短脉冲来说, 该类型双色场很难与单色场保持一致的谐波截止位置, 因此不便与本文的结果进行对比.

随后, 我们讨论宏观高次谐波谱的转化效率. 为此, 计算了激光波长为800~2600 nm的单色场和双色场产生的宏观高次谐波谱, 产生条件与图2(d)一致. 图4(a)比较了电离阈附近(30~50 eV)两种电场产生谐波场的强度. 可以看出, 不同波长激光脉冲辐射的谐波强度出现了振荡行为, 清晰地反映了相位匹配与激光波长的依赖关系. 类似的现象在单原子谐波中也会出现^[20]. 通过拟合得到单色场和双色场中的波长标度律分别为 $\lambda^{-8.4}$ 和 $\lambda^{-8.0}$. 与单原子谐波场相比, 宏观高次谐波的转换效率随激光波长衰减的更快, 表明随着激光波长的增长, 越难实现相位匹配. 在本

图3 (网络版彩色)单色场和双色场产生单原子谐波场强度 Δy 随激光波长的变化关系. 积分范围: (a) 30~50 eV, (b) 截止位置附近 30 eV, (c) $2U_p \sim 2U_p + 40$ eV

Figure 3 (Color online) Wavelength scaling of HHG yield in the one- and two-color field integrated over the energy range of (a) 30~50 eV, (b) $3.17U_p \sim 30$ eV and (c) $2U_p \sim 2U_p + 40$ eV

文的模拟中, 气体靶放置在激光束焦点之后, 所以会选择出短轨道产生的谐波^[38], 因而会比单原子谐波衰减得更快^[24]. 实验方面, 为了和单原子谐波的转换效率进行比较, Shiner等人^[30]在最大程度满足相位匹配的实验条件下测量了波长为800, 1300, 1400, 1850 nm四种激光脉冲产生的Xe和Kr气体的谐波谱, 得到在16~32 eV范围内谐波场强度的标度律分别为 $\lambda^{-6.3 \pm 1.1}$ 和 $\lambda^{-6.5 \pm 1.1}$. 由于该能量范围更接近于电离阈,

图4 (网络版彩色)单色场和双色场产生宏观谐波场强度 Δy 随激光波长的变化关系. 积分范围: (a) 30~50 eV, (b) $2U_p \sim 2U_p + 40$ eV, (c) 截止位置附近 30 eV

Figure 4 (Color online) Same as the Figure 3, but for the macroscopic HHG field. The integrated energy range is (a) 30~50 eV; (b) $2U_p \sim 2U_p + 40$ eV, (c) $3.17U_p \sim 30$ eV

因此标度律的指数因子比我们的值略小. 另外, Shiner等人^[30]假定不同激光产生气体的电离程度是相同的, 如果考虑到原子的电离几率会随激光波长的变长而增大的话, 他们的结果与单原子标度律的差别会更大, 因为相位匹配会随着电离程度的增大而变差. 如果只考虑800~1400 nm激光脉冲的话, 在

图5 (网络版彩色)双色激光场波形的稳定性, $I_0=10^{14} \text{ W/cm}^2$

Figure 5 (Color online) The stability analysis of the optimized wave-form, $I_0=10^{14} \text{ W/cm}^2$

单色场中则会得到更差的宏观谐波标度律, $\lambda^{-13.5}$. 图4(b)比较了谐波平台中间区单、双色场中的转换效率, 标度律分别为 $\lambda^{-10.7}$ 和 $\lambda^{-11.5}$. 由于光子能量越高, 谐波越难满足相位匹配, 截止位置处的谐波强度衰减得越快, 单、双色场中分别达到了 $\lambda^{-12.6}$ 和 $\lambda^{-13.3}$ (图4(c)). Colosimo等人^[29]测量了800和2000 nm激光在Ar气体中产生的谐波, 结果表明35~50 eV(50 eV为800 nm激光产生谐波的截止位置)间的谐波强度相差1000倍. 比较了800和2000 nm单色场产生的谐波谱, 发现60~75 eV范围的谐波场强度比为1185, 非常接近于Colosimo等人的实验结果.

最后, 检验了双色场波形的稳定性. 图5比较了几组具有不同激光参数双色场产生的高次谐波谱, 其中强度、波长和相位分别在优化波形的基础上考虑了 $\pm 10\%$, $\pm 40 \text{ nm}$, $\pm 0.05\pi$ 的涨落. 从图可以看出, 优化双色场的波形在这样一些范围的误差内是相对稳定的, 而这些涨落在目前的实验技术中是完全可控的^[39,40].

3 总结

高次谐波作为一种新型便捷的光源已经展现出了非常诱人的应用前景. 针对转换效率低的缺点本文证明了一种可行的用来提高高次谐波光子强度的方法. 通过正确选择两束激光脉冲的强度、波长和相位, 可以增强原子的电离速率, 从而可以将整个平台区高次谐波的强度提高约一个量级以上. 通过比较单原子和宏观谐波场的转换效率, 发现宏观谐波场强度随激光波长的增大降低的更快, 标度律为 $\lambda^{-8} \sim \lambda^{-13}$. 产生这种差别的原因有两个. 一是单原子和宏观谐波谱中电子长短轨道的相对贡献不同. 二是宏观谐波谱的强度要受相位匹配的影响, 而相位匹配的程度与气体的电离程度有关, 随着激光波长的增长, 电离几率随之增大, 相位匹配越来越差. 利用双色场虽然可以有效提高谐波的转换效率, 但是并不能改善转换效率随激光波长的衰减速度. 本文的工作可为实验上产生超强的高次谐波提供重要的参考.

参考文献

- Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Phys Rev Lett*, 1993, 71: 1994–1997
- Krause J L, Schafer K J, Kulander K C. High-order harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime. *Phys Rev Lett*, 1992, 68: 3535–3538
- Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics. *Rev Mod Phys*, 2009, 81: 163
- Dinh K B, Le H V, Hannaford P, et al. Coherent diffractive imaging microscope with a high-order harmonic source. *Appl Opt*, 2015, 54: 5303–5308
- Weier C, Adam R, Rudolf D, et al. Femtosecond-laser-induced modifications in Co/Pt multilayers studied with tabletop resonant magnetic scattering. *Europhys Lett*, 2015, 109: 17001
- Falcão-Filho E L, Lai C J, Hong K H, et al. Scaling of high-order harmonic efficiencies with visible wavelength drivers: A route to efficient extreme ultraviolet sources. *Appl Phys Lett*, 2010, 97: 061107
- Rudawski P, Heyl C M, Brizuela F, et al. A high-flux high-order harmonic source. *Rev Sci Instrum*, 2013, 84: 073103
- Hädrich S, Klenke A, Rothhardt J, et al. High photon flux table-top coherent extreme-ultraviolet source. *Nat Photon*, 2014, 8: 779–783
- Hong K H, Lai C J, Gkortsas V M, et al. High-order harmonic generation in Xe, Kr, and Ar driven by a 2.1- μm source: High-order harmonic spectroscopy under macroscopic effects. *Phys Rev A*, 2012, 86: 043412
- Andreev A V, Stremoukhov S Y, Shoutova O A. Enhancement of efficiency of XUV generation in atomic gases irradiated by intense laser fields. In: *The Proceedings of the 13th International Conference on X-Ray Lasers*. Paris: Springer, 2012. 7–18
- Yao J P, Xiong H, Xu H, et al. A systematic investigation of high harmonic generation using mid-infrared driving laser pulses. *Sci China*

- Phys Mech Astron, 2010, 53: 1054–1059
- 12 Wang G L, Jin C, Le A T, et al. Influence of gas pressure on high-order-harmonic generation of Ar and Ne. *Phys Rev A*, 2011, 84: 053404
- 13 Popmintchev T, Chen M C, Popmintchev D, et al. Bright coherent ultrahigh harmonics in the keV X-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers. *Science*, 2012, 336: 1287–1291
- 14 Wang L F, He X K, Teng H, et al. Tunable optimization of high-order harmonic generation driven by 5 fs laser pulses (in Chinese). *Acta Phys Sin*, 2014, 63: 224103 [汪礼锋, 贺新奎, 滕浩, 等. 5 fs 驱动激光脉冲的高次谐波选择性优化. *物理学报*, 2014, 63: 224103]
- 15 Jin C, Wang G L, Wei H, et al. Waveforms for optimal sub-keV high-order harmonics with synthesized two- or three-colour laser fields. *Nat Commun*, 2014, 5: 4003
- 16 Jin C, Wang G L, Le A T, et al. Route to optimal generation of soft X-ray high harmonics with synthesized two-color laser pulses. *Sci Rep*, 2014, 4: 7067
- 17 Li F, Wang G L, Zhao S F, et al. Synthesis of multi-color long laser pulses for strong attosecond pulse generation. *Chin Phys Lett*, 2015, 32: 014207
- 18 Tate J, Augustine T, Muller H G, et al. Scaling of wave-packet dynamics in an intense midinfrared field. *Phys Rev Lett*, 2007, 98: 01390
- 19 Schiessl K, Ishikawa K L, Persson E, et al. Quantum path interference in the wavelength dependence of high-harmonic generation. *Phys Rev Lett*, 2007, 99: 253903
- 20 Frolov M V, Manakov N L, Starace A F. Wavelength scaling of high-harmonic yield: threshold phenomena and bound state symmetry dependence. *Phys Rev Lett*, 2008, 100: 173001
- 21 Falcão-Filho E L, Gkortsas V M, Gordon A, et al. Analytic scaling analysis of high harmonic generation conversion efficiency. *Opt Express*, 2009, 17: 11217–11229
- 22 Chen J, Zeng B, Liu X, et al. Wavelength scaling of high-order harmonic yield from an optically prepared excited state atom. *New J Phys*, 2009, 11: 113021
- 23 Cheng C Z, Zhou X X, Li P C. The wavelength dependence of high-order harmonic generation and attosecond pulses from atom in infrared laser field (in Chinese). *Acta Phys Sin*, 2011, 60: 033203 [成春芝, 周效信, 李鹏程. 原子在红外激光场中产生高次谐波及阿秒脉冲随波长的变化规律. *物理学报*, 2011, 60: 033203]
- 24 Austin D R, Biegert J. Strong-field approximation for the wavelength scaling of high-harmonic generation. *Phys Rev A*, 2012, 86: 023813
- 25 Du H C, Xue S, Wang H Q, et al. Wavelength scaling of high-order harmonic yield from a Rydberg atom in a few-cycle pulse. *J Opt Soc Am B*, 2014, 31: 1621–1626
- 26 Le A T, Wei H, Jin C, et al. Universality of returning electron wave packet in high-order harmonic generation with midinfrared laser pulses. *Phys Rev Lett*, 2014, 113: 033001
- 27 Frolov M V, Manakov N L, Xiong W H, et al. Scaling laws for high-order-harmonic generation with midinfrared laser pulses. *Phys Rev A*, 2015, 92: 023409
- 28 Frolov M V, Manakov N L, Xiong W H, et al. Comment on “universality of returning electronwave packet in high-order harmonic generation with midinfrared laser pulses”. *Phys Rev Lett*, 2015, 114: 069301
- 29 Colosimo P, Doumy G, Blaga C I, et al. Scaling strong-field interactions towards the classical limit. *Nat Phys*, 2008, 4: 386–389
- 30 Shiner A D, Trallero-Herrero C, Kajumba N, et al. Wavelength scaling of high harmonic generation efficiency. *Phys Rev Lett*, 2009, 103: 073902
- 31 Lai C J, Cirmi G, Hong K H, et al. Wavelength scaling of high harmonic generation close to the multiphoton ionization regime. *Phys Rev Lett*, 2013, 111: 073901
- 32 Lan P, Takahashi E J, Midorikawa K. Wavelength scaling of efficient high-order harmonic generation by two-color infrared laser fields. *Phys Rev A*, 2010, 81: 061802(R)
- 33 Cao W J, Cheng C Z, Zhou X X. The relationship between conversion efficiency of high-order harmonic generation from atom and wavelength in two-color combined fields (in Chinese). *Acta Phys Sin*, 2011, 60: 054210 [曹卫军, 成春芝, 周效信. 原子在双色组合场中产生高次谐波的转换效率与激光波长的关系. *物理学报*, 2011, 60: 054210]
- 34 Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, et al. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Phys Rev A*, 1994, 49: 2117–2132
- 35 Ammosov M V, Delone N B, Krainov V P. Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field. *Sov Phys JETP*, 1986, 64: 1191–1194
- 36 Tong X M, Lin C D. Empirical formula for static field ionization rates of atoms and molecules by lasers in the barrier-suppression regime. *J Phys B*, 2005, 38: 2593–2600
- 37 Carroll D L. FORTRAN Genetic Algorithm Driver. CU Aerospace, 2001
- 38 Salières P, L’Huillier A, Lewenstein M. Coherence control of high-order harmonics. *Phys Rev Lett*, 1995, 74: 3776–3779
- 39 Huang S W, Cirmi G, Moses J, et al. High-energy pulse synthesis with sub-cycle waveform control for strong-field physics. *Nat Photon*, 2011, 5: 475–479
- 40 Chan H S, Hsieh Z M, Liang W H, et al. Synthesis and measurement of ultrafast waveforms from five discrete optical harmonics. *Science*, 2011, 331: 1165–1168

The high-harmonic conversion efficiencies in optimized two-color laser pulses

WANG GuoLi, DONG XiaoMin, ZHAO SongFeng & ZHOU XiaoXin

College of Physics and Electronic Engineering, Northwest Normal University, Key Laboratory of Atomic and Molecular Physics and Functional Materials of Gansu Province, Lanzhou 730070, China

High-order harmonic generation (HHG) is a remarkable frequency up-conversion process in which an ultrafast femtosecond laser pulse at high intensity ($>10^{14}$ W/cm²) interacts with a gaseous target to generate coherent extreme ultraviolet radiation. High-order harmonics, due to their high repetition rate operation, tunable wavelength and high coherence degree, have been widely used in many fields. HHG is currently a cornerstone of attosecond pulse, and promises to be a valuable tabletop light source. Their main drawback, however, is the low conversion efficiency, which limits many applications. In this work we present a promising way to increase harmonic yield by using the synthesized two-color field, whose validity is demonstrated both on single-atom and macroscopic levels. The single-atom harmonic spectrum is calculated by the strong field approximation method. The macroscopic propagation of the fundamental and harmonic fields in an ionizing medium is obtained by solving Maxwell equations, which involves the dispersion, absorption, Kerr and plasma effects. The waveform of two-color laser field is determined by using a genetic algorithm to optimize the maximum single-atom Ne harmonic yield, for the lasers with fundamental wavelengths of 800 nm to 3000 nm. Optimizations are performed on condition that the cutoff and total laser power for the single-color field and the optimized wave are the same. The optimizations show that the optimal wavelengths and intensities meet the conditions of $\lambda_1/\lambda_2 \approx 3$, $I_1/I_2 \approx 5$ for two component fields, and carrier-envelope phases are $\phi_1=0$, $\phi_2=1.6\pi$. Our analysis show that the spreading of the electron wavepacket is almost the same in the optimized and single-color field. But the ionization level and yields of harmonics emitted from short-trajectory returning electrons are enhanced in the optimized field. Thus, the harmonic conversion efficiency generated by the optimized laser field can be increased by at least one order without increasing total laser power even after considering macroscopic propagation effects. We also compare the wavelength scaling laws of harmonic yield generated by the single- and optimized two-color fields. For the single atom, the present wavelength scaling in the single-color field agrees with the previous results, which scales as $\lambda^{-5} \sim \lambda^{-8}$. In the two-color field, the scaling law is slightly worse than that in the homochromatic field mainly due to different contributions of short and long trajectories. While for the macroscopic high harmonic generation, its efficiency falls more dramatically with increasing wavelength because of the unfavourable phase-matching and dominant contribution of harmonics from short-trajectory electrons, with a very unfavorable scaling law of $\lambda^{-8} \sim \lambda^{-13}$. Although we can not obtain a much better wavelength scaling of harmonic yield in the two-color fields, the conversion efficiency can be enhanced more than one order. Further analysis shows that the stability of optimized waveform is maintained in consideration of relative intensity, wavelength and phase fluctuations of $\pm 10\%$, ± 40 nm and $\pm 0.05\pi$, respectively. Due to the great advent of the ultrafast lasers technology, such as waveform synthesizing, optical parametric amplification and optical parametric chirped-pulse amplification, this work gives helpful guidance for intense harmonic generation.

genetic algorithm, two-color laser pulses, high-order harmonic generation, conversion efficiencies

doi: 10.1360/N972015-01451