

# 空气中双色场激光诱导三次谐波随时间延迟 变化特性的理论研究

刘 岩 刘伟伟

(南开大学现代光学研究所教育部光电信息科学重点实验室, 天津 300071)

**摘要** 理论研究了当基频光( $\omega_0$ )和倍频光( $2\omega_0$ )之间的时间延迟改变时,所产生的三次谐波(THG)的光谱特性。研究结果表明,空气中双色场飞秒激光诱导三次谐波的强度随基频光与倍频光之间的时间延迟而变化,并呈现周期性的调制现象。理论分析指出这是由于基频光的三倍频过程和基频光与倍频光的四波混频(FWM)过程两种物理机制所产生的三次谐波发生了干涉现象。同时研究了基频脉冲与倍频脉冲的啁啾和自相位调制(SPM)对于所产生的三次谐波光谱分布的影响。该研究为双色场飞秒激光诱导三次谐波的相干控制提供了基本的理论依据。

**关键词** 超快光学;三次谐波;啁啾;自相位调制

**中图分类号** O437 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/CJL201138.0502007

## Characteristic Study of Third Harmonic Generation Induced by Two-Color-Field Femtosecond Laser in Air as a Function of Temporal Delay

Liu Yan Liu Weiwei

(Key Laboratory of Opto-Electronic Information Science and Technology, Ministry of Education,  
Institute of Modern Optics, Nankai University, Tianjin 300071, China)

**Abstract** This paper theoretically studies the spectral characteristics of the third harmonic generated (THG) in air by focusing a two-color-field laser, which is synthesized by a femtosecond laser pulse ( $\omega_0$ ) and its second harmonic ( $2\omega_0$ ). It is found that the third harmonic intensity varies as a function of the temporal delay between the fundamental and the second harmonic wave, showing a pronounced periodic modulation. This observation is explained by the interference taking place between two third harmonic sources. One is induced by the direct third harmonic generation of the fundamental wave, while the other is given rise by the four-wave mixing (FWM) of the fundamental and the second harmonic waves. In addition, the third harmonic spectra are investigated when the chirp and the self-phase modulation (SPM) of the fundamental pulse and the second harmonic are taken into account. Our results can provide some key informations for the coherent control of the third harmonic generation induced by two-color-field femtosecond laser in air.

**Key words** ultrafast optics; third harmonic generation; chirp; self-phase modulation

**OCIS codes** 320.7090; 320.7110; 190.2620

**收稿日期**: 2011-01-11; **收到修改稿日期**: 2011-02-25

**基金项目**: 国家 973 计划(2007CB310403)、国家自然科学基金重大项目(60637020)、国家自然科学基金(10804056)、教育部“新世纪优秀人才支持计划”(NCET-07-0455)、霍英东教育基金会青年教师基金(111009)、国家教育部回国人员科研启动基金和国家教育部博士点专项基金(20070055074)资助课题。

**作者简介**: 刘 岩(1982—),男,博士研究生,主要从事超短脉冲测量方面的研究。

E-mail: liu\_yan19820109@yahoo.com.cn

**导师简介**: 刘伟伟(1976—),男,教授,博士生导师,主要从事超快激光科学方面的研究。

E-mail: liuweimei@nankai.edu.cn(通信联系人)

## 1 引 言

飞秒激光脉冲与其倍频脉冲合成的双色场激光与气体介质发生非线性作用,可高效地产生不同频率的超短电磁波脉冲。国外相关实验报道证实,利用中心波长 800 nm 飞秒激光与其倍频光的四波混频(FWM)过程  $3\omega_0 = 2\omega_0 + 2\omega_0 - \omega_0$  可获得 270 nm 左右的紫外脉冲,其转换效率高于 13%<sup>[1,2]</sup>;基于双色场激光的倍频过程  $4\omega_0 = 2\omega_0 + 2\omega_0$  以及级联四波混频过程  $5\omega_0 = 3\omega_0 + 3\omega_0 - \omega_0$ ,可获得 200 nm 和 160 nm 的超紫外脉冲<sup>[3,4]</sup>;通过 26 fs/820 nm 的飞秒激光与倍频光的高阶(38 阶次)非线性过程,产生了 21.6 nm 的软 X 射线脉冲<sup>[5]</sup>。在国内,利用双色场激光与惰性气体的非线性作用产生阿秒量级超短脉冲方面的研究也取得了众多成果。2006 年,华东师范大学研究组<sup>[6]</sup>将飞秒脉冲压缩后通过实验获得了连续的高次谐波谱,理论上可产生 500 as 变换极限脉冲;2007 年,中国科学院上海光学精密机械研究所<sup>[7]</sup>对双色场飞秒激光与氦原子相互作用产生高次谐波的过程进行了理论分析,指出该过程获得的超连续紫外光谱可产生 65 as 超短脉冲;2009 年,华中科技大学<sup>[8]</sup>研究了宏观效应给双色场飞秒激光与原子作用产生超连续谱过程带来的影响,从理论上证实了经过稀薄气体介质中长途的传播后,超连续谱可产生低于 100 as 的超短脉冲;长春理工大学<sup>[9]</sup>数值计算了双色场飞秒激光与氢原子作用产生的高次谐波谱,给出了相应的截止频率;2010 年,西北师范大学<sup>[10]</sup>通过求解含时薛定谔方程,对中红外和紫外双色场激光驱动氦原子产生高次谐波和阿秒脉冲进行了理论计算。另一方面,双色场激光与气体介质的非线性作用也可以产生太赫兹脉冲<sup>[11~14]</sup>,近年来该方向的研究成果被相继报道,国外相关的研究组通过实验获得了单脉冲能量高于 4  $\mu\text{J}$ ,谱宽超过 70 THz 的太赫兹脉冲<sup>[12]</sup>以及波长 4.5  $\mu\text{m}$ ,光谱宽度可达 150 THz 的单周期近红外脉冲输出<sup>[13]</sup>,并证实了隧道电离在双色场激光诱导太赫兹产生方面的重要作用<sup>[14]</sup>;国内方面,2009 年南开大学<sup>[15]</sup>利用近红外飞秒激光与其倍频在空气中产生太赫兹脉冲,发现所产生的脉冲为线性偏振且与倍频光偏振方向垂直,并进一步证明了非线性极化系数  $\chi_{xy}^{(3)}$  在四波混频过程起主导作用,国防科技大学<sup>[16]</sup>通过求解时间相关的薛定谔方程获得了超快光场中单原子太赫兹辐射的模型,并对包括双色场在内的多种情况下的太赫兹产生进行了理论计算;2010 年,中国科学院上海光学精密机械研究

所<sup>[17]</sup>通过对双波长激光在光纤中的四波混频效应的理论研究,提出了一种高功率、连续输出的太赫兹辐射源。

值得一提的是,在双色场激光激发气体介质产生三次谐波的实验研究中,四波混频过程通常被视为主要的物理机制,而光学三倍频效应则由于转化效率低的原因被忽略,这给实验数据的分析带来了一定的影响。本文从理论上研究了飞秒激光脉冲与其倍频脉冲合成的双色场激光通过四波混频和光学三倍频产生三次谐波的物理机制,分析了三次谐波的强度随基频光和倍频光之间的时间延迟的变化,以及基频脉冲与倍频脉冲的不同初始状态[啁啾和自相位调制(SPM)]给三次谐波超短脉冲的脉冲宽度和光谱分布带来的影响,并通过相应的数据模拟给出直观的结果。

## 2 理论分析

基频飞秒脉冲与其倍频脉冲在聚焦区域发生三阶非线性过程,主导三次谐波产生的非线性极化强度为

$$\tilde{P}_{3\omega_0}^{(3)}(t) = \epsilon_0 [aE_1^3(t) + 3bE_2^2(t)E_1^*(t) + c.c.], \quad (1)$$

式中  $\epsilon_0$  为真空介电常数; $a = \chi^{(3)}(3\omega_0, \omega_0, \omega_0, \omega_0)$  和  $b = \chi^{(3)}(3\omega_0, -\omega_0, 2\omega_0, 2\omega_0)$  分别为光学三倍频和四波混频过程中的非线性极化率系数; $E_1(t)$  和  $E_2(t)$  分别为基频脉冲与倍频脉冲的光电场,可表示为

$$\begin{cases} E_1(t) = A_1(t) \exp[-i\omega_0 t + i\varphi_1(t)] \\ E_2(t) = A_2(t-\tau) \exp[-i2\omega_0(t-\tau) + i\varphi_2(t-\tau)], \end{cases} \quad (2)$$

式中  $A_1(t)$  与  $A_2(t-\tau)$  为基频与倍频光电场的实振幅, $\varphi_1(t)$  和  $\varphi_2(t-\tau)$  分别为其相位分布, $\tau$  为基频脉冲与其倍频之间的时间延迟。根据(1)和(2)式,所产生的三次谐波的强度分布为

$$\begin{aligned} S(\tau) \propto \int |aE_1^3 + 3bE_2^2E_1^*|^2 dt &= \int a^2 A_1^6 dt + \\ & \int 9b^2 A_1^2 A_2^4 dt + \int 6ab A_1^4 A_2^2 \cos(4\omega_0 \tau + 2\varphi_2 - 4\varphi_1) dt. \end{aligned} \quad (3)$$

由(3)式可以看出,当基频脉冲与倍频之间延迟较大时,三次谐波主要由基频光的三倍频过程产生,其强度为  $S_{\tau \rightarrow \infty} \propto \int a^2 A_1^6 dt$ ,在零延迟处,由三倍频与四波混频两种机制产生的三次谐波成分相干叠加,产

生的三次谐波强度最大,其表达式为

$$S_{\tau=0} \propto \int a^2 A_1^6 dt + \int 9b^2 A_1^2 A_2^4 dt + \int 6ab A_1^4 A_2^2 \cos(2\varphi_2 - 4\varphi_1) dt. \quad (4)$$

如(3)式中右边第三项所示,三次谐波的强度随着延

迟的变化出现周期性调制,其调制周期约为  $2\pi/(4\omega_0)$ 。

理论分析表明,在聚焦区域由光学三倍频与四波混频两种机制产生的三次谐波发生干涉,根据(1)式可以得到三次谐波光谱分布随时间的延迟变化为<sup>[18]</sup>

$$I(\omega_{\text{THG}}, \tau) \propto \left| \int [aE_1^3(t) + 3bE_2^2(t)E_1^*(t)] \exp(i\omega_{\text{THG}}t) dt \right|^2 = a^2 |\tilde{E}_{\text{THG}}(\omega_{\text{THG}})|^2 + 9b^2 |\tilde{E}_{\text{FWM}}(\omega_{\text{THG}})|^2 + 6ab |\tilde{E}_{\text{THG}}(\omega_{\text{THG}})\tilde{E}_{\text{FWM}}(\omega_{\text{THG}})| \cos[\tilde{\varphi}_{\text{FWM}}(\omega_{\text{THG}}) - \tilde{\varphi}_{\text{THG}}(\omega_{\text{THG}})], \quad (5)$$

式中  $\tilde{\varphi}_{\text{THG}}(\omega_{\text{THG}})$  与  $\tilde{\varphi}_{\text{FWM}}(\omega_{\text{THG}})$  分别表示三倍频和四波混频过程产生的三次谐波成分的相位,  $\tilde{E}_{\text{THG}}(\omega_{\text{THG}})$  和  $\tilde{E}_{\text{FWM}}(\omega_{\text{THG}})$  为相应的三次谐波电场频域形式,可推导得到

$$\begin{cases} \tilde{E}_{\text{THG}}(\omega_{\text{THG}}) = \int A_1^3(t) \exp[-3i\omega_0 t + 3i\varphi_1(t)] \exp(i\omega_{\text{THG}}t) dt \\ \tilde{E}_{\text{FWM}}(\omega_{\text{THG}}) = \int A_1(t)A_2^2(t-\tau) \exp[-3i\omega_0 t + 4i\omega_0 \tau + 2i\varphi_2(t-\tau) - i\varphi_1(t)] \exp(i\omega_{\text{THG}}t) dt \end{cases}. \quad (6)$$

考虑(6)式中第二式的相位因子  $\exp(4i\omega_0 \tau)$ , 可以将相位分布  $\tilde{\varphi}_{\text{FWM}}(\omega_{\text{THG}})$  改写为  $\tilde{\varphi}_{\text{FWM}}(\omega_{\text{THG}}) = 4\omega_0 \tau + \tilde{\varphi}'_{\text{FWM}}(\omega_{\text{THG}})$  并代入(5)式,得到

$$I(\omega_{\text{THG}}, \tau) \propto a^2 |\tilde{E}_{\text{THG}}(\omega_{\text{THG}})|^2 + 9b^2 |\tilde{E}_{\text{FWM}}(\omega_{\text{THG}})|^2 + 6ab |\tilde{E}_{\text{THG}}(\omega_{\text{THG}})\tilde{E}_{\text{FWM}}(\omega_{\text{THG}})| \cos[4\omega_0 \tau + \tilde{\varphi}'_{\text{FWM}}(\omega_{\text{THG}}) - \tilde{\varphi}_{\text{THG}}(\omega_{\text{THG}})]. \quad (7)$$

由(7)式可以看出,三次谐波特定波长的光谱强度随延迟的变化也会出现强度调制现象,且调制周期也在  $2\pi/(4\omega_0)$  左右。

需要说明的是,(3)和(5)式分别描述了三次谐波脉冲的强度以及光谱分布随时间延迟变化的分布情况,根据能量守恒可知,两者满足关系<sup>[19]</sup>

$$S(\tau) \propto \frac{1}{2\pi} \int I(\omega, \tau) d\omega. \quad (8)$$

在实际应用中,基频飞秒脉冲与其倍频脉冲的具体形状可以用高斯型、双曲正割型等进一步近似,并且通过引入啁啾率和自相位调制等参数实现更加精确地模拟,例如,考虑啁啾高斯脉冲的情况,那么

基频脉冲与倍频脉冲的光电场可以写为

$$\begin{cases} E_1(t) = A_1 \exp\left[-2 \frac{(1+iC)t^2}{\tau_0^2} \ln 2\right] \exp(-i\omega_0 t) \\ E_2(t) = A_2 \exp\left[-4 \frac{(1+iC)(t-\tau)^2}{\tau_0^2} \ln 2\right] \times \\ \exp[-i2\omega_0(t-\tau)] \end{cases}, \quad (9)$$

式中  $A_1$  与  $A_2$  分别为基频脉冲与倍频脉冲的振幅极值,  $\tau_0$  为基频脉冲的半峰全宽,  $\tau$  为两脉冲之间的时间延迟,  $C$  为基频脉冲的啁啾率;而自相位调制也是一种重要的影响因素,考虑基频脉冲的自相位调制情况,那么两脉冲的光电场的形式为

$$\begin{cases} E_1(t) = A_1 \exp\left\{-2 \frac{t^2}{\tau_0^2} \ln 2 + iC_1 \exp\left[-4 \frac{t^2}{\tau_0^2} \ln 2\right]\right\} \exp(-i\omega_0 t) \\ E_2(t) = A_2 \exp\left\{-4 \frac{(t-\tau)^2}{\tau_0^2} \ln 2 + iC_2 \exp\left[-8 \frac{(t-\tau)^2}{\tau_0^2} \ln 2\right]\right\} \exp[-i2\omega_0(t-\tau)] \end{cases}, \quad (10)$$

式中  $C_1$  和  $C_2$  分别表示基频脉冲和倍频脉冲自相位调制的系数。

### 3 数值模拟和分析

根据(3),(5),(9)和(10)式对不同初始状态下基频脉冲与其倍频所产生的三次谐波脉冲的强度分布和频谱结构进行数值模拟,模拟结果如图 1~3 所

示。模拟过程中所设置的各参数的数值如下:基频脉冲为中心波长 800 nm 的飞秒脉冲,其半峰全宽为  $\tau_0 = 50$  fs,取  $\frac{b}{a} \left(\frac{A_2}{A_1}\right)^2 = 2.0$ ,模拟过程中延迟  $\tau$  为负表示倍频脉冲超前,延迟为正表示倍频脉冲落后,并定义调制深度为调制信号的峰峰值与强度包络的数值之比。

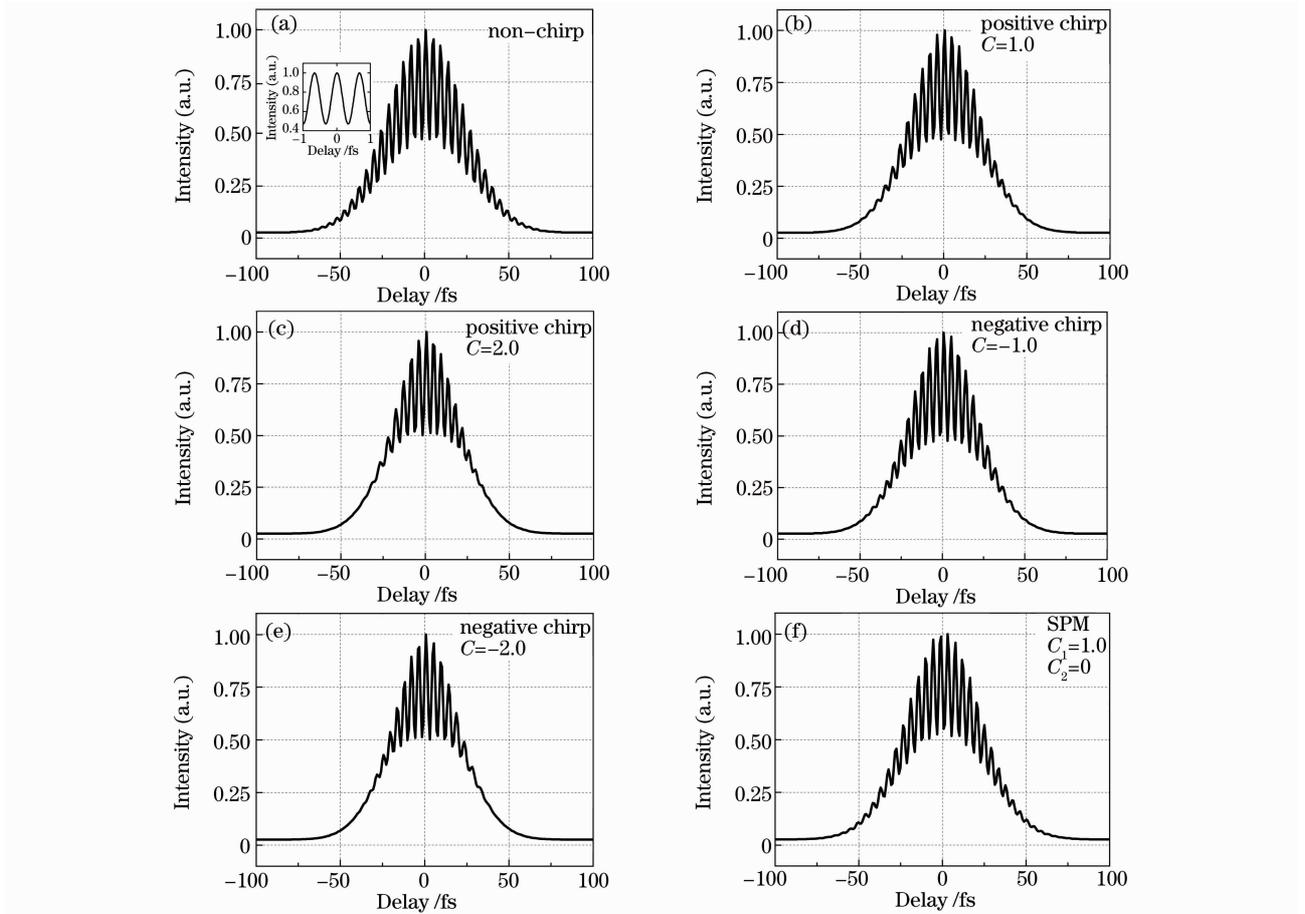


图 1 基频脉冲与其倍频在不同初始状态下产生的三次谐波强度随两脉冲之间延迟的分布

Fig. 1 Intensity distributions of the third harmonic as a function of the temporal delay between the fundamental pulse and its second harmonic

图 1 为基频飞秒脉冲与其倍频在不同初始状态下所产生的三次谐波的强度随时间延迟的分布。此时基频脉冲的参数  $C_1 = 1$ ，因为一般实验中二次谐波的能量较低，因此模拟中忽略了二倍频脉冲的 SPM 现象，即  $C_2 = 0$ 。从图中可以看出，三次谐波的强度随基频脉冲与倍频脉冲之间的时间延迟的增加而减弱，并存在周期性的调制现象，根据第 2 节的理论分析可知，该调制信号的周期约为  $2\pi/(4\omega_0)$ ，对于中心波长在 800 nm 的基频脉冲，由数值模拟所获得的强度调制的周期为 0.667 fs，如图 1(a) 中的插图所示。

图 2 为基频飞秒脉冲与其倍频在不同初始状态下所产生的三次谐波的调制深度随时间延迟的分布，其中实线代表变换极限脉冲（无啁啾）条件下的结果，方格和三角曲线分别表示线性啁啾率  $C = \pm 1.0$  及  $C = \pm 2.0$  的情况，圆圈曲线是 SPM 前提下调制深度的分布，从图中可以看出，在不同的初始状态下调制深度均随时间延迟的增大而减小。

通过对比图 2 中的方格和三角曲线可知，在固

定延迟处线性啁啾率的增加会引起调制深度的减小，具体原因如下：啁啾的存在使得基频脉冲与倍频脉冲的前后沿出现频移现象，其频移量分别为

$$\begin{cases} \delta_1 = -\frac{\partial \varphi_1}{\partial t} = 4 \frac{Ct}{\tau_0^2} \ln 2 \\ \delta_2 = -\frac{\partial \varphi_2}{\partial t} = 8 \frac{C(t-\tau)}{\tau_0^2} \ln 2 \end{cases}, \quad (11)$$

根据(9)式可将光学三倍频和四波混频过程产生的三次谐波的光电场分别表示为

$$\begin{cases} E_{\text{THG}}(t) = A_1^3 \exp\left[-6 \frac{(1+iC)t^2}{\tau_0^2} \ln 2\right] \exp(-i3\omega_0 t) \\ E_{\text{FWM}}(t) = A_1 A_2^2 \exp\left[-8 \frac{(1+iC)(t-\tau)^2}{\tau_0^2} \ln 2 - 2 \frac{(1-iC)t^2}{\tau_0^2} \ln 2\right] \exp(-i3\omega_0 t + i4\omega_0 \tau) \end{cases}. \quad (12)$$

通过(11)式可将两种机制产生的三次谐波中心频率

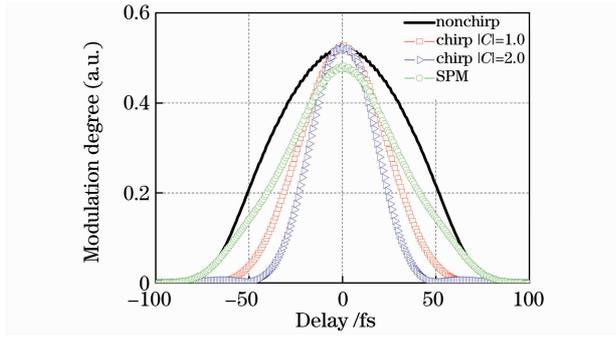


图2 基频脉冲与其倍频在不同初始状态下产生的三次谐波强度信号的调制深度随两脉冲之间延迟的分布

Fig. 2 Modulation distributions of the third harmonic intensity as a function of the temporal delay between the fundamental pulse and its second harmonic pulse

的差值表示为

$$|\delta\omega| = |3\delta_1 - (2\delta_2 - \delta_1)| = 16 \frac{|C_1 t|}{\tau_0^2} \ln 2. \quad (13)$$

将(12)式代入(3)式可得三次谐波的强度分布为

$$S(\tau) \propto 1 + (9\sqrt{0.6}) \left(\frac{b}{a}\right)^2 \left(\frac{A_2}{A_1}\right)^4 \times \exp\left(-3.2 \frac{\tau^2}{\tau_0^2} \ln 2\right) + (6\sqrt{0.75}) \frac{b}{a} \left(\frac{A_2}{A_1}\right)^2 \times \cos(4\omega_0 \tau) \exp\left(-4 \frac{\tau^2}{\tau_0^2} \ln 2\right) \exp\left[-\frac{(\tau_0 \delta\omega)^2}{64 \ln 2}\right]. \quad (14)$$

根据(13)和(14)式可知,在非零延迟处,两种机制所产生的三次谐波的中心频率的差值随啁啾率的增加而变大,这导致它们之间的相干性变差,调制深度降低;而在零延迟处,三次谐波之间的频率差值恒为零[(13)式],因此调制深度不发生变化。

如图2中圆圈曲线所示,SPM也会影响三次谐

波的强度分布。由于SPM效应产生了新的频率成分产生并伴随着能量的转移,根据(10)式,基频飞秒脉冲与其倍频的载波角频率随时间的变化为

$$\begin{cases} \delta_1 = -\frac{\partial \varphi_1}{\partial t} = 8(\ln 2) C_1 \frac{t}{\tau_0^2} \exp\left(-4 \frac{t^2}{\tau_0^2} \ln 2\right) \\ \delta_2 = -\frac{\partial \varphi_2}{\partial t} = 16(\ln 2) C_2 \frac{t - \tau}{\tau_0^2} \times \exp\left[-8 \frac{(t - \tau)^2}{\tau_0^2} \ln 2\right] \end{cases}. \quad (15)$$

模拟中忽略倍频脉冲的SPM,即 $\delta_2 = 0$ 。与线性啁啾情况类似,SPM前提下两种机制产生的三次谐波中心频率的差值为

$$|\delta\omega| = |3\delta_1 - (2\delta_2 - \delta_1)| = 32(\ln 2) \frac{|C_1 t|}{\tau_0^2} \exp\left(-4 \frac{t^2}{\tau_0^2} \ln 2\right). \quad (16)$$

根据(16)式可知,  $|\delta\omega|$  在基频脉冲峰值处为零,由峰值处向两侧逐渐增加,达到最大值后又开始减小并趋向于零,通过对(16)式进行求导运算可知其最大值在  $t = \pm 0.425\tau_0$  处;因此,相对于变换极限脉冲的情况(图2实线),SPM现象使得调制深度随延迟量  $|\tau|$  的增加经历先减小后增大的过程,当延迟量趋向于无穷大时调制深度的分布接近变换极限脉冲的情况。

图3为基频脉冲与倍频脉冲在不同初始状态下所产生的三次谐波的光谱随时间延迟的分布。从图中可以看到,三次谐波特定波长的光谱强度随基频脉冲与倍频脉冲之间延迟的变化而出现周期性的调制,根据理论分析其调制周期应在  $2\pi/(4\omega_0)$  左右;由图可知条纹的分布具有一定的倾斜角,这是波长的变化给调制周期带来的影响,波长增大则周期变长。例如无啁啾情况( $C=0$ ),将(9)式代入(5)式中可得

$$I(\omega_{\text{THG}}, \tau) \propto \frac{1}{3} \exp\left[-\frac{(\omega_{\text{THG}} - 3\omega_0)^2 \tau_0^2}{12 \ln 2}\right] + \frac{36}{5} \exp\left(-3.2 \frac{\tau^2}{\tau_0^2} \ln 2\right) \exp\left[-\frac{(\omega_{\text{THG}} - 3\omega_0)^2 \tau_0^2}{20 \ln 2}\right] + \frac{12}{\sqrt{15}} \exp\left[-\frac{(\omega_{\text{THG}} - 3\omega_0)^2 \tau_0^2}{15 \ln 2}\right] \exp\left(-1.6 \frac{\tau^2}{\tau_0^2} \ln 2\right) \cos[4\omega_0 \tau + 0.8(\omega_{\text{THG}} - 3\omega_0)\tau]. \quad (17)$$

由(17)式可知,调制信号的周期为  $2\pi/[4\omega_0 + 0.8(\omega_{\text{THG}} - 3\omega_0)]$ ,即周期随波长的增加而增大,如图3(a)所示。

对于变换极限脉冲(无啁啾)的情况,光谱的强度在零延迟处最强并随延迟量的增加而减小,光谱宽度随延迟的变化并不明显,并且中心波长不发生

偏移。由图可知,所产生的三次谐波脉冲的中心波长在 267 nm 处,光谱宽度约为 6 nm,因为变换极限的高斯脉冲的半峰全宽  $\Delta\tau$  与其频谱宽度  $\Delta\omega$  满足<sup>[20]</sup>

$$\Delta\tau \cdot \Delta\omega = 2.772, \quad (18)$$

通过计算,所产生的三次谐波的脉冲宽度约为 17 fs。

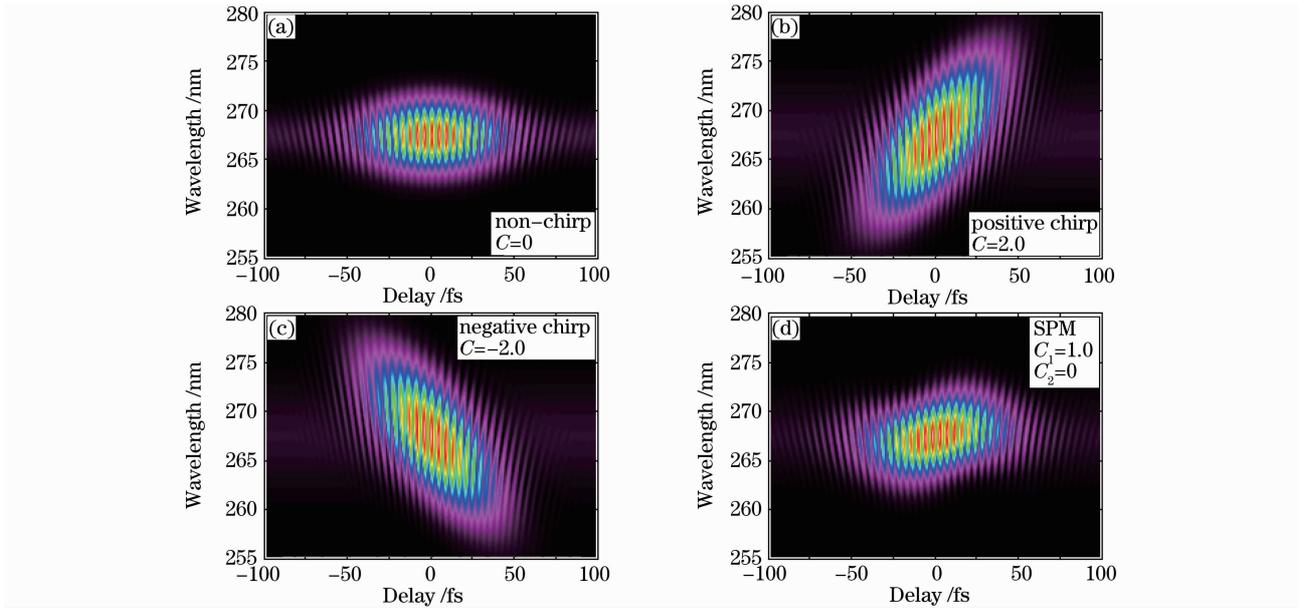


图 3 基频脉冲与其倍频在不同初始状态下产生的三次谐波光谱随两脉冲之间延迟的分布

Fig. 3 Spectral distributions of the third harmonic as a function of the temporal delay between the fundamental pulse and its second harmonic pulse

在线性啁啾的前提下,通过计算可以获得两种机制所产生的三次谐波的频域解析形式,其中光学三倍频过程所产生的三次谐波的频谱强度及其相位分布为

$$\left\{ \begin{array}{l} |\tilde{E}_{\text{THG}}(\omega)| = A_1^3 \tau_0 \sqrt{\frac{\pi}{2 \ln 2}} (9 + 9C^2)^{-0.25} \times \\ \exp\left[-\frac{\tau_0^2 (\omega - 3\omega_0)^2}{24(1 + C^2) \ln 2}\right] \\ \varphi_{\text{THG}} = \frac{C\tau_0^2 (\omega - 3\omega_0)^2}{24(1 + C^2) \ln 2} - \frac{1}{2} \arctan C \end{array} \right. \quad (19)$$

四波混频机制产生的三次谐波的频谱结构为

$$\left\{ \begin{array}{l} |\tilde{E}_{\text{FWM}}(\omega)| = A_1 A_2^2 \tau_0 \sqrt{\frac{\pi}{2 \ln 2}} (25 + 9C^2)^{-0.25} \times \\ \exp\left[-\frac{0.625\tau_0^2 (\omega - 3\omega_0)^2}{(25 + 9C^2) \ln 2}\right] \times \\ \exp\left[-\frac{8C\tau (\omega - 3\omega_0)}{25 + 9C^2} - \frac{5\tau^2 (8 + 9C^2) \ln 2}{(25 + 9C^2) \tau_0^2}\right] \\ \varphi_{\text{FWM}} = 4\omega_0 \tau + \frac{20 + 12C^2}{25 + 9C^2} \tau (\omega_{\text{THG}} - 3\omega_0) + \\ \frac{0.375C\tau_0^2 (\omega - 3\omega_0)^2}{(25 + 9C^2) \ln 2} + \frac{3C\tau^2 (8 + 9C^2) \ln 2}{\tau_0^2 (25 + 9C^2)} - \\ \frac{1}{2} \arctan(0.6C) \end{array} \right. \quad (20)$$

将(19)和(20)式同时代入(7)式即可获得线性啁啾情况下三次谐波的光谱随时间延迟的分布,如图 3(b)和(c)所示。根据(19)式可知,由三倍频过程产生的

三次谐波频谱的强度随啁啾率 $|C|$ 的增大而减小,同时发生频谱展宽;由(20)式可知,四波混频机制产生的三次谐波的频谱强度的分布除了受啁啾影响之外,还与基频脉冲及其倍频之间的时间延迟有关,延迟量越大强度越低;(7)式中的最后一项与强度调制有关,其调制深度正比于 $|\tilde{E}_{\text{THG}}| |\tilde{E}_{\text{FWM}}|$ 。由上面的分析可知,调制深度随啁啾率和时间延迟的增加而减小。

如图 3(b)和(c)所示,线性啁啾情况下产生的三次谐波脉冲的光谱宽度约为 10 nm,其中心波长随着基频脉冲与倍频脉冲之间的时间延迟变化而移动,移动范围为 262~272 nm,这是因为线性啁啾引起了脉冲的载波频移,由(11)式可知,正啁啾情况下基频与倍频脉冲的前沿红移而后沿蓝移,并且倍频脉冲的频移量较大。根据数值模拟的假设条件,在负延迟处( $\tau < 0$ )倍频脉冲超前,基频脉冲前沿与倍频脉冲后沿相遇;在正延迟处( $\tau > 0$ )倍频脉冲落后,基频脉冲后沿与倍频脉冲前沿叠加,所以四波混频过程产生的三次谐波的中心波长在 $\tau < 0$ 区域出现蓝移(相对于 $3\omega_0$ ),而在 $\tau > 0$ 部分发生红移。而根据图 1 所示,在零延迟处三次谐波强度最高(三倍频和四波混频共同产生),其值比背景强度( $\tau = \infty$ ,仅三倍频产生)大 1 个数量级,所以零延迟附近( $-50 \text{ fs} < \tau < 50 \text{ fs}$ )三次谐波主要由四波混频过程产生,其中心波长随延迟 $\tau$ 增加而增大,如图 3(b)所示。通过类似的分析可知,负啁啾的情况下其中心波长随延迟 $\tau$ 的增加而减小,如图 3(c)所示。

图 3(d)为 SPM 的光谱分辨的模拟结果,可以看出三次谐波的中心波长随延迟的变化发生移动,其偏移量从零延迟处开始增大,达到峰值后逐渐减小并随延迟量的增加而趋向于零,在最大偏移量的位置附近光谱有明显的展宽现象[对比图 3(a)];相应地,光谱分布的形状也由变换极限脉冲以及啁啾高斯脉冲条件下的椭圆[图 3(a)~(c)]向菱形变化。根据(15)式可知,当 SPM 系数  $C_1$  的符号为正时,基频脉冲的前沿红移后沿蓝移,并且其频移量从脉冲峰值处开始增加,达到最大值后迅速减弱;模拟中忽略倍频脉冲的 SPM 作用,因此倍频脉冲不发生频移。对三次谐波的中心波长偏移的分析可以参照正啁啾的情况,经分析可知零延迟附近( $-20 \text{ fs} < \tau < 20 \text{ fs}$ )三次谐波脉冲的中心波长随延迟  $\tau$  增加而增大,当延迟量  $|\tau|$  继续增加时其中心波长趋于 267 nm。

#### 4 结 论

数值模拟与分析结果表明,空气中 800 nm 飞秒脉冲与其倍频聚焦后所产生的三次谐波的强度分布主要由两脉冲之间的时间延迟决定,延迟越大强度越弱,并伴有周期约为  $2\pi/(4\omega_0)$  的调制现象;三次谐波脉冲的中心波长可以通过基频脉冲与其倍频的啁啾率以及两脉冲之间的时间延迟来调谐,正啁啾引起中心波长随延迟的红移,负啁啾引起中心波长随延迟的蓝移。同时,基频脉冲的 SPM 也会引起三次谐波中心波长随延迟变大而增大,但是当延迟量较大时中心波长偏移量趋于零。由此可见,通过改变基频脉冲和倍频脉冲之间的时间延迟、啁啾率以及 SPM 的大小可以实现空气中双色场飞秒激光诱导三次谐波的相干控制。

需要指出的是,在本文的模拟过程中没有考虑拉曼效应的影响,因为空气中拉曼效应的特征时间为 125 fs<sup>[21]</sup>,而模拟过程中脉冲宽度以及延迟均低于该时间,所以拉曼效应带来的影响并不大;另外,该方法也可用于基于级联四波混频( $4\omega_0 = 3\omega_0 + 2\omega_0 - \omega_0$ )与和频过程( $4\omega_0 = \omega_0 + \omega_0 + 2\omega_0$ )的四倍频光脉冲的研究,利用所产生的三次谐波代替原四波混频过程中的一个倍频光,同时用倍频光替换三倍频过程中一个基频成分后,可实现对四倍频光的模拟。

#### 参 考 文 献

1 C. G. Durfee III, S. Backus, M. M. Murnane *et al.*.

- Ultrabroadband phase-matched optical parametric generation in the ultraviolet by use of guided waves[J]. *Opt. Lett.*, 1997, **22**(20): 1565~1567
- 2 T. Fuji, T. Horio, T. Suzuki. Generation of 12 fs deep-ultraviolet pulses by four-wave mixing through filamentation in neon gas[J]. *Opt. Lett.*, 2007, **32**(17): 2481~2483
- 3 L. Misoguti, S. Backus, C. G. Durfee *et al.*. Generation of broadband VUV light using third-order cascaded processes[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2001, **87**(1): 013601
- 4 P. Tzankov, O. Steinkellner, J. Zheng *et al.*. High-power fifth-harmonic generation of femtosecond pulses in the vacuum ultraviolet using a Ti:sapphire laser[J]. *Opt. Express*, 2007, **15**(10): 6389~6395
- 5 I. J. Kim, H. T. Kim, C. M. Kim *et al.*. Efficient high-order harmonic generation in a two-color laser field[J]. *Appl. Phys. B*, 2004, **78**(7-8): 859~861
- 6 Peng Yan, Xu Han, Yang Xuan *et al.*. Generation of carrier-envelope-phase stabilized 6 fs ultrashort pulses and their application in high-order harmonic generation[J]. *Chinese J. Lasers*, 2006, **33**(11): 1486~1489  
彭 滢, 徐 哈, 杨 旋 等. 载波包络相位稳定的 6 fs 超快强激光脉冲及其在高次谐波产生中的应用[J]. *中国激光*, 2006, **33**(11): 1486~1489
- 7 Z. Zeng, Y. Cheng, X. Song *et al.*. Generation of an extreme ultraviolet supercontinuum in a two-color laser field[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2007, **98**(20): 203901
- 8 Q. Li, P. Lu, P. Lan *et al.*. Macroscopic effects on the broadband supercontinuum driven by an  $\omega$  and  $\omega/2$  bichromatic laser pulse[J]. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 2009, **42**(16): 165601
- 9 Chen Gao, Chen Jigen, Yang Yujun. Cutoff frequencies analysis of bichromatic high-order harmonic generation spectra[J]. *Acta Optica Sinica*, 2009, **29**(12): 3255~3259  
陈 高, 陈基根, 杨玉军. 双色场激光脉冲谐波谱的截止频率分析[J]. *光学学报*, 2009, **29**(12): 3255~3259
- 10 Du Xiaojie, Zhou Xiaoxin, Li Pengcheng. Theoretical study on single attosecond pulse generated by midinfrared intense laser pulse[J]. *Chinese J. Lasers*, 2010, **37**(5): 1213~1217  
杜小杰, 周效信, 李鹏程. 利用中红外激光产生单个阿秒脉冲的理论研究[J]. *中国激光*, 2010, **37**(5): 1213~1217
- 11 T. Wang, C. Marceau, Y. Chen *et al.*. Terahertz emission from a dc-biased two-color femtosecond laser-induced filament in air[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2010, **96**(21): 211113
- 12 K. Kim, A. J. Taylor, G. Rodriguez. Intense THz supercontinuum generation in femtosecond laser-gas interactions [C]. *Conference on Lasers and Electro-Optics*, 2008, **4-9**: 1~2
- 13 I. Babushkin, S. Skupin, J. Herrmann. Generation of terahertz radiation from ionizing two-color laser pulses in Ar filled metallic hollow waveguides[J]. *Opt. Express*, 2010, **18**(9): 9658~9663
- 14 Y. You, K. Kim. Terahertz generation via two color photoionization in pre-formed plasma [C]. *International Conference on Ultrafast Phenomena*, 2010: ThE3
- 15 Y. Zhang, Y. Chen, S. Xu *et al.*. Portraying polarization state of terahertz pulse generated by a two-color laser field in air[J]. *Opt. Lett.*, 2009, **34**(18): 2841~2843
- 16 Z. Zhou, D. Zhang, Z. Zhao. Terahertz emission of atoms driven by ultrashort laser pulses[J]. *Phys. Rev. A*, 2009, **79**(6): 063413
- 17 Zhou Ping, Fan Dianyuan. Terahertz generation based on optical fibers[J]. *Chinese J. Lasers*, 2010, **37**(3): 708~712  
周 平, 范滇元. 基于光纤的太赫兹产生技术[J]. *中国激光*, 2010, **37**(3): 708~712
- 18 R. Trebino, K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff *et al.*. Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating[J]. *Rev. Sci. Instrum.*,

- 1997, **68**(9): 3277~3295
- 19 B. P. Lathi. Signal Processing and Linear Systems [M]. California, Berkeley Cambridge Press, 1998. 274~276
- 20 C. Rullière. Femtosecond Laser Pulses [M]. New York: Springer Science and Business Media, Inc. , 2005. 202~215
- 21 J.-F. Ripoche, G. Gillon, B. Prade *et al.*. Determination of the time dependence of  $n_2$  in air [J]. *Opt. Commun.*, 1997, **135**(4-6): 310~314