

分子取向及组合场相对相位对 CO 分子产生孤立阿秒脉冲的影响

郭中华

兰州城市学院电子工程学院, 甘肃 兰州 730070

摘要 原子或分子的光电离是强场物理效应的基础。在强场近似下,对于少周期激光脉冲,实验中已证实采用双色激光脉冲场可以增强和相干控制分子的电离。同时,双色场相对相位也是非常重要的参数,借助相位结构的改变来调节分子的电离亦是控制和优化激光与物质相互作用的重要方式。基于此,本文借助 Lewenstein 模型计算了双色激光脉冲场中利用 CO 分子高次谐波获得的阿秒脉冲,分析了不同分子取向向下相对相位对分子电离以及产生阿秒脉冲的影响。结果显示,平台区域的超连续展宽在任意相对相位下均可产生,但随着分子取向和激光场相对相位的变化,电离较低时易获得超短孤立阿秒脉冲。

关键词 非线性光学; 强场近似; 分子的高次谐波; 电离率; 相对相位; 阿秒脉冲

中图分类号 O437 文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL220938

1 引言

孤立阿秒脉冲是研究和控制原子、分子、纳米结构、固体中超快电子动力学行为的重要工具,具有极高的时间分辨率^[1-9]。目前,利用原子或分子气体靶材在强激光场中产生的高次谐波(HHG)获得阿秒脉冲,仍然是实验中获得超短孤立阿秒脉冲的有效手段^[10-12]。

利用原子气体靶材在激光场驱动的每半个周期发射谐波易产生阿秒脉冲链,且阿秒脉冲的强度相对较弱。随着自由分子排列和取向技术的发展^[13],分子产生的 HHG 谱得到了极大延展,同时,分子具有多核自由度,谐波谱表现出了比原子谐波谱更为丰富和复杂的现象^[14-16],从而引起了研究人员的极大关注。CO 分子为非对称结构分子,且具有固有偶极矩,在激光驱动的两个相邻半周期内,激光脉冲与分子取向的不同使得 CO 分子的电离过程有很大差别,因此可以通过 HHG 的调控产生超连续谱,从而获得稳定的孤立阿秒脉冲^[17-18]。CO 分子在实验室中比较容易制备,并且目前的激光技术也很容易对其取向^[19]。Hong 等^[20]利用激光场驱动 CO 分子并叠加 HHG 得到了单个阿秒脉冲, Du 等^[21]用线性极化场驱动 CO 分子获得了单个阿秒脉冲(297 as)输出。

微观上,HHG 的产生可以用半经典的“三步模型”(STM)来解释,即电离、加速和复合过程^[22]。研究表

明,产生的 HHG 谱均呈现出如下特征:最初几阶谐波快速下降,然后出现强度稳定的平台区域,最后在平台区末端某一阶谐波处快速衰减至截止。将平台区域若干阶谐波叠加,即可得到孤立阿秒脉冲。通过调控谐波产生过程来有效延展平台区域或增强谐波的辐射强度,可以获得超强、超短阿秒脉冲。

原子或分子的电离是调制谐波产生过程的关键^[23]。基于单色脉冲场,自适应时间脉冲形状控制方法具有增强或抑制某些原子或分子电离的能力^[24-26]。目前,由一个基本频率及其二次或三次谐波组成的双色激光脉冲场已被证实可以增强和相干控制分子的电离^[27-28],有效延展平台区域和增强谐波辐射强度。此外,最近的研究结果^[29]表明,激光场的载波相位(CEP)与电离过程、HHG 的发射及截止位置等均有很大关联。载波相位的改变会导致场的对称性被破坏,而反对称波形可以控制谐波的发射和有效拓展截止位置。研究人员在实验中已经实现了红外波段载波相位稳定的少周期强脉冲的产生和放大,这种高能红外光源可以将 HHG 截止位置的能量延伸到 400 eV^[30]。若组合场脉冲的相对相位发生改变,同样可以借助激光场波形的调制,获得 X 射线波段的孤立阿秒脉冲。如刘璐等^[31]通过选择 2000 nm 辅助光形成双色场并构造特定的相对相位来控制场的不对称程度,获得了 98 as 的单个阿秒脉冲。

收稿日期: 2022-06-06; 修回日期: 2022-08-08; 录用日期: 2022-09-07; 网络首发日期: 2022-09-20

基金项目: 甘肃省自然科学基金(20JR5RA209)

通信作者: *zhonghua1046@foxmail.com

目前实验室中载波相位稳定的中红外激光大多由 800 nm Ti:sapphire 激光驱动^[32-33],而且倍频场易于实现。基于上述讨论,笔者采用 9 fs、1600 nm 和 5 fs、800 nm 两束激光形成易于实现的双色场驱动 CO 分子,研究了 CO 分子的不同取向以及在双色场全相对相位调控下产生 HHG 对实现较短单个阿秒脉冲发射的影响。

$$\mathbf{d}(t) = i \int_{-\infty}^t dt' \left[\frac{\pi}{\epsilon + i(t-t')/2} \right]^{3/2} \times d^* [\mathbf{p}_{st}(t', t) - \mathbf{A}(t')] \times \{ \mathbf{E}(t') \cdot \mathbf{d} [\mathbf{p}_{st}(t', t) - \mathbf{A}(t')] \times a(t') \exp[-iS_{st}(t', t)] \} + \text{c.c.}, \quad (1)$$

式中: ϵ 为小的正常数; $a(t')$ 为基态振幅; $S_{st}(t', t)$ 为电离和复合跃迁偶极矩; $\mathbf{E}(t)$ 为激光脉冲电场; $\mathbf{A}(t)$ 为相应的矢势; $\mathbf{d}[\mathbf{p} - \mathbf{A}(t')]$ 表示从基态到连续态的偶极跃迁动量,可通过式(2)来计算。

$$\mathbf{d}(\mathbf{p}) = \langle \Psi(\mathbf{r}) | \mathbf{r} | \exp(-i\mathbf{p} \cdot \mathbf{r}) \rangle, \quad (2)$$

式中: $\Psi(\mathbf{r})$ 为 CO 分子的最高占据轨道(HOMO)波函数。在本文计算中,CO 分子的平衡距离为 2.132 a.u.,基态波函数由 GAUSSIAN 程序包结合 Hartree-Fock 方法选用 aug-cc-pVQZ 基组获得,计算得到 HOMO 能量为 -0.55436 a.u.。

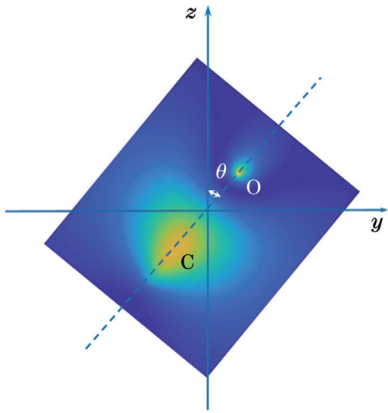


图 1 激光场与 CO 分子取向示意图

Fig. 1 A sketch of laser field and CO molecule orientation

电离和复合跃迁偶极矩 S_{st} 为

$$S_{st}(\mathbf{p}_{st}, t', t) = (t-t')I_p - \frac{1}{2} \mathbf{p}_{st}^2(t', t)(t-t') + \frac{1}{2} \int_{t'}^t dt'' \mathbf{A}(t''), \quad (3)$$

其中,

$$\mathbf{p}_{st}(t', t) = \frac{1}{t-t'} \int_{t'}^t \mathbf{A}(t'') dt'', \quad (4)$$

式中: I_p 为含时电离能。考虑到基态损耗,基态振幅可以表示为 $a(t') = \exp\left[-\int_{-\infty}^{t'} \frac{W(t')}{2} dt'\right]$,其中 $W(t')$ 为电离率,可通过分子的隧道电离理论(MO-ADK)计算得到^[36]。

考虑到极性分子在外场作用下能级的移动(Stark

2 理论方法

基于强场近似,将 Lewenstein 模型^[34]应用于分子体系^[35],采用图 1 所示的实验坐标系进行计算。激光场沿 x 轴方向传播,极化方向为 z 轴方向,分子在 y - z 平面取向,分子轴方向与激光极化方向的夹角为 θ ,则分子在激光场中的含时偶极矩(本文均采用原子单位)为

位移^[37],计算过程中计入 HOMO 的线性 Stark 位移。式(3)中相应的含时电离能为

$$I_p(t) = I_{p0} + \mu_h \cdot \mathbf{E}(t), \quad (5)$$

式中: I_{p0} 为无外场时的电离能; μ_h 为 CO 分子 HOMO 的固有偶极矩,为 1.72 a.u. (4.365 D, 1 D=1 u)^[38]。 μ_h 的计算公式为

$$\mu_h = - \int d\mathbf{r} \mathbf{r} \rho^H(\mathbf{r}), \quad (6)$$

式中: $\rho^H(\mathbf{r})$ 为 HOMO 的电子密度, $\rho^H(\mathbf{r}) = \Psi^*(\mathbf{r})\Psi(\mathbf{r})$ 。

对含时偶极加速度进行傅里叶变换,即可得到 HHG 谱

$$\ddot{d}(\omega) = \left| \frac{1}{T} \int_0^T \ddot{d}(t) \exp(-i\omega t) dt \right|^2, \quad (7)$$

式中: T 和 ω 分别为驱动脉冲的周期和频率。叠加平台区域一定范围内的 HHG 就可以得到阿秒脉冲

$$I(t) = \left| \sum_q f_q \exp(iq\omega t) \right|^2, \quad (8)$$

式中: q 为谐波阶数; f_q 定义为 $f_q = \int \ddot{d}(t) \exp(-iq\omega t) dt$ 。

3 计算结果与讨论

利用上述方法计算 CO 分子在激光场中产生的 HHG。计算中,双色场的激光脉冲分别采用 9 fs、1600 nm、强度为 $I_1 = 2.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 的线性偏振激光脉冲和 5 fs、800 nm、强度为 $I_2 = 1.0 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 的线性偏振激光脉冲。脉冲场强的具体形式为

$$E(t) = E_1 f_1(t) \cos(\omega_0 t + \varphi_1) + E_2 f_2(t) \cos(2\omega_0 t + \varphi_2), \quad (9)$$

式中: E_i ($i=1, 2$) 是激光的峰值强度; ω_0 是激光的角频率; $f_i(t)$ 是激光脉冲包络, $f_i(t) = \exp\left[-2 \ln(2) \left(t/\tau_i\right)^2\right]$, τ_i 为激光脉冲的半峰全宽(FWHM); φ_i 为激光的载波相位。双色场的相对相位可以表示为 $\Delta\varphi = \varphi_2 - \varphi_1$ 。

首先,取双色场的相对相位 $\Delta\varphi = 0$,考虑 CO 分子在激光场中不同取向下的微观电离性质。如图 2 所示,分子轴与激光场取向角度 ($\theta = 0^\circ \sim 180^\circ$) 不同时,电离性质差异很大:当分子轴(即分子固有偶极矩)平

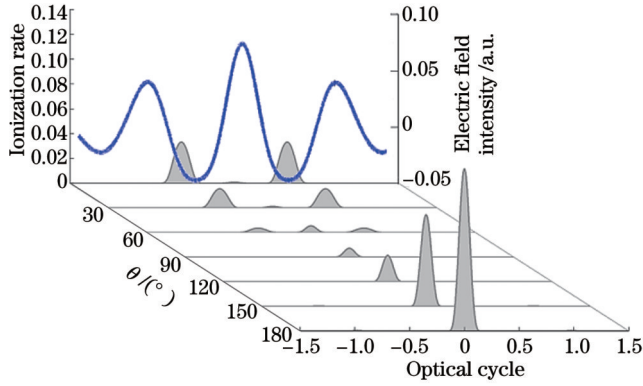
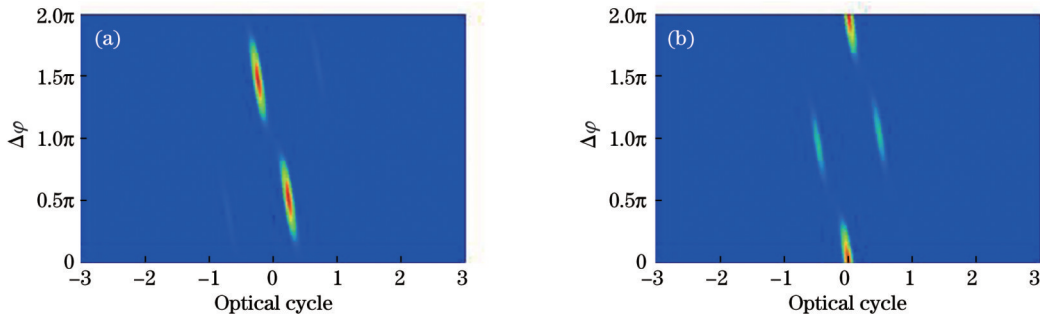


图 2 CO 分子在不同取向下的电离率

Fig. 2 Ionization rates of CO molecules with different orientations

行于激光场时,即 $\theta = 0^\circ$ 时,电离率有所抑制;随着取向角向 90° 转变,电离抑制作用减弱,在相邻两个半周期内 HHG 产生的反对称性被逐渐破坏,电离率减小;在取向角由 90° 逐渐增大到 180° 过程中,电离率又明显增强,直至分子固有偶极矩反平行于激光场时 ($\theta = 180^\circ$),电离率最大。 $\theta = 0^\circ$ 时,激光脉冲中有两个主要的电离峰值,电子在峰值处电离后在接下来的半个周期内加速获得最大动能,导致连续的 HHG 有较大展宽。 $\theta = 180^\circ$ 时,只有一个主要的电离峰值,形成一个标准的电离门,因此平台区域的谐波能形成较大展宽;然而在这种情形下电子仅在随

图 3 不同分子取向向下电离率随相对相位的变化。(a) $\theta = 0^\circ$; (b) $\theta = 180^\circ$ Fig. 3 Variation of ionization rate with relative phase at different molecular orientations. (a) $\theta = 0^\circ$; (b) $\theta = 180^\circ$

为了比较,选取图 3 中相对相位分别为 $0, \pi/2, \pi$ 组合场驱动下的 HHG,在平台区域以不同中心频率为中心叠加谐波,得到相应的阿秒脉冲,如图 4 所示。由图 4(a)可知,当分子取向与外场一致 ($\theta = 0^\circ$) 时,叠加 $150 \sim 190$ 阶谐波,在 $\Delta\varphi = \pi/2$ 下可以获得 132 as 的阿秒脉冲,而在 $\Delta\varphi = \pi$ 和 $\Delta\varphi = 0$ 下可以分别获得 95 as 和 94 as 的超短脉冲,谐波的转换效率在 10^{-8} 量级。由图 4(b)可知,当分子取向与外场相反 ($\theta = 180^\circ$) 时,在 $\Delta\varphi = 0$ 和 $\Delta\varphi = \pi$ 下可以分别获得 132 as 和 114 as 的阿秒脉冲,而在 $\Delta\varphi = \pi/2$ 下叠加 $100 \sim 155$ 阶谐波可以获得 94 as 的超短脉冲,对应谐波的转换效率在 10^{-7} 量级。与单独使用中红外激光驱动相比,采用双色场驱动 CO 分子后,谐波的转换效率提高了 3 个数量级。

后的半周期场中被加速,场强低于最大峰值,故而谐波截止位置较低。同时可以看到, $\theta = 90^\circ$ 时的电离幅度比其他取向角下的电离幅度小得多,因此分子在这种取向下产生的谐波效率更低,后续不再讨论此种情形。

此外,双色场的相对相位与电子的电离过程、谐波的发射有很大关联,如何正确选取合适的相对相位,获得更短、更强的孤立阿秒脉冲是需要讨论的问题。于是,接下来分别考察驱动场和控制场载波相位的改变引起的相对相位的变化对电离的影响,进而分析谐波的产生机制以及获得孤立阿秒脉冲的结果。

1) 驱动场载波相位的改变

令 $\varphi_2 = 0$, 改变驱动场载波相位 φ_1 。图 3(a)、(b) 分别表示分子取向为 $\theta = 0^\circ$ 和 $\theta = 180^\circ$ 时电离率随相对相位 $\Delta\varphi$ 的变化。当 $\theta = 0^\circ$ 时, $\Delta\varphi$ 在 $[0, \pi]$ 之间取值,电离率均呈现为相似的双峰结构,导致 HHG 平台区超连续谱产生; $\Delta\varphi$ 的取值不同,各峰值强度不同; $\Delta\varphi$ 在 $[\pi, 2\pi]$ 之间时电离率具有类似的结构,但截止能量不同。 $\theta = 180^\circ$ 时的情形与 $\theta = 0^\circ$ 时的完全不同。 $\Delta\varphi$ 在 $[0, \pi/2]$ 之间以及 $[3\pi/2, 2\pi]$ 之间取值时,电离率只有一个主要峰值,形成了一个标准的电离门,因此平台区域的谐波能形成较大展宽; $\Delta\varphi$ 在 $[\pi/2, 3\pi/2]$ 之间取值时,由于场的不对称性,电离率呈现出峰值强度接近的双峰结构。

与 $\theta = 0^\circ, \Delta\varphi = 0$ 情形相比, $\theta = 180^\circ, \Delta\varphi = \pi$ 情形下场的对称性恰好相反,因而电离得以增强,谐波效率较高,得到的脉冲强度较大。除了均伴随着一个很弱的阿秒脉冲外,上述两种情形下均获得了脉宽为 94 as 的孤立脉冲, $\theta = 0^\circ$ 和 $\theta = 180^\circ$ 时的最短阿秒脉冲分别发生在电离较小的 $\Delta\varphi = 0$ 和 $\Delta\varphi = \pi/2$ 下。

分析可知,激光场最大场强约为 0.075 a.u., 不会使分子轨道发生较大变形。对于一定取向的极性分子来说,由于分子轨道的不对称性,其本身即为系统诱导门^[37]。当激光场平行于分子固有偶极矩时,电离势增加;当激光场反平行于分子固有偶极矩时,电离势降低。增加或降低电离势将使电子更少或更有可能进入连续态。另外,双色激光脉冲相对相位的不同改变了

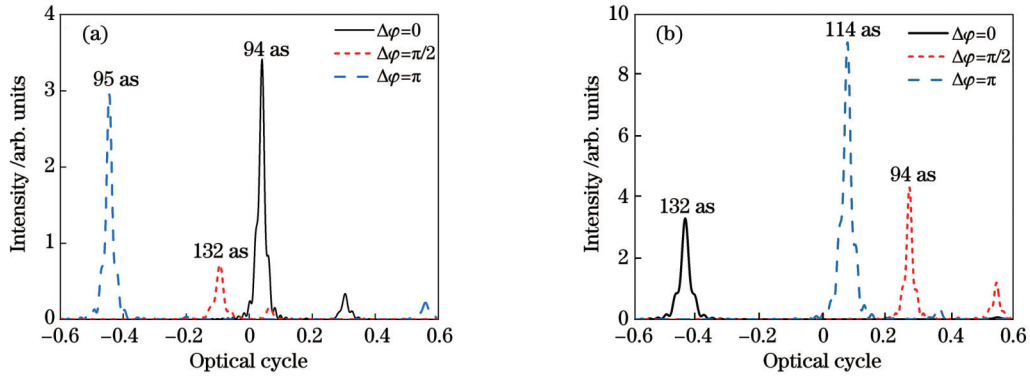


图 4 不同相对相位下的阿秒脉冲。(a) $\theta = 0^\circ$; (b) $\theta = 180^\circ$

Fig. 4 Attosecond pulses with different relative phases. (a) $\theta = 0^\circ$; (b) $\theta = 180^\circ$

合成场波形,波形的不对称程度有效增强或抑制了每半个周期的电离。两种作用的结果使得 $\theta = 0^\circ$ 时 $\Delta\varphi = 0$ 下的电离率以及 $\theta = 180^\circ$ 时 $\Delta\varphi = \pi/2$ 下的电离率较低。若电离率较大,产生 HHG 谱的截止能量就会较小,不利于形成超连续展宽的平台区域,且在半周期之间还会存在干涉效应,因而在电离较小的两种情形下能获得超短阿秒脉冲。

实际上,对于非对称极性分子,研究人员曾提出了四步模型^[39]:分子被电离后,电子先受激形成局部长延时共振态,同时从共振态隧穿并在激光场中加速,最终与基态复合。其中,激光场方向变化产生 HHG 谱时会导致强共振,部分电子由于激发增强被填充到中间态,这部分电子可以直接跃迁回基态。由于不对称分子存在中间共振态,其持续时间和脉冲持续时间接近,因此在更复杂的模型中应考虑由激发态存在导致的电

离和复合步骤的修改。

通过激光场时间描述 HHG 的时频分析可以进一步对阿秒脉冲的发射性质进行分析。图 5 表示分子取向 $\theta = 0^\circ$ 和 $\theta = 180^\circ$ 时,不同相对相位下的谐波谱时频分析。由图 5(a)可以看出,当 $\theta = 0^\circ$ 且 $\Delta\varphi = 0$ 时,平台区域谐波可延续到 250 阶,由长短两个量子轨道贡献,短轨道对应 0.1T 附近时刻的发射峰,长轨道对应 0.3T 附近的发射峰,前一个脉冲较强,后一个则很弱,可认为是单个阿秒脉冲。相比之下,当 $\theta = 0^\circ$ 且 $\Delta\varphi = \pi$ 时,谐波平台区域延伸至 225 阶左右,截止能量相对较低,短轨道对应 -0.3T 附近的脉冲发射,因而强度略小。图 5(c)与图 5(d)所示的发射情况相似,谐波截止位置均在 225 阶左右,发射峰主要来自短轨道的贡献;两者的不同之处在于 $\Delta\varphi = \pi/2$ 时脉冲发射能

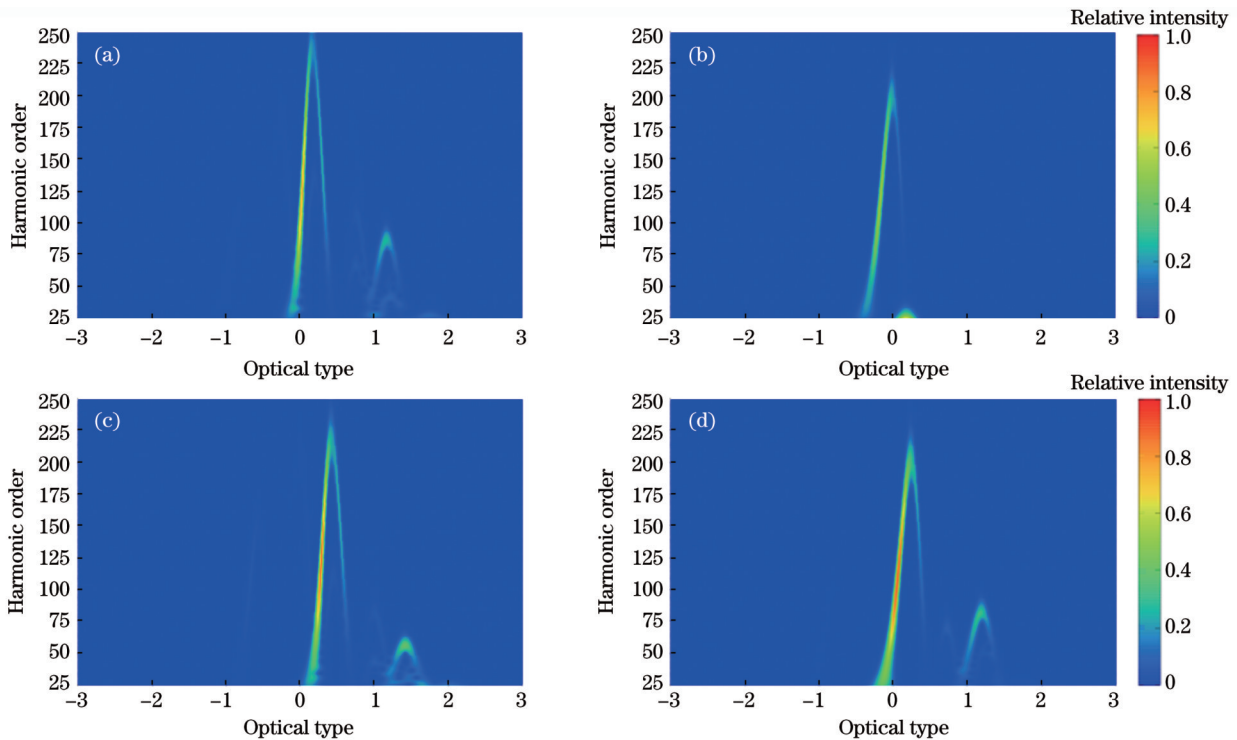


图 5 谐波谱的时频分析。(a) $\theta = 0^\circ, \Delta\varphi = 0$; (b) $\theta = 0^\circ, \Delta\varphi = \pi$; (c) $\theta = 180^\circ, \Delta\varphi = \pi/2$; (d) $\theta = 180^\circ, \Delta\varphi = \pi$

Fig. 5 Time-frequency analyses of harmonics. (a) $\theta = 0^\circ, \Delta\varphi = 0$; (b) $\theta = 0^\circ, \Delta\varphi = \pi$; (c) $\theta = 180^\circ, \Delta\varphi = \pi/2$; (d) $\theta = 180^\circ, \Delta\varphi = \pi$

量随着时间的变化较快,因此阿秒脉冲宽度较短,而 $\Delta\varphi = \pi$ 时的谐波辐射能量较强。同时,在图 5(a)、(c)、(d)中可看到在 1T 附近还有 50~100 阶左右的谐波辐射,这些谐波辐射主要是由半个光学周期电离的电子回到离核较远的地方复合形成的,效率较低。

2) 控制场载波相位的改变

令 $\varphi_1 = 0$,改变控制场的载波相位 φ_2 ,得到了不同

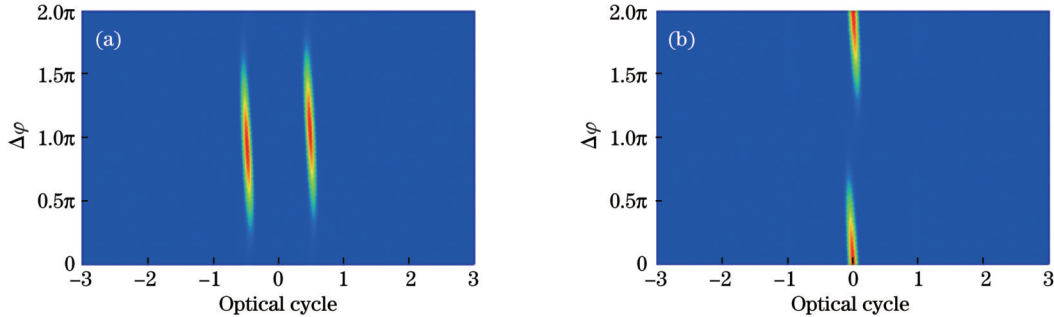


图 6 不同分子取向向下电离率随相对相位的变化。(a) $\theta = 0^\circ$; (b) $\theta = 180^\circ$

Fig. 6 Variation of ionization rate with relative phase under different molecular orientations. (a) $\theta = 0^\circ$; (b) $\theta = 180^\circ$

基于前文的分析,选取图 6 中 $\theta = 0^\circ$ 、 $\Delta\varphi = 0$ 及 $\theta = 180^\circ$ 、 $\Delta\varphi = \pi$ 组合场驱动下的 HHG 在平台区域以不同中心频率为中心叠加谐波,得到相应的阿秒脉冲,如图 7 所示。当分子取向与外场一致且 $\Delta\varphi = 0$ 时,叠加 125~175 阶谐波可以获得 94 as 的孤立脉冲,对应谐波的转换效率在 10^{-8} 量级;当分子取向与外场相反且 $\Delta\varphi = \pi$ 时,叠加 100~135 阶谐波可以获得 101 as 的阿秒脉冲,对应谐波的转换效率在 10^{-7} 量级。与 $\theta = 0^\circ$ 相比, $\theta = 180^\circ$ 时的电离增强,谐波效率高,因而得到的脉冲强度较大。综上,对于本文给出的双色场方案,即使不考虑谐波的传播效应,也能产生孤立的阿秒脉冲。

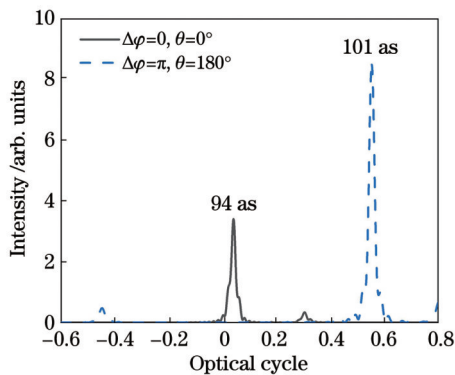


图 7 不同分子取向和不同相对相位下的阿秒脉冲

Fig. 7 Attosecond pulses at different molecular orientations and relative phases

由图 4 和图 7 可知,在不同的分子取向,改变相对相位均可以获得脉宽为 94 as 的孤立脉冲,最短阿秒脉冲发生在电离较小的 $\theta = 0^\circ$ 、 $\Delta\varphi = 0$ 及 $\theta = 180^\circ$ 、 $\Delta\varphi = \pi/2$ 两种情形下。这两种情形都是在外场中心极大后的下降沿发射的,场强随时间延长而迅速降低,

分子取向($\theta = 0^\circ$ 和 $\theta = 180^\circ$)下电离率随相对相位 $\Delta\varphi$ 的变化,如图 6(a)和图 6(b)所示。由图 6(a)可以看出,当 $\theta = 0^\circ$ 时, $\Delta\varphi$ 在 $[0, 2\pi]$ 之间取值,电离率均呈现为与图 3(a)类似的双峰结构。不同的 $\Delta\varphi$ 取值主要影响各峰值强度。由图 6(b)可以看出,当 $\theta = 180^\circ$ 时,相对相位 $\Delta\varphi$ 在 $[0, 2\pi]$ 之间取值,电离率呈现出一个主要峰值。

压缩了发射时间,使得阿秒脉冲宽度降低。这与原子发射阿秒脉冲结论一致^[40]。

4 结 论

本文基于强场近似分析了 CO 分子在双色激光场作用下产生的 HHG 的分子取向以及组合场相对相位变化对阿秒脉冲产生的影响。结果表明:采用少周期双色激光脉冲驱动 CO 分子可在任意相对相位下获得超连续展宽的平台区域。

在改变驱动场相位的情况下,当分子取向与激光场极化方向一致($\theta = 0^\circ$)且相对相位 $\Delta\varphi = 0$ 时,在平台区域叠加若干次谐波可以得到持续约 94 as 的孤立阿秒脉冲(情形 1);当分子取向变为与激光场极化方向相反($\theta = 180^\circ$)时,电离增强,且在相对相位 $\Delta\varphi = \pi/2$ 的情形下,在平台区域内叠加若干次谐波可以得到 94 as 的孤立脉冲。

在改变控制场相位的情形下,当 $\theta = 0^\circ$ 时,电子发射的连续性较好,电离率随着相对相位增大而单调增加,且在相对相位 $\Delta\varphi = 0$ 的情形下有较低的电离率,获得的阿秒脉冲结果与上述情形 1 相同;当 $\theta = 180^\circ$ 时, $\Delta\varphi = 0$ 情形下的电离率最大,电离率随着相对相位的增大而逐渐减小,且在 $\Delta\varphi = \pi$ 时电离率最小,此时叠加平台区域内的若干次谐波可以得到 101 as 的孤立脉冲。

因此,当分子取向与激光场极化方向取不同方位时,调控组合场的相对相位会导致电子的电离率有较大不同,电离率越小,电子在激光场反向后跃迁回基态辐射 HHG 时越易形成超连续展宽的平台区域,脉冲发射能量随时间变化得越快,越有利于超短阿秒脉冲的形成。

参 考 文 献

- [1] Goulielmakis E, Loh Z H, Wirth A, et al. Real-time observation of valence electron motion[J]. *Nature*, 2010, 466(7307): 739-743.
- [2] Li M, Xie H, Cao W, et al. Photoelectron holographic interferometry to probe the longitudinal momentum offset at the tunnel exit[J]. *Physical Review Letters*, 2019, 122(18): 183202.
- [3] Baker S, Robinson J S, Haworth C A, et al. Probing proton dynamics in molecules on an attosecond time scale[J]. *Science*, 2006, 312(5772): 424-427.
- [4] He L X, Zhang Q B, Lan P F, et al. Monitoring ultrafast vibrational dynamics of isotopic molecules with frequency modulation of high-order harmonics[J]. *Nature Communications*, 2018, 9: 1108.
- [5] Li X H, Liu W W, Song Y L, et al. Enhancement of the second harmonic generation from WS₂ monolayers by cooperating with dielectric microspheres[J]. *Advanced Optical Materials*, 2019, 7(3): 1801270.
- [6] Wei W J, Jiang X X, Dong L Y, et al. Regulating second-harmonic generation by van der Waals interactions in two-dimensional lead halide perovskite nanosheets[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2019, 141(23): 9134-9139.
- [7] Nepl S, Ernstorfer R, Cavalieri A L, et al. Direct observation of electron propagation and dielectric screening on the atomic length scale[J]. *Nature*, 2015, 517(7534): 342-346.
- [8] Li L, Lan P F, Zhu X S, et al. Reciprocal-space-trajectory perspective on high-harmonic generation in solids[J]. *Physical Review Letters*, 2019, 122(19): 193901.
- [9] 魏志义, 钟诗阳, 贺新奎, 等. 阿秒光学进展及发展趋势[J]. *中国激光*, 2021, 48(5): 0501001.
Wei Z Y, Zhong S Y, He X K, et al. Progresses and trends in attosecond optics[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2021, 48(5): 0501001.
- [10] Kaldun A, Blattermann A, Stooß V, et al. Observing the ultrafast buildup of a Fano resonance in the time domain[J]. *Science*, 2016, 354(6313): 738-740.
- [11] Pertot Y, Schmidt C, Matthews M, et al. Time-resolved X-ray absorption spectroscopy with a water-window high-harmonic source[J]. *Science*, 2017, 355: 264.
- [12] 戴晨, 汪洋, 缪志明, 等. 基于飞秒激光与物质相互作用的高次谐波产生及应用[J]. *激光与光电子学进展*, 2021, 58(3): 0300001.
Dai C, Wang Y, Miao Z M, et al. Generation and application of high-order harmonics based on interaction between femtosecond laser and matter[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2021, 58(3): 0300001.
- [13] Stapelfeldt H, Seideman T. Colloquium: aligning molecules with strong laser pulses[J]. *Reviews of Modern Physics*, 2003, 75(2): 543-557.
- [14] Bian X B, Bandrauk A D. Probing nuclear motion by frequency modulation of molecular high-order harmonic generation[J]. *Physical Review Letters*, 2014, 113(19): 193901.
- [15] Zhang C P, Xia C L, Jia X F, et al. Multiple rescattering processes in high-order harmonic generation from molecular system[J]. *Optics Express*, 2016, 24(18): 20297-20308.
- [16] Feng L Q, Li W L. Nuclear signature effect on spatial distribution of molecular harmonic in the presence of spatial inhomogeneous field[J]. *Laser Physics*, 2017, 27(1): 016002.
- [17] Lan P F, Lu P X, Cao W, et al. Attosecond ionization gating for isolated attosecond electron wave packet and broadband attosecond xuv pulses[J]. *Physical Review A*, 2007, 76(5): 051801.
- [18] Hong W Y, Li Y H, Lu P X, et al. Control of quantum paths in the multicycle regime and efficient broadband attosecond pulse generation[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2008, 25(10): 1684-1689.
- [19] De S, Znakovskaya I, Ray D, et al. Field-free orientation of CO molecules by femtosecond two-color laser fields[J]. *Physical Review Letters*, 2009, 103(15): 153002.
- [20] Hong W Y, Zhang Q B, Zhu X S, et al. Isolated attosecond pulse generation with the stability against the carrier-envelope phase shift and with the high-beam quality from CO gas medium[J]. *Optics Express*, 2011, 19(27): 26174-26185.
- [21] Du H C, Luo L Y, Wang X S, et al. Generating isolated elliptically polarized attosecond pulses from oriented CO gas medium using linearly polarized driving pulses[J]. *Physical Review A*, 2012, 86(1): 013846.
- [22] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization[J]. *Physical Review Letters*, 1993, 71(13): 1994-1997.
- [23] 刘运全, 韩猛. 强激光场原子隧道电离的研究新进展[J]. *光学学报*, 2021, 41(1): 0102001.
Liu Y Q, Han M. Recent research advances in strong-field atomic tunneling ionization[J]. *Acta Optica Sinica*, 2021, 41(1): 0102001.
- [24] Castro A, Räsänen E, Rubio A, et al. Femtosecond laser pulse shaping for enhanced ionization[J]. *EPL (Europhysics Letters)*, 2009, 87(5): 053001.
- [25] Plenge J, Wirsing A, Wagner-Drebenstedt I, et al. Coherent control of the ultrafast dissociative ionization dynamics of bromochloroalkanes[J]. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 2011, 13(19): 8705-8714.
- [26] Shvetsov-Shilovski N I, Madsen L B, Räsänen E. Suppression of strong-field ionization by optimal pulse shaping: application to hydrogen and the hydrogen molecular ion[J]. *Physical Review A*, 2015, 91(2): 023425.
- [27] Bejot P, Karras G, Billard F, et al. Harmonic generation and nonlinear propagation: when secondary radiations have primary consequences[J]. *Physical Review Letters*, 2014, 112(20): 203902.
- [28] Jang D, Schwartz R M, Woodbury D, et al. Efficient terahertz and Brunel harmonic generation from air plasma via mid-infrared coherent control[J]. *Optica*, 2019, 6(10): 1338-1341.
- [29] Betsch K J, Johnson N G, Bergues B, et al. Controlled directional ion emission from several fragmentation channels of CO driven by a few-cycle laser field[J]. *Physical Review A*, 2012, 86(6): 063403.
- [30] Cousin S L, Silva F, Teichmann S, et al. High-flux table-top soft X-ray source driven by sub-2-cycle, CEP stable, 1.85- μm 1-kHz pulses for carbon K-edge spectroscopy[J]. *Optics Letters*, 2014, 39(18): 5383-5386.
- [31] 刘璐, 赵松峰, 李鹏程, 等. 激光的组会场相对相位对 CO 分子产生阿秒脉冲的影响[J]. *中国激光*, 2013, 40(9): 0902002.
Liu L, Zhao S F, Li P C, et al. Influence of relative carrier envelope phases on attosecond pulse generation from CO molecule exposed to a combined field of lasers[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2013, 40(9): 0902002.
- [32] Chini M, Wang X W, Cheng Y, et al. Coherent phase-matched VUV generation by field-controlled bound states[J]. *Nature Photonics*, 2014, 8(6): 437-441.
- [33] Dubrouil A, Hort O, Catoire F, et al. Spatio-spectral structures in high-order harmonic beams generated with Terawatt 10-fs pulses[J]. *Nature Communications*, 2014, 5: 4637.
- [34] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, et al. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields[J]. *Physical Review A*, 1994, 49(3): 2117-2132.
- [35] Zhou X Q, Tong X M, Zhao Z X, et al. Alignment dependence of high-order harmonic generation from N₂ and O₂ molecules in intense laser fields[J]. *Physical Review A*, 2005, 72(3): 033412.
- [36] Tong X M, Zhao Z X, Lin C D. Theory of molecular tunneling ionization[J]. *Physical Review A*, 2002, 66: 033402.
- [37] Etches A, Madsen L B. Extending the strong-field approximation of high-order harmonic generation to polar molecules: gating mechanisms and extension of the harmonic cutoff[J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2010, 43(15): 155602.
- [38] Abu-Samha M, Madsen L B. Photoelectron angular distributions from polar molecules probed by intense femtosecond lasers[J]. *Physical Review A*, 2010, 82(4): 043413.

- [39] Bandrauk A. Nonadiabatic molecular high-order harmonic generation from polar molecules: spectral redshift[J]. *Physical Review A*, 2011, 83(4): 041403.
- [40] Li P C., Chu S I. Effects of macroscopic propagation on spectra of

broadband supercontinuum harmonics and isolated-attosecond-pulse generation: coherent control of the electron quantum trajectories in two-color laser fields[J]. *Physical Review A*, 2012, 86(1): 013411.

Effects of Molecular Orientation and Relative Phase of Combined Fields on Generation of Isolated Attosecond Pulses Using CO Molecules

Guo Zhonghua

School of Electronic Engineering, Lanzhou City University, Lanzhou 730070, Gansu, China

Abstract

Objective Isolated attosecond pulses provide an extremely high temporal resolution for studying ultrafast electron dynamics. The high-order harmonic generation (HHG) process by atomic or molecular gas targets remains the most efficient method for obtaining ultrashort isolated attosecond pulses in experiments. The harmonic spectra of molecular gas targets can be significantly extended and exhibit abundant and complex phenomena that merit attention and research. Because of the intrinsic dipole moment of asymmetric structured molecules such as CO, variations in molecular orientation in the laser field cause the ionization process to be very different, which can be used to modulate HHG and produce a supercontinuum spectrum. Furthermore, a two-color few-cycle laser drive can effectively enhance and control the ionization of molecules in the experiment, allowing the platform area to be extended and the intensity of harmonic radiation to be increased. The relative phase structure of the two-color field can be changed to further control and optimize its interaction with molecules. Based on the foregoing, this study investigates the effects of CO orientation differences and full relative phase modulation of two-color fields on achieving ultrashort isolated attosecond pulses.

Methods This study calculates the attosecond pulse obtained by driving CO molecules to generate high-order harmonics in a two-color laser field using the extended Lewenstein model to the oriented molecule CO. The two-color line polarization fields are used in the calculations. One has a pulse duration of 9 fs, peak intensity of 2.0×10^{14} W/cm², and wavelength of 1600 nm; the corresponding values of the other are 5 fs, 1.0×10^{13} W/cm², and 800 nm, respectively. First, the microscopic ionization properties of CO molecules in the laser field with different orientations (molecular axis and laser field orientation angle from 0° to 180°) are considered in the case of a two-color laser field with a relative phase of 0. Then, after evaluating the intensity, conversion efficiency, and supercontinuum of the plateau region under different conditions, the orientation angles 0° and 180° are chosen as representatives for the next step of the analysis. The effect of the change in relative phase on the molecular ionization is then induced at different molecular orientations by varying the carrier phase of the driving and control fields separately to analyze the mechanism of harmonic generation and the results for isolated attosecond pulses.

Results and Discussions Any relative phase can cause supercontinuum broadening of the harmonic plateau region at different molecular orientations. When the driving field's carrier-envelope phase changes and the molecular orientation is 0°, the ionization rates at different relative phases exhibit a double-peaked structure, with the intensity of each peak varying. At 0 and π , the ionization rate is the lowest (Fig. 3). When the molecular orientation is 180°, the ionization rate has a single-peak structure between the relative phases $[0, \pi/2]$, whereas between $[\pi/2, \pi]$, it has a double-peak structure with similar peak intensities, and the lowest ionization rate occurs at $\pi/2$. When the ionization rate is high, the cut-off energy for generating the HHG spectrum is low, and interference effects exist between the half-cycles, which makes acquiring ultrashort attosecond pulses difficult. This issue can be overcome by changing the carrier-envelope phase of the control field to yield shorter isolated attosecond pulses at a lower ionization rate (Fig. 6). As a result, ultrashort, isolated attosecond pulses can be easily obtained at lower ionization levels without constructing a specific relative phase to control the extent of field asymmetry (Fig. 4 and Fig. 7).

Conclusions By driving CO molecules, two-color few-cycle laser pulses can achieve supercontinuum broadening of the harmonic plateau at any relative phase. Lower ionization rates are observed when the driving field's carrier-envelope phase shifts at molecular orientations of 0° and 180° with relative phases 0 and $\pi/2$, respectively. As a result, the plateau region's many harmonics were superimposed to produce isolated attosecond pulses with a duration of 94 as. Modulating the relative phase of the combined field causes a significant change in the ionization of electrons when the molecule orientation and laser field polarization direction adopt distinct orientations, making it simpler to construct a super continuous broadening plateau region with lower ionization rates. That is, the pulse emission energy can change more quickly over time, making it easier to obtain ultrashort attosecond pulses.

Key words nonlinear optics; strong field approximation; molecular high-order harmonic generation; ionization rate; relative phase; attosecond pulse