

双色场诱导气体产生相干可控的四次谐波

吕志忠 张天祺 钟功祥

Coherently controlled fourth harmonic generation in gases induced by a two-color field

Lü Zhi-Zhong Zhang Tian-Qi Zhong Gong-Xiang

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 174204 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.174204

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.174204>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I17>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

太赫兹偶数分束器设计与公差分析

Design of a terahertz even splitter and its tolerance analysis

物理学报.2015, 64(15): 154212 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.154212>

基于太赫兹光非对称解复用器结构的低开关能量、高线性度全光采样门实验研究

Experimental study on a low switching energy and high-linearity all-optical sampler based on terahertz optical asymmetric demultiplexer

物理学报.2015, 64(15): 154213 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.154213>

基于太赫兹时域光谱技术的伪色彩太赫兹成像的实验研究

False-color terahertz imaging system based on terahertz time domain spectroscopy

物理学报.2015, 64(11): 114206 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.114206>

应用于精密振荡器的石英晶体温度特性研究

Study of quartz temperature characteristics for precise oscillator applications

物理学报.2013, 62(1): 014205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.014205>

PbI₂ 对远红外 Te 基硫系玻璃光学性能的影响

Effect of PbI₂ on optical properties of Te-based far infrared transmitting chalcogenide glasses

物理学报.2011, 60(11): 114212 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.60.114212>

双色场诱导气体产生相干可控的四次谐波*

吕志忠^{1)†} 张天祺²⁾ 钟功祥¹⁾

1)(西南石油大学机电工程学院, 成都 610050)

2)(国防科技大学理学院, 长沙 410073)

(2014年9月11日收到; 2015年3月25日收到修改稿)

利用钛宝石飞秒激光器输出的基频脉冲 ω 及其倍频脉冲 2ω 所构成双色场作用空气, 实验中检测到了中心波长处于真空紫外波段的四阶谐波. 在气体未发生电离的情况下, 四次谐波强度对双色场的能力依赖关系显示其产生是参量过程 $2\omega + \omega + \omega \rightarrow 4\omega$ 的贡献. 当气体发生电离, 四次谐波强度与双色场相对相位有关, 可通过双色场相干控制. 实验研究了四次谐波对双色场相位的依赖性以及与太赫兹波的关联性, 其结果与数值模拟结果相符, 分析发现当气体发生电离时四次谐波的产生过程存在太赫兹辐射 Ω_{THz} 的参与, 是参量过程 $2\omega + 2\omega \pm \Omega_{\text{THz}} \rightarrow 4\omega$ 和 $2\omega + \omega + \omega \rightarrow 4\omega$ 的共同贡献.

关键词: 真空紫外, 双色场, 四次谐波, 太赫兹

PACS: 42.65.An, 42.70.Ce, 42.72.Bj, 51.90.+r

DOI: 10.7498/aps.64.174204

1 引言

利用双色飞秒激光场作用气体, 可有效的提高激光非线性作用效率, 增强太赫兹波^[1], 三次谐波^[2]、四次谐波^[3]等阈下谐波以及高次谐波^[4]的辐射强度. 通过对双色场相对相位的控制, 还可实现对这些电磁辐射强度^[1-4]甚至于偏振^[5]的操控. 太赫兹波对大多数有机分子具有着独特的“指纹”识别能力^[6], 当前已被广泛的应用于太赫兹光谱分析领域. 阈下谐波谱中对应的紫外线以及真空紫外线则对材料加工、环境处理等领域有着重要的应用价值. 近年来, 人们对于双色激光场电离气体产生太赫兹波以及高次谐波研究较多, 其产生机理被统一为激光场作用下连续态电子波包与母核的再散射^[7,8]. 通过对双色场相对相位, 可实现对原子连续态波包的操控, 从而实现对高次谐波和太赫兹辐射的相干控制. 对于三次谐波、四次谐波等阈下谐波的产生, 则往往看作是束缚态间的跃迁^[9], 四波混频过程对三次谐波的贡献起着主要作用^[10], 刘

岩等通过理论和实验对三次谐波随双色场相对相位的变化进行了研究, 证实三次谐波强度随双色场相对相位的变化是两个参量过程 $\omega + \omega + \omega \rightarrow 3\omega$ 和 $2\omega + 2\omega - \omega \rightarrow 3\omega$ 干涉的结果^[11,12]. 与三次谐波类似的, 双色场中四次谐波的产生通常也被认为是一个四波混频的过程^[13], 其参量关系可能是 $2\omega + \omega + \omega \rightarrow 4\omega$ 或者 $3\omega + 2\omega - \omega \rightarrow 4\omega$. Ganeev等通过实验得到了双色场中四次谐波强度与激光强度之间的关系为 $I_{4\omega} \propto I_{\omega}^{2.3}$, $I_{4\omega} \propto I_{\omega}^{0.82}$, 认为 $2\omega + \omega + \omega \rightarrow 4\omega$ 是占主要的过程, 但四次谐波产生的具体机理并不明确^[14]. 由于双色场电离气体所产生的大多数电磁辐射的强度都随双色场相对相位变化, 在Zhang等对太赫兹辐射机理的研究中^[7,8], 通过实验对太赫兹波和高次谐波进行同步测量, 二者对双色场相对相位的依赖关系成为研究太赫兹辐射机理的有效手段. 该方法显然可以在研究其他电磁辐射的过程中推广, 通过电磁辐射的强度与双色场相对相位的关系来揭示其产生机理.

本文通过实验研究了飞秒激光脉冲与其倍频脉冲合成的双色场激光作用气体产生四次谐波的

* 西南石油大学“石油天然气装备”教育部重点实验室基金资助的课题.

† 通信作者. E-mail: nclvzz@163.com

物理机理, 得到了气体无电离时四次谐波的强度与基频光和倍频光强度的依赖关系, 观察到气体电离时四次谐波强度随双色场相对相位变化出现的弱调制现象, 通过与太赫兹波的同步测量, 得到了四次谐波强度对双色场相对相位的依赖关系, 分析得到了四次谐波的产生机理.

2 实验及讨论

实验方案如图 1 所示, 实验中采用一台重复频率 10 kHz, 单脉冲能量 0.3 mJ, 脉宽 50 fs, 中心波长 800 nm 的商业飞秒放大级作为光源, 利用 β -BBO 对基频光倍频来获得中心波长 400 nm 的倍频光. 由于 ω 和 2ω 光通过 BBO 晶体及其他光学镜片群速度不一样, 一阶色散将使得两束光在时间上分开, 针对这里的双色场, 当光学元件为融石英材料时, 基频光和倍频光时间相差一个 ω 光周期(约 2.67 fs)所对应的厚度为 0.017 mm. 对 BBO 晶体而言, 还需要考虑其双折射效应. 这里我们倍频时采用的是一类相位匹配 ($o + o \rightarrow e$), 晶体切割角度为 29.2° , β -BBO 晶体的厚度为 0.3 mm, 所引起的两束激光时间差约为 37 fs, 波片、光楔等器件将进一步使得基频光和倍频光脉冲包络在时间上完全分开. 实验中我们采用了一个双色的 Mach-Zehnder 干涉仪来补偿两束光的光程差, 这样做的好处是可以对每束光的光强和偏振单独的控制. 通过在干涉仪其中的一臂放置小角度光楔, 可精细的改变该段光程, 获得阿秒量级的时间分辨, 从而精确的控制基频光 ω 与倍频光 2ω 的相对相位; 同时, Mach-Zehnder 干涉仪能够有效削弱镜片平动对光路带来的影响, 使实验中两束光的相位差获得较高的稳定度. 在对两束激光时间重合的检验上, 我们采用的 Chudinov 的方法^[15], 即在干涉仪出来的双色激光上再加一块 β -BBO 对 ω 光倍频, 检验新产生的 2ω 光与原来的 2ω 能否发生干涉, 如果能够看到干涉现象, 则原来双色场中 ω 光和 2ω 光在时间上有重叠(忽略第二块 β -BBO 引入的色散), 通过观察干涉条纹的形状及条纹的宽度, 可使得两束光波阵面能够很好的重合. 为了有效的提高双色场偏振纯度, 在 Mach-Zehnder 干涉仪后通过一宽带线栅偏振片来获得偏振方向同向的双色场. 通过干涉仪两臂上的半波片, 可方便的实现对双色激光场中基频光和倍频光光强的调节. 时间和空间重合的基频光和倍

频光经一抛物面镜聚焦作用气体产生太赫兹波、四次谐波等电磁辐射, 其中太赫兹波通过一对抛物面镜收集, 经硅片滤除激光后汇聚于一热释电探测器进行检测, 四次谐波由于光束发散角小, 通过抛物面镜上的一个小孔与太赫兹波分离, 经 200 nm 窄带滤波片滤波后由光电管进行检测.

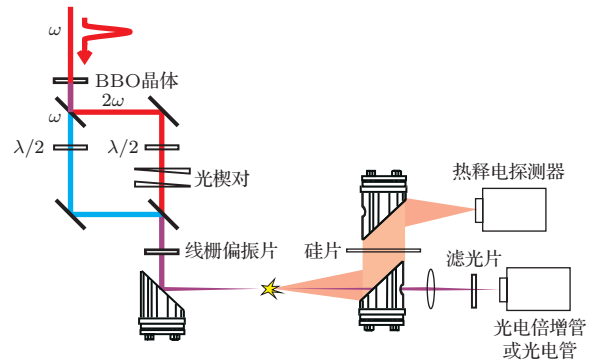


图 1 实验光路图

Fig. 1. The experimental setup.

图 2 给出了四次谐波强度随基频光及倍频光单脉冲能量的变化, 当改变基频光时, 倍频光设定为 $5 \mu\text{J}$, 当改变倍频光时, 基频光设定为 $20 \mu\text{J}$. 图中分别对基频光给出了单脉冲能量低于 $40 \mu\text{J}$, 倍频光单脉冲能力低于 $20 \mu\text{J}$ 时四次谐波强度变化的拟合曲线. 如图所示, 在基频光和倍频光单脉冲能量较低时, 四次谐波与双色场强度关系很好的满足 $I_{4\omega} \propto I_{\omega}^2$, $I_{4\omega} \propto I_{2\omega}$, 此时认为 $2\omega + \omega + \omega \rightarrow 4\omega$ 过程对四次谐波的产生占主要贡献是合理的. 随着基频光或倍频光单脉冲能量的增加, 四次谐波与双色场强度关系均出现了偏离. 对倍频光而言, 在我们实验中可改变的单脉冲能量范围内, 四次谐波的实际产额随着倍频光光强增加要比拟合值偏大. 对基频光而言, 当单脉冲能量达到 $50 \mu\text{J}$, 此时双色场焦点处出现了较明显的电离现象, 此时四次谐波实际能量与拟合曲线出现了较大的偏离. 一方面气体电离的出现可能会使得四次谐波产额降低, 另一方面克尔效应和等离子体散焦等因素会使得激光聚焦情况发生变化, 引起四次谐波实际能量与理论拟合曲线的偏离. 值得一提的是, 实验结果显示四次谐波的产额随基频光光强的增加并不是平滑变化的, 而是出现了小幅度的调制.

保持基频光和倍频光单脉冲能量分别为 $80 \mu\text{J}$, $40 \mu\text{J}$, 通过实验中移动 Mach-Zehnder 干涉仪中的光楔改变基频光与倍频光的延时, 图 3 给出了

同步测量得到的太赫兹波与四次谐波强度的变化。对这两种电磁辐射而言, 强度都随着基频光与倍频光延时发生变化, 包络形状大致相同, 当基频光与倍频光在时间上不重合时, 强度都变为零, 这反映出太赫兹波和四次谐波的产生, 主要是基频光和倍频光共同作用的贡献, 单独的基频光或倍频光都不产生这两种电磁辐射。同时, 当基频光和倍频光延时变化即相对相位发生变化时, 太赫兹和四次谐波在强度上都表现出周期性的调制, 图3子图中给出了归一化之后的太赫兹和四次谐波强度调制随双色场延时的变化, 可以看出, 二者在周期是相同的, 其周期为0.67 fs, 位相上对应延时差为0.13 fs, 约 0.2π 。

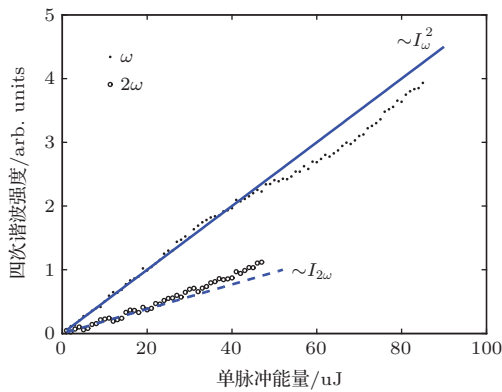


图2 固定相对相位下四次谐波强度随基频光、倍频光强度的变化
Fig. 2. The intensity dependency of the fourth harmonic on the fundamental and second harmonic at a fixed relative phase.

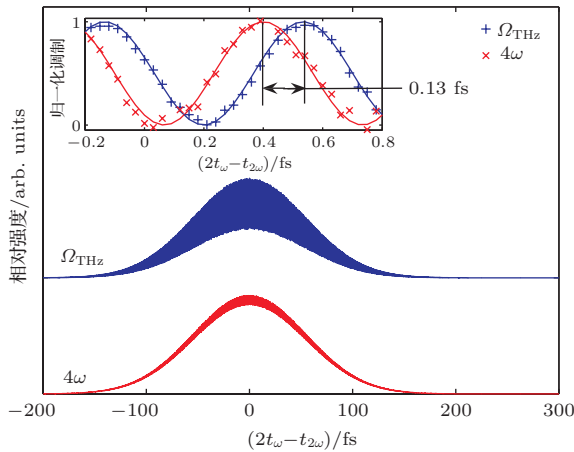


图3 四次谐波与太赫兹辐射随双色场激光延时的变化
Fig. 3. The intensity dependence of the fourth harmonic and terahertz emission on the relative phase.

为与实验结果相比较, 我们通过求解一维含时薛定谔方程计算了双色场作用下氢原子的偶极辐射, 这里对氢原子采用软核势, 双色场在频率和包络上与实验激光参数一致, 基频光、倍频光光强分别采用 $1.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $2.0 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$. 受计算时间的限制, 这里仅计算了延时变化 10 fs 的过程, 图4中右边子图给出了从太赫兹波到四次谐波强度随双色场相位的变化, 可以看出, 太赫兹波随双色场相对相位变化调制较强, 而四次谐波在图中对数取值下几乎无变化, 通过对太赫兹和四次谐波光谱分布积分, 并将四次谐波强度调制放大 20 倍后归一, 图4主图给出了计算得到的太赫兹波和四次谐波强度调制随双色场延时的变化, 与实验结果一致, 太赫兹和四次谐波调制周期是相同的, 通过傅里叶变换, 图4中左边子图给出了其强度调制的周期为 0.67 fs, 相位相差 0.2π , 也与实验结果符合。

射, 这里对氢原子采用软核势, 双色场在频率和包络上与实验激光参数一致, 基频光、倍频光光强分别采用 $1.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $2.0 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$. 受计算时间的限制, 这里仅计算了延时变化 10 fs 的过程, 图4中右边子图给出了从太赫兹波到四次谐波强度随双色场相位的变化, 可以看出, 太赫兹波随双色场相对相位变化调制较强, 而四次谐波在图中对数取值下几乎无变化, 通过对太赫兹和四次谐波光谱分布积分, 并将四次谐波强度调制放大 20 倍后归一, 图4主图给出了计算得到的太赫兹波和四次谐波强度调制随双色场延时的变化, 与实验结果一致, 太赫兹和四次谐波调制周期是相同的, 通过傅里叶变换, 图4中左边子图给出了其强度调制的周期为 0.67 fs, 相位相差 0.2π , 也与实验结果符合。

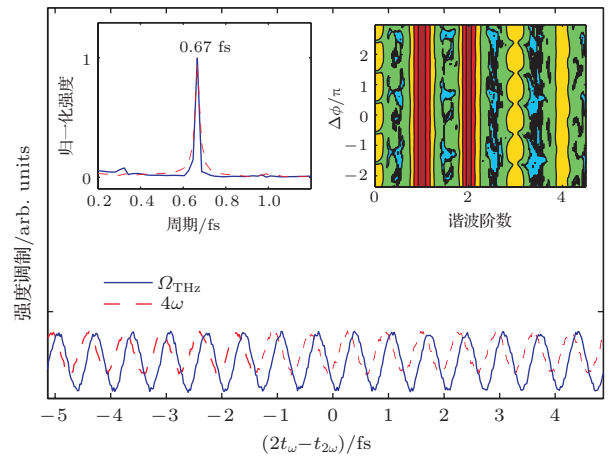


图4 求解含时薛定谔方程得到的四次谐波及太赫兹波强度随双色场相对相位的变化
Fig. 4. The intensities of the fourth harmonic and terahertz emission versus the relative phase by solving the time-dependent Schrodinger equation.

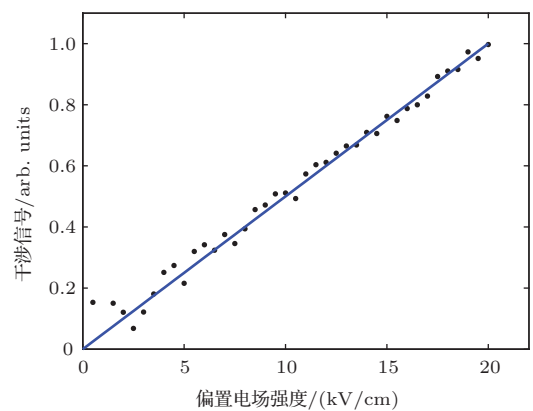


图5 四次谐波的强度干涉信号随偏置交流场强度的关系
Fig. 5. The interference signal of the fourth harmonic versus the biased field intensity.

对于四次谐波的产生机理, 通常认为可能包含了两个参量过程^[14], 即 $2\omega + \omega + \omega \rightarrow 4\omega$ 或者 $3\omega + 2\omega - \omega \rightarrow 4\omega$. 根据图 2 显示低光强下四次谐波与双色场强度关系, 可以判断此时 $2\omega + \omega + \omega \rightarrow 4\omega$ 过程占主要贡献, 由于此时双色场所产生的三次谐波非常弱, 即使 $3\omega + 2\omega - \omega \rightarrow 4\omega$ 过程能够发生, 其贡献都是可以忽略的. 当双色场激光光强增强, 双色场电离气体的过程中产生较强的三次谐波, 假设此时三次谐波的增强使得非线性过程 $3\omega + 2\omega - \omega \rightarrow 4\omega$ 显著, 则与三次谐波中两个参量过程的干涉一样^[11,12], $3\omega + 2\omega - \omega \rightarrow 4\omega$ 过程与 $2\omega + \omega + \omega \rightarrow 4\omega$ 必然发生干涉. 这两个过程所产生的四次谐波电场满足

$$E_{4\omega}(\omega, 2\omega) \propto \chi^{(3)}(4\omega; 2\omega, \omega, \omega) E_{2\omega} E_{\omega} E_{\omega} e^{i(\phi_{2\omega} + 2\phi_{\omega})}, \quad (1)$$

$$E_{4\omega}(\omega, 2\omega, 3\omega) \propto \chi^{(3)}(4\omega; 3\omega, 2\omega, -\omega) E_{3\omega} E_{2\omega} E_{\omega} \times e^{i(\phi_{3\omega} + \phi_{2\omega} - \phi_{\omega})}. \quad (2)$$

结合式三次谐波相位关系^[11], 四次谐波光强干涉项与激光相位关系可以表示为

$$I_{4\omega}^{\text{coh}} \propto \cos(\phi_{2\omega} - 5\phi_{\omega} + \theta). \quad (3)$$

这里的 θ 是非线性系数 $\chi^{(3)}(4\omega; 2\omega, \omega, \omega)$, $\chi^{(3)}(4\omega; 3\omega, 2\omega, -\omega)$ 以及三次谐波产生过程可能引入的相位, 对于典型的四波混频过程, 可认为 $\theta = 0$. 实验中我们通过移动干涉仪中的光楔实际上是改变 $2\phi_{\omega} - \phi_{2\omega}$. 根据图 2 中四次谐波的强度调制周期, 当 $2\phi_{\omega} - \phi_{2\omega}$ 改变 π , 对应双色场延时改变 0.67 fs 时, 正好对应于四次谐波的一个调制周期, 因此 (3) 式不能成立, 即这里四次谐波不能解释为 $3\omega + 2\omega - \omega \rightarrow 4\omega$ 过程与 $2\omega + \omega + \omega \rightarrow 4\omega$ 的干涉.

事实上, 双色场电离气体的过程中, 由于电离对称性被破坏, 气体也不再是各项均匀的, 此时偶次非线性系数不为零, 四次谐波可通过倍频光再次倍频得到, 当然, 这一过程也可视为太赫兹参与的四光子过程, 即 $2\omega + 2\omega \pm \Omega_{\text{THz}} \rightarrow 4\omega$ 这样一个三阶非线性过程(这里用以表示基频光、倍频光和四次谐波的 $\omega, 2\omega, 4\omega$ 都是宽带的, 相互间并不存在严格的频率定量关系). 该过程所产生的四次谐波电场, 满足

$$E_{4\omega}(2\omega, 2\omega, \Omega_{\text{THz}}) \propto \chi^{(3)}(4\omega; 2\omega, 2\omega, \pm\Omega_{\text{THz}}) E_{2\omega} E_{2\omega} E_{\Omega_{\text{THz}}}$$

$$\times e^{i(\phi_{2\omega} + \phi_{2\omega} \pm \phi_{\Omega_{\text{THz}}})}. \quad (4)$$

这里我们考虑 $2\omega + 2\omega \pm \Omega_{\text{THz}} \rightarrow 4\omega$ 和 $2\omega + \omega + \omega \rightarrow 4\omega$ 这两个过程的干涉, 对太赫兹电场的相位, 我们采用再散射模型所给出结果 $E_{\text{THz}} \propto e^{i(2\phi_{\omega} - \phi_{2\omega} - 0.8\pi)}$ ^[7,8], 并认为产生四次谐波的四波过程过程三阶非线性系数为实数, 则四次谐波干涉项满足

$$I_{4\omega}^{\text{coh}} \propto \cos(2\phi_{2\omega} - 4\phi_{\omega} + 0.8\pi), \quad (5)$$

即当 $2\phi_{\omega} - \phi_{2\omega} = 0.6\pi$ 时, 四次谐波强度最强, 这与图 3 中所得实验结果是相符. 由此可见, 双色场中四次谐波的产生更可能是 $2\omega + 2\omega \pm \Omega_{\text{THz}} \rightarrow 4\omega$ 和 $2\omega + \omega + \omega \rightarrow 4\omega$ 过程共同作用的结果.

为进一步验证这一结论, 实验中我们在双色场焦点处加上一交流偏置电场. 依照 Zhang 等提出的太赫兹偏置相干探测原理, 此时会有新的四次谐波产生, 满足

$$E_{4\omega}^{\text{Bias}} \propto \chi^{(3)}(4\omega; 2\omega, 2\omega, 0) E_{2\omega} E_{2\omega} E_{\text{Bias}} \times e^{i(\phi_{2\omega} + \phi_{2\omega})}, \quad (6)$$

由于偏置电场的引入并不会影响双色场中四次谐波原来的产生过程, 双色场所产生的四次谐波 $E_{4\omega}^{\text{Dual}}$ 与偏置电场诱导产生的四次谐波将会发生干涉, 总的强度满足:

$$I_{4\omega}^{\text{coh}} \propto (E_{4\omega}^{\text{Dual}})^2 + (E_{4\omega}^{\text{Bias}})^2 + E_{4\omega}^{\text{Dual}} E_{4\omega}^{\text{Bias}} \cos \varphi, \quad (7)$$

这里 φ 是 $E_{4\omega}^{\text{Dual}}$ 和 $E_{4\omega}^{\text{Bias}}$ 的相位差, 在其他因素不变的情况下, 显然 φ 是定值. 由此当对光电管检测到的四次谐波信号进行锁相检测, 锁相放大器参考频率与交流偏置电场一致时, 锁相检测将只响应最后式中一项. 实验中改变偏置电场强度, 得到四次谐波相干信号随电场强度的变化如图 5 所示, 图中实线为线性拟合曲线, 实验结果很好的满足线性关系.

需要指出的是, 由于气体击穿的限制, 这里的偏置电场强度受到限制, 偏置电场诱导倍频光直接产生的四次谐波很弱. 对双色场电离气体产生的太赫兹场而言, 参考他人结果^[16], 将会比这里的偏置电场强度高出数百倍, 因而产生的四次谐波也会强得多, 同时由于干涉效应, $2\omega + 2\omega \pm \Omega \rightarrow 4\omega$ 过程的贡献将会更加显著的在四次谐波强度上体现出来.

3 结 论

通过实验研究了双色场作用气体过程中四次谐波的产生,得到了四次谐波与双色场的强度及相对相位的依赖关系,否定了四次谐波产生中三次谐波参与的重要性,即 $3\omega + 2\omega - \omega \rightarrow 4\omega$ 过程可忽略.通过对四次谐波与太赫兹的同步测量结果,利用太赫兹波与双色场相对相位的关系对四次谐波的相对相位依赖进行了标定,实验结果与数值求解含时薛定谔方程结果相符,肯定了四次谐波产生过程中太赫兹波的参与,即存在 $2\omega + 2\omega \pm \Omega \rightarrow 4\omega$ 的过程.实验中通过采用增加偏置电场的方法,观察到了电场诱导下四次谐波与双色场产生的四次谐波之间的干涉现象,进一步肯定了准直流场在四次谐波产生中的作用.

参考文献

- [1] Cook D J, Hochstrasser R M 2000 *Opt. Lett.* **25** 1210
- [2] Backus S, Peatross J, Zeek Z, Rundquist A, Taft 1996 *Opt. Lett.* **21** 665
- [3] Hodgson R T, Sorokim P P, Wynne J J 1974 *Phys. Rev. Lett.* **32** 343
- [4] Cormier E, Lewenstein M 2000 *Eur. Phys. J. D* **12** 227
- [5] Dai J, Karpowicz N, Zhang X C 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 023001
- [6] Dorney T D, Baraniuk R G, Mittleman D M 2001 *JOSA A* **18** 1562
- [7] Zhang D W, Lu Z H, Meng C, Du X Y, Zhou Z Y, Zhao Z X, Yuan J M 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 243002
- [8] Lu Z H, Zhang D W, Meng C, Du X Y, Zhou Z Y, Zhao Z X, Yuan J M 2012 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **46** 155602
- [9] Zhou X X, Li B W 2001 *Acta Phys. Sinica* **50** 1902 (in Chinese) [周效信, 李白文 2001 物理学报 **50** 1902]
- [10] Zhu C J, Qin Y D, Yang H, Wang S F 2000 *Chin. Phys. Lett.* **18** 57
- [11] Xu H, Chu W, Liu Y, Liu W, Xiong H, Fu Y, Yao J, Zeng B, Ni J, Chin S L 2010 *Appl. Phys. B: Lasers Opt.* **104** 909
- [12] Liu Y, Liu W W 2011 *Chin. J. Lasers* **38** 0502007 (in Chinese) [刘岩, 刘维维 2011 中国激光 **38** 0502007]
- [13] Reintjes J F 1984 *Nonlinear Optical Parametric Processes in Liquids and Gases* (Academic Press, Orlando)
- [14] Ganeev R A, Singhal H, Naik P A, Chakera J A, Kumar M, Gupta P D 2010 *Phys. Rev. A* **82** 043812
- [15] Chudinov A N, Kapitzky Y E, Shulginov A A 1999 *Opt. and Quan Electronics* **23** 1055
- [16] Karpowicz N, Dai J, Lu X, et al 2008 *App. Phys. Lett.* **92** 011131

Coherently controlled fourth harmonic generation in gases induced by a two-color field*

Lü Zhi-Zhong^{1)†} Zhang Tian-Qi²⁾ Zhong Gong-Xiang¹⁾

1) (College of Mechatronic Engineering, Southwest Petroleum University, Chengdu 610050, China)

2) (Science college, National University of Defense Technology, Changsha 410073, China)

(Received 11 September 2014; revised manuscript received 25 March 2015)

Abstract

Induced by the harmonically related two-color pulse, the fourth harmonic wave in the vacuum ultraviolet range has been observed in gases. The process of the fourth harmonic generation is studied. In the case of non-ionized gas, the intensity dependence on the pump pulse reveals that the fourth harmonic generation is a third-order parametric process of $2\omega + \omega + \omega \rightarrow 4\omega$. In the case of ionized gas, the intensity of the fourth harmonic wave can be coherently controlled by the relative phase of the pump. Employing synchronous measurements of the fourth-order harmonic and terahertz emissions, the optimized relative phases of the two emissions have been studied and compared with each other experimentally. Results agree well with those of the time-dependent Schrödinger equation (TDSE). According to the reported optimized phase for the terahertz generation, the fourth harmonic generation involves two parametric processes: $2\omega + 2\omega \pm \Omega_{\text{THz}} \rightarrow 4\omega$ and $2\omega + \omega + \omega \rightarrow 4\omega$. The modulation of the fourth harmonic wave can be understood as the interference of the two channels.

Keywords: vacuum ultraviolet, two-color field, fourth harmonic, terahertz

PACS: 42.65.An, 42.70.Ce, 42.72.Bj, 51.90.+r

DOI: 10.7498/aps.64.174204

* Project supported by the Southwest Petroleum University “petroleum and natural gas equipment” Key Laboratory of the Ministry of Education Fund.

† Corresponding author. E-mail: nclvzz@163.com