# 啁啾场调控的高次谐波空间分布及孤立阿秒脉冲产生

徐小虎1,夏昌龙1,郭志伟2,苗向阳1

1山西师范大学物理与信息工程学院,山西 临汾 041004;

2同济大学物理科学与工程学院,教育部先进微结构材料重点实验室,上海 200092

**摘要** 理论研究了氢分子离子在波长 800 nm 短周期啁啾脉冲方案下的高次谐波发射与孤立阿秒脉冲产生。经计 算发现,当选取合适的啁啾参数时可以限制高次谐波同时由两核发射,从而减弱其空间的相互干涉,得到光滑连续 且只有单核贡献的高次谐波谱平台区域。当啁啾参数β=6、激光脉冲半峰全宽τ₀=5 fs时,通过在单核贡献的连 续谱上截取 100 阶谱线宽度合成了持续时间约为 98 as 的孤立阿秒脉冲。同时通过另一组参数计算也验证了当两 核对高次谐波谱均有贡献时,不利于阿秒脉冲的产生。讨论中使用了经典的回碰动能图和时频分布图来解释高次 谐波谱发射的物理机制。

关键词 激光光学;高次谐波产生;孤立阿秒脉冲;啁啾脉冲中图分类号 O436文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201845.0601007

# Spatial Distribution of High-Order Harmonic controlled by Chirped Laser Pulse and Isolated Attosecond Pulse Generation

Xu Xiaohu<sup>1</sup>, Xia Changlong<sup>1</sup>, Guo Zhiwei<sup>2</sup>, Miao Xiangyang<sup>1</sup>

<sup>1</sup>College of Physics and Information Engineering, Shanxi Normal University, Linfen, Shanxi 041004, China; <sup>2</sup>Key Laboratory of Advanced Microstructure Materials, Ministry of Education, College of Physics and Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China

**Abstract** High-order harmonics generation (HHG) and isolated attosecond pulse generation of  $H_2^+$  in a few-cycle 800 nm chirped laser field are theoretically studied. Calculation results show that the HHG can limit the harmonics emitted by two nuclei at the same time through choosing the proper chirped parameters, which decreases the interference in the space and helps to obtain a smooth and continuous HHG flat supported only by single nucleus. An isolated 98 attosecond pulse is generated by synthesizing a spectrum width of 100 orders in the smooth and continuous region with the chirped parameters  $\beta = 6$  and the full width at half maximum  $\tau_0 = 5$  fs. Calculation results also verify that when there are two nuclei contributing to the HHG, it is harmful to generate the isolated attosecond pulse. In the discussion, the classical returning energy maps and time frequency analysis are performed to explain the physical mechanism of HHG.

Key words laser optics; high-order harmonic generation; isolated attosecond pulse; chirped pulse OCIS codes 140.7090; 020.2649; 190.2620

1 引 言

近年来,随着激光技术的飞速发展,强激光场与 原子、分子气体、等离子体以及固体物质之间的相互 作用成为了人们关注的焦点<sup>[1-5]</sup>。由于激光场的强度已经接近甚至超过原子或分子内库仑作用产生的电场强度,因此两者之间的相互作用导致了许多新奇的非线性物理现象的发生,其中最引人瞩目的当

#### 收稿日期: 2017-12-15; 收到修改稿日期: 2018-01-18

基金项目:国家自然科学基金(11504221,11404204,11447208)、国家自然科学基金应急管理项目(11747130)、山西师范 大学校自然科学基金项目(ZR1703)、山西省高等学校科技创新项目(81)、山西省高等学校大学生创新创业训练计划项目 (2017176)

**作者简介**:徐小虎(1986—),男,博士,讲师,主要从事原子与分子物理学方面的研究。E-mail: bigbrowm@163.com \* **通信联系人**。E-mail: sxxymiao@126.com

属高次谐波的产生 [6-7]。作为产生连续的极紫外线 光源和软 X 射线源[8-9],特别是作为孤立阿秒脉冲 的主要工具[10-11],高次谐波的产生成为了近些年人 们研究的一个热点问题。众多实验结果表明,高次 谐波谱(HHG)都具有一个鲜明的平台结构,平台延 伸到一定能量后,其强度又迅速下降,形成一个陡峭 的截止区。而三步模型理论[12]可以很好地解释高 次谐波产生的物理机理以及平台截止定律。具体过 程可以分为以下步骤:1)激光场的作用显著地压低 了电子一侧的势垒,使得原本处于束缚态的电子发 生隧穿电离;2)电离后的电子在外场作用下加速、 振荡并获得一定能量;3)当激光场反向时,一部分 电子反向运动与母核回碰辐射出高能光子,即高次 谐波的产生。同时,理论与实验研究还表明,当体系 存在多核时,电离后的电子与母核回碰时会有多种 可能,从而影响高次谐波谱的空间分布并引起多条 量子路径间的相互干涉[13-15]。但是,多核体系中高 次谐波的产生具体源自哪个核的贡献,目前相关报 道较少[16-17]。

除了高次谐波的产生之外,阿秒脉冲具有重要 的实际应用价值,如探测和控制原子与分子内部超 快的电子动力学过程、阿秒尺度的时间分辨率测量 以及分子轨道的层析成像等[18-20]。因此,如何获得 孤立阿秒脉冲也吸引了众多研究者的广泛关注。到 目前为止,许多文献都对此做了相关报道。近年来 常被用来获得孤立阿秒脉冲的方案有少周期方 案<sup>[21-22]</sup>、偏振门方案<sup>[23-24]</sup>和组合场方案<sup>[22,25]</sup>等。此 外, 啁啾场也是调控高次谐波产生以及合成孤立阿 秒脉冲的很好手段[26-29]。例如: Salières 等[26]利用 聚焦条件和啁啾驱动场调控了高次谐波的产生; Xiang 等<sup>[27]</sup>利用啁啾场与静电场的组合场获得了脉 宽为 10 as 的孤立阿秒脉冲;罗香怡等<sup>[29]</sup>利用空间 非均匀的啁啾双色场方案在合适的时间延迟下得到 了光滑的超连续谱并得到脉宽为 32 as 的孤立阿秒 脉冲:最近,Zhang 等<sup>[30]</sup>研究了氢分子离子体系在 双色场驱动下,且电子只在一维方向振荡时高次谐 波谱的空间分布,并合成了脉宽为 99 as 的孤立阿 秒脉冲。

本文通过数值求解二维含时薛定谔方程,研究 了氢分子离子体系在波长 800 nm 短周期啁啾脉冲 驱动下的高次谐波谱的空间分布。研究结果表明, 在啁啾参数 $\beta=6$ 、激光脉冲半峰全宽(FWHM) $\tau_0=$ 5 fs 时,可以很好地限制高次谐波由两核同时产生, 从而减弱其空间的相互干涉。并且在此种情况下, 所得的高次谐波谱平台区域在 140~240 阶内只有 单个母核有贡献,谐波谱的调制较小,谱线光滑。同 时,相应的高次谐波谱的时频分布图中峰值  $p'_1$  只 含有短量子路径,通过叠加该段平台阶次可以获得 脉宽为 98 as 的孤立阿秒脉冲。此外,为了验证当 两个母核对高次谐波谱均有贡献时高次谐波在空间 中会发生干涉,影响孤立阿秒脉冲的产生,计算了  $\beta=6,\tau_0=10$  fs 时的高次谐波谱空间分布,并合成 了相应的阿秒脉冲。结果显示,两个母核对高次谐 波谱均有贡献且在阿秒脉冲附近有一个强度相对较 弱的伴随脉冲。为了解释高次谐波发射的物理机 制,采用了经典的三步模型理论、时频分析以及电子 的经典运动轨迹。

#### 2 理论模型和数值方法

在玻恩-奥本海默近似(BOA)条件下,数值求解 了氢分子离子在强激光场条件下的二维含时薛定谔 方程。在偶极近似下,体系的含时薛定谔方程可以 表示为(无特殊说明本文均使用原子单位 a. u.)

$$i \frac{\partial \psi(x, y, t)}{\partial t} = \left[\frac{p_x^2 + p_y^2}{2} + V(x, y) + xE_x(t)\right] \psi(x, y, t),$$
(1)

式中V(x,y)为软核库仑势,可以表示为

$$V(x,y) = \frac{-1}{\sqrt{(x-R/2)^2 + y^2 + a}} + \frac{-1}{\sqrt{(x+R/2)^2 + y^2 + a}} + \frac{1}{R},$$
 (2)

式中R=7 a.u.为核间距,a=0.61 为软核参数,(x, y)表示电子的坐标。在此条件下,可以计算得到氢 分子离子的电子基态能量为-0.519 a.u. (包括 1/R的排斥势)。 $xE_x(t)$ 表示外加激光场与氢分子离子的相互作用势。激光场的极化方向沿x轴,之所以选择沿着分子轴向是为了限制高次谐波同时从两核 产生。当极化方向与分子轴向有一定夹角时,两核 对高次谐波谱平台均有贡献,因此不能合成孤立的 阿秒脉冲,故此种情况文中没有考虑。激光场的具 体形式表示为 $E_x(t) = E_0 f(t) \cos[\omega_0 t + \delta(t)]$ ,其 中采用高斯型的包络函数 $f(t) = \exp(-4\ln 2t^2/\tau_0^2)$ , $\tau_0$ 为激光脉冲的 FWHM。载波包络相位 (CEP)采用啁啾场的形式 $\delta(t) = -\beta \tanh[(t-t_0)/\tau]$ ,通过调节参数 $\beta$ , $t_0$ , $\tau$ 来控制啁啾场的形式。其 中对于给定 $\beta$ 时 CEP 的取值,先令 $\omega t + \delta(t) = 0$ ,求 出此时对应的时刻 t,然后相应的  $\delta(t) = (t/T)$  • 2 $\pi$ ,其中 T 代表波长 800 nm 时对应的周期。波函 数随时间的演化采用二阶劈裂算符的方法,当随时 间演化的波函数确定之后,就可以根据艾伦费斯特 定理得到含时的偶极加速度  $a_x(t) = \langle \psi(x,y,t) \rangle$  $\left| -\frac{\partial V(x,y)}{\partial x} - E_x(t) \right| \psi(x,y,t) \rangle$ 。对偶极加速度 进行 傅 里 叶 变 换 就 可 以 得 到 高 次 谐 波 谱  $\left| \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int \exp(-i\omega t) a_x(t) dt \right|^2$ 。同时,为了进一步研 究高次谐波谱的空间分布,计算了偶极加速度随空 间坐标 x 的分布:

$$d_{A}(x,t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \psi^{*}(x,y,t) \times \left[ -\frac{\partial V(x,y)}{\partial x} - E_{x}(t) \right] \psi(x,y,t) dy_{\circ}$$
(3)

由于激光场的极化方向沿 x 轴,因此,当用经 典的牛顿方程描绘电离后电子的运动轨迹时,只需 要考虑一维轴向的(x 轴)情况。本文以两核连线中 点为坐标原点,用字母 A 和 B 分别表示位于(-R/ 2,0)与(R/2,0)处的两个原子核。并且假设电子在 电离瞬间初速度为 0,初位置在两原子核处,那么隧 穿电离后电子的速度和位移可以分别表示为

$$\dot{x}(t) = \int_{t_i}^t -E_x(t) dt$$
, (4)

$$x(t) = \int_{t_{i}}^{t} \dot{x}(t) dt + x_{0} \,. \tag{5}$$

当电子返回母核 A 或 B 时,即  $x(t_e) = \pm R/2$ , 电子与母核碰撞释放出高能光子, $t_i$  与  $t_e$  分别表示 电离时刻与回碰时刻,回碰时电子具有的动能为  $E_k = \frac{1}{2}\dot{x}^2(t_e)$ 。

## 3 结果与讨论

计算中选取的短周期激光脉冲波长为 800 nm, 强度为 3×10<sup>14</sup> W·cm<sup>-2</sup>,τ<sub>0</sub>=5 fs,τ=200 a.u.,t<sub>0</sub>= τ/9。图 1 给出了不同啁啾参数 β 所对应的高次谐 波谱图。从图 1 中可以看出,当啁啾参数 β=0 时 (黑色实线所示),高次谐波谱的平台区域较窄且调 制明显,谐波截止阶次在 80 阶处;当 β=3 时(红色 虚线所示),谐波截止阶次被拓宽到 130 阶附近;当 β=6 时(蓝色点线所示),可以得到频带宽度为 140 阶的超宽连续谱,而且谐波谱的调制明显减弱,谱线 变得更加平滑,只是在谐波截止位置处谐波谱的强 度降低了两个数量级。理论计算发现,当 β<6 时, 在  $\beta$  从 0 逐渐增大过程中,连续谱的宽度明显增大; 当  $\beta$ >6 时,随着参数  $\beta$  继续增大,谐波谱扩展缓慢; 而且截止阶次附近处谐波谱的强度会随  $\beta$  增大明显 下降。为了验证上述现象,给出了啁啾参数  $\beta$ = 6.25时对应的高次谐波谱,如图 1 中虚点绿线所示。 可以看出,此时谐波谱的截止阶次拓宽到了 258 阶 左右,同时截止阶次附近的谐波谱强度相比于  $\beta$ =6 时降低了 1 个数量级,与上述现象一致。同时,考虑 到更大的  $\beta$  所对应的啁啾场在实验上无法实现,因 此下文在  $\beta$ =6 的条件下研究高次谐波的空间分布 以及阿秒脉冲产生。



图 1 不同啁啾参数  $\beta$  对应的 HHG 谱图 Fig. 1 HHG spectra from different parameters of  $\beta$ 

利用(3)式对傅里叶变换后的偶极加速度的模 进行平方,便可以得到高次谐波谱的空间分布情况。 图 2(a)给出了  $\beta = 0$ 、 $\delta(t) = 0$  时对应的高次谐波谱 的空间分布。从图中可以看出,在空间位置 x=0,  $\pm R/2$  处,谐波谱的强度较弱,与文献[14-15]得到 的结果一致;在平台区域处,由A、B两核产生的高 次谐波谱的强度基本相同;在截止阶次 65~80 阶 处,由A核产生的谐波谱的强度较强。众所周知, 当啁啾参数 β 变化时,啁啾场与 CEP 将同时发生改 变。本文只研究啁啾场对高次谐波谱的影响,而不 考虑 CEP 变化产生的影响,图 2(c)、(d)分别给出了  $\beta = 3, \delta(t) = 0$  与  $\beta = 6, \delta(t) = 0$  时对应的谐波谱的 空间分布。从图 2(c)中可以看出,当  $\beta$ =3 时,两个 核对高次谐波谱都有贡献,但在低阶部分 B 核的贡 献相比 A 核略强些,在高阶部分恰好相反。从图 2 (d)中可以看出,当 $\beta = 6$ 时,整个谐波谱的强度相比 于图 2(a)、(c)有所降低,但截止阶次变得更高, 目 只有 A 核对高次谐波谱的高阶部分有贡献。因此, 当 CEP 保持不变时,可以通过调节啁啾参数来控制 高次谐波高阶部分的发射路径。同时,研究了啁啾 参数  $\beta = 0$  时, 高 次 谐 波 谱 的 空 间 分 布 随 CEP变化的关系。计算发现,不同CEP下的高次



图 2 4种情况下的 HHG 的空间分布图。(a)  $\beta=0$ ,  $\delta(t)=0$ ; (b)  $\beta=6$ ,  $\delta(t)\approx0.4\pi$ ; (c)  $\beta=3$ ,  $\delta(t)=0$ ; (d)  $\beta=6$ ,  $\delta(t)=0$ Fig. 2 Spatial distributions of HHG in four different conditions. (a)  $\beta=0$ ,  $\delta(t)=0$ ; (b)  $\beta=6$ ,  $\delta(t)\approx0.4\pi$ ; (c)  $\beta=3$ ,  $\delta(t)=0$ ; (d)  $\beta=6$ ,  $\delta(t)=0$ 

谐波谱的空间分布与 $\beta=0,\delta(t)=0$ 时的结果类似, 即两核对高次谐波谱均有贡献,只是不同情况下相 应的谐波谱的强度有所变化,此处为了简便没有给 出相应的计算结果。为了得到更好的两核对高次谐 波谱发射贡献不同的理论计算结果,计算了 $\beta=6$ 时 不同 CEP 下的高次谐波谱的发射情况。图 2(b)给 出了 $\beta=6,\delta(t)\approx0.4\pi$ 时相应谐波谱的空间分布, 其他情况未给出。与图 2(d)相比,整个谐波谱的强 度也有所增强,且在谐波阶次低于 100 阶的区域两 个核对谐波谱均有贡献,但是在 100~240 阶的区域两 个核对谐波谱的贡献要远大于 B 核。因此,容 易推得,在该谐波区域内两核分别产生的谐波谱之 间的相互干涉减小,从而该区域内相应谐波的调制 减弱,谱线变得光滑。这一推论与图 1 中谐波谱的 特征一致,从而验证了该推论的正确性。若没有特



为了解释图 2 中高次谐波谱的空间分布,利用 牛顿力学的方法给出了 $\beta=0$ 与 $\beta=6$ 时电子的经典 电离以及回碰动能分布图,如图 3(a)、(c)所示,其 中空心符号表示电子动能与电离时间的关系,实心 符号表示电子动能与回碰时间的关系,蓝色点线表 示激光脉冲。图中空心符号表示经典电离,实心符 号表示回碰动能。空心三角形表示电子从核 A 位 置附近电离,圆形或正方形表示电子从核 B 位置附 近电离。黑色实心三角形表示电子从核 A 位 置附近电离后的电子与核 A 回碰;蓝色实心三角形表示从核 A 位置附近电离后的电子与核 B 回碰;红色实心圆 形表示从核 B 位置附近电离后的电子与核 A 回碰; 绿色实心正方形表示从核 B 位置附近电离后的电



图 3 (a)(c)电子的经典动能图;(b)(d)电子波包密度图 Fig. 3 (a)(c) Classical kinetic energy of the electron; (b)(d) electron wave packet density

子与核 B 回碰。从图 3(a)中可以清晰地看到 3 个 不同时刻的回碰动能峰  $P_{a1}$ 、 $P_{a2}$ 与  $P_{a3}$ 分别对应 3 个不同时刻的电离峰  $P_{11}$ 、 $P_{12}$ 与  $P_{13}$ ,图 3(c)中有两 个不同时刻的回碰动能峰  $P'_{i}$  与  $P'_{i2}$  分别对应两个 不同时刻的电离峰 P'1与 P'2。并且几乎每个回碰 动能峰都有来自两个核的贡献。为了能够更加清楚 准确地确定哪个核附近的电子对上述回碰动能峰贡 献更大,从量子的角度通过计算波函数模的平方,即  $p(x,t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \psi(x,y,t) \psi^*(x,y,t) dy, 分别给出了$ 上述两种 $\beta$ 时的电子波包密度随时间演化的图像, 如图 3(b)、(d) 所示。从图 3(b) 中可以看出,在 3.1 o. c.(o. c.表示光学周期)之前电子在两个核附 近均有分布,且这段光周期内包括了图 3(a)中所示 的整个回碰峰 Pel与峰值 Pel左边的低阶部分,因此 在这段区域内两个核对高次谐波的低阶部分均有贡 献。在 3.1~3.4 o. c.之间,核 A 周围分布的电子数 比核 B 周围的电子数多,且该光周期段正好对应回 碰动能图中的最高峰 Pea 区域,即高次谐波谱的截 止区域,因此这与图 2(a)中得到的由核 A 产生的高 次谐波在截止阶次附近比核 B 产生的高次谐波要 强的结论一致。由于在峰值 P 。3 对应的光周期内电 子波包密度较弱,因此高次谐波谱主要由峰值  $P_{el}$ 和  $P_{e2}$  贡献。同理,从图 3(c)中可以看到,  $1.6 \sim 2.2$  o. c.之间包含了经典电离图中的  $P'_{1}$ 峰,电 子在该光周期段内电离;在2.5~3.2 o. c.之间与母 核发生回碰,且2.5~2.85 o. c.之间对应回碰动能峰  $P'_{\rm el}$ 的低阶部分, 2.85~3.2 o. c.之间对应回碰动能 峰  $P'_{el}$  的高阶部分;同时从图中还可以看出,有 3 个 回碰过程贡献了该区域的高次谐波,它们分别是电 子从核A电离,然后与核A回碰,以及电子从核B 电离,然后与核 A、核 B 回碰。进一步结合电子波 包密度图 3(d),可以得到 1.6~2.2 o. c.之间电子在 两核附近均有分布,而2.85~3.4 o. c.之间电子主要 分布在核 A 附近,该区域对应谐波阶次高于 90 阶 的部分,因此,电子从核 B 电离后与母核回碰的几 率就很小,谐波谱的调制较弱。这点也与图 2(d)的 高次谐波谱中核 A 主要贡献谐波谱的截止阶次一 致。除此之外,在2.8~3.2 o. c.之间包含了经典电 离图中的  $P'_{2}$ 峰,该电离峰与回碰动能峰  $P'_{2}$ 相对 应,贡献谐波谱的低阶部分。且该回碰动能峰主要 有两个过程的贡献,分别是电子从核 A 电离,然后 与核 A、核 B 回碰。进一步结合电子波包密度分布 图,得到该光周期段内电子主要分布在核 A 附近, 因此电离的电子主要来自核 A,即该段光周期内高

次谐波谱主要来自核 A 的贡献。综上所述,由于多 个回碰过程共同贡献了高次谐波谱的低阶部分,故 90 阶以下的高次谐波谱的调制明显,而高于 90 阶 的谐波谱调制较弱。同时,上述分析也恰好解释了 图 2 中高次谐波空间分布的物理本质。

与此同时,为了更加清楚地呈现高次谐波谱强 度、能量随时间的变化规律,采用小波变换的方法给 出了 $\beta = 6$ 时高次谐波谱的时频分布图,如图 4(a) 所示。与图 3(c)所示的经典计算结果类似,图中同 样有两个明显的峰值  $p'_1 = p'_2$  对高次谐波谱有贡 献。其中,峰值 p'大约对应谐波阶次 240 阶的位 置,发射时间在 2.5~3.2 o. c.之间, 且长量子路径 被抑制。峰值  $p'_{2}$ 大约对应谐波阶次 100 阶的位置, 发射时间在 3.5~4.5 o. c.之间, 该峰值存在长短两 条量子路径。该结果也与图 3(c)所讨论的情况一 致。结合上述讨论可得:高次谐波谱的 100~240 阶 区域主要来自于核 A 的贡献,且该区域内只有峰值 *p*<sup>'</sup>的短量子路径存在。利用该区域内谐波谱的这 一特点合成了持续时间为 98 as 的孤立阿秒脉冲, 其时间剖面图如图 4(b)中蓝色点线所示。对于啁 啾参数  $\beta = 0$  的情况,同样通过叠加 40~80 阶谐波 合成了阿秒脉冲,如图 4(b)中黑色实线所示。与啁 啾参数  $\beta = 6$  情况不同,此次合成得到的是阿秒脉冲 链,且主峰间的时间间隔大约为120 as。这是由于 两核对谐波谱均有贡献,且谐波谱之间相互干涉,从 而导致了伴随脉冲的形成。

为了验证当高次谐波谱由两核共同产生且在空 间发生相互干涉时不能合成孤立阿秒脉冲,计算了  $\beta = 6, \tau_0 = 10$  fs 情况下的高次谐波谱,结果如 图 5(a)所示。与 $\beta = 6$ 、 $\tau_0 = 5$  fs 的情况相比,高次 谐波谱的截止阶次没有发生变化,但是谐波谱的强 度降低了2个数量级,且整个谐波谱的调制都比较 明显。同时,图 5(b)所示为相应高次谐波谱的空间 分布情况,从图中可以看出,100 阶以下的谐波谱强 度比 100~240 阶的谐波谱强度强,这与图 5(a)中的 情况一致。并且两个核对整个高次谐波谱的平台区 域均有贡献,因此导致了谐波谱空间上的相互干涉, 谐波谱的调制明显。此外,图 5(c)所示为高次谐波谱 的时频分布情况,从图中可以看到存在3个明显的峰 值,分别为  $p_1'', p_2''$ 和  $p_3''; 峰值 p_1''的谐波谱强度最强但$ 峰值能量最低;峰值  $p_2''$ 能量最高,因此  $p_2''决定了谐波$ 的截止阶次位置。峰值  $p_2''$ 的短量子路径中包含两条 路径,这是由于电子一经电离便可分别与核 A、B 回 碰造成的。峰值 p3的谐波谱强度最弱,峰值能量比 峰值 p<sup>2</sup>/<sub>2</sub>低。因此谐波谱的截止阶次主要来自于峰值 p<sup>2</sup>/的贡献。通过叠加 140~240 阶谐波合成了阿秒脉 冲,如图 5(d)所示。从图中可以清晰地看到在阿秒 脉冲的附近有一个强度相对较弱的伴随脉冲,这是因 为对于 70 阶以上的高次谐波谱,3 个峰值对其均有 贡献。该结果也进一步验证了当高次谐波谱由两核 共同产生且相互之间发生干涉或者谐波谱峰值中包 含多条量子路径时不能合成孤立阿秒脉冲的结论。



图 4 (a)  $\beta = 6$  时高次谐波谱的时频分布图;(b)阿秒脉冲的时间剖面图 Fig. 4 (a) Time frequency analysis for the case of  $\beta = 6$ ; (b) temporal profile of the attosecond pulse



图 5 (a)高次谐波发射谱;(b)  $\tau_0 = 10$  fs 时高次谐波谱的空间分布;(c)  $\tau_0 = 10$  fs 时高次谐波谱的时频分布; (d)叠加 140~240 阶得到的阿秒脉冲

Fig. 5 (a) HHG spectrum; (b) spatial distribution of HHG for the case of  $\tau_0 = 10$  fs; (c) time frequency analysis of HHG for the case of  $\tau_0 = 10$  fs; (d) attosecond pulse generation by superposing bandwidth from 140th to 240th order

## 4 结 论

通过求解二维含时薛定谔方程,研究了氢分子 离子在短周期啁啾脉冲方案下的高次谐波发射与孤 立阿秒脉冲产生。讨论中使用了经典的三步模型理 论解释了高次谐波谱发射的物理机制。文中通过改 变啁啾参数β,调控了高次谐波谱的空间分布,减小 了由两核分别产生的谐波之间的相互干涉,获得了 孤立的阿秒脉冲。数值计算发现,当选取合适的参 数,如β=6、τ<sub>0</sub>=5 fs时,只有单核对谐波谱的高阶 区域(100~240 阶)有贡献,且谐波谱调制较弱、谱 线光滑。除此之外,在高次谐波谱的时频分布图中 存在只有短量子路径贡献的峰值,也就是说该方案 可以很好地抑制谐波谱间干涉现象的发生,从而有 利于合成孤立阿秒脉冲。同时通过另外一组数值计 算验证了谐波谱由两核共同产生时不能合成孤立阿 秒脉冲的结论。

#### 参考文献

- Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics [J]. Reviews of Modern Physics, 2009, 81(1): 163-234.
- [2] Vampa G, McDonald C R, Orlando G, et al. Theoretical analysis of high-harmonic generation in solids[J]. Physical Review Letters, 2014, 113(7): 073901.
- [3] Zhai C, Zhu X, Lan P, et al. Diffractive molecularorbital tomography[J]. Physical Review A, 2017, 95 (3): 033420.
- [4] Zheng X X, Bai L H, Feng F Z. Non-sequential double ionization of magnesium atom in elliptically polarized strong laser field [J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2017, 54(8): 080201.
  郑晓晓,白丽华,冯凤珍. 椭圆偏振强激光场中 Mg 原子的非次序双电离[J].激光与光电子学进展, 2017, 54(8): 080201.
- [5] Su J H, Lü N, Ge J M. Characteristics of plasma shock waves in laser-induced film damage [J]. Chinese Journal of Lasers, 2016, 43(12): 1203003.
  苏俊宏, 吕宁, 葛锦蔓. 激光薄膜损伤中等离子体冲 击波特征[J]. 中国激光, 2016, 43(12): 1203003.
- [6] McPherson A, Gibson G, Jara H, et al. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases[J]. Journal of the Optical Society of America B-Optical Physics, 1987, 4(4): 595-601.
- L'Huillier A, Schafer K J, Kulander K C. Theoretical aspects of intense field harmonicgeneration [J]. Journal of Physics B-Atomic Molecular and Optical Physics, 1991, 24(15): 3315-3341.
- [8] Seres J, Seres E, Verhoef A J, et al. Laser technology: source of coherent kiloelectronvolt Xrays[J]. Nature, 2005, 433(7026): 596-596.
- [9] Popmintchev T, Chen M C, Popmintchev D, et al. Bright coherent ultrahigh harmonics in the keV X-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers [J]. Science, 2012, 336(6086): 1287-1291.
- [10] Paul P M, Toma E S, Breger P, et al. Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation [J]. Science, 2001, 292 (5522): 1689-1692.
- [11] Cao W, Lu P, Lan P, et al. Single-attosecond pulse generation with an intense multicycle driving pulse
   [J]. Physical Review A, 2006, 74(6): 063821.
- [12] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization[J]. Physical Review Letters, 1993, 71(13): 1994-1997.
- [13] Heyl C M, Güdde J, Höfer U, et al. Spectrally

resolved maker fringes in high-order harmonic generation [J]. Physical Review Letters, 2011, 107 (3): 033903.

- [14] Jin C, Stein G J, Hong K H, et al. Generation of bright, spatially coherent soft X-ray high harmonics in a hollow waveguide using two-color synthesized laser pulses[J]. Physical Review Letters, 2015, 115 (4): 043901.
- [15] He L, Lan P, Zhang Q, et al. Spectrally resolved spatiotemporal features of quantum paths in highorder-harmonic generation [J]. Physical Review A, 2015, 92(4): 043403.
- [16] Zhang J, Ge X L, Wang T, et al. Spatial distribution on high-order-harmonic generation of an H<sub>2</sub><sup>+</sup> molecule in intense laser fields [J]. Physical Review A, 2015, 92(1): 013418.
- [17] Xia C L, Zhang J, Miao X Y, et al. Restraint of spatial distribution in high-order harmonic generation from a model of hydrogen molecular ion[J]. Chinese Physics B, 2017, 26(7): 073201.
- [18] Kienberger R, Hentschel M, Uiberacker M, et al. Steering attosecond electron wave packets with light
   [J]. Science, 2002, 297(5584): 1144-1148.
- [19] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann Ch, et al. Attosecond metrology [J]. Nature, 2001, 414 (6863): 509-513.
- [20] Zhu X, Qin M, Li Y, et al. Tomographic reconstruction of molecular orbitals with twofold mirror antisymmetry: overcoming the nodal plane problem [J]. Physical Review A, 2013, 87 (4): 045402.
- Ge X L, Wang T, Guo J, et al. Quantum-path control and isolated-attosecond-pulse generation using H<sub>2</sub><sup>+</sup> molecules with moving nuclei in few-cycle laser pulses [J]. Physical Review A, 2014, 89 (2): 023424.
- [22] Peng D, Pi L W, Frolov M V, et al. Enhancing high-order-harmonic generation by time delays between two-color, few-cycle pulses [J]. Physical Review A, 2017, 95(3): 033413.
- [23] Feng X, Gilbertson S, Mashiko H, et al. Generation of isolated attosecond pulses with 20 to 28 femtosecond lasers [J]. Physical Review Letters, 2009, 103(18): 183901.
- [24] Yeung M, Dromey B, Cousens S, et al. Dependence of laser-driven coherent synchrotron emission efficiency on pulse ellipticity and implications for polarization gating [J]. Physical Review Letters, 2014, 112(12): 123902.
- [25] Xia C L, Liu X S. Quantum path control and isolated attosecond pulse generation with the combination of

two circularly polarized laser pulses [J]. Physical Review A, 2013, 87(4): 043406.

- Salières P, Antoine P, Bohan A, et al. Temporal and spectral tailoring of high-order harmonics [J].
   Physical Review Letters, 1998, 81(25): 5544-5547.
- [27] Xiang Y, Niu Y, Gong S. Control of the high-order harmonics cutoff through the combination of a chirped laser and static electric field [J]. Physical Review A, 2009, 79(5): 053419.
- [28] Xu J, Zeng B, Yu Y. Extension of harmonic cutoff in a multicycle chirped pulse combined with a chirp-free pulse[J]. Physical Review A, 2010, 82(5): 053822.
- [29] Luo X Y, Ben S, Ge X L, et al. High-order harmonics and attosecond pulse generation of a He+ ion by a chirped two-color inhomogeneous laser field
  [J]. Acta Physica Sinica, 2015, 64(19): 193201.
  罗香怡, 贲帅, 葛鑫磊,等. 空间非均匀啁啾双色场 驱动下氦离子的高次谐波以及孤立阿秒脉冲的产生
  [J].物理学报, 2015, 64(19): 193201.
- [30] Zhang J, Pan X F, Du H, et al. The spatial distribution in high-order harmonic generation of H<sub>2</sub><sup>+</sup> with different time delays of the two-color laser fields [J]. Optics Communications, 2017, 382: 495-500.