

空间非均匀啁啾场驱动氦离子产生单个超短阿秒脉冲

白婷婷^{1*}, 张刚台^{2**}, 王子琪², 商一凡², 韩岳峰²

¹宝鸡文理学院数学与信息科学学院, 陕西 宝鸡 721013;

²宝鸡文理学院物理与光电技术学院, 陕西 宝鸡 721016

摘要 研究了空间非均匀啁啾场作用下氦离子的高次谐波辐射和单个阿秒脉冲的产生。计算结果表明:相比单个空间非均匀场和单个啁啾场驱动产生的谐波谱,空间非均匀啁啾场驱动产生的谐波谱的截止位置得到了极大的拓展,并且产生了带宽为 1073 eV 的超连续谱。此外,这种时空组合场可以实现抑制长路径而选取短路径,从而有效地贡献连续谱的产生。直接叠加连续谱上大范围的谐波,可获得脉宽为 13 as 的单个阿秒脉冲。通过调节啁啾参数,可实现脉宽仅为 7.4 as 的单个脉冲的输出。

关键词 非线性光学; 高次谐波产生; 孤立阿秒脉冲; 超连续谱; 量子路径; 空间非均匀啁啾场

中图分类号 O437

文献标志码 A

doi: 10.3788/CJL202047.0508001

Isolated Ultrashort Attosecond Pulse Generation of Helium Ion in Spatially Inhomogeneous Chirped Field

Bai Tingting^{1*}, Zhang Gangtai^{2**}, Wang Ziqi², Shang Yifan², Han Yuefeng²

¹School of Mathematics and Information Science, Baoji University of Arts and Sciences, Baoji, Shaanxi 721013, China;

²Institute of Physics and Optoelectronics Technology, Baoji University of Arts and Sciences, Baoji, Shaanxi 721016, China

Abstract In this study, we theoretically investigate the high-order harmonic and isolated attosecond pulse generation with respect to the helium ion in the spatially inhomogeneous chirped field. The results demonstrate that the harmonic spectral cutoff of the spatially inhomogeneous chirped field is significantly extended when compared with the harmonic spectra generated by the single inhomogeneous field and the chirped field. Subsequently, an ultrabroad supercontinuum with a bandwidth of 1073 eV is successfully obtained. Furthermore, the spatiotemporally synthesized field can suppress a long path and select a short path to efficiently contribute to supercontinuum generation. Therefore, an isolated 13 as pulse is directly generated by superposing a wide range of continuous harmonics. Finally, a single attosecond pulse with pulse width of 7.4 as can be easily obtained by adjusting the chirp parameter.

Key words nonlinear optics; high-order harmonic generation; isolated attosecond pulse; supercontinuum; quantum path; spatially inhomogeneous chirped field

OCIS codes 190.2620; 020.2649; 140.7090

1 引 言

强激光与原子或分子相互作用时,会因高阶非线性效应而辐射出高次谐波(HHG)。高次谐波可覆盖从红外到远紫外甚至软 X 射线的光谱范围,所

以它很快成为突破飞秒壁垒及实现阿秒脉冲的首选光源。此外,高次谐波辐射也是目前唯一能在实验上获得阿秒脉冲的有效方案。高次谐波辐射过程可以用 Corkum^[1]提出的半经典三步模型来解释:首先,处在基态的电子通过多光子电离或者隧穿电离

收稿日期: 2019-11-11; 修回日期: 2020-01-05; 录用日期: 2020-01-19

基金项目: 陕西省自然科学基金基础研究计划项目(2016JM1012)、陕西省教育厅专项科研项目(18JK0050)、陕西省大学生创新训练计划项目(S201910721030)、宝鸡文理学院大学生创新创业训练计划项目(2019XJ067,2019XJ077,2019XJ083)

* E-mail: btt1120@163.com; ** E-mail: gtzhang79@163.com

进入到连续态;其次,进入连续态的准自由电子在随着外场振荡的过程中获得额外的能量;最后,电子电离后,在激光场中先加速,当激光场反向时,一部分电子在激光场的作用下返回到原子核附近并复合到基态,同时辐射出高能光子。按照这个模型,光子的最大能量为 $I_p + 3.17U_p$, 其中 I_p 为原子的电离势, U_p 为电子的有质动力能。这个过程在驱动光的每半个光周期内重复一次,因此产生的脉冲在时域上表现为阿秒脉冲链的形式。

在实际应用中,单个阿秒脉冲比阿秒脉冲链更有价值,如利用阿秒脉冲可以观察和控制原子分子内部电子的隧穿电离过程和内壳层电子的弛豫过程^[2],所以研究人员更加关注怎样从高次谐波辐射中提取孤立阿秒脉冲。目前有两种方法可以实现单个阿秒脉冲的输出。第一种方法是周期量级激光泵浦方案^[3-4]。利用该方案在实验上已成功实现了脉宽 80 as 的光脉冲^[5]。第二种方法是偏振态门方案^[6]。Sansone 等^[7]将此技术应用于一个 5 fs 超短脉冲上,同时采用啁啾补偿技术,得到 36 eV 的超连续谱,并获得了脉宽为 130 as 的单个脉冲。2017 年, Gaumnitz 等^[8]利用双周期的中红外激光实现了脉宽仅为 43 as 的软 X 射线脉冲,这是迄今为止实验上产生的最短阿秒相干光脉冲。理论上,研究人员提出了多种有效方案来缩短阿秒脉冲的脉宽或者提高阿秒脉冲的强度,如平行偏振双色场^[9-11]、啁啾场^[12]、静电组合场^[13]、阿秒电离控制方案^[14-15]、三色场^[16]、相干叠加态^[17]、正交偏振双色场^[18]、双光学控制方案^[19]、长脉宽的偏振控制方案^[20]等。

近年来,由空间非均匀场驱动产生的高次谐波辐射引起了人们的广泛关注。在实验上,这种空间非均匀场可通过激光脉冲与金属纳米结构材料相互作用来实现^[21-23]。表面等离激元共振增强被限制在纳米结构单元附近很小的区域内,这导致增强电场在纳米量级的空间尺度中具有不均匀性,因此产生的等离激元场为空间非均匀场。目前,实验和理论上利用空间非均匀场驱动产生高次谐波的研究成果已经发表^[22-25]。此外,空间分布呈非均匀性的驱动电场不仅能够有效地调控高次谐波的电子动力学过程,而且能够产生宽带连续谱,实现单个阿秒脉冲的输出^[26-30]。在本课题组之前的工作中,利用单色空间非均匀场和双色空间非均匀场驱动氦离子获得了脉宽分别为 17.3 as 和 12.3 as 的单个阿秒脉冲^[31-32]。

通过文献调查发现,虽然已有关于空间非均匀

场、啁啾场与原子或分子系统的高次谐波的研究工作报道,然而,目前关于空间非均匀场结合啁啾效应驱动氦离子叠加态产生高次谐波的研究工作很少。本文更深入地研究了空间非均匀啁啾场驱动下氦离子产生的高次谐波辐射及单个阿秒脉冲的产生。本文目的在于通过空间非均匀场结合啁啾效应实现对高次谐波过程中电子动力学行为的控制,同时降低平台区高次谐波的阿秒啁啾,并且在不需要任何啁啾补偿的条件下,就可以实现脉宽在 24 as 以内的单个脉冲的输出。数值计算结果表明:将啁啾参数引入到空间非均匀场,使谐波截止得到了大幅度的提升,并且产生了频带极宽的超连续谱。由于超连续谱来自单个量子路径的贡献,因此通过叠加大范围的连续谐波,直接产生了脉宽仅为 13 as 的单个超短脉冲。通过适当地调节啁啾参数,可获得脉宽短至 7.4 as 的单个脉冲输出。本文应用经典三步模型和小波时频分布,解释了高次谐波辐射及单个阿秒脉冲产生的物理机制。

2 理论模型和方法

在偶极近似和长度规范下,原子在激光场中的含时 Schrödinger 方程可表示为(无特别说明,均采用原子单位)

$$i \frac{\partial}{\partial t} \psi(x, t) =$$

$$\left[-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} + V(x) - xE(x, t) \right] \psi(x, t), \quad (1)$$

式中: $V(x)$ 为软核库仑势, $V(x) = -z/\sqrt{x^2 + a}$; $\psi(x, t)$ 为任意时刻的波函数; $E(x, t)$ 为空间非均匀啁啾场。本文选择 $z = 2$ 和 $a = 0.5$, 这对应的电离能为 54.4 eV, 与真实 He^+ 离子的基态能量一致。 $E(x, t)$ 可表示为

$$E(x, t) = E_0 f(t) \cos \left[\omega \left(t - \frac{T}{2} \right) + \delta(t) \right] (1 + \epsilon x), \quad (2)$$

式中: $E_0 = 0.0924$ a.u. 和 $\omega = 0.057$ 分别为激光电场的峰值强度和频率, 相应的激光强度和波长分别为 $I = 3 \times 10^{14} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ 和 $\lambda = 800 \text{ nm}$; $f(t) = \sin^2 \left(\frac{\pi t}{T} \right)$ 表示激光脉冲的包络; $T = 5 T_0$ (T_0 为 800 nm 激光脉冲的光周期) 为脉冲持续时间, 相对应的激光脉冲的半峰全宽为 5 fs; $\delta(t) = -\beta \cdot \tanh[(t - t_0)/\tau_0]$ 为啁啾形式, 通过调整参数 β 、 t_0 和 τ_0 可控制其形式, 在计算中选取 $\beta = 3$ 、 $t_0 = 0$ 、

$\tau_0 = 200$ a.u.; ϵ 为空间非均匀性参数, 被设置为 0.006。初始态为基态和第二激发态的等权相干叠加态, 可表示为

$$\psi(x, t_0) = \frac{1}{\sqrt{2}}(|g\rangle + |2e\rangle), \quad (3)$$

式中: $|g\rangle$ 表示基态波函数; $|2e\rangle$ 表示第二激发态波函数。此处, 选择第二激发态而不是第一激发态是基于两方面原因: 1) 模型 He^+ 离子的第二激发态束缚能更接近真实 He^+ 离子的第一激发态束缚能; 2) 当初态为基态和第二激发态的叠加态时, 可以获得转换效率极高的超宽连续谱, 并产生脉宽超短的单个阿秒脉冲, 然而当初态为基态和第一激发态的叠加态时, 在激光参数不变的条件下, 不能获得光滑且规整的连续谱。

利用二阶分裂算符方法求解(1)式, 可获得体系在任意时刻的波函数 $\psi(x, t)$ 。在计算中, 电子波包演化的空间长度为 2457.6, 空间步长为 0.15, 时间步长为 0.02, 同时为了有效避免波函数在边界处发生反射, 引入了一个吸收函数。根据 Ehrenfest 定理^[33], 电子含时偶极加速度 $a(t)$ 可表示为

$$a(t) = \langle \psi(x, t) | -\frac{\partial V(x)}{\partial x} + E(x, t) + x \frac{\partial E(x, t)}{\partial x} | \psi(x, t) \rangle. \quad (4)$$

通过对电子偶极加速度 $a(t)$ 进行傅里叶变换, 可获得高次谐波功率谱, 具体表达式为

$$P_q(\omega) = \left| \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^T a(t) \exp(-iq\omega t) dt \right|^2, \quad (5)$$

式中: q 表示谐波阶次。

处在第 n 个束缚态的电子的布居概率为

$$p = |\langle \varphi_n(x) | \psi(x, t) \rangle|^2, \quad (6)$$

式中: $\varphi_n(x)$ 为第 n 个束缚态的波函数。

通过叠加数次谐波, 可以得到阿秒脉冲的时域分布为

$$I(t) = \left| \sum_q a_q \exp(iq\omega t) \right|^2, \quad (7)$$

式中: $a_q = \int a(t) \exp(-iq\omega t) dt$ 。

3 结果与讨论

图 1 所示为初态为 He^+ 的基态和第二激发态的等权叠加时其在三种激光场作用下的高次谐波谱, 激光脉冲的参数如下: 中心波长 800 nm, 脉冲宽度 5 fs, 强度 $I = 3 \times 10^{14} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ 。从图 1(a) 可知, 在单个啁啾场作用下 ($\beta = 3$), 谱截止位置仅处于第 104 阶次谐波, 第 88 阶次以上的谐波是连续的, 这

对应一个宽度仅为 25 eV 的连续谱。在单个空间非均匀场作用下 ($\epsilon = 0.006$), 谐波截止扩展到第 210 阶次谐波, 从第 81 阶次到第 210 阶次的谐波是连续的, 对应的连续谱宽度为 200 eV。利用这两种光场能够得到连续谱, 但连续谱宽度窄且显示强的调制, 这对单个超短阿秒脉冲的产生是非常不利的。为了更大拓展谐波截止阶次, 进而加宽连续谱的宽度, 本文引入一个啁啾参数到空间非均匀场中, 以下称为空间非均匀啁啾场 ($\epsilon = 0.006, \beta = 3$), 产生的高次谐波谱如图 1(b) 所示。由图 1(b) 可看出, 谐波谱显示出不同的结构, 在这种情况下, 谐波谱几乎显示为一个平台结构, 且谱截止扩展到第 932 阶次谐波, 并且第 240 阶次以上的谐波是连续的。与以上两种光场单独作用下得到的谐波谱相比: 在空间非均匀啁啾场作用下, 谱截止至少扩展了 722 阶次; 此外, 谐波谱变得更规整、更光滑, 且光滑谐波覆盖极其宽的频谱范围, 形成了一个宽度约为 1073 eV 的超连续谱, 这远远大于单个啁啾场或者单个空间非均匀场作用下所产生的连续谱的宽度。如此宽的连续谱意味着: 在空间非均匀啁啾场作用下, 能够产生脉宽超短的单个阿秒脉冲。

图 2(a) 所示为空间非均匀啁啾场中第二激发态的布居概率 p 取不同值时得到的谐波谱。由图 2(a) 可知: 1) 改变第二激发态的布居概率 p 不会改变谱的结构和截止位置, 仅仅影响谐波转换效率, 甚至在非常低的初始布居概率 ($p = 0.01$) 条件下谐波谱也符合这个特征; 2) 当第二激发态的初始布居概率 p 从 0.3 改变到 0.7 时, 谐波转换效率几乎没有发生明显的变化; 3) 对于第二激发态布居概率 p 的所有取值, 都能取得光滑且规整的超连续谱。为了进一步探索谐波转换效率和第二激发态初始布居概率 p 之间的变化关系, 本文给出了连续谱的激发效率随 p 的变化曲线, 如图 2(b) 所示。需要注意的是, 通过对 240~1210 阶次的谐波进行求和, 可得到连续谱的激发效率。由图 2(b) 可知: 当 $p < 0.3$ 时, 连续谱的激发效率随 p 的增加而线性增加; 当 $p > 0.7$ 时, 连续谱的激发效率随 p 的增加而线性减小; 然而, 当 p 在 0.3~0.7 范围内取值时, 连续谱的激发效率几乎没有发生明显变化。这说明在本文的方案中第二激发态的布居概率取值并不是那么严格, p 稍大于 0.5 还是稍小于 0.5 对结果影响不大。上述特点使得实验上制备叠加态的难度大大降低, 有利于人们在实验上实施本文所提出的方案。

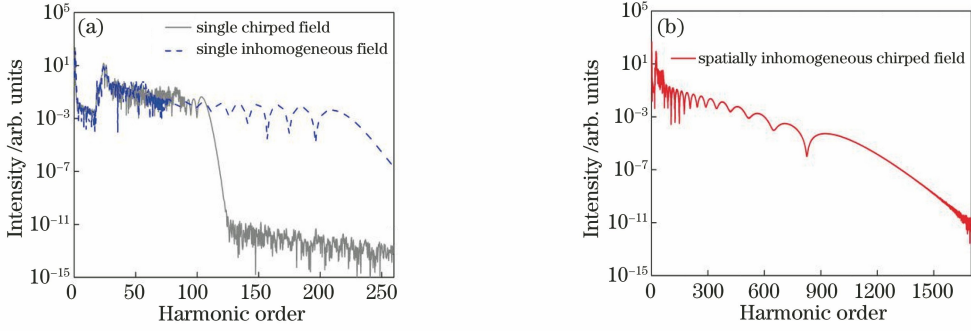


图 1 不同激光场作用下 He^+ 的谐波谱。(a)啁啾场和空间非均匀场;(b)空间非均匀啁啾场
Fig. 1 Harmonic spectra of He^+ driven by different laser fields. (a) Chirped and spatially inhomogeneous fields; (b) spatially inhomogeneous chirped field

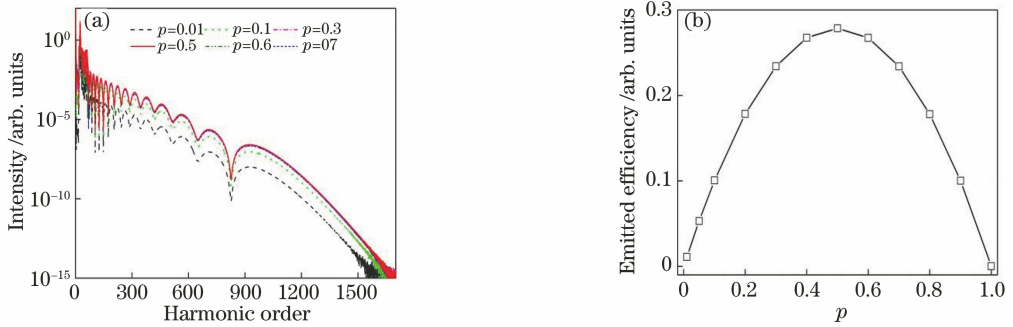


图 2 谐波谱和连续谱的激发效率。(a)空间非均匀啁啾场中 p 取不同值时的谐波谱;
(b)连续谱(240~1210 阶次)的激发效率随 p 的变化关系

Fig. 2 Harmonic spectra and emitted efficiency of the supercontinuum. (a) Harmonic spectra in the spatially inhomogeneous chirped field with different p values; (b) emitted efficiency of the supercontinuum from 240th to 1210th order as a function of p

为了更深地理解本文方案中谐波谱的时频特性,应用小波变换计算得到了谐波阶次与发射时间的关系,结果如图 3(c)所示(1 o.c. ≈ 2.67 fs)。作为对比,本文也分别给出了单个啁啾场和单个空间非均匀场中高次谐波的时频分布图像,如图 3(a)和图 3(b)所示。在单个啁啾场作用下,有三个峰贡献于谐波产生,分别标记为 P_1 、 P_2 和 P_3 ,其中 P_1 和 P_2 的强度相当,且它们的强度更强于 P_3 ,于是可忽略 P_3 对高次谐波的贡献。另外,对于高于 88 阶次的谐波,每次谐波都有两个发射时间不同的电子路径与之对应,其中正的上升沿对应着短路径,负的下落沿对应着长路径,这就是所谓的长短路径。因为长短路径中的谐波具有几乎相同的强度,所以它们之间的干涉导致了谐波谱显示为强的调制结构,如图 1 (a)中实线所示,这不利于单个阿秒脉冲的产生。从图 3(b)可知:在单个空间非均匀场作用下,仍然有三个峰贡献于高次谐波发射,分别记为 P'_1 、 P'_2 和 P'_3 ,其中 P'_1 和 P'_3 主要贡献 80 阶次以下的谐波,而 80 阶次以上的谐波仅来自 P'_2 的贡献,这使得 80 阶次以上

的谐波是连续的。对于 P'_2 峰,由于短路径和长路径发射时间的差别不是很大,因此可将两个路径并合,其中短路径起主导作用。但短路径谐波的发射时间随着谐波阶次的增加而增加,使得这些谐波在相对长的时间内被激发,因此平台谐波并不完全锁相,仅仅选择合适阶次的谐波进行叠加才能够获得单个短阿秒脉冲,如图 4(a)中虚线所示。在空间非均匀啁啾场作用下,仅有两个发射峰 P'_1 和 P'_2 对谐波产生有贡献,如图 3(c)所示。由于 P'_2 峰高能部分的强度很弱(240 阶次以上),所以 240 阶次以上的谐波主要来自 P'_1 的贡献,这也预示着高于 240 阶次的谐波是连续的。与单个啁啾场和单个空间非均匀场中得到的结果相比较,最高峰 P'_1 的最大谐波级次更高于 P_2 和 P'_2 ,而次高峰 P'_2 的最大谐波级次略高于 P_1 和 P'_1 ,因此,在空间非均匀啁啾场作用下,谱截止更高,连续谱更宽。此外,对于连续谐波,仅电子短路径被选取,而长路径被完全抑制,这使得连续谱呈现更光滑、更规整的谱结构,同时说明了量子路径选取已经实现。

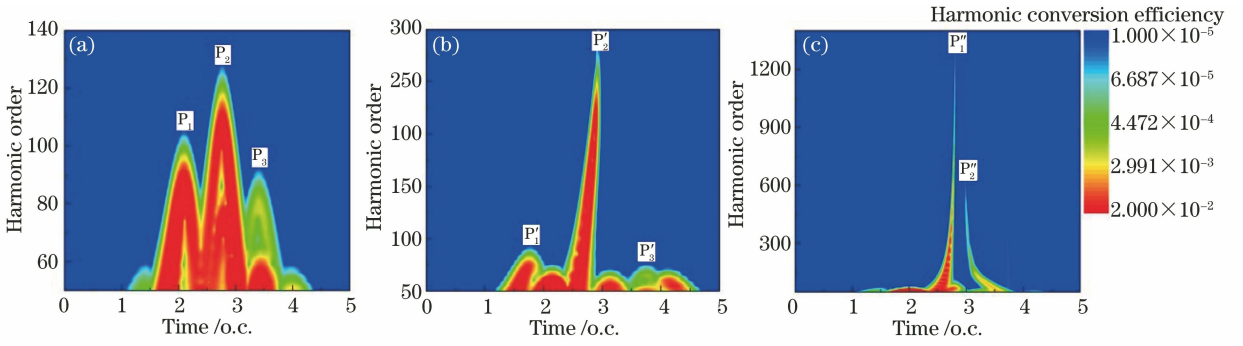


图 3 高次谐波谱的时频分布。(a)单个啁啾场;(b)单个空间非均匀场;(c)空间非均匀啁啾场

Fig. 3 Time-frequency distributions for the HHG spectra. (a) Single chirped field; (b) single spatially inhomogeneous field; (c) spatially inhomogeneous chirped field

通过以上分析,可以得出结论:空间非均匀啁啾场驱动不仅可以有效地扩展谐波截止,而且可以产生频带很宽且只有单个量子路径起主导作用的连续谱。而量子路径选取的一个直接应用就是产生单个阿秒脉冲。为了证实本文的观点,对空间非均匀啁啾场中阿秒脉冲的产生情况进行了研究。作为对比,也给出了单个啁啾场和单个空间非均匀场中阿秒脉冲的合成情况,如图 4(a)所示。对于单个啁啾场,通过叠加 88~104 阶次的谐波,在时域上得到了两个阿秒脉冲,其中弱的 121 as 脉冲来自短路径,而稍强的 128 as 脉冲来自长路径。对于单个空间非均匀场,选择 190~240 阶次的谐波进行叠加,在时域上得到了一个脉宽为 64.6 as 单个脉冲,如图 4(a)中的虚线所示。注意:在目前的激光与物质条件下,虽然利用空间非均匀场可以获得单个脉冲,但脉

冲的持续时间大于原子中电子运动的时间尺度,即 24 as,因此其应用受到了限制。图 4(b)~(d)是空间非均匀啁啾场中通过叠加连续谱上不同阶次谐波所得到的阿秒脉冲时域包络。选择 850~1080 阶次的谐波进行叠加,对应的谱宽为 357 eV,在没有任何相位补偿的情况下,直接获得了一个脉宽仅为 13 as 的单个脉冲,非常接近理论计算得到的傅里叶极限脉宽 11.6 as,如图 4(b)所示。这个脉宽 13 as 的单个脉冲的中心波长约为 0.83 nm,仅仅包含 4.69 个光周期。如此短的单个阿秒脉冲对于人们研究原子分子内电子动力学行为有着重要的意义。计算结果表明:通过过滤连续谱上不同阶次的谐波,可以得到一系列单个超短阿秒脉冲,且脉宽都在 24 as 以下,如图 4(c)和 4(d)所示,这使得在实验上产生脉宽超短的单个阿秒脉冲极为方便。

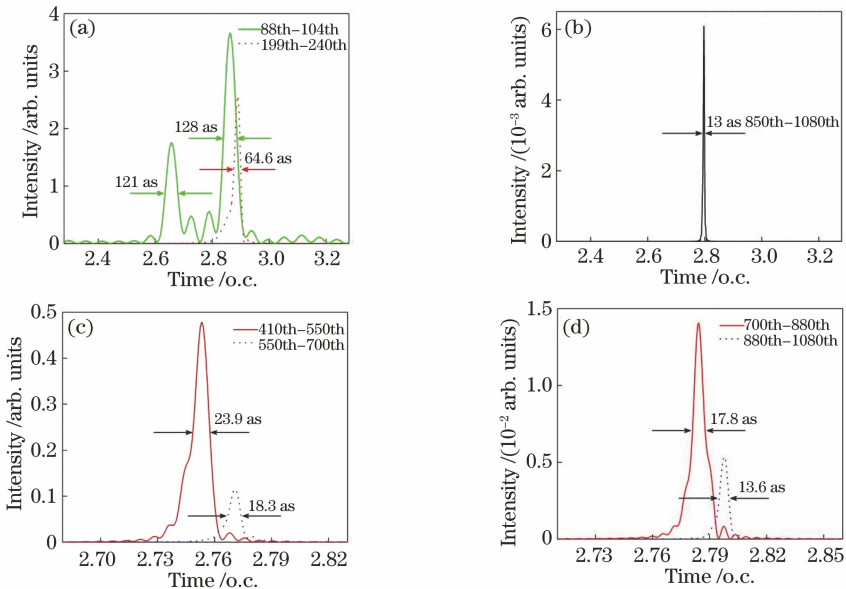


图 4 叠加不同阶次谐波得到的阿秒脉冲时域包络。(a)啁啾场和空间非均匀场;(b)~(d)空间非均匀啁啾场

Fig. 4 Temporal profiles of the attosecond pulses by superposing different order harmonics. (a) Chirped and spatially inhomogeneous fields; (b)~(d) spatially inhomogeneous chirped field

为了更好地理解高次谐波辐射的物理机制,本文应用经典三步模型给出了以上三种光场作用下谐波阶次与电子的电离时间和发射时间之间的关系,计算结果如 5(a)~(c)所示。如图 5(a)所示,在单个啁啾场作用下,主要有三个电离峰对谐波产生有贡献,分别标记为 R_1 、 R_2 和 R_3 ,相应峰的最大谐波阶次依次为 81、102 和 76。因此,仅峰 R_2 对 81 阶次以上的谐波有贡献,即连续谐波来自 R_2 的贡献。对于连续谐波,每次谐波都有两个不同电子路径与之对应,其中先电离后复合的称为长路径,先复合后电离的称为短路径。随着谐波阶次的增加,长路径的发射时间减小,而短路径的发射时间增加;当谐波阶次达到最大值时,两个路径的发射时间是相同的。由于长短路径同时存在,它们之间的干涉导致了连续谐波谱呈现强的调制结构,同时也说明了叠加一些连续谐波将会产生两个阿秒脉冲。在单个空间非均匀场作用下,仍然有三个主要的电离峰贡献于谐波产生,在图 5(b)中分别以 R'_1 、 R'_2 和 R'_3 表示。由于驱动场的空间非均匀性, R'_1 和 R'_3 被压制,其最大谐波阶次分别为 67 和 60,而 R'_2 被有效地扩展至 196 阶次。因为最高峰被扩展,而次高峰被减小,所以最高峰和次高峰之间的频率差被加大,加大的频率差导致了连续谱变得更宽。从图 5(b)也可以看出,对于 67 阶次以上谐波,虽然有两个电离时间和两个发射时间对应同一阶次谐波,即所谓的长短路径,但长

短路径的发射时间比较接近,两个路径基本重合在一起。且由于高次谐波存在固有啁啾,这些谐波并不完全锁相,只有选择一段谐波阶次进行叠加才会获得单个阿秒脉冲。在空间非均匀啁啾场作用下,高次谐波的量子路径得到了明显的调制,如图 5(c)所示。在这种情况下,高次谐波主要来自两个电离峰 R''_1 和 R''_2 的贡献,其中 R''_1 的最高阶次为 224,而 R''_2 的最高阶次达到了 792。与图 5(a)和 5(b)中的结果相比,最高峰的谐波阶次被有效拓展,且相邻最高峰和次高峰之间的能量差也被加大,这也是空间非均匀啁啾场作用下谱截止位置及连续谱宽度得到大幅度提升的主要原因。此外,谐波截止扩展也可以按照另一种观点进行解释:即电子电离后,反向电场的的时间间隔越长,电子从驱动激光场中获得的动能就越高。在所提方案中,正如图 5(e)所示,在 1.51 o.c.时刻电离的电子,经从 2.16 o.c.到 2.79 o.c.的反向电场的加速,获得了 1174 eV 的动能,然后在 2.79 o.c.时刻与母核复合并发射出一个 1229 eV 的高能光子,这对应截止谐波,即 792 阶次谐波。然而,在空间非均匀场中,如图 5(d)所示,谐波截止归功于电离时刻在 1.75 o.c.而复合时刻在 2.86 o.c.的电子。在这种情况下,反向电场的作用时间范围为 2.24 o.c.到 2.74 o.c.,电子电离后仅获得了 249 eV 的动能。因此,在空间非均匀啁啾场作用下,谱截止扩展是因为电离后的电子在激光场中经历了更长的

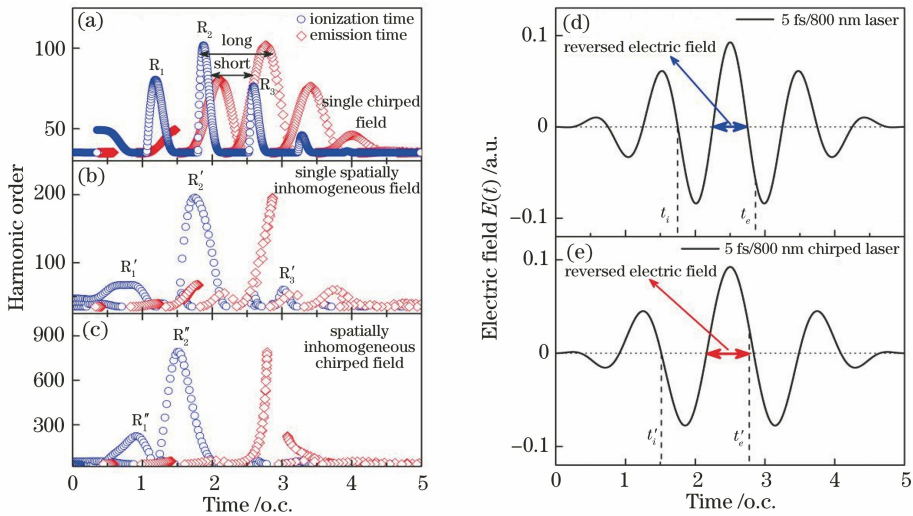
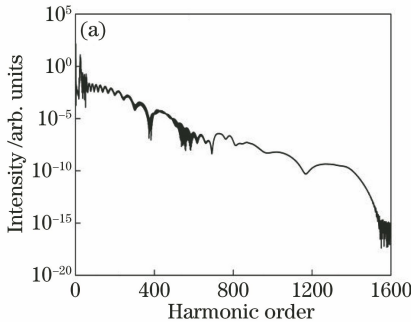


图 5 经典轨道模拟和激光脉冲的电场。(a)~(c)三种光场作用下,谐波阶次与电子的电离时间和发射时间之间的关系;(d)中心波长 800 nm、脉宽 5 fs 的激光脉冲的电场;(e)中心波长 800 nm、脉宽 5 fs 的啁啾激光脉冲的电场
Fig. 5 Classical trajectory simulation and electric fields of the laser pulses. (a)–(c) Dependence of the harmonic order on the ionization and emission times in three light fields; (d) electric field of the laser pulse with central wavelength of 800 nm and pulse width of 5 fs; (e) electric field of the chirped laser pulse with central wavelength of 800 nm and pulse width of 5 fs

时间加速,从而获得了更高的能量。从图 5(c)还可以看出,对于 R_2'' 峰,每次谐波来自两个路径的贡献,但由于长短路径的发射时间完全相同,两个路径完美重合在一起且短路径起主导作用,也就是说这些连续谐波被同时激发,且相位是同时锁定的。另一个显著特征就是 R_2'' 对应的谐波复合峰比 R_2' 对应的谐波复合峰更陡,这说明空间非均匀场结合啁啾效应可以有效地减小谐波啁啾,更有利于实现单个超短阿秒脉冲的输出。

在计算中,发现当啁啾参数 t_0 被设置为 105 a.u.时,谱截止和连续谱宽度能得到大幅度的拓展,并且产生了脉宽仅为 7.4 as 的单个阿秒脉冲。为了验证这个观点,研究了这种情况下的谐波谱和阿秒脉冲的产生情况。图 6(a)所示为 $t_0 = 105$ a.u.时计算得到的高次谐波谱,其他参数与图 1(b)中相同。从图 6(a)可知,在这种情况下,谐波谱截止位置在第 1450 阶次处,并且 570 阶次以上的谐波都是连续的,这对应一个宽度为 1364 eV 的连续谱。与 $t_0 = 0$ 时的结果相比,在 $t_0 = 105$ a.u.时谱截止位置和连续谱宽度都得到了极大的延伸。图 6(b)所示



为 $t_0 = 105$ a.u.时的高次谐波时频分布,可观察到,主要有三个发射峰对高次谐波产生有贡献,分别以 I_1 、 I_2 和 I_3 标记,相应峰的最高谐波阶次分别为 570、460 和 1450。在这三个峰中, I_1 峰的强度最强,而 I_2 峰的强度最弱,因此高于 570 阶次的谐波主要归功于 I_3 的贡献,这也导致谐波谱的高频区域中出现了一个非常宽的超连续谱。另外,对于连续谐波,仅短路径被选取贡献于谐波产生,这意味这部分谐波是相位锁定的,同时也解释了连续谱呈现光滑规整的谱结构的原因。对于低于 570 阶次的谐波,由于每次谐波来自三个发射峰的贡献,它们之间的强干涉导致了谐波谱的低能部分显示为不规整的谱结构。此外,连续谱主要集中在 4.313 o.c.时刻发射,特别是谐波谱的高能部分,这暗示了叠加这个区域的谐波将会生成一个脉宽超短阿秒脉冲。图 7 所示为叠加 1090~1450 阶次谐波得到的阿秒脉冲时域包络,其脉宽仅为 7.4 as,这与公式 $\Delta T = T_0/N$ 的预测值相吻合^[34]。需要强调的是:在 $t_0 = 105$ a.u.时,通过滤出连续谱上不同阶次的谐波,可获得中心波长可调谐的、脉宽在 24 as 以内的单个阿秒脉冲。

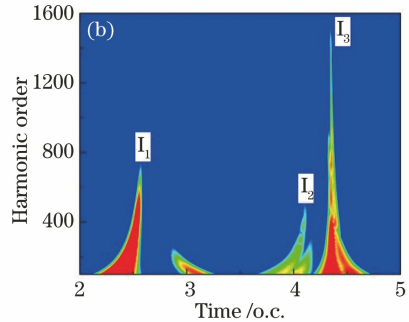


图 6 空间非均匀啁啾场中 $t_0 = 105$ a.u.时的高次谐波谱和时频分布。(a)高次谐波谱;(b)时频分布

Fig. 6 HHG spectrum and time-frequency distribution in the spatially inhomogeneous chirped field with $t_0 = 105$ a.u.. (a) HHG spectrum; (b) time-frequency distribution

4 结 论

本文提出一种可直接获得脉宽超短的单个阿脉冲的新方案。利用空间非均匀啁啾场结合叠加态方案,不仅实现了高次谐波截止位置的有效拓展,而且产生了一个频带极宽的超连续谱。由于宽带连续谱仅来自单一短量子路径的贡献,叠加连续谱上的一段谐波,可直接获得一个时域干净的、脉宽为 13 as 的单个脉冲。研究结果也表明:通过优选啁啾参数,可实现谐波截止和连续谱宽度的进一步延伸,与此同时可获得脉宽仅为 7.4 as 的单个脉冲。值得注意的是,本文提出的方案具有以下几个特点: 1) 第二

激发态的电子布居概率稍小于或稍大于 0.5 不会对高次谐波辐射和单个超短阿秒脉冲的合成产生显著的影响; 2) 由于宽带连续谱覆盖极其宽的带宽,且只有单一量子路径起主导地位,通过滤出连续谱上不同阶次的谐波,在没有任何啁啾补偿的情况下,可直接生成不同脉宽的单个超短阿秒脉冲; 3) 对于宽带连续谱及单个超短阿秒脉冲的产生而言,本文中 ϵ 和 β 的取值并不是唯一的。根据计算,当 ϵ 和 β 分别取 0.0051 和 4 或者 0.0041 和 5 组合值时,仍然能够获得超宽连续谱及单个超短阿秒脉冲。上述这些特点降低了该方案在实验上实施的难度,更有利于它的应用。实验上:中心波长 800 nm、脉冲宽度 5 fs

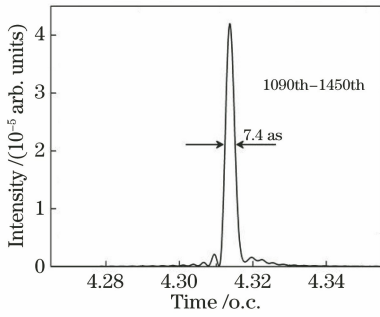


图 7 空间非均匀啁啾场中 $t_0=105$ a.u.时叠加 1090~1450 阶次谐波得到的阿秒脉冲时域包络

Fig. 7 Temporal profile of the attosecond pulse by superposing the harmonics from 1090th to 1450th order in the spatially inhomogeneous chirped field with $t_0=105$ a. u.

的激光脉冲可通过层叠成丝压缩技术来实现;线性空间分布可通过设计金属纳米材料的几何结构以及调节入射激光参数来获得;氦离子相干叠加态可通过单光子共振激发或者多光子共振激发来实现。另外,随着近年来梳状激光技术的发展,本文采用的啁啾形式在未来是可以取得的。总之,与单个空间非均匀场和单个啁啾场相比,该方案具有克服连续谱频带窄的特点,并且产生了频带极宽且只有单一量子路径起主导作用的超连续谱,这对于合成单个超短阿秒脉冲是非常有利的。然而,连续谱在 高能部分的转换效率仍然较低,这导致了阿秒脉冲的强度不高,未来本课题组将探索增强谐波转换效率的新方案,以便获得高强度的单个超短阿秒脉冲。

参 考 文 献

[1] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization[J]. Physical Review Letters, 1993, 71(13): 1994-1997.

[2] Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics [J]. Reviews of Modern Physics, 2009, 81(1): 163-234.

[3] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, et al. Attosecond metrology [J]. Nature, 2001, 414 (6863): 509-513.

[4] Kienberger R, Goulielmakis E, Uiberacker M, et al. Atomic transient recorder [J]. Nature, 2004, 427 (6977): 817-821.

[5] Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, et al. Single-cycle nonlinear optics [J]. Science, 2008, 320 (5883): 1614-1617.

[6] Chang Z H. Chirp of the single attosecond pulse generated by a polarization gating [J]. Physical Review A, 2005, 71(2): 023813.

[7] Sansone G, Benedetti E, Calegari F, et al. Isolated

single-cycle attosecond pulses [J]. Science, 2006, 314 (5798): 443-446.

[8] Gaumnitz T, Jain A, Pertot Y, et al. Streaking of 43-attosecond soft-X-ray pulses generated by a passively CEP-stable mid-infrared driver [J]. Optics Express, 2017, 25(22): 27506-27518.

[9] Zeng Z N, Cheng Y, Song X H, et al. Generation of an extreme ultraviolet supercontinuum in a two-color laser field [J]. Physical Review Letters, 2007, 98 (20): 203901.

[10] Lan P F, Lu P X, Cao W, et al. Isolated sub-100-aspulse generation via controlling electron dynamics [J]. Physical Review A, 2007, 76: 011402.

[11] 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.

刘璐, 赵松峰, 李鹏程, 等. 激光的组合场相对相位对 CO 分子产生阿秒脉冲的影响 [J]. 中国激光, 2013, 40(9): 0902002.

[12] Carrera J J, Tong X M, Chu S I. Creation and control of a single coherent attosecond xuv pulse by few-cycle intense laser pulses [J]. Physical Review A, 2006, 74(2): 023404.

[13] Xiang Y, Niu Y P, Gong S Q. 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.

[14] Lan P F, Lu P X, Cao W, et al. Efficient generation of an isolated single-cycle attosecond pulse [J]. Physical Review A, 2007, 76(4): 043808.

[15] Du X J, Zhou X X, Li P C. Theoretical study on single attosecond pulse generated by midinfrared intense laser pulse [J]. Chinese Journal of 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.

[16] Lu R F, He H X, Guo Y H, et al. Theoretical study of single attosecond pulse generation with a three-colour laser field [J]. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, 2009, 42 (22): 225601.

[17] Zhai Z, Yu R F, Liu X S, et al. Enhancement of high-order harmonic emission and intense sub-50-as pulse generation [J]. Physical Review A, 2008, 78 (4): 041402.

[18] Li G C, Zheng Y H, Zeng Z N, et al. Intense keV IAP generation by orthogonally polarized multicycle midinfrared two-color laser fields [J]. Chinese Optics

- Letters, 2017, 15(7): 071901.
- [19] Lü X Y, Zhu R B, Song H, et al. Isolated attosecond pulse generation from a double optical gating scheme based on orthogonal polarization field [J]. Acta Physica Sinica, 2019, 68(21): 214201.
吕孝源, 朱若碧, 宋浩, 等. 基于正交偏振场的双光学控制方案获得孤立阿秒脉冲产生 [J]. 物理学报, 2019, 68(21): 214201.
- [20] Song H, Lü X Y, Zhu R B, et al. Isolated attosecond pulse generation from polarization gating pulse with 10 fs duration [J]. Acta Physica Sinica, 2019, 68(18): 184201.
宋浩, 吕孝源, 朱若碧, 等. 利用脉宽 10 fs 偏振控制脉冲获得孤立阿秒脉冲 [J]. 物理学报, 2019, 68(18): 184201.
- [21] Herink G, Solli D R, Gulde M, et al. Field-driven photoemission from nanostructures quenches the quiver motion [J]. Nature, 2012, 483(7388): 190-193.
- [22] Kim S, Jin J, Kim Y J, et al. High-harmonic generation by resonant plasmon field enhancement [J]. Nature, 2008, 453(7196): 757-760.
- [23] Park I Y, Kim S, Choi J, et al. Plasmonic generation of ultrashort extreme-ultraviolet light pulses [J]. Nature Photonics, 2011, 5(11): 677-681.
- [24] Ciappina M F, Biegert J, Quidant R, et al. High-order-harmonic generation from inhomogeneous fields [J]. Physical Review A, 2012, 85(3): 033828.
- [25] Shaaran T, Ciappina M F, Guichard R, et al. High-order-harmonic generation by enhanced plasmonic near-fields in metal nanoparticles [J]. Physical Review A, 2013, 87(4): 041402.
- [26] Pérez-Hernández J A, Ciappina M F, Lewenstein M, et al. Beyond carbon K-edge harmonic emission using a spatial and temporal synthesized laser field [J]. Physical Review Letters, 2013, 110(5): 053001.
- [27] Yavuz I, Bleda E A, Altun Z, et al. Generation of a broadband xuv continuum in high-order-harmonic generation by spatially inhomogeneous fields [J]. Physical Review A, 2012, 85: 013416.
- [28] Luo J H, Li Y, Wang Z, et al. Ultra-short isolated attosecond emission in mid-infrared inhomogeneous fields without CEP stabilization [J]. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, 2013, 46(14): 145602.
- [29] Luo J H, Li Y, Wang Z, et al. Efficient isolated attosecond emission in a pre-excited medium using noncarrier-envelope phase-stabilized nanoplasmonic fields [J]. Journal of the Optical Society of America B, 2013, 30(9): 2469-2475.
- [30] Feng L Q, Liu H. Attosecond extreme ultraviolet generation in cluster by using spatially inhomogeneous field [J]. Physics of Plasmas, 2015, 22(1): 013107.
- [31] Zhang G T. Generation of an extreme ultraviolet supercontinuum in a two-color spatially inhomogeneous field [J]. Journal of Modern Optics, 2015, 62(18): 1515-1526.
- [32] Zhang G T, Bai T T. Intense isolated short attosecond pulse generation from a coherent superposition state in a spatially inhomogeneous field [J]. Zeitschrift Für Naturforschung A, 2018, 73(4): 303-313.
- [33] Burnett K, Reed V C, Cooper J, et al. Calculation of the background emitted during high-harmonic generation [J]. Physical Review A, 1992, 45(5): 3347-3349.
- [34] Antoine P, L'Huillier A, Lewenstein M. Attosecond pulse trains using high-order harmonics [J]. Physical Review Letters, 1996, 77(7): 1234-1237.