

引用格式: XU Chen-hui, CHEN Yan-bo, HE Li-wei, *et al.* Optimization of Two-color Chirped Laser Waveform for Extending High-order Harmonic Cut-off Energy and Generating Isolated Attosecond Pulse (Invited)[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2020, 49(11):1149007

徐晨辉,陈炎波,何黎伟,等. 优化两色啁啾激光波形来拓宽高次谐波截止能量和产生孤立阿秒脉冲(特邀)[J]. 光子学报, 2020, 49(11):1149007

优化两色啁啾激光波形来拓宽高次谐波截止 能量和产生孤立阿秒脉冲(特邀)

徐晨辉,陈炎波,何黎伟,金成

(南京理工大学 应用物理系,南京 210094)

摘要:多色激光相干合成的波形可用来调控强场过程.通过在频域上优化两色啁啾激光脉冲形成的“时间门”,实现了高次谐波截止能量的拓展和孤立阿秒脉冲的产生.考虑了宏观传播效应后,高次谐波发射峰中的长轨道电子贡献被抑制,导致它的持续时间缩短,产生了X射线波段内脉冲宽度为200 as左右的孤立阿秒脉冲,为实验中产生超短阿秒脉冲提供了新思路.

关键词:高次谐波;孤立阿秒脉冲;基因遗传算法;两色激光波形;宏观传播效应

中图分类号:O562.4

文献标识码:A

doi:10.3788/gzxb20204911.1149007

Optimization of Two-color Chirped Laser Waveform for Extending High-order Harmonic Cut-off Energy and Generating Isolated Attosecond Pulse (Invited)

XU Chen-hui, CHEN Yan-bo, HE Li-wei, JIN Cheng

(Department of Applied Physics, Nanjing University of Science and Technology, Nanjing 210094, China)

Abstract: The strong-field processes can be controlled by the waveforms coherently synthesized by multi-color laser pulses. By using the “temporal gate” formed by the optimized two-color chirped laser pulse in the frequency domain, the extension of cut-off energy in the high-order harmonic generation and the generation of isolated attosecond pulse are achieved. By considering the macroscopic propagation effects, the contribution of long-trajectory electron in the high-harmonic emission burst is suppressed, leading to the reduction of its duration, thus the isolated attosecond pulse with the duration of about 200 as is generated in the X-rays, which provides with new hints for producing ultrashort attosecond pulses in the experiments.

Key words: High-order harmonic generation; Isolated attosecond pulse; Genetic algorithm; Two-color laser waveform; Macroscopic propagation effect

OCIS Codes: 020.2649; 020.4180; 140.7090; 190.2620; 320.2250

0 引言

超快飞秒激光与气体介质相互作用产生的高次谐波(High-order Harmonic Generation, HHG)可以提供从极紫外(Extreme Ultraviolet, XUV)到X射线的光源^[1].与同步辐射加速器和自由电子激光(Free Electron Laser, FEL)等光源相比,高次谐波是一种理想的桌面光源,具有很好的时间和空间相干性,是超快时间分辨

基金项目:国家自然科学基金(Nos. 11774175, 91950102, 11834004)

第一作者:徐晨辉(1996-),男,硕士研究生,主要研究方向为气体高次谐波产生. Email: xuchenhui529@163.com

导师(通讯作者):金成(1980-),男,教授,博士,主要研究方向为原子、分子和固体高次谐波产生;超快阿秒脉冲作用下的非线性光学;X射线阿秒脉冲的产生与诊断. Email: cjin@njust.edu.cn

收稿日期:2020-08-24;录用日期:2020-10-15

<http://www.photon.ac.cn>

的泵浦-探测光谱学和探测电子动力学研究中的重要工具^[2-4].高次谐波的另一个重要应用就是产生阿秒脉冲,其中包括阿秒脉冲串(Attosecond Pulse Train, APT)^[5]和孤立阿秒脉冲(Isolated Attosecond Pulse, IAP)^[6].

自2001年HENTSCHEL M等利用气体高次谐波获得脉冲持续时间为650 as的首个孤立阿秒脉冲以来^[6],人们关注的焦点集中于如何缩短它的脉冲宽度,提高光子能量和增强脉冲能量^[7-10],由此发展了一些不同的实验方法.2004年,KIENBERGER R等使用5 fs的短脉冲驱动光源得到了约250 as的孤立阿秒脉冲^[11];四年后,GOULIEMAKIS E等又利用3.8 fs的更短驱动光源产生了80 as的孤立阿秒脉冲^[12].2006年,SANSONE G等改进驱动光场选通门技术,得到了130 as的孤立阿秒脉冲^[13].2012年,双光学门(Double Optical Gating, DOG)技术的应用将孤立阿秒脉冲的脉冲宽度缩短到了67 as^[14].由于高次谐波的截止能量与驱动激光波长的平方成正比,因此,中红外激光技术的发展大大拓展了驱动激光的波长范围,为产生X射线波段内的孤立阿秒脉冲提供了条件.CHEN Ming-chang等利用波长为2 μm 的多周期激光,通过瞬时相位匹配,获得了180 eV左右的孤立阿秒脉冲^[15].SILVA F等通过旋转中红外激光波前,得到了可延展到284 eV的连续光谱,可用来产生400 as的孤立阿秒脉冲^[16].2017年,LI Jie等利用波长为1.8 μm 的中红外激光,通过极化门(Polarization Gating, PG)技术获得了53 as的孤立阿秒脉冲^[17],同一年,GAUMNITZ T等利用中红外驱动激光获得了截止能量为180 eV、频谱宽度可达100 eV的连续光谱,通过Volkov变换广义投影算法(Volkov-Transform Generalized Projection Algorithm, VTGPA)测定,其在时间上对应43 as的孤立阿秒脉冲^[18].2018年,JOHNSON A S等利用1800 nm激光在高电离条件下时空特性的改变,获得了光子能量为600 eV的连续高次谐波,可用来产生软X射线单个阿秒脉冲^[19].然而,在中红外激光作用下,高次谐波的产生效率会以 λ^{-4} 到 λ^{-6} 衰减^[20-22],其中 λ 是驱动激光波长,因此,如何有效改善高次谐波的产生效率成为一个亟待解决的问题.同时,为了有效产生X射线波段内的孤立阿秒脉冲,还需要发展高效、稳定和易操作的时间门方案.

通过调整多色激光相干合成的波形可为解决上述问题提供可行途径.近年来,随着激光技术的迅速发展,人们可以在实验上精确控制双色甚至多色激光相干合成的任意光学波形^[23-28],并且已经用于产生孤立阿秒脉冲^[25].2020年,ALISMAIL A等基于高重复频率激光器,利用中心波长分别为1 μm 和2 μm 的两色激光进行了波形合成,理论上预期可产生脉宽为3 fs的超短波形^[29];XUE Bin等通过光学参量放大(Optical Parametric Amplification, OPA)技术,生成了稳定的三色激光波形,在60 eV附近产生的连续高次谐波谱的能量可以达到0.24 μJ ^[30];ROSSI G M等在两个独立通道内,分别利用光学参量放大技术获得载波相位稳定的激光脉冲,然后将它们相干合成来生成任意波形^[31].然而,实验中影响多色激光波形的参数众多,需要根据实验目标,由理论先来确定激光波形.目前,基于基因遗传算法(Genetic Algorithm, GA)优化多色激光波形来产生高次谐波或孤立阿秒脉冲是强场理论最常用的方法^[9,32-34].2009年,CHIPPERFIELD L E等提出的“完美波”可以显著提高谐波截止能量^[35],通过合成五色激光脉冲,可以将谐波截止能量由原本800 nm激光产生的XUV波段拓展到软X射线波段,在保证谐波产率不变的同时将截止能量提高了2.5倍.2014年,JIN Cheng等提出了一种在单原子水平上构造多色激光波形的优化方案^[36],该方案同时考虑了高次谐波在非线性介质中的宏观传播效应,相较于单色激光场,谐波产率提高了1到2个数量级.2019年,HE Li-wei等通过优化两色啁啾激光相干合成的波形,形成了可产生软X射线内孤立阿秒脉冲的“时间门”,同时,产生的阿秒脉冲的强度得到了极大提高^[37].可是,该方案中激光啁啾率是在时间上定义的,优化得到的数值较大,实验上较难实现.如何优化得到实验上容易生成的两色啁啾激光波形是一个需要解决的问题.

针对上述问题,本文提出在频域上定义两色啁啾激光波形,利用遗传基因算法,对涉及的众多参数进行优化,在单原子响应层次,获得可以拓展截止能量和产生孤立阿秒脉冲的合成波形.首先,介绍多色激光波形优化、高次谐波的产生和传播,以及孤立阿秒脉冲产生的理论方法;其次,展示不同脉冲宽度下优化得到的激光波形、该波形与气体相互作用产生的单原子和宏观高次谐波光谱,以及产生的孤立阿秒脉冲;最后,展示利用不同波长的两色激光组合来进一步拓展高次谐波的平台范围.

1 理论方法

1.1 两色啁啾激光波形的优化

两色激光相干合成的波形可以在频域上写为

$$E(\omega) = |E_1(\omega)|e^{i\Phi_1(\omega)} + |E_2(\omega)|e^{i\Phi_2(\omega)} \quad (1)$$

式中, ω 为频率, $E_i(\omega)$ 和 $\Phi_i(\omega)$ ($i=1,2$) 分别为两色激光的幅度和相位. 相位还可以进一步表示为

$$\begin{aligned} \Phi_1(\omega) &= \Phi_{01} + \alpha_1\omega + \beta_1\omega^2 \\ \Phi_2(\omega) &= \Phi_{02} + \alpha_2\omega + \beta_2\omega^2 \end{aligned} \quad (2)$$

式中, 常数项 Φ_{01} 、 Φ_{02} 为激光的载波包络相位 (Carrier-Envelope Phase, CEP); 一次项系数 α_1 、 α_2 为激光的群延迟 (Group Delay, GD), 是相对于时间原点的延迟; 二次项系数 β_1 、 β_2 为激光的群延迟色散 (Group Delay Dispersion, GDD), 是由色散引起的脉冲的线性拉伸, 通过不同色散介质或者改变同种介质厚度都可以实现对群延迟色散的控制.

为了简化优化过程, 式(1)、(2)中的某些参数可以固定为: 两色激光的波长分别设置为 $\lambda_1 = 800 \text{ nm}$, $\lambda_2 = 1200 \text{ nm}$; α_1 、 α_2 都是用来计算相对于时间原点的延迟, 因此可以将 α_2 设置为 0, 只改变 α_1 ; 假定 $|E_1(\omega)|$ 和 $|E_2(\omega)|$ 在频域上保持高斯分布不变, 只改变峰值的大小; 两色激光的总强度固定不变, 如 $|E_1|^2 + |E_2|^2 = 3.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 其中, E_1 和 E_2 分别是傅里叶变换极限下两色激光在时间上的峰值电场强度. 因此, 优化的参数空间为 $\{E_1, \alpha_1, \beta_1, \beta_2\}$.

使用基因遗传算法进行参数优化^[38], 迭代次数至少达到数万次以保证得到收敛的结果. 在每一次迭代中, 使用定量重散射 (Quantitative Rescattering, QRS) 模型^[39-40] 计算高次谐波的单原子响应. 在 QRS 模型中, 目标靶原子体系的诱导偶极矩可以表示为

$$D(\omega) = W(\omega)d(\omega) \quad (3)$$

式中, $d(\omega)$ 是光复合跃迁矩阵元, 在考虑库伦势下, 可以通过求解单电子近似的不含时薛定谔方程 (Time-Independent Schrödinger Equation, TISE) 得到; $W(\omega)$ 是返回电子波包, 可以通过强场近似理论 (Strong Field Approximation, SFA)^[41] 得到.

优化过程中的目标函数定义为

$$F = \int_{\omega_{\min}}^{\omega_{\max}} \omega^4 |D(\omega)|^2 d\omega \quad (4)$$

式中, $\omega_{\min} = \omega_{\text{cut off}} - 10\omega_0$, $\omega_{\max} = \omega_{\text{cut off}} + 10\omega_0$, ω_0 为基频光的角频率, $\omega_{\text{cut off}}$ 为预设的截止频率 (或截止光子能量). 因为电子的电离发生在很短的时间间隔内, 在截止位置附近谐波强度的增强会相应地引起整个平台范围内谐波强度的增强. 在有啁啾的情况下, 设定的目标函数有利于在优化过程中将高次谐波的发射集中在一个较短的时间间隔内. 为了避免气体介质中等离子体对激光的散焦作用, 激光脉冲结束时的电离几率控制在较低水平, 设置为一个常数 (2%).

1.2 非线性介质中的宏观传播效应

完整描述气体介质中的高次谐波, 除了要计算单原子响应, 还需要考虑介质内的宏观传播效应. 前者可以通过 QRS 模型得到, 后者需要求解非线性介质中驱动激光场和高次谐波场的传播方程. 通过单原子响应优化得到的两色激光波形, 需要在宏观条件下检验其适用性.

详细的传播方程可以参考文献[42-46], 这里仅列出关键方程. 驱动激光在稠密的电离介质中的传播受色散、非线性自聚焦、电离和等离子体散焦的影响, 其演化可以由三维麦克斯韦方程^[46] 给出, 即

$$\nabla^2 E_1(r, z, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E_1(r, z, t)}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial J_{\text{abs}}(r, z, t)}{\partial t} + \frac{\omega_0^2}{c^2} (1 - \eta_{\text{eff}}^2) E_1(r, z, t) \quad (5)$$

式中, c 为光速, r 和 z 为空间坐标, t 为时间, $E_1(r, z, t)$ 为驱动激光的横向电场, η_{eff} 为有效折射率, J_{abs} 为由电离产生的吸收项. 高次谐波场在气体介质内的三维传播方程可表示为^[46]

$$\nabla^2 E_h(r, z, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E_h(r, z, t)}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial P(r, z, t)}{\partial t} \quad (6)$$

式中, $P(r, z, t)$ 为电场 $E_1(r, z, t)$ 作用下的非线性极化项. 通过求解式(6), 就可以得到气体介质出射表面的高次谐波, 称为近场高次谐波.

1.3 高次谐波时频分析和阿秒脉冲产生

为了分析不同阶次的谐波在时间上的发射特性, 采用小波变换进行时频分析, 即^[47-48]

$$A(t, \omega) = \int E_h(\tau) w_{t, \omega}(\tau) d\tau \quad (7)$$

式中, $w_{t, \omega}(\tau) = \sqrt{\omega} W[\omega(\tau - t)]$, 使用的Morlet小波^[47]为 $W(x) = (1/\sqrt{\nu}) e^{ix} e^{-x^2/2\nu^2}$, ν 取15.

为了避免近场高次谐波空间分布的复杂性, 在每个径向点上计算 $A(t, \omega)$, 然后对径向坐标进行积分, 即^[48-50]

$$|A_{\text{near}}(t, \omega)|^2 = \int_0^\infty 2\pi r dr \left| \int E_h(r, \tau) w_{t, \omega}(\tau) d\tau \right|^2 \quad (8)$$

选择某一频率范围($\omega_1 - \omega_2$)内的高次谐波来产生阿秒脉冲, 近场阿秒脉冲的强度^[49-50]计算公式为

$$I_{\text{near}}(t) = \int_0^\infty 2\pi r dr \left| \int_{\omega_1}^{\omega_2} E_h(r, \omega) e^{i\omega t} d\omega \right|^2 \quad (9)$$

2 结果与讨论

2.1 两色啁啾激光波形的优化

在优化过程中, 选用Ne原子体系, 两色激光的总能量保持不变. 首先选取优化的高次谐波目标截止能量为250 eV左右, 根据HE Li-wei等的研究^[37], 如果第一束激光选择为常用的Ti:sapphire激光(800 nm), 最优的第二束激光波长应该为1 200 nm. 把傅里叶变换极限下($\alpha_1, \beta_1, \beta_2$ 均为0)两色激光脉冲的持续时间都固定为16 fs, 利用基因遗传算法, 对参数 $\{E_1, \alpha_1, \beta_1, \beta_2\}$ 进行优化. 优化得到的参数见表1.

表1 不同初始条件下的两色激光波形优化参数

Table 1 Optimized laser parameters for the two-color waveform at different initial conditions

Run index	$E_1 / (\times 10^{14} \text{ W/cm}^2)$	$\alpha_1 / (\times 10^2 \text{ a.u.})$	$\beta_1 / (\times 10^2 \text{ a.u.})$	$\beta_2 / (\times 10^2 \text{ a.u.})$
1	1.50	1.00	-2.71	-1.80
2	1.49	0.99	-2.25	-1.60
3	1.50	0.99	-2.30	-1.98
4	1.46	1.25	-2.60	-1.71
5	1.58	1.03	-2.39	-1.92

图1(a)展示了利用表1中第一组数据得到的激光波形(o.c.为800 nm激光的光学周期). 虽然表1中各组数据之间有一些微小差别, 但是得到的激光波形与图1(a)几乎没有差别, 产生的高次谐波光谱也没有差

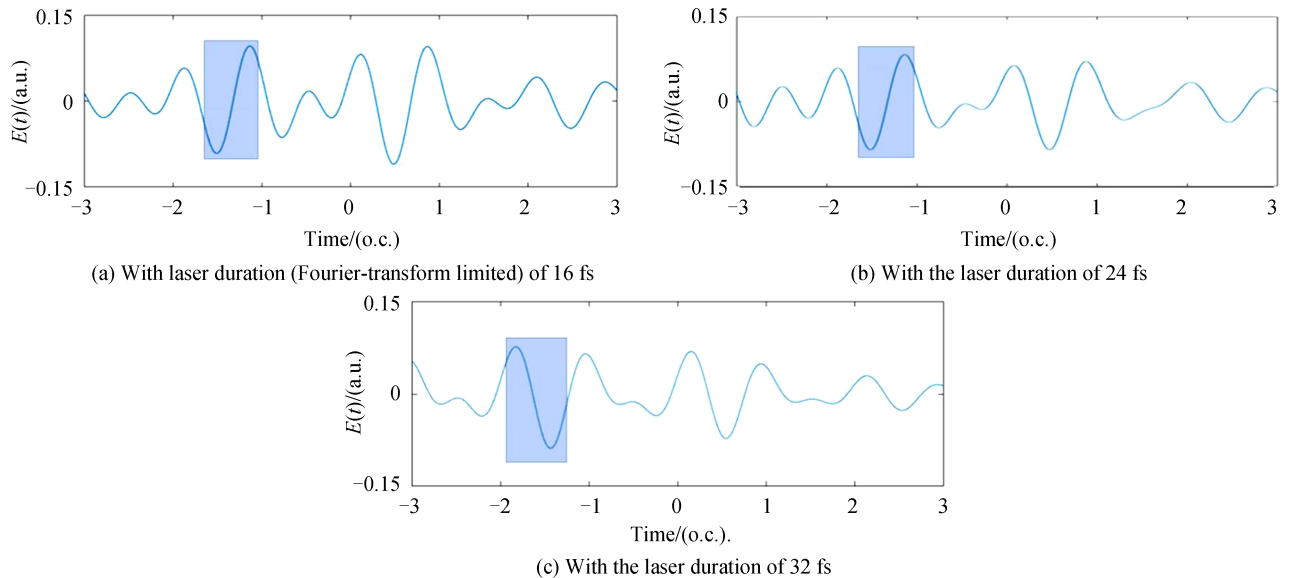


图1 优化的两色啁啾激光波形(蓝色区域为“时间门”, 可用于产生孤立阿秒脉冲)

Fig. 1 Optimized two-color chirped laser pulse (the blue areas indicate the “temporal gate” for the generation of IAPs)

别,因此,后续讨论中,只选取其中的一组数据.将傅里叶变换极限下两色激光脉冲的持续时间分别固定为24 fs和32 fs,其它条件和参数保持不变,通过相同的优化程序,得到的优化参数见表2,相应的激光波形如图1(b)和(c)所示.图1中的阴影区域为有效产生高次谐波的波形范围,即“时间门”,电子在这一波形内发生电离,并经过加速、复合,释放出高能光子,导致截止区以及平台区高次谐波的发射,可以通过求解电子在激光场中的牛顿运动方程来确定.可以看出,随着初始激光脉冲宽度的增加,激光波形在整个时域上的分布,尤其是在“时间门”范围内,基本保持不变,预示着可以利用两色长脉冲激光形成的“时间门”来产生孤立阿秒脉冲.

表2 激光脉冲宽度分别为24 fs和32 fs时的两色激光波形优化参数

Table 2 Optimized laser parameters for the two-color waveform for laser durations of 24 fs and 32 fs, respectively				
Pulse duration /fs	$E_1/(\times 10^{14} \text{ W/cm}^2)$	$\alpha_1/(\times 10^2 \text{ a.u.})$	$\beta_1/(\times 10^2 \text{ a.u.})$	$\beta_2/(\times 10^2 \text{ a.u.})$
24	1.50	0.99	-2.60	-1.80
32	1.52	0.91	-2.56	-1.72

2.2 高次谐波光谱截止能量拓展和孤立阿秒脉冲产生

图2(a)给出了优化的两色啁啾激光波形和Ne原子体系相互作用下得到的单原子高次谐波光谱,同时,

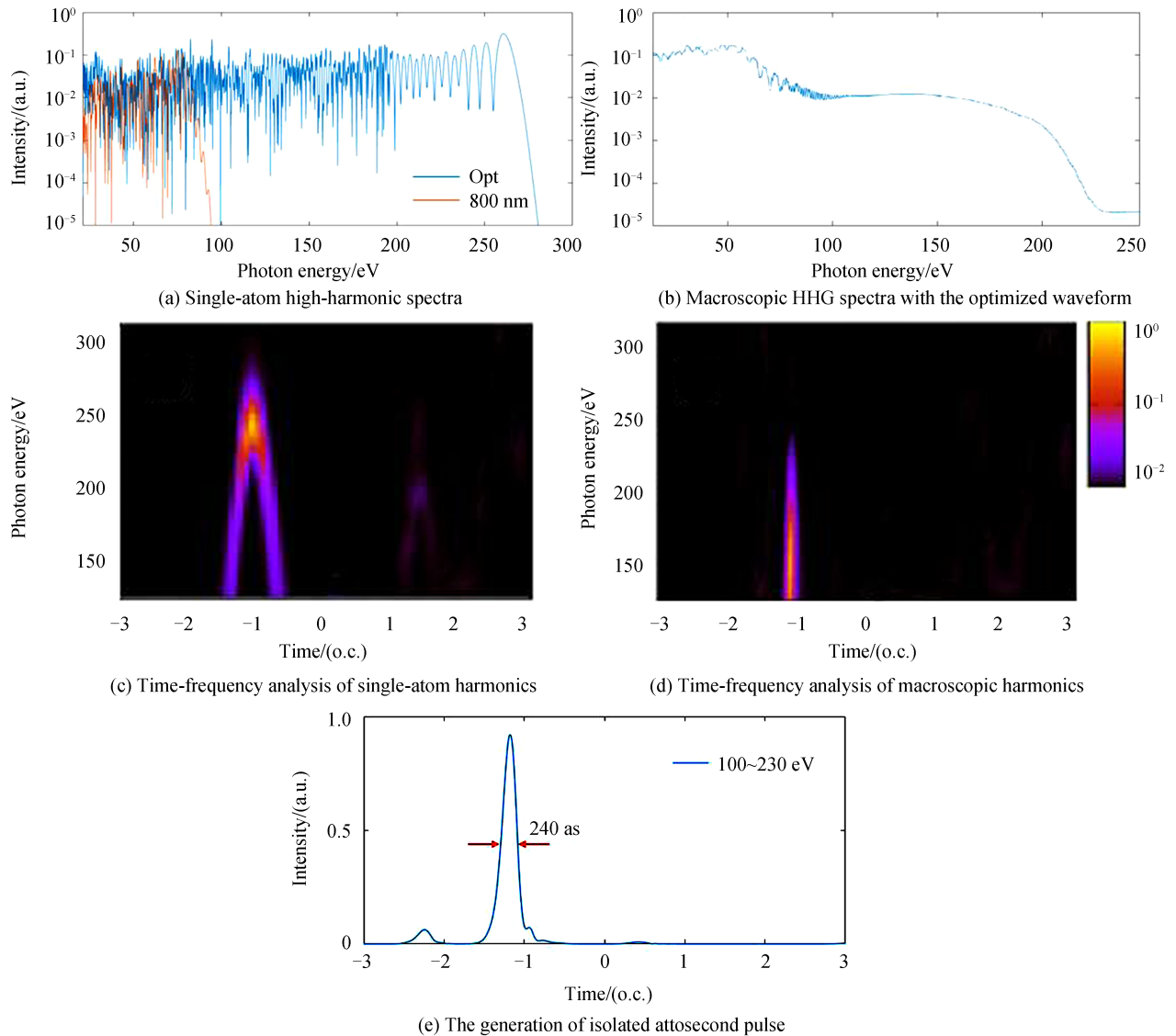
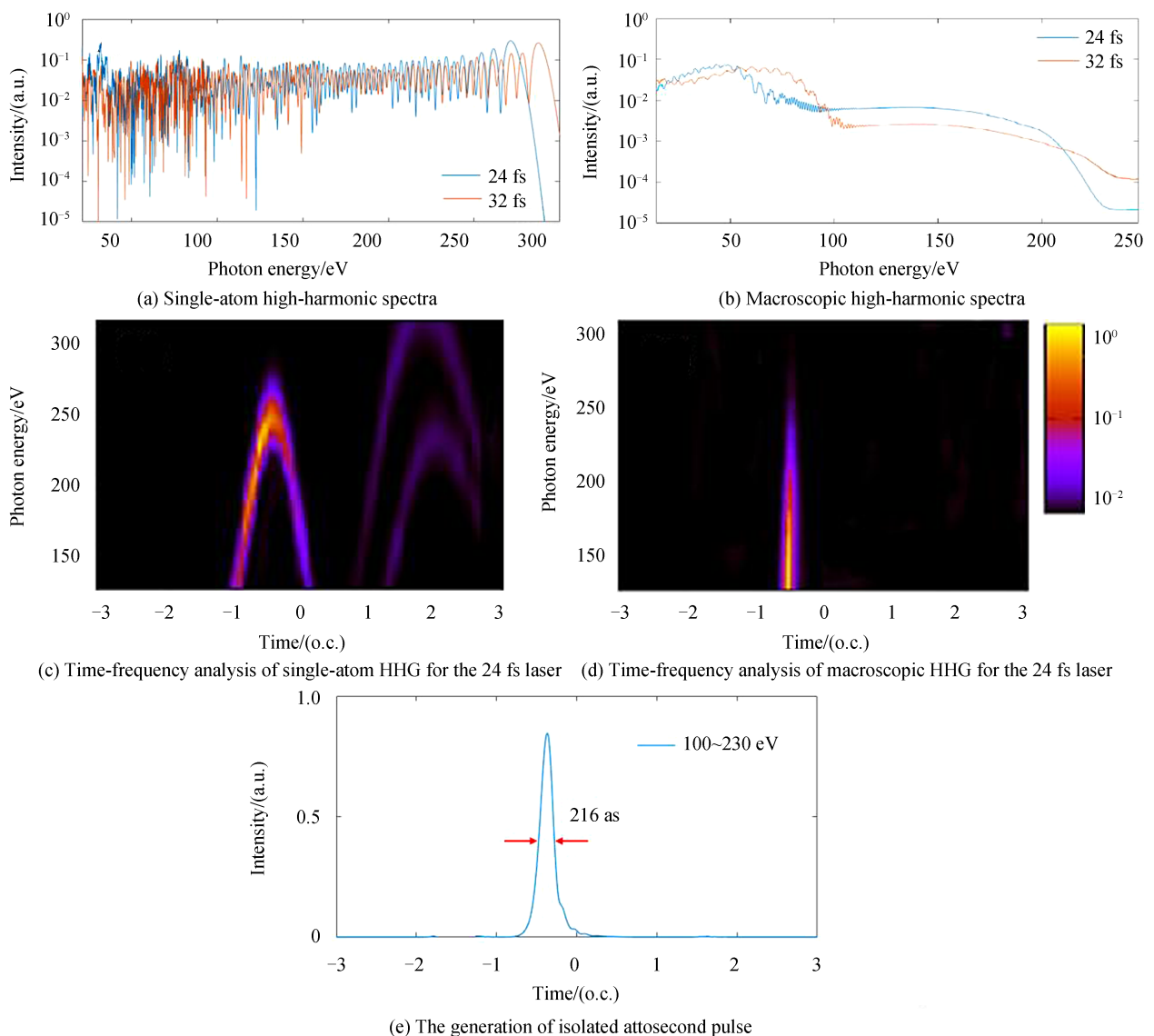


图2 Ne原子在脉宽为16 fs的优化两色啁啾激光作用下的高次谐波光谱和孤立阿秒脉冲

Fig. 2 High-harmonic spectra and isolated attosecond pulses of a Ne atom under the two-color optimized waveform with duration of 16 fs

800 nm 单色激光单独作用下的结果也在同一幅图中给出. 计算中, 两色激光和单色激光的脉冲能量相同, 脉冲时间宽度均为 16 fs. 与 800 nm 单色激光相比, 两色啁啾激光可以将单原子高次谐波的截止能量由 80 eV 拓展到 260 eV, 同时谐波产生效率并没有下降. 图 2(b) 为两色啁啾激光波形作用下的宏观高次谐波光谱. 计算中, 两色激光束的束腰取为 $50\ \mu\text{m}$, 气体靶厚度为 1 mm, 气压为 1333.22 Pa, 放置在焦点后 0.5 mm, 假定气体在靶内均匀分布. 调整激光强度、啁啾率等参数, 使得气体靶中心处的激光波形与通过单原子响应优化所得的波形一致. 从图 2(b) 中可以看出, 考虑宏观传播效应之后, 高次谐波光谱上展示出很宽的频谱内的连续谱 (100~230 eV). 可以通过高次谐波的时频分析来解释单原子和宏观谐波谱之间的差异. 图 2(c) 中给出了两色啁啾波形作用下单原子高次谐波在时间上的发射特征, 在 $-1\ \text{o.c.}$ 附近有一个发射峰, 与图 1(a) 中“时间门”相对应, 其中既有短轨道电子发射, 也有长轨道电子发射, 由此可见, 优化过程中并没有对电子轨道的相对贡献进行调控. 从图 2(d) 中看出, 经过在气体介质中的宏观传播, 由于良好的相位匹配, $-1\ \text{o.c.}$ 附近的发射峰中只保留了短轨道电子的发射, 长轨道电子发射以及 $-1.5\ \text{o.c.}$ 附近光子能量较低的发射峰都被抑制了. 最后, 选定图 2(b) 中能量范围为 100~230 eV 的连续高次谐波光谱, 相干合成得到了脉冲宽度为 240 as 的单个阿秒脉冲, 它在时间上的强度分布如图 2(e).

图 3 为初始脉冲宽度分别为 24 fs 和 32 fs 时, 优化的两色啁啾激光波形 [图 1(b) 和图 1(c)] 与 Ne 原子气体相互作用的结果. 图 3(a) 为单原子高次谐波谱, 其截止能量分别拓展到了 275 eV 和 285 eV. 图 3(b) 为宏观高次谐波谱, 谐波强度在 100~230 eV 都是连续分布的. 图 3(c)、(f) 是单原子响应时频分析的结果, 与 16 fs



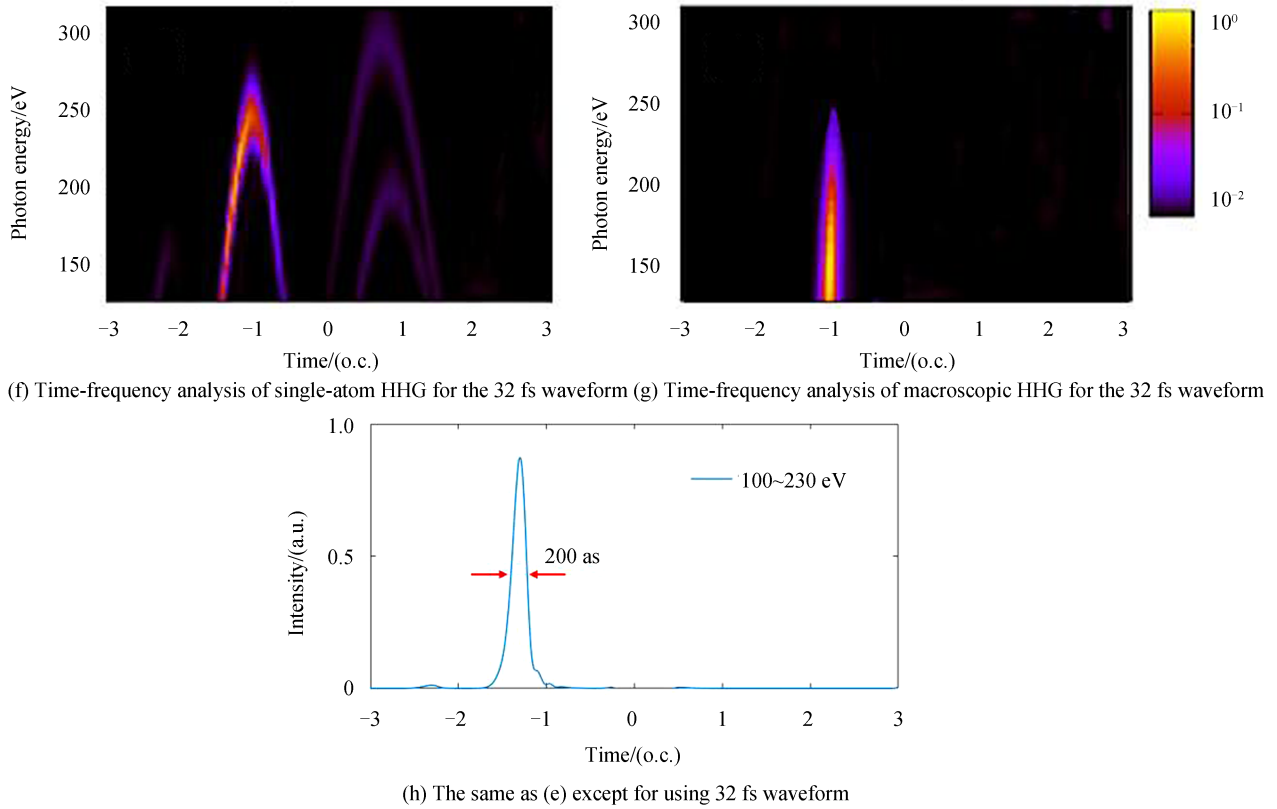


图3 Ne原子在脉冲宽度分别为24 fs和32 fs的两色啁啾优化激光波形作用下的高次谐波和孤立阿秒脉冲
Fig. 3 HHG spectra and isolated attosecond pulses of a Ne atom under the two-color optimized waveforms with durations of 24 fs and 32 fs, respectively

的结果类似,在-1 o.c.附近有一个发射峰,与图1(b)和(c)中的“时间门”相对应.图3(d)、(g)是宏观传播后时频分析的结果,由于相位匹配,只有短轨道电子发射对高次谐波有贡献,因此,-1 o.c.附近发射峰的时间宽度被大大减小.图3(e)、(h)给出了在选定能量范围为100~230 eV时得到的单个阿秒脉冲结果,脉冲宽度分别为216 as和200 as.需要指出的是,32 fs波形对应的电离几率最大,经过宏观传播后,高次谐波平台区域扩展最大,因此,在时间上合成的阿秒脉冲宽度最窄.

2.3 无啁啾与有啁啾优化两色激光波形的比较

为了说明啁啾在两色激光波形中的作用,在不考虑啁啾的情况下,对两色激光波形进行了优化,即优化参数空间变为 $\{E_1, \alpha_1\}$.以初始激光脉冲宽度为24 fs的情况为例,优化得到的 E_1 为 $1.52 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, α_1 为

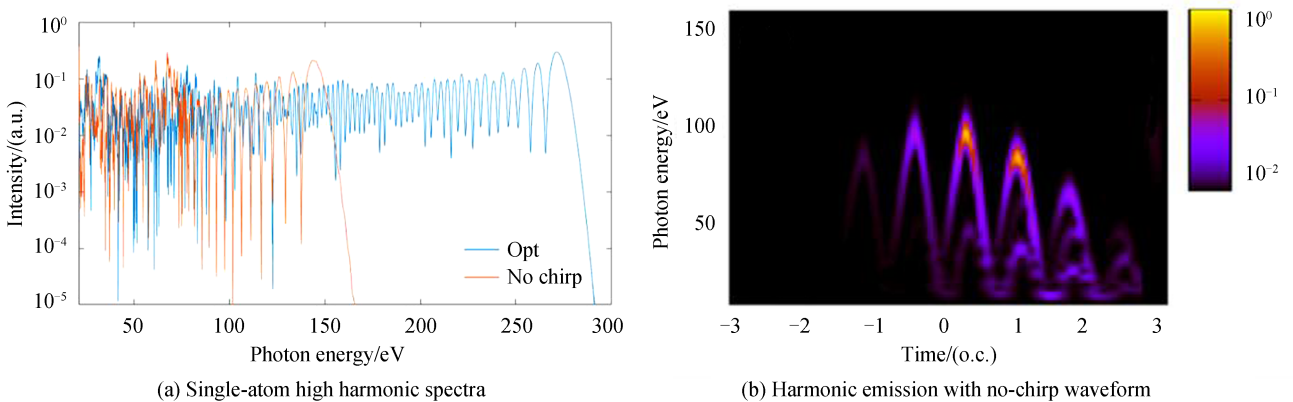


图4 脉冲宽度为24 fs的两色无啁啾和有啁啾优化激光波形作用下的高次谐波的比较
Fig. 4 Comparison of high harmonics by using the two-color optimized laser waveforms without or with the chirp, whose initial duration is 24 fs

0.66×10^2 a.u.. 图4(a)中,给出了无啁啾优化波形产生的单原子高次谐波光谱,有啁啾优化波形的结果也在同一幅图中给出作比较.可以看出,不考虑啁啾的作用,虽然高次谐波光谱的强度没有改变,但是其截止能量从275 eV减小到了150 eV.同时,在图4(b)中给出了无啁啾波形作用下高次谐波的时频分析图像,结果表明,谐波在多个半光学周期内均有发射,与图3(c)中只在一个半光学周期内有谐波发射相比,这样的波形无法用于产生单个阿秒脉冲.

2.4 高次谐波截止能量的进一步拓展

为了将高次谐波的截止能量拓展到更大范围,在固定第一束激光波长为800 nm的前提下,需要增加第二束激光的波长.将优化的目标截止能量设置为350 eV左右,第二束激光的波长选定为1 600 nm, $|E_1|^2 + |E_2|^2 = 3.0 \times 10^{14}$ W/cm²固定不变,傅里叶变化极限下的激光脉冲宽度为16 fs,得到的优化结果如表3所示($\lambda_1 = 800$ nm, $\lambda_2 = 1 600$ nm).不同初始条件下得到的优化参数差别很小,都可以作为两色优化波形应用.

表3 不同初始条件下的两色激光波形优化参数
Table 3 Optimized laser parameters for the two-color waveform at different initial conditions

Run index	$E_1 / (\times 10^{14} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2})$	$\alpha_1 / (\times 10^2 \text{ a.u.})$	$\beta_1 / (\times 10^2 \text{ a.u.})$	$\beta_2 / (\times 10^2 \text{ a.u.})$
1	1.48	0.80	-2.99	-2.87
2	1.48	0.82	-3.05	-2.88
3	1.49	0.88	-3.11	-2.56
4	1.49	0.84	-3.20	-2.52
5	1.49	0.83	-3.10	-2.56

图5为表3中的某一激光波形与Ne原子气体相互作用得到的单原子高次谐波光谱,为了进行比较,同时展示了800 nm+1 200 nm组合下得到的光谱.可以看出,利用800 nm+1 600 nm组合可以将谐波的截止能量拓展到380 eV,同时,与800 nm+1 200 nm组合相比,谐波的强度在整个频谱范围内都降低了.因此,与单色中红外激光作用类似,高次谐波截止能量的拓展总是以其强度的降低作为代价的.需要指出的是,可以通过改变宏观条件来寻找合适的相位匹配条件,从而补偿高光子能量范围谐波强度的衰减^[51].

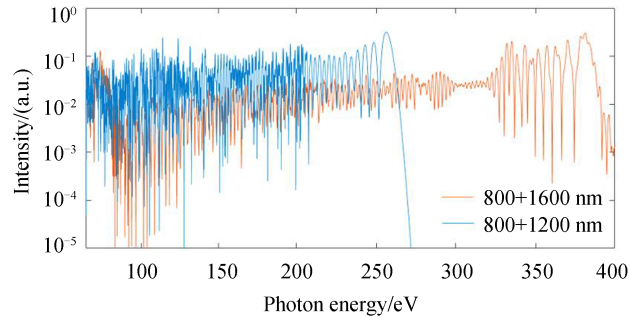


图5 两种波长组合下优化得到的激光波形产生单原子高次谐波光谱的比较

Fig. 5 Comparison of single-atom harmonic spectra by using optimized waveforms with different wavelength combinations

3 结论

本文提出了在频域上优化两色啁啾激光波形来拓展高次谐波截止能量并产生孤立阿秒脉冲的可行方案.首先以800 nm+1 200 nm的组合为例,通过基因遗传算法,以X射线范围内的250 eV附近的光子能量作为目标高次谐波的截止能量,对激光强度、相位一次项和二次项系数进行了优化.在总的激光脉冲能量不变的情况下,与800 nm单色激光相比,两色优化激光波形可以大大拓展单原子高次谐波的平台区域,同时谐波的产生效率并没有降低,通过时频分析可以看出,两色激光波形所形成的“时间门”对应于谐波发射中的主要峰,并且“时间门”不会随着激光脉冲时间的增加而改变.经过在气体介质内的宏观传播,由于良好的相位匹配,单原子高次谐波主发射峰内的长轨道电子发射被抑制,从而进一步缩短了发射峰的持续时间.通过选择宏观高次谐波特定范围内的谐波进行相干合成,得到了脉冲宽度为200 as左右的孤立阿秒脉冲.利用800 nm+

1 600 nm 的波长组合,对更高的谐波截止能量(大约 350 eV 左右)进行了优化,与 800 nm+1 200 nm 的优化波形相比,高次谐波的截止能量得到了进一步的拓展,但是整体谐波效率却下降了。

本文提出的在频率上调控和优化两色激光波形的方案在实验上容易操作和实现,可以有效产生 X 射线波段内的高次谐波和孤立阿秒脉冲,对于阿秒科学的发展具有积极意义。

参考文献

- [1] POPMINTCHEV T, ARPIN D, BROWN S, *et al.* Bright coherent ultrahigh harmonic in the keV X-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers[J]. *Science*, 2012, **336**(6086): 1287-1291.
- [2] ITATANI J, LEVESQUE J, ZEIDLER D, *et al.* Tomographic imaging of molecular orbitals [J]. *Nature*, 2004, **432**(7019):867-871.
- [3] DAO L V, DINH K B, HANNAFORD P. High order harmonic generation for study of atomic and molecular dynamics[J]. *Applied Physics Letters*, 2013, **103**(14): 141115.
- [4] REN Xiao-ming, MAKHIJA V, LE A T, *et al.* Measuring the angle-dependent photoionization cross section of nitrogen using high-harmonic generation[J]. *Physical Review A*, 2013, **88**(4): 043421.
- [5] 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.
- [6] HENTSCHEL M, KIENBERGER R, SPIELMANN C, *et al.* Attosecond metrology [J]. *Nature*, 2001, **414**(6863): 509-513.
- [7] SONG Jia-jun, MENG Xiang-hao, WANG Zhao-hua, *et al.* Generation of femtosecond laser pulse at 1.43 GHz from an optical parametric oscillator based on LBO crystal[J]. *Chinese Physics Letters*, 2019, **36**(12): 124206.
- [8] WANG Xiao-wei, WANG Li, XIAO Fan, *et al.* Generation of 88 as isolated attosecond pulses with double optical gating [J]. *Chinese Physics Letters*, 2020, **37**(2): 023201.
- [9] DU Jin-yu, WANG Guo-li, JIAO Zhi-hong, *et al.* Simulations on the single attosecond pulse generation by optimized multicolor laser field[J/OL][2020-08-24]. <https://kns.cnki.net/kcms/detail/11.1784.N.20200629.1703.002.html>.
杜进旭, 王国利, 焦志宏, 等. 优化多色激光场产生单个阿秒脉冲的理论模拟[J/OL][2020-08-24]. <https://kns.cnki.net/kcms/detail/11.1784.N.20200629.1703.002.html>.
- [10] HERNANDEZ C, POPMINTCHEV T, MURNANE M M, *et al.* Isolated broadband attosecond pulse generation with near- and mid-infrared driver pulses via time-gated phase matching[J]. *Optics Express*, 2017, **25**(10): 11855-11866.
- [11] KIENBERGER R, GOULIELAMKIS E, UIBERACKER M, *et al.* Atomic transient recorder[J]. *Nature*, 2004, **427**(6977): 817-821.
- [12] GOULIEMAKIS E, SCHULTZE M, HOFSTETTER M, *et al.* Single-cycle nonlinear optics[J]. *Science*, 2008, **320**(5883): 1614-1617.
- [13] SANSONE G, BENEDETTI E, CALEGARI F, *et al.* Isolated single-cycle attosecond pulses[J]. *Science*, 2006, **314**(5789): 443-446.
- [14] ZHAO Kun, ZHANG Qi, CHANG Zeng-hu, *et al.* Tailoring a 67 attosecond pulse through advantageous phase-mismatch[J]. *Optics Letters*, 2012, **37**(18): 3891.
- [15] MANCUSO C, DOLLAR F, GALLOWAY B, *et al.* Generation of bright isolated attosecond soft X-ray pulses driven by multicycle midinfrared lasers[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, **111**(23): E2361-E2367.
- [16] SILVA F, TEICHMANN S M, COUSIN S L, *et al.* Spatiotemporal isolation of attosecond soft X-ray pulses in the water window[J]. *Nature Communications*, 2015, **6**: 6611.
- [17] LI Jie, REN Xiao-ming, YIN Yan-chun, *et al.* 53-attosecond X-ray pulses reach the carbon K-edge [J]. *Nature Communications*, 2017, **8**(74): 186.
- [18] 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.
- [19] JOHNSON A S, AUSTIN D R, WOOD D A, *et al.* High-flux soft X-ray harmonic generation from ionization-shaped few-cycle laser pulses[J]. *Science Advances*, 2018, **4**(7): 3761.
- [20] TATE J, AIGUSTE T, MULLER H G, *et al.* Scaling of wave-packet dynamics in an intense midinfrared field[J]. *Physical Review Letters*, 2007, **98**(1): 013901.
- [21] FROLOV M V, MANAKOV N L, STARACE A F. Wavelength scaling of high-harmonic yield: threshold phenomena and bound state symmetry dependence[J]. *Physical Review Letters*, 2008, **100**(17): 173001.
- [22] SHINER A D, TRALLERO C, KAJUMBA N, *et al.* Wavelength scaling of high harmonic generation efficiency [J]. *Physical Review Letters*, 2009, **103**(7): 073902.
- [23] WRITH A, HASSAN M T, GRGURAS I, *et al.* Synthesized light transients[J]. *Science*, 2011, **334**(6053): 195-200.
- [24] MOSES J, BHARDWAJ S, BIRGE J R, *et al.* High-energy pulse synthesis with sub-cycle waveform control for strong-field physics[J]. *Nature Photonics*, 2011, **5**(8): 475-479.
- [25] TAKAHASHI E J, LAN P, MUCKE O D, *et al.* Attosecond nonlinear optics using gigawatt-scale isolated attosecond

- pulses[J]. *Nature Communications*, 2013, **4**: 2691.
- [26] WEI Peng-fei, MIAO Jing, ZENG Zhi-nan, *et al.* Selective enhancement of a single harmonic emission in a driving laser field with subcycle waveform control[J]. *Physical Review Letters*, 2013, **110**(23): 233903.
- [27] HAESSLER S, BALCIUNAS T, FAN G, *et al.* Optimization of quantum trajectories driven by strong-field waveforms [J]. *Physical Review X*, 2014, **4**(2): 021028.
- [28] BURGER C, FRISCH W F, KARDAS T M, *et al.* Compact and flexible harmonic generator and three-color synthesizer for femtosecond coherent control and time-resolved studies[J]. *Optics Express*, 2017, **25**(25): 31130-31139.
- [29] ALISMAIL A, WANG Hao-chuan, BARBIERO G, *et al.* Multi-octave, CEP-stable source for high-energy field synthesis[J]. *Science Advances*, 2020, **6**: 3408.
- [30] XUE Bing, TAMARU Y, FU Yu-xi, *et al.* Fully stabilized multi-TW optical waveform synthesizer: Toward gigawatt isolated attosecond pulses[J]. *Science Advances*, 2020, **6**: 2802.
- [31] ROSSI G M, MAINZ R E, YANG Yu-dong, *et al.* Sub-cycle millijoule-level parametric waveform synthesizer for attosecond science[J]. *Nature Photonics*, 2020, **14**: 629-635.
- [32] JIN Cheng, LIN C D. Optimization of multi-color laser waveform for high-order harmonic generation[J]. *Chinese Physics B*, 2016, **25**(9): 094213.
- [33] BALOGH E, BODI B, TOSA V, *et al.* Genetic optimization of attosecond-pulse generation in light-field synthesizers [J]. *Physical Review A*, 2014, **90**(2): 023855.
- [34] LI Xiao-yong, FAN Juan, MA Jin-yu, *et al.* Application of optimized waveforms for enhancing high-harmonic yields in a three-color laser-field synthesizer[J]. *Optics Express*, 2019, **27**(2): 841-854.
- [35] CHIPPERFIELD L E, ROBINSON J S, TISCH J W G, *et al.* Ideal waveform to generate the maximum possible electron recollision energy for any given oscillation period[J]. *Physical Review Letters*, 2009, **102**(6): 063003.
- [36] JIN Cheng, WANG Guo-li, WEI Hui, *et al.* Waveforms for optimal sub-keV high-order harmonics with synthesized two- or three-colour laser fields[J]. *Nature Communications*, 2014, **5**: 4003.
- [37] HE Li-wei, YUAN Guang-lu, WANG Kan, *et al.* Optimization of temporal gate by two-color chirped lasers for the generation of isolated attosecond pulse in soft X rays[J]. *Photonics Research*, 2019, **7**(12): 1407-1415.
- [38] CARROLL D L. FORTRAN genetic algorithm driver, version 1.7a[EB/OL][2020-08-24]. <https://people.sc.fsu.edu/~inavon/index.html>
- [39] LIN C D, LE A T, JIN Cheng, *et al.* Elements of the quantitative rescattering theory[J]. *Journal of Physics B—Atomic Molecular and Optical Physics*, 2018, **51**(10): 104001.
- [40] LE A T, LUCCHESI R R, TONZANI S, *et al.* Quantitative rescattering theory for high-order harmonic generation from molecules[J]. *Physical Review A*, 2009, **80**(1): 013401.
- [41] 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.
- [42] PRIORI E, CERULLO G, NISOLI M, *et al.* Nonadiabatic three-dimensional model of high-order harmonic generation in the few-optical-cycle regime[J]. *Physical Review A*, 2000, **61**(6): 063801.
- [43] TOSA V, KIM H T, KIM I J, *et al.* High-order harmonic generation by chirped and self-guided femtosecond laser pulses. I. Spatial and spectral analysis[J]. *Physical Review A*, 2005, **71**(6): 063807.
- [44] YAKOVLEV V S, IVANOV M, KRAUSZ F. Enhanced phase-matching for generation of soft X-ray harmonics and attosecond pulses in atomic gases[J]. *Optics Express*, 2007, **15**(23): 15351-15364.
- [45] GAARDE M B, TATE J L, SCHAFFER K J. Macroscopic aspects of attosecond pulse generation[J]. *Journal of Physics B—Atomic Molecular and Optical Physics*, 2008, **41**(13): 132001.
- [46] JIN Cheng, LE A T, LIN C D. Medium propagation effects in high-order harmonic generation of Ar and N₂[J]. *Physical Review A*, 2011, **83**(2): 023411.
- [47] TONG Xiao-ming, CHU Shih-i. Probing the spectral and temporal structures of high-order harmonic generation in intense laser pulses[J]. *Physical Review A*, 2000, **61**(2): 021802.
- [48] GAARDE M B. Time-frequency representations of high order harmonics[J]. *Optics Express*, 2001, **8**(10): 529-536.
- [49] JIN Cheng, LE A T, TRALLERO C A, *et al.* Generation of isolated attosecond pulses in the far field by spatial filtering with an intense few-cycle mid-infrared laser[J]. *Physical Review A*, 2011, **84**(4): 043411.
- [50] JIN Cheng, HONG K H, LIN C D. Optimal generation of spatially coherent soft X-ray isolated attosecond pulses in a gas-filled waveguide using two-color synthesized laser pulses[J]. *Scientific Reports*, 2016, **6**: 38165.
- [51] POPMINTCHEV T, CHEN Ming-chang, BAHABAD A, *et al.* Phase matching of high harmonic generation in the soft and hard X-ray regions of the spectrum [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2009, **106**(26): 10515-10521.