

引用格式: PANG Suna, WANG Feng. Optimal Control of Isolated Attosecond Pulse Generation in an Ar Crystal (Invited)[J]. Acta Photonica Sinica, 2022, 51(10):1032002
庞素娜,王锋. 激光偏振方向依赖的氩晶体中孤立阿秒脉冲产生(特邀)[J]. 光子学报, 2022, 51(10):1032002

激光偏振方向依赖的氩晶体中孤立阿秒脉冲产生(特邀)

庞素娜,王锋

(北京理工大学 物理学院, 北京 100081)

摘 要:采用第一性原理的含时密度泛函理论方法,从理论上研究了在少周期飞秒脉冲辐照下的氩晶体中孤立阿秒脉冲产生的最优控制。系统地研究了相对于晶体的不同激光偏振方向对孤立阿秒脉冲产生的影响,研究表明相对于晶体的激光偏振方向是产生孤立阿秒脉冲的敏感控制参数。对于 Ar 晶体,在最佳激光偏振方向上产生的孤立阿秒脉冲强度最大,约为相同激光脉冲驱动下 Ar 原子的 11 倍。本文研究结果对于理解强驱动脉冲激光下晶体中的阿秒电子动力学也有重要的意义。

关键词:高次谐波产生;孤立阿秒脉冲;含时密度泛函理论;氩晶体;少周期飞秒激光脉冲

中图分类号:O56

文献标识码:A

doi:10.3788/gzxb20225110.1032002

0 引言

电子在原子、分子和凝聚态物质中的超快运动通常可以涉及到阿秒时间尺度。阿秒光脉冲可以为探测、启动、驱动和控制超快电子动力学提供不同寻常的功能,同时具有前所未有的高时间和空间分辨率。阿秒科学的进步与阿秒光源在更短、更强的阿秒脉冲方面的改进密切相关。事实上,在它的第一次合成和表征之后^[1,2],随着减小脉冲持续时间和增加脉冲强度的趋势^[3-16],阿秒光脉冲已经为基础和应用科学的研究开辟新的领域,这就使得其存在令人兴奋的可能性。

近十年来,人们对产生孤立阿秒脉冲的新方法进行了大量的实验和理论探索^[11,17-19]。原则上,孤立阿秒光脉冲可以通过高次谐波产生(High-order Harmonic Generation, HHG)获得,该 HHG 源于暴露在强少周期飞秒激光脉冲的原子、分子、团簇和块状晶体中的相干电子运动。理论上,原子情况下的 HHG 可以在由三个步骤组成的半经典模型框架中很好地理解。首先,电子通过原子库仑场和驱动激光场形成的势垒隧穿,被电离到连续介质中。然后,在驱动激光场的作用下,电离电子获得能量。最后,电子与母离子重新结合,并以谐波光子的形式释放能量。在驱动激光器的连续半周期上产生的谐波辐射是相干的,导致奇次谐波的发射。只有滤除低次谐波才能获得超短孤立阿秒脉冲。在过去的二十年里,几乎所有在孤立阿秒光源方面的进展都是基于原子暴露在强驱动激光脉冲下的 HHG。例如,2001 年,HENTSCHEL M 等首次在实验中使用一个 7 fs 驱动激光器与氩原子相互作用,产生了一个 650 as 的孤立脉冲^[7]。2010 年,FERRARI F 等选择了一个脉宽为 5 fs 的驱动脉冲,在 2.5 mm 长的充满氩气的电池中生成 160 as 的孤立阿秒脉冲^[8]。2017 年,GAUMNITZ T 等通过将双周期中红外激光作用于充满氩或氩(argon, Ar)的高压气室,产生了脉冲宽度仅为 43 as 的孤立阿秒脉冲^[9]。

在原子中通过 HHG 获得孤立阿秒脉冲的主要问题是其强度弱、产生效率低。为了增加孤立脉冲的强度,激光与晶体的相互作用可能是一种值得研究的替代方法,因为在块状晶体中存在多个电离和复合位点,

基金项目:国家自然科学基金(No. 11774030),北京市自然科学基金(No. 2192049)

第一作者:庞素娜(1994—),女,博士研究生,主要研究方向为光与物质相互作用。Email: 3120195765@bit.edu.cn

导师(通讯作者):王锋(1973—),男,副教授,博士,主要研究方向为含时密度泛函理论方法发展及其应用于原子碰撞和光与物质相互作用。Email: wangfeng01@tsinghua.org.cn

收稿日期:2022-04-14;录用日期:2022-05-23

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

高密度和周期性结构使动力学更丰富,从而有可能获得更高的转换效率^[20, 21]。此外,需要注意的是,足够的光子通量关键取决于产生体积内谐波辐射的相干积累,包括单原子响应以及传播和相位匹配的宏观效应。目前,可以肯定地说,原子气体中的HHG已被广泛探索,但对块状晶体的研究却少得多。

有趣的是,CUI Lei等^[22]基于含时密度泛函理论方法模拟了超强飞秒激光脉冲作用于N₂和H₂的HHG过程。结果表明,激光偏振方向是一种灵敏的调节器。对于外层为σ_g电子的N₂,当分子沿激光偏振方向排列时,HHG产率最大。ZHOU Xiaoxin等^[23]研究了N₂和O₂分子的排列角相对于线性偏振激光脉冲方向对高次谐波产率的依赖性。结果表明,分子结构在确定HHG的排列依赖性方面起着重要作用。TU Yanyun等^[24]在实验上研究了LiNbO₃在绝缘体上产生太赫兹(Terahertz, THz)时的方向依赖性。增强型太赫兹电场由于其共振特性,在激发波长上具有很强的选择性,并且在激发极化方面具有高度的各向异性。通过旋转LiNbO₃超表面光轴,可以控制太赫兹电场的偏振方向。特别值得关注的是,NDABASHIMIYE G等报道了HHG在Ar的固相和气相中的直接比较^[25]。他们发现稀有气体固体的HHG光谱显示出多个平台,远远超出了在类似条件下测量的相应气相谐波的原子极限,这意味着更短的阿秒脉冲可以在固体中实现。最有趣的是HHG对相对于Ar晶体的激光偏振方向的依赖性,目前少有研究。受此启发,本文利用量子含时密度泛函理论(Time-dependent Density Functional Theory, TDDFT)方法,研究了在少周期飞秒脉冲辐照下Ar晶体中HHG的最优控制,以探索产生孤立的高强度阿秒脉冲的独特能力。把通过HHG产生的孤立阿秒脉冲的峰值强度和半高全宽(Full Width at Half Maximum, FWHM)用作特征量来评估最优控制,简要描述了理论框架和模拟细节,并给出了计算结果和讨论。研究结果表明,孤立阿秒脉冲的FWHM和强度随激光相对于Ar晶体的偏振方向的变化而变化。

1 理论框架

本文所有的数值计算都是基于TDDFT的实时和实空间演化,使用OCTOPUS程序^[26]模拟的。利用速度标度中含时Kohn-Sham (Time-dependent Kohn-Sham, TDKS)方程求解了强少周期飞秒激光脉冲影响下原子和晶体中的电子动力学。除非有明确说明,本文全部使用原子单位(a.u.)。

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi_i(\mathbf{r}, t) = \hat{H}_{\text{KS}}(\mathbf{r}, t) \psi_i(\mathbf{r}, t) \quad (1)$$

式中, ψ_i 是单粒子轨道, $\hat{H}_{\text{KS}}(\mathbf{r}, t)$ 是TDKS哈密顿量,表示为

$$\hat{H}_{\text{KS}}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2m_e} (-i\hbar\nabla + \frac{e}{c} \mathbf{A}_{\text{tot}})^2 + V_{\text{KS}} \quad (2)$$

式中, e 是一个元电荷($e > 0$), c 是真空中光速。 V_{KS} 是由三部分组成的。

$$V_{\text{KS}}(\mathbf{r}, t) = V_{\text{ion}}(\mathbf{r}, t) + V_{\text{Hartree}}(\mathbf{r}, t) + V_{\text{XC}}(\mathbf{r}, t) \quad (3)$$

$$V_{\text{Hartree}}(\mathbf{r}, t) = \int d^3\mathbf{r}' \frac{\rho(\mathbf{r}', t)}{|\mathbf{r}' - \mathbf{r}|} \quad (4)$$

$\rho(\mathbf{r}, t) = \sum_i |\psi_i|^2$ 是第*i*个已占据的单电子轨道上的价电子数密度。 $V_{\text{ion}}(\mathbf{r}, t)$ 表示价电子与离子核相互作用的价电子轨道,由Troullier-Martins形式的模守恒赝势给出^[27]。 $V_{\text{XC}}(\mathbf{r}, t)$ 是多电子系统中单个电子与其他电子相互作用产生的交换关联(Exchange-correlation, XC)势,用广义梯度近似的Perdew-Burke-Ernzerhof泛函(Perdew-Burke-Ernzerhof of Generalized Gradient Approximation, GGA-PBE)描述^[28]。

$$\mathbf{A}_{\text{tot}}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{A}_{\text{ext}}(\mathbf{r}, t) + \mathbf{A}_{\text{ind}}(\mathbf{r}, t) \quad (5)$$

式中, $\mathbf{A}_{\text{tot}}(\mathbf{r}, t)$ 是系统哈密顿量中的总矢量势场。 $\mathbf{A}_{\text{ind}}(\mathbf{r}, t)$ 是诱导极化矢势,由两部分组成^[29]。

$$\mathbf{A}_{\text{ind}}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{A}_{\text{EM}}(\mathbf{r}, t) + \mathbf{A}_{\text{XC}} \quad (6)$$

式中, \mathbf{A}_{XC} 是交换关联场,在本文中不考虑。注意,矢势与电场的关系是 $\mathbf{E}(t) = -\frac{1}{c} \frac{d\mathbf{A}(t)}{dt}$ 。本文使用了磁场的高斯单位制和库仑规范。 \mathbf{A}_{EM} 是一个完全的电磁势,满足麦克斯韦方程^[30]。

$$\left(\nabla^2 - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \mathbf{A}_{\text{EM}}(\mathbf{r}, t) - \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \nabla \phi(\mathbf{r}, t) = -\frac{4\pi}{c} \mathbf{j}(\mathbf{r}, t) \quad (7)$$

式中, $\mathbf{j}(\mathbf{r}, t)$ 是电流密度,可表示为

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}, t) = -e \sum_i \text{Re} [\psi_i^*(\mathbf{r}, t) \hat{v} \psi_i(\mathbf{r}, t)] \quad (8)$$

\hat{v} 是速度算符^[31],表示为

$$\hat{v} = \frac{1}{i\hbar} [\hat{\mathbf{r}}, \hat{H}_{\text{KS}}] \quad (9)$$

式中, m_e 是电子的质量。本文忽略 \mathbf{A}_{EM} 和 $\mathbf{j}(\mathbf{r}, t)$ 的空间变换,式(6)可写成

$$\frac{d^2 \mathbf{A}_{\text{EM}}(t)}{dt^2} = 4\pi c \mathbf{j}(t) \quad (10)$$

式中, $\mathbf{j}(t)$ 是晶胞的平均电流密度。晶胞中的总电流表示为

$$\mathbf{J}(t) = \int_{\Omega} \mathbf{j}(t) d\mathbf{r} = \Omega \mathbf{j}(t) \quad (11)$$

式中, Ω 是晶胞体积。在激光脉冲作用于系统后,可以得到电流,并通过电流的傅里叶变换得到高次谐波谱^[32],即

$$H(\omega) \propto \left| \int J(t) e^{i\omega t} dt \right|^2 \quad (12)$$

然后,根据 a 和 b 之间的频谱范围(a 和 b 为截止区域的频率范围)合成出孤立阿秒脉冲的重构强度分布,表示为

$$I(t) \propto \left| \frac{1}{2\pi} \int_a^b e^{-i\omega t} d\omega \int J(t') e^{i\omega t'} dt' \right|^2 \quad (13)$$

2 结果与分析

稀有气体晶体具有封闭的壳层结构和高电离势,且具有由范德华相互作用引起的弱键合,是最接近高密度孤立原子三维阵列的^[25]。因此,以Ar晶体为例,研究了不同激光偏振方向对固相近阈值谐波发射的影响。少周期驱动激光脉冲可以大大降低电离现象,得到高质量的HHG^[20]。因此,选择高斯包络作为少周期驱动激光脉冲。驱动脉冲的矢量势场可以表示为 $A(t) = E_0(t) f(t) \cos(\omega t + \phi)$,其中 E_0 、 ω 、 ϕ 分别是电场振幅、频率和驱动脉冲的载波相位。 $f(t) = e^{-(t-t_0)^2/2\tau_0^2}$ 是激光脉冲的包络函数。激光脉冲波长为800 nm,频率(ω)为0.056 7 a.u.(1.55 eV),FWHM为64.35 a.u.(1.56 fs),峰值强度为 3×10^{14} W/cm²。本文使用的是特殊设计的超短少周期驱动激光脉冲,在之前的研究^[33]中发现,当少周期激光脉冲的脉宽较短时,即使强度较高,脉冲作用后在晶体中沉积的能量很低,不足以达到破坏阈值。图1是由高次谐波产生阿秒脉冲的原理图。少周期激光作用于晶体会产生高次谐波。高次谐波的低频成分被滤掉之后,产生孤立的阿秒脉冲。

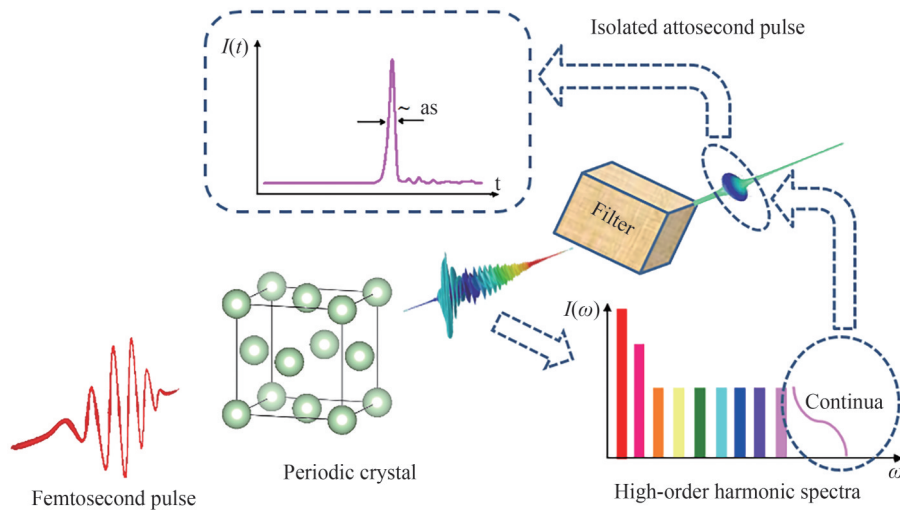


图1 在晶体中产生孤立阿秒脉冲示意

Fig. 1 Schematic illustration of isolated attosecond pulse generation in a crystal

首先,将少周期激光应用于孤立 Ar 原子来说明本文方法,这已经在实验和理论方面得到了充分的研究。对于 Ar 原子的计算,使用真实空间中的均匀网格,该网格位于由具有吸收边界条件的以原子位置为中心的球体组成的模拟包内。球体半径为 35 a.u.,网格间距为 0.3 a.u.。采用边界宽度为 15 a.u. 的吸收边界条件,防止这些电离电子直接返回原子核的非物理情况的发生。这些模拟参数是优选的能给出最大原子谐波强度的模型参数。首先,模拟了由特殊设计的载流子包络相位不同的少周期驱动激光脉冲驱动 Ar 原子,因为由少周期驱动激光脉冲驱动的 HHG 对驱动激光脉冲的载流子包络相位非常敏感^[34]。图 2(b)中的灰色虚线分别表示相位为 $\phi = 0, \pi/4, \pi/2$ 和 $3\pi/4$ 的矢势场的时域波形。电场的极化方向沿着 x 轴。

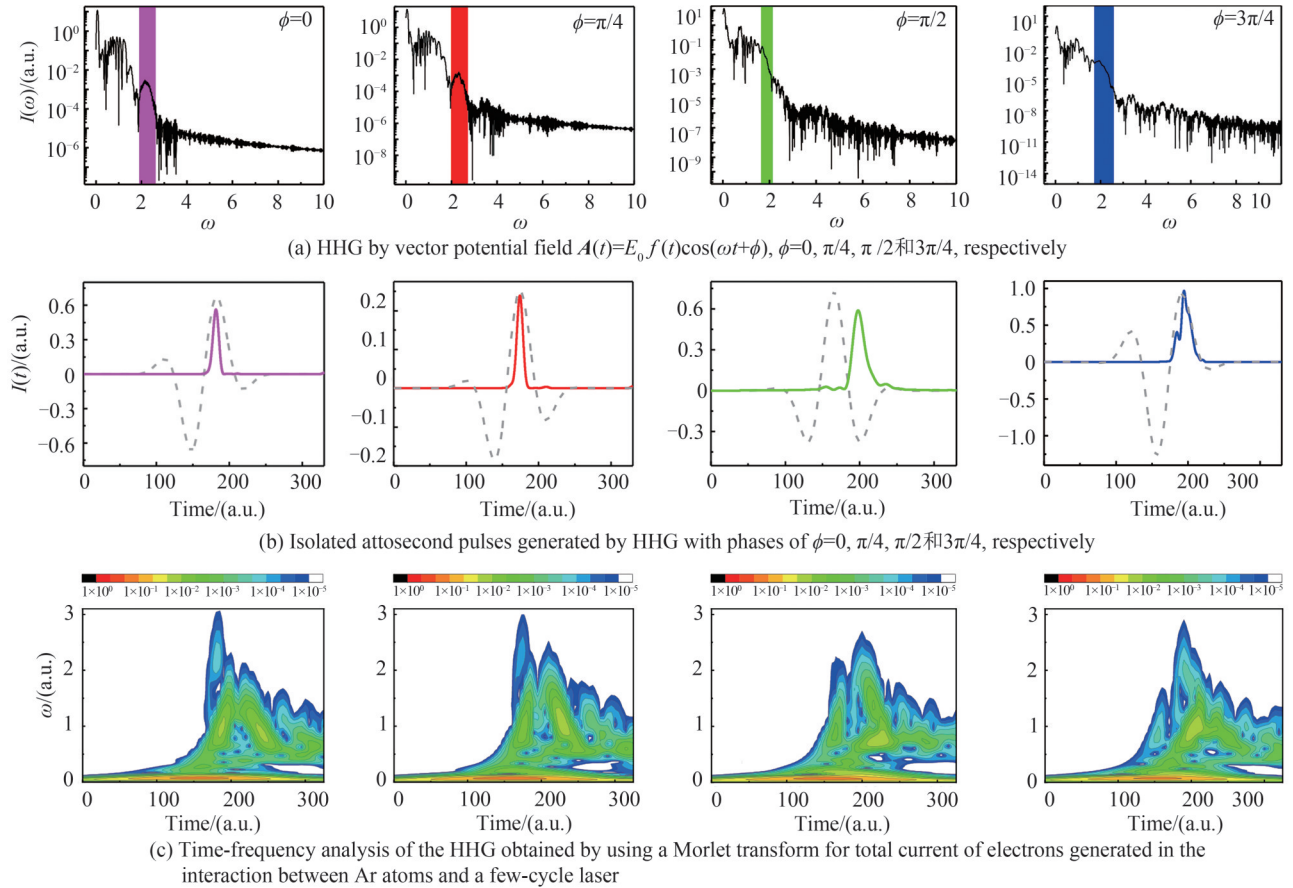


图2 四种不同相位激光驱动产生的HHG、由HHG产生的孤立阿秒脉冲和总电流的Morlet变换

Fig. 2 The HHG spectra generated by four different phase laser drives, isolated attosecond pulses generated by HHG and Morlet transformations of the total current

HHG 谱是由电流的傅里叶变换得到的,即 $H(\omega) \propto \left| \int J(t) e^{i\omega t} dt \right|^2$, 其中, $J(t)$ 为模拟盒子内的总电流。物理上,气体 HHG 谱过程通常被半经典地描述为三步模型。该 HHG 谱的特点是截止区域迅速减小,如图 2(a) 中阴影部分所示,然后是一系列变化相对缓慢的高阶区域^[20, 35, 36]。HHG 截止区域的连续谱在时域上实际上相当于孤立的阿秒脉冲。接下来,展示孤立阿秒脉冲的合成。通过式(13)对截止区域附近的频率进行傅里叶反变换,得到孤立阿秒脉冲,如图 2(b) 所示。图 2(a) 分别是通过矢势场为 $A(t) = E_0 f(t) \cos(\omega t + \phi)$, 相位为 $\phi = 0, \pi/4, \pi/2$ 和 $3\pi/4$ 得到的 HHG, 彩色带表示连续下降区域,即傅里叶反变换区域。图 2(b) 中实线分别为相位为 $\phi = 0, \pi/4, \pi/2$ 和 $3\pi/4$ 的 HHG 所产生的孤立阿秒脉冲,虚线为对应相位的电场,纵坐标按比例表示。从图中可以看出,只有当驱动激光脉冲的强度达到峰值时才会产生孤立阿秒脉冲。在特殊设计的少周期强激光脉冲驱动下,高能电子很可能只返回核一次。因此,当电子返回原子核时,它们只会发射一次能量,即形成一个孤立的阿秒脉冲。通过比较不同相位的 HHG 截止频率与孤立阿秒脉冲的脉宽和强度的关系,可以发现,谱宽越宽,脉宽越窄。相位为 $\phi = 0, \pi/4, \pi/2$ 和 $3\pi/4$ 的

激光产生的阿秒脉冲的FWHM分别为127 as, 343 as, 362 as和263 as。当驱动激光场的初始相位为0时,孤立阿秒脉冲的半高全宽对Ar原子来说最短。值得注意的是,当相位为 $3\pi/4$ 时,孤立阿秒脉冲强度最强,约为 3.45×10^{12} a.u.。再次证明了由少周期驱动激光脉冲驱动的高次谐波对驱动激光的载流子包络相位非常敏感。事实上,激光参数的选择对于在原子中产生干净孤立的阿秒脉冲信号至关重要。通过对激光-原子相互作用的模拟,得到了孤立阿秒光脉冲,这足以说明计算中所采用的理论方法和模型的正确性。

为了进一步了解Ar原子和Ar晶体中的HHG过程,利用Morlet变换分析了总电流的时频谱图。小波分析是信号处理的有力工具之一,其中母小波被定义为

$$m(t) = e^{i \cdot t} e^{-t^2/2\sigma^2} \quad (14)$$

相应的小波族由一系列子小波组成,这些子小波是通过平移和标度 ω 和 t_1 通过式(15)得到。

$$W_{\omega, t_1}(t) = \frac{1}{\sqrt{\left| \frac{\omega_0}{\omega} \right|}} e^{i\omega(t-t_1)} e^{-\omega^2(t-t_1)^2/(2\sigma^2\omega_0^2)} \quad (15)$$

信号 $E(t)$ 的Morlet变换表示为

$$M_{\omega, t_1} = \left| \int E(t) W_{\omega, t_1}(t) dt \right|^2 \quad (16)$$

$\omega_0 = 2\pi$ 是一个常数。时间窗口由参数 σ 决定。通过调整Morlet小波的 σ 值,可以平衡时间分辨率和频率分辨率。需要指出的是, σ 的减小会增加时间分辨率,但会降低频率分辨率。当 σ 趋于0时,Morlet小波为时间分辨率最佳的Dirac函数,而当 σ 趋于无穷时,Morlet小波为频率分辨率最佳的平面波函数。因此,对于某一信号,总存在一个时间和频率分辨率都最好的最佳 σ 值。

计算了Ar原子与少周期激光相互作用中产生的电子总电流的时频分析(Time-frequency Representation, TFR),如图2(c)所示。选取 σ 为1作为一个合适的值来平衡时间和频率分辨率。TFRs显示的信息与HHG显示的信息完全一致。可以看出,不同相位激光脉冲作用于Ar原子所产生的总电流的Morlet变换在形状上是相对稳定的。高次谐波的发射与激光场的相位大致相同。

现在转而考虑同一激光脉冲与Ar晶体的相互作用。考虑到晶体和原子之间存在很大的差异,为了选择最合适的驱动激光脉冲,选择了上述四种不同相位的脉冲以一定的偏振角作用于Ar晶体。研究发现在相同的激光脉冲驱动下,在Ar晶体中产生的阿秒脉冲要复杂得多,表明晶体与原子之间存在巨大的差异,这反映了晶体中更丰富的电子动力学。同时发现,初始相位为0的驱动激光脉冲产生的孤立阿秒脉冲强度远低于初始相位为 $3\pi/4$ 的驱动激光脉冲产生的孤立阿秒脉冲强度。因此,选择相位为 $3\pi/4$ 的脉冲波形。对于Ar晶体,本文使用网格间距为0.3 a.u.的均匀实空间网格。

它位于由具有周期性边界条件的晶胞组成的模拟盒子内。驱动脉冲照射在晶格常数为7.73 a.u., α, β, γ 角均为 60° 的菱形晶胞Ar晶体上。 $8 \times 8 \times 8$ 的Monkhorst-Pack k 点用于对布里渊区进行采样。

本工作旨在探讨相对于Ar晶体不同的激光偏振方向对Ar晶体中通过HHG获得孤立阿秒脉冲的影响。首先,建立直角坐标系。模拟的晶格的三个基矢分别是 $\mathbf{a} = (4.47, 0.00, 6.32)$, $\mathbf{b} = (-2.23, 3.87, 6.32)$, $\mathbf{c} = (-2.23, 3.87, 6.32)$ 。定义沿驱动激光偏振方向的单位矢量为 $\mathbf{n} = (n_x, n_y, n_z) = (\sin \theta \cos \varphi, \sin \theta \sin \varphi, \cos \theta)$,为了找到相对于晶体最合适的激光偏振方向,从而产生质量更好的孤立阿秒脉冲,本文系统地改变 θ 和 φ 角。为了便于理解,图3给出相对于晶体的偏振角在直角坐标系中的示意图。

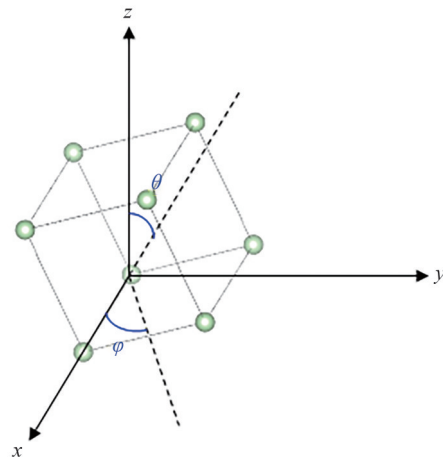


图3 相对于晶体的偏振角在直角坐标系中的示意
Fig. 3 A diagram of the angle of polarization with respect to a crystal in rectangular coordinates

图4显示了FWHM和强度随着偏振方向的平面分布。由于晶体是周期性的,系统地改变 θ 和 φ 角度,范围是 $0^\circ\sim 90^\circ$ 。结果表明,激光偏振方向是一个灵敏的调节量。可以发现激光相对于晶体的偏振方向对产生的孤立阿秒脉冲的FWHM和强度有很大的影响。当 θ 在 $5^\circ\sim 22^\circ$ 和 $80^\circ\sim 90^\circ$ 范围内时,可以产生超短孤立阿秒脉冲,如图4(a)。当 θ 为 40° , φ 为 0° 时,产生的孤立阿秒脉冲的强度最强为 3.82×10^{13} a.u.,大约比Ar原子产生的孤立阿秒脉冲强11倍。这个结论的前提条件是Ar晶胞中只有一个原子,因此,对比的是平均每原子对产生谐波的贡献。因为谐波是由原子发射的,晶体中的原子之间存在干涉效应。本文定性地研究了晶体中原子发射谐波的干涉效应,晶体比孤立原子发射谐波的效率更高说明晶体中原子发射谐波干涉相长。高次谐波产生中确实牵涉到单原子效应和宏观传播效应,本文暂时没有考虑宏观传播效应。因为Ar晶胞是菱形的,所以除了 $0\sim 90^\circ$ 外,其他象限也可能会有更合适的激光偏振方向,从而产生比11倍更优的阿秒脉冲。但是由于全面搜索相对于晶体的偏振方向计算量很大,所以目前只研究了第一象限的偏振角。接下来的工作会全面搜索相对于晶体的偏振角,并且考虑宏观传播效应。较强的脉冲对应于较短的FWHM。图4显示了孤立阿秒脉冲的脉宽和强度与激光相对于Ar晶体的偏振方向的关系的全貌图。通过比较发现,当脉冲强度最强时,FWHM并不是最窄的。因此,在实际应用中,可以折衷选择最合适的激光偏振角。通过HHG获得的阿秒脉冲在时间域和光谱域都具有吸引人的特性,适合于许多应用领域,例如超快动力学、密集等离子体特性的诊断和超快极紫外(Extreme-ultra Violet, XUV)区域的非线性光学。

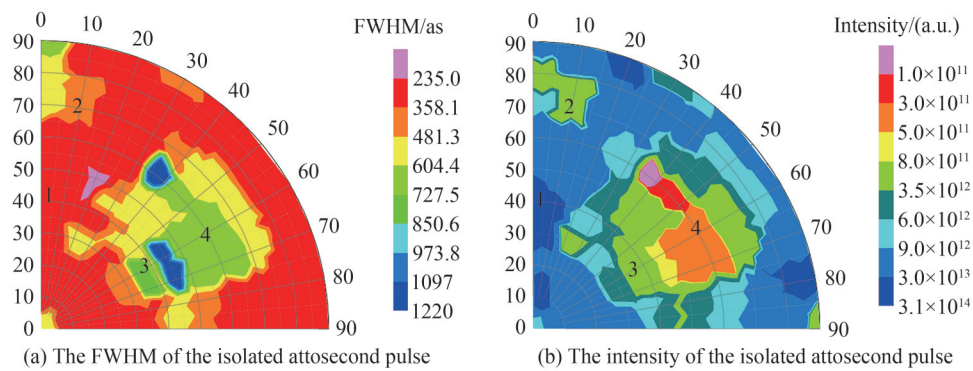


图4 孤立阿秒脉冲的半高全宽和强度的平面偏振分布

Fig. 4 The plane polarization distribution of the FWHM and intensity of the isolated attosecond pulse

为了更好地理解产生孤立阿秒脉冲的非线性过程,从图4中选择了四个具有代表性的偏振方向来详细分析。类型1的 θ 和 φ 分别为 40° 和 0° ,可以产生最强的孤立阿秒脉冲。类型2的 θ 和 φ 分别为 70° 和 10° ,产生的孤立阿秒脉冲的强度比类型1弱。类型3的 θ 和 φ 分别为 37° 和 60° 。类型4的 θ 和 φ 分别为 60° 和 60° ,都不能产生孤立阿秒脉冲。四种类型的角度在图4中分别以1、2、3、4标出。

图5(a)分别显示了四种类型的HHG光谱,(b)展示了相应的HHG产生的孤立阿秒脉冲。从图5(a)类型1可以清楚地看出,HHG谱有一个明显的连续下降区域,即截止区域。对比图5(a)和(b)中类型1、2可以发现,光谱越宽,脉冲宽度越窄。类型3和4没有连续的快速下降区,因此无法产生孤立的阿秒脉冲,如图5(a)和(b)中类型3、4所示。还计算了以四种偏振角产生的TFR,如图5(c)所示。为了平衡时间和频率分辨率, σ 仍然选择为1。TFR显示的信息与少周期激光显示的信息完全相同。图5(c)的时频分析同时展示了时域和频域的信息,对于图5(c)中类型1最强发射在时间上非常局域,涵盖了最宽的频谱范围,从而产生最窄的脉冲。相比于图5(c)类型1,图5(c)类型2的最强发射在时域上范围较宽,对应较窄的频谱范围,产生的脉冲较宽。以此类推,图5(c)中类型3和类型4最强发射的强度较低,时间上范围很宽,对应的频谱范围很窄,从而无法产生孤立阿秒脉冲。

原子和分子的HHG来源于电离电子和母离子的复合,这是一个高度局部化的过程。在固体中,电离电子可以与母离子重新结合,或者可以重新结合到其他晶格中以辐射HHG。因此,HHG的产生效率与驱动场相对于Ar晶体的偏振方向有很大关系。对于固体中产生HHG的物理机制,通过对固体和原子的对比研究

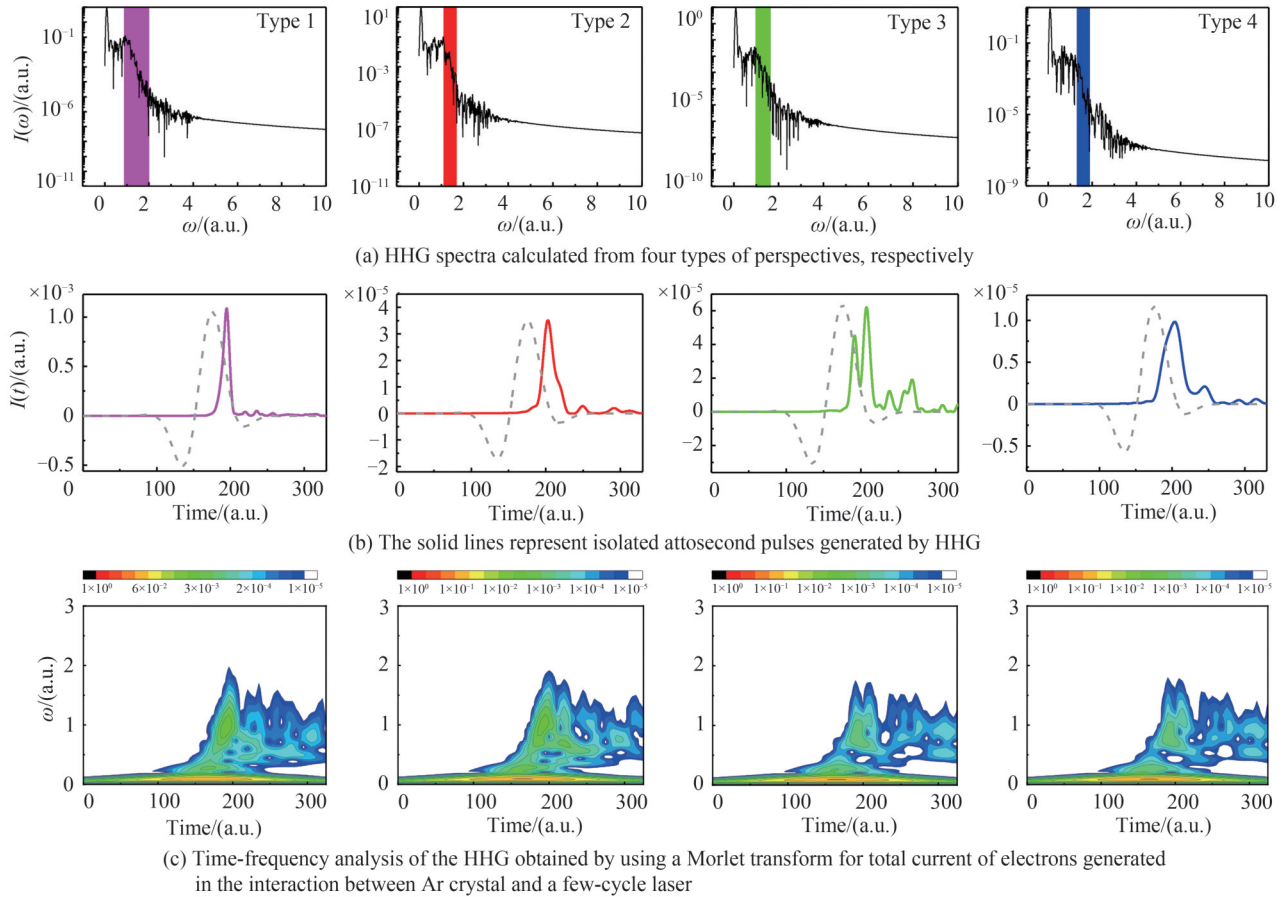


图5 四种类型的激光偏振角的HHG谱,通过HHG产生的孤立阿秒脉冲和总电流的小波变换

Fig. 5 HHG spectra of four types of laser polarization angles, isolated attosecond pulses generated by HHG and Morlet transformations of the total current

已经取得了丰硕的成果^[25, 37],但仍需更全面的认识。

3 结论

本文采用量子含时密度泛函理论方法,从理论上研究了由少周期飞秒脉冲照射的Ar晶体中高次谐波产生的优化控制。结果表明,激光脉冲相对于晶体的偏振方向是产生高次谐波和孤立阿秒脉冲的一个敏感控制参数。本文最关心的是脉冲激光相对于晶体的偏振方向对产生的孤立阿秒脉冲的影响。结果表明,对于Ar晶体,在相对于晶体的最佳激光偏振方向上,孤立阿秒脉冲的强度最大,与在相同驱动激光脉冲下在Ar原子中产生的孤立阿秒脉冲相比,强度提高了约11倍。最优化角度和激光的很多参数都有关联,比如光强、脉宽等。本文只聚焦于相对晶体的激光偏振方向这个因素来研究产生孤立阿秒脉冲的影响。要系统地研究各个参量的影响是一项很大的工作,之后会继续进行相关的研究。高次谐波产生中会牵涉到单原子效应和宏观传播效应,本文暂时没有考虑宏观传播效应。在接下来的研究中会考虑宏观传播效应。目前的结果为未来研究块状晶体固体中孤立阿秒脉冲产生的最佳控制提供了机会。这将需要包括阿秒脉冲产生的宏观方面^[38],以及对单原子水平之外的阿秒脉冲产生的理解,这是获得更短和更强的孤立阿秒脉冲的有希望的途径。

参考文献

- [1] 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.
- [2] TENG Hao, HE Xinkui, ZHAO Kun, et al. Attosecond laser station[J]. Chinese Physics B, 2018, 27(7): 074203.
- [3] AGOSTINI P, DIMAURO L F. The physics of attosecond light pulses [J]. Reports on Progress in Physics, 2004, 67(6): 813.

- [4] CORKUM P, KRAUSZ F. Attosecond science[J]. *Nature Physics*, 2007, 3(6): 381-387.
- [5] KRAUSZ F, IVANOV M. Attosecond physics[J]. *Reviews of Modern Physics*, 2009, 81(1): 163.
- [6] DURIS J, LI S, DRIVER T, et al. Tunable isolated attosecond X-ray pulses with gigawatt peak power from a free-electron laser[J]. *Nature Photonics*, 2020, 14(1): 30-36.
- [7] HENTSCHEL M, KIENBERGER R, SPIELMANN C, et al. Attosecond metrology[J]. *Nature*, 2001, 414(6863): 509-513.
- [8] FERRARI F, CALEGARI F, LUCCHINI M, et al. High-energy isolated attosecond pulses generated by above-saturation few-cycle fields[J]. *Nature Photonics*, 2010, 4(12): 875-879.
- [9] 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.
- [10] ZHAO Kun, ZHANG Qi, CHINI M, et al. Tailoring a 67 attosecond pulse through advantageous phase-mismatch[J]. *Optics Letters*, 2012, 37(18): 3891-3893.
- [11] SANSONE G, BENEDETTI E, CALEGARI F, et al. Isolated single-cycle attosecond pulses[J]. *Science*, 2006, 314(5798): 443-446.
- [12] GOULIELMAKIS E, SCHULTZE M, HOFSTETTER M, et al. Single-cycle nonlinear optics[J]. *Science*, 2008, 320(5883): 1614-1617.
- [13] LI Jie, REN Xiaoming, YIN Yanchun, et al. 53-attosecond X-ray pulses reach the carbon K-edge [J]. *Nature Communications*, 2017, 8(1): 1-5.
- [14] TAKAHASHI E J, LAN P, MUCKE O D, et al. Attosecond nonlinear optics using gigawatt-scale isolated attosecond pulses[J]. *Nature Communications*, 2013, 4(1): 1-9.
- [15] HAMMOND T, BROWN G, KIM K VILLENEUVE D, et al. Attosecond pulses measured from the attosecond lighthouse[J]. *Nature Photonics*, 2016, 10(3): 171-175.
- [16] FRANK F, ARRELL C, WITTING T, et al. Invited review article: technology for attosecond science[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2012, 83(7): 071101.
- [17] SOLA I, MEVEL E, ELOUGA L, et al. Controlling attosecond electron dynamics by phase-stabilized polarization gating [J]. *Nature Physics*, 2006, 2(5): 319-322.
- [18] CHRISTOV I P, MURNANE M M, KAPTEYN H C. High-harmonic generation of attosecond pulses in the "single-cycle" regime[J]. *Physical Review Letters*, 1997, 78(7): 1251.
- [19] KIENBERGER R, GOULIELMAKIS E, UIBERACKER M, et al. Atomic transient recorder[J]. *Nature*, 2004, 427(6977): 817-821.
- [20] GHIMIRE S, DICHIARE A D, SISTRUNK E, et al. Observation of high-order harmonic generation in a bulk crystal [J]. *Nature Physics*, 2011, 7(2): 138-141.
- [21] HIGUCHI T, STOCKMAN M I, HOMMELHOFF P. Strong-field perspective on high-harmonic radiation from bulk solids[J]. *Physical Review Letters*, 2014, 113(21): 213901.
- [22] CUI Lei, ZHAO J, HU Y J, et al. Effect of different laser polarization direction on high order harmonic generation of N₂ and H₂[J]. *Applied Physics Letters*, 2006, 89(21): 211103.
- [23] ZHOU X X, 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.
- [24] TU Yanyun, SUN Xu, WU Haizhong, et al. Enhanced terahertz generation from the lithium niobate metasurface [J]. *Frontiers in Physics*, 2022, 10: 883703.
- [25] NDABASHIMIYE G, GHIMIRE S, WU M, et al. Solid-state harmonics beyond the atomic limit[J]. *Nature*, 2016, 534(7608): 520-523.
- [26] MARQUES M A, CASTRO A, BERTSCH G F, et al. Octopus: a first-principles tool for excited electron-ion dynamics [J]. *Computer Physics Communications*, 2003, 151(1): 60-78.
- [27] TROULLIER N, MARTINS L N. Efficient pseudopotentials for plane-wave calculations[J]. *Physical Review B*, 1991, 43(3): 1993.
- [28] PERDEW J P, BURKE K, ERNZERHOF M. Generalized gradient approximation made simple [J]. *Physical Review Letters*, 1996, 77(18): 3865.
- [29] KOOTSTRA F, BOEIJ P D, SNIJDERS J. Efficient real-space approach to time-dependent density functional theory for the dielectric response of nonmetallic crystals[J]. *The Journal of Chemical Physics*, 2000, 112(15): 6517-6531.
- [30] MAITRA N T, SOUZA I, BURKE K. Current-density functional theory of the response of solids[J]. *Physical Review B*, 2003, 68(4): 045109.
- [31] SATO S, YABANA K, SHINOHARA Y, et al. Numerical pump-probe experiments of laser-excited silicon in nonequilibrium phase[J]. *Physical Review B*, 2014, 89(6): 064304.
- [32] OTOBE T. First-principle description for the high-harmonic generation in a diamond by intense short laser pulse [J].

- Journal of Applied Physics, 2012, 111(9): 093112.
- [33] ZHANG Xiaoqin, WANG Feng, ZHANG Fengshou, et al. Control of the hyperbolic dispersion of dielectrics by an ultrashort laser pulse[J]. Physical Review B, 2018, 97(1): 014310.
- [34] MURAKAMI M. High harmonic generation by short laser pulses: time–frequency behavior and applications to attophysics [M]. Baton Rouge :Louisiana State University and Agricultural & Mechanical College, 2006.
- [35] SCHAFFER K, YANG B, DIMAURO L, et al. Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff[J]. Physical Review Letters, 1993, 70(11): 1599.
- [36] CORKUM P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization[J]. Physical Review Letters, 1993, 71(13): 1994.
- [37] VAMPA G, GHAMSARI B G, SIADAT M S, et al. Plasmon-enhanced high-harmonic generation from silicon[J]. Nature Physics, 2017, 13(7): 659–662.
- [38] 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, 2018, 41(13): 132001.

Optimal Control of Isolated Attosecond Pulse Generation in an Ar Crystal (Invited)

PANG Suna, WANG Feng

(School of Physics, Beijing Institute of Technology, Beijing 100081, China)

Abstract: The ultrafast motion of electrons in atoms, molecules, and condensed matter can generally involve attosecond timescales. Attosecond light pulse can provide unusual functionalities for probing, initiating, driving, and controlling the ultrafast electronic dynamics with unprecedented high temporal and spatial resolutions simultaneously. The progress of attosecond science is closely linked to the improvement of attosecond light sources in terms of shorter and more intense attosecond pulses. Indeed, following its first synthesis and characterization, with the tendency towards reducing the pulse durations and increasing the pulse intensities, attosecond light pulses have and will continue to open up new venues for studying both fundamental and applied sciences, enabling a number of exciting possibilities.

Over the last decade, people have conducted a lot of explorations on new methods of generating single attosecond pulses both experimentally and theoretically. In principle, an isolated attosecond light pulse can be generated via HHG originating from coherent electron motion in atoms, molecules, clusters and bulk crystals exposed to intense few-cycle femtosecond laser pulses. Theoretically, HHG in the atomic case can be well understood in the framework of a semi-classical model consisting of three steps. First, an electron is ionized into the continuum by tunneling through the potential barrier formed by the atomic Coulomb field and the driving laser field. Then, the ionized electron gains energy while being accelerated by the driving laser field. Finally, the electron recombines to the parent ion with an energy release in the form of harmonic photons. The generated harmonic radiation that occurs on successive half-cycles of the driving laser is coherent, leading to the emission of odd harmonics. Ultrashort attosecond pulse can be obtained only when the low-harmonic orders are filtered out. In the last two decades, almost all advances in isolated attosecond laser sources were based on HHG from atoms exposed to intense driving laser pulses. The main problem of isolated attosecond pulse generated by HHG in atoms is its weak intensity and low generation efficiency. To increase the strength of isolated pulses, laser-crystal interaction may be an alternative method worth investigating because in bulk crystals the existence of multiple ionization and recombination sites, the high density and periodic structure makes for richer dynamics allowing the possibility of higher conversion efficiency. At present, it is safe to say that while HHG in atomic gases has been explored extensively, much less has been done for bulk crystals. Interestingly enough, NDABASHIMIYE G et al. reported a direct comparison of HHG in the solid and gas phases of Ar. They found that the HHG spectra of the noble gas solids exhibit multiple platforms, well beyond the atomic limits of the corresponding gas phase harmonics measured under similar conditions, implying that shorter attosecond pulses could be realized in solids. What is most interesting to us is that the dependence of HHG on the laser polarization direction with respect to the Ar crystal, which are currently little studied. We theoretically investigated optimal control of

isolated attosecond pulse generation in an Ar crystal irradiated by few-cycle femtosecond pulse, employing quantum time-dependent density-functional theory method. We explored systematically the effect of different laser polarization directions on isolated attosecond pulses generation, showing that the laser polarization direction with respect to the crystal is a sensitive control parameter for producing isolated attosecond pulses. The results indicate that for an Ar crystal, the intensity of isolated attosecond pulses is maximal at an optimal laser polarization direction with respect to the crystal, demonstrating about 11-fold intensity enhancement compared with that generated in an Ar atom under the same driving laser pulses. Our results also suggest opportunities for future investigations for the optimal control of isolated attosecond pulse generation in bulk crystal solids.

Key words: High harmonic generation; Isolated attosecond pulse; Time-dependent density functional theory; Argon crystal; Few-cycle femtosecond laser pulse

OCIS Codes: 320.7110; 320.7130; 190.2620