



·激光传输与控制·

不同激光等离子体条件下的阿秒光脉冲产生*

马光金^{1,2}, 李春来^{1,2}, 何进^{1,2}

(1. 北京大学深圳研究院, 广东深圳 518057; 2. 深港产学研基地深圳系统芯片设计重点实验室, 广东深圳 518057)

摘要: 通过一维粒子模拟研究了利用相对论少周期强激光与固体密度等离子体表面相互作用实现单个孤立阿秒光脉冲产生的参数条件。主要研究描述相互作用的多维参数, 如激光强度、入射角和等离子体标尺长度等, 对相对论高次谐波能量转换效率和孤立阿秒光脉冲分离度的影响。研究发现, 虽然激光等离子体参数对阿秒光脉冲产生的影响是复杂的, 但是存在着能够实现大能量孤立阿秒光脉冲的最佳等离子体标尺长度和最佳入射角。当其他相互作用条件确定时, 使用中等强度的相对论强激光可以在较宽的参数范围内实现孤立的阿秒光脉冲。大角度入射时, 孤立阿秒光脉冲的分离度较高, 能够实现孤立阿秒光脉冲的相互作用参数范围也较宽。

关键词: 阿秒光脉冲; 少周期激光; 能量转换效率; 分离度; 激光等离子体相互作用

中图分类号: O53; TN241

文献标志码: A doi: 10.11884/HPLPB202234.210297

Attosecond light pulses in simulations using various laser plasmas

Ma Guangjin^{1,2}, Li Chunlai^{1,2}, He Jin^{1,2}

(1. Peking University Shenzhen Institute, Shenzhen 518057, China;

2. Shenzhen SoC Key Laboratory, PKU-HKUST Shenzhen-Hong Kong Institution, Shenzhen 518057, China)

Abstract: The generation of single isolated attosecond light pulses from the interaction of relativistic few-cycle lasers with solid density plasma surfaces is investigated using one dimensional particle-in-cell simulations. The primary subject of the study is the effects of the multi-parameter combinations which uniquely define the laser plasma interactions, on the laser to relativistic high-order harmonic energy conversion efficiencies, and also on the single attosecond light pulse isolation degrees. Here these multi-parameters include laser intensities, incidence angles, plasma scale lengths, etc. The impact of laser-plasma interaction parameters on attosecond light pulse generations is generally complicated. However, there exist an optimal plasma scale length and an optimal incidence angle to efficiently generate high-order harmonics and intense attosecond light pulses. When other parameters are fixed, a moderately intense relativistic laser is more advantageous to realize isolated attosecond light pulses with a broad controlling parameters range. And a larger incidence angle favors a higher isolation degree as well as a broader range of controlling parameters towards the generation of intense isolated attosecond light pulses.

Key words: attosecond light pulse, few-cycle laser, energy conversion efficiency, isolation degree, laser plasma interaction

利用激光高次谐波产生获得大能量单个孤立阿秒光脉冲的技术是实现阿秒时间分辨物性探测实验的关键技术之一。面对诸如极紫外阿秒泵浦探测等众多实验需求, 目前阿秒光脉冲的能量还不够强^[1]。现阶段, 主要有两种方式可以产生极紫外波段或 X 射线波段的激光高次谐波: 激光与气体原子、分子相互作用的方式, 以及激光与固体密度等离子体表面相互作用的方式。与前者相比, 后一种高次谐波产生方式对最高可用驱动激光脉冲的光强没有限制, 因而可能利用现今最先进的 TW 和 PW 激光技术以获得大能量的阿秒光脉冲^[2]。当相对论飞秒强激光斜入射到固体密度等离子体表面时, 在反射光方向上每个驱动激光周期产生一个阿秒光脉冲, 形成由多个脉冲组

* 收稿日期: 2021-07-19; 修订日期: 2021-09-17

基金项目: 国家自然科学基金项目(11804009); 广东省基础与应用基础研究基金(2020A1515011179); 深圳市基础研究资助基金项目(JCYJ20200109144612399, JCYJ20200109144601715, JCYJ20210324115812036)

联系方式: 马光金, guangjin.ma@foxmail.com。

成的脉冲链。阿秒脉冲链在泵浦探测实验中的用途有限。在实际情形下,人们通常需要单个孤立的阿秒光脉冲。为此,人们发明了各种门选技术,包括:振幅门^[3-4]、偏振门^[5-6]、双色门^[7-8]和双光学门^[9-10]等。在激光等离子体振幅门技术中,使用相对论少周期强激光作为驱动脉冲^[11],通过缩短驱动激光的脉宽从而有效地减少脉冲链中阿秒脉冲的数目,是获得大能量单个孤立阿秒光脉冲的最直接和最有效的方式^[12-13]。

不同激光等离子体相互作用条件下,有多种可能的物理机制产生高次谐波,包括相干尾场辐射(CWE)^[14],相对论振镜(ROM)^[12,15]和相干同步辐射(CSE)^[16]等。其中,相干尾场辐射机制一般发生在弱相对论光强条件下。当激光峰值光强超过相对论强度阈值时,后两种机制占主导地位。由于相对论光强条件下的高次谐波产生是一个高度的非线性过程且多种产生机制共存,我们可以预期谐波能量转换效率和孤立阿秒脉冲分离度等特征参数对描述激光等离子体相互作用条件的多维参数有复杂的依赖关系。为了获得更高能量的单个孤立阿秒光脉冲,改善光源的性能,我们有必要系统地研究不同激光等离子体相互作用条件下的阿秒光脉冲产生,从而给出获得大能量单个孤立阿秒光脉冲的最优相互作用条件。我们此前的工作^[13]已经讨论了驱动激光的脉宽、载波包络相位和等离子体标尺长度等参数的组合对大能量孤立阿秒光脉冲产生的影响。然而,并未细致讨论不同激光强度和入射角的影响。作为此前工作的重要补充,本文使用一维粒子模拟研究驱动激光脉冲的强度、入射角、载波包络相位和等离子体标尺长度等参数的组合对大能量孤立阿秒光脉冲产生的影响。

1 相对论高次谐波和阿秒脉冲的产生理论

飞秒强激光斜入射到固体密度等离子体表面,由于等离子体密度大于临界密度而被反射,在等离子体表面形成一个倏逝层。激光电场驱动倏逝层内高密度电子的集体运动,运动的电子产生辐射。研究高次谐波产生的目标是提升激光能量向高次谐波能量的转换效率。为弄清相互作用过程中的能量耦合机理,需要建立激光驱动真空-等离子体界面运动的动力学模型。该动力学过程非常复杂,通常很难使用自洽的解析理论描述。Pukhov 研究组的一系列工作^[15-17]比较成功地解释了典型情形下高次谐波的功率谱随频率的变化。

由相对论振镜机制产生的激光高次谐波功率谱具有随频率增加幂指数滚降的特性,最好的滚降率为 $-8/3$ 。而由相干同步辐射机制^[16]产生的高次谐波功率谱随频率增加幂指数滚降的速度较慢,最好的滚降率为 $-4/3$ 或者 $-6/5$ 。这就意味着,在高次谐波截止频率之前的频段,相干同步辐射机制具有更好的谐波能量转换效率。飞秒强激光驱动产生相对论高次谐波过程中,相对论振镜机制和相干同步辐射机制经常同时存在^[13]。特别地,如果驱动激光脉冲是相对论强度少周期激光,那么相干同步辐射机制的影响不能忽略。一维粒子模拟的结果预测,相对论少周期强激光驱动条件下的谐波能量转换效率会大大提高^[13]。

1.1 相对论振镜模型

描述相对论振镜机制的BGP模型^[15]适用于一维平面波激光与等离子体相互作用的情形。斜入射情形可以在Bourdier坐标系下处理^[17]。BGP模型中,入射激光电场驱动产生等离子体倏逝层中的电流,倏逝层电流在镜面反射方向的辐射 E_r 与入射激光电场 E_i 之间满足如下简化的边界条件

$$E_i[t - x_{\text{ARP}}(t)/c] + E_r[t + x_{\text{ARP}}(t)/c] = 0 \quad (1)$$

式中: x_{ARP} 是明显反射点的位置。虽然很难使用一般性的判据来确定方程(1)适用的初始激光与等离子体参数。但是根据Gordienko等人的工作^[18],如果等离子体趋肤层的演化时间 τ 相对于趋肤层的厚度 δ 来说比较缓慢即 $c\tau \gg \delta$,那么方程(1)所表示的边界条件是成立的。这种条件所对应的S参数应该满足关系式 $S \equiv N_e/a_0 N_c \gg 1$ 。当方程(1)成立时,反射光电场波形是反号的入射光电场波形经过相位调制后的结果。通过对 E_r 进行傅里叶变换,使用稳定相位近似法即可得到沿镜面反射方向传播的激光高次谐波的功率谱。由此得出的特征光谱仅与明显反射点在 γ 因子峰值附近的演化特性相关, $\gamma_{\text{ARP}} = \{1 - (\dot{x}_{\text{ARP}}/c)^2\}^{1/2}$ 。高次谐波光谱可以近似的表示为

$$I(\omega) \propto \omega^{-8/3} \left\{ A_1 \left[\left(\frac{\omega}{\omega_r} \right)^{2/3} \right] \right\}^2 \quad (2)$$

其中: A_1 是艾里函数, $\omega_r \propto \gamma_{\text{ARP}}^3$ 是截止频率。

1.2 相干同步辐射模型

BGP模型成功地描述了特定的相互作用情形,但是对于相对论少周期强激光斜入射到固体密度等离子体表面的情形,粒子模拟的方法也给出了大量的例外结果。这些情形下的高次谐波光谱无法使用由BGP模型预测的滚

降率进行拟合。Brügge 等人认为这是由于方程(1)描述的边界条件被打破。这种条件下,入射激光电场驱动产生等离子体倏逝层中的电流。相互作用过程中,倏逝层中的一部分高密度电子作为整体从体等离子体剥离,并在冲击波的作用下被压缩到较高的密度,形成一个高密度纳米电子薄层。高密度纳米电子薄层中的电流作为整体产生辐射。在镜面反射方向的辐射电场与入射激光电场之间不存在简单的依赖关系。使用经典电动力学中的运动电流辐射公式可以直接计算镜面反射方向激光高次谐波的功率谱。再依据横向电流在稳定相位点是否改变符号,可以将功率谱分别表示为方程(3)或者方程(4)

$$I(\omega) \propto |\tilde{f}(\omega)|^2 \omega^{-4/3} \left\{ A_1' \left[\left(\frac{\omega}{\omega_{rs}} \right)^{2/3} \right] \right\}^2 \quad (3)$$

$$I(\omega) \propto |\tilde{f}(\omega)|^2 \omega^{-6/5} \left\{ S'' \left[\left(\frac{\omega}{\omega_{rs}} \right)^{4/5} \right] \right\}^2 \quad (4)$$

其中: A_1' 是艾里函数的一阶导数, S'' 是一个特定正则燕尾积分 $S(x) = (2\pi)^{-1} \int_{-\infty}^{+\infty} \exp[i(xt + t^5/5)] dt$ 的二阶导数, $\tilde{f}(\omega)$ 是纳米电子薄层的密度分布函数 $f(x)$ 的傅里叶变换。假定纳米电子薄层具有高斯型的密度分布 $f(x) = \exp[-x^2/\delta^2]$, 那么

$$|\tilde{f}(\omega)|^2 = \exp\left[-\left(\frac{\omega}{\omega_{rf}}\right)^2\right] \quad (5)$$

从 $I(\omega)$ 的表达式中可以看到它有两个特征频率 ω_{rs} 和 ω_{rf} 。其中 ω_{rs} 由电子束的相对论 γ 因子决定, 方程(3)中 $\omega_{rs} \propto \gamma_0^3$, 而在方程(4)中 $\omega_{rs} \propto \gamma_0^{2.5}$ 。另一个特征频率 ω_{rf} 由纳米电子薄层的尺寸 δ 决定。取决于 ω_{rs} 和 ω_{rf} 的大小关系, 高次谐波功率谱的截止频率由 ω_{rs} 和 ω_{rf} 两个频率中的较小者确定。因而, 与相对论振镜机制相比, 相干同步辐射机制产生谐波的截止频率可能较低。

1.3 阿秒脉冲链与单个孤立的阿秒光脉冲

上述模型所描述的相对论高次谐波产生过程发生在亚激光周期尺度上一个很短的时间间隔内, 以阿秒光脉冲的形式出现在镜面反射光方向上。当驱动激光垂直入射时, 每个激光周期内会出现两次谐波辐射过程; 当驱动激光斜入射时, 每个激光周期内仅出现一次谐波辐射过程。由于实际的激光脉冲包含多个光周期, 我们得到的是在时间轴上按次序排列的一个阿秒脉冲链。缩短驱动激光脉冲的脉冲宽度可以有效地减少脉冲链中阿秒脉冲的数目。由少周期激光脉冲驱动产生的是一个少脉冲阿秒脉冲链, 甚至是单个孤立的阿秒光脉冲。

前面我们已经阐述了相对论高次谐波产生过程中的几种特征光谱或模型光谱。粒子模拟研究表明, 阿秒脉冲链中各个脉冲可能具有不同的特征光谱; 甚至于同一个阿秒脉冲对应功率谱的低频段和高频段也可能具有不同的特征。另外, 我们还注意到, 在推导上述特征光谱过程中使用了一些近似。在实际的相互作用条件下, 这些近似不一定完全成立。不同激光等离子体条件下的实际谐波光谱远比上述罗列的模型光谱复杂。因而, 上述模型光谱仅能定性地评估相对论高次谐波的光谱特征; 往往不可避免地通过粒子模拟研究对高次谐波光谱进行更精确的描述。假如我们可以使用简化的幂函数建模平面波激光驱动产生的高次谐波特征光谱

$$I(\omega) = (q-1)F_{\text{las}} \left(\frac{\omega}{\omega_L} \right)^{-q}, \quad \omega \geq \omega_L \quad (6)$$

式中: F_{las} 是激光脉冲的能量通量, q 可以取值 8/3, 4/3 和 6/5 等。在 $10\omega_L \sim 50\omega_L$ 波段的极紫外光窗口范围内, 谐波的能量转换效率近似为

$$\eta_{\text{XUV}} = \frac{1}{F_{\text{las}}} \int_{10\omega_L}^{50\omega_L} I(\omega) d\omega = \frac{1}{10^{q-1}} - \frac{1}{50^{q-1}} \quad (7)$$

由相对论振镜模型 $q = 8/3$ 和相干同步辐射模型 $q = 4/3$ 预估得到的极紫外光转换效率分别为 2.0% 和 19.3%。

如果使用 $I(\omega, t)$ 表示镜面反射方向时间分辨的辐射功率谱密度, 为了定量的评价相对论高次谐波产生, 沿用我们此前工作中的做法^[13], 可以分别定义阿秒脉冲的脉冲链产额(能量通量)即方程(8), 以及脉冲链中各个脉冲的产额即方程(9)

$$Y_{\text{train}} = \int_{10\omega_L}^{50\omega_L} \int_{-\infty}^{+\infty} I(\omega, t) d\omega dt \quad (8)$$

$$Y_{\text{atto}} = \int_{10\omega_0}^{50\omega_0} \int_{\Delta\tau_{\text{atto}}} I(\omega, t) d\omega dt \quad (9)$$

其中: $\Delta\tau_{\text{atto}}$ 是单个阿秒脉冲持续的时间间隔。阿秒脉冲的峰值光强 I_{atto} ,单脉冲产额 Y_{atto} 与脉冲宽度 $\Delta\tau_{\text{atto}}$ 之间满足关系式 $I_{\text{atto}} = Y_{\text{atto}}/\Delta\tau_{\text{atto}}$ 。为了定量的描述少脉冲阿秒脉冲链中单个孤立阿秒脉冲的“纯度”,我们引入孤立阿秒脉冲分离度 ζ 的概念,它定义为脉冲链中“最”强阿秒脉冲峰值光强 I_{atto}^1 与“次”强阿秒脉冲峰值光强 I_{atto}^2 的比值 $\zeta = I_{\text{atto}}^1/I_{\text{atto}}^2$ 。

1.4 相对论强激光与固体密度等离子体表面相互作用动力学

为理解相互作用参数对阿秒光脉冲产生的影响, Gonoskov 等人曾提出一个较成功的模型^[19]研究激光与固体密度等离子体表面相互作用的动力学过程。该模型被称为相对论电子弹簧模型(RES)。模型假设离子质量较大,从而忽略其在激光电场作用下的运动。在 Bourdier 坐标系下^[17],相对论平面波激光斜入射到阶跃函数固体密度等离子体表面。在实验室坐标系下静止的电子和离子变换到 Bourdier 坐标系时具有y方向的归一化速度 $-\sin\alpha$ 。该模型可以给出:激光光压作用下电子密度表面相对于离子密度表面的凹陷程度 x_s ,电子密度的峰值 n_s 以及倏逝层的厚度 l_s 。模型假定:在任意时刻, $0 < x < x_s$ 区域内的等离子体电子堆积在跟随坐标 x_s 运动的无穷薄层内,而 $x > x_s$ 区域内的电子不受激光影响。 $x = x_s$ 位置边界层内的所有电子以相同的 x 速度分量 β_x 沿 x 方向运动,以相同的 y 速度分量 $\beta_y = \pm\sqrt{1-\beta_x^2}$ 沿 y 方向运动。假定 $x = x_s$ 位置边界层内电子的运动以及 $0 < x < x_s$ 区域内未被扰动的离子产生的辐射,在 $x > x_s$ 区域内能够完全补偿入射激光的电磁场,使该区域内的等离子体不受激光的影响。由此推导出一个由二元变量 (u, η) 描述的关于时间 τ 的动力学模型。模型在 $u-\eta$ 相空间的动力学演化特性决定了不同激光等离子体条件下产生的阿秒光脉冲的特征。Gonoskov 等人提出的相对论电子弹簧模型可以方便地推广,以研究相对论平面波激光与指数函数密度轮廓等离子体相互作用的情形。

现在,我们考虑相对论平面波激光与指数函数密度轮廓等离子体相互作用。假定实验室坐标系下等离子体的临界密度位置坐标是 x_c^{LAB} ,等离子体标尺长度是 L^{LAB} 。在本节中使用物理量的上角标LAB强调是实验室坐标系下的物理量。不加上角标时,表示是变换至 Bourdier 坐标系下归一化的物理量。本节之外,省略上角标LAB时不会引起歧义,我们省略上角标。边界层运动的最大位置 $x_s^{\text{LAB}} = cx_s^{\text{max}}/(\omega_L \cos\alpha)$,以及相应的动力学方程可以使用如下公式描述^[20]

$$\frac{x_s^{\text{LAB}} - x_c^{\text{LAB}}}{\lambda_L^{\text{LAB}}} = \frac{L^{\text{LAB}}}{\lambda_L^{\text{LAB}}} \ln \left\{ \frac{1}{2\pi} \frac{2a_L \cos^2\alpha}{(1-\sin\alpha)} \frac{1}{L^{\text{LAB}}/\lambda_L^{\text{LAB}}} \right\} \quad (10)$$

$$\sin(x_s - t) = \frac{L}{2a_L \cos^3\alpha} \left(\sin\alpha - \frac{\beta_y}{1-\beta_x} \right) \exp\left(\frac{x_s - x_{\text{cl}}}{L}\right) \quad (11)$$

使用变量替换 $\eta(\tau) = (L/a_L) \exp[(x_s - x_{\text{cl}})/L]/(2\cos^3\alpha)$, $u(\tau) = \beta_y/(1-\beta_x)$ 以及 $\tau = \int_{-\infty}^t dt (d\eta/dx_s)$, 我们可以得到,

$$\begin{cases} \frac{du}{d\tau} = \frac{(u^2 - 1)(\sin\alpha - u) \pm \frac{2}{d\eta/dx_s} [1 - \eta^2(\sin\alpha - u)^2]^{1/2}}{\eta(u^2 + 1)} \\ \frac{d\eta}{d\tau} = \frac{u^2 - 1}{u^2 + 1} \end{cases} \quad (12)$$

如果我们将上式中的 $d\eta/dx_s$ 作变量替换 $d\eta/dx_s = S/(2\cos^3\alpha)$,那么上述方程组与文献[19]中的动力学模型完全相同。因而,文献[19]在 $u-\eta$ 相空间的动力学演化分析也适合激光与指数函数密度轮廓等离子体相互作用的情形。由此,我们可以得到指数函数密度轮廓等离子体相似性参数的表达式

$$S = 2\cos^3\alpha \frac{d\eta}{dx_s} = \frac{1}{a_L} \exp\left[\frac{x_s - x_{\text{cl}}}{L}\right] \quad (13)$$

我们发现,与阶跃函数密度轮廓情形不同,相对论强激光与指数函数密度轮廓等离子体相互作用时,相似性参数随电子密度表面的瞬态凹陷位置 x_s 的变化而变化。在极大凹陷位置 $x_s = x_s^{\text{max}}$,相似性参数有极大值

$$S^{\text{max}} = \frac{1}{2\pi} \frac{1}{L^{\text{LAB}}/\lambda_L^{\text{LAB}}} \frac{2\cos^2\alpha}{1-\sin\alpha} = \frac{1}{2\pi} \frac{2(1+\sin\alpha)}{L^{\text{LAB}}/\lambda_L^{\text{LAB}}} \quad (14)$$

我们也能够以适当的形式定义相互作用过程中 S 参数的平均值。如果 $w(\eta)$ 是关于 η 的一个未知的权重函数。

假定 $w(\eta) = 1$, 我们得到下述 \bar{S} 与 α 和 L^{LAB} 之间的关系

$$\bar{S} = \frac{\int_{\eta^{\min}}^{\eta^{\max}} d\eta w(\eta) S(\eta)}{\eta^{\max} - \eta^{\min}} \frac{w(\eta) = 1}{2\pi(L^{\text{LAB}}/\lambda_L^{\text{LAB}})} \frac{1 + \sin \alpha}{2\pi(L^{\text{LAB}}/\lambda_L^{\text{LAB}})} \quad (15)$$

在极端相对论条件下, 根据相对论电子弹簧模型, 相对论强激光与固体密度等离子体表面相互作用的动力学过程仅仅依赖于入射角 α 和相似性参数 S 。不难理解, 如果等离子体具有指数函数密度轮廓, 则参数 S 应该用其某种平均值 \bar{S} 表示。由于入射角 α 和参数 \bar{S} 能够确定一个动力学过程, 它们的演化可以用来解释不同激光等离子体条件下的高次谐波和阿秒光脉冲产生。

2 激光强度对高次谐波和阿秒脉冲产生的影响

光参量啁啾脉冲放大技术^[11]与中红外高功率飞秒激光技术^[20-22]的发展使得大能量少周期脉冲激光器在实验室应用中越来越普及。现今, 峰值功率覆盖 TW 至 PW, 峰值光强覆盖弱相对论至极端相对论 (mJ~J 量级)^[2, 11, 23-24]的少周期激光装置都已经在实验室中运行。研究不同激光强度下的阿秒光脉冲产生, 可以让我们更好地理解不同类型阿秒光源的性能及其对驱动激光器的需求。

在此前的研究工作中^[13], 我们已经报道了激光脉冲的脉宽对单个孤立阿秒光脉冲产生的影响以及少周期与多周期激光脉冲在相对论高次谐波和阿秒脉冲产生方面的区别。这里我们主要研究少周期激光脉冲驱动下的阿秒光脉冲产生。如无特别说明, 使用的激光中心波长为 800 nm, 脉宽为 5 fs, 约为两个光周期。我们使用一维粒子模拟代码 LPIC++^[13, 17] 研究激光与固体密度等离子体表面的相互作用。考虑 p 偏振激光以入射角 α 斜入射到固体密度等离子体薄层。假定激光波矢平行于等离子体表面的分量所在的方向为 \hat{y} 方向。我们在以速度 $v_0 = c \sin \alpha \hat{y}$ 运动的 Bourdier 坐标系下研究激光等离子体相互作用和辐射产生过程。一维斜入射情形变换为垂直入射的情形。激光电场波形可以表示为 $E_y = a_L \exp[-(2 \ln 2)t^2/\tau_L^2] \cos(2\pi t/T_L + \varphi_{\text{CEP}})$ 。其中 $a_L = \sqrt{I_L \lambda_L^2} / 1.37 \times 10^{18}$ (I_L 和 λ_L 的单位分别是 $\text{W} \cdot \text{cm}^{-2}$ 和 μm) 是峰值激光强度的归一化参数, 它具有洛伦兹变换不变性; τ_L 是激光强度包络的半高全宽脉冲宽度; T_L 是激光周期; φ_{CEP} 是激光脉冲的载波包络相位。需要指出的是, 我们使用一维粒子模拟的结果定性解释不同激光等离子体条件对激光高次谐波和阿秒光脉冲产生的影响; 但是一维模型无法解释有限的激光束腰尺寸引入的多维效应, 所以更精确地定量研究需要通过多维粒子模拟研究或实验研究实现^[25]。

不同激光强度条件下极紫外光的能量转换效率如图 1 所示。我们将其他相互作用参数固定, 不同载波包络相位条件下极紫外光能量转换效率的平均值称为“平均转换效率”。将其他相互作用参数固定, 同时变化载波包络相位和等离子体标尺长度, 得到极紫外光能量转换效率的最大值称为“最佳转换效率”。由于相对论电子弹簧模型中没有分析载波包络相位 φ_{CEP} 对阿秒光脉冲产生的影响, 我们假定 φ_{CEP} 均匀随机地变化, 并将“平均转换效率”作为研究对象。图 1 (a) 中方块符号表示平均转换效率, 误差棒表示平均值的标准误差。图中展示的是不同激光强度条件下的平均转换效率随等离子体标尺长度的变化。图 1 (b) 中蓝色实线和虚线分别展示平均转换效率的峰值以及最佳转换效率对激光强度的依赖关系。而红色虚线展示的是与峰值平均转换效率相应的最佳等离子体标尺

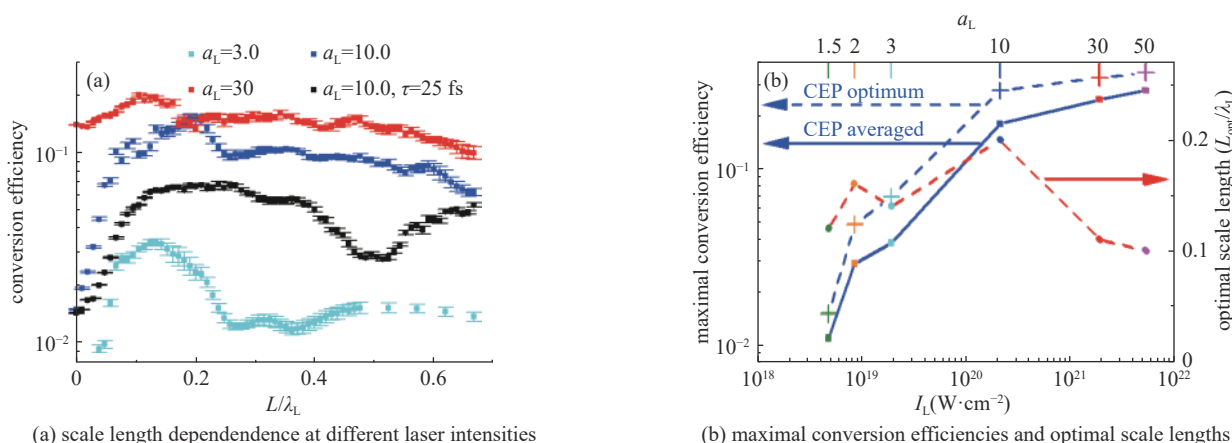


Fig. 1 Harmonic conversion efficiencies at different laser intensities

图 1 不同激光强度条件下的极紫外光能量转换效率

长度对激光强度的依赖关系。首先我们注意到在图 1(a)中,在相同激光强度条件下,少周期强激光($a_L = 10$, 蓝色方块)比多周期强激光($a_L = 10, \tau_L = 25$ fs, 黑色方块)对应的极紫外光能量转换效率更高。在不同激光强度条件下,极紫外光能量转换效率随等离子体标尺长度变化的曲线中都存在一个峰值。这是因为,描述相互作用的相似性参数 $\bar{\delta} = (1 + \sin\alpha)/(2\pi L/\lambda_L)$ 随等离子体标尺长度变化而变化。等离子体标尺长度越长, $\bar{\delta}$ 参数越小。在某个最佳 $\bar{\delta}$ 参数附近,极紫外光有最高的能量转换效率^[19]。从相对论电子弹簧模型出发可知,随着激光与等离子体相互作用参数变化,在一些特定情形下,电子向反射光方向运动的速度与电子在电磁场有质动力势中的相速度“匹配”或“近似匹配”。电子与辐射场之间有较长时间单调的能量交换,因而能量转换效率出现峰值。显然,可以通过“共振”的概念来描述转换效率出现峰值的现象。进一步使用粒子模拟对相互作用过程进行分析,也验证了我们的解释。这种现象在我们此前的工作中也被称为“相干同步辐射”或者“近相干同步辐射”情形,这两种解释是等效的。与多周期激光相比,少周期激光的共振峰更加明显。这是因为在多周期驱动激光作用下,一般只在一个周期内发生“明显”的“共振”现象,因而多个光周期驱动产生的“共振”效应被平滑减弱。在弱相对论条件下 $a_L = 3.0$,共振峰较窄;随着激光峰值强度的增加,共振峰变宽。这是因为,在极端相对论光强条件下“共振”现象更容易发生,等离子体标尺长度对平均转换效率的影响减弱。从图 1(b)中可以看到,当激光强度 $I_L < 10^{20}$ W/cm²($a_L < 10$)时,峰值“平均转换效率”和“最佳转换效率”都随激光强度增加快速增加;当激光强度 $I_L > 10^{20}$ W/cm²($a_L > 10$)时,峰值“平均转换效率”和“最佳转换效率”都趋于稳定在某个固定值。不同激光强度对应的最佳等离子体标尺长度不同且没有呈现明显的规律,最佳的等离子体标尺长度在 $0.05\lambda_L \sim 0.25\lambda_L$ 之间。

由于固体电子密度表面的瞬态凹陷,阿秒脉冲链中各阿秒脉冲出现的时间相比于其对应的驱动激光周期有一定的时间延迟^[26-27]。为区别不同的阿秒脉冲,我们使用符号 ψ_g 标记各阿秒脉冲相应的驱动激光周期在激光强度包络中的位置 $\psi_g = (2k\pi + \pi/2 - \varphi_{\text{CEP}})/2\pi\tau_L$,其中 $0 \leq \varphi_{\text{CEP}} < 2\pi$ 是激光脉冲的载波包络相位, τ_L 是激光强度包络的半高全宽脉冲宽度, $k = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$ 。当激光载波包络相位连续变化时, ψ_g 的位置也会连续变化。不同激光强度条件下阿秒脉冲链中各个阿秒脉冲的能量产额如图 2 所示。图 2(a-d)是使用伪彩色编码表示的脉冲产额对 ψ_g-L 的依赖关系,其中各子图已经使用相应 ψ_g-L 平面上脉冲产额的最大值归一化。在驱动激光脉冲强度半高全宽范围内 $-1 \leq \psi_g \leq 1$,每个激光脉冲驱动产生如图所示 $k = -1, 0, +1, +2$ 等四个阿秒脉冲。脉冲链中最强阿秒脉冲与次强阿秒脉冲的“强度比”即“单个孤立阿秒脉冲的分离度”描述是否产生了单个孤立的阿秒脉冲,我们将在第 4 节详细讨论这个问题。在我们此前的工作^[13]中已经说明,图 2(a-d)中的高亮区域对应由相干同步辐射机制增强极紫外光阿秒脉冲能量转化效率的区域。它们大致可以分为 R_1-R_3 等不同的区域。进一步地分析表明,不同区域对应的阿秒脉冲的时间与频谱结构以及随激光强度变化而演化的特性各不相同。 R_1 区域在每一激光强度条件下都存在,它的面积随着激光强度的增加而增加。在 R_1 区域内,反射的激光电场有双极性的尖峰结构^[19]。 R_2 区域在 $a_L \geq 3$ 时开始出现,它的面积也随着激光强度的增加而增大。在 R_2 区域内,反射的激光电场有单极性的尖峰结构^[19]。 R_3 区域表现为一个很窄的条带型区域,并且只在较低的激光强度条件下出现。 R_1-R_3 区域的形成是激光与等离子体相互作用参数演化的结果。图 2(e)是最大单脉冲产额对激光强度的依赖关系。从图中可以看到,在弱相对论条件下 $a_L \leq 2$,最大的单脉冲产额随激光强度的增加而迅速增加;而在更高的峰值激光强度条件下 $a_L > 2$,最大单脉冲产额与激光

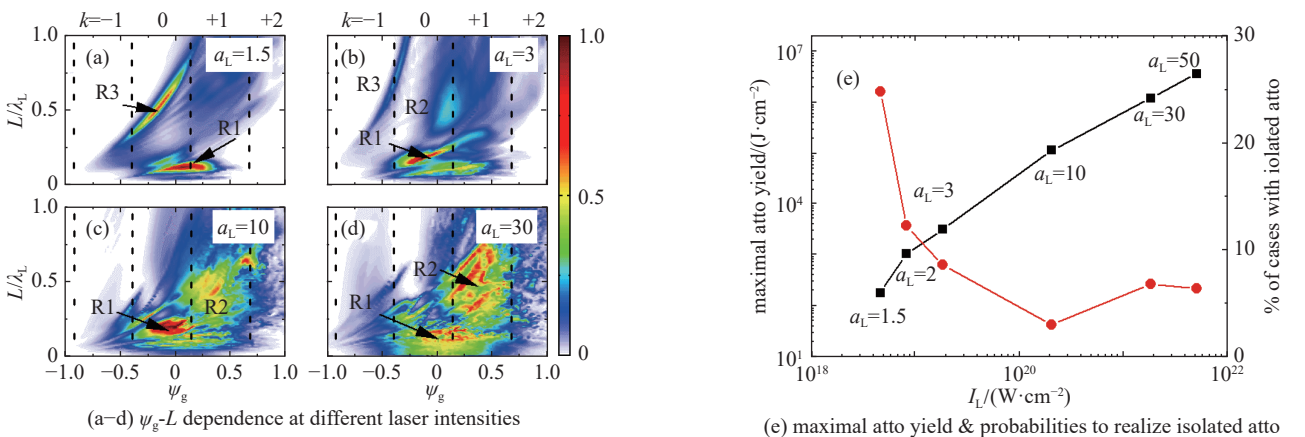


Fig. 2 Attosecond pulse energy fluence (atto yield) at different laser intensities

图 2 不同激光强度条件下的单阿秒脉冲能量产额

强度的关系是幂函数关系。如果把分离度大于 10 作为产生单个孤立阿秒光脉冲的判定条件, 图 2(e) 中红色实线表示不同激光强度条件下, 激光等离子体参数在 $0 \leq \varphi_{\text{CEP}} < 2\pi$, $0 \leq L/\lambda_L \leq 1$ 范围内均匀变化时, 能够实现单个孤立阿秒光脉冲的概率。我们看到, 使用中等强度的相对论强激光 $10^{18} \sim 10^{20}$ W/cm², 可以在较宽的参数范围内实现单个孤立的阿秒光脉冲。

3 激光入射角对高次谐波和阿秒脉冲产生的影响

当 p 偏振的平面激光脉冲以入射角 α 斜入射到固体等离子体真空界面时, 驱动等离子体真空界面振荡的力来源于激光电场力垂直于界面的法向分量, 电子、离子等离子体的瞬态静电分离力以及 $\mathbf{v} \times \mathbf{B}$ 的作用。这些驱动力具有不同的振荡频率。入射角 α 发生变化时, 各驱动力的比重也会发生变化; 因而等离子体真空界面的振荡表现出不同的动力学特性。我们使用一维粒子模拟的方法研究不同激光入射角条件下极紫外光的能量转换效率, 结果如图 3 所示。方块符号表示不同载波包络相位条件下极紫外光能量转换效率的平均值, 误差棒表示平均值的标准误差。图 3(a) 为平均转换效率随等离子体标尺长度的变化。图 3(b) 为不同等离子体标尺长度条件下平均转换效率的最大值及其对应的最佳等离子体标尺长度对激光入射角的依赖关系。我们注意到图 3(a) 中, 不同激光入射角条件下, 极紫外光能量转换效率随等离子体标尺长度依赖关系中存在一个“共振”峰。当 $\alpha \approx 60^\circ$ 时, 共振峰最窄, 共振强度最强; 当 $\alpha = 75^\circ$ 或者 $\alpha = 0^\circ$ 时, 共振峰较宽, 共振强度减弱。不同激光入射角条件下, 峰值的大小和位置分别如图 3(b) 左纵轴和右纵轴所示。从图 3(b) 中可以看到, 存在一个获得最高极紫外光能量转换效率的最佳入射角。当激光入射角 $\alpha \approx 60^\circ$ 时, 极紫外光的能量转换效率最高, 大于 20%。当 $\alpha > 30^\circ$ 时, 随着入射角的增加, 最佳的等离子体标尺长度逐渐减小。最佳的等离子体标尺长度在 $0.07\lambda_L \sim 0.4\lambda_L$ 之间。 $\alpha = 0^\circ$ 是一个特殊的角度。因为 $\alpha = 0^\circ$ 时, 每个激光周期产生两个阿秒光脉冲; 而当 $\alpha > 15^\circ$ 时, 每个激光周期仅产生一个阿秒光脉冲。根据相对论电子弹簧模型可知, 在合适的相似性参数 \bar{S} 和入射角 α 条件下, 由方程 (12) 中变量 u 和 η 描述的动力学系统的极限环与 η 轴相切, 对应电子与辐射场之间最长时间的单调能量交换, 因而极紫外光的能量转换效率最高。我们使用粒子模拟结果得出的最佳入射角 $\alpha = 60^\circ$, 这与 Gonoskov 等人的工作^[19] 得出的最佳入射角 $\alpha \approx 62^\circ$ 非常接近。然而, 我们也注意到, 由相应入射角条件下的最佳等离子体标尺长度 $L_{\text{opt}}/\lambda_L = 0.1$ 计算得到的参数 $\bar{S}_{\text{opt}} \approx 3$, 这与 Gonoskov 等人计算得到的最佳参数 $S_{\text{opt}} \approx 0.5$ 仍有区别。考虑到我们的工作中使用了指函数等离子体密度轮廓, 这已经可以满足我们对相关物理现象作出定性解释的目标。

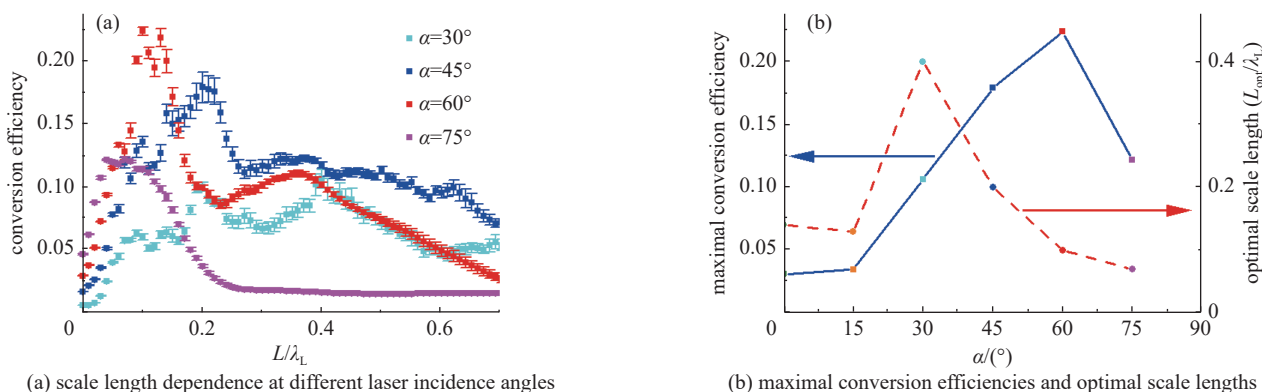


Fig. 3 Harmonic conversion efficiencies at different laser incidence angles

图 3 不同激光入射角条件下的极紫外光能量转换效率

此外, 我们也研究了不同激光入射角条件下阿秒脉冲链中各阿秒脉冲的能量产额, 结果如图 4 所示。图 4(a-d) 是使用伪彩色编码表示的脉冲产额对 $\psi_g - L$ 的依赖关系, 其中各子图已经使用相应 $\psi_g - L$ 平面上脉冲产额的最大值归一化。在驱动激光脉冲强度半高全宽的范围 $-1 \leq \psi_g \leq 1$, 每个激光脉冲驱动产生如图所示的 $k = -1, 0, +1, +2$ 等四个阿秒脉冲。图 4(a-d) 中的最大值区域对应由相干同步辐射机制增强极紫外阿秒光脉冲能量转化效率的区域。它们大致可以分为 R_1 和 R_2 等不同的区域。进一步地分析表明, 不同区域对应的阿秒脉冲的时间与频谱结构也不相同。 R_1 和 R_2 区域与图 2 中的相应区域有相同的含义。图 4(e) 是最大的单脉冲产额对激光入射角的依赖关系。从图中可以看到, 存在获得最大单脉冲产额的最佳入射角 $\alpha \approx 60^\circ$; 当激光入射角 $\alpha < 60^\circ$ 时, 最大的单脉冲产额随激光入射角的增加而增加; 当激光入射角增加至 $\alpha = 75^\circ$ 时, 最大单脉冲产额约为 $\alpha \approx 60^\circ$ 情形下的 1/2。图 4(e) 中红色实线展示在不同激光入射角条件下, 激光等离子体参数在 $\varphi_{\text{CEP}}, L/\lambda_L$ 的相应参数范围内均匀变化时, 能够实现

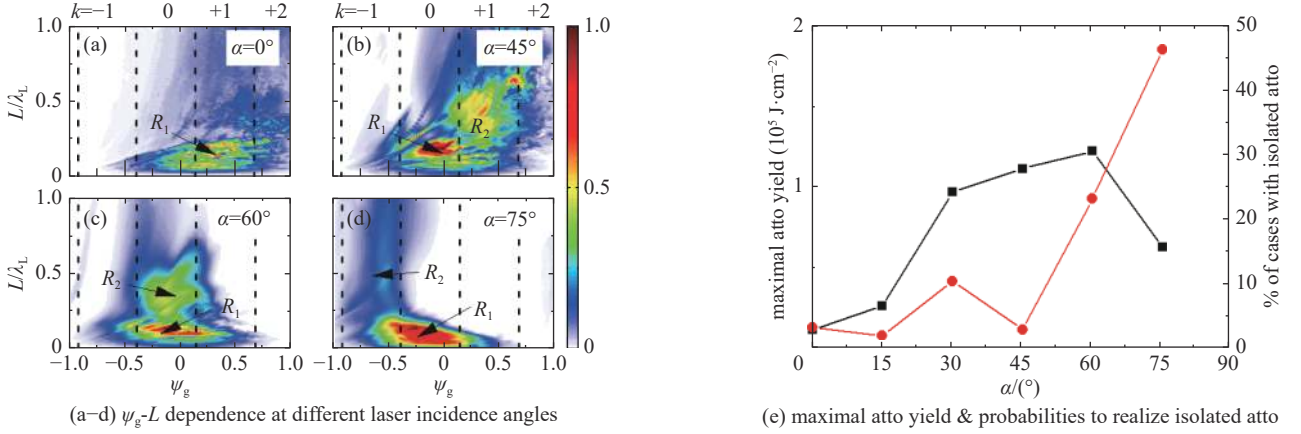


Fig. 4 Attosecond pulse energy fluence at different laser incidence angles

图 4 不同激光入射角条件下的单阿秒脉冲能量产额

单个孤立阿秒光脉冲(即分离度大于 10)的概率。由此可知,在 $\alpha = 60^\circ$ 或者 $\alpha = 75^\circ$ 等大角度入射条件下,更容易产生单个孤立的阿秒光脉冲。

4 适合大能量单个孤立阿秒光脉冲产生的激光等离子体条件

图 2 与图 4 中的一些特定条件下,第 k 个驱动激光周期产生的单阿秒脉冲产额远大于其他驱动周期产生的单阿秒脉冲产额。如果将激光等离子体参数控制在这些条件下,可以产生单个孤立的阿秒光脉冲。为了评估适合产生大能量单个孤立阿秒光脉冲的激光等离子体条件,我们计算了不同激光强度与激光入射角条件下的极紫外光能量产额以及孤立阿秒脉冲分离度对激光载波包络相位 φ_{CEP} 和等离子体标尺长度 L 的依赖关系,结果如图 5(a-f) 所示。图 5(a, c, e) 为 $\varphi_{\text{CEP}} - L$ 依赖的极紫外光能量产额。图 5(b, d, f) 为 $\varphi_{\text{CEP}} - L$ 依赖的孤立阿秒脉冲分离度。图 5(a-b) 中驱动激光的峰值强度 I_L 和入射角 α 分别为 $4.8 \times 10^{18} \text{ W}/\text{cm}^2$ 和 45° ; 图 5(c-d) 中驱动激光的峰值强度 I_L 和入射角 α 分别为 $2.1 \times 10^{20} \text{ W}/\text{cm}^2$ 和 45° ; 图 5(e-f) 中驱动激光的峰值强度 I_L 和入射角 α 分别为 $2.1 \times 10^{20} \text{ W}/\text{cm}^2$ 和 75° 。三种情形下,极紫外光能量通量的最大值分别为 $190, 1.5 \times 10^5$ 和 $7.5 \times 10^4 \text{ J}/\text{cm}^2$ 。极紫外光能量产额对 $\varphi_{\text{CEP}} - L$ 依赖关系的伪彩图等高线显示出复杂的形状。由于极紫外光能量产额是脉冲链中所有单阿秒脉冲产额之和,所以 $\varphi_{\text{CEP}} - L$ 平面上不同区域极紫外光能量产额伪彩图等高线的复杂性起源于对应的单阿秒脉冲产额的伪彩图等高线。能量产额伪彩图与单脉冲分离度伪彩图最大值区域的重叠部分所对应的 φ_{CEP} 和 L 参数范围即是获得大能量单个孤立阿秒脉冲的最佳参数区域。

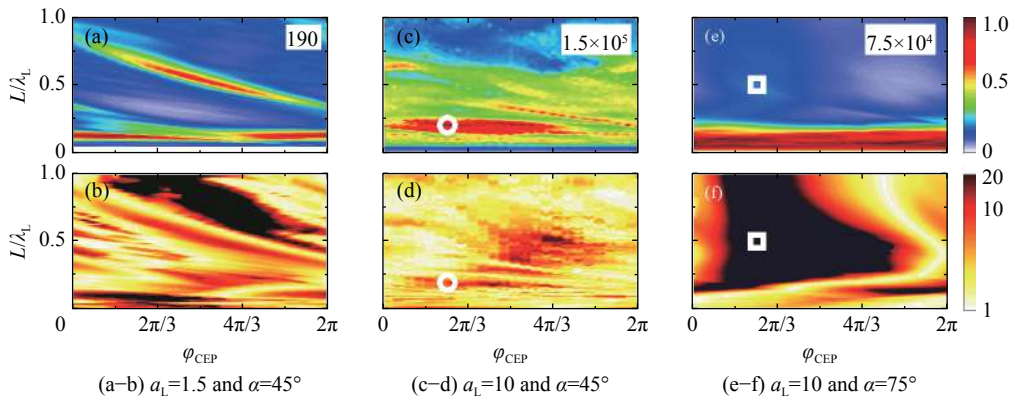


Fig. 5 $\varphi_{\text{CEP}} - L$ dependent XUV energy fluencies and attosecond pulse isolation degrees from different initial laser plasma conditions

图 5 不同相互作用条件下 $\varphi_{\text{CEP}} - L$ 依赖的极紫外光能量产额与孤立阿秒脉冲的分离度

对于 LWS-20 的激光参数和 45° 斜入射的情形,如图 5(c) 和 (d) 所示,我们预测 $> 16 \text{ eV}$ 光谱范围内,单个阿秒脉冲的能量为 100 uJ 量级,单脉冲分离度约为 10。依此作为参考,图 5(a) 和 (b) 中,激光峰值强度仅为参考情形的 $1/44$,而极紫外光能量通量减小了三个数量级。图 5(e) 和 (f) 中,激光强度不变,入射角改为 $\alpha = 75^\circ$,在近似的标尺长度 $0.1\lambda_L \leq L \leq 0.2\lambda_L$ 和激光载波包络相位 $0 \leq \varphi_{\text{CEP}} \leq \pi/3$ 或 $2\pi/3 \leq \varphi_{\text{CEP}} \leq 2\pi$ 范围内,极紫外光的能量通量以及孤立阿秒脉冲分离度都没有明显减少。并且近似标尺长度 $0.3\lambda_L \leq L \leq 0.8\lambda_L$ 和激光载波包络相位 $0 \leq \varphi_{\text{CEP}} \leq 5\pi/3$ 所在的区

域,是一个很宽的参数范围;在这个参数范围内,我们能够很容易实现大能量单个孤立的阿秒光脉冲。在图4(e)中,我们也计算了相应参数范围的面积与参数 φ_{CEP} 和 L/λ_L 定义域的面积比。在 $\alpha = 75^\circ$ 的激光等离子体条件下,实现单个孤立阿秒光脉冲的概率大于40%。

为了说明大角度斜入射条件下获得阿秒光脉冲的特点,我们分别在图5(c)和(d)以及图5(e)和(f)中选择一组激光等离子体参数。相应条件下极紫外光谱的频谱结构以及阿秒脉冲链的时间结构分别如图6(a)和(b)以及图6(c)和(d)所示。其中图6(b)所示光谱仅仅是把图6(a)所示双对数坐标系下的光谱选取 $10\omega_L \sim 50\omega_L$ 频谱范围,将其在双线性坐标下重新表示。我们可以看到,45°斜入射条件下产生的阿秒光脉冲的能量是75°斜入射条件下产生的阿秒光脉冲能量的10倍。但是75°斜入射条件下,阿秒光脉冲的光谱远比前者光滑,孤立阿秒脉冲的分离度也比前者高很多。

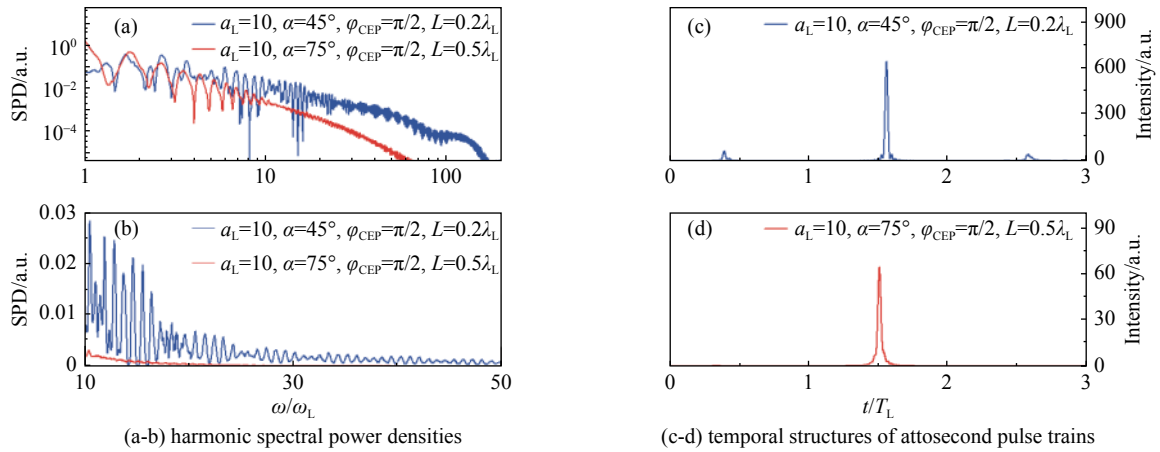


Fig. 6 Laser harmonic spectra and attosecond pulse temporal structures from different initial laser plasma conditions

图6 不同相互作用条件下的激光高次谐波光谱与阿秒脉冲链的时间结构

5 结论

本文基于一维粒子模拟的方法研究了不同初始激光和等离子体参数条件下阿秒光脉冲的产生。极紫外光的能量转换效率依赖于激光强度和激光入射角。存在高效率产生极紫外阿秒光的最佳等离子体标尺长度和入射角。由于相干同步辐射机制的增强效应(在相对论电子弹簧模型中也被解释为“共振”效应),脉冲链中的各个阿秒脉冲的产额在 ψ_g-L 平面上的伪彩图等高线表现出有规律的复杂结构。这些结构最终反映到极紫外光能量产额和孤立阿秒脉冲分离度对 $\varphi_{\text{CEP}}-L$ 依赖关系的伪彩图等高线上。极端相对论少周期强激光在大角度入射条件下,能获取单个孤立阿秒脉冲的 $\varphi_{\text{CEP}}-L$ 参数范围更宽;因而更容易实现大能量单个孤立的阿秒光脉冲。本文的研究结果对于实验产生大能量孤立阿秒脉冲光源具有指导意义。然而,由于一维粒子模拟无法解释有限激光束腰尺寸引入的多维效应,我们应该定性的理解本文的研究结果。下一步我们准备使用多维粒子模拟和实验研究相结合的方法证实理论研究结果。

致谢 我们感谢在研究过程中瑞典于默奥大学物理系 Laszlo Veisz 教授的指导和帮助。在论文修改过程中期刊审稿人提供的修改意见帮助改善了论文质量。

参考文献:

- [1] Sansone G, Poletto L, Nisoli M. High-energy attosecond light sources[J]. *Nat Photon*, 2011, 5(11): 655-663.
- [2] Kühn S, Dumergue M, Kahaly S, et al. The ELI-ALPS facility: the next generation of attosecond sources[J]. *J Phys B: At Mol Opt Phys*, 2017, 50: 132002.
- [3] Christov I P, Murnane M M, Kapteyn H C. High-harmonic generation of attosecond pulses in the “single-cycle” regime[J]. *Phys Rev Lett*, 1997, 78(7): 1251-1254.
- [4] Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, et al. Single-cycle nonlinear optics[J]. *Science*, 2008, 320(5883): 1614-1617.
- [5] Ivanov M, Corkum P B, Zuo Tao, et al. Routes to control of intense-field atomic polarizability[J]. *Phys Rev Lett*, 1995, 74(15): 2933-2936.
- [6] Tzallas P, Skantzakis E, Kalpouzos C, et al. Generation of intense continuum extreme-ultraviolet radiation by many-cycle laser fields[J]. *Nat Phys*, 2007, 3(12): 846-850.
- [7] Maurtsson J, Johnsson P, Gustafsson E, et al. Attosecond pulse trains generated using two color laser fields[J]. *Phys Rev Lett*, 2006, 97: 013001.
- [8] Pfeifer T, Gallmann L, Abel M J, et al. Single attosecond pulse generation in the multicycle-driver regime by adding a weak second-harmonic field[J]. *Opt Lett*,

- 2006, 31(7): 975-977.
- [9] Feng Ximao, Gilbertson S, Mashiko H, et al. Generation of isolated attosecond pulses with 20 to 28 femtosecond lasers[J]. *Phys Rev Lett*, 2009, 103: 183901.
- [10] Gilbertson S, Khan S D, Wu Yi, et al. Isolated attosecond pulse generation without the need to stabilize the carrier-envelope phase of driving lasers[J]. *Phys Rev Lett*, 2010, 105: 093902.
- [11] Rivas D E, Borot A, Cardenas D E, et al. Next generation driver for attosecond and laser-plasma physics[J]. *Sci Rep*, 2017, 7: 5224.
- [12] Tsakiris G D, Eidmann K, Meyer-ter-Vehn J, et al. Route to intense single attosecond pulses[J]. *New J Phys*, 2006, 8: 19.
- [13] Ma Guangjin, Dallari W, Borot A, et al. Intense isolated attosecond pulse generation from relativistic laser plasmas using few-cycle laser pulses[J]. *Phys Plasmas*, 2015, 22: 033105.
- [14] Quéré F, Thauray C, Monot P, et al. Coherent wake emission of high-order harmonics from overdense plasmas[J]. *Phys Rev Lett*, 2006, 96: 125004.
- [15] Baeva T, Gordienko S, Pukhov A. Theory of high-order harmonic generation in relativistic laser interaction with overdense plasma[J]. *Phys Rev E*, 2006, 74: 046404.
- [16] an der Brügge D, Pukhov A. Enhanced relativistic harmonics by electron nanobunching[J]. *Phys Plasmas*, 2010, 17: 033110.
- [17] Lichters R, Meyer-ter-Vehn J, Pukhov A. Short-pulse laser harmonics from oscillating plasma surfaces driven at relativistic intensity[J]. *Phys Plasmas*, 1996, 3(9): 3425-3437.
- [18] Gordienko S, Pukhov A, Shorokhov O, et al. Relativistic Doppler effect: universal spectra and zeptosecond pulses[J]. *Phys Rev Lett*, 2004, 93: 115002.
- [19] Gonoskov A A, Korzhimanov A V, Kim A V, et al. Ultrarelativistic nanoplasmonics as a route towards extreme-intensity attosecond pulses[J]. *Phys Rev E*, 2011, 84: 046403.
- [20] Vincenti H, Monchocé S, Kahaly S, et al. Optical properties of relativistic plasma mirrors[J]. *Nat Commun*, 2014, 5: 3403.
- [21] Shumakova V, Malevich P, Ališauskas S, et al. Multi-millijoule few-cycle mid-infrared pulses through nonlinear self-compression in bulk[J]. *Nat Commun*, 2016, 7: 12877.
- [22] Leshchenko V E, Talbert B K, Lai Yuhang, et al. High-power few-cycle Cr: ZnSe mid-infrared source for attosecond soft X-ray physics[J]. *Optica*, 2020, 7(8): 981-988.
- [23] Rossi G M, Mainz R E, Yang Yudong, et al. Sub-cycle millijoule-level parametric waveform synthesizer for attosecond science[J]. *Nat Photon*, 2020, 14(10): 629-635.
- [24] Budriūnas R, Stanislauskas T, Adamonis J, et al. 53 W average power CEP-stabilized OPCPA system delivering 5.5 TW few cycle pulses at 1 kHz repetition rate[J]. *Opt Express*, 2017, 25(5): 5797-5806.
- [25] Heissler P, Barna A, Mikhailova J M, et al. Multi- μ J harmonic emission energy from laser-driven plasma[J]. *Appl Phys B*, 2015, 118(2): 195-201.
- [26] Behmke M, an der Brügge D, Rödel C, et al. Controlling the spacing of attosecond pulse trains from relativistic surface plasmas[J]. *Phys Rev Lett*, 2011, 106: 185002.
- [27] Kormin D, Borot A, Ma Guangjin, et al. Spectral interferometry with waveform-dependent relativistic high-order harmonics from plasma surfaces[J]. *Nat Commun*, 2018, 9: 4992.