

doi: 10.3969/j.issn.0490-6756.2018.03.021

空间非均匀激光场下 He 原子 辐射谐波的量子路径调控

刘航^{1,2}, 刘辉³, 冯立强^{2,3}

(1. 辽宁工业大学化学与环境工程学院, 锦州 121001;

2. 中国科学院大连化学物理研究所分子反应动力学国家重点实验室, 大连 116023;

3. 辽宁工业大学理学院, 锦州 121001)

摘要: 理论研究了 He 原子在空间非均匀激光场下辐射谐波的量子路径调控. 计算结果表明, 随着空间非均匀激光场引入位置由负向 $-r_0$ 到正向 $-r_0$ 移动, 谐波截止能量呈单调递增趋势, 而且只有单一的短量子路径对最大谐波辐射过程起作用. 通过分析谐波辐射时频分析图和电子含时波包演化图, 对谐波辐射的特点给出了合理解释. 随后适当引入一束太赫兹激光场, 谐波强度被增强 2 个数量级, 并且形成一个 1208 eV 的超长平台区. 最后, 通过叠加谐波, 可获得一系列持续时间在 34 as 的超短脉冲, 其波段覆盖为 10~1 nm.

关键词: 高次谐波; 量子路径调控; 阿秒脉冲; 空间非均匀场; 太赫兹场

中图分类号: O562.4

文献标识码: A

文章编号: 0490-6756(2018)03-0543-06

Quantum path control on the harmonic emission from He atom driven by the spatial inhomogeneous laser field

LIU Hang^{1,2}, LIU Hui³, FENG Li-Qiang^{2,3}

(1. School of Chemical and Environmental Engineering, Liaoning University of Technology, Jinzhou 121001, China;

2. State Key Laboratory of Molecular Reaction Dynamics, Dalian Institute of Chemical Physics Chinese Academy of Sciences, Dalian 116023, China; 3. College of Science, Liaoning University of Technology, Jinzhou 121001, China)

Abstract: Quantum path control on high-order harmonic generation (HHG) from He atom by the spatial inhomogeneous laser field has been investigated. Results show that with the introduction of the spatial inhomogeneous field from the negative $-r_0$ direction to the positive $-r_0$ direction, a monotone enhancement of the harmonic cutoff is obtained and there is only the single short quantum path contributing to the maximum harmonic emission event. Time-frequency harmonic distributions and the time-dependent wave function have been shown to explain the harmonic spectra. Further, by properly adding a THz field, the harmonic intensity is enhanced by 2 orders of magnitude, and a smooth 1208 eV super-bandwidth can be obtained. Finally, by properly superposing the harmonics, a series of isolated 34 as pulses with wavelengths from 10 nm to 1 nm can be obtained.

Keywords: High-order harmonic generation; Quantum path control; Attosecond pulse; Spatial inhomogeneous field; Thz field

收稿日期: 2016-09-15

基金项目: 国家自然科学基金(11504151); 辽宁省博士启动基金(201501123); 辽宁省教育厅基金(L2014242)

作者简介: 刘航 (1985-), 女, 辽宁沈阳人, 博士, 讲师, 主要从事分子动力学研究.

通讯作者: 冯立强. E-mails: lqfeng1101@126.com; lqfeng@dicp.ac.cn

1 引言

强激光场与原子、分子相互作用产生高次谐波是超快阿秒动力学的重要发现之一^[1-3]. 其辐射过程可以由 Lewenstein 或 Corkum 提出的半经典三步模型^[4,5]来描述: (i) 电子电离进入连续态(电离过程); (ii) 自由电子在激光场中加速(加速过程); (iii) 激光场反向时, 电子随激光场返回并与核子发生碰撞并辐射谐波(回碰过程).

谐波辐射过程通常在半个光学周期发生一次. 因此, 对于某一特定的谐波频率有长短两条量子路径共同作用产生^[6], 这样在输出阿秒脉冲时会在一个周期出现两个阿秒脉冲序列. 但在实际中, 单个的阿秒脉冲更具有应用价值. 因此, 为了获得单个阿秒脉冲, 谐波辐射的量子路径调控具有很大的研究意义, 并且有许多成功的方案被提出来控制谐波辐射的量子路径. 例如: 少周期激光场方案^[7]; 双色或三色场调控^[8,9]; 偏振门技术^[10,11]; 啁啾场方案^[12,13]等.

但在上述这些调控方案中, 为了获得足够大的谐波截止能量, 激光强度往往选择在 10^{15} W/cm² 以上的强度, 这在很多实验室还无法实现. 2008 年 Kim 等^[14]首次将强度较弱的 (10^{11} W/cm²) 激光场与蝴蝶型金属纳米结构相互作用, 激光场形成了空间非均匀性, 其强度在金属纳米结构表面可以增强 40.0 dB(4 个数量级), 进而在阈值强度下获得了一个 47 nm 的 XUV 脉冲. 这一实验结果非常有利于运用低强度激光场产生阿秒脉冲. 随后, Yavuz 等^[15]研究了空间非均匀场下原子发射谐波的特点并获得了一个 130 as 的脉冲. Liu 等^[16]研究了空间非均匀激光场下的偏振门方案, 并获得了一系列 sub-50 as 的脉冲. 由此可见, 金属纳米结构下形成的空间非均匀激光场, 可以再弱场下实现阿秒脉冲的输出, 这是非常有利实验上实现的. 但是其对谐波发射的量子路径调控还未曾有报道.

因此, 本文利用 He 原子为模型, 理论研究了空间非均匀激光场下原子辐射谐波的量子路径调控机制. 计算结果表明, 随着空间非均匀激光场引入位置由负向到正向移动, 谐波截止能量呈单调递增趋势, 并且只有单一短量子路径对谐波辐射起作用. 随后适当引入一束太赫兹激光场, 谐波强度被增强 2 个数量级, 并且形成一个 1208 eV 的超长平台区. 最后, 通过叠加谐波, 可获得一系列持续时间在 34 as 的超短脉冲, 其波段覆盖为 10~1 nm.

2 理论方法

He 原子与激光场相互作用可以通过数值求三维解含时薛定谔方程来描述^[17]:

$$i \frac{\partial \varphi(r, t)}{\partial t} = H(t) \varphi(r, t) = \left[-\frac{1}{2} \nabla^2 + V(r) + W(r, t) \right] \varphi(r, t), \quad (1)$$

其中 $V(r) = -1.353/r$ 是 He 原子的软核库伦势, $\varphi(r, t)$ 为电子波函数. $W(r, t) = -rE(r, t)$

激光场表示为:

$$E(r, t) = E_1(1 + sg(r)) \exp[-4 \ln(2)t^2/\tau_1^2] \sin(\omega_1 t) + E_2(1 + sg(r)) \exp[-4 \ln(2)(t)^2/\tau_2^2] \sin(\omega_2 t) + E_3(1 + sg(r)) \exp[-4 \ln(2)(t)^2/\tau_3^2] \sin(\omega_3 t). \quad (2)$$

其中 ω_i, E_i, τ_i ($i = 1 \sim 3$) 分别为三束激光场的频率, 振幅和脉宽. $g(r) = \sum_{i=1}^N \beta_i (r + r_0)^i$ 为空间非均匀场形式. 本文采用蝴蝶型金属纳米结构, 中间宽度为 18 nm, 具体参数可参考文献^[18]. s 为开关函数, 即 $s = 0$ 表示空间均匀激光场; $s = 1$ 表示空间非均匀激光场. r_0 为空间非均匀激光场空间位置. 高次谐波可以表示为:

$$S(\omega) = \left| \frac{1}{\sqrt{2} \pi_0} \int_0^T a(t) e^{-i\omega t} dt \right|^2, \quad (3)$$

其中 $a(t)$ 为偶极加速度可以表示为^[19]:

$$a(t) = -\langle \varphi(r, t) | [H(t), [H(t), r]] | \varphi(r, t) \rangle. \quad (4)$$

阿秒脉冲可由谐波的傅里叶变换获得:

$$I(t) = \left| \sum_q \left\langle a(t) e^{-iq\omega t} dt \right\rangle e^{iq\omega t} \right|^2. \quad (5)$$

3 结果与讨论

图 1(a) 给出 He 原子在双色空间非均匀激光场下谐波辐射截止能量随空间非均匀激光场位置变化的关系. 激光场为 5 fs/1200 nm, $I = 3.0 \times 10^{14}$ W/cm², $s = 1$ 与 10 fs/2000 nm, $I = 1.0 \times 10^{14}$ W/cm², $s = 1$ 的组合双色场. 为了方便比较空间非均匀效应对谐波辐射的影响, 图 1(a) 同时给出了 He 原子在单(5 fs/1200 nm)、双色空间均匀激光场下谐波辐射的截止能量. 由图可知, 单色 1200 nm 空间均匀场下, 谐波截止能量为 $E_{\text{cutoff}} = 148\omega_1$ 与半经典模型给出的 $I_p + 3.17U_p$ 结果一致. 在双色空间均匀场

下, 谐波截止能量延伸到 $325\omega_1 = I_p + 2.25 \times 3.17 U_p$, 即相当于采用单色 1200 nm 场时, 激光强度被增强 2.25 倍. 在双色空间非均匀场下, 由于金属纳米结构表面出现的等离子体共振增强现象, 谐波截止能量与空间均匀场下相比有明显增大^[14]. 并且, 随着空间非均匀场由负向 $-r_0$ 到正向 r_0 移动, 谐波截止能量呈单调递增趋势. 尤其当 $r_0 = 100$ a. u. 时, 谐波最大截止能量为 $710\omega_1 = I_p + 5.5 \times 3.17 U_p$, 即, 相当于单色 1200 nm 激光强度被增强 5.5 倍后的结果. 图 1(b) 给出 He 原子在双色空间均匀与非均匀场 ($r_0 = 100$ a. u.) 下的高次谐波谱图. 由图可知, 在空间非均匀场下, 谐波截止能量明显增大, 谐波平台区的干涉结构明显减小, 并且形成一个 659 eV 的超长平台区, 这非常有利于单个阿秒脉冲的产生.

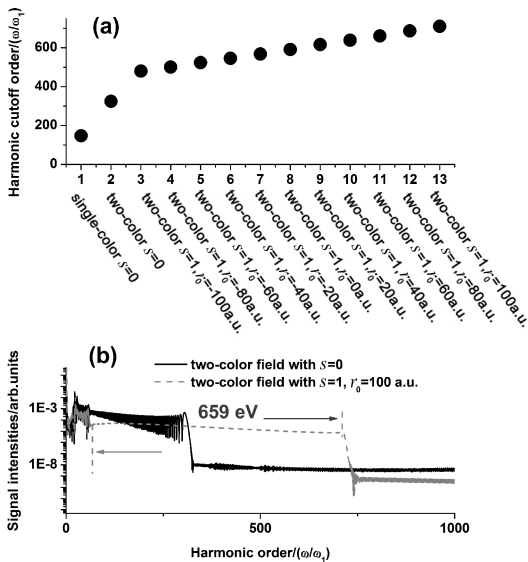


图 1 (a) 双色空间非均匀激光场下谐波辐射截止能量随空间非均匀激光场位置变化的关系; (b) 双色空间均匀与非均匀场 ($r_0 = 100$ a. u.) 下的高次谐波谱图

Fig. 1 (a) The varieties of the harmonic cutoffs as a function of the spatial position of the inhomogeneous field; (b) HHG spectra of the two-color field with $s = 0$, and $s = 1, r_0 = 100$ a. u.

图 2(a) 和 2(b) 分别给出图 1(b) 中两种条件下谐波辐射的时频分析图^[20]. 由图可知, 谐波平台区能量主要由 2 个谐波辐射过程组成, 即, P_1 ($-0.5 \sim 0.5$ T, T 代表 1200 nm 光学周期) 和 P_2 ($0.0 \sim 1.0$ T). 但 P_1 辐射过程的强度要比 P_2 过程小 4 个数量级左右, 其对谐波光谱结构的影响其实较小, 因此本文只考虑谐波辐射较强的 P_2 过程的特点. 在空间均匀场下(图 2(a)), P_2 辐射过程有短量子路径(左分支)和长量子路径(右分支)^[6] 组成, 并且两条

量子路径的强度几乎一样, 因此导致其谐波光谱具有较大的干涉结构, 如图 1(b) 所示. 在空间非均匀场下(图 2(b)), P_2 辐射过程中长量子路径的贡献被明显削弱, 结果只有短量子对 P_2 辐射过程起贡献, 因此导致谐波谱上干涉减小. 由此可知, 空间非均匀场具有很好的调控谐波辐射量子路径的作用. 图 2(c) 和 2(d) 给出上述两种条件下的电子含时波函数, 在空间均匀场下(图 2(c)), (i) 电子在 -0.25 T 处电离后沿正向 $-r$ 运动(L1), 并在 0.0 T \sim 0.5 T 时返回母核(L2), 即, 相当于时频分析图中的短量子路径; (ii) 随后, 电子在 0.25 T 附近开始远离母核沿负向 $-r$ 运动(L3), 并在 0.5 T \sim 1.0 T 时再一次返回母核(L4), 即, 相当于时频分析图中的长量子路径. 因此, 在时频分析图中有强度相等的长短两条量子路径对谐波辐射起作用. 在空间非均匀场下(图 2(d)), 电子在 0.5 T \sim 1.0 T 时的回碰过程(L4) 被明显削弱(几乎观测不到), 因此导致谐波辐射的长量子路径减弱.

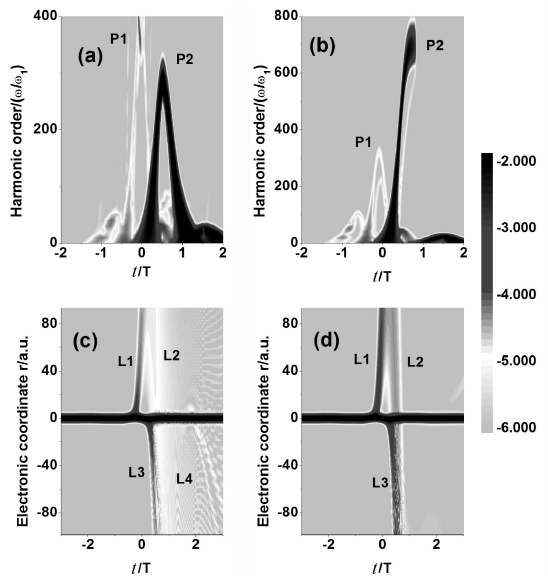


图 2 谐波辐射的时间-频率分析图 (a) $s = 0$; (b) $s = 1, r_0 = 100$ a. u. 含时波包演化图 (c) $s = 0$; (d) $s = 1, r_0 = 100$ a. u.

Fig. 2 Time-frequency harmonic distributions for the cases of (a) $s = 0$; (b) $s = 1, r_0 = 100$ a. u. Time-dependent wave function for the cases of (c) $s = 0$; (d) $s = 1, r_0 = 100$ a. u.

图 3(a) 给出 He 原子在上述双色空间非均匀场与太赫兹 (Thz) 的组合场下辐射谐波的特点. 太赫兹场为 40 fs/37.5 Thz, $I = 5.0 \times 10^{13}$ W/cm². 激光场空间位置选取为 $r_0 = 100$ a. u.. 由图可知,

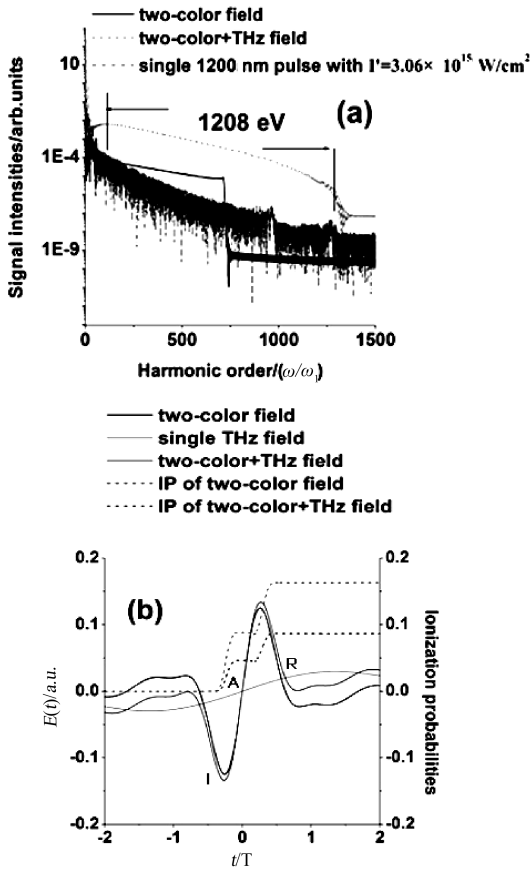


图 3 (a) He 原子在上述双色空间非均匀场, 双色空间非均匀场与太赫兹(THz)的组合场, 以及单色 1200 nm 空间均匀场 $I'=3.06 \times 10^{15}$ W/cm² 时辐射谐波谱图. (b) 双色场、单独太赫兹以及组合场的激光包络图和电子电离几率

Fig. 3 (a) Harmonic spectra from He atom driven by the above two-color inhomogeneous field, the two-color inhomogeneous field combined with a THz field and the single 1200 nm homogeneous field with $I'=3.06 \times 10^{15}$ W/cm². The THz field is chosen to be the 40 fs/37.5 THz with $I_3=5.0 \times 10^{13}$ W/cm². (b) Laser profiles and the ionization probabilities of the two-color field, single THz field and the combined field

随着太赫兹控制场的加入, 谐波辐射强度被增强了 2 个数量级, 并且谐波截止能量获得进一步延伸, 形成了 1 个 1208 eV 的超长平台区. 其谐波截止能量 $E_{\text{cutoff}} = 1293\omega_1 = I_p + 10.2 \times 3.17U_p$, 即相当于单色 1200 nm 空间均匀激光场场强被增强了 10.2 倍. 为了给出本文采用的空间非均匀激光场在谐波发射和量子路径调控方面的优点, 图 3(a) 同时给出 He 原子在单色 1200 nm 空间均匀场下场强为 $I' = 3.06 \times 10^{15}$ W/cm² (即, 相当于 $I = 3.0 \times 10^{14}$ W/cm² 被增强 10.2 倍) 时谐波辐射特

点. 从图中可知, 虽然增强单色空间均匀场场强可以同样达到谐波截止能量在 $1293\omega_1$ 处, 但是谐波光谱干涉结构非常明显, 显然不利于单个阿秒脉冲的输出. 图 3(b) 给出双色场、单独太赫兹场以及组合场下的激光包络图和相应的电子电离几率. 由 Corkum 的“三步模型”可知, 电子电离发生在激光振幅附近, 例如 I 点; 随后自由电子在激光场中加速并与母核发生回碰辐射高次谐波, 例如 A-R 过程. 分析图 3(b) 可知, 随着太赫兹控制场的加入, 电子的加速-回碰过程的振幅(A-R 过程)被增大, 导致电子可以获得更多的加速时间, 进而辐射出能量更高的谐波. 电离几率结果显示组合场下电子电离几率更大, 因此导致谐波辐射强度更强.

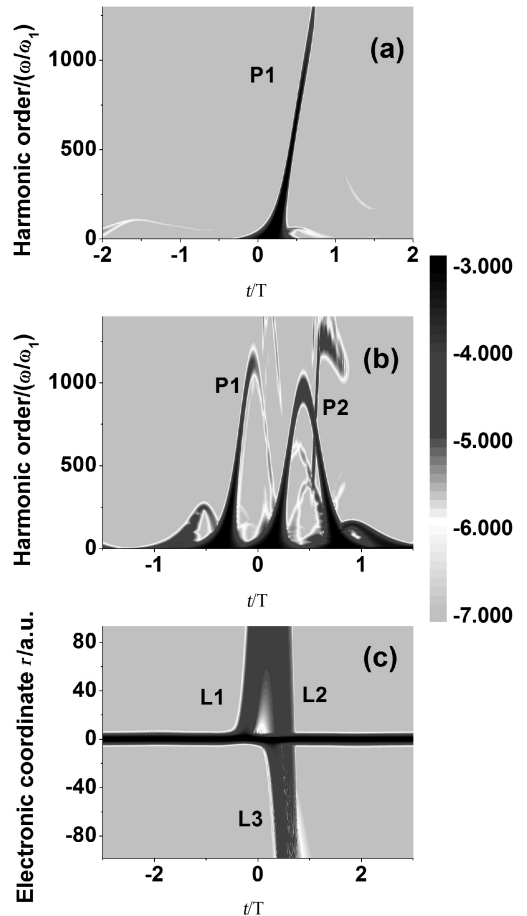


图 4 谐波辐射的时频分析图 (a) 组合场, (b) 单色 1200 nm, $I'=3.06 \times 10^{15}$ W/cm² 的空间均匀场. (c) 组合场下含时波包演化图

Fig. 4 Time-frequency harmonic distributions for the cases of (a) the combined field; and (b) the high-intensity single 1200 nm homogeneous field with $I'=3.06 \times 10^{15}$ W/cm². (c) Time-dependent wave function for the case of the combined field

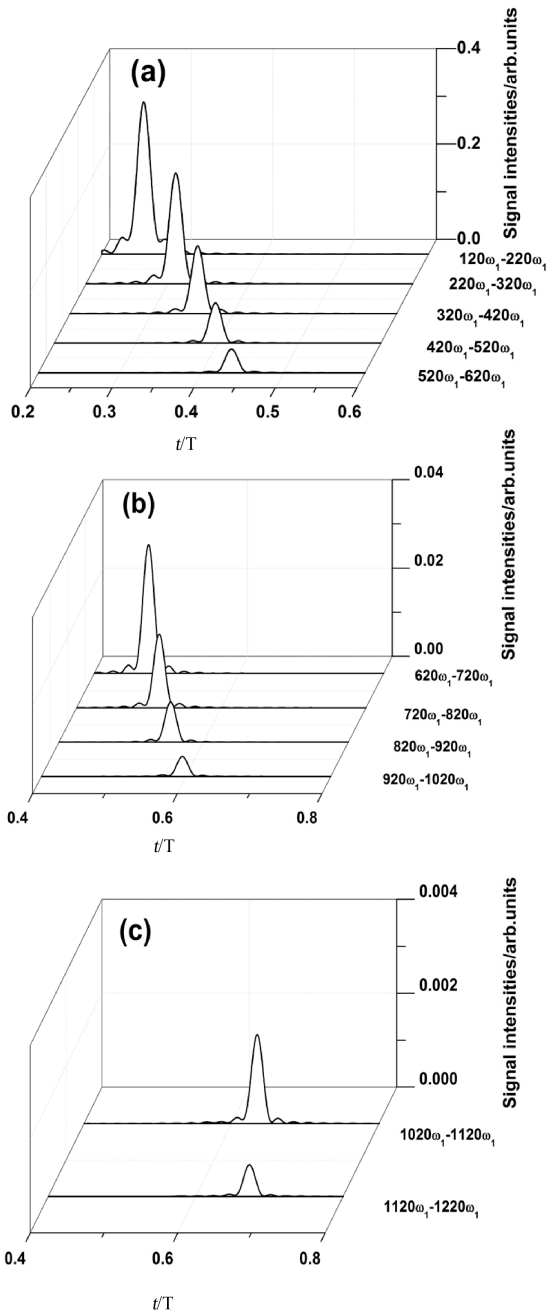


图 5 叠加谐波产生的阿秒脉冲时域包络曲线 (a) $120\omega_1 \sim 620\omega_1$; (b) $620\omega_1 \sim 1020\omega_1$; (c) $1020\omega_1 \sim 1220\omega_1$

Fig. 5 Temporal profiles of the attosecond pulses by superposing harmonics from (a) $120\omega_1 \sim 620\omega_1$; (b) $620\omega_1 \sim 1020\omega_1$; (c) $1020\omega_1 \sim 1220\omega_1$

图 4(a)和 4(b)分别给出 He 原子在组合场以及单色 1200 nm , $I' = 3.06 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ 的空间均匀场下谐波辐射的时频分析图. 从图中可知, 在组合场下, 只有单一的谐波辐射过程 P_1 对谐波光谱平台区有贡献作用, 并且只有单独的短量子路径被选择出来对其辐射过程起作用, 这一现象非常有利于单个阿秒脉冲的输出. 在单色 1200 nm 高场强

下, 谐波平台区由 2 个辐射过程组成, 即, P_1 和 P_2 过程. 虽然其谐波辐射能量与组合场情况相似, 但其每个辐射过程都有等强度的长短两条量子路径共同作用产生, 因此导致谐波平台区干涉结构非常大, 不利于形成单个阿秒脉冲. 图 4(c)给出组合场下电子含时波函数的演化图. 由图可知, (i) 电子在 $-0.25 \sim 0.5 \text{ T}$ 时间内形成电离-加速-回碰过程, 即, 相当于图 4(a)时频分析图中的短量子路径; (ii) 随后, 电子在 0.25 T 附近第二次远离母核, 但并为在随后 0.5 个周期内发生与母核的回碰, 因此导致谐波辐射的长量子路径减弱.

图 5 给出叠加组合场下产生的谐波后获得的阿秒脉冲时域包络曲线. 例如, 从 $120\omega_1 \sim 1220\omega_1$ 的连续平台区每隔 $100\omega_1$ 进行谐波的叠加, 可以获得 11 个持续时间在 34 as 的单个阿秒脉冲. 其波段覆盖为 $10 \sim 1 \text{ nm}$. 但是由于谐波辐射强度由低阶谐波向高阶谐波呈下降趋势, 因此获得的阿秒脉冲强度会随着光子能量的增加而减小, 如图 5(a) \sim 5(c) 所示.

4 结 论

综上所述, 本文理论研究了 He 原子在空间非均匀激光场下谐波辐射的量子路径调控. 结果表明, 随着空间非均匀激光场引入位置由负向 $-r_0$ 到正向 $-r_0$ 移动, 谐波截止能量明显增大, 并且只有短量子路径对谐波辐射平台区有贡献作用. 随后适当引入一束太赫兹激光场, 谐波强度被增强 2 个数量级, 并且形成一个 1208 eV 的超长平台区. 最后, 通过叠加谐波, 可获得一系列持续时间在 34 as 的超短脉冲, 其波段覆盖为 $10 \sim 1 \text{ nm}$.

致谢: 作者非常感谢大连化物所韩克利研究员所提供的计算程序.

参考文献:

- [1] Brabec T, Krausz F. Intense few-cycle laser fields: frontiers of nonlinear optics [J]. Rev Mod Phys, 2000, 72: 545.
- [2] Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics [J]. Rev Mod Phys, 2009, 81: 163.
- [3] 冯立强. 双色场驱动不对称分子产生超短 X 射线光源 [J]. 原子与分子物理学报, 2015, 32: 269.
- [4] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization [J]. Phys Rev Lett, 1993, 71: 1994.
- [5] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, et al. Theo-

- ry of high-harmonic generation by low-frequency laser fields [J]. *Phys Rev A*, 1994, 49: 2117.
- [6] Mairesse Y, Bohan A D, Frasinski L J, *et al.* Attosecond synchronization of high-harmonic soft x-rays [J]. *Science*, 2003, 302: 1540.
- [7] Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, *et al.* Single-cycle nonlinear optics [J]. *Science*, 2008, 320: 1614.
- [8] 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]. *J Phys B: At Mol Opt*, 2009, 42: 225601.
- [9] Li P C, Zhou X X, Wang G L, *et al.* Isolated sub-30-as pulse generation of an He^+ ion by an intense few-cycle chirped laser and its high-order harmonic pulses [J]. *Phys Rev A*, 2009, 80: 053825.
- [10] Sansone G, Benedetti E, Calegari F, *et al.* Isolated single-cycle attosecond pulses[J]. *Science*, 2006, 314: 443.
- [11] Feng L Q. Improved polarization gating scheme on attosecond source generation[J]. *Spectrosc Lett*, 2016, 49: 367.
- [12] Feng L Q, Chu T S. Generation of an isolated sub-40-as pulse using two-color laser pulses: combined chirp effects [J]. *Phys Rev A*, 2011, 84: 053853.
- [13] 冯立强. 利用双色啁啾激光场产生超短的单个阿秒脉冲[J]. *原子与分子物理学报*, 2015, 32: 823.
- [14] Kim S, Jin J, Kim Y J, *et al.* High-harmonic generation by resonant plasmon field enhancement [J]. *Nature*, 2008, 453: 757.
- [15] Yavuz I. Gas population effects in harmonic emission by plasmonic fields [J]. *Phys Rev A*, 2013, 87: 053815.
- [16] 刘航, 冯立强. 利用空间非均匀场偏振门方案产生超短的 X 射线光源 [J]. *原子与分子物理学报*, 2016, 33: 877.
- [17] Lu R F, Zhang P Y, Han K L. Attosecond-resolution quantum dynamics calculations for atoms and molecules in strong laser fields [J]. *Phys Rev E*, 2008, 77: 066701.
- [18] Xue S, Du H C, Xia Y, *et al.* Generation of isolated attosecond pulses in bowtie-shaped nanostructure with three-color spatially inhomogeneous fields [J]. *Chin Phys B*, 2015, 24: 054210.
- [19] Burnett K, Reed V C, Cooper J, *et al.* Calculation of the background emitted during high-harmonic generation [J]. *Phys Rev A*, 1992, 45: 3347.
- [20] Antoine P, Piraux B, Maquet A. Time profile of harmonics generated by a single atom in a strong electromagnetic field [J]. *Phys Rev A*, 1995, 51: R1750.