

doi: 10.3969/j.issn.0490-6756.2019.03.016

利用不对称极化门方案增强阿秒脉冲的强度

沈志博¹, 刘航¹, 李建¹, 朱爱军¹, 高丽¹, 冯立强^{2,3}, 刘辉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: 理论提出了一种利用不对称极化门方案来增强阿秒脉冲强度的方法. 结果表明, 当两束圆偏振激光场采用不对称的强度时, 不仅谐波干涉减小, 而且谐波辐射强度明显增强, 呈现了一个带宽在 85 eV 几乎由单一量子路径贡献产生的超长连续平台区. 最后, 通过叠加该平台区的谐波辐射光谱可以获得一个半高全宽在 52 as 的超短单个阿秒脉冲.

关键词: 高次谐波; 单个阿秒脉冲; 极化门

中图分类号: O562.4

文献标识码: A

文章编号: 0490-6756(2019)03-0476-05

Intensity enhancement in attosecond pulse by using asymmetric polarization gating technology

SHEN Zhi-Bo¹, LIU Hang¹, LI Jian¹, ZHU Ai-Jun¹, GAO Li¹, FENG Li-Qiang^{2,3}, LIU Hui³

(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: An effective method to enhance the intensities of the attosecond pulses has been proposed by using the asymmetric polarization gating (PG) technology. The results show that when the two circularly polarized pulses are asymmetry in pulse intensity, not only the modulation of the harmonics can be decreased; but also the intensities of the harmonics can be enhanced, corresponding to a 85 eV supercontinuum with the near-single quantum path contribution. Finally, by superposing the harmonics of this supercontinuum, a single attosecond pulse with the full width at half maximum of 52 can be obtained.

Keywords: High-order harmonic generation; Single attosecond pulse; Polarization gating technology

1 引言

随着激光技术的发展, 激光脉宽已经进入到阿秒(10^{-18} s)量级. 这使得人们可以探测原子、分子内超快的电子运动. 高次谐波(High-order harmonic generation, HHG)作为制备单个阿秒脉冲

的有效方案以及探测原子、分子内的超快动力学现象已经被广泛研究^[1-3].

高次谐波的辐射过程首先在 1993 年由 Corkum 提出, 即半经典的‘三步模型’^[4]. 他认为电子首先通过隧道电离进入连续态(过程 I: 电离过程); 随后, 电子在激光场中加速并远离核子(过

收稿日期: 2017-12-05

基金项目: 国家自然科学基金(11504151); 辽宁省教育厅基金(JL201615405); 辽宁工业大学—锦州市北控水务有限公司环境工程实践教学教育中心(2015029)

作者简介: 沈志博(1996-), 男, 辽宁抚顺人, 主要研究方向为激光技术研究.

通讯作者: 刘航. E-mail: liuhang20@126.com

程 II: 加速过程); 最后, 在激光场反向时部分电子反向加速返回核子并与核子发生碰撞进而辐射出高能光子(过程 III: 发射谐波过程). 随后, 在 1994 年由 Lewenstein 等^[5]提出了改进的量子理论, 并考虑了量子干涉效应.

基于上述两种理论, 谐波辐射每半个光学周期发生一次, 并且对于给定的谐波级次有两个量子路径会对其产生贡献, 即短量子路径和长量子路径^[6]. 因此, 在输出阿秒脉冲时会在一个周期内呈现两个脉冲, 这显然不利于实验要求的单个阿秒脉冲输出. 因此, 为了获得单个阿秒脉冲, 研究人员提出了很多种行之有效的方案来调控谐波辐射过程. 例如: 只有几个周期的少周期激光场驱动方案^[7]; 多色场调控激光瞬时波形方案^[8,9]; 啁啾调控方案^[10]; 极化门(polarization gating, PG)方案^[11-13]等.

在上述方案中, 虽然前三种方案都可以获得超短的单个阿秒脉冲, 但是其运用的驱动场脉宽都非常短(少于 5 fs), 这在多数实验室都无法获得. 而对于极化门方案, 由于其通过控制两束左右旋转的圆偏振激光场的延迟时间来使振幅区间的椭圆率趋于线性, 因此可以利用较长的激光脉宽来制备单个阿秒脉冲. 例如: 利用极化门方案, Sansone 等^[11]获得了一个 130 as 的脉冲; Zhao 等^[12]利用双色极化门方案获得了目前为止实验上最短的 67 as 的脉冲; Feng^[13]利用改进的极化门方案获得了少于 100 as 的脉冲.

虽然利用极化门方案获得单个阿秒脉冲的方法已经被广泛研究, 但是几乎所有的极化门都采用对称极化门方式, 即两束激光场具有相同的强度. 因此, 本文理论提出一种利用不对称极化门方案产生阿秒脉冲的方法. 结果表明, 在选用不同激光强度时, 谐波辐射以及阿秒脉冲的强度可以得到有效的增强.

2 计算方法

H_2^+ 与激光场相互作用的二维含时薛定谔方程为^[14,15],

$$i \frac{\partial \psi(x, y, R, t)}{\partial t} = [T_e + V(x, y, R) + k(xE_x(t) + yE_y(t))] \psi(x, y, R, t) \quad (1)$$

$$T_e = -\frac{2m_p + 1}{4m_p} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) \quad (2)$$

$$V(x, y, R) = 1/R - 1/\sqrt{(x-R/2)^2 + y^2} + 1 -$$

$$1/\sqrt{(x+R/2)^2 + y^2} + 1 \quad (3)$$

$$k = \left(1 + \frac{1}{2m_p + 1} \right) \quad (4)$$

$$E_x(t) = E_1 f(t - t_{\text{delay}}/2, 0) \cos(\omega_1 t + \varphi_1) + E_2 f(t + t_{\text{delay}}/2, 0) \cos(\omega_2 t + \varphi_2) \quad (5)$$

$$E_y(t) = E_1 f(t - t_{\text{delay}}/2, 0) \sin(\omega_1 t + \varphi_1) - E_2 f(t + t_{\text{delay}}/2, 0) \sin(\omega_2 t + \varphi_2) \quad (6)$$

$$f(t) = \exp[-4 \ln(2) t^2 / \tau_i^2] \quad (7)$$

其中, x, y 为电子坐标, R 为核间距离, 本文选取 $R = 7.0$ a. u.; $E_i, \omega_i, \tau_i, \varphi_i (i=1, 2)$ 为激光场振幅, 频率, 半高全宽和相位角; t_{delay} 为两束激光场延迟时间.

高次谐波表示为:

$$S(\omega) = \left| \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^{T_{\text{total}}} d_A(t) e^{-i\omega t} dt \right|^2, \quad (8)$$

其中,

$$d_A(t) = - \langle \psi(x, y, R, t) \left| \frac{\partial V(x, y, R)}{\partial x} + E_x(t) + \frac{\partial V(x, y, R)}{\partial y} + E_y(t) \right| \psi(x, y, R, t) \rangle.$$

阿秒脉冲可由叠加谐波光谱获得:

$$I(t) = \left| \sum_q (\int d_A(t) e^{-iq\omega t} dt) e^{iq\omega t} \right|^2 \quad (9)$$

3 结果与讨论

图 1 给出 H_2^+ 在不同延迟时间的 PG 场下辐射谐波的特点. 左右旋转圆偏振激光场为 6 fs/800 nm, $I_{1,2} = 3.0 \times 10^{14}$ W/cm² (记为 $I_1 : I_2 = 3 : 3$), $\varphi_1 = 1.0\pi, \varphi_2 = 0.0\pi$. 由图可知, 随着两束激光场延迟时间的增大, 谐波光谱干涉减小, 但是谐波辐射强度也随之减弱, 这显然不利于阿秒脉冲强度的增强. 因此, 经过计算, 本文采用 $t_{\text{delay}} = 1.0$ fs 时的谐波辐射光谱进行后续分析. 这是由于当 $t_{\text{delay}} = 1.0$ fs 时, 谐波截止能量和谐波辐射强度只有很小的减弱, 但谐波干涉却有明显减小.

为了理解 PG 场下谐波辐射过程, 图 2 给出了上述条件下激光波形和谐波辐射的时频分析图^[16]. 首先, 对于 $t_{\text{delay}} = 0.0$ fs 的情况(线性偏振单色场), 基于三步模型可知, 电子电离发生在激光瞬时振幅附近, 标记为 $i_{1\sim 4}$ (图 2a); 随后电离电子在激光场作用下加速, 在 2/3 光学周期后, 加速电子在激光反向时返回母核并发生回碰辐射高次谐波, 标记为 $r_{1\sim 4}$. 因此, 在谐波辐射的时频分析中可观测到 4 个谐波辐射过程, 标记为 $P_{1\sim 4}$

(图 2b). 但是, P_3 和 P_4 对谐波辐射的贡献较小, 因此, 谐波辐射主要来自于 P_1 和 P_2 的贡献. 对于 $t_{\text{delay}}=1.0$ fs 的情况, 由于极化场(gating 场, 即 $E(x, t)$) 的存在, 激光在上升和下降区间趋于椭圆偏振(图 2c), 因此导致谐波辐射能量峰 P_1 和 P_4 强度减弱^[13](图 2d). 这是谐波光谱干涉减弱的原因. 同时由于延迟时间导致驱动场(driven 场, 即 $E(y, t)$) 振幅减小, 因此, 辐射能量峰 P_2 的强度也有减弱. 对于 $t_{\text{delay}}=2.0$ fs 的情况, 由于延迟时间继续增大, 激光在上升和下降区间趋于圆偏振(图 2e), 这使得极化现象更加明显. 例如, 能量峰 P_1 和 P_4 的贡献几乎观测不到, 谐波辐射主要有能量峰 P_3 贡献产生(图 2f), 这是导致谐波辐射强度明显下降的原因.

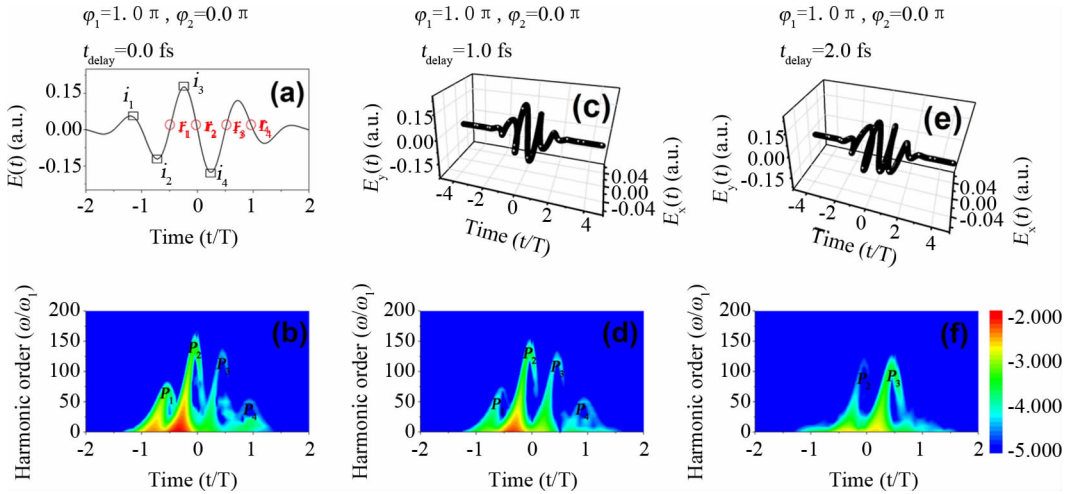


图 2 激光波形和谐波辐射时频分析图

Fig. 2 The laser profiles and the time-frequency analyses of the harmonics (a)~(b) $t_{\text{delay}}=0.0$ fs; (c)~(d) $t_{\text{delay}}=1.0$ fs; (e)~(f) $t_{\text{delay}}=2.0$ fs

图 3 给出两束激光场采用不同强度比时辐射谐波光谱的特点. 若无特殊说明, 以下激光延迟时间为 $t_{\text{delay}}=1.0$ fs. 有图可知, 当激光强度比为 $I_1 : I_2=3 : 1$ 时, 虽然谐波截止能量有所减小, 但是谐波辐射强度有 1.5 个数量级的增强, 这非常有利于阿秒脉冲强度的增强. 并且随着激光强度比继续增大(例如, $I_1 : I_2=5 : 1$), 不仅谐波强度几乎保持 2 个数量级的增强, 谐波截止能量也有所延伸, 这有利于输出光子能量较高的阿秒脉冲. 但是当激光强度比为 $I_1 : I_2=1 : 3$ 时, 谐波截止能量和谐波辐射强度都发生了减弱, 这显然不利于输出高强度阿秒脉冲.

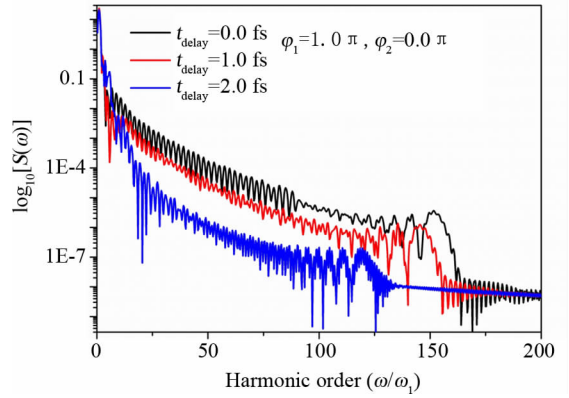


图 1 不对称极化门驱动 H_2^+ 辐射谐波光谱
Fig. 1 Harmonic spectra from H_2^+ driven by the asymmetric PG laser

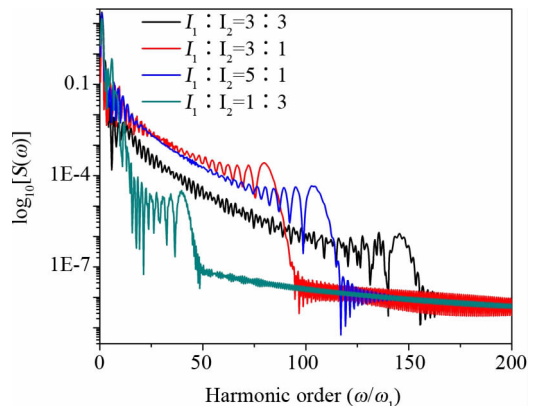


图 3 不同激光强度比下谐波辐射光谱
Fig. 3 Harmonic spectra from the different laser intensity ratios

图 4 给出不同激光强度比下谐波辐射的时频分析图. 从图中可知, 当 $I_1 : I_2 = 3 : 1$ 时(图 4a), 谐波主要贡献来自于辐射能量峰 P_2 , 并且其强度要比 $I_1 : I_2 = 3 : 3$ 时(图 2d)增强很多, 因此导致谐波辐射光谱的增强. 当 $I_1 : I_2 = 5 : 1$ 时(图 4b), 由于激光强度的增强, 谐波辐射能量峰 P_2 的截止能量得到延伸. 并且, 当谐波大于 $50\omega_1$ 时, 只有单一的 P_2 对谐波辐射起贡献, 呈现了一个 85 eV 的连续平台区. 而且其短量子路径(左侧)的贡献要明显大于长量子路径(右侧)的贡献, 这非常有利于单个阿秒脉冲的产生. 当 $I_1 : I_2 = 1 : 3$ 时(图 4c), 虽然 P_3 对于高阶谐波有所贡献, 但是其辐射强度较弱. 因此, 谐波辐射主要来自于能量较低的 P_4 贡献. 这是导致高阶谐波辐射强度减弱的原因.

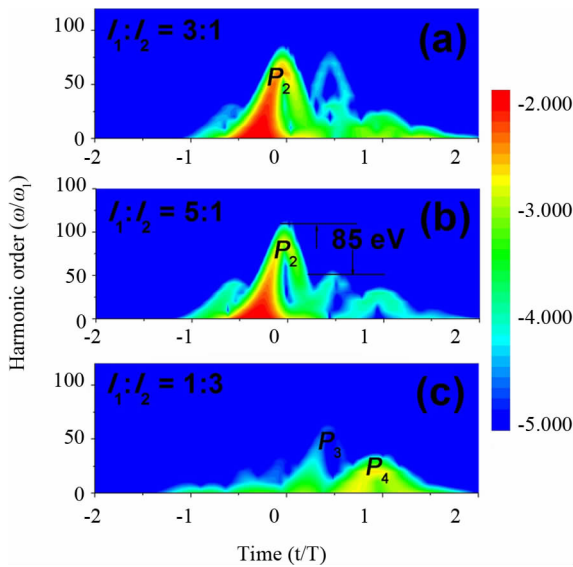


图 4 谐波辐射谱时频分析图

Fig. 4 The time-frequency analyses of the harmonics (a) $I_1 : I_2 = 3 : 1$; (b) $I_1 : I_2 = 5 : 1$; (c) $I_1 : I_2 = 1 : 3$

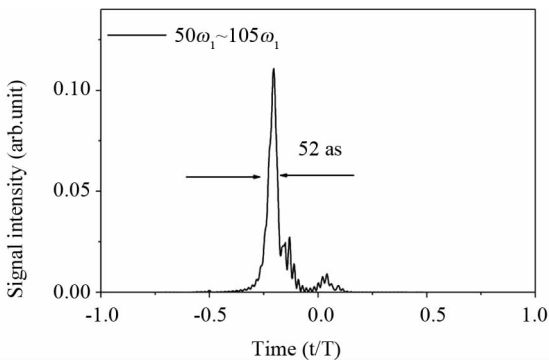


图 5 阿秒脉冲波形

Fig. 5 The temporal profile of the attosecond pulse

由图 4 分析可知, 当激光强度为 $I_1 : I_2 = 5 : 1$ 时, 不仅谐波强度得到增强, 而且当波大于 $50\omega_1$ 时会呈现一个由单一谐波辐射能量峰贡献产生的 85 eV 的连续平台区. 由三步模型可知, 单一辐射能量峰对于单个阿秒脉冲的产生时非常有利的. 因此, 通过直接叠加该情况下谐波光谱的 $50\omega_1$ 到 $105\omega_1$ 次谐波, 可以获得一个脉宽在 52 as 的超短单个阿秒脉冲, 如图 5 所示.

4 结 论

综上所述, 本文提出了一种在利用强度不对称极化门机制增强阿秒脉冲强度的方法. 结果表明, 在此方案下, 不仅谐波辐射强度明显增强, 而且呈现一个由单一谐波辐射能量峰贡献产生的 85 eV 的连续平台区. 最后, 通过叠加平台区谐波可获得了一个脉宽在 52 as 的超短单个阿秒脉冲.

参考文献:

- [1] Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics [J]. Rev Mod Phys, 2009, 81: 163.
- [2] 刘航, 冯立强. 交叉型纳米结构下气体位置对阿秒脉冲的影响 [J]. 原子与分子物理学报, 2019, 36: 459.
- [3] 冯立强, 刘航. 核运动对非奇次谐波产生的影响 [J]. 原子与分子物理学报, 2018, 35: 1005.
- [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.* Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields [J]. Phys Rev A, 1994, 49: 2117.
- [6] Mairesse Y, de Bohan A, Frasinski L J, *et al.* Attosecond synchronization of high-harmonic soft x-rays [J]. Science, 2003, 302: 1540.
- [7] 葛鑫磊, 王群. 少周期非均匀场下原子空间位置对高次谐波发射的影响 [J]. 原子与分子物理学报, 2017, 34: 108.
- [8] Feng L Q. Molecular harmonic extension and enhancement from H_2^+ ions in the presence of spatially inhomogeneous fields [J]. Phys Rev A, 2015, 92: 053832.
- [9] 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.
- [10] Feng L Q, Chu T S. Nuclear signatures on the molecular harmonic emission and the attosecond pulse

- generation [J]. *J Chem Phys*, 2012, 136: 054102.
- [11] Sansone G, Benedetti E, Calegari F, *et al.* Isolated single-cycle attosecond pulses [J]. *Science*, 2006, 314: 443.
- [12] Zhao K, Zhang Q, Chini M, *et al.* Tailoring a 67 attosecond pulse through advantageous phase mismatch [J]. *Opt Lett*, 2012, 37: 3891.
- [13] 冯立强, 刘航. 利用蝴蝶型纳米结构下的极化门方案输出单个阿秒脉冲 [J]. *原子与分子物理学报*, 2019, 36: 82.
- [14] 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.
- [15] Hu J, Han K L, He G Z. Correlation quantum dynamics between an electron and D_2^+ molecule with attosecond resolution [J]. *Phys Rev Lett*, 2005, 95: 123001.
- [16] 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.

引用本文格式:

中文: 沈志博, 刘航, 李建, 等. 利用不对称极化门方案增强阿秒脉冲的强度 [J]. *四川大学学报: 自然科学版*, 2019, 56: 476.

英文: Shen Z B, Liu H, Li J, *et al.* Intensity enhancement in attosecond pulse by using asymmetric polarization gating technology [J]. *J Sichuan Univ: Nat Sci Ed*, 2019, 56: 476.