

调节 X_2^+ 同位素分子电荷共振增强 电离时刻获得高强度阿秒脉冲

冯立强

(辽宁工业大学理学院, 锦州 121001)

摘要: 利用 X_2^+ 同位素分子(H_2^+ 、 D_2^+ 、 T_2^+)谐波辐射的特点, 提出一种有效获得高强度谐波连续区和孤立阿秒脉冲的方法. 研究表明, 在不同脉宽激光作用下, H_2^+ 、 D_2^+ 和 T_2^+ 分子可分别进入电荷共振增强电离区域. 当激光振幅区域的半个周期正好处于电荷共振增强电离区域时, 具有最大辐射能量的谐波能量峰正好具有最佳的辐射强度. 随后, 在此区域引入半周期单极激光场, 被选择出来的谐波能量峰可以继续延伸, 进而获得一个仅由单一能量峰贡献而产生的高强度谐波连续区. 通过叠加连续区上的谐波可以获得脉宽仅为 42 as 的孤立阿秒脉冲.

关键词: 高次谐波; 电荷共振增强电离; 孤立阿秒脉冲; 半周期单极激光场

中图分类号: O562.4 **文献标识码:** A **DOI:** 10.19907/j.0490-6756.2021.034006

Controlling charge resonance enhanced ionization of X_2^+ isotope molecules for generating high-intensity attosecond pulse

FENG Li-Qiang

(College of Science, Liaoning University of Technology, Jinzhou 121001, China)

Abstract: Using the characteristics of harmonic generation from X_2^+ isotope molecules (H_2^+ , D_2^+ and T_2^+), an effective method to generate a high-intensity spectral continuum and isolated attosecond pulse has been theoretically proposed. It is found that, driven by different pulse durations, H_2^+ , D_2^+ and T_2^+ can enter into the charge resonance enhanced ionization region, respectively. When the half-cycle of the laser amplitude region is exactly in the charge resonance enhanced ionization region, the harmonic emission peak with the maximum emitted energy happens to have the optimal harmonic intensity. Further, by introducing a half-cycle unipolar pulse in this region, the selected harmonic emission peak can be extended, showing an intense spectral continuum contributed by single harmonic emission peak. Through superposing the harmonics on this spectral continuum, the pulse duration of 42 as isolated attosecond pulses can be obtained.

Keywords: High-order harmonic generation; Charge resonance enhanced ionization; Isolated attosecond pulse; Half-cycle unipolar pulse

收稿日期: 2020-04-20

基金项目: 辽宁省自然科学基金面上项目(2019-MS-167)

作者简介: 冯立强 (1985—), 男, 辽宁沈阳人, 博士, 副教授, 主要研究强激光场与物质相互作用. E-mail: lqfeng1101@126.com

1 引言

经过近 30 年的研究,高次谐波的产生机理及应用已经被广泛的报道^[1-3]. 一般来说,激光驱动原子、分子辐射高次谐波的过程可以由“电离—加速—回碰”三步模型来解释^[4]. 最后,谐波光谱上会呈现一个平台区和截止能量. 通过叠加谐波平台区的谐波可以获得孤立阿秒脉冲,这是高次谐波最为重要的一个应用. 基于三步模型,谐波截止能量与激光强度和激光波长有关. 因此,为了获得高光子能量的 XUV 或 X-射线范围内的孤立阿秒脉冲,研究人员提出了许多延伸谐波截止能量的方法. 例如:激光波形优化方案^[5-6]、激光瞬时调频技术^[7]、中红外场方法^[8]以及空间非均匀场机制^[9].

在上述方法中,许多孤立阿秒脉冲被制备出来. 但是,较低的谐波转换效率成为了其应用的另一个绊脚石. 因此,如何提高谐波效率(或谐波强度)吸引了研究者的目光. 根据三步模型理论,谐波强度与电离几率有关,因此,最简单的方法就是增强激光强度区提高电离几率,进而可以增强谐波辐射强度. 但是,这么做有两处缺点:第一,高强度激光本身很难获得;第二,利用增强激光强度来获得高强度谐波效率是有极限的. 因此,在吸取了前人经验的基础上,研究人员提出了叠加态模型^[10]以及高里德堡态模型^[11].

众所周知, H_2^+ 及其同位素分子模型的电离过程会呈现电荷共振增强电离的现象,即电离几率在共振电离区域可明显增强^[12]. 因此,这一现象在电离和谐波辐射中有很重要的应用. 鉴于此,本文提出了一种利用 H_2^+ 、 D_2^+ 、 T_2^+ 分子为模型来获得高强度谐波连续区及孤立阿秒脉冲的方法. 首先,利用不同脉宽激光场分别驱动 H_2^+ 、 D_2^+ 、 T_2^+ 分子使其在激光振幅半周期区域正好发生共振电离,这样可以使具有最大辐射能的谐波辐射峰具有最佳辐射强度. 随后,在振幅附近引入半周期单极场可使谐波能量峰进一步延伸,进而获得由单一能量峰贡献而成的高强度谐波连续区. 最后,在该谐波连续区上叠加谐波可获得脉宽为 42 as 的脉冲.

2 计算方法

X_2^+ 同位素分子(H_2^+ 、 D_2^+ 、 T_2^+)与外场作用的薛定谔方程为(具体方法及求解过程见文献^[13]):

$$i \frac{\partial \psi(z, R, t)}{\partial t} = [T_N + T_e + V(z, R) + zE(t)]\psi(z, R, t) \quad (1)$$

$$T_N = -\frac{1}{m_j} \frac{\partial^2}{\partial R^2}, \quad T_e = -\frac{2m_j + 1}{4m_j} \frac{\partial^2}{\partial z^2} \quad (2)$$

$$V(z, R) = \frac{1}{R} - \frac{1}{\sqrt{(z - \frac{R}{2})^2 + 1}} - \frac{1}{\sqrt{(z + \frac{R}{2})^2 + 1}} \quad (3)$$

$$E(t) = E_1 \exp[-4 \ln(2) (\frac{t}{\tau_1})^2] \cos(\omega_1 t) + E_2(t) \quad (4)$$

其中, R, z 为核与电子的坐标. m_j ($j = H, D, T$) 为 H、D、T 核质量. T_N, T_e 表示核与电子动能. $V(z, R)$ 为 X_2^+ 势能. $E(t)$ 为激光场, E_1, ω_1, τ_1 为主频场强度、频率、半高全宽. $E_2(t)$ 为半周期单极控制场,具体描述见讨论部分.

3 结果与讨论

分析结果之前先了解一下 H_2^+ 及其同位素分子的电离过程. 基于文献^[14]可知, H_2^+ 电离过程与核间距有密切关系. 具体来说,当核间距小于 3.5 a. u. 时(a. u. 表示原子单位), H_2^+ 主要以直接电离为主;当核间距在 [3.5 a. u., 8.0 a. u.] 之间时, H_2^+ 进入电荷共振增强电离区域,即电离几率明显增强;当核间距继续增大, H_2^+ 进入解离态电离,电离几率增长变缓慢. 考虑到谐波辐射效率与电离几率成正比,控制电荷共振增强电离的时刻就是本文的重点. 若使其发生在激光振幅附近就可获得高强度高辐射能量的谐波光谱. 根据之前的研究可知^[14],在保证激光强度不变的条件下, H_2^+ 及其同位素分子的核间距延伸与激光脉宽有很大关系. 因此,首先要调节激光脉宽寻找最佳的激光脉宽来调节电荷共振增强电离的时间.

本文中,激光强度为 $4.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$,激光波长为 800 nm. 在计算中,激光脉宽的选取从 10 T 变化到 25 T. 这里 T 表示 800 nm 激光场的光学周期. 但这里只给出最低要求激光脉宽下 H_2^+ 、 D_2^+ 和 T_2^+ 分子谐波辐射过程,如图 1(a)~1(c)所示. 具体分析如下:对于 H_2^+ 分子,当激光脉宽小于 15 T 时,谐波辐射主要集中在激光下降区域,激光振幅区域谐波辐射强度较低. 这显然不满足本文的要求. 当激光脉宽大于等于 15 T 时(例如,脉宽为 15 T),谐波辐射强度明显由激光下降区域向激光上升区域移动. 这时,最大谐波辐射能量峰(P)

具有较高的辐射强度,如图 1(a)所示. 这一结果显然满足要求. 具体来说,这一脉宽区域可由 15 T 延伸到 20 T. 对于 D_2^+ 和 T_2^+ ,在激光脉宽为 17 T 和 20 T 之后,谐波辐射过程也会呈现类似的结果,如图 1(b)和 1(c)所示. 并且,脉宽的区域也可以延伸 5 个周期,即 17~22 T(D_2^+)以及 20~25 T(T_2^+). 为何谐波辐射强度会出现转移? 分析核间距变化以及电离几率可知,对于 H_2^+ 分子,在选取 15 T 脉宽激光场时,当 $t < 7.5$ T,核间距小于 3.5 a. u.,因此,电离几率很小,如图 1(d)所示. 但当 $t > 7.5$ T,核间距逐渐延伸,进入到电荷共振增强电离区域(核间距大于 4.0 a. u.),因此,电离几率

在 $t > 7.5$ T 时明显增强,如图 1(d)所示. 而 $t = 7.5$ T 又是激光振幅区域,这导致具有最大辐射能的能量峰(P)的强度明显增强. 对于 D_2^+ 和 T_2^+ ,在选取 17 T 和 20 T 脉宽激光场时,当 $t < 8.5$ T 或 $t < 10.0$ T, D_2^+ 和 T_2^+ 的核间距小于 3.5 a. u.,因此,电离几率很小,如图 1(e)和 1(f)所示. 但当 $t > 8.5$ T 或 $t > 10.0$ T, D_2^+ 和 T_2^+ 的核间距逐渐延伸到电荷共振增强电离区域,因此,电离几率在 $t > 8.5$ T 或 $t > 10.0$ T 时明显增强,如图 1(e)和 1(f)所示. 对于 17 T 和 20 T 脉宽激光场, $t = 8.5$ T 和 $t = 10.0$ T 又是激光振幅区域,因此,具有最大辐射能的能量峰(P)的强度被增强.

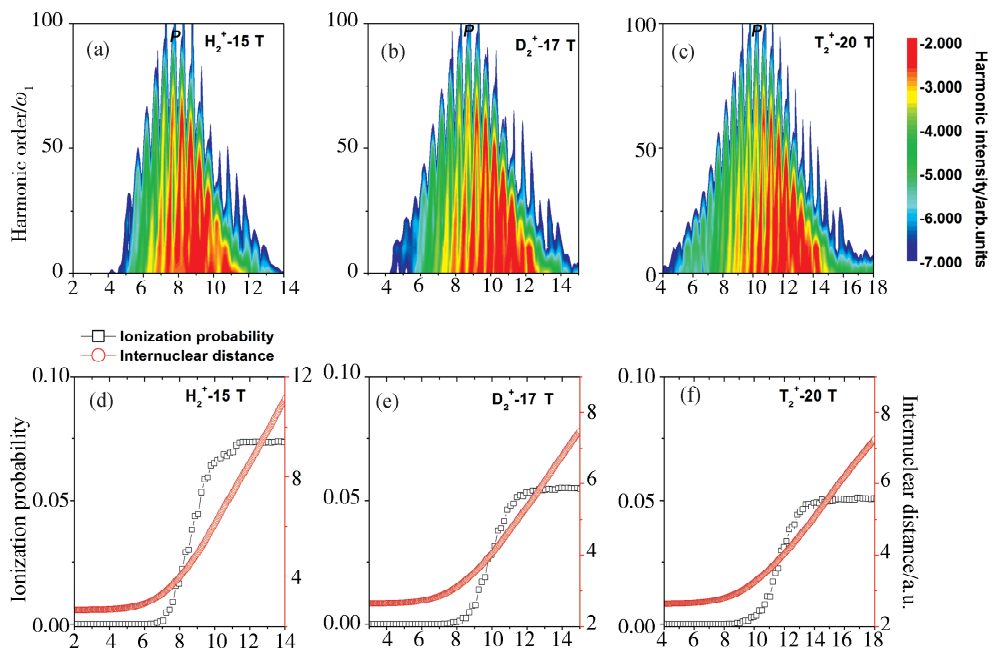


图 1 不同脉宽下谐波时频分析(a~c)以及不同脉宽下电离几率和核间距变化(d~f)
Fig. 1 The time-frequency analyses of harmonics driven by different pulse durations (a~c) and the ionization probabilities and internuclear distances driven by different pulse durations (d~f)

由图 1 的分析可知,当选用 15 T、17 T 和 20 T 脉宽激光驱动 H_2^+ 、 D_2^+ 和 T_2^+ 分子时,其发射的高次谐波在激光振幅区域具有最佳的辐射能量. 这显然满足产生高强度谐波光谱的条件. 但是要获得高强度且高光子能量的阿秒脉冲,不仅谐波强度要高,而且谐波截止能量要尽可能大. 同时为了尽量获得孤立的脉冲,谐波连续区最好由单一能量峰贡献产生. 为了满足上述条件,最简单的办法就是将上述已经选择出来的能量峰进行延伸. 基于三步模型理论,谐波辐射过程发生在半个周期,对于延伸谐波截止能量,加速部分尤为重要. 因此,要想获得能量更大的谐波光谱,需要对上述能量峰

所对应的半个光学周期进行调控. 当然根据前人的研究,想要控制谐波加速过程有许多种方法. 但若只控制单一半周期的谐波辐射过程,最直接的办法就是利用半周期单极激光场方法^[15]. 半周期单极激光场可描述为,

$$E_2(t) = kE_1 \left[\frac{400 (t - t_{\text{delay}})^3 \exp[-8(t - t_{\text{delay}})/\tau_2]}{\tau_2^3} - \frac{0.004 (t - t_{\text{delay}})^5 \exp[-(t - t_{\text{delay}})/\tau_2]}{\tau_2^5} \right] \quad (5)$$

这里, k 表示控制场与主频场强度比, 本文选择 $k = 0.25$; τ_2 为半周期单极场脉宽, 这里 $\tau_2 = 2.67$ fs (即为 800 nm 光学周期); t_{delay} 为控制场和主频场延迟时间.

图 2 给出了采用 15、17 和 20 T 脉宽激光驱动 H_2^+ 、 D_2^+ 和 T_2^+ 分子时,适当引入单极激光场的波形图和谐波辐射过程. 在 15、17 和 20 T 主频场下加入延迟时间为 $t_{\text{delay}} = 7.1\text{ T}$ 、 $t_{\text{delay}} = 8.1\text{ T}$ 以及 $t_{\text{delay}} = 9.6\text{ T}$ 的单极激光场后,激光振幅的半个波形被明显增强,如图 2(a)~2(c)所示. 这时,利用

上述 3 种组合场分别驱动 H_2^+ 、 D_2^+ 和 T_2^+ 分子时,自由电子在该半周期会获得更多的动能,进而导致激光振幅区域的谐波能量峰被明显延伸,如图 2(d)~2(f)所示. 当谐波能量大于 $90\omega_1$ 时,谐波光谱只由单一的能量峰 P 贡献产生,并且其强度很强. 这非常有利于获得高强度孤立阿秒脉冲.

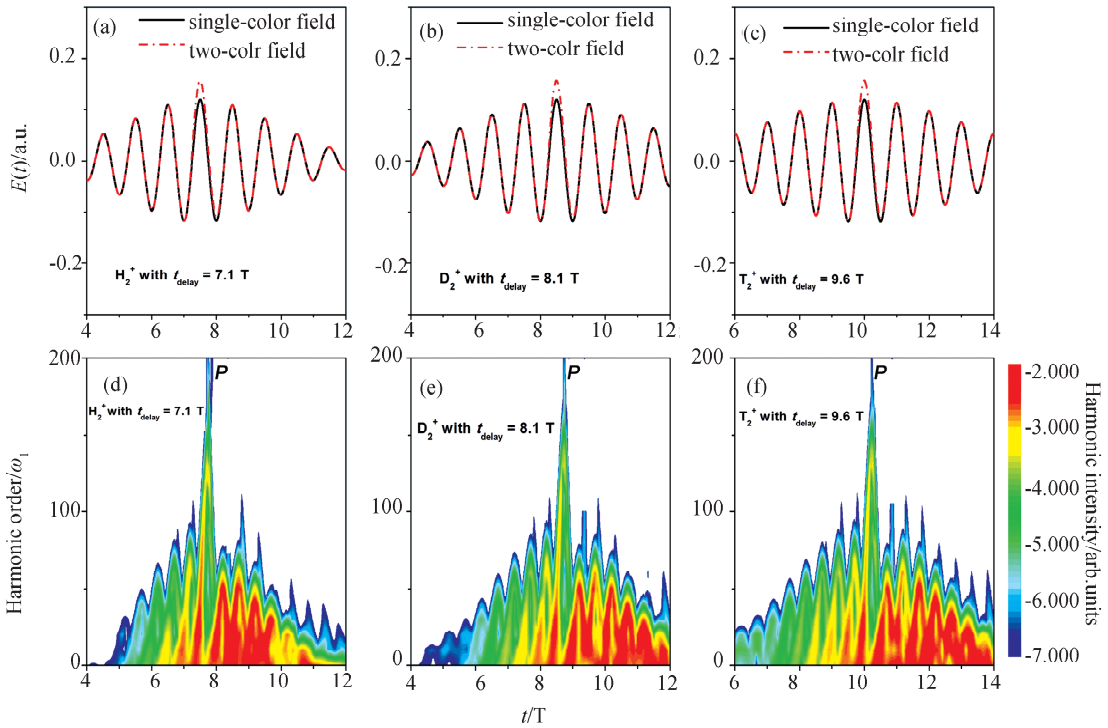


图 2 加入半周期单极场后激光波形(a~c)和谐波时频分析(d~f)

Fig. 2 Laser profiles by adding half-cycle unipolar pulse with (a~c) and the time-frequency analyses of harmonics for the cases of (d~f)

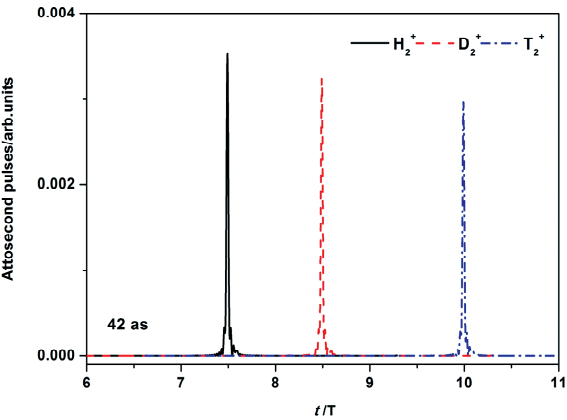


图 3 H_2^+ 、 D_2^+ 以及 T_2^+ 谐波光谱所产生的阿秒脉冲
Fig. 3 Attosecond pulse generations from harmonic spectra of H_2^+ , D_2^+ and T_2^+

通过上述分析可知,在组合场的驱动下 H_2^+ 、 D_2^+ 和 T_2^+ 辐射的高次谐波光谱都可以获得高强度谐波连续区,并且该区域由单一能量峰贡献产生. 最后,选择该谐波连续区,并叠加谐波光谱的 90 次

到 160 次谐波可获得 3 个脉宽在 42 as 的孤立阿秒脉冲,如图 3 所示.

4 结 论

本文提出一种利用 H_2^+ 、 D_2^+ 和 T_2^+ 谐波光谱来获得高强度孤立阿秒脉冲的方法. 首先,在不同脉宽激光场驱动下,使 H_2^+ 、 D_2^+ 、 T_2^+ 分子在激光振幅半周期区域正好发生电荷共振增强电离现象(具体为 15 T- H_2^+ 、17 T- D_2^+ 以及 20 T- T_2^+),这样可使最大辐射能的谐波能量峰具有最佳辐射强度. 随后,在振幅附近引入半周期单极场可使该谐波能量峰进一步延伸(具体为 $t_{\text{delay}} = 7.1\text{ T}$ - H_2^+ 、 $t_{\text{delay}} = 8.1\text{ T}$ - D_2^+ 以及 $t_{\text{delay}} = 9.6\text{ T}$ - T_2^+),进而获得由单一能量峰贡献而成的高强度谐波连续区. 最后,在该谐波连续区上叠加谐波可获得 3 个脉宽为 42 as 的脉冲.

参考文献：

[1] 王志斌, 焦志宏, 周效信. 三色圆偏振激光组合脉冲驱动氦原子产生椭圆偏振的阿秒脉冲[J]. 原子与分子物理学报, 2020, 37: 95.

[2] 冯立强, 刘航, 李义. 利用啁啾激光调制分子谐波信号[J]. 原子与分子物理学报, 2019, 36: 268.

[3] 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.

[4] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization [J]. Phys Rev Lett, 1993, 71: 1994.

[5] Li Y, Feng L Q, Qiao Y. Improvement of high-order harmonic generation via controlling multiple acceleration-recombination process [J]. Z Naturforsch A, 2019, 74: 561.

[6] Li Y, Feng L Q, Qiao Y. Selective enhancement of single-order and two-order harmonics from He atom via two-color and three-color laser fields [J]. Chem Phys, 2019, 527: 110497.

[7] 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.

[8] 冯立强. 非均匀组合场驱动 He 原子获得高强度 keV 阿秒脉冲[J]. 四川大学学报: 自然科学版, 2020, 57: 130.

[9] 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.

[10] Feng L Q, Chu T S. Intensity improvement in the attosecond pulse generation with the coherent superposition initial state [J]. Phys Lett A, 2012, 376: 1523.

[11] Feng L Q, Li Y, Meng F S, *et al.* High-order harmonic and attosecond pulse generations from Rydberg state driven by the spatially inhomogeneous field [J]. Mod Phys Lett B, 2017, 31: 1750029.

[12] Liu H, Castle R S, Feng L Q. Internuclear distance R-distribution of high-order harmonic generation from H_2^+ and its isotopes [J]. Chem Phys, 2017, 485-486: 1.

[13] 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.

[14] Liu H, Li W L, Feng L Q. Chirp control of multiphoton resonance ionization and charge resonance enhanced ionization on molecular harmonic generation [J]. Chem Phys Lett, 2017, 676: 118.

[15] 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.

引用本文格式：

中 文：冯立强. 调节 X_2^+ 同位素分子电荷共振增强电离时刻来获得高强度阿秒脉冲[J]. 四川大学学报: 自然科学版, 2021, 58: 034006.

英 文：Feng L Q. Controlling charge resonance enhanced ionization of X_2^+ isotope molecules for generating high-intensity attosecond pulse [J]. J Sichuan Univ: Nat Sci Ed, 2021, 58: 034006.