

非线性啁啾波形优化获得超短阿秒脉冲

袁 泉, 冯立强

(辽宁工业大学理学院, 锦州 121001)

摘要: 本文通过调控非线性啁啾波形, 提出了运用两种非线性啁啾组合波形延伸谐波截止能量以及增强谐波强度的方法. 研究表明, 适当调节组合场的二阶和三阶啁啾参数、啁啾延迟以及其它激光参数后, 激光波形得到最佳优化. 在最佳波形驱动下, 谐波截止能量和辐射强度明显增大, 进而我们可以获得脉宽在 39 as 的孤立脉冲.

关键词: 高次谐波; 非线性啁啾场; 激光波形调控; 孤立阿秒脉冲

中图分类号: O562.4 **文献标识码:** A **DOI:** 10.19907/j.0490-6756.2021.064002

Nonlinear chirp waveform optimization for obtaining ultra-short attosecond pulses

YUAN Quan, FENG Li-Qiang

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

Abstract: By regulating the nonlinear chirp waveforms, a method to extend the harmonic cutoff and enhance the harmonic intensity by combining two kinds of nonlinear chirp forms has been proposed. The results show that by appropriately adjusting the second-order and third-order chirp parameters, the chirp delays and the other laser parameters of the combined pulse, the laser waveforms can be optimized. Driven by the optimal waveforms, the harmonic cutoff and harmonic radiation intensity can be significantly increased, which can lead to the generation of the isolated pulses with the durations of 39 as.

Keywords: High-order harmonic generation; Nonlinear chirped pulse; Laser waveform control; Isolated attosecond pulse

1 引言

经过近 20 年的研究, 阿秒光源的持续时间已经可以由几百阿秒降到几十阿秒^[1-2]. 这对阿秒科学的发展起到至关重要的影响. 利用几十阿秒量级的孤立脉冲, 尤其是近 1 个原子单位的阿秒脉冲我们可以有效探测原子、分子内超快电子的运动情况, 进而可以对原子、分子电离进行调控^[3].

高次谐波光谱是目前唯一可以获得孤立阿秒

脉冲的方法. 其产生过程可以分为三步: 首先, 束缚电子在激光作用下发生电离; 其次, 被电离的自由电子可以在电场中获得能量; 最后, 电子有几率返回母核, 并与之发生碰撞, 进而发射高能光子. 发射的光子能量为主频场的倍数, 并且其最大辐射能与激光光强和激光频率有关^[4].

孤立阿秒脉冲是通过叠加傅里叶变换后的谐波光谱而获得的. 若想获得高强度、高光子能量的孤立阿秒脉冲, 必须具备高强度的谐波光谱以及较

收稿日期: 2021-03-22

基金项目: 辽宁省自然科学基金面上项目(2019-MS-167)

作者简介: 袁泉 (1975-), 女, 辽宁锦州人, 副教授, 主要研究强激光场与原子相互作用. E-mail: strong_phys_lnut@163.com

通讯作者: 冯立强. E-mail: lqfeng1101@126.com

大的谐波截止能量的条件. 因此,在三步模型理论指导下,许多有效的方法被提出来并且得以实施. 例如:(1) 增强激光强度的空间非均匀激光场,在该机制下,谐波截止能量可以有效延伸,但是谐波强度会有所下降^[5-7]. (2) 调节激光瞬时频率的啁啾激光场,在该机制下,组合激光瞬时频率会减小,因此导致谐波截止能量延伸^[8-9]. (3) 调节激光波形的组合场,在该机制下,组合场激光波形可以得到优化,进而使谐波截止能量和辐射强度得到增大^[10-12].

虽然,人们对组合激光场的波形优化机制已经有所研究^[10-12],但是对于啁啾波形优化的方法目前却没有报道. 因此,本文在三色啁啾组合场下,通过调节不同啁啾参数、啁啾延迟以及其他激光参数获得了最佳的啁啾波形. 在该波形驱动下,谐波截止能量和谐波发射强度都明显增大,进而我们可以获得 2 个脉宽在 39 as 的孤立阿秒脉冲.

2 计算方法

单电子近似和长度表象下外场下含时薛定谔方程可描述为^[13],

$$i \frac{\partial \psi(x, t)}{\partial t} = \left[-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} + V(x) + xE(t) \right] \psi(x, t) \quad (1)$$

其中, x 为电子坐标, $V(x) = -\frac{1}{\sqrt{x^2 + 0.484}}$ 为 He 原子库仑势能, $E(t)$ 为激光场, $\Psi(x, t)$ 为波函数. 方程可利用二阶分裂算符的方法进行求解^[13].

含时偶极加速度可描述为,

$$a(t) = -\langle \psi(x, t) \left| \frac{\partial V(x)}{\partial x} + E(t) \right| \psi(x, t) \rangle \quad (2)$$

随后,高次谐波谱图可表示为,

$$S(\omega) = \left| \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int a(t) \exp(-i\omega t) dt \right|^2 \quad (3)$$

本文三色激光场形式为,

$$\begin{aligned} E(t) = & E_1 \exp\left[-4\ln(2)\left(\frac{t-t_{\text{delay}1}}{\tau_1}\right)^2\right] \cdot \\ & \cos(\omega_1(t-t_{\text{delay}1}) + \varphi_1 + \delta_1(t)) + \\ & E_2 \exp\left[-4\ln(2)\left(\frac{t-t_{\text{delay}2}}{\tau_2}\right)^2\right] \cdot \\ & \cos(2\omega_1(t-t_{\text{delay}2}) + \varphi_2 + \delta_2(t)) + \\ & E_3 \exp\left[-4\ln(2)\left(\frac{t-t_{\text{delay}3}}{\tau_3}\right)^2\right] \cdot \\ & \cos(4\omega_1(t-t_{\text{delay}3}) + \varphi_3 + \delta_3(t)) \end{aligned} \quad (4)$$

其中, $E_{1,2,3}$ 为激光振幅, ω_1 为主频场频率, $\tau_{1,2,3}$ 为激光脉宽, $\varphi_{1,2,3}$ 为激光相位, $t_{\text{delay}1,2,3}$ 为激光延迟,

$\delta_{1,2,3}(t)$ 为啁啾形式. 具体来说,主频场频率为 0.028 a. u. (即 1 600 nm 激光场),三色场激光脉宽都为 10 周期激光场,总激光强度为 300 TW/cm². 本文啁啾形式分为二阶啁啾和三阶啁啾,即 $\delta_{1,2,3}(t) = c_{1,2,3}(t-t_{c1,2,3})^2$ 和 $\delta_{1,2,3}(t) = c_{1,2,3}(t-t_{c1,2,3})^3$. 其中, $c_{1,2,3}$ 为啁啾参数, $t_{c1,2,3}$ 为啁啾延迟.

3 结果与讨论

谐波光谱的优化是通过大量的计算选择出来的. 选择过程可分为三步:首先,调节啁啾参数获得最佳谐波光谱;其次,调节啁啾延迟获得最佳谐波光谱;最后,调节其他激光参数(例如:相位、延迟和光强)获得最终的最佳谐波光谱. 这里定义上述三次调节过程的激光波形分别为波形一(waveform 1)、波形二(waveform 2)和波形三(waveform 3). 二阶啁啾和三阶啁啾的最佳激光参数如表 1 和表 2 所示. 同时,图 1 给出了最佳二阶啁啾和三阶啁啾波形驱动下的高次谐波光谱. 如图 1 所示,在最佳啁啾波形下,不仅谐波截止能量得到延伸;并且谐波强度得到增强.

表 1 二阶最佳啁啾波形激光参数

Tab. 1 The laser parameters of the two-order chirped pulse

Parameters	Values	Parameters	Values
Chirp parameters		Time delays	
c_1	-6.0×10^{-5}	$t_{\text{delay}1}/T$	0
c_2	-7.0×10^{-5}	$t_{\text{delay}2}/T$	0.5
c_3	0	$t_{\text{delay}3}/T$	0
Chirp delays		Laser intensities	
t_{c1}/T	0	$I_1/(TW/cm^2)$	140
t_{c2}/T	0	$I_2/(TW/cm^2)$	80
t_{c3}/T	0	$I_3/(TW/cm^2)$	80
Laser phases			
φ_1	0		
φ_2	0		
φ_3	0		

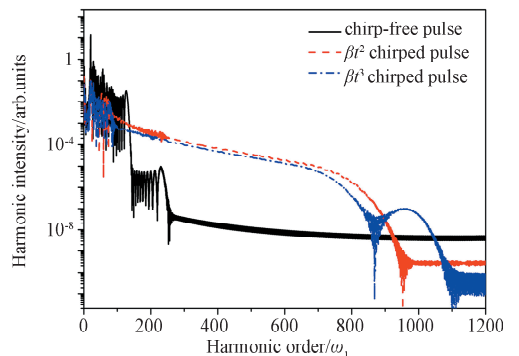


图 1 最佳啁啾波形下谐波光谱

Fig. 1 Harmonic spectra driven by the optimal chirp waveforms

表 2 三阶最佳啁啾波形激光参数

Tab. 2 The laser parameters of the three-order chirped pulse

Parameters	Values	Parameters	Values
Chirp parameters		Time delays	
c_1	-8.0×10^{-8}	$t_{\text{delay}1}/T$	0
c_2	-1.5×10^{-7}	$t_{\text{delay}2}/T$	0.5
c_3	0	$t_{\text{delay}3}/T$	0
Chirp delays		Laser intensities	
t_{c1}/T	-0.5	$I_1/(\text{TW}/\text{cm}^2)$	70
t_{c2}/T	-0.3	$I_2/(\text{TW}/\text{cm}^2)$	160
t_{c3}/T	0	$I_3/(\text{TW}/\text{cm}^2)$	70
Laser phases			
φ_1	0		
φ_2	0		
φ_3	0		

为了了解啁啾波形对谐波的调节过程,图 2 和图 3 给出了二阶和三阶啁啾调节下,谐波发射过程. 首先,对于二阶啁啾情况(图 2 所示). 当激光波形为无啁啾调控时(见图 2(a)和 2(b)),谐波最大和第二大辐射能分别来自能量峰 1 和 2. 由于能量峰 2 强度明显大于能量峰 1 强度,因此,可以在谐波光谱上观测到二阶谐波平台结构. 当引入啁啾参数和啁啾延迟后,即在波形一和波形二下(这里需要指出,在二阶啁啾下,零啁啾延迟的情况为最佳啁啾延迟条件,所示波形一和波形二是一样的), $t = 0.5T$ 到 $t = 1.5T$ 区域的激光频率小于无啁啾的情况(见图 2(c)). 这导致电子在这一区域运动时会获得更多的能量,进而导致能量峰 2 得到延伸,如图 2(d)所示. 当调控激光相位、激光延迟和激光强度后,即在波形三下, $t = 0.5T$ 到 $t = 1.5T$ 区域的激光振幅得到增大,如图 2(e)所示. 因此,电子加速会进一步增大,这导致谐波辐射能量峰 2 进一步增大,如图 2(f)所示. 这也是谐波光谱截止能量在最佳二阶啁啾波形下得到延伸的原因.

分析三阶啁啾波形下谐波发射过程(见图 3). 首先,当啁啾参数引入后,即波形一下,激光波形在 $t = 1.0T$ 到 $t = 2.0T$ 区间得到展宽(见图 3(a)),这导致这一区域的谐波能量峰 3 得到延伸(见如图 3(b)). 当啁啾延迟引入后,即在波形二下, $t = 1.0T$ 到 $t = 2.0T$ 区间激光振幅比波形一下激光振幅得到增大(见图 3(c)),因此导致能量峰 3 进一步延伸(见图 3(d)). 当调节其他激光参数后,即在波形三下, $t = 1.0T$ 到 $t = 2.0T$ 区间激光振幅得到进一步增强(见图 3(e)),进而导致能量峰 3 持续延伸(见图 3(f)). 这是谐波截止能量延伸的原因. 但是,随着 $t = 1.0T$ 到 $t = 2.0T$ 区间激光振幅的

增大,电子获得的动能持续增大,当其在 $t = 2.0T$ 附近与母核发生回碰时,由于 $t = 2.0T$ 附近激光振幅非常弱,这导致电子可以在激光驱动下获得下一次加速,进而获得更大的动能^[14-15]. 这导致在能量峰 3 附近会产生一个光子能量更大的附加能量峰,如图 3(f)所示. 但是,由于电子多重加速-回碰的几率比电子首次加速-回碰的几率小. 因此,附加能量峰强度要明显弱于能量峰 3 的强度. 这是谐波光谱上第二阶平台区强度低的原因.

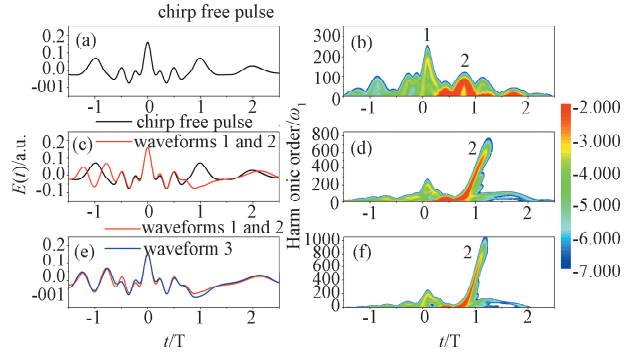


图 2 二阶啁啾激光波形和谐波辐射过程: (a, b) 无啁啾波形, (c, d) 波形一和波形二, (e, f) 波形三
Fig. 2 Laser profiles of two-order chirped pulses and time-profiles of harmonic generation for the cases of (a, b) chirp-free waveform, (c, d) waveforms 1 and 2, (e, f) waveform 3

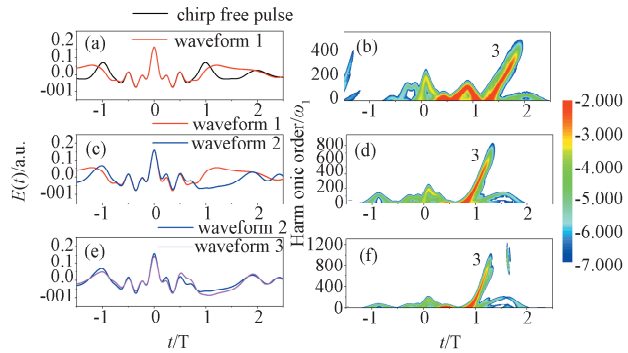


图 3 三阶啁啾激光波形和谐波辐射过程: (a, b) 波形一, (c, d) 波形二, (e, f) 波形三
Fig. 3 Laser profiles of three-order chirped pulses and time-profiles of harmonic generation for the cases of (a, b) waveform 1, (c, d) waveform 2, (e, f) waveform 3

经过上述研究可知,在最佳啁啾波形下,谐波截止能量和谐波强度都可以得到增大;并且,谐波平台区的高能区几乎由单一能量峰贡献产生,这非常有利于孤立阿秒脉冲的产生. 因此,在最佳二阶和三阶啁啾波形下将谐波光谱进行傅里叶变换,随后分别叠加 700~800 次谐波(二阶啁啾波形)和 600~700 次谐波(三阶啁啾波形),可以获得 2 个脉宽在

39 as 的孤立阿秒脉冲,如图 4 所示.

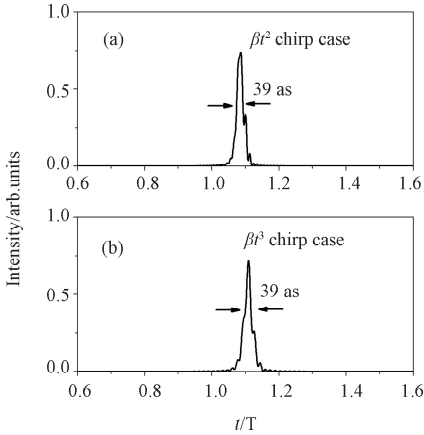


图 4 最佳啁啾波形下获得的阿秒脉冲: (a) 二阶啁啾波形; (b) 三阶啁啾波形

Fig. 4 Attosecond pulses obtained from the optimal (a) two-order chirp waveform and (b) three-order chirp waveform

4 结 论

在二阶啁啾和三阶啁啾下,通过调节啁啾参数、啁啾延迟、激光相位、激光延迟和激光强度获得了最佳啁啾波形. 在该波形驱动下,谐波截止能量和谐波强度得到增大. 最终,通过叠加谐波平台区谐波获得了 2 个 39 as 的孤立阿秒脉冲.

参考文献:

[1] Zhao Y T, Jiang S C, Zhao X, *et al.* Effect of interband polarization on a solid's high-order-harmonic generation just below band gap [J]. *Opt Lett*, 2020, 45: 2874.

[2] Zhao Y T, Ma S Y, Jiang S C, *et al.* All-optical reconstruction of k -dependent transition dipole moment by solid harmonic spectra from ultrashort laser pulses [J]. *Opt Express*, 2019, 27: 34392.

[3] Zhao Y T, Xu X Q, Jiang S C, *et al.* Cooper minimum of high-order harmonic spectra from an MgO crystal in an ultrashort laser pulse [J]. *Phys Rev A*, 2020, 101: 033413.

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

71: 1994.

[5] 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.

[6] 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.

[7] 冯立强, 李义. 相位——啁啾调控对高次谐波光谱的影响 [J]. *原子与分子物理学报*, 2021, 38: 034001.

[8] 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.

[9] Liu H, Li Y, Liu H, *et al.* Multiple-acceleration in "W" waveform structure for high-order harmonic improvement [J]. *J Nonlinear Opt Phys*, 2019, 28: 1950037.

[10] Li L, Zheng M, Feng R L Q, *et al.* Waveform control in generations of intense water window attosecond pulses via multi-color combined field [J]. *Int J Mod Phys B*, 2019, 33: 1950130.

[11] 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.

[12] 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.

[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] 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.

[15] 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.

引用本文格式:

中文: 袁泉, 冯立强. 非线性啁啾波形优化获得超短阿秒脉冲 [J]. *四川大学学报: 自然科学版*, 2021, 58: 064002.

英文: Yuan Q, Feng L Q. Nonlinear chirp waveform optimization for obtaining ultra-short attosecond pulses [J]. *J Sichuan Univ: Nat Sci Ed*, 2021, 58: 064002.