

doi: 10.3969/j.issn.0490-6756.2020.01.018

非均匀组合场驱动 He 原子获得高强度 keV 阿秒脉冲

冯立强^{1,2}

(1. 辽宁工业大学理学院, 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)

摘要: 理论提出了一种利用非均匀组合场驱动 He 原子产生高强度 keV 高次谐波光谱和阿秒脉冲的方法. 结果表明, 适当叠加多周期双色中红外外场与一束少周期近红外外场时, 谐波截止能量可以得到有效延伸, 并且谐波光谱呈现由单一量子路径贡献而成的平台区. 随后, 适当引入一束紫外光源, 在共振增强电离的影响下, 谐波辐射效率可以增强 500 倍. 最后, 通过叠加平台区的谐波, 可获得多个脉宽持续范围在 35 as 以下的单个阿秒脉冲.

关键词: 高次谐波; 阿秒脉冲; 空间非均匀场; 多色场方案

中图分类号: O562.4 **文献标识码:** A **文章编号:** 0490-6756(2020)01-0130-05

Generation of high-intensity keV attosecond pulse from He atom driven by inhomogeneous combined field

FENG Li-Qiang^{1,2}

(1. College of Science, 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)

Abstract: A potential method to produce the high-intensity KeV high-order harmonic generation spectrum and the attosecond pulse has been proposed by using the inhomogeneous combined field. The results showed that with the proper superposition of two-color multi-cycle mid-infrared field and a few-cycle near-infrared field, the harmonic cutoff can be extended and a harmonic plateau contributed by the single quantum path can be obtained. Thereafter, by properly adding an ultraviolet pulse, the signal of the harmonic plateau can be enhanced by 500 dB due to the resonance ionization. Finally, by superposing some selected harmonics, some attosecond pulses shorter than 35 as can be obtained.

Keywords: High-order harmonic generation; Attosecond pulse; Spatial inhomogeneous field; Multi-color field scheme

1 引言

随着激光技术的不断发展,阿秒(1 as = 10^{-18} s)科学受到人们广泛关注. 利用超快阿秒 X 射线(X-ray)光源,人们已经能够探测原子、分子、团簇、固体内电子的超快动力学现象^[1]. 目前,单个阿秒脉冲的产生主要来自于激光驱动原子、分子辐射高

次谐波的过程^[2]. 为了能够获得光子能量更高,辐射强度更强的阿秒脉冲,研究人员需要考虑两点重要因素:(1)如何延伸谐波截止频率;(2)如何提高谐波辐射强度.

根据 1993 年 Corkum 提出的半经典理论模型^[3],高次谐波的辐射过程可以分为三个步骤,即:“电离-加速-回碰”. 基于该理论,谐波光谱

收稿日期: 2018-06-30

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

作者简介: 冯立强(1985-),男,辽宁沈阳人,博士,副教授,主要从事激光技术研究. E-mail: lqfeng1101@126.com

的截止能量出现在 $I_p + 3.17(I/4\omega^2)$ 处, 其中 I_p 、 I 、 ω 分别为体系电离能、激光强度和激光频率. 由此可见, 利用高强度驱动激光场或者长波长驱动激光场都可以有效延伸谐波截止能量. 但是, 单独采用上述两种方案时都存在一些缺点. 例如: (1) 对于采用高强度激光场的情况, 当激光强度高于一阈值时, 由于电子在基态布局的迅速减小谐波强度呈下降趋势^[4]; 并且, 在实验室中获得高强度激光场仍然具有一定难度. (2) 对于采用长波长激光场的情况, 虽然谐波截止能量会得到明显延伸, 但是谐波辐射强度随着激光波长的增大呈指数下降趋势^[5]. 显然, 单独采用以上两种方案不利于产生高强度、高能量的阿秒脉冲. 因此, 为了能获得高强度、高能量的阿秒脉冲, 研究人员提出了很多改进的组合方案, 例如, 多色组合场方案^[6]、频率啁啾场调节方案^[7]和圆偏极化门方案^[8].

最近十年, 在纳米技术的迅猛发展下, 一种利用特殊设计的金属纳米结构来增强激光强度的方法在阿秒科学领域得到了广泛关注^[9]. 这是因为当驱动激光场照射在金属纳米结构表面时, 激光强度在表面等离子共振增强的影响下可以增强数个数量级, 并且在空间上呈现非均匀分布(因此, 在该方案下形成的激光场又叫空间非均匀激光场). 这可以使研究人员在激光阈值条件下(高次谐波辐射激光阈值强度大致在 10^{13} W/cm^2) 获得可观的高次谐波辐射光谱, 非常有利于实验上利用低强度激光场获得阿秒脉冲. 在同等激光强度下, 由于激光场的空间非均匀性, 其辐射谐波的截止频率要比均匀激光场下辐射的谐波截止能量有明显延伸. 例如: Yavuz 等^[10]、Liu 等^[11] 和 Feng 等^[12] 利用改进的单色、双色、三色空间非均匀激光场分别获得了持续时间在 130、30 和 50 as 的超短远紫外阿秒脉冲.

虽然利用非均匀激光场可以延伸谐波辐射截止能量, 但是谐波辐射强度在上述研究中并没有被增强. 正如前文所说, 想要获得高强度、高能量的阿秒脉冲必须要同时满足两个条件. 因此, 本文提出了一种利用非均匀多色组合场驱动 He 原子来同时延伸谐波截止能量和增强谐波辐射强度的方案. 结果表明, 在该方案支持下, 不仅谐波截止频率可以延伸到 keV 区间, 并且谐波辐射强度会有 500 倍的增强. 最后, 通过叠加傅里叶变换后的谐波光谱可获得多个 X-ray 区间范围内脉宽在 35 as 以下的单个阿秒脉冲. 若无特殊说明, 本文采用原

子单位[atomic units (a. u.)].

2 计算方法

空间非均匀激光场驱动 He 原子的动力学行为可由求解三维含时薛定谔方程来描述^[13]:

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

其中, $V(r) = -1.353/r$ 为 He 原子的库仑势能. 组合驱动场可以描述为:

$$E(z, t) = \sum_i (1 + cz) E_i f_i(t) \cos(\omega_i t + \varphi_i) \quad (2)$$

$$f_i(t) = \exp[-2 \ln(2) t^2 / \tau_i^2] \quad (3)$$

其中, E_i 、 ω_i 、 τ_i 、 φ_i ($i = 1, 2, 3 \dots$) 分别表示组合场中各分量场的振幅、频率、脉宽和相位; 非均匀参数 $c = 0.0005$.

高次谐波光谱可表示为:

$$S(\omega) \sim \left| \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int a(t) e^{-i\omega t} dt \right|^2 \quad (4)$$

其中, ω 表示谐波频率; $a(t) = -\langle \psi(r, t) | [H(t), [H(t), r]] | \psi(r, t) \rangle$ 为偶极加速度.

3 结果与讨论

为了能够获得 KeV 的谐波截止能量, 本文首先采用双色中红外激光场与少周期近红外激光场的组合场驱动 He 原子辐射高次谐波. 双色中红外激光场选取为 20 fs–2 000 nm 和 25 fs–2 400 nm, 激光强度为 $I_{1,2} = 5.0 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$. 少周期近红外激光场选取为 5 fs–800 nm, 激光强度 $I_3 = 1.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. 为了能够找到谐波辐射的最佳激光条件, 本文计算了不同激光相位以及延迟时间下谐波辐射的光谱图. 结果表明, 当激光相位选取为 $\varphi_1 = 0.0\pi$, $\varphi_2 = 0.0\pi$; $\varphi_3 = 1.0\pi$ 以及延迟时间选取为 $t_{\text{delay1}} = -0.05T$, $t_{\text{delay2}} = 0.15T$ 时(这里, t_{delay1} 和 t_{delay2} 分别表示 2 000 nm 激光与 2 400 nm 激光延迟以及 2 000 nm 激光和 800 nm 激光延迟; T 表示 2 000 nm 激光光学周期), 谐波辐射具有最佳的结构和截止能量, 如图 1 所示. 同时, 当非均匀参数引入时, 谐波截止能量可以进一步延伸到 $1.620\omega_1$ (相当于 1 004 eV 的能量). 并且高阶谐波处非常平滑, 可以获得一个带宽在 782 eV 的超长连续平台区.

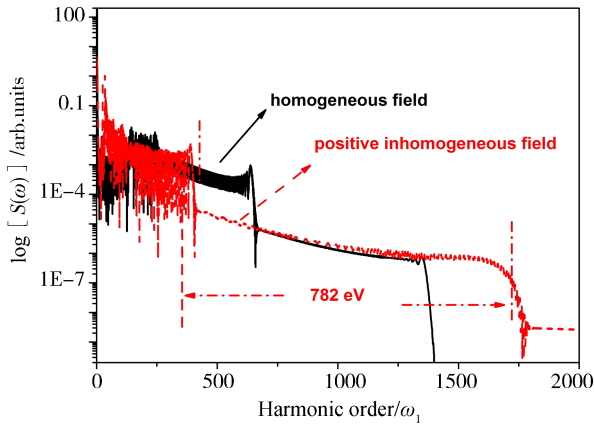


图 1 均匀和正向非均匀激光场下谐波辐射光谱

Fig. 1 Harmonic spectra from the homogeneous and the positive inhomogeneous laser fields

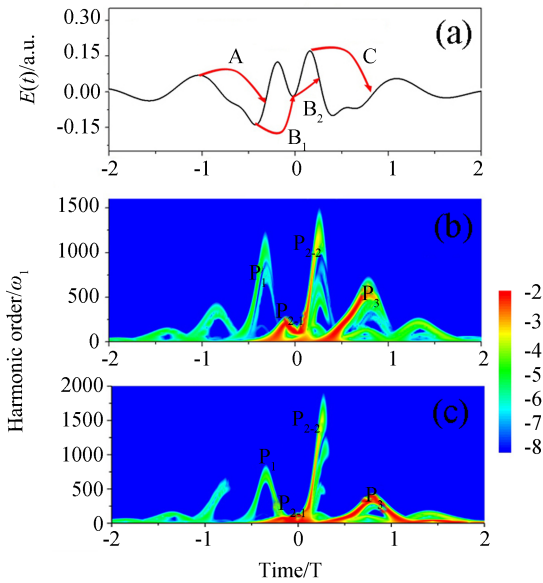


图 2 三色激光场波形图(a)和谐波辐射时频分析图:(b)均匀激光场;(c)非均匀激光场

Fig. 2 Laser profile of the three-color field (a) and time-frequency analyses of the harmonics for the cases: (b) the homogeneous field; (c) the inhomogeneous laser field

为了研究谐波在上述激光条件下辐射的特点,图 2 给出了上述三色场的激光包络图以及在均匀和非均匀激光场下谐波辐射的时频分析图像^[14].由三步模型可知,电子电离发生在激光瞬时振幅附近,然后自由电子经过 0.75 个周期的加速在激光反向时与母核回碰并辐射谐波.分析激光包络图可知,在本文条件下的激光场主要有 4 个电子回碰过程,即: A, B₁, B₂, C, 如图 2(a)所示.因此,在谐波辐射过程中会呈现 4 个主要的谐波辐射能量峰,即: P₁, P₂₋₁, P₂₋₂, P₃, 如图 2(b)和 2(c)所示.但是,谐波辐射能量峰 P₁ 的强度与其它 3 个峰相比很

弱,因此谐波辐射主要来自于 P₂₋₁, P₂₋₂, P₃ 的贡献.具体来说,对于非均匀场的情况[图 2(b)],当谐波能量小于 $630\omega_1$, 谐波辐射来自于 P₂₋₁, P₂₋₂, P₃ 的贡献;但是当谐波能量大于 $630\omega_1$ 时,谐波光谱只由辐射能量峰 P₂₋₂ 贡献产生,因此谐波光谱呈现双平台区的原因.同时由于第二平台区只由单一能量峰贡献产生,这是非常有利于获得单个阿秒脉冲.对于正向非均匀场情况[图 2(c)],由于等离子共振增强的不对称效应,激光强度在正 r 方向会持续增强,但在负 r 方向会有所减弱^[12].因此,当自由电子沿正 r 方向或负 r 方向加速时其会获得更多或者更少的能量.当电子回碰时,来自于正 r 方向或负 r 方向的谐波辐射能量峰分别得到延伸和减小,例如,图 2(c)中 P₂₋₂ 的延伸和 P₃ 的减小.这里,由于 P₃ 能量峰的减小和 P₂₋₂ 的延伸,谐波平台区得到了延伸.并且,当谐波能量大于 $420\omega_1$ 时,谐波连续区只由 P₂₋₂ 贡献产生,依然利于单个阿秒脉冲的输出.

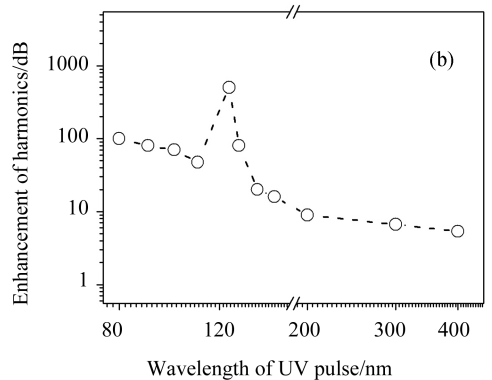
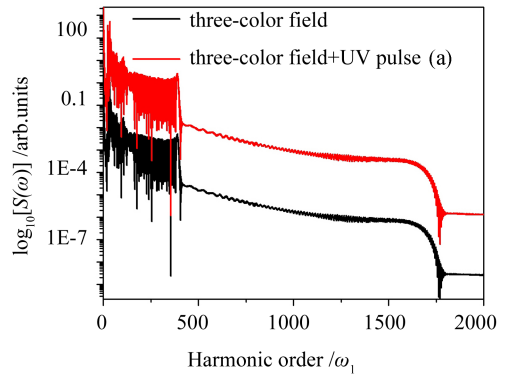


图 3 (a)三色场以及三色场+UV 场下的谐波光谱;(b)不同 UV 场下谐波增强比率

Fig. 3 (a) Harmonic spectra from three-color field and the three-color field + UV pulse; (b) enhancement of harmonics driven by different UV pulses

由上述分析可知,在三色场驱动 He 的情况下不仅可以获得 keV 的谐波截止能量,并且可以获

得由单一量子路径贡献产生的 782 eV 的连续平台区. 这一结果完成了本文的第一个目的, 即: 获得 KeV 的谐波截止能量. 下面利用 UV 调控场来增强谐波辐射强度来完成本文的第二个目的. UV 场选择为 3.0 fs/125 nm, $I_4 = 1.0 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $\varphi_4 = 0.0\pi$. 选择 125 nm UV 场的原子在于其光子能量接近于 He 原子基态与第一激发态之间的双光子共振电离能. 因此, 当引入 UV 光源后, He 原子在双光子共振跃迁下有很大几率从基态跃迁到激发态, 进而增大电离几率以及谐波辐射强度^[15]. 经过计算发现, 当 UV 场与 2000 nm 场的延迟时间 $t_{\text{delay3}} = -0.5T$ 时, 谐波辐射具有最佳的增强效果, 其强度比原三色场时增强 500 倍, 如图 3(a) 所示. 图 3(b) 给出了其它不同 UV 场下谐波辐射增强的情况. 由图可知, 当 UV 波长在 130 nm 以下时, 谐波辐射增强都在 2 个数量级以上 (即 100 倍以上), 并且在 125 nm 处呈现增强的最大值. 当 UV 波长大于 130 nm 时, 谐波增强效果明显减弱.

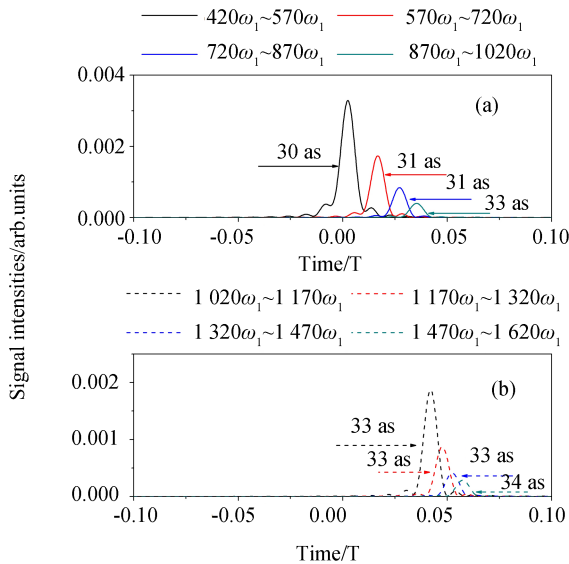


图 4 阿秒脉冲波形图: (a) 叠加范围 $420\omega_1 \sim 1020\omega_1$; (b) 叠加范围 $1020\omega_1 \sim 1620\omega_1$

Fig. 4 The temporal profiles of the attosecond pulse: (a) $420\omega_1 \sim 1020\omega_1$; (b) $1020\omega_1 \sim 1620\omega_1$

在上述组合场驱动下不仅可以获得 keV 的谐波截止能量, 而且可以获得一个谐波辐射强度被增强了 500 倍的连续平台区. 并且, 该平台区只由单一谐波辐射能量峰贡献产生, 这满足获得高强度 keV 阿秒脉冲的所有条件. 因此, 通过适当叠加傅里叶变换后的谐波光谱, 可以获得持续时间在 35 as 以下的单个阿秒脉冲, 如图 4 所示. 具体来说, 当分别叠加 $420\omega_1 \sim 70\omega_1$ 、 $570\omega_1 \sim 20\omega_1$ 、 $720\omega_1 \sim$

$70\omega_1$ 、 $870\omega_1 \sim 1020\omega_1$ 、 $1020\omega_1 \sim 170\omega_1$ 、 $1170\omega_1 \sim 320\omega_1$ 、 $1320\omega_1 \sim 470\omega_1$ 以及 $1470\omega_1 \sim 620\omega_1$ 时, 可以分别获得脉宽为 30、31、31、33、33、33、33 和 34 as 的单个阿秒脉冲, 如图 4 所示.

4 结 论

本文提出了一种利用非均匀多色组合场驱动 He 原子来同时延伸谐波截止频率和增强谐波辐射强度的方案. 结果表明, 在该方案支持下, 不仅谐波截止能量可以延伸到 keV 区间, 并且谐波辐射强度会有 500 倍的增强. 最后, 通过叠加傅里叶变换后的谐波光谱可获得多个 X-ray 区间范围内脉宽在 35 as 以下的单个阿秒脉冲.

参考文献:

- [1] Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics [J]. Rev Mod Phys, 2009, 81: 163.
- [2] 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.
- [3] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization [J]. Phys Rev Lett, 1993, 71: 1994.
- [4] Strelkov V V, Sterjantov A F, Shubin N Y, et al. XUV generation with several-cycle laser pulse in barrier-suppression regime [J]. J Phys B At Mol Opt Phys, 2006, 39: 577.
- [5] Shiner A D, Trallero-Herrero C, Kajumba N, et al. Wavelength scaling of high harmonic generation efficiency [J]. Phys Rev Lett, 2009, 103: 073902.
- [6] 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 Phys, 2009, 42: 225601.
- [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] 何文娜, 王国利, 周效信. 极化门控制下中红外外激光场驱动 He 原子产生的单个阿秒脉冲 [J]. 原子与分子物理学报, 2015, 32: 437.
- [9] Kim S, Jin J, Kim Y J, et al. High-harmonic generation by resonant plasmon field enhancement [J]. Nature, 2008, 453: 757.
- [10] Yavuz I. Gas population effects in harmonic emission by plasmonic fields [J]. Phys Rev A, 2013, 87: 053815.
- [11] 刘航, 冯立强, 刘辉. 空间非均匀激光场下 He 原

- 子辐射谐波的量子路径调控[J]. 四川大学学报: 自然科学版, 2018, 55: 543.
- [12] Feng L Q, Li W L, Liu H. Electron-nuclear dynamics in molecular harmonic generation driven by a plasmonic nonhomogeneous field [J]. *Ann Phys: Berlin*, 2017, 529: 1700093.
- [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] 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.
- [15] Feng L Q, Chu T S. Intensity enhancement in attosecond pulse generation [J]. *IEEE J Quantum Electron*, 2012, 48: 1462.

引用本文格式:

中文: 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.

英文: Feng L Q. Generation of high-intensity keV attosecond pulse from He atom driven by inhomogeneous combined field [J]. *J Sichuan Univ: Nat Sci Ed*, 2020, 57: 130.