

专题: 阿秒物理

优化双色近红外激光及其二次谐波场 驱动原子产生孤立阿秒脉冲*

杜进旭¹⁾ 王国利^{1)†} 李小勇²⁾ 周效信¹⁾³⁾

1) (西北师范大学物理与电子工程学院, 兰州 730070)

2) (西北民族大学电气工程学院, 兰州 730030)

3) (中国科学院物理研究所, 北京凝聚态物理国家实验室, 北京 100190)

(2022年7月11日收到; 2022年8月5日收到修改稿)

随着激光技术的快速发展, 通过多色激光的相干合成实现波形的调控已成为可能, 这为实现超短孤立的阿秒脉冲输出创造了条件. 本文基于强场近似方法, 优化双色近红外激光与二次谐波场的相干叠加脉冲驱动氩原子产生孤立阿秒脉冲. 研究表明, 在双色近红外基础上加入倍频光后, 通过优化激光参数, 能使单原子高次谐波的发射性质得到很大的改善, 在一定能量范围内接近实现无啁啾发射, 从而获得较短的孤立阿秒脉冲. 在考虑了气体的宏观传播效应后, 选择合适的实验条件, 能够产生脉冲宽度达 40 as 的孤立脉冲. 最后研究了气体压强对高次谐波性质和阿秒脉冲的影响. 该研究可为实验室利用近红外激光脉冲驱动原子获得超短孤立阿秒脉冲提供参考.

关键词: 高次谐波, 孤立阿秒脉冲, 优化激光波形, 宏观传播

PACS: 32.80.Rm, 42.65.Ky, 42.65.Re

DOI: 10.7498/aps.71.20221375

1 引言

强激光与气体相互作用产生的高次谐波 (high-order harmonic generation, HHG) 是一种非常重要的桌面相干光源, 它的频率可以覆盖从极紫外 (XUV) 到软 X 射线区域^[1-4]. 由于具有频谱宽的特点, 高次谐波最重要的应用之一是产生阿秒 (attosecond, as) 脉冲. 使用这些超短的阿秒脉冲可以探测和控制原子和分子中的电子动力学过程^[5-7]. 高次谐波的产生过程可以通过三步模型来解释^[8,9], 即在激光场作用下原子分子中的电子首先发生隧穿电离, 接着在激光场中传播, 最后与母核复合发出高能谐波光子. 根据该模型, 谐波在每半个激光光周期内发射一次, 由此产生的高次谐波在时间上

以阿秒脉冲链的形式出现^[5]. 为了获得更好的时间分辨率, 需要采用选通办法以在众多发射中选择一次有效的高次谐波辐射, 从而产生单个的孤立阿秒脉冲 (isolated attosecond pulse, IAP). 自从 2001 年 Hentschel 等^[6] 首次报道由高次谐波生成 650 as 脉冲以来, 已经发展了多种基于传统多周期钛:蓝宝石激光器产生 IAP 的选通技术, 如振幅选通 (amplitude gating)^[10]、电离选通 (ionization gating)^[11]、阿秒灯塔 (attosecond lighthouse)^[12,13] 等.

另外, 采用合适波形的驱动激光, 将高次谐波辐射限制在半个光学周期内, 也可以产生孤立阿秒脉冲. 如 Goulielmarkis 等^[10] 使用亚 4 fs 的近单周期驱动脉冲产生了带宽为 40 eV 的超连续谐波谱, 从而获得了脉冲能量为 0.5 pJ 的 80 as 脉冲. 这种利用少周期脉冲驱动产生孤立阿秒脉冲的方法必

* 国家自然科学基金 (批准号: 11864037, 91850209, 11964033) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: wanggl@nwnu.edu.cn

须要求单个脉冲的载波包络相位 (carrier-envelope phase, CEP) 稳定且精准可控, 这对实验室激光技术提出了很大的挑战^[14,15]. 对于长脉冲, 根据谐波发射强度与驱动激光椭圆偏率的依赖关系^[16], 可用两束具有合适时间延迟的反旋圆偏振激光限制谐波发射时间, 获得孤立阿秒脉冲. 如 Li 等^[17] 利用这种偏振选通 (polarization gating) 技术获得了 53 as 的 IAP.

使用钛:蓝宝石激光作为驱动光源, 高次谐波的截止能量一般可以达到约 100 eV. 若要进一步缩短阿秒脉冲的宽度 (对应更宽的谐波连续谱)、提高它的中心能量, 则必须采用更长波长的驱动激光. 例如, 2017 年, Gaumnitz 等^[18] 使用载波包络相位稳定的中红外激光器生成了带宽约为 100 eV、光子能量达到 180 eV、脉冲宽度为 43 as 的孤立阿秒脉冲. 这是目前实验室产生孤立阿秒脉冲的最短宽度. 我国的相关研究团队也已经能够在实验室通过双光门选通技术产生最短达 88 as 的孤立阿秒脉冲^[19], 对于阿秒脉冲的产生和发展国内已有很好的评述性文章发表^[20,21].

具有相同偏振方向的多色线偏振激光场可以有效提高谐波产额和截止能量^[22,23]. 如果激光参数选取合适, 该类型驱动激光则可以产生孤立阿秒脉冲^[24–30]. 该方法消除了对驱动激光须为短脉冲 (亚周期) 的限制^[31]. 实验上, 激光场相干合成成为近年来发展起来的一项先进技术. 利用该技术, 少数实验室已可以产生任意波形的光场. 但由于需要对包括 CEP 在内的众多参数进行精准控制, 该技术在实验操作上仍具有很高的难度^[14,15]. 而我们最近的工作表明^[32], 对于优化的多色场, CEP 虽然会影响激光波形, 但并不影响产生阿秒脉冲的宽度和强度, 这意味着在利用波形相干合成技术产生超短孤立阿秒脉冲的过程中, 只需保持 CEP 稳定即可, 有效降低了实验操作难度. 此外, Pan 等^[33] 通过改变气体压强来有效选择量子路径而获得孤立的阿秒脉冲. 为了缩短阿秒脉冲持续时间, Wang 等^[34] 提出利用空间非均匀电场可以减小谐波发射啁啾, 产生超短孤立阿秒脉冲, 但该方法需借助于纳米结构的等离激元实现. 本文利用两束近红外激光及它们的二倍频场相干合成成为组合场驱动氦原子, 通过优化激光参数, 实现超短孤立阿秒脉冲输出的可能性. 这既可以使得光子中心能量达到 200 eV, 与中红外驱动激光相比, 又能保证阿秒脉冲的辐射强

度^[35–40]. 经优化后的激光组合场与氦原子相互作用, 几乎可以实现无啁啾的谐波发射. 考虑了宏观传播效应后, 获得了脉宽达 40 as 的孤立阿秒脉冲输出. 本文模拟的激光参数以及实验条件在现有的实验室能够实现, 所得到的结论有望在实验室得到验证.

2 理论方法

2.1 激光波形的优化

多色相干合成的驱动激光场可以写成

$$E(t) = \sum_{i=1}^n E_i f_i(t - \delta_i) \cos[\omega_i(t - \delta_i) + \varphi_i], \quad (1)$$

其中 E_i 是电场振幅, $f_i(t) = e^{-2 \ln 2 t^2 / \tau_i^2}$ 为高斯脉冲包络, τ_i 是脉冲持续时间 (full width at half maximum, FWHM), ω_i 为激光角频率, φ_i 为载波包络相位, δ_i 为相对时间延迟. 优化过程中, 取 $\delta_1 = 0$, $\varphi_i = 0$ (也可取其他值, 或通过优化得到, 并不影响最终阿秒脉冲的宽度^[32]). 每束激光脉冲波长保持不变, 若采用双色场 ($n = 2$), 激光的波长均在近红外, 分别取为 $\lambda_1 = 800$ nm, $\lambda_2 = 1200$ nm, 这两种波长的激光在实验室均容易产生. 如果是三色场合成, 则增加一束波长为 λ_2 两倍频的激光, 即 $\lambda_3 = 600$ nm. 如采用四色场, 则再添加一束 λ_1 的倍频场, 即 $\lambda_4 = 400$ nm. 其他参数 (E_i, δ_i) 采用遗传算法 (genetic algorithm, GA) 优化适应度函数得到. E_i 的搜寻空间决定于总激光强度, δ_i 的优化空间限定在 $[-3$ fs, 3 fs]. 遗传算法是一种能处理高度非线性响应函数的优化算法, 已应用于强场现象的研究^[41,42]. 在优化过程中, 从随机生成的个体群体开始, 计算每个个体的适应度值; 通过遗传、交叉、变异等运算产生下一代, 直到适应度值达到收敛, 优化过程终止. 优化迭代代数取为 3000, 每代的个体数为 10, 采用的适应度函数为

$$F = \frac{I_1}{I_2 \times \Delta\tau}, \quad (2)$$

其中, I_1 为所需单原子产生的阿秒脉冲强度, I_2 为其余阿秒脉冲强度, $\Delta\tau$ 为目标阿秒脉冲的宽度.

2.2 单原子谐波和阿秒脉冲的计算

本文研究惰性气体氦原子在组合场驱动下发射高次谐波的性质及其合成的阿秒脉冲特点. 首先采用强场近似 (strong field approximation, SFA)

理论^[43,44]计算氖原子在优化的组合场中诱导的含时偶极矩:

$$x(t) = i \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \left(\frac{\pi}{\varepsilon + i\tau/2} \right)^{3/2} d^* [p_{st}(t, \tau) + A(t)] \times a^*(t) e^{-iS_{st}(t, \tau)} d [p_{st}(t, \tau) + A(t - \tau)] \times E(t - \tau) a(t - \tau) + \text{c.c.}, \quad (3)$$

式中 $E(t)$ 为组合场的电场分量, $A(t)$ 为组合场的矢势, $a(t) = \exp \left[-\frac{1}{2} \int_{-\infty}^t w(\tau) d\tau \right]$ 为原子的基态振幅, 电离速率 $w(\tau)$ 由 ADK (Ammosov-Delone-Krainov) 模型^[45] 计算得到, $d(t)$ 为原子从基态到连续态的偶极跃迁矩阵元. 正则动量 p_{st} 和半经典作用量 S_{st} 由下式给出:

$$p_{st}(t, \tau) = -\frac{1}{\tau} \int_{t-\tau}^t dt'' A(t''), \quad (4)$$

$$S_{st}(t, \tau) = \int_{t-\tau}^t dt'' \left\{ \frac{1}{2} [p_{st} + A(t'')]^2 + I_p \right\}, \quad (5)$$

其中, $I_p = 21.6 \text{ eV}$ 为氖原子的电离势. 然后通过对方程 (3) 做傅里叶变换, 可以得到单原子的高次谐波谱 $S(\omega) \propto \omega^4 |x(\omega)|^2$. 通过叠加某一能量范围的谐波, 则得到单原子阿秒脉冲.

2.3 宏观高次谐波和阿秒脉冲的计算

得到单个原子合成最优单个阿秒脉冲的高次谐波后, 还需考虑激光脉冲和高次谐波在气体介质中的传播, 因为当激光与喷嘴喷射出的气体相互作用时, 大量的氖原子均会发射高次谐波, 同时, 被电离的气体形成等离子体也会对激光束的性质产生影响. 如果相互作用区域内的激光电场分布为 $E(r, z, t)$, 其在传播过程中满足三维麦克斯韦波动方程^[37,46,47]:

$$\nabla^2 E(r, z, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E(r, z, t)}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial J_{\text{abs}}(r, z, t)}{\partial t} + \frac{\omega_0^2}{c^2} (1 - \eta_{\text{eff}}^2) E(r, z, t), \quad (6)$$

式中 z 为激光传播方向, $\eta_{\text{eff}}(r, z, t)$ 为有效折射率:

$$\eta_{\text{eff}}(r, z, t) = \eta_0(r, z, t) + \eta_2 I(r, z, t) - \frac{\omega_p^2(r, z, t)}{2\omega_0^2}, \quad (7)$$

其中, 线性项 $\eta_0 = 1 + \delta_1 - i\beta_1$ 考虑了中性原子的折射 (δ_1) 和吸收 (β_1), 第二项描述了依赖于瞬时激光强度 $I(t)$ 的光学克尔非线性效应, 第三项则考虑了等离子体效应, 等离子体频率 $\omega_p(t) = [e^2 n_e(t) / (\varepsilon_0 m_e)]^{1/2}$, m_e 和 e 分别为电子质量和电荷, $n_e(t)$ 是

自由电子密度.

位于任意位置处的原子发射的高次谐波场 $E_h(r, z, t)$ 在等离子体中演化满足下面的方程^[37]:

$$\nabla^2 E_h(r, z, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E_h(r, z, t)}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 P(r, z, t)}{\partial t^2}, \quad (8)$$

其中, $P(r, z, t)$ 是依赖于驱动电场 $E(r, z, t)$ 的极化项, 其可分解为线性分量和非线性分量, 线性极化率 $\chi^{(1)}(\omega)$ 包含了谐波的线性色散和吸收效应, 非线性极化项 $P_{nl}(r, z, t)$ 可以表示为

$$P_{nl}(r, z, t) = [n_0 - n_e(r, z, t)] D(r, z, t), \quad (9)$$

其中, n_0 为初始中性原子的密度, $D(r, z, t)$ 为单原子偶极矩, 可由 (3) 式给出. 一旦获得气体喷嘴出口面 (近场) 的谐波, 通过 Hankel 变换便可得到远场谐波 (收集处). 叠加特定空间和能量范围的谐波可得到宏观阿秒脉冲^[48].

3 结果与讨论

为了比较由不同成分合成的驱动场对氖原子发射高次谐波及其相应的阿秒脉冲的影响, 首先通过遗传算法优化两色近红外场组合, 即 $800 \text{ nm} + 1200 \text{ nm}$, 激光总强度取 $8.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 得到相应合成电场的波形, 如图 1(a) 中红色实线所示 (对应的激光参数在表 1 的第 2 列给出). 由图可以看出, 通过相干合成两束 16 fs 激光得到了亚周期脉冲. 图 1(b) 中红色实线给出了合成场与 Ne 原子相互作用产生的高次谐波谱. 可以看出, 谐波谱从 140 阶到 270 阶为连续谱. 通过叠加 140—190 阶谐波, 得到了强弱不同的两个阿秒脉冲 (图 1(c)), 其中较强脉冲的宽度约为 50 as . 为了理解阿秒脉冲的发射特点, 对谐波进行了时频分析, 结果如图 1(e) 所示. 由谐波的时频分析图可以看出, 较强的阿秒脉冲来源于具有正啁啾的电子短轨道发射, 而较弱的脉冲则由负啁啾的长轨道贡献. 已有的研究表明^[48], 当谐波经过宏观演化后, 长轨道贡献的脉冲将被抑制, 仅有短轨道发射的单个阿秒脉冲被保留.

为了能够缩短两色近红外激光组合场产生的阿秒脉冲宽度, 我们在两色近红外激光组合的基础上加入了 1200 nm 的倍频场 (即 600 nm 的激光) 形成三色合成场来驱动氖原子. 为了与双色场具有相近的电离几率 (相差不到 5%), 三色场的总激光强度取为 $7.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. 图 1(a) 中蓝色虚线给

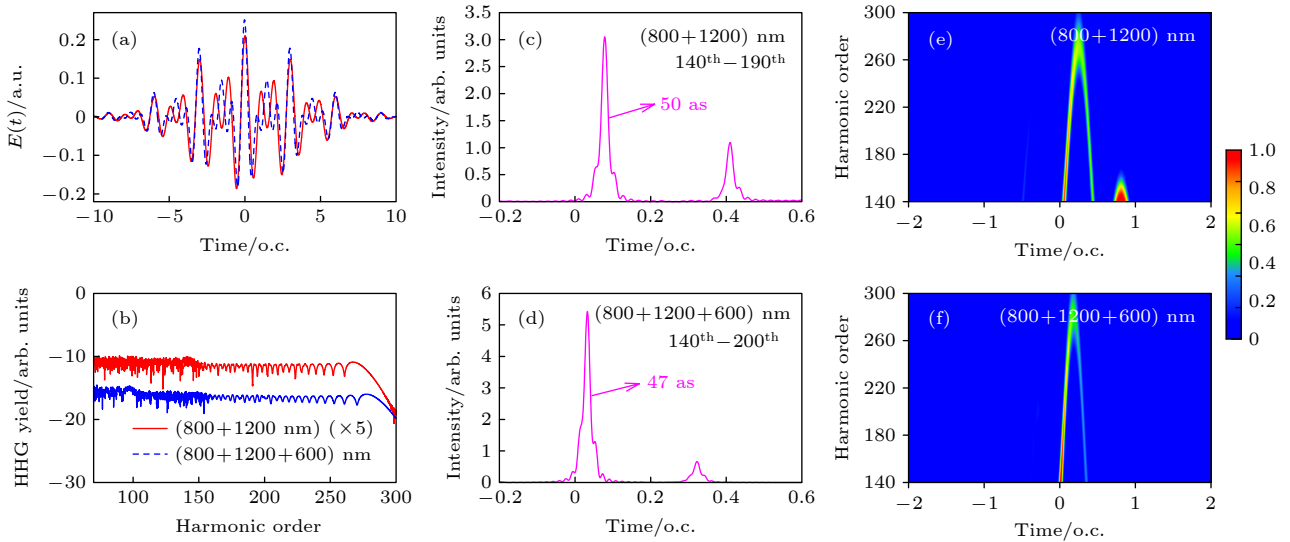


图 1 优化双色场 (800 nm + 1200 nm) 和三色场 (800 nm + 1200 nm + 600 nm) 产生的高次谐波和阿秒脉冲 (a) 优化的激光波形; (b) 两种激光场产生的 Ne 原子高次谐波谱, 为了观察谐波谱的特征, 对双色场谐波谱做了平移处理, 并给出了谐波谱的乘因子; (c), (d) 双色场和三色场下分别叠加 140—190 阶、140—200 阶谐波获得的阿秒脉冲; (e), (f) 双色场和三色场产生的谐波所对应的时频分析, 已将数据归一化处理. o.c. 表示 800 nm 激光脉冲的光学周期

Fig. 1. The high-order harmonic spectra and attosecond pulses generated by optimized two- (800 nm + 1200 nm) and three-color (800 nm + 1200 nm + 600 nm) laser fields: (a) Optimized laser waveforms; (b) Ne harmonic spectra generated by two laser pulses, the harmonic spectrum of two-color field is shifted for easy observation, and the multiplied factors is indicated; (c), (d) attosecond pulses synthesized from harmonics H140–H190 and H140–H200, driven by two- and three-color fields, respectively; (e), (f) time-frequency analysis of the harmonic spectra generated by optimized two- and three-color field, the data have been normalized. o.c. is the optical cycle of 800 nm laser pulse.

出了三色场的优化电场波形, 对应的激光参数在表 1 的第 3 列列出. 与两色近红外组合场相比, 优化三色场的电场波形并没有非常显著的改变, 特别是在阿秒脉冲的主要发射区 (即 $t = 0$ 附近). 图 1(b) 中蓝色线为三色合成场驱动 Ne 原子产生的高次谐波谱, 可以看出, 当加入 1200 nm 脉冲的倍频场后, 产生的谐波截止能量略有提高, 谐波平台区域的连续谱更为平滑, 这将更有利于合成孤立的阿秒脉冲. 图 1(d) 给出了叠加 140—200 阶谐波获得的最短阿秒脉冲. 此时, 得到的仍然是两个阿秒脉冲, 但是, 较弱的那个脉冲强度进一步降低; 而较强脉冲的宽度略有缩短 (47 as). 由图 1(f) 的时频分析可知, 电子长轨道的贡献明显得到抑制. 然而, 产生较强阿秒脉冲的电子短轨道发射的啁啾性并没有得到明显的改善, 因此, 加入 1200 nm 的倍频场后阿秒脉冲宽度的缩短并不十分明显.

如何能够改善短轨道发射的啁啾性是缩短阿秒脉冲的关键. 我们尝试在前面三色场的基础上, 再加入 800 nm 激光的倍频场形成所谓的四色合成场, 并对四色场的激光参数进行优化, 表 1 中第 4 列给出了总峰值强度为 7.0×10^{14} W/cm² 时优化的四色激光场参数, 合成的亚周期波形如图 2(a)

表 1 激光总强度分别为 $8.0I_0$, $7.5I_0$ 和 $7.0I_0$ 时优化的双色场、三色场和四色场激光参数 ($I_0 = 1.0 \times 10^{14}$ W/cm²)

Table 1. Optimized laser parameters for two-, three- and four-color fields with total peak intensity of $8.0I_0$, $7.5I_0$ and $7.0I_0$, respectively ($I_0 = 1.0 \times 10^{14}$ W/cm²).

| 参数 | $I = 8.0I_0$ | $I = 7.5I_0$ | $I = 7.0I_0$ |
|-----------------------|---------------|--------------|---------------|
| | 双色场 | 三色场 | 四色场 |
| I_1/I_0 | <i>5.056</i> | <i>1.991</i> | <i>0.943</i> |
| I_2/I_0 | <i>2.944</i> | <i>2.684</i> | <i>0.757</i> |
| I_3/I_0 | | <i>2.825</i> | <i>1.577</i> |
| I_4/I_0 | | | <i>3.723</i> |
| λ_1/nm | 800.0 | 800.0 | 800.0 |
| λ_2/nm | 1200.0 | 1200.0 | 1200.0 |
| λ_3/nm | | 600.0 | 600.0 |
| λ_4/nm | | | 400.0 |
| τ_1/fs | 16.0 | 16.0 | 16.0 |
| τ_2/fs | 16.0 | 16.0 | 19.0 |
| τ_3/fs | | 16.0 | 19.0 |
| τ_4/fs | | | 16.0 |
| δ_1/fs | 0.0 | 0.0 | 0.0 |
| δ_2/fs | <i>-0.136</i> | <i>0.026</i> | <i>-0.389</i> |
| δ_3/fs | | <i>0.092</i> | <i>0.328</i> |
| δ_4/fs | | | <i>1.828</i> |

注: 斜体显示的是优化得到的值, 常规字体为优化中固定的参数.

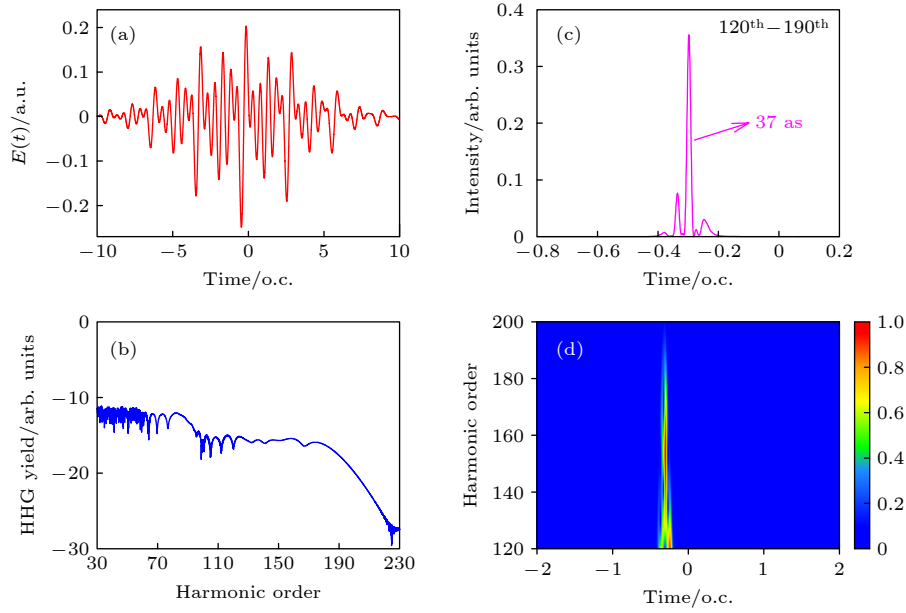


图2 优化四色场(800 nm + 400 nm + 1200 nm + 600 nm)产生的高次谐波和阿秒脉冲 (a) 激光波形; (b) 高次谐波谱; (c) 叠加120—190阶谐波所获得的阿秒脉冲; (d) 谐波所对应的时频分析

Fig. 2. The high-order harmonics and attosecond pulses generated by optimized four-color field (800 nm + 400 nm + 1200 nm + 600 nm): (a) Optimized laser waveform; (b) harmonic spectra; (c) attosecond pulses synthesized from harmonics H120-H190; (d) time-frequency analysis of the harmonics.

所示。图2(b)给出了优化四色场产生的谐波谱，可以看出谐波谱在100—190阶范围内具有很好的超连续性，通过叠加平台区120—190阶谐波，得到了脉冲宽度为37 as的单个脉冲(图2(c))。相比优化的三色场驱动情况，可以发现经优化的四色合成场驱动原子所获得的阿秒脉冲宽度得到了明显的缩短。同样，对四色合成场驱动的谐波谱进行了时频分析(图2(d))，结果表明，在优化四色场驱动下，氦原子发射的谐波谱具有十分明显的特征，不仅电子长轨道对谐波的贡献完全被抑制，而且，在120—190阶的谐波范围内几乎实现了无啁啾发射，表明在该频段不同能量的谐波几乎在同一时间发射。

另一方面，若从半经典的“三步模型”来理解上述现象，表明电子隧穿电离的时间可能不同，电子会在激光场的作用下形成多个电子轨道，它们在激光场中获得的能量也会不同，但是会在几乎相同的时间内与母离子复合，发射出不同能量的高次谐波。为此，我们进行了经典计算与分析。通过求解电子在优化四色场中的经典方程，给出电子在组合场中的电离时间和复合时间与电子能量之间的关系，图3给出了经典计算的结果。从图3可以看出，当电子动能大于185 eV(对应120阶谐波)时，对于给定的能量存在多个电子路径，它们对应的电离时刻不同，主要有4个电离时刻，如图3中标定的

i_1 — i_4 ，而这些不同路径所对应的电子复合时间几乎都被限制在-0.4—0.25光周期间内。由此可见，大于120阶的高次谐波尽管还存在一定的啁啾性，但是，这个啁啾系数是很小的，与量子计算的结果在一定程度上符合得很好。由上面的计算和分析可以看出，在优化的两束近红外以及它们的倍频场合成的四色场作用下，从氦原子发射的高次谐波能够获得较短阿秒脉冲的原因是在较宽的能量范围内谐波发射时间相差很小。这与使用近红外+可见+紫外相干合成场^[49]、近红外+红外^[50]、近红外+紫外^[51]驱动原子发射高次谐波的方案有所不同。

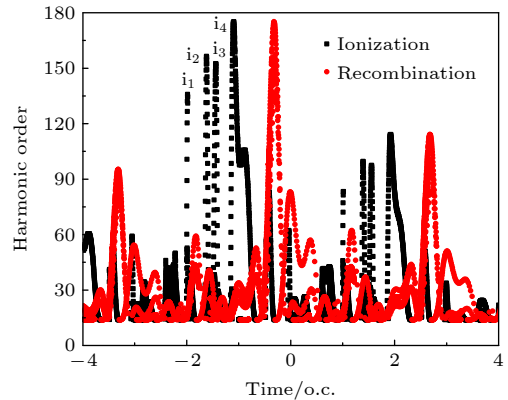


图3 优化四色场中电子动力学的经典分析

Fig. 3. Classical analysis of electron dynamics in optimized four-color fields.

需要说明的是,在不考虑谐波来源是短轨道还是长轨道贡献时,优化四色场最短可产生脉冲宽度为 27 as 的单原子孤立脉冲(结果未给出).然而,这种情况下谐波辐射主要来自长轨道贡献,而长轨道辐射产生的谐波在考虑宏观传播后,很难在传播轴附近实现相位匹配,从而增加了实验对谐波收集的困难.

为了从实验上最终获得孤立的阿秒脉冲,接下来通过求解麦克斯韦方程将上述优化后的四色波形和发射的高次谐波在介质中的传播效应加以考虑.利用表 1 中优化的四色场激光波形作为气体靶中心位置处的激光场.考虑实验条件限制,为了获得短的孤立阿秒脉冲,进一步优化实验条件.最终选取的参数为:气体射流宽度为 1 mm,射流内均匀分布的气体压力为 75 Torr (1 Torr \approx 133.322 Pa),气体射流中心位置位于激光焦斑后 2 mm 处,各激光束腰为 150 μm ,谐波信号收集器(远场)置于激光焦斑后 500 mm 处.

图 4(a) 和图 4(b) 分别给出了优化四色场产生的高阶宏观谐波在近场和远场的空间分布.可以看到,谐波由近场传播到远场后,谐波主要分布在传播轴附近(径向距离小于 ~ 1 mm,对应谐波发散角小于 2 mrad).这样低发散角相干超连续谐波谱,更有利于收集谐波合成短的孤立阿秒脉冲.采用一半径为 r 的圆孔收集远场某一空间范围的谐波,并且消除了不同径向距离处的近场谐波传播到远场时由于发散不同所引起的光程差^[52].图 4(c) 给出

了在远场利用不同孔径圆孔所收集的高次谐波,可以看出,不同空间范围的 100—200 阶谐波均有很好的连续性,叠加相对应的 105—195 阶谐波获得了单个阿秒脉冲(图 4(d)).采用不同半径的空间滤波器对产生的阿秒脉冲强度和宽度均有影响.若不采用任何空间滤波器(总谐波),叠加相同光谱范围谐波可获得较高强度的阿秒脉冲,然而脉冲宽度也较大(70 as).采用半径为 0.2 mm 的空间滤波器对谐波进行滤波,则可获得 50 as 的单个脉冲,如果进一步缩小空间滤波器半径至 0.1 mm 时,阿秒脉冲宽度可短至 40 as.当然,空间滤波范围的减小,伴随的是阿秒脉冲强度的进一步降低.为了理解单个宏观阿秒脉冲是如何形成的,在图 5(a) 和图 5(b) 中分别给出了 105—195 阶谐波辐射在远场的时空分布和半径为 0.2 mm 滤波器收集到谐波的时频分析.从图 5(a) 可以看出,在 $t = -0.38$ o.c. (o.c. 为 800 nm 激光光周期) 时,谐波辐射很强,周围有较弱的辐射,由于球面镜不能完全消除不同径向阿秒发射的光程差,因此随着空间滤波器半径的增大,谐波发射时间范围增大,这解释了为什么随着空间滤波器半径的增大阿秒脉冲宽增大.从图 5(b) 可以发现,考虑宏观传播后,单一电子短轨道辐射仍能保持无啁啾发射,这一结果支持了叠加一定范围谐波生成单个阿秒脉冲的可能性.

由于驱动激光在气体射流中传播时会受到色散、克尔非线性效应和等离子体散焦的影响而发生

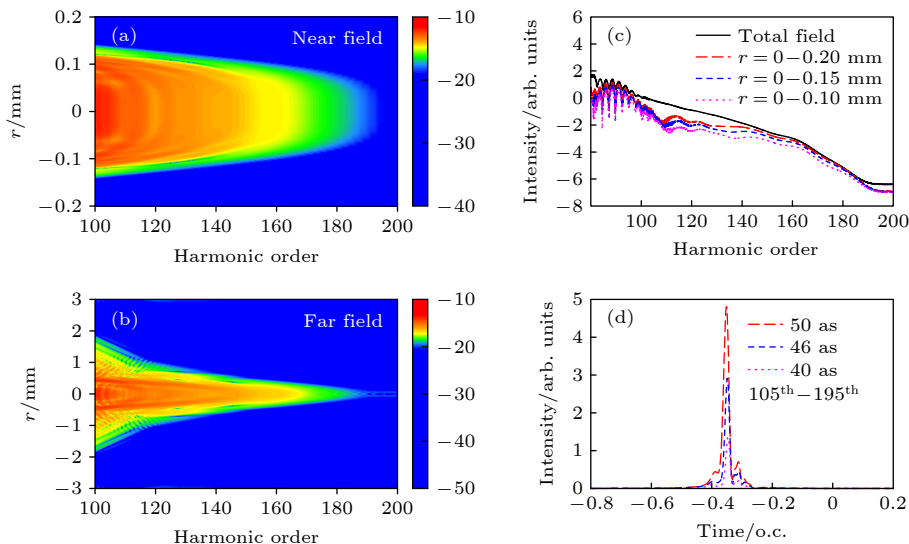


图 4 优化四色场产生的宏观谐波和阿秒脉冲 (a), (b) 分别在近场和远场 ($z = 500$ mm) 谐波辐射的空间分布; (c) 利用不同孔径 r 的圆孔在远场收集到的谐波; (d) 叠加不同空间范围 105—195 阶谐波所获得的阿秒脉冲

Fig. 4. The macroscopic harmonics and attosecond pulses generated by optimized four-color fields: (a), (b) The spatial distributions of harmonic emission in the near and far field, respectively; (c) harmonic spectra collected by a circular filter with different aperture r at the far field ($z = 500$ mm); (d) attosecond pulses synthesized by harmonics H105-H195 from different spatial range.

波形的变化, 从而对产生的谐波造成影响. 当气室压强发生变化时, 加入倍频场后的组合脉冲是否也能产生短的孤立阿秒脉冲? 为此, 另外选择 20 Torr 较低压强和 100 Torr 较高压强, 计算了宏观高次谐波光谱, 其他参数与图 4 相同. 由图 6(a) 可以看出, 随着压强的增大, 由于发射体 (原子数) 数量增

多, 平台谐波产率增加. 同时发现, 在选定的这两个压强下, 当高次谐波光子能量大于 160 eV (对应 105 阶谐波) 时电子短轨道都可以保持无啁啾发射, 如图 6(b) 和图 6(c) 所示. 选择 $r < 0.2$ mm 的远场谐波, 在 20 Torr 压强下, 叠加 100—190 阶谐波, 可获得 41 as 单个脉冲 (图 6(d)); 压强为 100 Torr 时,

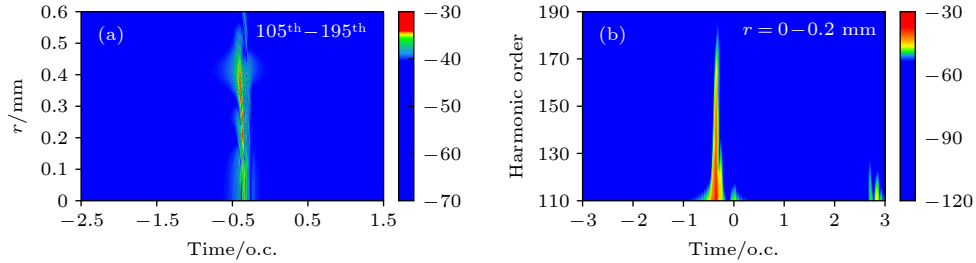


图 5 优化四色场产生的远场谐波时空分布和小波时频分析 (a) 位于远场 $z = 500$ mm 处 105—195 阶谐波发射时间随径向距离的依赖关系; (b) $r = 0-0.2$ mm 空间范围谐波的时频分析

Fig. 5. Spatial distribution and time-frequency wavelet analysis of harmonics generated by optimized four-color fields: (a) The dependence of emission time of harmonics H105-H195 on their spatial distance at the far field $z = 500$ mm; (b) time-frequency analysis of harmonics from 0 to 0.2 mm.

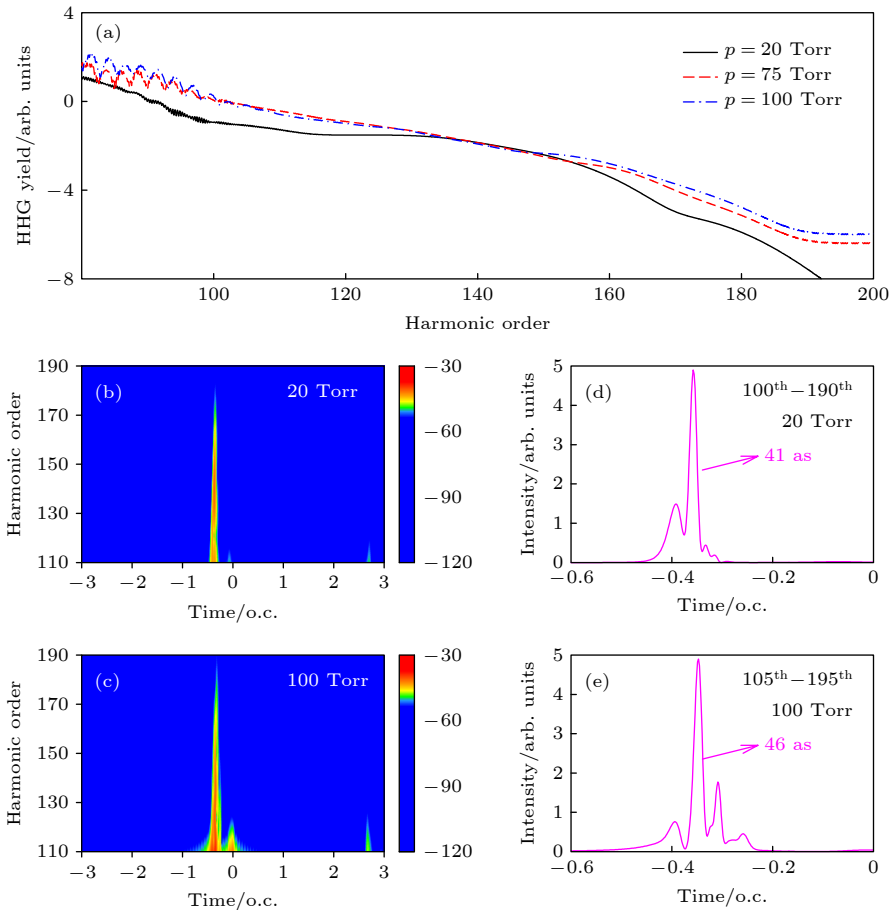


图 6 优化四色场在不同气体压强下产生的宏观谐波和阿秒脉冲 (a) 在 20, 75 和 100 Torr 不同气压下四色场产生的宏观谐波谱; (b), (c) 在 20 Torr 和 100 Torr 气压下, $r < 0.2$ mm 空间范围远场谐波的时频分析; (d), (e) 两个压强下分别获得的阿秒脉冲

Fig. 6. The macroscopic harmonic and attosecond pulses generated by optimized four-color field at different gas pressures: (a) Macroscopic harmonic spectra at gas pressures of 20, 75 and 100 Torr; (b), (c) time-frequency analysis of harmonics from $r < 0.2$ mm at 20 and 100 Torr pressures, respectively; (d), (e) the attosecond pulses synthesized from harmonics at two pressures, respectively.

叠加 105—195 阶谐波, 得到了宽度为 46 as 的脉冲 (图 6(f)). 说明当气体压强在一定范围变化时, 优化两束近红外激光场和它们的倍频场形成的四色场来驱动氩原子发射的高次谐波经过传播后合成的脉冲仍是单个脉冲, 且谐波辐射仍旧保持无啁啾发射, 可以产生脉冲宽度小于 50 as 的单个脉冲, 说明实验中氩原子发射的阿秒脉冲随气体压强的变化是稳定的.

4 结 论

本文利用遗传算法优化了由两色近红外激光及其相应的二倍频场形成的相干合成脉冲波形, 对通过优化后的组合脉冲驱动氩原子发射的高次谐波及其合成的阿秒脉冲性质进行了研究. 结果表明, 仅使用两色近红外或三色激光驱动, 均不能得到理想的结果. 而用两色近红外激光与它们的倍频场进行优化组合来驱动氩原子, 能够产生超连续高次谐波谱并进而获得单个阿秒脉冲. 通过该四色场的驱动不仅能得到单个的阿秒脉冲, 而且谐波几乎能够以无啁啾的形式发射, 即使经过气体宏观传播后, 仍能得到脉宽达到 40 as 的单个超短脉冲. 我们知道, 通过相干合成的方法虽然已经能够在实验室实现, 但是对于激光的控制仍是比较大的挑战, 需要对各激光束稳定的 CEP 和不同激光束之间的时间延迟进行精准控制, 特别是对于多于两束合成更加困难, 而本文使用的激光束虽然是由四色激光合成的, 但是实际上只要对两束红外光的相干叠加实现精准控制就能够实现, 另外两束则是它们的倍频场, 可以通过红外激光经过非线性光学晶体获得, 并且使用的近红外光不论是 800 nm 激光, 还是波长较长的 1200 nm 激光在实验室都比较容易实现. 同时, 在本文的研究方案中, 所使用的其他激光和实验参数都是能够在实验室中比较容易实现的, 例如, 激光的脉宽都大于 15 fs, 所收集的高次谐波中心能量不超过 200 eV, 气体的压强、厚度等参数均是目前实验室常用的条件. 因此, 本文所提方案在操作性上相对容易, 在目前条件下, 借助于实验室光场波形合成和整形技术^[14,15,53,54], 本文的结果有望得到相关实验的验证.

参考文献

[1] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163

- [2] Cousin S L, Silva F, Teichmann S, Hemmer M, Buades B, Biegert J 2014 *Opt. Lett.* **39** 5383
- [3] Popmintchev T, Chen M C, Popmintchev D, Arpin P, Brown S, Alisauskas S, Kapteyn H C 2012 *Science* **336** 1287
- [4] Takahashi E J, Kanai T, Ishikawa K L, Nabekawa Y, Midorikawa K 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 253901
- [5] Paul P M, Toma E S, Breger P 2001 *Science* **292** 1689
- [6] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C 2001 *Nature* **414** 509
- [7] Mashiko H, Gilbertson S, Li C, Khan S D, Shakya M M, Moon E, Chang Z 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 103906
- [8] Schafer K J, Yang B, DiMauro L F, Kulander K C 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 1599
- [9] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [10] Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, Yakovlev V S, Gagnon J, Uiberacker M, Aquita A L, Goulielmakis E M, Attwood D T, Kienberger R 2008 *Science* **320** 1614
- [11] Ferrari F, Calegari F, Lucchini M, Vozzi C, Stagira S, Sansone G, Nisoli M 2010 *Nat. Photonics* **4** 875
- [12] Vincenti H, Quéré F 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 113904
- [13] Kim K T, Zhang C, Ruchon T, Hergott J F, Auguste T, Villeneuve D M 2013 *Nat. Photonics* **7** 651
- [14] Fang S B, Wei Z Y 2019 *Acta Opt. Sin.* **39** 0126006 (in Chinese) [方少波, 魏志义 2019 光学学报 **39** 0126006]
- [15] Yang Y D, Wei Z Y 2022 *Acta Photonica Sinica* **51** 0151109 (in Chinese) [杨煜东, 魏志义 2022 光子学报 **51** 0151109]
- [16] Corkum P B, Burnett N H, Ivanov M Y 1994 *Opt. Lett.* **19** 1870
- [17] Li J, Ren X M, Yin Y C, Zhao K, Chew A, Cunningham E, Wang Y, Hu S Y, Wu Y, Chini M, Chang Z H 2017 *Nat. Commun.* **8** 186
- [18] Gaumnitz T, Jain A, Pertot Y, Huppert M, Jordan I, Ardana-Lamas F 2017 *Opt. Express* **25** 27506
- [19] Wang X W, Wang L, Xiao F, Zhang D W, Lu Z H, Yuan J M, Zhao Z X 2020 *Chin. Phys. Lett.* **37** 023201
- [20] Lan P F, Lu P X 2021 *Chin. Sci. Bull.* **66** 847 (in Chinese) [兰鹏飞, 陆培祥 2021 科学通报 **66** 847]
- [21] Yuan H, Cao H B, Wang H S, Liu X, Sun X W, Wang Y S, Zhao W, Fu Y X 2021 *Chin. Sci. Bull.* **66** 878 (in Chinese) [袁浩, 曹华保, 王虎山, 刘鑫, 孙先伟, 王屹山, 赵卫, 付玉喜 2021 科学通报 **66** 878]
- [22] Wang G L, Zhou L H, Zhao S F, Zhou X X 2016 *Commun. Theor. Phys.* **65** 601
- [23] Jin C, Wang G L, Wei H, Le A T, Lin C D 2014 *Nat. Commun.* **5** 4003
- [24] Zeng Z N, Li R X, Xie X H, Xu Z Z 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 4 (in Chinese) [曾志男, 李儒新, 谢新华, 徐至展 2004 物理学报 **53** 4]
- [25] Zeng Z, Cheng Y, Song X, Li R, Xu Z 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 203901
- [26] Lan P, Lu P, Cao W, Li Y, Wang X 2007 *Phys. Rev. A* **76** 011402
- [27] Sansone G, Poletto L, Nisoli M 2011 *Nat. Photonics* **5** 655
- [28] Du H C, Wang X S, Hu B T 2011 *Chin. Phys. B* **20** 084206
- [29] Ge X L, Xia C L, Liu X S 2012 *Laser Phys.* **22** 1704
- [30] Qin Y F, Guo F M, Li S Y, Yang Y J, Chen G 2014 *Chin. Phys. B* **23** 093205
- [31] Liu S N, Chen G, Meng J 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 14 (in Chinese) [刘胜男, 陈高, 孟健 2012 物理学报 **61** 14]
- [32] Yang K, Du J X, Wang G L, Jiao Z H, Zhao S F, Zhou X X 2022 *J. Opt. Soc. Am. B* **39** 3
- [33] Pan Y, Guo F, Jin C, Yang Y J, Ding D J 2019 *Phys. Rev. A* **99** 033411

- [34] Wang J, Chen G, Li S Y, Ding D J, Chen J G, Guo F M, Yang Y J 2015 *Phys. Rev. A* **92** 033848
- [35] Falcao-Filho E L, Lai C J, Hong K H, Gkortsas V M, Huang S W, Chen L J 2010 *Appl. Phys. Lett.* **97** 061107
- [36] Hadrich S, Klenke A, Rothhardt J, Krebs M, Hoffmann A, Pronin O, Tunnermann A 2014 *Nat. Photonics* **8** 779
- [37] Jin C, Le A T, Lin C D 2011 *Phys. Rev. A* **83** 023411
- [38] Colosimo P, Doumy G, Blaga C I, Wheeler J, Dimauro L F 2008 *Nat. Phys.* **4** 386
- [39] Wang G L, Dong X M, Zhao S F, Zhou X X 2016 *Chin. Sci. Bull.* **61** 1808 (in Chinese) [王国利, 董小敏, 赵松峰, 周效信 2016 *科学通报* **61** 1808]
- [40] Hong K H, Lai C J, Gkortsas V M, Huang S W, Moses J, Granados E, Kartner F X 2012 *Phys. Rev. A* **86** 043412
- [41] Chipperfield L E, Robinson J S, Tisch J W G, Marangos J P 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 063003
- [42] Balogh E, Bódi B, Tosa V, Goulielmakis E, Varjú K, Dombi P 2014 *Phys. Rev. A* **90** 023855
- [43] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, Huillier L, Corkum P B 1994 *Phys. Rev. A* **49** 2117
- [44] Lewenstein M, Salieres P, Huillier A L 1995 *Phys. Rev. A* **52** 4747
- [45] Ammosov M V, Delone N B, Krainov V P 1986 *Sov. Phys. JETP* **64** 1191
- [46] Tosa V, Kim H, Kim I, Nam C H 2005 *Phys. Rev. A* **71** 063807
- [47] Gaarde M B, Tate J L, Schafer K J 2008 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **41** 132001
- [48] He L, Yuan G, Wang K, Hua W, Yu C, Jin C 2019 *Photonics Res.* **7** 12
- [49] Wirth A, Hassan M Th, Grguras I, Gagnon J, Moulet A, Luu T T, Goulielmakis E 2011 *Science* **334** 195
- [50] Yang Y, Mainz R E, Rossi G M, Scheiba F, Silva-Toledo M A, Keathley P D, Kartner F X 2021 *Nat. Commun.* **12** 6641
- [51] Du J X, Wang G L, Jiao Z H, Zhao S F, Zhou X X 2021 *Chin. Sci. Bull.* **66** 949 (in Chinese) [杜进旭, 王国利, 焦志宏, 赵松峰, 周效信 2021 *科学通报* **66** 949]
- [52] Jin C, Hong K H, Lin C D 2016 *Sci. Rep.* **6** 38165
- [53] Xue B, Tamaru Y, Fu Y, Yuan H, Lan P F, Mucke O D, Suda A, Midorikawa K, Takahashi E J 2021 *Ultrafast Science* **1** 13
- [54] Huang P, Fang S B, Gao Y T, Zhao K, Hou X, Wei Z Y 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 031102

SPECIAL TOPIC—Attosecond physics

Generation of isolated attosecond pulses from atoms driven by optimized two near-infrared pulses and their second harmonic fields*

Du Jin-Xu¹⁾ Wang Guo-Li^{1)†} Li Xiao-Yong²⁾ Zhou Xiao-Xin¹⁾³⁾

1) (*College of Physics and Electronic Engineering, Northwest Normal University, Lanzhou 730070, China*)

2) (*College of Electrical Engineering, Northwest University for Nationalities, Lanzhou 730030, China*)

3) (*Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics,*

Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

(Received 11 July 2022; revised manuscript received 5 August 2022)

Abstract

With the rapid development of laser technology, it is possible to control optical waveforms by coherent superposition of electric fields with multiple color components, which creates conditions for generating the ultra-short isolated attosecond pulses (IAP). Based on the strong-field approximation theory, this work focuses on the IAP generated by the optimized multicolor field synthesized by two fundamental near-infrared lasers and their second harmonic fields. The results show that by applying frequency-doubled pulses to the near-infrared laser fields and optimizing the laser parameters, the emission properties of high order harmonics from single atom can be greatly improved, and the nearly attochirp-free harmonic emission can be realized within a certain energy range. As a result, shorter IAPs are obtained. With the consideration of the macroscopic propagation effect of gas, the IAP with a pulse width up to 40 as is generated under appropriate experimental conditions. Finally, the effects of gas pressure on the properties of the high-order harmonic and attosecond pulses are also investigated. This study provides useful theoretical guidance for generating ultra-short IAPs with near-infrared laser pulses in experiment.

Keywords: high-order harmonic generation, isolated attosecond pulse, optimization of laser waveform, macroscopic propagation

PACS: 32.80.Rm, 42.65.Ky, 42.65.Re

DOI: [10.7498/aps.71.20221375](https://doi.org/10.7498/aps.71.20221375)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11864037, 91850209, 11964033).

† Corresponding author. E-mail: wanggl@nwnu.edu.cn

优化双色近红外激光及其二次谐波场驱动原子产生孤立阿秒脉冲

杜进旭 王国利 李小勇 周效信

Generation of isolated attosecond pulses from atoms driven by optimized two near-infrared pulses and their second harmonic fields

Du Jin-Xu Wang Guo-Li Li Xiao-Yong Zhou Xiao-Xin

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 233207 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20221375

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221375>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

利用三色组合脉冲激光获得孤立阿秒脉冲发射

Isolated attosecond pulse generation from helium atom irradiated by a three-color laser pulse

物理学报. 2022, 71(5): 054204 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211502>

基于正交偏振场的双光学控制方案获得孤立阿秒脉冲产生

Isolated attosecond pulse generation from a double optical gating scheme based on orthogonal polarization field

物理学报. 2019, 68(21): 214201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190847>

利用脉宽10 fs偏振控制脉冲获得孤立阿秒脉冲

Isolated attosecond pulse generation from polarization gating pulse with 10 fs duration

物理学报. 2019, 68(18): 184201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190392>

基于高次谐波产生的极紫外偏振涡旋光

Extreme ultraviolet polarization vortex beam based on high harmonic generation

物理学报. 2020, 69(4): 044203 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20190834>

强激光等离子体相互作用驱动高次谐波与阿秒辐射研究进展

Research progress of high-order harmonics and attosecond radiation driven by interaction between intense lasers and plasma

物理学报. 2021, 70(8): 084206 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210339>

非对称波形激光驱动的氢原子高次谐波频移及控制

Frequency shift and control of high-order harmonics of H atom driven by an asymmetric laser pulse

物理学报. 2022, 71(7): 073201 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212146>