

专题: 阿秒物理

优化组合激光场驱动原子产生高次谐波及
单个超短阿秒脉冲理论研究*汉琳¹⁾²⁾ 苗淑莉¹⁾ 李鹏程^{1)†}

1) (汕头大学理学院物理系, 先进光学与光子学研究中心, 汕头 515063)

2) (兰州大学物理科学与技术学院, 兰州理论物理中心, 甘肃省理论物理重点实验室, 兰州 730000)

(2022 年 6 月 30 日收到; 2022 年 8 月 24 日收到修改稿)

高次谐波是获得阿秒紫外光源最主要的方法之一, 是强场超快领域研究的热点问题, 具有非常广泛的应用前景. 本文围绕如何产生超连续高次谐波平台及单个超短阿秒脉冲面临的问题, 概述了这方面研究的进展, 并从理论上展示了一种有效可行的方案, 即将强激光场中的含时薛定谔方程与非约束优化算法相结合, 以扩展谐波平台最宽为目标函数, 分别优化双色和三色组合激光场并驱动氦原子产生超连续高次谐波谱. 优化后的双色组合激光场驱动氦原子产生的超连续谐波谱平台达到了 100 阶, 叠加获得了最短 25 as 的单个阿秒脉冲; 优化后的三色组合激光场驱动氦原子产生的超连续谐波谱平台宽度达到了 170 阶, 叠加获得最短 17 as 的单个阿秒脉冲, 同时谐波转换效率也有所提高. 为了给实验提供切实可行的参考, 本文以优化的双色组合激光场情况为例, 基于同时求解含时薛定谔方程和麦克斯韦方程, 进一步考虑了介质宏观演化效应对单原子层次产生阿秒脉冲的影响, 发现利用远场轴外量子通道的空间选择性可以获得更短的单个阿秒脉冲.

关键词: 高次谐波, 阿秒脉冲, 强激光场, 宏观介质演化**PACS:** 32.80.Rm, 42.50.Ct, 42.65.Ky, 42.65.Re**DOI:** 10.7498/aps.71.20221298

1 引言

激光与物质相互作用可以产生许多非线性光学现象, 如多光子电离^[1-7] (multiphoton ionization, MPI)、阈上电离^[8-12] (above-threshold ionization, ATI)、隧穿电离^[13-19] (tunneling ionization, TI)、高次谐波^[20-24] (high-order harmonic generation, HHG) 等, 其中高次谐波辐射是产生阿秒相干远紫外辐射源最有前途的方法之一. 阿秒脉冲可以实时探测物质中电子动力学过程, 使得研究物质结构的层次从分子扩展到原子内部, 为理解和控

制微观世界的动力学过程提供了强有力的工具^[25].

几十年来, 高次谐波及阿秒脉冲产生的研究引起了人们极大的兴趣. 1987 年, McPherson 等^[26]利用波长 248 nm 的 KrF 激光与稀有气体 Ne 原子相互作用, 首次在实验上观测到了高达 17 阶的高次谐波辐射. 1988 年, Ferray 等^[27]用 1064 nm 的 Nd:YAG 激光与稀有气体 Xe 原子相互作用, 观察到了高达 33 阶的高次谐波. 1993 年, L'Huilier 和 Balcou^[28]用 1053 nm 的 Nd:Glass 激光分别与稀有气体 Xe, Ar, Ne 原子相互作用, 对应观测到了 29 阶、57 阶以及 135 阶高次谐波辐射. 同年, Macklin 等^[29]利用 800 nm 的红外激光与 Ne 原子

* 国家自然科学基金 (批准号: 91850209, 12074239, 12047501)、广东省自然科学基金 (批准号: 2020A1515010927)、广东省科技专项项目 (批准号: 2020ST084)、广东省高校特色创新类项目 (批准号: 2019KTSCX038, 2020KCXTD012) 和汕头大学 (批准号: NTF18030) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: pchli@stu.edu.cn

气体相互作用, 观察到了 109 阶高次谐波. 高次谐波特征谱拥有独特的频谱结构^[30], 低阶谐波随着谐波阶次增加呈指数型衰减, 紧接着出现了一个平台区, 谐波强度随谐波阶次的增加无明显变化, 最后在特定阶次出现一个谐波强度快速下降的截止.

Corkum^[31] 和 Kulander 等^[32] 分别提出了半经典的“三步模型”, 很好地解释了强场高次谐波的产生过程. 首先, 库仑场在外加激光场作用下被压低形成势垒, 电子可以隧穿通过势垒, 紧接着在激光场作用下加速获得能量, 当激光场反向时电子开始减速, 部分电子反向加速回到母核附近与母核碰撞复合, 释放出多余能量, 并辐射出高次谐波. 电子复合辐射出的光子能量是电子动能和电离势能的总和, 最大瞬时动能约等于 $3.17U_p$, U_p 为有质动力能, 所以高次谐波截止位置的能量^[31] $E_{\text{Cutoff}} = I_p + 3.17U_p$, 其中 I_p 代表原子的电离能. Lewenstein 等^[33,34] 基于量子理论提出了一种强场近似模型 (strong-field approximation, SFA), 该模型计算简单, 可以解释大多数强激光场与原子分子相互作用产生的非线性光学现象, 但是该方法没有考虑库仑势的影响, 并且忽略了原子激发态对谐波的贡献, 无法精确描述原子分子在强激光场中强烈的非线性动力学过程. 数值求解含时薛定谔方程 (time-dependent Schrödinger equation, TDSE) 可以避免强场近似理论的不足, 但是求解过程计算量大, 非常耗时. Kulander^[35] 和 Krause 等^[36] 提出了简化的单电子 (single-active-electron, SAE) 模型理论, 极大地减少了计算量, 可以基于 TDSE 更精确地模拟强激光场与原子分子相互作用产生的非线性光学现象. 对于多电子体系, 以最简单的两电子 He 原子为例, 完全求解 TDSE 需要在超级计算机上进行, 很难实现. 1984 年, Runge 和 Gross^[37] 发展了含时密度泛函理论, 用含时的电子密度代替含时电子波函数, 体系的维数不再随电子数目增加, 大大减少了计算量, 使得处理强激光场中复杂多电子体系的模拟成为可能.

当前, 高次谐波的产生研究主要集中在两个方面: 一是增强高次谐波的发射效率; 二是扩展高次谐波的平台. 高次谐波的发射效率受电子复合概率和空间传播相位匹配等因素的影响^[38]. 高次谐波平台截止频率正比于 $I\lambda^2$, 其中 I 代表激光场强度, λ 代表激光场波长. 通过增加驱动激光场的强度, 可以增加电子电离概率, 实现电子复合概率的增

加, 也可以达到扩展高次谐波平台的目的. 1997 年, Spielmann 等^[39] 和 Chang 等^[40] 利用钛蓝宝石激光器产生中心波长为 800 nm 的短波长高强度激光, 并驱动 He 原子产生了接近 500 eV 的高次谐波谱. 相比其他中性稀有气体原子, He 原子的饱和强度最高, 可承受的激光强度最高, 但是 He 原子产生的高次谐波效率比其他气体原子低几个数量级^[41]. 由于受限于电子电离饱和效应, 不可能无限制地增加驱动激光的强度来扩展谐波平台, 因此增加驱动激光的波长就成为另一个必然的选择^[42-53]. 虽然利用长波长驱动可以增大谐波截止频率, 但是会出现谐波效率降低的问题. 已有研究表明^[54], 谐波效率受波长影响, 转换效率以波长标定为 $\lambda^{-5.5 \pm 0.5}$. 为了克服这些困难, 人们提出了多色组合激光场^[55-72] 驱动原子分子的方案, 目的是获得兼具高发射效率和超宽平台的谐波辐射. 实验研究方面, Shelton 等^[73] 通过控制两路同步飞秒激光产生了短阿秒脉冲; Hassan 等^[74] 和 Wirth 等^[75] 利用飞秒钛宝石激光多路参量放大的方案, 开展了三路飞秒激光相干合成的实验研究; Hassan 等^[76] 进一步采用四路可见光波段的飞秒激光调控合成激光的电场波形得到了 380 as 脉冲. 理论研究方面, Takahashi 等^[59] 通过混合多周期双色激光场产生连续高次谐波谱, 获得强的单个阿秒脉冲. Feng 和 Chu^[77] 通过控制三个激光场的激光参数, 研究了 He 原子在三色场中产生超短阿秒脉冲的最佳条件, 表明通过合成两色或三色组合激光场, 优化激光场波形, 不仅可以增加谐波的截止频率, 还可以在不增加激光总功率的情况下增强谐波强度到两个数量级, 从而产生更强更短的单个阿秒脉冲.

实际上, 理论模拟高次谐波及阿秒脉冲的产生还需考虑宏观介质演化效应的影响, 求解宏观介质演化效应需结合含时薛定谔方程和麦克斯韦方程, 计算工作量巨大. Jin 等^[78] 基于强场近似的重散射模型 (quantitative rescattering theory, QRS) 结合麦克斯韦方程求解两色和三色组合激光场, 研究了宏观相位匹配效应对 Ne 原子气体产生高次谐波的影响, 该方法计算量相对较小, 还可以解释大部分实验现象. 为了更精确描述强激光场驱动原子分子产生高次谐波及单个阿秒脉冲, 更深层次理解背后的物理机制, 同时求解了含时薛定谔方程和麦克斯韦方程^[79-82], 首次将非约束优化算法 (NEW unconstrained optimization algorithm, NEWUOA)^[83]

和含时薛定谔方程相结合, 以扩展谐波平台最宽为目的构造目标函数, 分别优化双色和三色组合激光场, 并驱动 He 原子产生超宽平台高次谐波及单个阿秒脉冲, 同时基于求解麦克斯韦方程考虑了宏观演化效应的影响. 研究表明, 尽管宏观演化效应对单原子层次获得的阿秒脉冲产生有影响, 但利用远场轴外量子轨道的空间选择性可以获得更短的单个阿秒脉冲, 本文的研究为实验上产生单个超短阿秒脉冲提供了一种实际可行的新思路.

2 理论方法

在偶极近似和长度规范下, 强激光场中原子的含时薛定谔方程为 (原子单位):

$$i\frac{\partial}{\partial t}\psi(\mathbf{r}, t) = H\psi(\mathbf{r}, t) = [H_0 + U(\mathbf{r}, t)]\psi(\mathbf{r}, t), \quad (1)$$

其中, H_0 表示无外场时原子的哈密顿量, $U(\mathbf{r}, t)$ 表示原子与激光场的相互作用项, 分别表示如下:

$$H_0 = -\frac{1}{2}\nabla^2 + |Y_l^0\rangle V_l |Y_l^0\rangle, \quad (2)$$

$$U(\mathbf{r}, t) = -\mathbf{E}(t) \cdot \mathbf{r} = -E_0 z f(t) \cos(\omega_0 t + \phi), \quad (3)$$

式中, V_l 是 He 原子模型势, Y_l^0 是球谐函数, $f(t)$ 是激光场包络, E_0 是激光场电场振幅, ω_0 是激光场频率, ϕ 是相位. 为了精确计算 He 原子的谐波谱, 构造了角动量依赖的模型势^[84], 表示如下:

$$V_l = -\frac{\alpha}{2r^4} W_n\left(\frac{r}{r_c}\right) - \frac{1}{r} - \left(\frac{N-S}{r} + A_1\right) e^{-B_1 r} - (S/r + A_2) e^{-B_2 r}, \quad (4)$$

式中, α 是 He⁺ 偶极极化率; r_c 为有效核半径; $N=1$; S, A_1, B_1, A_2, B_2 分别为常数, W_n 为截断函数, 表示如下:

$$W_n(x) = 1 - \left[1 + nx + \frac{(nx)^2}{2!} + \cdots + \frac{(nx)^n}{n!}\right] e^{-nx}. \quad (5)$$

表 1 给出了 He 原子角动量依赖模型势的具体参数.

表 1 He 原子模型势参数 (原子单位制)^[65]
Table 1. Model potential parameters for He (in a.u.)^[65].

l	α	r_c	S	A_1	A_2	B_1	B_2
0	0.28125	2.0	-7.9093912	-10.899664	0	1.7	3.8
1	0.28125	2.0	1.50094970	0.11297684	0	1.3	3.8
2	0.28125	2.0	0.88294766	-0.032043029	0	1.3	3.8
3	0.28125	2.0	0.41193110	-0.129391180	0	1.3	3.8
≥ 3	0.28125	2.0	0	0	0	1.3	0

利用伪谱法 (generalized pseudospectral method, GPS)^[83] 精确数值求解了含时薛定谔方程 (1). 伪谱法数值求解有两方面优点: 首先, 伪谱法在空间采用非均匀离散, 在核附近离散取点较密, 而离核较远取点较稀疏, 与传统的等间距网格离散方法相比, 不但计算精度高, 而且计算效率也成倍提高; 其次, 伪谱法把空间径向坐标从 $(0, r_{\max}]$ 转换到 $[-1, 1]$, 有效地解决了库仑奇点的问题.

采用分裂算符方法处理含时演化问题, 含时演化波函数表示如下:

$$\begin{aligned} \psi(\mathbf{r}, t + \Delta t) &= \exp\left(-iH_0 \frac{\Delta t}{2}\right) \exp\left[-iU\left(\mathbf{r}, t + \frac{\Delta t}{2}\right) \Delta t\right] \\ &\times \exp\left(-iH_0 \frac{\Delta t}{2}\right) \psi(\mathbf{r}, t) + O(\Delta t)^3. \end{aligned} \quad (6)$$

一旦得到随时间变化的波函数 $\psi(\mathbf{r}, t)$, 就可以计算加速度形式下诱导偶极矩的期望值:

$$\begin{aligned} d_A(t) &= \langle \psi(\mathbf{r}, t) | \frac{d^2 z}{dt^2} | \psi(\mathbf{r}, t) \rangle \\ &= \langle \psi(\mathbf{r}, t) | -\frac{\partial U(r)}{\partial r} + E(t) | \psi(\mathbf{r}, t) \rangle. \end{aligned} \quad (7)$$

通过对加速度形式诱导偶极矩做傅里叶变换, 可以得到单原子层次的高次谐波谱:

$$P_A(\omega) = \left| \frac{1}{t_f - t_i} \frac{1}{\omega^2} \int_{t_i}^{t_f} d_A(t) e^{-i\omega t} dt \right|^2. \quad (8)$$

宏观介质中的传播效应需要同时考虑激光场和谐波场的演化, 由麦克斯韦方程描述. 对于激光场的演化, 三维的麦克斯韦方程表示如下:

$$\begin{aligned} \nabla^2 E_l(r', z', t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E_l(r', z', t)}{\partial t^2} &= \mu_0 \frac{\partial J_{\text{abs}}(r', z', t)}{\partial t} \frac{\omega_0^2}{c^2} (1 - \eta_{\text{eff}}^2) E_l(r', z', t), \end{aligned} \quad (9)$$

式中, $E_l(r', z', t)$ 是激光脉冲的电场分量, $J_{\text{abs}}(t)$ 是由于介质的电离作用而引起的吸收项, η_{eff} 是气体

的有效折射率, $J_{\text{abs}}(t)$ 和 η_{eff} 分别表示为

$$J_{\text{abs}}(t) = \frac{\gamma(t)n_e(t)I_p E_l(t)}{|E_l(t)|^2}, \quad (10)$$

$$\eta_{\text{eff}}(r', z', t) = \eta_0(r', z', t) + \eta_2 I(r', z', t) - \frac{\omega_p^2(r', z', t)}{2\omega_0^2}, \quad (11)$$

其中, $\gamma(t)$ 是电离率, I_p 是电离势, η_0 是考虑中性原子的折射和吸收效应, η_2 描述的是依赖瞬时激光强度 $I(t)$ 的非线性光学克尔效应, ω_p 为等离子体频率, 可以通过自由电子密度 $n_e(r', z', t)$ 来计算, 表示为

$$\omega_p(r', z', t) = \left[\frac{e^2 n_e(r', z', t)}{\varepsilon_0 m_e} \right]^{\frac{1}{2}}, \quad (12)$$

在圆柱坐标中, r' 是径向距离, z' 是轴向传播距离.

对于谐波场演化, 三维的麦克斯韦方程表示如下:

$$\nabla^2 E_h(r', z', t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E_h(r', z', t)}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 D(r', z', t)}{\partial t^2}, \quad (13)$$

其中, 极化场 $D(r', z', t)$ 可以分为线性分量 $D_l(r', z', t)$ 和非线性分量 $D_{\text{nl}}(r', z', t)$. 线性分量包括高次谐波的色散和吸收效应, 非线性分量和介质有关. 在本文的计算中, 气体压强较低, 色散和吸收效应贡献很小^[85], 所以线性分量可以忽略. 非线性分量 $D_{\text{nl}}(r', z', t)$ 可以表示为

$$D_{\text{nl}}(r', z', t) = [n_0 - n_e(r', z', t)]d_A(r', z', t), \quad (14)$$

其中, n_0 是中性原子密度, $d_A(r', z', t)$ 是单原子加速度形式偶极矩. 三维的麦克斯韦方程 (9) 和方程 (13) 在频域空间通过 Crank-Nicolson 方法数值求解, 获得宏观高次谐波谱, 表示如下:

$$P_M(\omega) \propto \int_0^\infty 2\pi r' dr' |E_h(r', \omega)|^2. \quad (15)$$

相应的阿秒脉冲强度由下式得出:

$$I(t) = \int_0^\infty 2\pi r' dr' \left| \int_{\omega_1}^{\omega_2} E_h(r', \omega) e^{i\omega t} d\omega \right|^2. \quad (16)$$

为了更好地分析高次谐波谱的发射特性, 利用小波变换^[86]对时间域谐波谱 $E_h(t')$ 进行时频分析,

$$A(t, \omega) = \int E_h(t') \sqrt{\omega} W[\omega(t' - t)] dt', \quad (17)$$

式中, $W[\omega(t' - t)]$ 是 Morlet 小波变换的窗函数:

$$W(x) = \frac{1}{\sqrt{\tau}} e^{ix} e^{-\frac{x^2}{2\tau^2}}. \quad (18)$$

3 结果与讨论

3.1 双色组合激光场优化及其驱动原子产生高次谐波和单个阿秒脉冲

首先利用 NEWUOA 算法, 基于优化控制理论 (optimal control theory, OCT) 对双色组合激光场进行优化. 优化过程中, 固定第一色激光场波长和强度以及第二色激光场强度, 优化第二色激光场波长和两束激光场之间的延迟时间, 以扩展谐波平台最宽为目标函数, 表示如下:

$$F = \text{Max}\{J[\lambda_2, t_d]\}, \quad (19)$$

其中,

$$J[\lambda_2, t_d] = \int_{\omega_L}^{\omega_H} \log_{10} P_A(\omega) d\omega. \quad (20)$$

式中, ω_L 和 ω_H 分别是优化目标函数对应积分频率的下限和上限.

计算中采用的双色组合激光场为

$$E(t) = E_1(t) + E_2(t), \quad (21)$$

其中, $E_1(t)$ 为第一色激光场, $E_2(t)$ 为第二色激光场, 分别表示如下:

$$E_1(t) = A_1 e^{-2\ln 2 (\frac{t}{\tau_1})^2} \cos(\omega_1 t), \quad (22)$$

$$E_2(t) = A_2 e^{-2\ln 2 (\frac{t-t_d}{\tau_2})^2} \cos[\omega_2(t-t_d)], \quad (23)$$

式中, A_1, A_2 分别为双束激光场的电场振幅; ω_1, ω_2 分别为两束脉冲的角频率; τ_1, τ_2 为两束脉冲的持续时间; t_d 为两束脉冲间的延迟时间.

图 1(a) 给出了优化前和优化后的双色组合激光场. 初始激光场波长分别设定为 800 nm 和 400 nm, 强度分别设定为 3.0×10^{14} W/cm² 和 0.8×10^{14} W/cm², 半高全宽均为 8 fs 的高斯包络激光脉冲. 数值求解含时薛定谔方程的过程中, 结合 NEWUOA 算法, 以构造的目标函数优化迭代计算, 优化得到第二色激光场波长为 2754.9 nm, 两束脉冲之间的延迟时间为 $0.022T_1$ ($T_1 = 2\pi/\omega_1$). 可以看出优化后的激光场波形相比优化前变化很大. 图 1(b) 给出了相应的利用优化前和优化后的双色组合激光场驱动 He 原子产生的高次谐波谱. 优化后的谐波平台相比优化前扩展了 130 多阶, 谐波

从 70 阶到截止位置附近变得光滑连续, 即优化后的激光场驱动 He 原子产生了超连续平台, 但是谐波强度有所下降, 这是因为优化后的组合激光场有效波长增大. 事实上, 谐波转换效率降低这一不利因素可以通过宏观相位匹配来增强^[87].

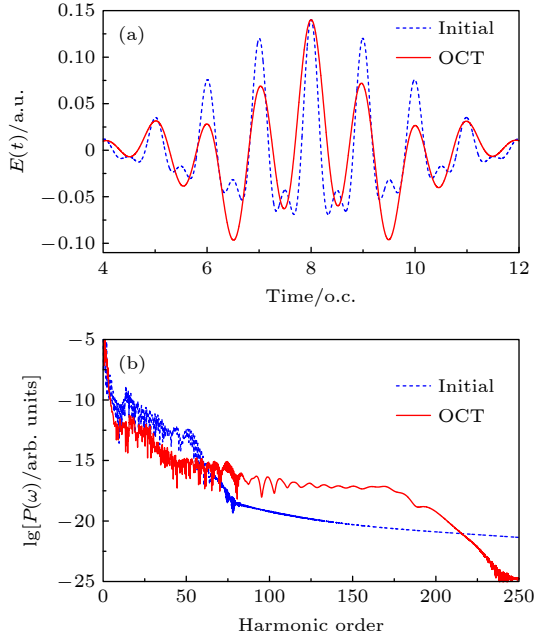


图 1 (a) 优化前和优化后的双色组合激光场; (b) 优化前和优化后的双色组合激光场驱动 He 原子产生的高次谐波谱
Fig. 1. (a) Initial laser field and the optimized two-color laser field; (b) corresponding HHG power spectra.

为了进一步理解谐波的发射特性, 利用小波变换对优化前和优化后的高次谐波谱进行了时频分析. 图 2(a) 为优化前高次谐波谱的小波时频分析结果, 很明显谐波的发射是周期性变化的, 在 70 阶左右发射效率迅速降低, 这与图 1(b) 对应的谐波截止位置符合. 在一个光学周期内, 谐波的发射主要是由长轨道电子和短轨道电子贡献产生. 根据半经典“三步模型”, 长轨道电子为先电离后返回, 短轨道电子为后电离先返回. 图 2(b) 为优化后高次谐波谱的小波时频分析结果, 对比图 2(a) 可以看出, 谐波平台得到了极大的扩展, 优化后的谐波在 180 阶之后效率迅速降低, 与图 1(b) 对应的谐波截止位置一致, 另外, 谐波的发射时间主要集中在 8.25 光学周期, 短轨道电子贡献被抑制, 长轨道电子贡献增强, 这种一个量子轨道被抑制, 另外一个量子轨道被增强的现象有利于超连续结构的产生.

为了进一步阐明长轨道电子和短轨道电子对每一阶次谐波发射的贡献, 图 3(a) 给出了从 70 阶

到 170 阶给定阶次谐波发射强度随时间的变化, 在 8.0 光学周期附近谐波的发射被抑制, 而在 8.2 到 8.3 光学周期发射比较集中, 几乎是同时的, 这与图 2(b) 中短轨道电子贡献被抑制, 长轨道电子贡献被增强是一致的. 已有的研究结果表明^[88],

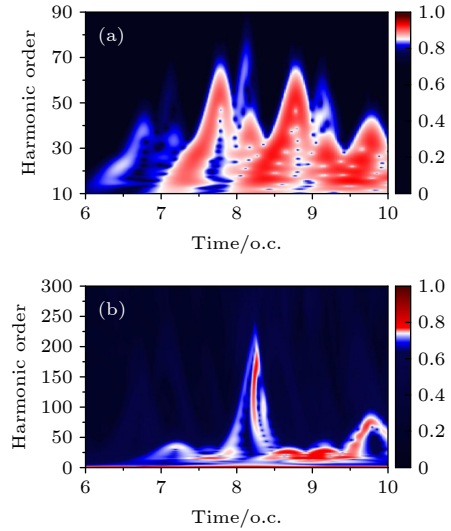


图 2 (a) 优化前高次谐波时频分析图; (b) 优化后高次谐波时频分析图

Fig. 2. Wavelet time-frequency of the HHG spectra for the cases of (a) initial and (b) optimized two-color laser fields.

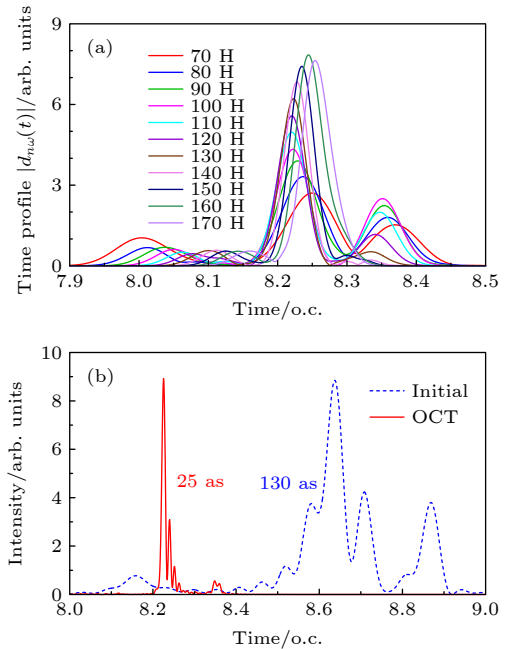


图 3 (a) 优化后给定阶次高次谐波强度随时间变化关系; (b) 对比优化前后单个阿秒脉冲的产生

Fig. 3. (a) Dipole time profiles of harmonics from the 70th to the 170th harmonic order; (b) attosecond pulse generation for the cases of the initial and optimized two-color laser fields.

如果谐波发射相位是锁定的, 就具有超连续平台结构, 叠加这些谐波可以产生更强更短的阿秒脉冲. 为了证实我们的判断, 我们叠加了 70 阶到 170 阶的谐波谱, 获得了能带宽度为 155 eV 的 25 as 单个阿秒脉冲, 如图 3(b) 所示. 为了方便比较优化前与优化后合成的阿秒脉冲, 图 3(b) 中优化后的阿秒在强度上乘了 7 倍, 与优化前获得的最短单个阿秒脉冲相比, 单个阿秒脉冲形状经过优化更加规则光滑, 同时阿秒脉宽从 130 as 缩短到了 25 as.

3.2 三色组合激光场优化及其驱动原子产生高次谐波和单个阿秒脉冲

为了得到更短的单个阿秒脉冲, 接下来利用 NEWUOA 算法对三色组合激光场进行优化. 计算中, 固定三色激光场波长和强度, 优化第一色激光场与第二色激光场之间的延迟时间和第一色激光场与第三色激光场之间的延迟时间, 以扩展谐波平台最宽为目标函数, 构造目标函数如下:

$$F = \text{Max}\{J[t_{d2}, t_{d3}]\}, \quad (24)$$

其中,

$$J[t_{d2}, t_{d3}] = \int_{\omega_L}^{\omega_H} \log_{10} P_A(\omega) d\omega, \quad (25)$$

式中, ω_L 和 ω_H 分别是优化目标函数对应积分频率的下限和上限.

利用三色组合激光场驱动 He 原子产生高次谐波及单个阿秒脉冲, 计算中采用的三色组合激光场为

$$E(t) = E_1(t) + E_2(t) + E_3(t), \quad (26)$$

其中, 三束激光场分别对应为 $E_1(t)$, $E_2(t)$ 和 $E_3(t)$, 表达式为

$$E_1(t) = A_1 e^{-2\ln 2 \left(\frac{t}{\tau_1}\right)^2} \cos(\omega_1 t), \quad (27)$$

$$E_2(t) = A_2 e^{-2\ln 2 \left(\frac{t-t_{d2}}{\tau_2}\right)^2} \cos[\omega_2(t-t_{d2})], \quad (28)$$

$$E_3(t) = A_3 e^{-2\ln 2 \left(\frac{t-t_{d3}}{\tau_3}\right)^2} \cos[\omega_3(t-t_{d3})], \quad (29)$$

式中, A_1 , A_2 , A_3 分别为三束激光场的电场振幅; ω_1 , ω_2 , ω_3 分别为三束脉冲的角频率; τ_1 , τ_2 , τ_3 分别为三束脉冲的持续时间; t_{d2} , t_{d3} 分别为第一束脉冲与第二束脉冲间的延迟时间, 第一束脉冲与第三束脉冲间的延迟时间.

图 4(a) 给出的是优化前和优化后的三色组合

激光场. 初始激光场波长分别为 800, 2400 nm 和 1600 nm, 对应强度分别为 $I_1 = 3.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $I_2 = 0.8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 和 $I_3 = 0.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 半高全宽均为 15 fs 的高斯包络激光脉冲. 数值求解含时薛定谔方程的过程中, 结合 NEWUOA 算法, 以构造的目标函数优化迭代计算, 优化得到第一色激光场与第二色激光场之间的延迟时间为 $-0.2308T_1$ ($T_1 = 2\pi/\omega_1$), 第一色激光场与第三色激光场之间的延迟时间为 $-0.2764T_1$. 对比优化前后的三色组合激光场, 激光场峰值强度基本没有改变, 但是激光场波形被改变, 这种变化使得组合激光场有效波长增大, 有利于扩展高次谐波平台. 图 4(b) 给出了相应的优化前和优化后三色组合激光场驱动 He 原子产生的高次谐波谱, 优化前的高次谐波谱有三个平台, 第一个平台在 150 阶左右截止, 第二个平台在 220 阶左右截止, 第三个平台在 260 阶左右截止, 即最大截止位置. 优化后的谐波谱平台减少为两个, 130 阶之前为第一平台, 130—290 阶为第二平台区, 而且第二个平台区变得相对规则光滑, 谐波效率也有所增强. 另一个明显的变化是优化后谐波的第一平台截止位置相对优化前的情况向低阶谐波移动了 20 阶左右, 为获得更宽谐波平台创造了条件. 最终优化后有效谐波平台比优化前扩展了 80 阶左右.

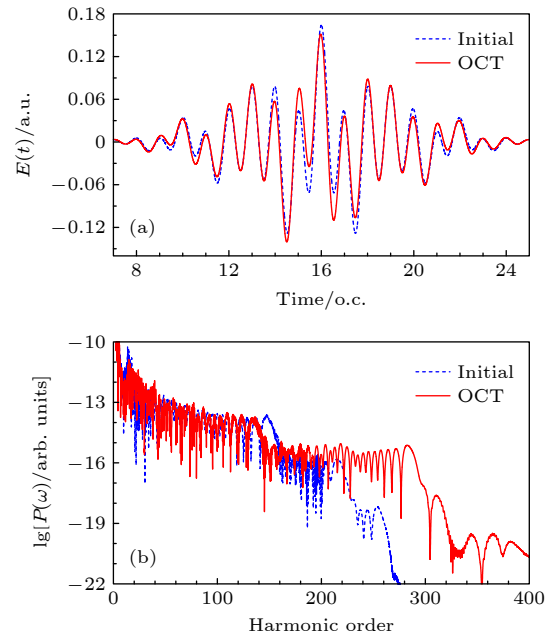


图 4 (a) 优化前和优化后的三色组合激光场; (b) 优化前和优化后的三色组合激光场驱动 He 原子产生的高次谐波谱
Fig. 4. (a) Initial laser field and the optimized three-color laser field; (b) corresponding HHG power spectra.

如图 5(a) 利用小波变换对优化前三色组合激光场驱动 He 原子产生高次谐波谱进行了时频分析, 优化前高次谐波谱的发射主要由 4 部分组成, 分别位于 14.7, 16.3, 17.7 和 19.3 光学周期, 对应的最大阶次分别为 150 阶、260 阶、210 阶和 75 阶. 其中, 平台最大峰值和次最大峰值发射都比较强, 对最小峰值 75 阶次以下谐波发射都有强烈的贡献, 导致截止峰值 75 阶次在图 4(b) 中并不明显. 实际上, 在图 5(b) 中优化后高次谐波谱的发射也主要由四部分组成, 但主要的贡献来自于 16.3 和 17.7 光学周期的发射, 对应的截止峰值分别为 130 阶次和 290 阶次, 与图 4(b) 结果一致. 特别需要指出的是, 在 16.15 光学周期处出现了一个非常集中的发射区域, 即从 130 阶到 280 阶谐波的发射几乎是同时的. 对比优化前后的时频分析结果, 发现长轨道电子贡献增强, 短轨道电子贡献被抑制, 这有利于单个阿秒脉冲的产生.

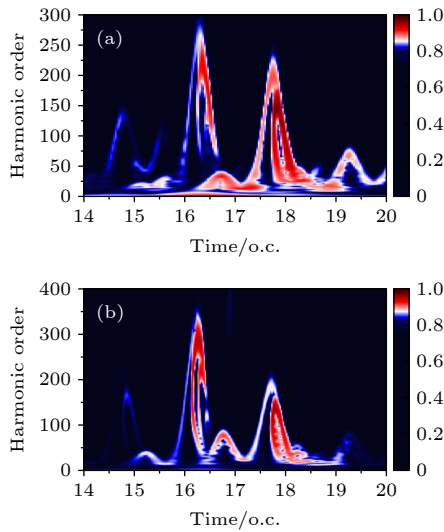


图 5 (a) 优化前高次谐波时频分析图; (b) 优化后高次谐波时频分析图
Fig. 5. Wavelet time-frequency of the HHG spectra for the cases of (a) initial and (b) optimized three-color laser fields.

图 6(a) 给出了 110—200 阶给定谐波阶次发射强度随时间变化的结果. 谐波发射主要集中在 16.1—16.2 光学周期 (o.c.), 这些阶次谐波的发射几乎是同时的, 有利于单个阿秒脉冲的生成. 图 6(b) 中叠加了 110—280 阶的谐波谱, 获得了能带宽度为 260 eV 的 17 as 单个阿秒脉冲, 相比优化前 90 eV 的 29 as 单个阿秒脉冲, 通过优化获得了小于一个原子单位时间 (24 as) 的单个阿秒脉冲.

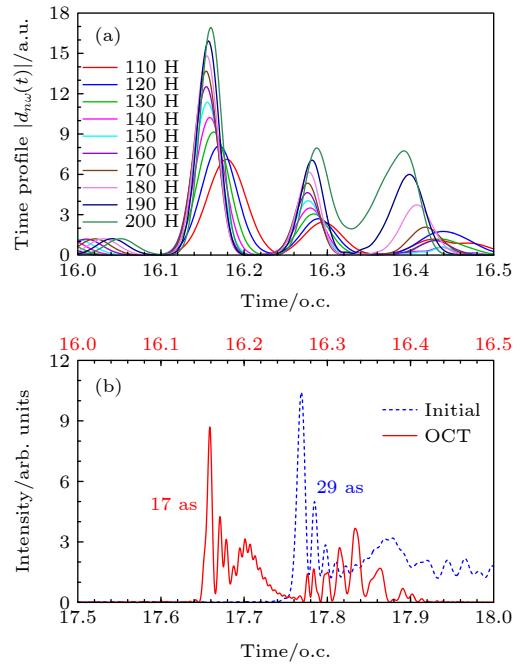


图 6 (a) 优化后给定阶次高次谐波强度随时间变化关系; (b) 优化前后单个阿秒脉冲的产生

Fig. 6. (a) Dipole time profiles of harmonics from the 110th to the 200th harmonic order; (b) attosecond pulse generation for the cases of the initial and optimized three-color laser fields.

3.3 介质演化效应对产生高次谐波和阿秒脉冲的影响

以上讨论了单原子层次双色和三色组合激光场优化及其驱动 He 原子产生高次谐波及单个阿秒脉冲, 表明优化的双色和三色组合激光场驱动 He 原子可以得到更宽的谐波平台和更短的单个阿秒脉冲. 事实上, 实验中激光场振幅在空间有一定的分布, 成千上万个原子 (分子) 在激光场中感受到的光强是不一样的, 并且发出的高次谐波辐射在空间受到介质演化效应的影响. 接下来讨论介质演化效应对产生高次谐波和阿秒脉冲的影响. 为了最大程度上减小宏观介质演化效应对单原子层次优化激光场波形的影响, 选取了较低的气体压强和束缚较松的激光脉冲束腰. 以优化的双色组合激光场驱动 He 原子产生高次谐波及单个阿秒脉冲为例, 结合激光场中含时薛定谔方程和介质演化效应的麦克斯韦方程, 讨论宏观介质演化效应对产生高次谐波和单个阿秒脉冲的影响. 宏观介质演化效应需要同时考虑激光场的演化和谐波场的演化. 计算中, 激光聚焦强度、中心波长、以及脉宽等参数与单原子优化后双色组合激光场情况一致. 空间依赖

的双色组合激光场表达式如下:

$$E(r', z', t) = \text{Re}\{E_1(r', z')f_1(r', z', t)e^{-i(\omega_1 t + \phi_1)} + E_2(r', z')f_2(r', z', t - t_d)e^{-i[\omega_2(t - t_d) + \phi_2]}\}, \quad (30)$$

其中, $E_1(r', z')$ 和 $E_2(r', z')$ 表示空间依赖的第一束和第二束激光场电场分量, $f_1(r', z', t)$ 和 $f_2(r', z', t - t_d)$ 分别表示两束激光场的高斯激光包络, ω_1 和 ω_2 是对应的双色激光场的频率, ϕ_1 和 ϕ_2 是相位, t_d 是两束激光脉冲间的延迟时间, 两束激光的聚焦强度分别为 $I_1 = 3.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 和 $I_2 = 0.8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. 两束激光脉冲聚焦处束腰均为 $50 \mu\text{m}$, He 原子气体靶位于激光聚焦位置处, 气体长度为 0.5 mm , 气体压强为 30 Torr ($1 \text{ Torr} \approx 133.322 \text{ Pa}$).

图 7(a) 是优化后双色组合激光场进入气体靶前的空间分布, 图 7(b) 是相应演化后的激光场空间分布. 很明显激光场场强在空间不同位置强度是不同的. 为了更清楚地展示激光场演化前后的区别, 图 7(c) 给出了演化前与演化后的轴上激光场对比, 在峰值处, 演化前后强度有所不同. 为了参考, 图 7(d) 比较了单原子层次优化后的双色组合

激光场和宏观演化后轴上激光场, 因为计算过程中采用的气体压强较小, 激光脉冲束腰较松, 所以在峰值位置处强度的差别很小, 但是对比仍可以发现介质演化效应对激光场波形存在一定影响.

图 8(a) 是双色优化后组合激光场考虑介质宏观演化效应的高次谐波空间分布, 计算中设置在激光聚焦位置后 30 cm 的远场处收集谐波. 从图中可以看出, 谐波的空间分布是不均匀的, 在轴上的分布比较强, 远离轴的分布比较弱. 轴上 $100\text{--}190$ 阶出现了超连续空间分布结构, 与单原子情况相符合. 图 8(b) 给出的是远场谐波对空间求和的结果, 为了比较列出了单原子结果, 单原子谐波谱在强度上抬高了 12 个量级. 比较而言, 宏观谐波谱更加光滑规则, 超连续平台向较低谐波区域移动. 图 8(c) 给出了叠加谐波谱从 60 阶到 200 阶得到的阿秒脉冲空间分布. 由于在轴上和轴外谐波的传播距离不同, 导致在轴外的区域阿秒脉冲发射有延迟, 即阿秒脉冲空间分布在轴外有明显向右的移动. 由于轴外各点位置激光强度不同, 谐波截止频率也不一样, 用同样范围的谐波谱叠加获得阿秒脉冲波形会有很大的差异, 但由于量子轨道的空间选择性, 总可以在轴外合适的位置获得单个超短阿秒脉冲.

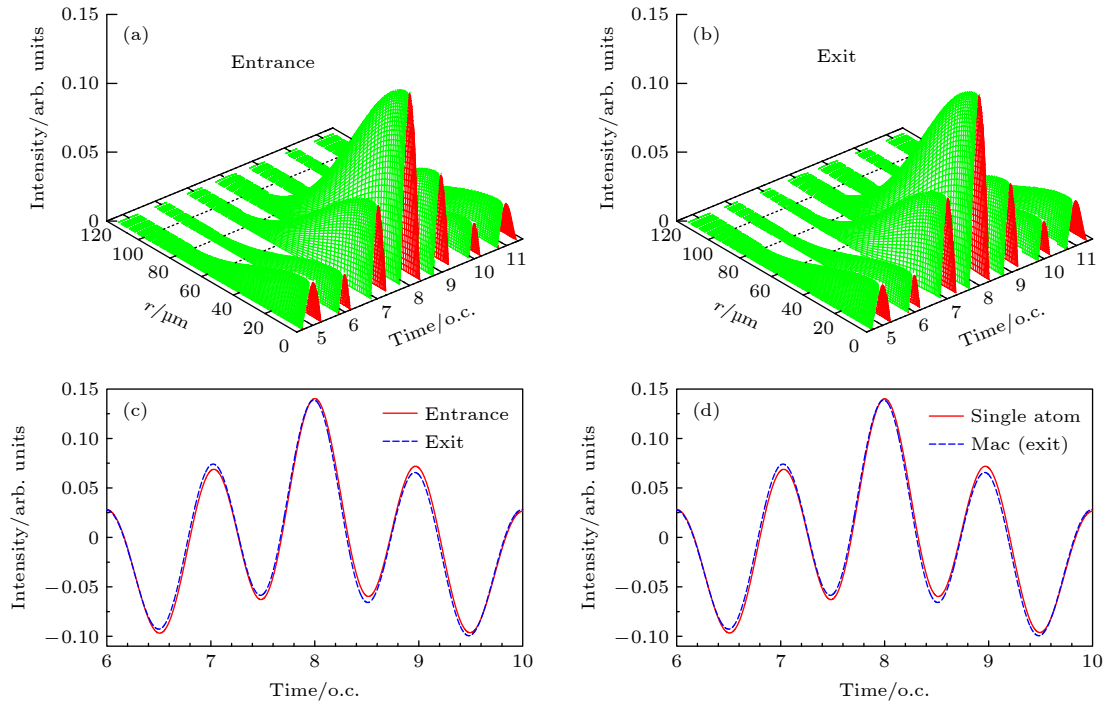


图 7 优化的宏观双色组合激光场空间传播效应 (a) 演化前激光场; (b) 演化后激光场; (c) 轴上演化前和演化后激光场对比; (d) 驱动单原子激光场与宏观演化后轴上激光场对比

Fig. 7. Macroscopic propagation effects of the optimized two-color laser fields: (a) Entrance; (b) exit; (c) comparison of entrance and exit on axis; (d) comparison of the fields for single-atom case and mac-field on axis.

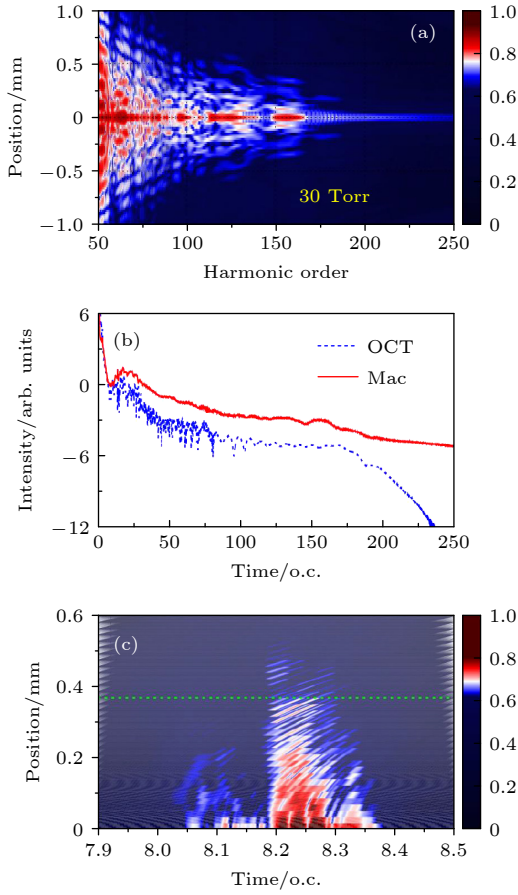


图 8 (a) 远场高次谐波空间分布; (b) 单原子与远场高次谐波对比; (c) 远场阿秒脉冲空间分布

Fig. 8. (a) Spatial distribution of far-field HHG; (b) comparison of single atom and far-field HHG; (c) spatial distribution of far-field attosecond pulse.

图 9(a) 和图 9(b) 给出的是远场轴上和轴外 0.37 mm 处 (图 8(c) 中绿点线所示) 的高次谐波时频分析. 对于轴上的情况, 发射主要集中在 8.2 到 8.3 光学周期, 与单原子情况一致, 也就意味着在本文采用的激光场和靶结构参数下, 介质演化效应对轴上谐波影响不大. 对于轴外情况, 不同空间位置长轨道电子和短轨道电子的贡献是不一样的, 离轴越远, 长轨道电子贡献越强, 短轨道电子贡献越弱, 谐波发射的同步性越好, 有利于产生更短的单阿秒脉冲. 如图 9(c) 所示, 叠加轴上第 66—191 阶谐波得到了 28 as 的单阿秒脉冲, 与单原子结果相差不大, 而轴外 0.37 mm 处叠加第 65—200 阶谐波得到最短为 18 as 的单阿秒脉冲. 为了方便比较, 轴外单个阿秒脉冲强度乘了 300 倍. 结果表明, 利用量子轨道的空间选择性, 可以在轴外获得更短的单超短阿秒脉冲.

最后, 为了检验原子气体靶的位置对高次谐波

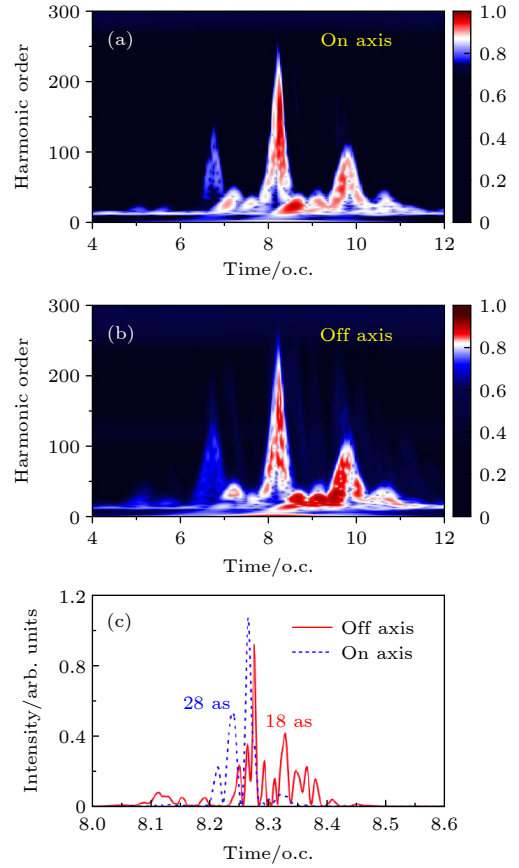


图 9 (a) 轴上高次谐波时频分析; (b) 轴外 0.37 mm 处高次谐波时频分析; (c) 轴上与轴外 0.37 mm 处获得的单个最短阿秒脉冲

Fig. 9. (a) Wavelet time-frequency of the HHG spectra on axis; (b) wavelet time-frequency of the HHG spectra at 0.37 mm off axis; (c) on-axis and off-axis attosecond pulse generation.

超连续谱的影响, 将 He 原子气体靶分别放置在激光聚焦位置前和激光聚焦位置后 2 mm 处, 其他参数与图 7 的情况完全一致, 计算了相应的轴上单个阿秒脉冲的产生, 如图 10 所示. 激光聚焦位置前 (-2 mm)、激光聚焦位置处 (0 mm) 和激光聚焦位

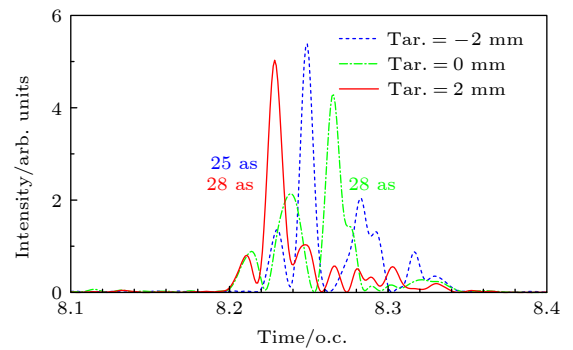


图 10 轴上不同气体靶位置产生的单个阿秒脉冲对比

Fig. 10. Comparison of single attosecond pulse for the different target position.

置后 (2 mm) 分别在轴上得到了最短 25 as, 28 as, 28 as 的单个阿秒脉冲, 阿秒结果相差不大, 但激光聚焦位置之后的单个阿秒脉冲更加规则光滑, 因为气体靶放置在激光聚焦位置之后高次谐波相位匹配更好, 这一结论与实验结果一致^[89].

4 总结与展望

利用优化组合激光场驱动原子分子在强激光场中发射的高次谐波是合成超短阿秒脉冲的主要方案之一, 高次谐波及阿秒脉冲的产生是强场超快过程的前沿研究领域, 涌现出了许多重要研究成果, 限于篇幅, 不能一一提及. 本文仅从理论方面研究了利用优化组合双色和三色激光场驱动原子发射的高次谐波及合成单个超短阿秒脉冲的最优方案, 并展示了研究结果. 将含时薛定谔方程和 NEWUOA 优化算法相结合, 通过优化激光场波形, 极大地增加了谐波的截止频率, 对于双色和三色激光场优化及其驱动 He 原子分别获得了最短 25 as 和 17 as 的单个阿秒脉冲. 同时以双色激光场优化为例, 基于同时求解含时薛定谔方程和麦克斯韦方程, 进一步考虑了宏观介质演化效应对高次谐波和阿秒脉冲产生的影响, 发现在远场轴外通过量子通道的空间选择性可以获得更短更规则的单个 18 as 超短阿秒脉冲, 相关研究为实验提供了更精准的理论参考. 随着激光技术的发展, 实验室中已经可以产生任意波形的激光脉冲, 结合优化控制理论, 优化组合激光场驱动原子分子产生高次谐波及单个超短阿秒脉冲具有非常明显的优点, 使获得更短单个阿秒脉冲光源成为可能, 并将成为揭示新物理机制的重要手段.

感谢西北师范大学王志斌博士和陈阳阳硕士的讨论.

参考文献

- [1] Telnov D A, Chu S I 2009 *Phys. Rev. A* **79** 041401
- [2] Garcia Ruiz R F, Vernon A R, Binnarsley C L, Sahoo B K, Bissell M, Billowes J, Cocolios T E, Gins W, de Groote R P, Flanagan K T, Koszorus A, Lynch K M, Neyens G, Ricketts C M, Wendt K D A, Wilkins S G, Yang X F 2018 *Phys. Rev. X* **8** 041005
- [3] Wang R, Zhang Q, Li D, Xu S, Cao P, Zhou Y, Cao W, Lu P 2019 *Opt. Express* **27** 6471
- [4] Ge P, Fang Y, Guo Z, Ma X, Yu X, Han M, Wu C, Gong Q, Liu Y 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 223001
- [5] De Silva A H N C, Atri-Schuller D, Dubey S, Acharya B P, Romans K L, Foster K, Russ O, Compton K, Rischbieter C,

- Douguet N, Bartschat K, Fischer D 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 023201
- [6] Liu M M, Shao Y, Han M, Ge P, Deng Y, Wu C, Gong Q, Liu Y 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 043201
- [7] Li W K, Lei Y, Li X, Yang T, Du M, Jiang Y, Li J L, Luo S Z, Liu A H, He L H, Ma P, Zhang D D, Ding D J 2021 *Chin. Phys. Lett.* **38** 053202
- [8] Kelvich S A, Becker W, Goreslavski S P 2017 *Phys. Rev. A* **96** 023427
- [9] Brennecke S, Lein M 2018 *Phys. Rev. A* **98** 063414
- [10] Brennecke S, Lein M 2018 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **51** 094005
- [11] Shi M, Lai X, Yu S, Wang Y, Quan W, Liu X 2022 *Phys. Rev. A* **105** 013118
- [12] Yang Q, Leng J, Wang Y H, Sun Y N, Du H B, Zhang D D, Song L L, He L H, Liu F C 2022 *Chin. Phys. Lett.* **39** 023301
- [13] Verhoef A J, Mitrofanov A V, Serebryannikov E E, Kartashov D V, Zheltikov A M, Baltuška A 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 163904
- [14] Chen Y, Zhou Y, Tan J, Li M, Cao W, Lu P 2021 *Phys. Rev. A* **104** 043107
- [15] Ni H, Brennecke S, Gao X, He P L, Donsa S, Březinová I, He F, Wu J, Lein M, Tong X M, Burgdörfer J 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 073202
- [16] Tan J, Zhou Y, He M, Ke Q, Liang J, Li Y, Li M, Lu P 2019 *Phys. Rev. A* **99** 033402
- [17] Luo S, Li M, Xie W, Liu K, Feng Y, Du B, Zhou Y, Lu P 2019 *Phys. Rev. A* **99** 053422
- [18] Zhao Y, Zhou Y, Liang J, Zeng Z, Ke Q, Liu Y, Li M, Lu P 2019 *Opt. Express* **27** 21689
- [19] Douguet N, Bartschat K 2018 *Phys. Rev. A* **97** 013402
- [20] Yoshikawa N, Tamaya T 2017 *Science* **356** 736
- [21] Ghimire S, DiChiara A D, Sistrunk E, Agostini P, DiMauro L F, Reis D A 2011 *Nat. Phys.* **7** 138
- [22] Uchida K, Mattoni G, Yonezawa S, Nakamura F, Maeno Y, Tanaka K 2020 *Phys. Rev. Lett.* **128** 127401
- [23] Yu C, Jiang S, Lu R 2019 *Adv. Phys. X* **4** 1562982
- [24] Zhang J, Hua L Q, Chen Zh, Zhu M F, Gong Ch, Liu X J 2020 *Chin. Phys. Lett.* **37** 124203
- [25] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [26] McPherson A, Gibson G, Jara H, Johann U, Luk T S, McIntyre I A, Boyer K, Rhodes C K 1987 *J. Opt. Soc. Am. B* **4** 595
- [27] Ferray M, L'Huillier A, Li X F, Lompre L A, Mainfray G, Manus C 1988 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **21** 3
- [28] L'Huillier A, Balcou Ph 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 766
- [29] Macklin J J, Kmetec J D, Gordon III C L 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 774
- [30] L'Huillier A, Schafer K J, Kulander K C 1991 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **24** 3315
- [31] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 13
- [32] Kulander K C, Schafer K J, Krause J L 1991 *Phys. Rev. Lett.* **66** 2601
- [33] Lewenstein M, Balcou Ph, Ivanov M Yu, L' Huillier A, Corkum P B 1994 *Phys. Rev. A* **49** 2117
- [34] L'Huillier A, Lewenstein M, Salieres P, Balcou Ph, Ivanov M Yu, Larsson J, Wahlström C G 1993 *Phys. Rev. A* **48** 8
- [35] Kulander K C 1988 *Phys. Rev. A* **38** 778
- [36] Krause J L, Schafer K J, Kulander K C 1992 *Phys. Rev. A* **45** 4998
- [37] Runge E, Gross E K U 1984 *Phys. Rev. Lett.* **52** 997
- [38] Wei Z Y, Zhong S Y, He X K, Zhao K, Teng H, Wang S, Liang Y Y, Wang J, Yu S Y, Chen Y L, Zhu J F 2021 *Chin.*

- J. Lasers* **48** 0501001 (in Chinese) [魏志义, 钟诗阳, 贺新奎, 赵昆, 滕浩, 王帅, 梁玥瑛, 王佶, 喻苏玉, 陈云琳, 朱江峰 2021 *中国激光* **48** 0501001]
- [39] Spielmann C, Burnett N H, Sartania S, Koppitsch R, Schnurer M, Kan C, Lenzner M, Wobrauschek P, Krausz F 1997 *Science* **278** 661
- [40] Chang Z, Rundquist A, Wang H, Murnane M M, Kapteyn H C 1997 *Phys. Rev. Lett.* **79** 2967
- [41] Tong X M, Chu S I 2001 *Phys. Rev. A* **64** 013417
- [42] Shan B, Chang Z H 2001 *Phys. Rev. A* **65** 011804(R)
- [43] Baltuska A, Fuji T, Kobayashi T 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 133901
- [44] Gibson E A, Paul A, Wagner N, Tobey R, Backus S, Christov I P, Murnane M M, Kapteyn H C 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 033001
- [45] Schiessl K, Ishikawa K L, Persson E, Burgdorfer J 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 253903
- [46] Takahashi E J, Kanai T, Ishikawa K L, Nabekawa Y, Midorikawa K 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 253901
- [47] Colosimo P, Doumy G, Blaga C I, Wheeler J, Hauri C, Catoire F, Tate J, Chirla R, March A M, Paulus G G, Muller H G, Agostini P, DiMauro L F 2008 *Nat. Phys.* **4** 386
- [48] Fu Y, Xiong H, Xu H, Yao J, Yu Y, Zeng B, Chu W, Liu X, Chen J, Cheng Y, Xu Z 2009 *Phys. Rev. A* **79** 013802
- [49] Popmintchev T, Chen M Ch, Bahabad A, Gerrity M, Sidorenko P, Cohen O, Christov I P, Murnane M M, Kapteyn H C 2009 *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **106** 10516
- [50] Shiner A D, Herrero C T, Kajumba N, Bandulet H C, Comtois D, Légaré F, Giguère M, Kieffer J C, Corkum P B, Villeneuve D M 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 073902
- [51] Li J, Ren X M, Yin Y C, Zhao K, Chew A, Cheng Y, Cunningham E, Wang Y, Hu S Y, Wu Y, Chini M, Chang Z H 2017 *Nat. Commun.* **8** 186
- [52] Pan Y, Guo F M, Jin C, Yang Y J, Ding D J 2019 *Phys. Rev. A* **99** 033411
- [53] Wang X W, Wang L, Xiao F, Zhang D W, Lü Z H, Yuan J M, Zhao Z X 2020 *Chin. Phys. Lett.* **37** 023201
- [54] Tate J, Auguste T, Muller H G, Salières P, Agostini P, DiMauro L F 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 013901
- [55] Mauritsson J, Johnsson P, Gustafsson E, L' Huillier A, Schafer K J, Gaarde M B 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 013001
- [56] Oishi Y, Kaku M, Suda A, Kannari F, Midorikawa K 2006 *Opt. Express* **14** 7230
- [57] Zeng Z, Cheng Y, Song X, Li R, Xu Z 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 203901
- [58] Li P C, Zhou X X, Wang G L, Zhao Z X 2009 *Phys. Rev. A* **80** 053825
- [59] Takahashi E J, Lan P F, Mücke O D, Nabekawa Y, Midorikawa K 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 233901
- [60] Lan P F, Takahashi E J, Midorikawa K 2010 *Phys. Rev. A* **82** 053413
- [61] Wu J, Zhang G T, Xia C L, Liu X S 2010 *Phys. Rev. A* **82** 013411
- [62] Brugnera L, Frank F, Hoffmann D J, Torres R, Siegel T, Underwood J G, Springate E, Froud C, Turcu E I C, Tisch J W G, Marangos J P 2010 *Opt. Lett.* **35** 23
- [63] Li P C, Liu I L, Chu S I 2011 *Opt. Express* **19** 23857
- [64] Wang Z, Li Y, Wang S Y, Hong W Y, Zhang Q B, Lu P X 2013 *Phys. Rev. A* **87** 033822
- [65] Li P C, Laughlin C, Chu S I 2014 *Phys. Rev. A* **89** 023431
- [66] Chou Y, Li P C, Ho T S, Chu S I 2015 *Phys. Rev. A* **91** 063408
- [67] Shao R Z, Zhai C Y, Zhang Y F, He L X, Zhu X S, Lan P F, Lu P X 2021 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **54** 064001
- [68] Chou Y, Li P C, Ho T S, Chu S I 2015 *Phys. Rev. A* **92** 023423
- [69] Jin C, Wang G L, Wei H, Le A T, Lin C D 2014 *Nat. Commun.* **5** 4003
- [70] Liu I L, Li P C, Chu S I 2011 *Phys. Rev. A* **84** 033414
- [71] Li P C, Chu S I 2012 *Phys. Rev. A* **86** 013411
- [72] Ye X L, Zhou X X, Zhao S F, Li P C 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 1579 (in Chinese) [叶小亮, 周效信, 赵松峰, 李鹏程 2009 *物理学报* **58** 1579]
- [73] Shelton R K, Ma L S, Kapteyn H C, Murnane M M, Hall J L, Ye J 2001 *Science* **293** 5533
- [74] Hassan M Th, Grguras I, Moulet A, Luu T T, Gagnon J, Pervak V, Goulielmakis E 2012 *Rev. Sci. Instrum.* **83** 111301
- [75] Wirth A, Hassan M TH, Grguras I, Gagnon J, Moulet A, Luu T T, Pabst S, Santra R, Alahmed Z A, Aeezzr A M, Yakovlev V S, Pervak V, Krausz F, Goulielmakis E 2011 *Science* **334** 6053
- [76] Hassan M Th, Luu T T, Moulet A, Raskazovskaya O, Zhokhov P, Garg M, Karpowicz N, Zheltikov A M, Pervak V, Krausz F, Goulielmakis E 2016 *Nature* **530** 66
- [77] Feng L Q, Chu T S 2011 *Phys. Rev. A* **375** 3641
- [78] Jin C, Hong K H, Lin C D 2017 *Phys. Rev. A* **96** 013422
- [79] Gaarde M B, Tate J L, Schafer K J 2008 *J. Phys. B* **41** 132001
- [80] Geissler M, Tempea G, Scrinzi A, Schntürer M, Krausz F, Brabec T 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 2930
- [81] Tosa V, Kim H T, Kim I J, Nam C H 2005 *Phys. Rev. A* **71** 063807
- [82] Jin C, Le A T, Trallero-Herrero C A, Lin C D 2011 *Phys. Rev. A* **84** 043411
- [83] Tong X M, Chu S I 1997 *Chem. Phys.* **217** 119
- [84] Chu X, Chu S I 2001 *Phys. Rev. A* **64** 013406
- [85] Priori E, Cerullo G, Nisoli M, Stagira S, De Silvestri S, Villorosi P, Poletto L, Ceccherini P, Altucci C, Bruzzese R, de Lisio C 2000 *Phys. Rev. A* **61** 063801
- [86] Tong X M, Chu S I 2000 *Phys. Rev. A* **61** 031401
- [87] Popmintchev T, Chen M C, Popmintchev D, Arpin P, Brown S, Aliāuskas S, Andriukaitis G, Balčiūnas T, Mücke O D, Pugzlys A, Baltuška A, Shim B, Schrauth S E, Gaeta A, García C H, Plaja L, Becker A, Becker A J, Murnane M M, Kapteyn H C 2012 *Science* **336** 1287
- [88] Carrera J J, Tong X M, Chu S I 2006 *Phys. Rev. A* **74** 023404
- [89] Salières P, Antoine P, de Bohan A, Lewenstein M 1998 *Phys. Rev. Lett.* **81** 5544

SPECIAL TOPIC—Attosecond physics

Theoretical study of high-order harmonics and single ultrashort attosecond pulse generated by optimized combination of laser field*

Han Lin¹⁾²⁾ Miao Shu-Li¹⁾ Li Peng-Cheng^{1)†}

1) (*Research Center for Advanced Optics and Photoelectronics, Department of Physics,
College of Science, Shantou University, Shantou 515063, China*)

2) (*Key Laboratory of Theoretical Physics of Gansu Province, Theoretical Physics Center of Lanzhou, School of Physical Science and
Technology, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China*)

(Received 30 June 2022; revised manuscript received 24 August 2022)

Abstract

High-order harmonic generation, which is a hot topic of strong ultrafast fields, is one of the most important ways for obtaining the ultraviolet attosecond sources, and has a very wide application prospect. This work focuses on the challenges of the generation of either short or high attosecond pulses. We present the research progress of the high-order harmonics and attosecond pulse generation, and propose an effective and feasible method, and show some results. Specifically, combining the time-dependent Schrödinger equation and new unconstrained optimization algorithm, the objective function with the aim of the widest supercontinuum plateau of He atom is designed and the optimized two-color and three-color laser fields are obtained. The supercontinuum spectra extend up to 100 harmonic orders for the case of the optimized two-color laser field. As a result, a single ultrashort attosecond pulse of 25 as is produced. For the three-color case, the supercontinuum spectra reach up to 170 harmonic orders, and the width of single shortest attosecond pulse obtained by superposing pulses from low order (110 order) to high order (280 order) is obtained to be 17 as. Taking the optimized two-color laser field for example, the macroscopic medium propagation is discussed by solving the Maxwell equation. The results show that the selectivity of quantum trajectories from far-field space distribution can obtain the single ultra-short attosecond pulse.

Keywords: high-order harmonic generation, attosecond pulse generation, strong laser field, macroscopic media propagation

PACS: 32.80.Rm, 42.50.Ct, 42.65.Ky, 42.65.Re

DOI: 10.7498/aps.71.20221298

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 91850209, 12074239, 12047501), the Natural Science Foundation of Guangdong Province, China (Grant No. 2020A1515010927), the Science and Technology Project of Guangdong Province, China (Grant No. 2020ST084), the Special Innovation Program of Universities of Guangdong Province (Grant Nos. 2019KTSCX038, 2020KCXTD012), and the Shantou University, China (Grant No. NTF18030).

† Corresponding author. E-mail: pchli@stu.edu.cn



优化组合激光场驱动原子产生高次谐波及单个超短阿秒脉冲理论研究

汉琳 苗淑莉 李鹏程

Theoretical study of high-order harmonics and single ultrashort attosecond pulse generated by optimized combination of laser field

Han Lin Miao Shu-Li Li Peng-Cheng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 233204 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20221298

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221298>

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

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>

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>

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>

激光强度依赖的阈下谐波产生机制

Mechanism of laser intensity-dependent below-threshold harmonic generation
物理学报. 2020, 69(7): 074203 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191883>