文章编号：1001-3806(2017)05-0708-04

啁啾激光调控谐波截止能量及强度的研究

刘 航[1,2]，李 义[2]，姚 震[2,3]，冯立强[2,4]

(1. 辽宁工业大学 化学与环境工程学院，锦州 121001；2. 辽宁工业大学 理学院，锦州 121001；3. 吉林大学 原子与分子物理研究所，长春 130012；4. 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： 为了调控谐波辐射过程，采用数值求解 3 维薛定谔方程的方法，进行了啁啾激光对调控谐波辐射截止能量及强度的理论分析。通过分析激光包络图、电子电离几率、谐波辐射时频分析图，给出了谐波截止能量延伸以及谐波强度增强的原因。结果表明，在负向啁啾场下，谐波截止能量附近的强度与无啁啾参量相比增强了 1 个数量级；当引入半周期调控激光场后，谐波截止能量得到有效延伸；适当叠加谐波谱上的谐波，可获得一个 46as 的脉冲；该脉冲强度比无啁啾参量下获得的脉冲强 1 个数量级。该研究对调控谐波的辐射过程及阿秒脉冲的输出是有帮助的。

关键词： 激光光学；3 维薛定谔方程；高次谐波；半周期激光场；阿秒脉冲

中图分类号： O562.4 **文献标志码：** A **doi**：10.7510/jgjs.issn.1001-3806.2017.05.018

Study on harmonic cutoff energy and intensity under the control of chirped laser

LIU Hang[1,2], *LI Yi*[2], *YAO Zhen*[2,3], *FENG Liqiang*[2,4]

(1. School of Chemical and Environmental Engineering, Liaoning University of Technology, Jinzhou 121001, China; 2. College of Science, Liaoning University of Technology, Jinzhou 121001, China; 3. Institute of Atomic and Molecular Physics, Jilin University, Changchun 130012, China; 4. State Key Laboratory of Molecular Reaction Dynamics, Dalian Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences, Dalian 116023, China)

Abstract: In order to control the harmonic emission process, the chirp pulse control on the harmonic cutoff and the harmonic intensity was theoretically investigated by using 3-D Schrödinger equation. Laser profiles, ionization probabilities, time-frequency analyses of the harmonic spectra were shown to explain the extension and the enhancement of harmonic spectra. The results show that the intensity of the harmonic cutoff region in the presence of the down-chirp pulse is enhanced by one order of magnitude in comparison with the chirp-free pulse case. By properly adding a half-cycle controlling pulse, the harmonic cutoff is remarkably extended. By superposing a properly selected harmonics, a 46as pulse can be produced. The intensity of the generated pulse is one order of magnitude higher than that from the chirp-free case. The investigation is helpful to control the harmonic emission and to produce the attosecond pulse.

Key words: laser optics; 3-D Schrödinger equation; high-order harmonic generation; half-cycle pulse; attosecond pulse

引 言

激光诱导高次谐波(high-order harmonic generation, HHG)是强激光物理领域中最重要的现象之一。由于其在制备极紫外(extreme ultraviolet, EUV)以及 X 射线光源中有巨大的应用价值，过去 20 年中人们已对高次谐波进行了大量研究[1-4]。一般来说，激光与原子相互作用产生高次谐波可以通过电离-加速-回碰三步模型[5]来描述。

原子谐波的最主要用途之一是用来输出高光子能量、高强度的单个阿秒脉冲。因此，研究人员提出了许多有效方法来完成这一目标，例如：(1) 电离门或偏振门技术[6-7]；(2) 非共线谐波发射[8]；(3) 多色场控制方案[9-10]；(4) 啁啾场调制[11]；(5) 中红外激光场控制方案[12]；(6) 单极场控制方案[13]；(7) 空间非均匀场调制方案[14-15]等。虽然谐波截止能量在上述方案中会有明显延伸，但是谐波强度在谐波截止能量附近会出现明显下降，这并不利于输出高强度的阿秒脉冲。因此，如何在保证谐波强度足够强的同时来延伸谐波截止能量成为了人们关注的重点。例如：ZHANG 等人[16]和 FENG 等人[17]利用 He^+ 离子叠加态作为初始态在双色激光场以及啁啾激光场作用下获得了一系列强度被增强 6 个数量级的阿秒脉冲。ISHIKAWA[18]、

基金项目：国家自然科学基金资助项目(11504151)；辽宁省博士科研启动基金资助项目(201501123)；辽宁省教育厅基金资助项目(L2014242；JL201615405)

作者简介：刘 航(1985-)，女，博士，副教授，主要从事强激光与原子分子相互作用等方面的研究。

E-mail：attophys_lngy@126.com

收稿日期：2016-10-31；收到修改稿日期：2016-11-04

LI 等人[19]、DU 等人[20]、FENG 等人[21]利用超快紫外光源激发 He 原子以及 He^+ 离子,随后与双色场或者啁啾场相互作用,获得了一系列谐波增强范围在 7 个数量级到 17 个数量级的谐波光谱。虽然谐波强度在上述理论方案中可以被有效增强,但是实验上实现却比较困难。例如:(1) 如何获得稳定的叠加态作为初始态?(2) 如何控制紫外光源有效激发 He 原子或 He^+ 离子?

最近,一种利用啁啾场或者多色场调制激来增强谐波强度的方案得到了学者们的关注。相比之前的理论方案,该方案更容易在实验上实现。例如:实验方面,WEI 等人[22-23]利用 800nm 主频场与其 2 阶、3 阶谐波场的组合场与惰性气体相互作用后,可以把单一的高阶谐波增强 1 ~ 2 个数量级;理论方面,WANG 等人[24]利用强场近似方法解释了 WEI 等人获得的谐波增强的实验结果。LARA-ASTIASO 等人[25]利用负向啁啾场与 H_2^+ 相互作用使谐波截止能量附近强度获得 2 ~ 3 个数量级的增强。

因此,鉴于上述原因,本文中提出一种利用负向啁啾激光场与半周期激光场的组合场的方式来同时增强谐波强度和延伸谐波截止能量的方法。获得了强度增强 1 个数量级的 46as 的脉冲。

1　计算方法

激光场与 He 原子作用的 3 维薛定谔方程为[26]:

$$i\frac{\partial\varphi(r,t)}{\partial t} = \left[-\frac{1}{2}\frac{\partial^2}{\partial r^2} + V(r) - rE(t)\right]\varphi(r,t) \quad (1)$$

式中,$V(r) = -1.535/r$ 是 He 原子的库伦势,r 为电子坐标,t 为激光作用时间,$\varphi(r,t)$为电子波函数。激光场 $E(t) = E\exp[-4(\ln 2)t^2/\tau^2]\cos(\omega_1 t + \alpha t^2/2) + E_{HCP}(t)$,采用原子单位制(atomic unit, a. u.),其中 ω_1, E 和 τ 分别为激光场的频率、振幅和脉宽;α 为啁啾参量,$\alpha > 0.0$ 表示正向啁啾;$\alpha < 0.0$ 表示负向啁啾。$E_{HCP}(t) = k\theta(t-\tau_d)E\{400(t-\tau_d)^3\exp[-8(t-\tau_d)/\tau_{HCP}]/\tau_{HCP}^3 - 0.004(t-\tau_d)^5\exp[-(t-\tau_d)/\tau_{HCP}]/\tau_{HCP}^5\}$ 为半周期激光场,其中 kE,τ_{HCP}和 τ_d 分别为半周期激光场的振幅(k 为比例系数)、脉宽以及与主频场的延迟时间。$\theta(t-\tau)$为阶跃函数。偶极加速度可以表示为[27]:$a(t) = \langle\varphi(r,t)|-\partial V(r)/\partial r + E(t)|\varphi(r,t)\rangle$。高次谐波谱图可表示为:$S(\omega) = \left|(2\pi)^{-1/2}\int_0^{T_{total}} a(t)e^{-i\omega_1 t}dt\right|^2$,$T_{total}$为总作用时间,$\omega$ 表示谐波辐射频率。小波变换时频分析可以表示为[28]:$A(t,\omega) = \int a(t')\sqrt{\omega_1}W(\omega_1(t'-t))dt'$,其中 t'为时频变换后的积分时间变量,$W(x) = \xi^{-1/2}e^{ix}e^{-x^2/(2\xi^2)}$,$\xi = 15$ 为小波变换数值。阿秒脉冲强度 $I_{atto}(t)$ 可以通过叠加谐波光谱获得:$I_{atto}(t) = \left|\sum_q\left(\int a(t)e^{-iq\omega_1 t}dt\right)e^{iq\omega_1 t}\right|^2$,$q$ 为谐波次数。

2　结果与分析

图 1a 是 He 原子与激光脉宽 $\tau = 5$fs、激光波长 $\lambda = 800$nm、激光场场强 $I = 3.5\times10^{14}$ W/cm^2 的激光场相互作用后辐射谐波的谱图。由图可知,在无啁啾调制下($\alpha = 0.0$),He 原子谐波辐射图呈现双平台结构,谐波强度在截止能量附近的第二平台区有明显下降趋势,其强度比第一平台区减小 1 个数量级。众所周知,要获得光子能量更高的阿秒脉冲,选择谐波截止能量附近的谐波进行叠加是有效的方法。但在无啁啾调制激光场驱动下,谐波光谱在截止能量附近强度有明显下降,这显然不利于高强度阿秒脉冲的输出。因此,本文中采用正负向啁啾激光场来试图调制谐波截止能量的强度。分析图 1a 可知,当引入负向啁啾参量时($\alpha = -0.0002$),谐波光谱呈现单一平台结构,其截止能量附近强度比无啁啾调制下增强 1 个数量级;当引入正向啁啾参量时($\alpha = 0.0002$),谐波光谱仍呈现双平台结构,并且第二平台区谐波强度与无啁啾情况相比又有减小,显然更为不利于增强输出脉冲的强度。图 1b ~ 图 1d 中给出上述 3 种啁啾场下谐波辐射的时频分析图,其中 T 代表激光光学周期。由图可知,5fs 超短激光脉冲作用 He 原子会出现 3 个主要的谐波辐射过程,记为 P_1,P_2,P_3。其中 P_1,P_3 辐射过程所产生的能量几乎一致(见图 1b),因此在谐波光谱上呈现双平台结构。当引入正向啁啾参量时(见图 1c),P_1 辐射过程的截止能量被增大,但是 P_1 过程的强度要远小于

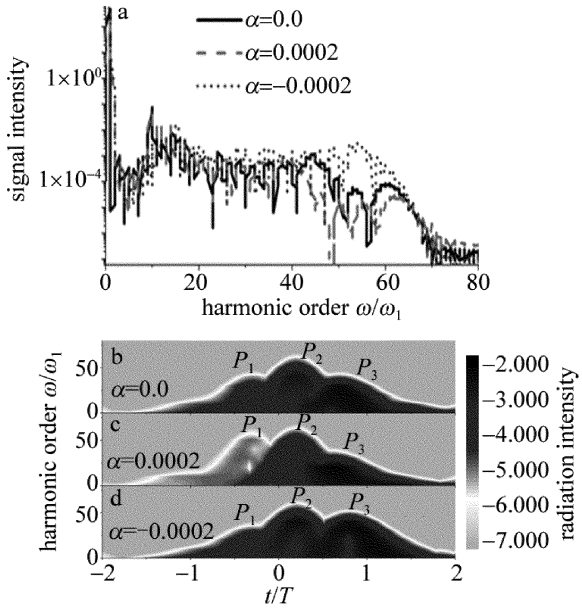

Fig. 1　a—HHG driven by laser field of 5fs/800nm and $I = 3.5\times10^{14}$ W/cm^2　b ~ d—time-frequency analysis of the harmonic spectra for three chirped pulses

P_2 和 P_3 过程的强度(大约小 3 ~4 个数量级),其在谐波光谱上的贡献与 P_2 和 P_3 过程相比几乎可忽略不计。因此在谐波光谱上依然可观测到 2 个平台区,且由于 P_1 辐射强度被明显减弱,因此导致图 1a 所示谐波强度减小。当引入负向啁啾参量时(见图 1d),P_3 辐射过程的截止能量被增大,而且其辐射强度与无啁啾情况比较并没有衰减,这导致谐波能量大于 $45\omega_1$ 时有 P_2 和 P_3 2 个谐波辐射过程贡献产生,这就是图 1a 所示谐波第二平台区强度增大的原因。

图 2a ~ 图 2c 中分别给出无啁啾调制和正负向啁啾调制后的激光包络图以及电子电离几率。由图 2 可知,电离主要发生在激光瞬时振幅附近,即 I_1,I_2,I_3,I_4。由谐波辐射的半经典三步模型可知,电子在电离后的半个周期内会在激光场中加速并与核子发生碰撞,其辐射谐波能量与半周期的振幅,瞬时波长呈正比。分析图 1b ~ 图 1d 及图 2a ~ 图 2c 可知,谐波辐射过程 P_1 ~ P_3 是电子在电离点 I_1 ~ I_3 电离后在后续半个周期内发生加速-回碰所产生的(因电离点 I_4 之后的半周期强度较弱,故其辐射谐波能量较低,这里不考虑它的作用)。分析激光包络图可知,随着正负向啁啾参量的引入,激光波形分别在前半段[$-2T$ ~ $-0.5T$]和后半段[$0.5T$ ~ $2.0T$]展宽,即激光波长被瞬时增大,因此导致图 1c 和图 1d 中辐射能量过程 P_1 和 P_3 的能量增大。但由于电离几率在 I_1 处非常小,所以导致谐波辐射过程 P_1 的强度非常弱。相反,I_3 处的电离几率与无啁啾情况电离几率大小类似,因此谐波辐射过程 P_3 的强度并未被减弱。

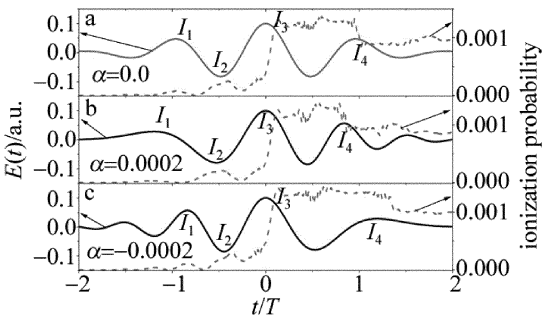

Fig. 2 Laser profiles and the ionization probabilities

图 3a 中给出负向啁啾激光场($\alpha = -0.0002$)与半周期控制场的组合场驱动 He 原子产生谐波的特点。半周期控制场场强、脉宽、延迟时间分别为 $kE = -0.3E$,$\tau_{HCP} = 2.0$fs 和 $\tau_d = 0.1T$。由图可知,随着半周期控制场的加入,谐波截止能量得到展宽,并且谐波强度并没有减弱,这非常有利于增强阿秒脉冲的强度。图 3b 中给出组合场下谐波辐射的时频分析图。由图可见,谐波辐射过程 P_3 的辐射能在组合场下被明显增大,而且其强度与单色负向啁啾场下所产生的辐射过程 P_2 和 P_3 几乎一致,因此谐波光谱截止能量在强度不变的情况下得到了延伸。图 3c 是负向啁啾激光场($\alpha = -0.0002$)、半周期控制场、组合场的激光包络图及电子在组合场下的电离几率。在半周期控制场引入后,组合场在 $0.25T$ ~ $0.75T$ 处的瞬时振幅明显被增大,导致电子在 I_3 处电离后可在加速过程中获得更多的能量,进而可以辐射出能量更高的谐波,这就是图 3b 中辐射能量过程 P_3 延伸及图 3a 所示谐波截止能量增大的原因。

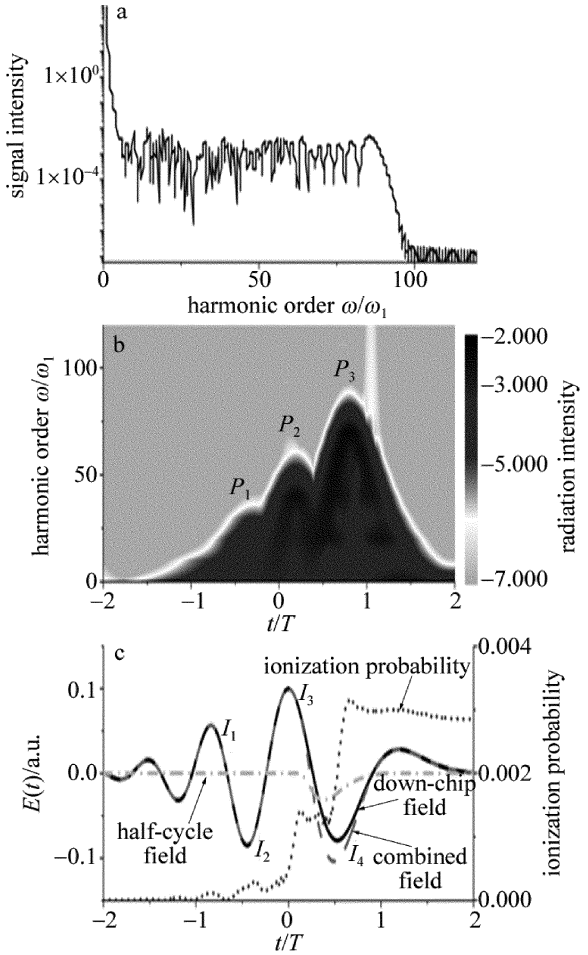

Fig. 3 a—HHG spectrum driven by the down-chirp field combined with a half-cycle pulse b—time-frequency analysis of the harmonic spectra for the case of the combined field c—laser profiles of the 5fs/800nm field, the half-cycle controlling pulse, the combined field and the ionization probability of the combined field

由图 3b 分析可知,当引入的半周期激光场延迟时间为 $\tau_d = 0.1T$ 时,谐波截止能量在强度不变的情况下有明显延伸,并且当谐波能量大于 $70\omega_1$ 时,只有单独的谐波辐射过程 P_3 对谐波光谱有贡献作用,这有利于单个阿秒脉冲的输出。因此,通过适当叠加 $75\omega_1$ 到 $85\omega_1$ 次谐波,可获得 1 个 46as 的脉冲。由于其谐波强度($75\omega_1$ ~ $85\omega_1$)要比无啁啾情况下获得的谐波强 1 个数量级,因此获得的脉冲强度也比无啁啾情况下获得的脉冲强 1 个数量级,如图 4 所示。

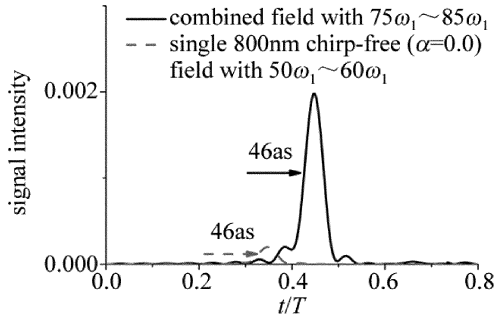

Fig. 4　Attosecond pulse superposed by the harmonics

3　结　论

利用负向啁啾激光场以及半周期控制场对谐波辐射截止能量及强度进行了调控。计算结果表明,当激光引入负向啁啾参量时,谐波截止能量附近的强度与无啁啾参量时相比增强了 1 个数量级。随后,适当引入半周期控制激光场,谐波截止能量在强度不变的情况下得到有效延伸。最后,叠加谐波谱上的谐波,可获得一个 46as 的脉冲。该脉冲强度与无啁啾参量下获得的脉冲相比增强了 1 个数量级。由于利用啁啾场或者多色场方案增强谐波以及阿秒脉冲强度已在实验上被证实[22-23],故所提出的改进方案(利用负向啁啾激光场以及半周期控制场延伸及增强谐波辐射截止能量)为实验获得高强度阿秒脉冲提供了另一种方法。

感谢中国科学院大连化学物理研究所韩克利研究员所提供的计算资源。

参　考　文　献

[1] WANG Ch, LIU H L, TIAN J Sh, *et al*. Analysis of intrinsic atomic phase in process of extreme ultraviolet attosecond pulse generation [J]. Laser Technology, 2012, 36(3): 342-345 (in Chinese).

[2] UIBERACKER M, UPHUES T, SCHULTZE M, *et al*. Attosecond real-time observation of electron tunnelling in atoms [J]. Nature, 2007, 446(7136): 627-632.

[3] GOULIELMAKIS E, SCHULTZE M, HOFSTETTER M, *et al*. Single-cycle nonlinear optics [J]. Science, 2008, 320(5883): 1614-1617.

[4] WANG Ch, KANG Y F, TIAN J Sh, *et al*. Analysis of phase dependence of the two single-attosecond-pulse generation techniques [J]. Laser Technology, 2012, 36(4): 516-519 (in Chinese).

[5] CORKUM P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization [J]. Physical Review Letters, 1993, 71(13): 1994-1997.

[6] CHANG Z H. Chirp of the single attosecond pulse generated by a polarization gating [J]. Physical Review, 2005, A71(2): 023813.

[7] SANSONE G, BENEDETTI E, CALEGARI F, *et al*. Isolated single-cycle attosecond pulses [J]. Science, 2006, 314(5798): 443-446.

[8] LOUIY M, ARNOLD C L, MIRANDA M, *et al*. Gating attosecond pulses in a noncollinear geometry [J]. Optica, 2015, 2(6): 563-566.

[9] ZENG Z, CHENG Y, SONG X, *et al*. Generation of an extreme ultraviolet supercontinuum in a two-color laser field [J]. Physical Review Letters, 2007, 98(20): 203901.

[10] 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]. Journal of Physics, 2009, B42(22): 225601.

[11] FENG L Q, CHU T S. Generation of an isolated sub-40as pulse using two-color laser pulses: Combined chirp effects [J]. Physical Review, 2011, A84(5): 053853.

[12] LI P C, LAUGHLIN C, CHU S I. Generation of isolated sub-20-attosecond pulses from He atoms by two-color midinfrared laser fields [J]. Physical Review, 2014, A89(2): 023431.

[13] FENG L Q, LIU H. Unipolar pulse assisted generation of the coherent XUV pulses [J]. Optics Communications, 2015, 348(8): 1-6.

[14] KIM S, JIN J, KIM Y J, *et al*. High-harmonic generation by resonant plasmon field enhancement [J]. Nature, 2008, 453(7196): 757-760.

[15] SHAARAN T, CIAPPINAM F, LEWENSTEIN M. Quantum-orbit analysis of high-order-harmonic generation by resonant plasmon field enhancement [J]. Physical Review, 2012, A86(2): 023408.

[16] ZHANG G T, LIU X S. Generation of an extreme ultraviolet supercontinuum and isolated sub-50as pulse in a two-colour laser field [J]. Journal of Physics, 2009, B42(12): 125603.

[17] FENG L Q, CHU T S. Intensity improvement in the attosecond pulse generation with the coherent superposition initial state [J]. Physics Letters, 2012, A376(17): 1523-1530.

[18] ISHIKAWA K. Photoemission and ionization of He^+ under simultaneous irradiation of fundamental laser and high-order harmonic pulses [J]. Physical Review Letters, 2003, 91(4): 043002.

[19] LI P C, ZHOU X X, WANG G L, *et al*. Isolated sub-30as pulse generation of an He^+ ion by an intense few-cycle chirped laser and its high-order harmonic pulses [J]. Physical Review, 2009, A80(5): 053825.

[20] DU H C, WANG H Q, HU B T. Isolated short attosecond pulse generated using a two-color laser and a high-order pulse [J]. Physical Review, 2010, A81(6): 063813.

[21] FENG L Q, LIU H. Ultraviolet source assisted enhancement of attosecond pulse [J]. Chinese Journal of Chemical Physics, 2015, 28(1): 21-26.

[22] WEI P F, MIAO J, ZENG Z N, *et al*. Selective enhancement of a single harmonic emission in a driving laser field with subcycle waveform control [J]. Physical Review Letters, 2013, 110(23): 233903.

[23] WEI P F, ZENG Z N, JIANG J M, *et al*. Selective generation of an intense single harmonic from a long gas cell with loosely focusing optics based on a three-color laser field [J]. Applied Physics Letters, 2014, 104(15): 151101.

[24] WANG X, JIN C, LIN C D. Coherent control of high-harmonic generation using waveform-synthesized chirped laser fields [J]. Physical Review, 2014, A90(2): 023416.

[25] LARA-ASTIASO M, SILVA R E F, GUBAYDULLIN A, *et al*. Enhancing high-order harmonic generation in light molecules by using chirped pulses [J]. Physical Review Letters, 2016, 117(9): 093003.

[26] LU R F, ZHANG P Y, HAN K L. Attosecond-resolution quantum dynamics calculations for atoms and molecules in strong laser fields [J]. Physical Review, 2008, E77(6): 066701.

[27] BURNETT K, REED V C, COOPER J, *et al*. Calculation of the background emitted during high-harmonic generation [J]. Physical Review, 1992, A45(5): 3347-3349.

[28] ANTOINE P, PIRAUX B, MAQUET A. Time profile of harmonics generated by a single atom in a strong electromagnetic field [J]. Physical Review, 1995, A51(3): R1750-R1753.