

文章编号: 1001-3806(2017)02-0151-08

中红外激光相位测量及阿秒脉冲的产生

刘航¹, 冯立强^{1,2,3}

(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. 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: 为了测量中红外激光相位及获得阿秒脉冲, 采用高次谐波截止能量随激光相位改变而变化的方法, 进行了中红外激光相位测量及阿秒脉冲输出的研究。引入一束少周期激光场后, 组合场相位对谐波发射截止能量的影响要比单独中红外激光场相位对谐波截止能量的影响明显很多。因此, 提出了一种利用谐波截止能量与相位角的对应关系测量多周期中红外激光相位的方法。同时理论研究了 3 束中红外激光场下发射高次谐波及阿秒脉冲的特点。结果表明, 适当调节 3 束激光场的延迟时间和相位角, 不仅谐波发射的截止能量得到了延伸, 而且单一的量子路径也被选择出来对谐波发射起作用, 形成了一个 272eV 的平台区; 通过叠加谐波谱上的谐波, 可获得一系列脉宽为 34as 的 X 射线光源。该研究对中红外激光相位测量及阿秒脉冲的输出是有帮助的。

关键词: 激光光学; 相位测量; 高次谐波; 中红外场; 阿秒 X 射线光源

中图分类号: O562.4 文献标志码: A doi:10.7510/jgjs. issn. 1001-3806. 2017. 02. 001

Mid-infrared field phase measurement and attosecond pulse generation

LIU Hang¹, FENG Liliang^{1,2,3}

(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. State Key Laboratory of Molecular Reaction Dynamics, Dalian Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences, Dalian 116023, China)

Abstract: In order to measure the phase of mid-infrared field and to obtain the attosecond pulse, the investigation on mid-infrared field phase measurement and attosecond pulse generation has been presented by using the relationship between phase and harmonic cutoff energy. With the introduction of a few-cycle pulse to mid-infrared field, the effect of phase of the combined field on harmonic cutoff energy became much more distinct in comparison with the single field. One new method of phase measurement was gotten. Further, harmonic extension spectra and attosecond pulse generation of the three-color mid-infrared field were numerically investigated. The results show that by properly adjusting the delay times and phases of three pulses, not only harmonic cutoff energy is extended, but also single quantum path is selected to contribute to the harmonic generation, resulting in supercontinuum with bandwidth of 272eV. Finally, by superposing the properly selected harmonics in supercontinuum region, a series of X-ray pulses with pulselwidth of 34as can be obtained. The investigation is helpful for phase measurement of mid-infrared field and attosecond pulse generation.

Key words: laser optics; phase measurement; high-order harmonic generation; mid-infrared field; attosecond X-ray source

引言

超短激光技术的发展, 使得人类可以探索尺度越来越小的物理过程。尤其是过去 10 年内发展起来的阿秒激光技术, 极大地拓展了人们对原子、分子运动的

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)

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

E-mail: liuhang20@126.com

收稿日期: 2016-03-28; 收到修改稿日期: 2016-09-13

认识。例如, 利用单个阿秒脉冲观测俄歇电子的产生^[1]、原子隧穿电离^[2]、分子电离解离过程^[3-5]等。高次谐波作为产生单个阿秒脉冲的最有效方法之一更是被广泛地研究^[6-9]。其过程可以通过 CORKUM 等人提出的“电离-加速-回碰”三步模型^[10]来描述: 首先基态电子通过隧穿电离进入连续态; 其次, 电子在激光场的作用下加速并远离核子, 但在激光场反向时部分电子又在激光场的驱动下反向加速返回核子并与核子发生碰撞; 随后辐射出高能光子作为谐波的能量。由于谐波光谱覆盖了很广泛的一段频率, 所以高次谐波是一种行之有效的产生高能光源的方法。但是由于谐波截止能量的限制, $E_{\text{cutoff}} = I_p + 3 \cdot 17 U_p$ (I_p 是原子的电离

势; U_p 为自由电子的有质动力势, $U_p = I/4\omega^2$, U_p 正比于激光强度 I , 反比于激光频率 ω), 单色激光场驱动谐波能量大多都在紫外、远紫外区间。因此, 最近 10 年内高次谐波研究的重点之一是有效地延伸谐波截止能量进而获得能量更高的阿秒光源。例如:(1) 双色或者多色激光场方案^[11-13]; (2) 哨啾激光场方案^[14-16]; (3) 偏振门技术^[17-19]等。

根据“三步模型”可知, 谐波截止能量的最大值 $E_{\max} = I_p + nU_p$ (n 为系数)。因此, 最近一种利用中红外激光场延伸谐波截止能量的方法得到了广泛关注。例如, CHOU 等人^[20]理论提出了一种双色最佳控制场谐波延伸方法并且获得了一个 21as 的脉冲。LI 等人^[21]利用双色中红外激光场理论上获得了一个 18as 的脉冲。而作者^[22]曾利用空间非均匀 3 色中红外激光场理论获得了一系列 32as 左右的脉冲。虽然利用中红外激光场理论上可以有效地延伸谐波截止能量, 但是如何准确地确定或者测量多周期中红外激光场的相位还是一个问题。

因此, 鉴于上述原因, 作者利用谐波截止能量和激光场相位的对应关系, 来测量多周期中红外激光场相位(例如 20fs/800nm 和 20fs/2000nm), 然后利用 3 束中红外激光场来延伸谐波截止能量。计算结果表明, 通过加入少周期激光场(例如 5fs/800nm)到多周期中红外激光场后, 组合场谐波截止能量对激光场相位角的响应要远大于单色中红外激光场的情况, 进而给出了一种测量多周期中红外激光相位的方法。适当选取 3 束激光场的延迟时间和相位角, 谐波发射的截止能量得到了有效的延伸, 形成了一个由单一量子路径贡献而成的 272eV 连续平台区。最后, 通过叠加谐波谱上的谐波, 可获得一系列脉宽为 34as 左右的阿秒 X 射线光源。

1 理论模型和计算方法

本文中, Ne 原子与激光场相互作用可以通过数值求解含时薛定谔方程来描述^[23-27], 若无特殊说明, 均采用原子单位。

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

式中, $V(r) = -1.2592/r$ 是 Ne 原子的软核库伦势, $E(t)$ 为激光场振幅, r 为电子坐标, t 为激光作用时间, ∇ 为拉普拉斯算子, $\phi(r,t)$ 为电子波函数, 可以表示为:

$$\phi(r,t) = \sum_{l=0}^{48} \frac{1}{r} \chi_l(r,t) Y_{l,0}(\theta) \quad (2)$$

式中, $\chi_l(r,t)$ 和 $Y_{l,0}(\theta)$ 分别为径向波函数和球谐函

数, l 为角量子数, θ 为角度, 下标 0 表示磁量子数为 0。

组合场可以表示为:

$$E(t) = E_1 \exp[-4\ln(2)t^2/\tau_{12}^2] \cos(\omega_1 t + \varphi_1) + \\ E_2 \exp[-4\ln(2)(t - \tau_{12})^2/\tau_{13}^2] \cos[\omega_2(t - \tau_{12}) + \varphi_2] + \\ E_3 \exp[-4\ln(2)(t - \tau_{13})^2/\tau_{13}^2] \times \\ \cos[\omega_3(t - \tau_{13}) + \varphi_3] \quad (3)$$

式中, E_i , ω_i , τ_i 和 φ_i ($i = 1 \sim 3$) 分别为 3 束激光场的振幅、谐波截止频率、脉宽和载流子包络相位(carrier envelope phase, CEP); τ_{12} 和 τ_{13} 分别是第 1 束和第 2 束激光场以及第 1 束和第 3 束激光场的延迟时间。由于 $E = h\omega$, 因此在本文中, 通过分析谐波阶次 ω/ω_1 来讨论截止能量。

根据艾伦费斯特定律^[28], 可以求得偶极加速度为: $a(t) = -\langle \phi(r,t) \left| \frac{\partial V(r)}{\partial r} + E(t) \right| \phi(r,t) \rangle$ (4)

然后对其进行傅里叶变换便可以得到相应的高次谐波谱: $S(\omega) = \left| \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^T a(t) \exp(-i\omega t) dt \right|^2$ (5)

式中, T 为总作用时间。最后, 通过适当地叠加谐波可以获得阿秒脉冲, q 为谐波阶次:

$$I(t) = \left| \sum_q \left[\int a(t) \exp(-iq\omega t) dt \right] \exp(iq\omega t) \right|^2 \quad (6)$$

2 结果与分析

图 1a 中给出单色 20fs/800nm 激光场相位角 φ_1 对谐波截止能量的影响, 激光强度 $I_1 = 5.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 。本文中, 每隔 0.05π 计算一次谐波光谱, 即给出的谐波截止能量与相位角的对应关系可精确到 0.05π 。从图中可知, 谐波截止能量几乎都在 75 阶左右, 与经典预言值 $I_p + 3.17U_p$ 符合得很好, 但其对多周期激光场相位角的响应不是很明显。图 1b 中给出了加入一束 5fs/800nm, $I_2 = 5.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $\tau_{12} = 0.0\pi$, $\varphi_2 = 0.0\pi$ 激光场到 20fs/800nm 后, 相位角 φ_1 对谐波截止能量的影响。从图中可知, 随着少周期激光场的加入, 谐波截止能量与激光相位角 φ_1 的对应关系变得相对明显。为了方便说明, 部分相位角与谐波最大截止能量的对应关系在表 1 中给出。从表 1 中可知, 激光相位角对谐波最大截止能量有很大的影响, 并且每个激光相位只对应一个谐波截止能量。因此, 通过这种谐波截止能量与激光相位角的对应关系可以有效地测量多周期中红外激光场的相位。但是当 $\varphi_1 > 0.8\pi$ 时, 谐波最大截止能量与相位角对应关系的分辨率逐渐下降。因此, 当 $\varphi_1 > 0.8\pi$, 利用本方案测量中红外激光场相位的分辨率会逐渐下降。为了更直观地说明激光相位对谐波截止能量的影响, 图 1c 中给出了

Table 1 Relationship between phase angle φ_1 and harmonic order ω/ω_1 of the combined field (20fs/800nm + 5fs/800nm) when $\tau_{12} = 0.0\pi, \varphi_2 = 0.0\pi$

φ_1/π	0.0	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5	0.6	0.7	0.8	0.9	1.0
harmonic order ω/ω_1	257	250	238	209	179	141	105	75	59	54	50

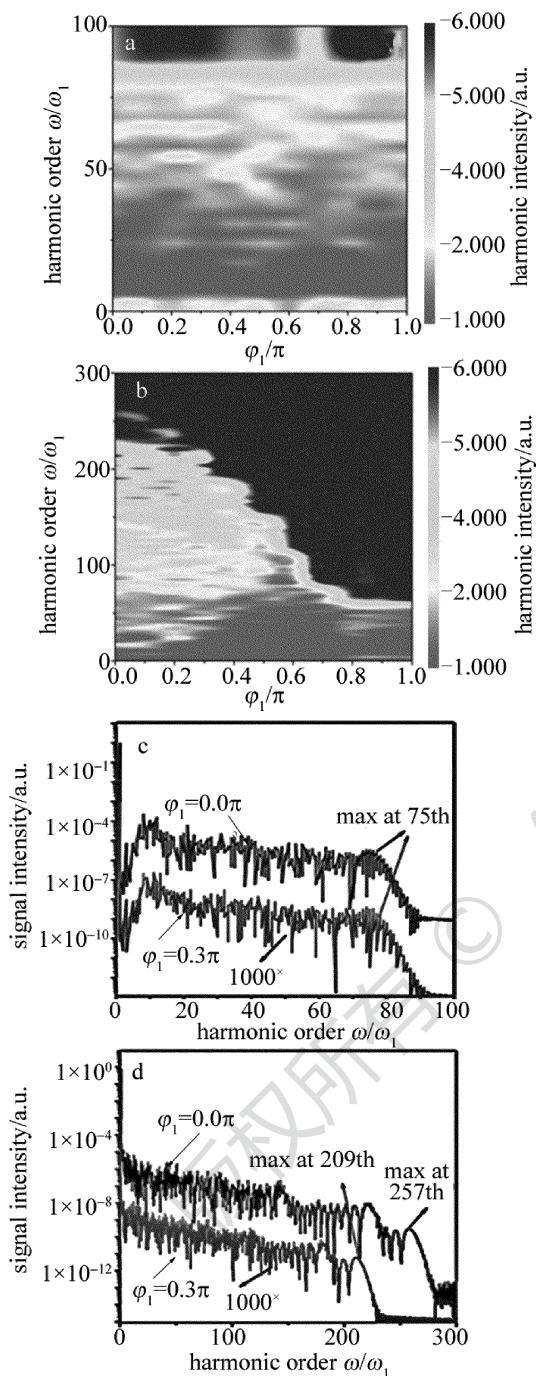


Fig. 1 a—relationship between harmonic order ω/ω_1 and phase angle φ_1 of the single field (20fs/800nm) b—relationship between harmonic order ω/ω_1 and phase angle φ_1 of the combined field (20fs/800nm + 5fs/800nm) c—relationship between signal intensity and harmonic order ω/ω_1 of the single field (20fs/800nm) d—relationship between signal intensity and harmonic order ω/ω_1 of the combined field (20fs/800nm + 5fs/800nm)

上述单色场在激光相位 $\varphi_1 = 0.0\pi$ 和 $\varphi_1 = 0.3\pi$ 时的谐波发射光谱。从图中可知,虽然激光相位角改变会对谐波光谱的结构产生一定的影响,但是谐波截止能

量几乎都在 75 阶谐波处,其对单色激光场相位角的响应很小。因此,通过单色激光场的谐波截止能量不能确定(或者测量)激光场的相位。图 1d 中给出了上述组合场在 $\varphi_1 = 0.0\pi, \tau_{12} = 0.0\pi, \varphi_2 = 0.0\pi$ 和 $\varphi_1 = 0.3\pi, \tau_{12} = 0.0\pi, \varphi_2 = 0.0\pi$ 时的谐波发射光谱。从图中可知,随着少周期激光场的加入,组合场相位 φ_1 对谐波截止能量的影响相比于单色场时明显加大了。例如,谐波截止能量在 $\varphi_1 = 0.0\pi$ 和 $\varphi_1 = 0.3\pi$ 时分别为 257 阶和 209 阶谐波,这显然非常有利于利用谐波截止能量来测量激光场的相位。图 1c 和图 1d 中,1000^x 表示放大倍数,是为了更直观地观测结果。

为了更好地了解激光相位对谐波截止能量的影响,图 2a 中给出了上述单色激光场在 $\varphi_1 = 0.0\pi$ 和 $\varphi_1 = 0.3\pi$ 时的激光包络图。由“三步模型”可知,电子可以在 A 点发生电离,并加速远离核子;随后当激光场在 B 点反向时,电子先减速在反向加速;最后,电子在 C 点与核子发生回碰并发射高能光子。通过分析激光包络图可知,对于本文中采用的多周期激光场,电子的加速-回碰过程,即 B-C 过程振幅几乎不随激光相位角的改变而变化,这就是图 1c 中谐波截止能量变化不大的原因。图 2b 和图 2c 中给出了上述 2 种情况下经典电离-回碰能的时间演化图^[29]。从图中可知,在多周期激光场作用下,电子会产生许多电离-回碰能量峰,谐波最大辐射能量峰发生在 $-0.1T_{800} \sim 0.6T_{800}$ 处(T_{800} 是 800nm 激光场的光学周期),这与之前分析的 A-B-C 过程是一致的,并且谐波最大截止能量为 75 阶左右,与图 1 中量子的计算结果一致。图 2d 中给出了组合场在 $\varphi_1 = 0.0\pi, \tau_{12} = 0.0\pi, \varphi_2 = 0.0\pi$ 和 $\varphi_1 = 0.3\pi, \tau_{12} = 0.0\pi, \varphi_2 = 0.0\pi$ 时的激光包络图。从图中可知,由于少周期激光场的加入,A-B-C 过程的振幅强度在 $\varphi_1 = 0.0\pi$ 时要强于 $\varphi_1 = 0.3\pi$ 的情况,这导致电子有更多的时间在激光场中加速,进而回碰时可以发出更高能量的光子,这也就是组合场的谐波截止能量随激光相位改变而变化较大的原因。图 2e 和图 2f 中给出了上述 2 种条件下电子电离-回碰能随时间的演化图。从图中可知,谐波最大辐射能量峰发生在 $-0.1T_{800} \sim 0.6T_{800}$ 处(对应于 A-B-C 过程),并且由于少周期激光场的加入, $\varphi_1 = 0.3\pi$ 时谐波截止能量要比 $\varphi_1 = 0.0\pi$ 时有较大的减小,这与之前的分析是一致的。

为了深入地理解谐波发射的特点,运用小波变换的方法^[30]对上述 4 种条件下的连续辐射谱进行了时频分析并给出了清晰的物理图像,如图 3 所示。从图

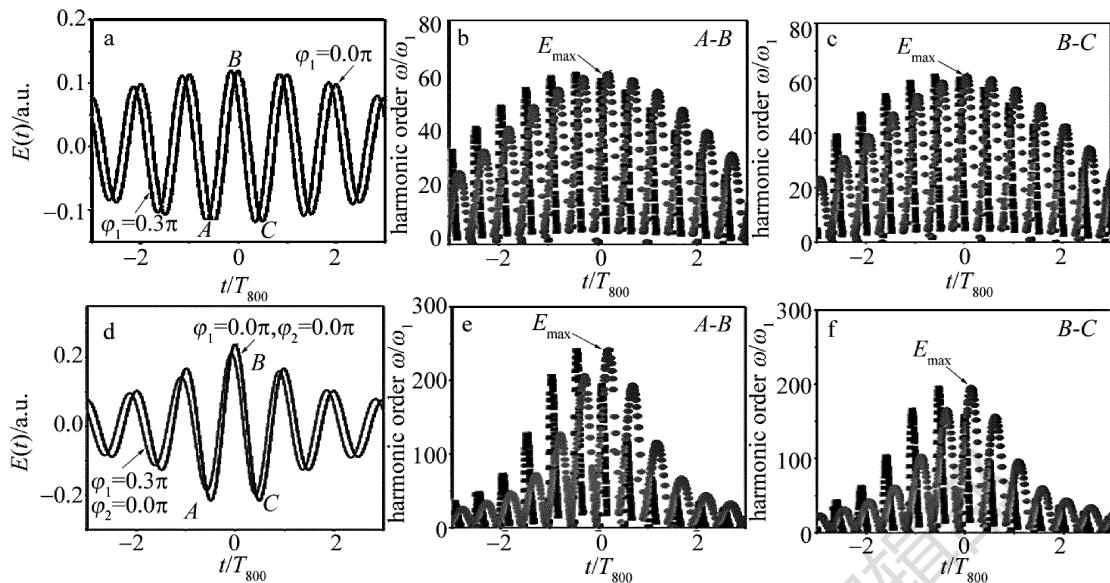


Fig. 2 a—relationship between $E(t)$ and t of the single field (20fs/800nm) b—kinetic energies on ionization and recombination of the single field (20fs/800nm) from A to B c—kinetic energies on ionization and recombination of the single field (20fs/800nm) from B to C d—relationship between $E(t)$ and t of the combined field (20fs/800nm + 5fs/800nm) e—kinetic energies on ionization and recombination of the combined field (20fs/800nm + 5fs/800nm) from A to B f—kinetic energies on ionization and recombination of the combined field (20fs/800nm + 5fs/800nm) from B to C

中看到,对于单色多周期激光场(图3a中 $\varphi_1=0.0\pi$ 和图3b中 $\varphi_1=0.3\pi$),谐波发射会产生多个能量峰,其最大峰值与之前给出的量子(见图1)或者经典结果(见图2)是一致的。并且每个峰对应峰值中心左右都有两个贡献几乎一样的“分支”,被称为短量子路径(左分支)和长量子路径(右分支)^[31],这也是谐波光谱干涉现象明显的原因。对于组合场的情况(图3c中 $\varphi_1=0.0\pi, \tau_{12}=0.0\pi, \varphi_2=0.0\pi$ 和图3d中 $\varphi_1=0.3\pi, \tau_{12}=0.0\pi, \varphi_2=0.0\pi$),可以发现,在少周期激光场加入后,不仅谐波截止能量被明显延伸了,而且谐波截止能量对激光相位的响应也变得明显了,这非常有利于激光相位角的测量。并且对于 $\varphi_1=0.0\pi, \tau_{12}=0.0\pi, \varphi_2=0.0\pi$ 的情况(见图3e),最大能量峰中短量子路径的贡献要略大于长量子路径的贡献,这就是

图1d中谐波谱图上干涉减小的原因。

为了进一步确定本文中提出的激光相位测量技术,图4中分别给出了20fs/2000nm单色场以及20fs/2000nm与5fs/800nm组合场下相位角 φ_1 对谐波截止能量的影响。激光场参量分别为 $I_1=5.0\times 10^{13}\text{W/cm}^2$ 和 $I_2=5.0\times 10^{14}\text{W/cm}^2, \tau_{12}=0.0\pi, \varphi_2=0.0\pi$ 。从图中可知,虽然谐波发射特点及截止能量随着激光场参量的变化而改变,但是单色场谐波发射截止能量对于激光相位角的改变依然很难进行测量。如图4a所示,谐波截止能量几乎都在130阶谐波处。而对于组合场情况,谐波截止能量对于组合场相位角 φ_1 的变化还是很明显,如图4b所示,具体对应关系在表2中给出。但是,当相位角较大时(例如 $\varphi_1>0.6\pi$),谐波最大截止能量与相位角对应关系的分辨率又呈现下降的趋势。

Table 2 Relationship between the maximum harmonic order ω/ω_1 and phase angle φ_1 of the combined field (20fs/2000nm + 5fs/800nm) when $\tau_{12}=0.0\pi, \varphi_2=0.0\pi$

φ_1/π	0.0	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5	0.6	0.7	0.8	0.9	1.0
harmonic order ω/ω_1	403	384	330	293	264	287	300	295	316	309	305

图5中分别给出了改变少周期激光场场强 I_2 、延迟时间 τ_{12} 和相位角 φ_2 后,组合场下辐射谐波的最大截止能量与多周期中红外激光场相位角的对应关系。由图可知,少周期激光场参量的改变可以对谐波截止能量造成很大影响,但是谐波最大截止能量与中红外激光场相位角依然存在一一对应的关系。但是随着相位角的增大(例如 $\varphi_1>0.6\pi$),谐波最大截止能量与相位角的对应关系趋于平缓,这不利于相位角的分辨。因此,从上述分析可知,本文中提出的利用谐波截止能

量来测量多周期中红外激光场相位的方案是可行的。但是当激光相位角较大时,相位测量的分辨率会逐渐下降。图5为最大谐波截止能量随相位 φ_1 的演化图。其中图5a中的参量为20fs/2000nm与5fs/800nm, $\tau_{12}=0.0\pi, \varphi_2=0.0\pi, I_2=7.0\times 10^{14}\text{W/cm}^2$;图5b中的参量为20fs/2000nm与5fs/800nm, $\tau_{12}=0.25\pi, \varphi_2=0.5\pi, I_2=5.0\times 10^{14}\text{W/cm}^2$ 。

图6a中给出了Ne原子在3束激光场下发射谐波的特点。激光场选择为20fs/2000nm,激光强度 $I_1=$

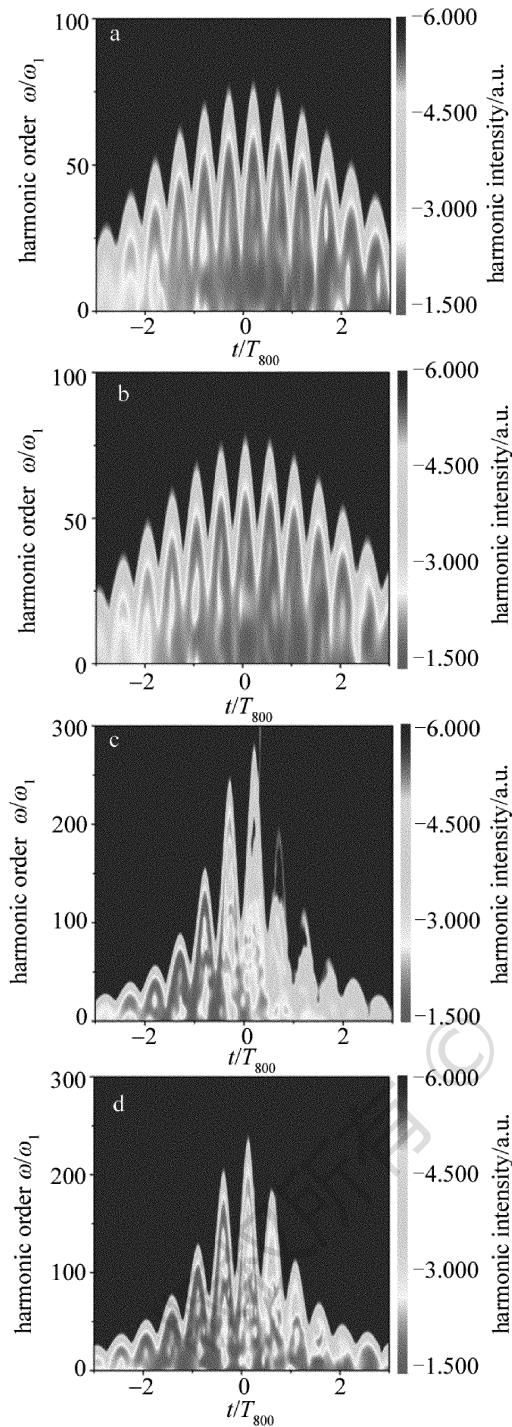


Fig. 3 Relationship between harmonic order ω/ω_1 and t
a—the single field (20fs/800nm), $\varphi_1 = 0.0\pi$ b—the single field (20fs/800nm), $\varphi_1 = 0.3\pi$ c—the combined field (20fs/800nm + 5fs/800nm), $\varphi_1 = 0.0\pi$, $\varphi_2 = 0.0\pi$ d—the combined field (20fs/800nm + 5fs/800nm), $\varphi_1 = 0.3\pi$, $\varphi_2 = 0.0\pi$

$5.0 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, 5fs/800nm, 激光强度 $I_2 = 5.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 以及 20fs/800nm ~ 20fs/2000nm, 激光强度 $I_3 = 5.0 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 。为了方便说明, 谐波强度从下到上依次乘以 $10^{-18}, 10^{-5}, 10^{-12}, 10^{-9}, 10^{-6}, 10^{-3}, 1$ 。从图中可知, 随着 3 束激光场的引入, 谐波截止能量相

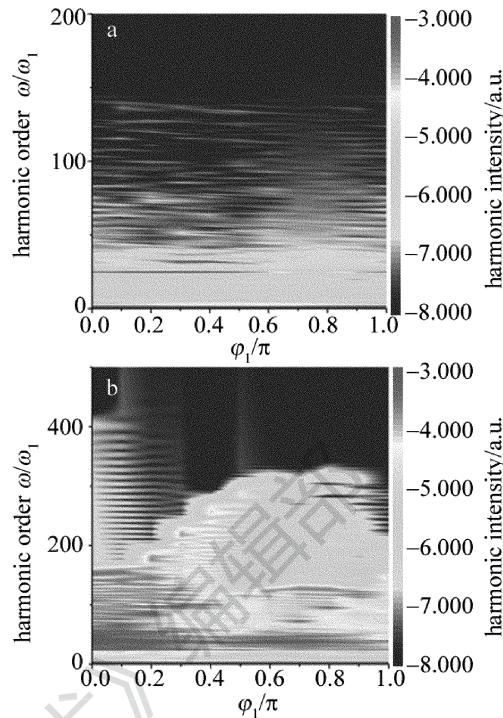


Fig. 4 Relationship between harmonic order ω/ω_1 and phase angle φ_1
a—the single field (20fs/2000nm) b—the combined field (20fs/2000nm + 5fs/800nm)

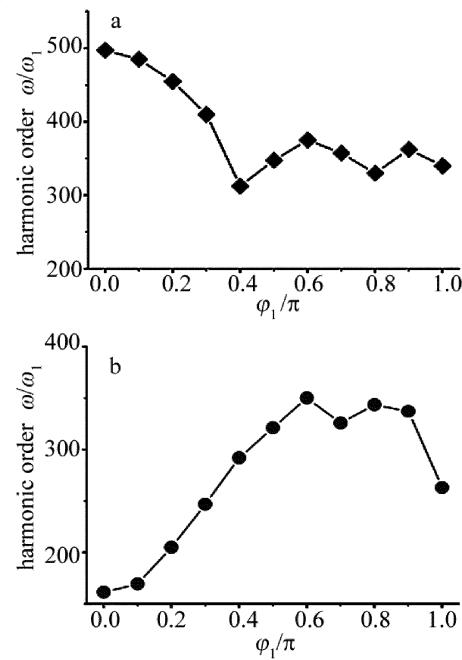


Fig. 5 Relationship between harmonic order ω/ω_1 and phase angle φ_1 of the combined field (20fs/2000nm + 5fs/800nm)
a— $\tau_{12} = 0.0\pi$, $\varphi_2 = 0.0\pi$, $I_2 = 7.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ b— $\tau_{12} = 0.25\pi$, $\varphi_2 = 0.5\pi$, $I_2 = 5.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$

比于上述 2 束激光场有进一步的延伸。尤其当 $\lambda_3 = 1200\text{nm}$ 时, 不仅谐波光谱具有最大的截止能量, 而且谐波光谱上的干涉现象非常小, 这有利于单个阿秒脉冲的产生。图 6b 中给出了上述三色场在 $\lambda_3 = 1200\text{nm}$

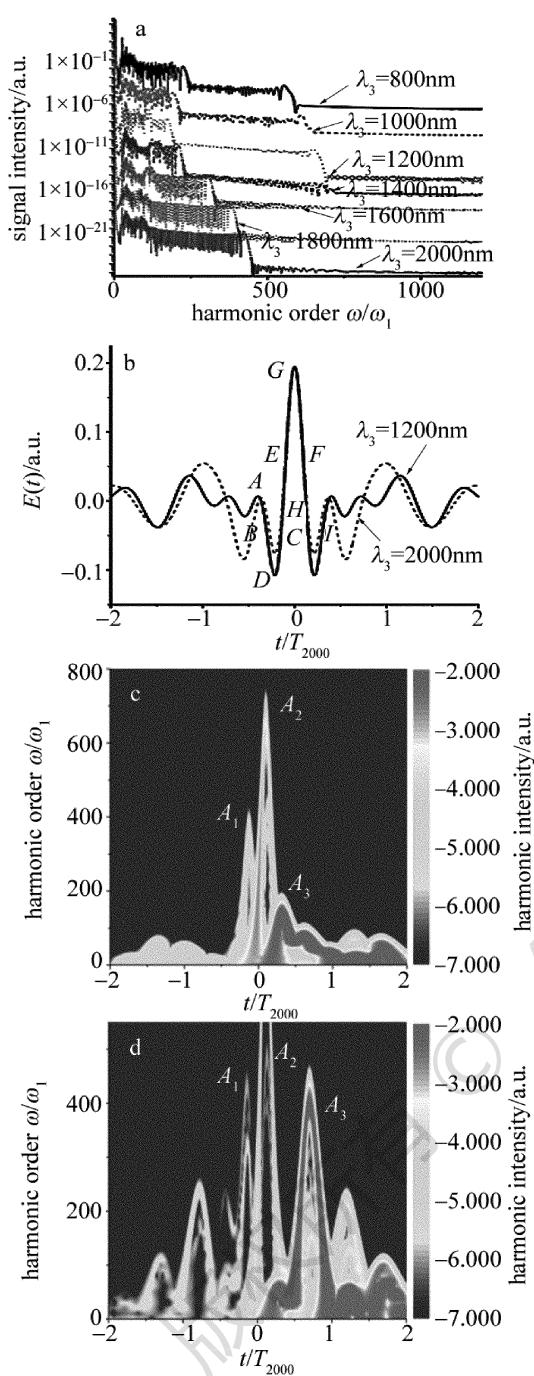


Fig. 6 Relationship driven by the three-color field (20fs/2000nm + 5fs/800nm + 20fs/800nm ~ 2000nm)
 a—between signal intensity and harmonic order ω/ω_1 b—between $E(t)$ and t when $\lambda_3 = 1200\text{nm}$ and $\lambda_3 = 2000\text{nm}$ c—between harmonic order ω/ω_1 and t when $\lambda_3 = 1200\text{nm}$ d—between harmonic order ω/ω_1 and t when $\lambda_3 = 2000\text{nm}$

和 $\lambda_3 = 2000\text{nm}$ 时的激光包络图。从图中可知,激光振幅区($-0.5T_{2000} \sim 0.5T_{2000}$)主要形成3个电离-加速-回碰过程,即,A-B-C,D-E-F,G-H-I。随着第3束控制激光场波长的增加(比较1200nm与2000nm情况),D-E-F过程的振幅强度明显被减小了,因此电子在加速-回碰过程中辐射的能量也相应减小,这就是图6a

中谐波截止能量随波长 λ_3 增大而减小的原因。图6c 和图6d 中给出了上述2种组合场($\lambda_3 = 1200\text{nm}$ 和 $\lambda_3 = 2000\text{nm}$)下谐波发射的时频分析图。从图中可以看出,在多周期激光场作用下电子会产生许多的电离-回碰能量峰,但是在振幅区间($-0.5T_{2000} \sim 0.5T_{2000}$)主要有3个能量峰(A_1, A_2, A_3),其辐射时间与之前说明的A-B-C, D-E-F, G-H-I 过程一致。对于 $\lambda_3 = 1200\text{nm}$ 的情况(见图6c),能量峰 A_1 的强度要远小于 A_2 和 A_3 的强度,因此可以忽略其作用,这就是图6a 谐波光谱中出现2个平台的原因。并且对于最大能量峰 A_2 ,其短量子路径对谐波发射的贡献要大于长量子路径,因此导致了谐波在大于250阶后出现干涉较小的光滑连续区,这对于阿秒脉冲的选择和输出是非常有利的。对于 $\lambda_3 = 2000\text{nm}$ 的情况(见图6d),能量峰 A_3 的强度要远大于 A_1 和 A_2 ,并且其长短量子路径对谐波发射的作用几乎一样,这是谐波光谱上形成干涉较大的单一平台区的主要原因。

图7a~图7c 中分别给出了组合场(20fs/2000nm + 5fs/800nm + 20fs/800nm ~ 2000nm)相位对谐波光谱的影响。为了方便说明,谐波强度从下到上依次乘以 $10^{-12}, 10^{-9}, 10^{-6}, 10^{-3}, 1$ 。从图中可知,随着激光相位的增大,谐波截止能量都逐渐减小,这显然不利于高能阿秒脉冲的输出。图7d 中给出了:(1) $\varphi_1 = 0.0\pi, \varphi_2 = 0.0\pi, \varphi_3 = 0.0\pi$; (2) $\varphi_1 = 0.0\pi, \varphi_2 = 0.1\pi, \varphi_3 = 0.0\pi$; (3) $\varphi_1 = 0.0\pi, \varphi_2 = 0.0\pi, \varphi_3 = 0.1\pi$ 情况下谐波发射的原始强度图。从图中可知,虽然谐波截止能量随相位增加而有微小的减小,但是谐波强度却又明显改变,例如,当激光相位为 $\varphi_1 = 0.0\pi, \varphi_2 = 0.1\pi, \varphi_3 = 0.0\pi$ 时,谐波强度比无相位时几乎增强了1个数量级,这显然非常有利于增强输出阿秒脉冲的强度。因此,谐波发射的最佳激光相位选择为 $\varphi_1 = 0.0\pi, \varphi_2 = 0.1\pi, \varphi_3 = 0.0\pi$ 。

图8a 和图8b 中给出了激光延迟时间(τ_{12}, τ_{13})对谐波光谱的影响。组合场相位为 $\varphi_1 = 0.0\pi, \varphi_2 = 0.1\pi, \varphi_3 = 0.0\pi$ 。为了方便说明,谐波强度从下到上依次乘以 $10^{-18}, 10^{-15}, 10^{-12}, 10^{-9}, 10^{-6}, 10^{-3}, 1$ 。从图中可知,谐波最大截止能量出现在零延迟附近,即 $-0.1\pi < \tau_{12}, \tau_{13} < 0.1\pi$ 。正负增大延迟时间都会使谐波截止能量趋于减小。图8c 中给出了3种最佳延迟时间下的谐波发射原始强度图,即 $\tau_{12} = 0.0\pi$ 和 $\tau_{13} = 0.0\pi; \tau_{12} = 0.1\pi$ 和 $\tau_{13} = 0.0\pi; \tau_{12} = 0.0\pi$ 和 $\tau_{13} = -0.1\pi$ 。从图中可知, τ_{13} 对增强谐波强度有一定作用,即当 $\tau_{12} = 0.0\pi, \tau_{13} = -0.1\pi$ 时,其谐波强度比无延迟时增强了大约0.5个数量级,并且形成了一个272eV的连续平台区。图8d 中给出了 $\tau_{12} = 0.0\pi, \tau_{13} = -0.1\pi$

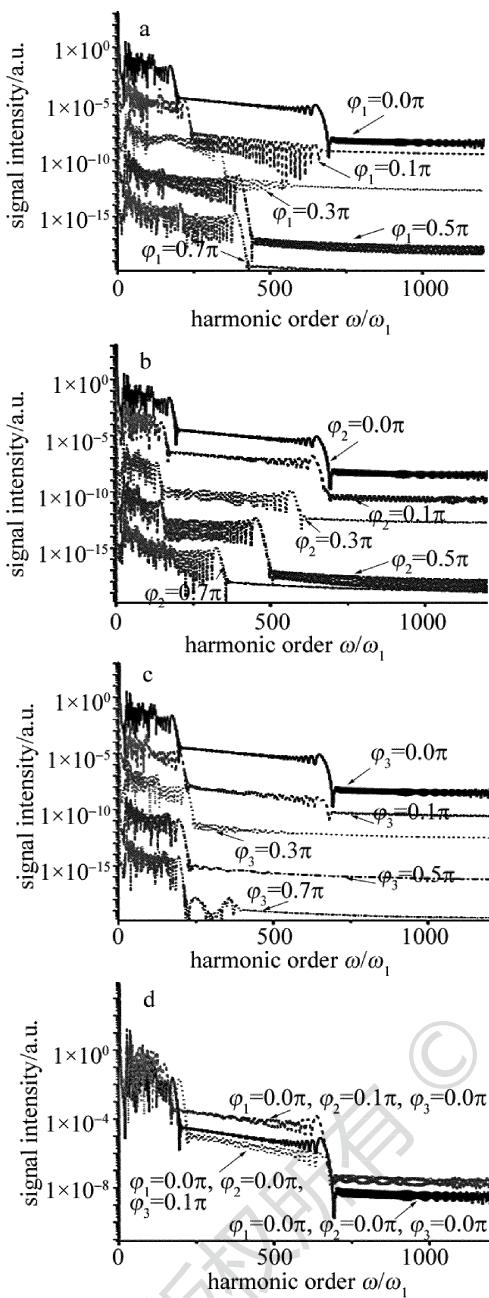


Fig. 7 Relationship between signal intensity and harmonic order ω/ω_1 driven by the three-color field (20fs/2000nm + 5fs/800nm + 20fs/1200nm)

a—with different φ_1 b—with different φ_2 c—with different φ_3
d—with different φ_1 , φ_2 and φ_3

时谐波发射的时频分析图。从图中可知,谐波发射有3个主要能量峰,其最大峰值与图8c中量子计算结果一致。并且其短量子路径对最大能量峰的贡献要明显大于长量子路径,这正是谐波谱平台区干涉较小的原因。

图9中给出了叠加最佳3色激光场谐波(见图8c点线)后的阿秒脉冲的时域包络曲线。例如,分别叠加210阶~320阶、320阶~430阶、430阶~540阶、540阶~650阶谐波后,可以得到4个持续时间为32as, 29as, 30as, 34as的单个阿秒X射线光源。

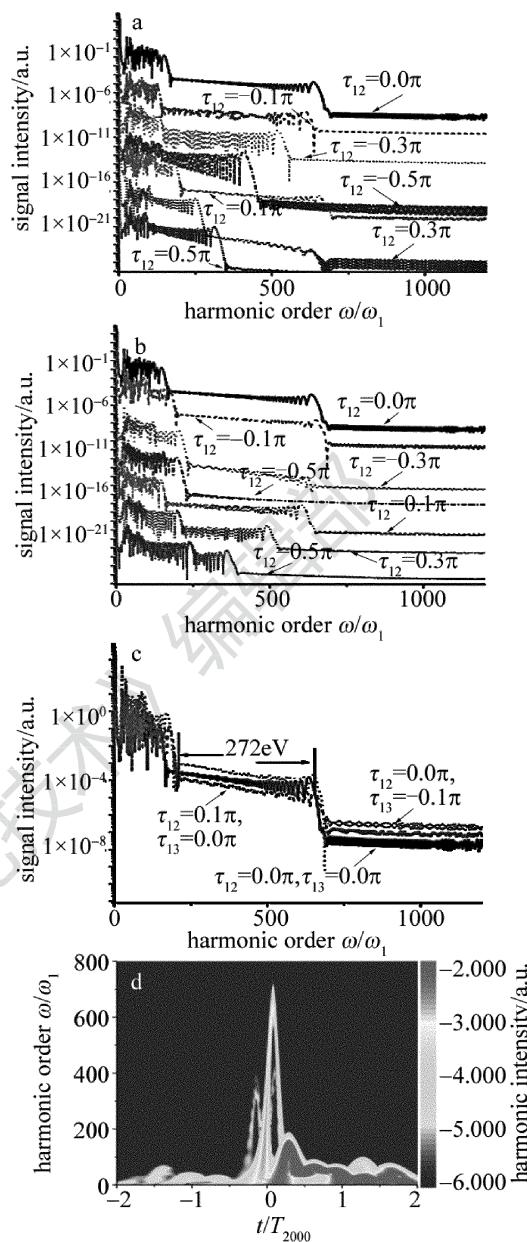


Fig. 8 Relationship between signal intensity and harmonic order ω/ω_1 driven by the three-color field (20fs/2000nm + 5fs/800nm + 20fs/1200nm)

a—with different τ_{12} b—with different τ_{13} c—with different τ_{12} and τ_{13} d—between harmonic order ω/ω_1 and t driven by three-color laser field(20fs/2000nm + 5fs/800nm + 20fs/1200nm)

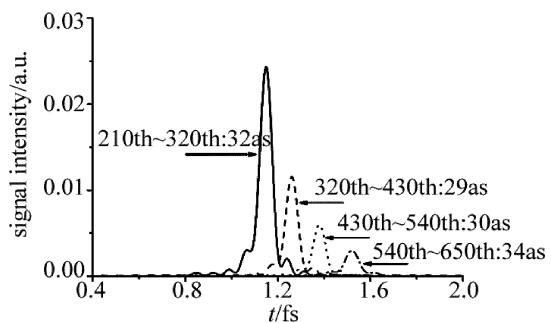


Fig. 9 Temporal profiles of attosecond pulses by superposing the optimal three-color field (20fs/2000nm + 5fs/800nm + 20fs/1200nm, $\varphi_2 = 0.1\pi$, $\tau_{12} = 0.0\pi$, $\tau_{13} = -0.1\pi$)

3 结 论

利用 Ne 原子为模型, 理论提出一种利用谐波截止能量与激光相位的对应关系来测量多周期中红外激光场相位的方法, 并且利用该方法对 20fs/800nm 和 20fs/2000nm 激光场进行了测量。随后利用 3 束中红外激光场来延伸谐波截止能量。计算结果表明, 适当选取 3 束激光场的延迟时间和相位角, 谐波发射的截止能量得到了有效的延伸, 形成了一个由单一量子路径贡献而成的 272eV 连续平台区。最后, 通过叠加谐波谱上的谐波, 可获得一系列脉宽为 34as 左右的阿秒 X 射线光源。

感谢大连化物所韩克利研究员所提供的计算程序。

参 考 文 献

- [1] DRESCHER M, HENTSCHE M, KIENBERGER R, et al. Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy [J]. *Nature*, 2002, 419 (6909) : 803-807.
- [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] HE F, RUIZ C, BECKER A. Control of electron excitation and localization in the dissociation of H_2^+ and its isotopes using two sequential ultrashort laser pulses[J]. *Physical Review Letters*, 2007, 99 (8) : 083002.
- [4] SANSONE G, KELKENSBERG F, PEREZ-TORRES J F, et al. Electron localization following attosecond molecular photoionization [J]. *Nature*, 2010, 465(7299) : 763-U3.
- [5] KLING M F, SIEDSCHLAG C, VERHOEF A J, et al. Control of electron localization in molecular dissociation[J]. *Science*, 2006, 312 (5771) : 246-248.
- [6] YUAN K J, BANDRAUK A D. Single circularly polarized attosecond pulse generation by intense few cycle elliptically polarized laser pulses and terahertz fields from molecular media[J]. *Physical Review Letters*, 2013, 110(2) : 023003.
- [7] GOUILIELMAKIS E, SCHULTZE M, HOFSTETTER M, et al. Single-cycle nonlinear optics[J]. *Science*, 2008, 320 (5883) : 1614-1617.
- [8] WANG C, LIU H L, TIAN J S, 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).
- [9] WANG C, KANG Y F, TIAN J S, et al. Analysis of phase dependence of the two single-attosecond-pulse generation techniques[J]. *Laser Technology*, 2012, 36(4) : 516-519 (in Chinese).
- [10] CORKUM P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization[J]. *Physical Review Letters*, 1993, 71 (13) : 1994-1997.
- [11] FENG L Q, CHU T S. High-order harmonics extension and isolated attosecond pulse generation in three-color field: Controlling factors [J]. *Physical Letters*, 2011, A375(41) : 3641-3648.
- [12] 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.
- [13] ZENG Z N, CHENG Y, SONG X H, et al. Generation of an extreme ultraviolet supercontinuum in a two-color laser field [J]. *Physical Review Letters*, 2007, 98(20) : 203901.
- [14] FENG L Q, CHU T S. Generation of an isolated sub-40-as pulse using two-color laser pulses; Combined chirp effects[J]. *Physical Review*, 2011, A84(5) : 053853.
- [15] FENG L Q, CHU T S. Nuclear signatures on the molecular harmonic emission and the attosecond pulse generation [J]. *The Journal of Chemical Physics*, 2012, 136(5) : 054102.
- [16] LI P C, ZHOU X X, WANG G L, et al. Isolated sub-30-as 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.
- [17] CHANG Z H. Chirp of the single attosecond pulse generated by a polarization gating[J]. *Physical Review*, 2005, A71(2) : 023813.
- [18] DU H C, HU B T. Broadband supercontinuum generation method combining mid-infrared chirped-pulse modulation and generalized polarization gating[J]. *Optics Express*, 2010, 18(25) : 25958-25966.
- [19] ZHANG Q B, LU P X, LAN P F, et al. Multi-cycle laser-driven broadband supercontinuum with a modulated polarization gating[J]. *Optics Express*, 2008, 16(13) : 9795-9803.
- [20] CHOU Y, LI P C, HO T S, et al. Optimal control of high-order harmonics for the generation of an isolated ultrashort attosecond pulse with two-color midinfrared laser fields[J]. *Physical Review*, 2015, A91(6) : 063408.
- [21] 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.
- [22] FENG L Q, LIU H. Generation of the ultrabroad bandwidth with keV by three-color low intense mid-infrared inhomogeneous pulse [J]. *Optics & Laser Technology*, 2016, 81 : 7-13.
- [23] 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.
- [24] FENG L Q, LIU H. Attosecond extreme ultraviolet generation in cluster by using spatially inhomogeneous field[J]. *Physics of Plasmas*, 2015, 22(1) : 013107.
- [25] FENG L Q, DUAN Y B, CHU T S. Harmonic extension and attosecond pulse generation by using the modified three-color chirped pulse[J]. *Annalen der Physik*, 2013, 525(12) : 915-920.
- [26] MIAO X Y, DU H N. Theoretical study of high-order-harmonic generation from asymmetric diatomic molecules[J]. *Physical Review*, 2013, A87(5) : 053404.
- [27] HU J, HAN K L, HE G Z. Correlation quantum dynamics between an electron and D_2^+ molecule with attosecond resolution[J]. *Physical Review Letters*, 2005, 95(12) : 123001.
- [28] 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.
- [29] FENG L Q, CHU T S. High-order harmonic generation spectra and isolated attosecond pulse generation with a two-color time delayed pulse[J]. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, 2012, 185(1/2) : 39-46.
- [30] ANTOINE P, PIRAX 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.
- [31] MAIREsse Y, BOHAN A D, FRASINSKI L J, et al. Attosecond synchronization of high-harmonic soft X-rays [J]. *Science*, 2003, 302(5650) : 1540-1543.