

文章编号: 1001-3806(2022)06-0823-06

固定光强下组合啁啾波形优化谐波光谱的研究

敬晓丹, 李 义, 冯立强

(辽宁工业大学 理学院, 锦州 121001)

摘要: 为了输出具有高转化效率和高光子能量的谐波光谱, 采用求解薛定谔方程的方法, 理论研究了多色组合啁啾波形对谐波光谱的影响。结果表明, 在固定激光强度下, 最佳三色啁啾波形可以有效延伸谐波截止能量; 最佳四色啁啾波形可以增强谐波强度; 选择最佳三色和四色组合波形下的谐波光谱进行谐波叠加可获得 42as 的孤立阿秒脉冲。这一结果对超短阿秒脉冲的产生是有帮助的。

关键词: 激光光学; 高次谐波; 组合啁啾波形; 阿秒脉冲

中图分类号: O562.4 **文献标志码:** A **doi:** 10.7510/jgjs.issn.1001-3806.2022.06.018

Optimization of harmonic spectra by combined chirp waveform under fixed laser intensity

JING Xiaodan, LI Yi, FENG Liqiang

(College of Science, Liaoning University of Technology, Jinzhou 121001, China)

Abstract: To produce the harmonic spectra with high conversion efficiency and high photon energy, the effect of the multi-color chirp waveform on the harmonic spectra was theoretically studied by solving the Schrödinger equation. The results show that, under the fixed laser intensity, the harmonic cutoff energy can be effectively extended by the best 3-color chirp waveform. The harmonic intensity can be enhanced by the best 4-color chirp waveform. Finally, the isolated attosecond pulses of 42as can be obtained by superposition of the harmonic spectrum of the best 3-color and 4-color combined waveforms. The results are helpful for the generation of ultra-short attosecond pulses.

Key words: laser optics; high-order harmonic generation; combined chirp waveforms; attosecond pulses

引 言

随着激光脉宽由皮秒缩短到阿秒量级, 人们发现了许多原子、分子物理中的超快动力学现象, 并对其进行了深入研究, 例如: 阈上电离^[1]、非次序双电离^[2]、高次谐波^[3]、库伦爆炸^[4]等。

高次谐波作为产生相干紫外光、X 射线光源以及阿秒脉冲的有效方法更是被广泛研究^[5-7]。自 1980 年以来, 世界上许多实验室都成功观测到了高次谐波光谱^[8-10]。总的来说, 高次谐波光谱具有如下共性的特点: (1) 谐波低能区会呈现单调下降的特点; (2) 谐波光谱呈现一个连续平台区; (3) 平台区的末端会呈现一个快速下降的截止能量区域。

高次谐波光谱的产生可由半经典的电离-加速-回碰模型来解释, 即简称三步模型理论^[11]。其中, 谐波光谱上最大辐射光子能量在 $E_{\text{cutoff}} = I_p + 3.17U_p$ 附近。这里, I_p 代表气体的电离能; U_p 代表电子的有质动力势能。想要获得输出强度大且光子能量高的阿秒脉冲, 需要满足谐波光谱具有较大的转化效率以及较大的辐射光子能量区域。根据三步模型理论^[11], 高强度激光场或者长波长激光场都可以延伸谐波光子能量。但是, 当激光光强超过某阈值时, 谐波强度反而会下降。同样, 谐波强度也会随着波长的增大而呈现指数级的减弱。因此, 经过二十几年的研究, 研究人员提出了非常经典且高效的多色组合场方法^[12-15]。在该方法下, 谐波截止能量和谐波强度都有所增大, 但其谐波截止能量始终是小于同等光强下单色激光场的情况。这是因为采用高频调控场时, 会使谐波强度增强, 但是高频率场会使组合场瞬时频率增大。因此, 导致谐波截止能量不如同光强下的单色激光场。

众所周知, 啁啾调频技术在调控激光瞬时频率方

基金项目: 辽宁省自然科学基金资助项目(2019-MS-167)

作者简介: 敬晓丹(1979-), 女, 硕士, 副教授, 主要从事强激光与物质相互作用方面的研究。

E-mail: strong_phys_lnut@163.com

收稿日期: 2021-09-26; 收到修改稿日期: 2021-10-15

面取得了成功,并且其广泛应用到高次谐波光谱的研究中^[16-18]。因此,为了解决多色组合场下高次谐波光谱的不足之处,本文作者在固定激光强度下,对多色啁啾组合波形优化谐波光谱进行了理论研究,结果发现,啁啾波形优化方法可以同时延伸谐波能量和谐波强度,并且在最佳波形下,可以获得脉宽为 42as 的孤立脉冲。

1 计算方法

本文中激光场 $E(t)$ 可以分为单色、双色、三色和四色激光场,其形式为:

$$E(t) = E_1 \exp \left[-4 \ln(2) \left(\frac{t}{\tau_1} \right)^2 \right] \cos(\omega_1 t + c_1 t^2) + E_2 \exp \left[-4 \ln(2) \left(\frac{t}{\tau_2} \right)^2 \right] \cos(\omega_2 t + c_2 t^2) + E_3 \exp \left[-4 \ln(2) \left(\frac{t}{\tau_3} \right)^2 \right] \cos(\omega_3 t + c_3 t^2) + E_4 \exp \left[-4 \ln(2) \left(\frac{t}{\tau_4} \right)^2 \right] \cos(\omega_4 t + c_4 t^2) \quad (1)$$

式中, t 表示时间。激光波形可以通过调控激光振幅 E_{1-4} 、激光频率 ω_{1-4} 、激光脉宽 τ_{1-4} 和啁啾参数 c_{1-4} 来实现。

本文中采用 1 维 He 原子为计算模型,其中势能函数 $V(x)$ 可以表示为: $V(x) = -\frac{1}{\sqrt{x^2+0.484}}$, x 表示电子坐标。当 He 原子在强激光场下时,其满足的外场下薛定谔方程可表示为^[19-20]:

$$i \frac{\partial \psi(x,t)}{\partial t} = \left[-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} + V(x) + xE(t) \right] \psi(x,t) \quad (2)$$

式中, $\psi(x,t)$ 为波函数。当最终波函数获得后,通过傅里叶变换可获得高次谐波光谱 $S(\omega)$:

$$S(\omega) = \left| \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int a(t) \exp(-i\omega t) dt \right|^2 \quad (3)$$

式中, $a(t) = -\langle \psi(x,t) | \frac{\partial V(x)}{\partial x} + E(t) | \psi(x,t) \rangle$ 表示偶极加速度。

若无其它说明,本文中计算采用原子单位(atomic units, a. u.), 高次谐波光谱强度采用任意单位(arbitrary units, arb. unit)。

2 结果与分析

本文中,激光波形的变换主要是通过改变啁啾参数而获得的。啁啾参数的数量级从 10^{-5} 一直计算到

10^{-3} , 经过高次谐波光谱的分析得到啁啾参数 10^{-4} 数量级时具有较好的谐波延伸效果。因此,各个啁啾参数计算范围选择为 $-5 \times 10^{-4} \text{ rad/s}^2 \sim 5 \times 10^{-4} \text{ rad/s}^2$ 。高次谐波光谱的优化主要以截止能量的最大值为参考条件,即当谐波截止能量最大时,对应的激光波形为最佳波形。经过大量计算,本文中得到了单色、双色、三色以及四色啁啾激光场下,谐波截止能量最大时的激光波形,如下文所讨论中的参数。

图 1 中给出了固定光强下多色啁啾组合场下高次谐波光谱图。激光总强度为 100 TW/cm^2 ; 组合激光强度平均分配; 激光场分别为 1600nm, 1200nm, 800nm 以及 400nm; 激光总时间都为各自波长的 10 个周期时间。最佳啁啾参数分别为: (1) 单色场 $c_1 = -0.6 \times 10^{-4} \text{ rad/s}^2$; (2) 双色场 $c_1 = -0.6 \times 10^{-4} \text{ rad/s}^2, c_2 = -1.1 \times 10^{-4} \text{ rad/s}^2$; (3) 三色场 $c_1 = -0.6 \times 10^{-4} \text{ rad/s}^2, c_2 = -1.1 \times 10^{-4} \text{ rad/s}^2, c_3 = -2.3 \times 10^{-4} \text{ rad/s}^2$; (4) 四色场 $c_1 = -0.6 \times 10^{-4} \text{ rad/s}^2, c_2 = -1.1 \times 10^{-4} \text{ rad/s}^2, c_3 = -2.3 \times 10^{-4} \text{ rad/s}^2, c_4 = -3.3 \times 10^{-4} \text{ rad/s}^2$ 。这里设 1600nm 无啁啾和最佳啁啾场情况为 case 0 和 case 1; 最佳双色、三色和四色啁啾场分别为 case 2、case 3 和 case 4。由图 1 可知,对于单色激光场,当啁啾参量引入后,谐波截止能量得到延伸,但是,谐波强度较弱。这一结果显然不符合获得高效率阿秒脉冲的条件。在双色啁啾波形优化下,谐波光谱的辐射能量和强度都有增大。在三色啁啾波形优化下,谐波光谱辐射能量和强度又进一步增大; 在四色啁啾调控下,谐波截止能量略小于三色啁啾场,但谐波光谱强度又可以增强 1 个数量级。因此,通过多色啁啾组合调控可知,三色啁啾场适合谐波截止能量延伸,而四色啁啾场适合谐波强度的增强。

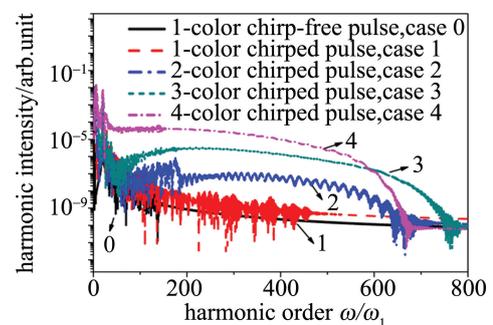


Fig. 1 High order harmonic spectra of different waveforms

图 2 和图 3 中给出了组合啁啾场对谐波发射的影响。首先,图 2 中给出了单色 1600nm 无啁啾和啁啾场下的谐波光谱时频分析图。根据三步模型理论可知,每半个波形可以产生一次谐波辐射过程。因此,对

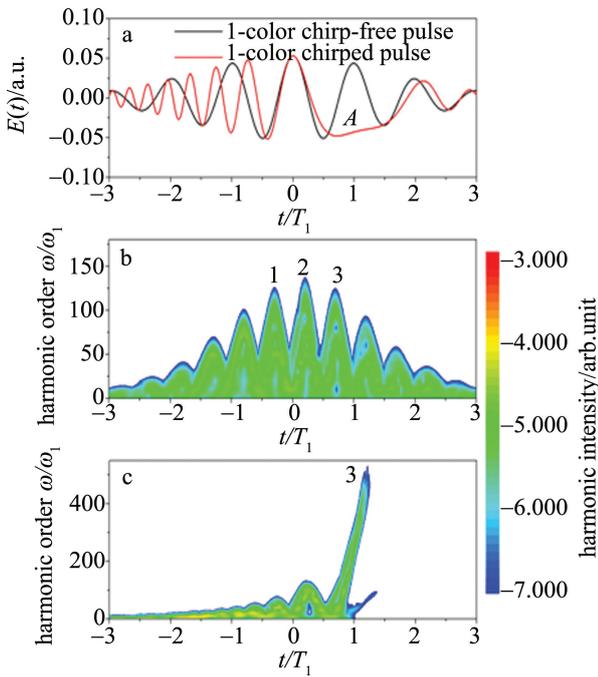


Fig. 2 a—laser profiles of 1-color chirp-free and chirped pulses b—time-frequency analyses of harmonic for 1-color chirp-free pulse c—time-frequency analyses of harmonic for 1-color chirped pulse

于无啁啾激光场情况,谐波辐射图中可以观测到与之对应的谐波发射能量峰,如图 2a 和图 2b 所示。这里标记中间区域能量峰标号为 1~3,如图 2b 所示。在啁啾参数引入后,激光下降区域的半波形被明显展宽,例如,激光半波形区域在 t 为 $0.25T_1 \sim 1.75T_1$ 区域 (T_1 表示 1600nm 激光场光学周期),如图 2a 所示。这里

设该半波形区域为 A 。可见,区域 A 比正常无啁啾调控下的激光半波形明显要宽很多。因此,电子在此区域加速时可以获得额外的动能,进而导致其与原子核碰撞后可以发射更高能量的光子(见图 2c)。这是谐波截止能量得到延伸的原因。

接下来看多色组合啁啾场的谐波发射过程。图 3a 和图 3b 中给出了双色啁啾场谐波辐射情况。如图所示,在双色啁啾调控下,不仅半波形激光振幅得到增大,而且 $t=0$ 附近激光振幅也可以得到增大,这导致 $t=0$ 附近的电离几率增大,且自由电子在区域 A 中可以获得更大的加速。因此,在谐波辐射时频分析图中可观测到能量峰 3 得到延伸并且其强度得到增加。这是双色啁啾场下,谐波光谱得到提升的原因。图 3c 和图 3d 中给出了三色啁啾场谐波辐射情况。由图可知,在三色啁啾调控下,半波形区域 A 的宽度和振幅强度与双色场相比又得到进一步增大,这导致能量峰 3 得到进一步延伸。同时, $t=0$ 附近的振幅也得到进一步增大,因此,能量峰 3 强度可以进一步增强。这是三色啁啾场下谐波截止能量和谐波强度得到进一步增大的原因。图 3e 和图 3f 中给出了四色啁啾场谐波辐射情况。分析激光波形可知,在四色啁啾场下,半波形 A 的宽度要比单色场宽,但是却比三色场略窄。因此导致能量峰 3 可以得到延伸,但其延伸范围却小于三色场情况。 $t=0$ 附近的振幅强度与三色场相比却有增强,这导致能量峰 3 的强度要比三色场下增强的更大。

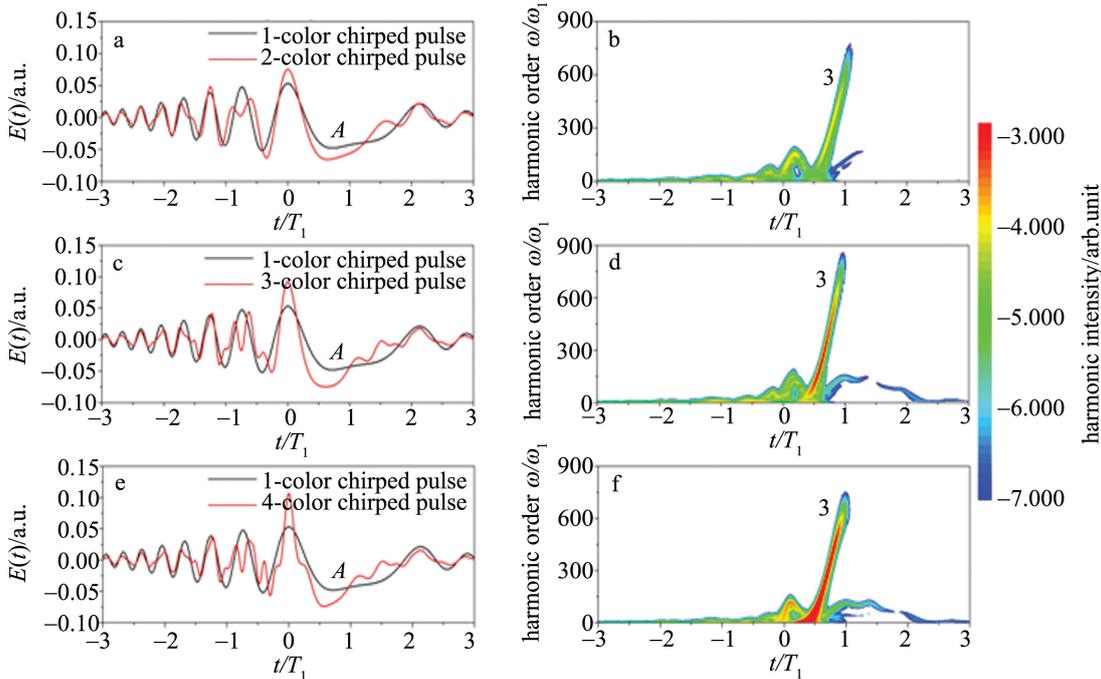


Fig. 3 Laser profiles and time-frequency analyses of harmonics for the cases a, b—2-color chirped pulse c, d—3-color chirped pulse e, f—4-color chirped pulse

这是四色场谐波强度持续增大的原因。

由上述分析可知,三色啁啾和四色啁啾都可以获得强度较高的 X 射线范围的谐波光谱平台区。具体来说,三色场谐波光谱平台区能量更大,而四色场谐波平台区强度更强。分析图 2c 和图 3f 可知,优化后的谐波光谱连续平台区只由单一能量峰的短量子路径组成,这可以有效避免谐波发射长短量子路径的干涉,也是获得孤立阿秒脉冲的有利条件。因此,在最佳三色啁啾波形下,通过叠加谐波光谱的 600 次~700 次谐波,1 个单独的 42as 的脉冲可以被产生,如图 4a 所示。在最佳四色啁啾波形下,通过得加谐波光谱的 500 次~600 次谐波,也可产生 1 个单独的 42as 的脉冲,如图 4b 所示。

为了研究人员更好地了解啁啾参数的选择,本文中 4 种激光场啁啾参数的选择做了简单解释。首先,根据图 2 和图 3 可知,谐波最大辐射能量峰 3 取决于半波形 A 的波形形状,也就是说半波形 A 的振幅强度和宽度(瞬时频率)可以调节能量峰 3 辐射光子的能量。观察图 5a、图 5c、图 6a 和图 6c 可知,当啁啾参数小于(蓝线)或者大于(红线)最佳啁啾参数(黑线)时,半波形 A 的宽度或者减小、或者在其间有反向波包的出现;又或者其振幅强度减弱。这些改变都将导致电子在加速时获得的能量减少,进而导致能量峰 3 辐射光子能量变小,如图 5b($c_1 = -1.0 \times 10^{-4} \text{rad/s}^2$)、

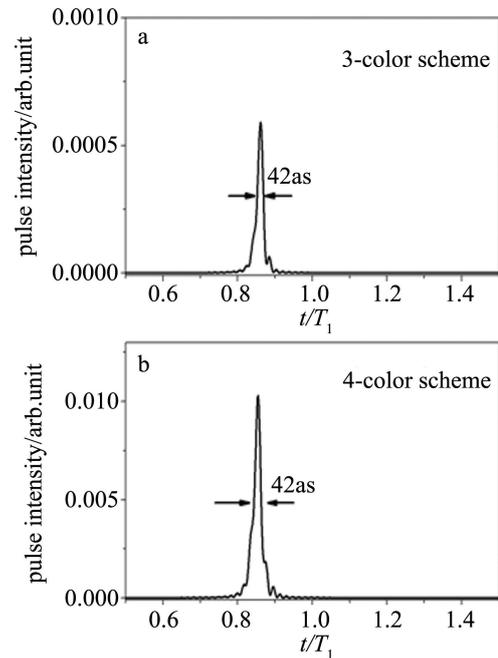


Fig. 4 Generations of attosecond pulses for the cases a—3-color chirped pulse b—4-color chirped pulse

图 5d($c_1 = -0.6 \times 10^{-4} \text{rad/s}^2, c_2 = -1.5 \times 10^{-4} \text{rad/s}^2$)、图 6b($c_1 = -0.6 \times 10^{-4} \text{rad/s}^2, c_2 = -1.1 \times 10^{-4} \text{rad/s}^2, c_3 = -3.0 \times 10^{-4} \text{rad/s}^2$)和图 6d($c_1 = -0.6 \times 10^{-4} \text{rad/s}^2, c_2 = -1.1 \times 10^{-4} \text{rad/s}^2, c_3 = -2.3 \times 10^{-4} \text{rad/s}^2, c_4 = -4.0 \times 10^{-4} \text{rad/s}^2$)所示。这就是本文中选择图 1 所描述参数作为最佳啁啾参数的原因。

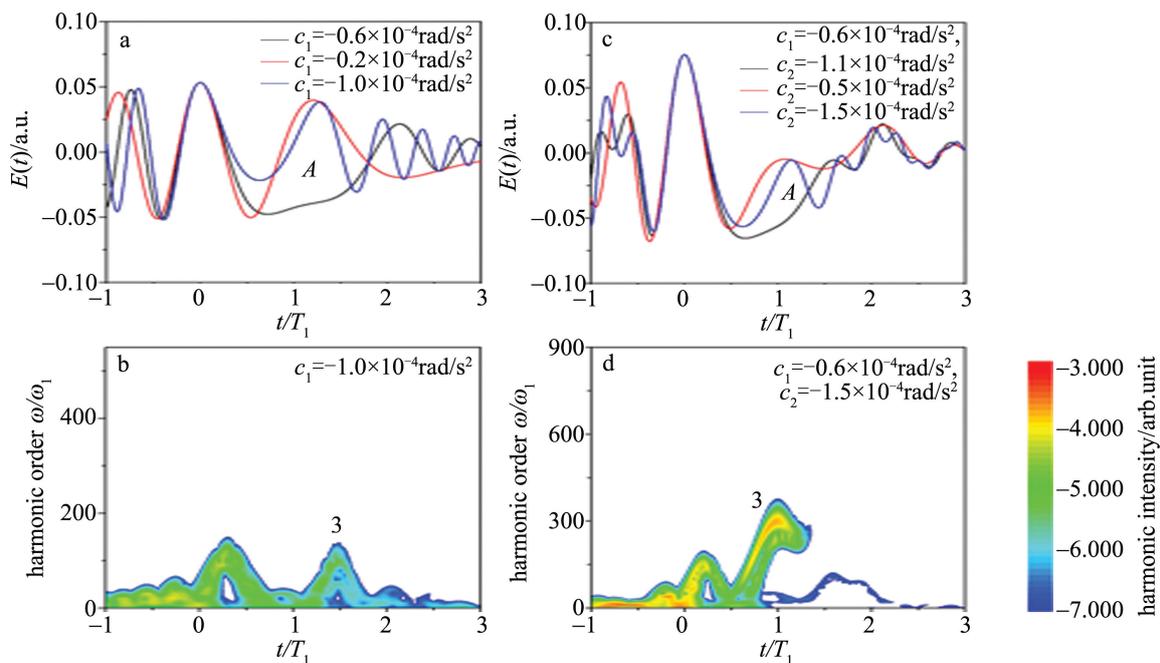


Fig. 5 Laser profiles and time-frequency analyses of harmonic for the cases a,b—1-color chirped pulse c,d—2-color chirped pulse

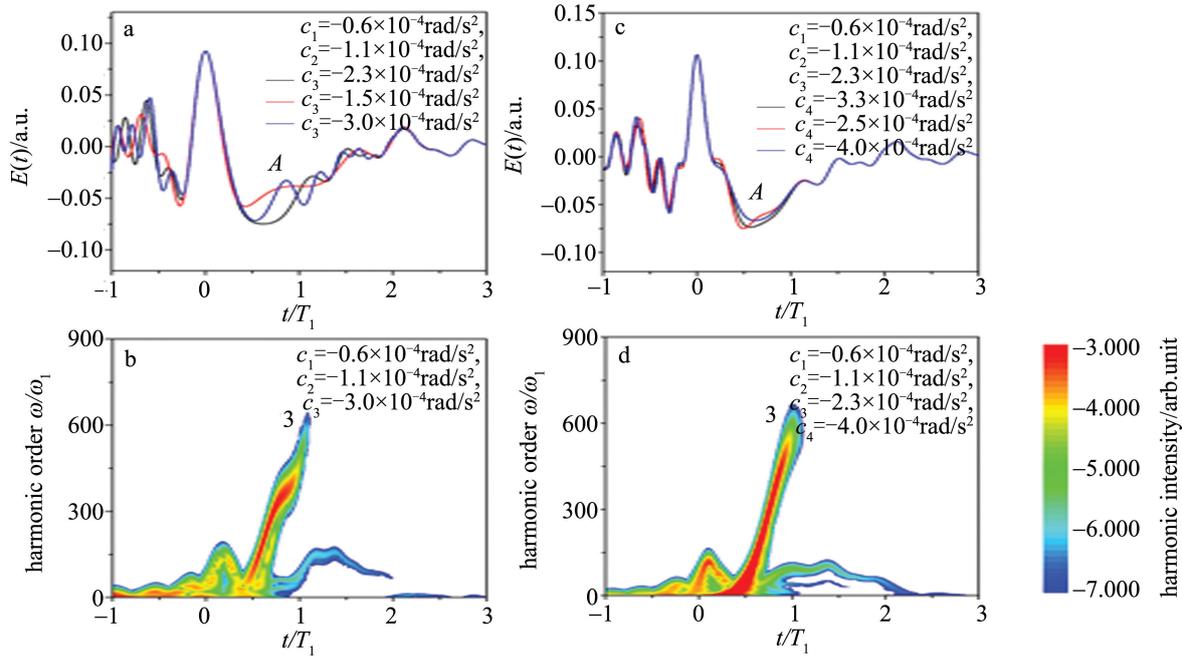


Fig. 6 Laser profiles and time-frequency analyses of harmonic for the cases
a, b—3-color chirped pulse c, d—4-color chirped pulse

3 结 论

本文中理论研究了在固定激光强度下,啁啾波形调控对谐波光谱的影响。结果发现,最佳三色和四色啁啾组合波形对谐波截止能量和谐波强度的增大起到明显的作用。具体来说,最佳三色啁啾波形下,谐波光谱具有辐射能量更大的连续谐波平台区。在最佳四色啁啾波形下,谐波光谱具有更强的辐射强度。最后,选择适合的谐波光谱平台区可以获得脉宽为 42as 的孤立脉冲。

参 考 文 献

[1] AGOSTINI P, FABRE F, MAINFRAY G, *et al.* Free-free transitions following six-photon ionization of xenon atoms [J]. *Physical Review Letters*, 1979, D42(17): 1127-1130.
[2] FITTINGHOFF D N, BOLTON P R, CHANG B, *et al.* Observation of nonsequential double ionization of helium with optical tunneling [J]. *Physical Review Letters*, 1992, 69(18): 2642-2645.
[3] XU C Y, FENG L Q, QIAO Y, *et al.* Pulse duration dependence of harmonic yield of H_2^+ and its isotopic molecule [J]. *The European Physical Journal*, 2020, D74(7): 139.
[4] FRASINSKI L J, CODLING K, HATHERLY P, *et al.* Femtosecond dynamics of multielectron dissociative ionization by use of a picosecond laser [J]. *Physical Review Letters*, 1987, 58(23): 2424-2427.
[5] LI L, ZHENG M, FENG R L Q, *et al.* Waveform control in generations of intense water window attosecond pulses via multi-color combined field [J]. *International Journal of Modern Physics*, 2019, B33(13): 1950130.
[6] LIU H, FENG L Q. Mid-infrared field phase measurement and a-

ttosecond pulse generation [J]. *Laser Technology*, 2017, 41(2): 151-158 (in Chinese).
[7] FENG L Q, LI Y, LIU H. High intensity attosecond pulse generation by the improved multi-cycle polarization gating technology [J]. *Laser Technology*, 2018, 42(4): 451-456 (in Chinese).
[8] L' HUILIER A, BALCOU P. High-order harmonic generation in rare gases with a 1ps 1053nm laser [J]. *Physical Review Letters*, 1993, 70(6): 774-777.
[9] LI Y, FENG L Q, QIAO Y. Selective enhancement of single-order and two-order harmonics from He atom via two-color and three-color laser fields [J]. *Chemical Physics*, 2019, 527(12): 110497.
[10] SANSONE G, BENEDETTI E, CALEGARI F, *et al.* Isolated single-cycle attosecond pulses [J]. *Science*, 2006, 314(5798): 443-446.
[11] CORKUM P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization [J]. *Physical Review Letters*, 1993, 71(13): 1994-1997.
[12] FENG L Q. Molecular harmonic extension and enhancement from H_2^+ ions in the presence of spatially inhomogeneous fields [J]. *Physical Review*, 2015, A92(5): 053832.
[13] YUAN Q, FENG L Q, LIU H. Half-cycle waveform control for generating ultra-wide harmonic spectral plateau [J]. *Laser Technology*, 2021, 45(4): 463-469 (in Chinese).
[14] LI Y, FENG R L Q, QIAO Y. Improvement of harmonic spectra from superposition of initial state driven by homogeneous and inhomogeneous combined field [J]. *Canadian Journal of Physics*, 2020, 98(1): 198-209.
[15] LI Y, FENG L Q. Improvement of harmonic cutoff energy and intensity by using chirped-UV combined field [J]. *Chinese Journal of Quantum Electronics*, 2019, 36(6): 738-744 (in Chinese).
[16] LIU H, LI Y, YAO Zh, *et al.* Chirp pulse control on harmonic cutoff and harmonic intensity [J]. *Laser Technology*, 2017, 41(5): 708-711 (in Chinese).
[17] FENG L Q, CHU T S. Generation of an isolated sub-40as pulse u-

- sing two-color laser pulses; Combined chirp effects [J]. *Physical Review*, 2011, A84(5): 053853.
- [18] FENG L Q, LI Y. Generation of attosecond pulses from He atom driven by UV-chirped laser beam [J]. *Laser Technology*, 2019, 43(5): 629-634 (in Chinese).
- [19] 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.
- [20] FENG L Q, McCAIN J, QIAO Y. Half-cycle waveform control for producing a broad and intense harmonic spectral continuum and an isolated attosecond pulse [J]. *Laser Physics*, 2021, 31(5): 055301.