

利用 43 飞秒的强激光脉冲实现单个阿秒 脉冲输出的新机理^{*}

曹 伟 兰鹏飞 陆培祥[†]

(激光技术国家重点实验室 武汉光电国家实验室 华中科技大学 武汉 430070)

(2006 年 7 月 28 日收到 2006 年 8 月 24 日收到修改稿)

研究了多个光周期的长脉冲(43 fs)激光与氦原子相互作用产生的高次谐波的辐射特性. 通过计算机数值模拟, 发现当激光场的强度超过饱和光强时, 原子将会在几个光周期内被迅速电离, 使得原子的高次谐波谱在截止区呈现出平滑的多平台结构. 同时, 在高频波段离子产生的高次谐波的影响将变得十分显著. 通过选取合适的子平台进行频率叠加, 在消除了离子的高次谐波的影响后, 可以获得单个的阿秒软 X 射线脉冲.

关键词: 高次谐波, 阿秒脉冲

PACC: 7220H, 4265K

1. 引 言

随着激光技术的飞速发展, 特别是超短超强激光在实验中的获得, 强光与物质相互作用已经进入了一个新的阶段. 一些高阶非线性物理过程如高次谐波、多光子电离、阈值上电离以及汤姆逊散射等越来越引起国内外研究者的兴趣. 高次谐波自 1987 由 McPherson 等人发现以来, 由于其广泛的应用前景, 近年已成为了研究的热门. 高次谐波的主要应用之一是获取相干 XUV 辐射源, 目前试验上获得的高次谐波谱最高已经可以展宽到 500 eV^[1,2], 结合准相位匹配技术, 已可以得到水窗波段的相干 X 射线光源^[3]. 高次谐波的另一个重要应用是产生阿秒脉冲. 阿秒脉冲特别是单个阿秒脉冲的产生一直是阿秒科学的首要问题, 它是研究原子尺度内微观动态过程及各种超快过程的有力工具^[4]. 目前阿秒脉冲的产生方法主要包括受激拉曼散射^[5]、汤姆逊散射^[4,6,7]以及高次谐波^[8]. 与其他方案相比, 高次谐波辐射谱由于呈现平台区以及平台区谐波有规律的等频率间隔分布的独特优点, 使它成为了突破阿秒界限的首选光源^[9]. 基于高次谐波的单个阿秒脉冲的获取主要有两种方案, 一是利用几个光周期的超短

脉冲驱动光^[10-12], 这是由于截止区的高次谐波在驱动光的峰值附近产生, 持续时间在半个光周期以内, 达到了阿秒量级. 二是利用偏振态随时间变化的驱动光^[13-15], 这一方案原理是高次谐波的产生敏感的依赖于驱动光的偏振态, 控制驱动光的偏振态可以产生阿秒量级的时间门.

通常情况下, 入射激光的峰值强度小于原子的饱和强度, 因此经隧道电离产生的自由电子在激光场中运动后将与原子核复合产生高次谐波, 这使得谐波的持续时间与基频入射光的光周期可比拟, 为飞秒尺度. 如果提高激光场的强度, 使其值强度达到饱和光强的水平, 原子内部的电子将会被激光场迅速电离, 因此自由电子经历激光场后与原子核复合的概率将大大降低, 谐波的辐射时间也会受到严重的限制. 这一机理在文献 [16] 曾被提及, 但该文用的是上升沿、平台区及下降沿均为两个光周期的矩形脉冲, 由于原子在脉冲上升沿已被完全电离, 这实质上等效于驱动光脉宽为两个光周期的超短脉冲情形. 实验条件还是相对苛刻的. 另外, 已有研究表明, 在高强度机理下, 离子产生的高次谐波强度已与原子产生的高次谐波强度相当^[17,18], 因此离子的谐波的影响将变得非常显著. 本文在此基础上数值模拟了接近实际脉冲形状的 \sin^2 包络脉冲强激光驱动

^{*} 教育部博士点基金(批准号 20040487023)及国家自然科学基金(批准号:10574050)资助的课题.

[†] 通讯作者. E-mail: lupeixiang@mail.hust.edu.cn

原子产生高次谐波的过程,计算中使用了多个光周期的长脉冲,同时考虑了离子的高次谐波的影响.研究表明在驱动光强度过饱和情形下,高次谐波谱呈现多平台特性.通过选取合适的子平台进行频率叠加,可以获得单个的阿秒脉冲,同时通过选频也消除了离子的高次谐波对结果的影响.这是一种利用长脉冲实现单个阿秒脉冲输出的新方法,且适用于目前常规的商业化激光系统(单脉冲能量大于 1 mJ,脉宽约为 50 fs),具有普遍的应用价值.

2. 计算模型

原子在激光场中运动的偶极子利用 Lewenstein 的三步模型计算^[19]:

$$\begin{aligned} x(t) = & i \int_0^{\infty} d\tau \left(\frac{\pi}{\varepsilon + i\tau/2} \right)^{3/2} d^*(p_{st}(t, \tau)) \\ & - A(t)) \alpha^*(t) \exp[-iS_{st}(t, \tau)] \\ & \times E(t - \tau) g d(p_{st}(t, \tau)) \\ & - A(t - \tau)) \alpha(t - \tau) + \text{c.c.}, \quad (1) \end{aligned}$$

其中 $E(t) = E_0 \sin^2(t\pi/T) \cos(\omega t + \varphi_0)$ 是驱动激光场,其中 E_0 为激光场的最大场强, ω 和 φ_0 分别为激光场的频率和载波相位, T 定义了激光场的脉宽,激光场的脉宽为 $(1 - 2 \frac{\sin^{-1}(1/2)^{1/4}}{\pi}) T$. $A(t)$ 为激光场矢势. $P_{st}(t, \tau) = \frac{1}{\tau} \int_{t-\tau}^t A(t'') dt''$ 和 $S(p_{st}, t, \tau) = I_p \tau - \frac{1}{2} P_{st}^2(t, \tau) \tau + \frac{1}{2} \int_{t-\tau}^t A^2(t'') dt''$ 分别代表正则动量和经典作用量. I_p 为原子的电离能, $d(P) = i \frac{2^{7/2}}{\pi} \alpha^{5/4} \frac{P}{(P^2 + \alpha)}$ 代表类氢原子的偶极子矩阵元. 其中 $\alpha = 2I_p$.

(1) 式中,原子的基态振幅

$$\alpha(t) = \exp\left[-\int_{-\infty}^t w(t') dt'\right],$$

其中 $w(t')$ 为电离概率,它可以根据 A-D-K 模型导出^[20]

$$w(t) = w_p |C_n^*|^2 G_{lm} \left(\frac{4w_p}{w_l} \right)^{2n^* - m - 1} \exp\left(-\frac{4w_p}{3w_l}\right), \quad (2)$$

式中, $w_p = \frac{I_p}{h}$, $w_l = \frac{e |E(t)|}{\sqrt{2m_e I_p}}$, $n^* = \left(\frac{I_{ph}}{I_p}\right)^{1/2}$,

$$G_{lm} = \frac{(2l+1)!(l+|m|)!(2^{-l|m|})}{|m|!(l-|m|)!},$$

$$|C_n^*|^2 = \frac{2^{2n^*}}{n^* I(n^* + l^* + 1) I(n^* - l^*)'}$$

其中 I_{ph} 为氢原子的电离能, l 和 m 分别为角量子数和磁量子数. e 和 m_e 是电子的电荷和质量. 有效量子数 l^* 由以下规则给出: 当 $l = n$ 时, $l^* = 0$; 其他条件下, $l^* = n^* - 1$. 本文计算运用的是原子单位制,即 $\hbar = e = m_e = 1$. 高次谐波谱可以通过对偶极子加速度进行傅里叶变换获得.

3. 结果及分析

目前本实验室的激光系统为美国光谱物理公司生产的 45 fs/800 nm/2 mJ 钛宝石飞秒激光器. 计算中参数的选取以实验室的实验条件为基础. 驱动激光场的中心波长为 800 nm, 脉宽为 43 fs (16 个光周期), 介质为氖气, 其饱和光强约为 1×10^{15} W/cm². 通常在驱动光强度低于饱和光强的情况下, 原子的高次谐波谱呈现出典型的平台特性, 图 1(a) 是峰值强度为 3×10^{14} W/m² 的激光脉冲驱动氖原子产生的高次谐波辐射谱. 谐波谱的截止区由截止定则

$$\hbar\omega_{\max} = I_p + 3.17U_p \quad (3)$$

决定. 其中 ω_{\max} 为截止频率, $U_p = \frac{E_0^2}{4\omega^2}$ 为激光场的有质动能. 图 1(b) 是截止区 (50 ω —70 ω) 高次谐波的辐射时间谱, 由于截止区发生在激光场的峰值附近, 根据 Corkum 的半经典模型^[21] 可知, 高次谐波主要由短电子轨道所贡献. 经典电子轨道的发生周期为半个激光场的振荡周期, 因此辐射是间隔为半个光周期的阿秒脉冲链.

如果进一步提高驱动激光场的强度, 使其超过氖原子的饱和光强, 氖原子将在几个光周期内被迅速电离. 考虑到基态的急速损耗, 高次谐波谱将会受到调制. 图 2 是驱动激光峰值强度为 $I = 6 \times 10^{15}$ W/cm² 时得到的谐波谱. 在此条件下, 由于激光场达到峰值强度以前原子就已被完全电离, 亦即原子所能经历的激光场的最大值小于激光场的峰值, 因此截止区的位置已经不遵循方程(3)的截止定则. 同时, 截止区呈现出平滑的多平台结构, 这是有利于单个超短脉冲产生的. 图 2(b) 是选取其中的单个子平台 (147 ω —163 ω) 进行频率叠加后得到的辐射时间谱, 从图中可以看出, 辐射信号为一个双峰结构, 由于第二个峰的强度比第一个峰低了一到二个量级, 辐射信号可以看作是单个脉冲, 脉冲宽度为

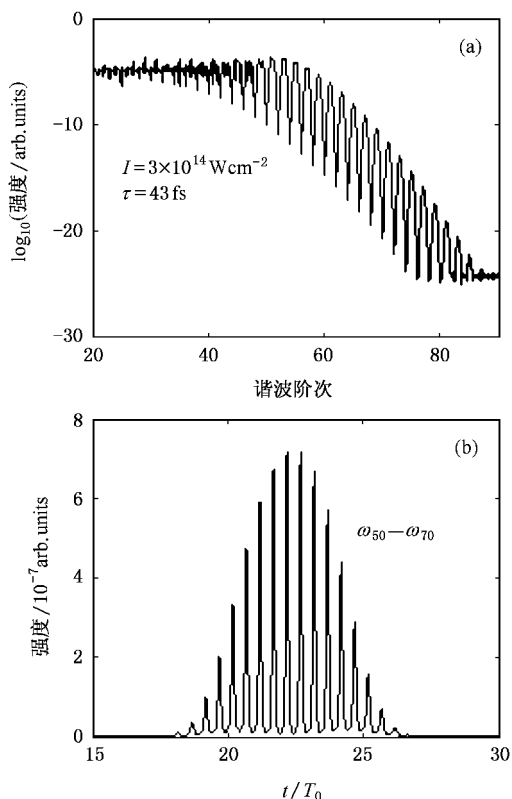


图 1 (a) 氖原子在普通强度脉冲激光驱动下得到的高次谐波谱, 激光强度 $I = 3 \times 10^{14} \text{ W/m}^2$ (b) 截止区 (50 ω —70 ω) 进行频率叠加后得到的辐射时间谱

210 as.

图 3 是过饱和光强条件下的原子和离子的概率幅。可以看出, 氖原子以 $T_0/2$ 为周期被迅速电离, 大约在 $12T_0$ 处已被完全电离, 而氖离子由于电离能较高, 所以能经历更高强度的激光场。根据 Corkum 的三步模型, 高次谐波的产生效率由电离, 加速, 复合三个过程的概率幅度决定, 其中复合过程是最重要的因素。由于在高强度机理下, 氖原子基态概率幅经历了周期性的急剧衰减, 因此在电子与原子核的复合放出高次谐波光子的过程中, 谐波的辐射强度也将周期性地衰减, 这对应于图 2(a) 中谐波谱的多平台结构。根据经典的电子轨道理论, 截止区的高次谐波信号是间隔为 $T_0/2$ 的脉冲链, 但是由于基态波函数随着时间的增长而急剧衰减, 后来的子脉冲的强度较第一个而言要弱得多, 因此出现了图 2(b) 中的单峰。其中每个子平台的宽度表征了氖原子基态在半个光周期内维持一定的电离水平时驱动激光场所经历的幅度变化, 而它们的平滑结构是由于激光场的非绝热效应以及原子的基态损耗引起

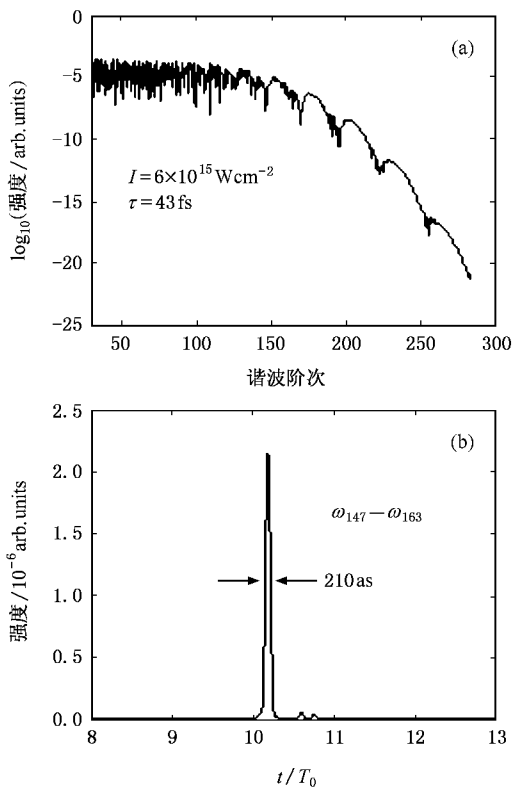


图 2 (a) 氖原子在超高强度脉冲激光驱动下得到的高次谐波谱, 激光强度 $I = 6 \times 10^{15} \text{ W/m}^2$ (b) 截止区第一个子平台 (147 ω —163 ω) 进行频率叠加后得到的辐射时间谱

的。如果进一步提高激光场的强度, 可以使子平台得到进一步展宽, 这将更利于单个阿秒脉冲的产生。

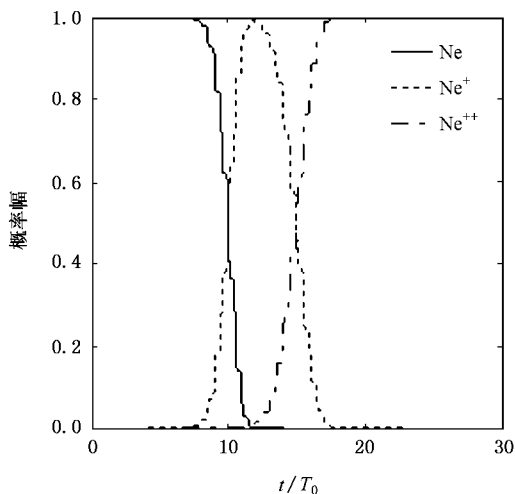


图 3 过饱和光强条件下氖原子及氖离子的概率幅随时间的关系曲线 (脉冲激光参数与图 2 相同。实线代表氖原子, 点线和虚线分别代表一价氖离子和二价氖离子)

如果对图 2(a) 中后面的子平台 ($> 160 \omega$) 进行频率叠加, 同样能得到单个的阿秒脉冲。我们不选

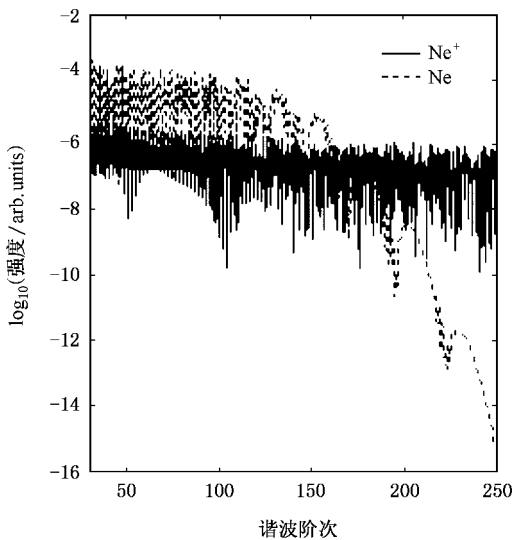


图 4 氖原子(虚线)及一价氖离子(实线)在超高强度脉冲激光驱动下得到的高次谐波谱(驱动激光的参数与图 2 相同)

取它们一方面是由于得到的脉冲强度低于第一个子平台,另一方面是考虑到离子高次谐波信号的影响。对一般光强而言,原子的高次谐波强度比对应的离子的高次谐波强度高出好几个量级,因此离子的影响可以忽略,但当入射激光强度超过饱和光强时,离子的高次谐波信号在高频波段会变得十分显

著^[17,18]。图 4 是一价氖离子与氖原子的高次谐波谱的比较,可以看出,当频率低于 160ω 时,原子的高次谐波强度比离子大约强了两个数量级,离子的影响是可以忽略的。因此离子的高次谐波谱不影响图 2(b)中得到的结果。但是当频率高于 160ω 时,氖离子的高次谐波信号已经占了主导地位,这时已经无法利用原子的高次谐波实现单个阿秒脉冲的输出。我们同时研究了脉宽为 2 个光周期的超短脉冲情形,得到的结果与文献 16 非常相似,这也说明了文献 16 中所用到的梯形脉冲实质上等效于脉宽为 5.3 fs 的超短脉冲情形。

4. 结 论

本文研究了高电离机理下利用 43 fs 的多光周期驱动激光产生高次谐波过程。计算结果表明当入射激光强度超过原子的饱和光强时,原子将被迅速电离,得到的高次谐波谱在截止区将出现平滑的多平台结构。选取合适的子平台来消除离子的谐波谱所带来的影响,通过频率叠加可以得到单个阿秒软 X 射线脉冲。这是一种利用现有的常规飞秒激光器(脉宽约为 50 fs)实现单个阿秒脉冲输出的简单新方案,具有较大的应用价值。

- [1] Chang Z H, Rundquist A, Wang H W, Murnane M M, Kapteyn H C 2001 *Phys. Rev. Lett.* **79** 2967
- [2] Schnurer M, Spielmann C, Wobrauschek P, Strelci C, Burnett N H, Ferencz K, Koppitsch R, Cheng Z, Brabec T, Krausz F 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 3236
- [3] Spielmann C, Burnett N H, Sartania S, Koppitsch R, Schnurer M, Kan C, Lenzner M, Wobrauschek P, Krausz F 1997 *Science* **278** 661
- [4] Lan P F, Lu P X, Cao W, Wang X L 2005 *Phys. Rev. E* **72** 066501
- [5] Kaplan A K 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 1243
- [6] Lan P F, Lu P X, Cao W, Wang X L 2006 *Phys. Plasmas* **13** 013106
- [7] Zheng J, Sheng Z M, Zhang J, Wei Z Y, Yu W 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 1018 (in Chinese) 郑君、盛政明、张杰、魏志义、余玮 2005 物理学报 **54** 1018
Zheng J, Sheng Z M, Zhang J 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 2638 (in Chinese) 郑君、盛政明、张杰 2005 物理学报 **54** 2638
- [8] Zeng Z N, Li R X, Xie X H, Xu Z Z 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2316 (in Chinese) 曾志男、李儒新、谢新华、徐至展 2004 物理学报 **53** 2316

- [9] Antoine P, L'Huillier A, Lewenstein M 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 123
- [10] Kienberger R, Goulielmakis E, Uiberacker M, Baltuska A, Yakovlev V, Bammer F, Scrinzi A, Westerwalbesloh T, Kleineberg U, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2004 *Nature* **427** 817
- [11] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, Reider G A, Milosevic N, Brabec T, Corkum P, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2001 *Nature* **414** 509
- [12] Kien F L, Midorikawa K, Suda A 1998 *Phys. Rev. A* **58** 3311
- [13] Corkum P B, Burnett N H, Ivanov M Y 1994 *Opt. Lett.* **19** 1870
- [14] Ivanov M Y, Corkum P B, Zuo T, Bandrauk A 1995 *Phys. Rev. Lett.* **74** 2933
- [15] Chang Z H 2004 *Phys. Rev. A* **70** 043802
- [16] Lappas D G, L'Huillier A 1998 *Phys. Rev. A* **58** 4140
- [17] Gibson E A, Paul A, Wagner N, Tobey R, Sterling B, Christov I P, Murnane M M, Kapteyn H C 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 033001
- [18] Carrera J J, Chu S, Tong X M 2005 *Phys. Rev. A* **71** 063813
- [19] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, L'Huillier A, Corkum P B 1994 *Phys. Rev. A* **49** 2117
- [20] Ammesov M V, Delone N B, Krainov V P 1986 *Sov. Phys. JETP* **64** 1191
- [21] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994

Proposal for single attosecond pulse production with a 43-fs super intense laser pulse^{*}

Cao Wei Lan Peng-Fei Lu Pei-Xiang[†]

(*State Key Laboratory of Laser Technology and Wuhan National Laboratory for Optoelectronics , Huazhong University of Science and Technology , Wuhan 430070 , China*)

(Received 28 July 2006 ; revised manuscript received 24 August 2006)

Abstract

High harmonics generation (HHG) from Ne atom driven by a multi-cycle 43 fs laser pulse is investigated. The numerical simulation demonstrates that when the intensity of the driving laser is over-saturated , the atom will be ionized rapidly during a few optical cycles , this will lead to a continuous multi-plateau structure in the cutoff region of the high harmonics spectrum from the neutral atom. It is also shown that the signal of high-order harmonics from the ion becomes remarkable when the driving laser is super intense. The superposition of an appropriate sub-plateau can give single attosecond soft X-ray pulse , and the effect of HHG from ion has been eliminated through the band selection.

Keywords : high harmonic generation , attosecond pulse

PACC : 7220H , 4265K

^{*} Project supported by the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education (Grant No. 20040487023) and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10574050).

[†] E-mail : lupeixiang@mail.hust.edu.cn