

# 利用低频场控制轨道直接产生低于 50 阿秒 的单个脉冲\*

洪伟毅 杨振宇 兰鹏飞 陆培祥†

(武汉光电国家实验室 华中科技大学 武汉 430074)

(2007 年 9 月 7 日收到 2008 年 1 月 23 日收到修改稿)

提出一种直接得到脉宽小于 50 as 的单个脉冲的新方法. 利用波长为 800 nm 脉宽为 5 fs 的超短脉冲叠加上波长为 10  $\mu\text{m}$  强度为超短脉冲强度的 10% 且脉宽足够长的低频场脉冲驱动氢原子, 谐波谱可以拓展到  $I_p + 8.2 U_p$ , 同时, 高于  $4.2 U_p$  的谐波几乎是连续的. 如果继续调节超短脉冲的载波包络相位, 超连续谱可以继续拓宽, 从而可以得到低于 50 as 的单个脉冲.

关键词: 阿秒脉冲, 超连续谱

PACC: 7220H, 4265K, 3000

## 1. 引 言

阿秒 (as) 脉冲的产生对于超快科学的发展具有非重要的意义. 正如同飞秒 (fs) 脉冲可以用于观测原子、分子尺度的运动过程一样, 单个阿秒脉冲可以用于观察和控制原子内部电子的动力学行为, 比如内壳层电子的弛豫和隧道电离过程等等. 由于高次谐波具有覆盖了从红外到极紫外甚至软 X 射线的谱宽, 于是很快便成为了突破飞秒极限, 实现阿秒脉冲产生的首选方案<sup>[1-4]</sup>. 高次谐波谱具有非常典型的结构: 首先是谐波的强度随着谐波次数的提高迅速减弱, 接着出现一个平台区, 平台区内的谐波强度几乎不随谐波次数的变化而变化, 最后突然截止. 高次谐波的辐射过程可以用 Corkum 提出的经典“三步模型”<sup>[5]</sup>来理解: 基态的电子通过多光子电离或者隧道电离进入到连续态, 连续态的电子在激光场的作用下运动并获得能量. 其中一部分电子在激光场的驱动下又返回原子核附近并回到基态, 同时辐射出高能光子截止频率为  $I_p + 3.17 U_p$ , 其中  $I_p$  为电离能,  $U_p = E^2/4\omega^2$  为激光场的有质动力能. 在激光场的每半个光周期内, 这个过程都将重复一次, 因此一般情况下得到的谐波都是阿秒脉冲链的形式. 从实

际应用的角度而言, 要将阿秒链用于探测是十分困难的, 因此如何产生单个的阿秒脉冲就成为研究的焦点.

Christov 等人发现<sup>[6]</sup>, 如果驱动光的脉冲宽度非常短, 只有几个光周期, 那么谐波的相干性可以很大的提高, 在截止区附近会出现连续谱, 从而实现单个阿秒脉冲的产生. 这个想法由 Hentschel 等人在实验上完成<sup>[1]</sup>, 他们利用 7 fs 的超短脉冲激光驱动原子得到了脉宽为 650 as 的单个阿秒脉冲输出. Corkum 等人提出另外一种方法<sup>[7]</sup>, 采用偏振态随时间变化的驱动光, 在一个很小的时间段 (阿秒量级) 当中几乎为线偏振, 其余为圆偏振, 由于高次谐波的效率在驱动光为线偏振时最大并随着驱动光偏振态椭圆率的增大而急剧下降, 于是, 高次谐波几乎只在驱动光接近线偏振部分所形成的偏振态门当中辐射, 从而得到单个的阿秒脉冲. 这种方法在实验上已有报道<sup>[8-10]</sup>. 许多研究人员还从理论上提出利用长的驱动脉冲产生单个阿秒的方案<sup>[11, 12]</sup>. 然而, 上述方案得到的连续谱谱宽都很难达到 20 eV, 也就是说最短的脉宽很难低于 250 as, 而原子内部电子运动的时间尺度大都低于这个值, 因此如何产生更短的单个阿秒脉冲就成为研究者关注的问题. Sanson 等人将这种偏振态门技术用在几个光周期的脉冲上<sup>[13]</sup>, 同时

\* 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.

† 通讯联系人, E-mail: lupeixiang@mail.hust.edu.cn

通过啁啾补偿技术,得到脉宽为 130 as 接近单个光周期的单个脉冲.要获得窄脉宽的单个脉冲,连续谱的谱宽是一个最重要的参数.最近有人提出利用双色场可以得到宽带超连续谱<sup>[14,15]</sup>,这样可以直接得到脉宽低于 100 as 的单个脉冲.

本文提出一种直接得到脉宽小于 50 as 的单个脉冲的新方法.利用波长为 800 nm 脉宽为 5 fs 的超短脉冲加上波长为 10  $\mu\text{m}$ ,强度为超短脉冲强度的 10%且脉宽足够长的低频场脉冲驱动氢原子,谐波谱可以拓展到  $I_p + 8.2U_p$ ,同时,高于  $4.2U_p$  的谐波几乎是连续的,这里,  $I_p$  为原子的电离能,  $U_p = E_0^2/(4\omega^2)$  为有质动力能,其中  $E_0, \omega$  分别为超短脉冲的峰值电场强度和频率.如果继续调节超短脉冲的载波包络相位,则超连续谱可以进一步被拓宽.对这些谐波进行叠加,则可以直接得到脉宽小于 50 as 的单个脉冲.

## 2. 理论模型

对于单原子与外场的相互作用,采用原子单位 (a. u.) 以及单电子近似,一维含时薛定谔方程可以表示为

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

其中,库仑势  $V(x)$  采用软核势模型来描述<sup>[16]</sup>:

$$V(x) = -\frac{1}{\sqrt{\epsilon + x^2}}. \quad (2)$$

通过调节软核参数  $\epsilon$  可以调节势场深度和基态能量.本文选取  $\epsilon = 0.471$ ,通过求解薛定谔方程的定态解可以得到此时的基态能量为  $-24.6$  eV,近似等于氢的基态能量.飞秒脉冲与同一偏振方向的低频场所组成的复合场可以表示为

$$E(t) = f(t) [E_0 \cos(\omega t + \varphi_{\text{CEP}}) + E_1 \cos[\omega_1(t - \tau)]], \quad (3)$$

其中  $E_0, \omega$  和  $\varphi_{\text{CEP}}$  分别为超短脉冲的振幅、频率和载波包络相位,  $E_1, \omega_1$  和  $\tau$  分别为低频场的强度、频率和它与超短脉冲的相对延迟,  $f(t) = \sin^2(\pi t/T)$  为飞秒脉冲的包络.以基态波函数为初始条件,通过分裂算符和谱方法<sup>[17]</sup>求解方程(1),可以得到任意时刻的波函数  $\psi(x, t)$ ,即波函数随时间的演化.根据艾伦费斯特定理<sup>[18]</sup>,可以求得偶极子加速度为

$$a(t) = -\psi(x, t) | \partial V(x) / \partial x - E(t) | \psi(x, t). \quad (4)$$

然后再对  $a(t)$  进行傅里叶变换便可以得到相应的谐波谱强度分布

$$S_q(\omega) : \left| \int a(t) e^{iq\omega t} dt \right|^2. \quad (5)$$

对数次谐波进行叠加,就可以得到阿秒脉冲的时域包络

$$I(t) = \left| \sum_q a_q e^{iq\omega t} \right|^2. \quad (6)$$

## 3. 结果和讨论

图 1(a) 和 (b) 分别给出了我们的方案中电场强度示意图以及谐波谱.在我们的计算中,飞秒脉冲的强度为  $I = 6 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, 波长为 800 nm, 脉冲宽度为 5 fs,  $\varphi_{\text{CEP}} = 0$ , 对应的有质动力势  $U_p = E_0^2/(4\omega^2)$  为 36 eV. 低频场的强度为  $I = 6 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>, 波长为 10  $\mu\text{m}$ ,  $\tau = 0$ . 如图 1(a) 所示, 由于低频场的波长远大于飞秒脉冲的波长, 在飞秒脉冲的每个光周期内

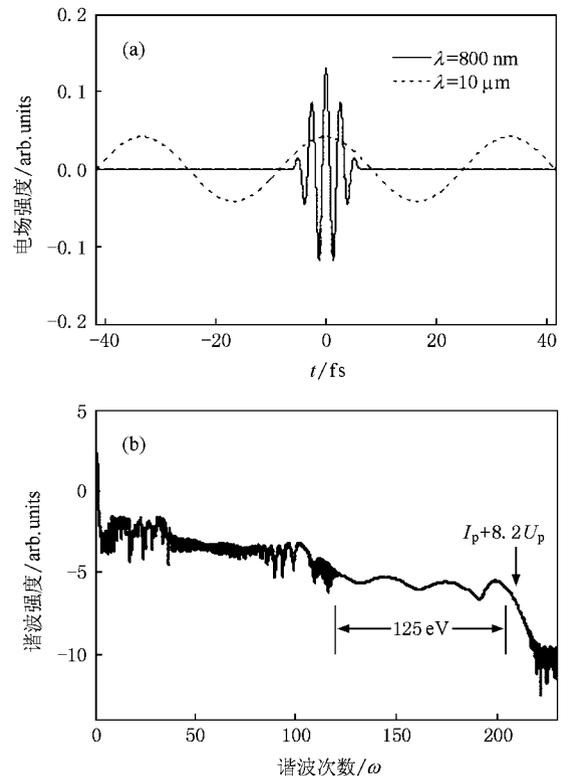


图 1 (a) 电场强度示意图和 (b) 氢原子的高次谐波谱 (计算中所用飞秒脉冲的强度为  $I = 6 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, 波长为 800 nm, 脉冲宽度为 5 fs,  $\varphi_{\text{CEP}} = 0$ , 低频场的强度为  $I = 6 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>, 波长为 10  $\mu\text{m}$ ,  $\tau = 0$ )

低频场几乎可以看成静电场,因此低频场对有质动力势没有贡献.同时在这里我们认为低频场的脉冲宽度足够长,因此在计算中将低频场看成平面波.从图 1(b)可以看出,谐波谱的截止区大约在 205 次谐波处,对应的光子能量为  $I_p + 8.2U_p$ .次数较低的谐波是不规则的,然而,让人惊讶的是,谐波谱从 115 次谐波(对应的光子能量为  $I_p + 4.2U_p$ )一直到截止区几乎都是连续的,这就意味着超连续谱的宽度达到 140 eV,在时域上对应的傅里叶极限脉宽宽度大约为 30 as.

按照 Corkum 等人的三步模型,谐波产生的过程是电子在外场中电离、加速并复合到原子核的过程,因此外场对谐波辐射有决定性的影响.在我们的方案中,超连续谱的出现是低频场对电子的电离时间、复合时间以及复合时的能量的调制造成的.图 2 给出了利用三步模型计算得到的谐波经典轨道.首先看一下在 5 fs 脉冲单独作用下的情况.图 2(a)为电场示意图,从图中可以看出,电场大概只包含两个光周期,电子主要是在电场的三个峰值附近电离(标记为  $P_1$ ,  $P_2$  和  $P_3$ ).图 2(b)为在 5 fs 脉冲单独作用下谐

波的经典轨道图, $\cdot$ 和  $\times$  分别表示电子的电离时间和复合时间,在每个光周期内,除截止区以外每次谐波都对应两个电离时间和复合时间,先电离后复合的称为长轨道,后电离先复合的称为短轨道.从图中可看出电子复合时的动能同样存在三个峰值,分别于图 2(a)中的三个峰值对应(我们同样标记为  $P_1$ ,  $P_2$  和  $P_3$ ), $P_1$ ,  $P_2$  和  $P_3$  的最大值分别为  $2.71U_p$ ,  $3.17U_p$  和  $2.52U_p$ .因此,对于光子能量高于  $I_p + 2.71U_p$  的谐波,全部来自于  $P_2$  的贡献.利用滤波的方法可以这部分谐波选出,在时域上得到单个的阿秒脉冲.但是我们注意到,这部分谐波的谱宽仅仅约为 15 eV,对应的最小脉宽大约为 270 as.接着再看在 5 fs 脉冲和低频场共同作用下的情况.如图 2(c)和 (d)所示,电子并不是在飞秒脉冲的电场峰值处电离,而是分别在  $-0.8T$  到  $-0.4T$  以及  $0.2T$  到  $0.6T$  电离.另外,在  $T=0$  的那半个光周期内,5 fs 脉冲的电场被低频场最大程度的增强了,因此在这半个光周期内被加速并回到原子核的电子可以获得远高于  $3.17U_p$  的动能.如图 2(d)所示,在谐波的经典轨道图上只有两个峰(分别标记为  $P'_1$  和  $P'_2$ ), $P'_1$

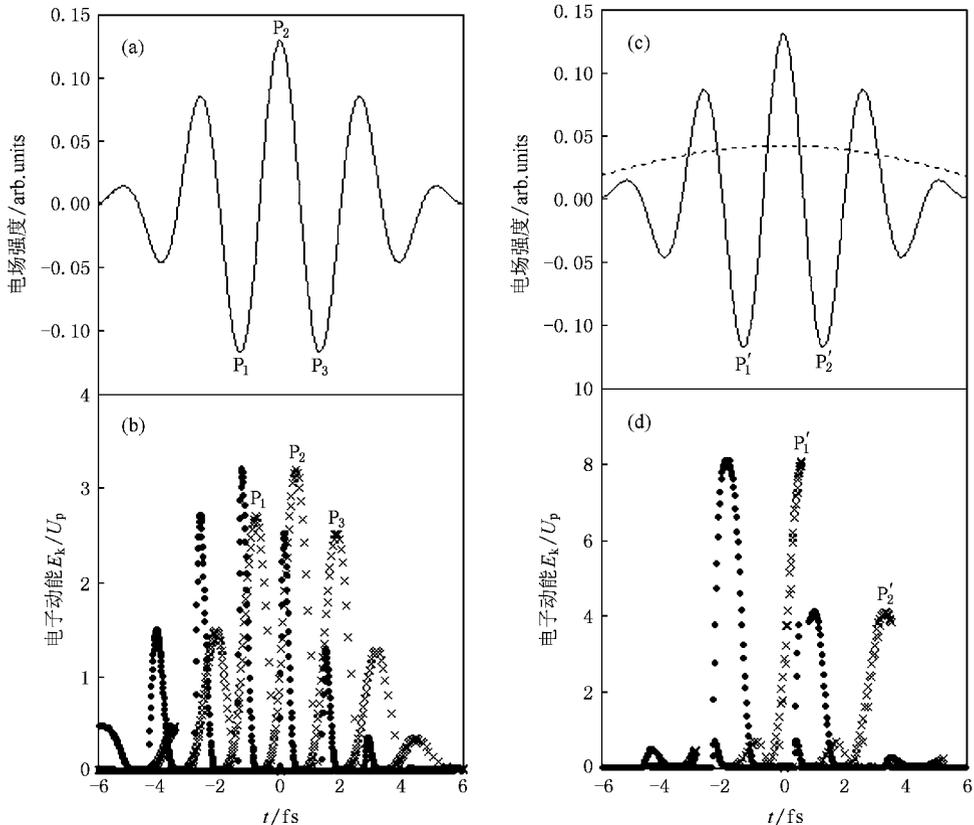


图 2 (a) 5 fs 脉冲电场强度示意图 (b) 5 fs 脉冲单独作用下的谐波经典轨道图 (c) 5 fs 脉冲和低频场的电场强度示意图 (d) 5 fs 脉冲和低频场共同作用下的谐波经典轨道图

和  $P'_2$  的最大值分别为  $8.2U_p$  和  $4.2U_p$ , 同时, 对于  $P'_1$  而言, 尽管每次谐波都有两个不同的电离时间, 但是复合时间几乎都是一致的, 这也就意味着, 对于光子能量高于  $I_p + 4.2U_p$  的谐波, 相位几乎是锁定的, 这里已经考虑了所有可能的多次回复. 由于只有  $P'_1$  对这部分谐波有贡献, 那么这部分谐波必然是超连续的, 同时, 超连续谱的谱宽达到  $4U_p$ , 对于我们所用的激光参数而言大约为  $140 \text{ eV}$ , 对应的傅里叶极限脉宽仅为  $30 \text{ as}$ . 上述用经典模型得到的结果很好地解释了图 1(b) 中谐波谱的超连续结构.

在我们的方案中, 所用飞秒脉冲的脉宽仅为  $5 \text{ fs}$ , 只包含了两个光周期, 而对于几个光周期的超短脉冲而言, 载波包络相位对谐波的影响是十分显著的<sup>[19]</sup>, 因此我们的方案中载波包络相位的影响也同样应该考虑. 图 3(a)–(d) 分别给出了在与图 1 相同的激光参数下, 飞秒脉冲的载波包络相位为  $0.4\pi$ ,  $0.8\pi$ ,  $1.4\pi$  和  $1.8\pi$  时的谐波谱. 从图中可以看出, 载波包络相位为  $0.4\pi$ ,  $0.8\pi$  和  $1.4\pi$  时, 接近截止区的谐波都有不同程度包络状的调制, 这种调制是同一次谐波具有两次不同的辐射时间、在时域上相互干涉造成的. 而当载波包络相位为  $1.8\pi$  时, 调制基本上消失了, 另外, 谐波谱从 105 次谐波附近就开始出现超连续结构, 这样, 超连续谱的谱宽可以进一步拓宽到  $155 \text{ eV}$ .

图 1 和图 3 中谐波的时域特性同样令人关注. 我们分别研究了在飞秒脉冲的载波包络相位为  $0$  (虚线) 和  $1.8\pi$  (实线) 两种情况下谐波的时域特性, 其余的参数与图 1 和图 3 相同. 结果如图 4 所示. 在我们的计算中选择了 120 次到 180 次谐波, 谱宽为  $95 \text{ eV}$ , 对应的傅里叶极限脉宽大约为  $45 \text{ as}$ . 对于  $\varphi_{\text{CEP}} = 0$  的情况, 所得到的单个阿秒脉冲的脉宽约为  $55 \text{ as}$ , 这已经非常接近傅里叶极限脉宽了. 当  $\varphi_{\text{CEP}} = 1.8\pi$  时, 脉宽进一步减小为  $48 \text{ as}$ , 同时, 脉冲的强度几乎为  $\varphi_{\text{CEP}} = 0$  时的两倍. 这样, 在我们的方案中, 不需要任何的啁啾补偿, 直接用滤波的方法就可以得到脉宽小于  $50 \text{ as}$  的单个阿秒脉冲. 值得注意的是, 这里我们无法通过选择更宽的连续谱来获得脉宽更短的脉冲, 这是因为从图 2(b) 中, 可以看到谐波存在一定的正啁啾, 因此如果利用啁啾补偿的方法, 选择整个超连续谱, 可以将脉宽压缩到接近一个原子单位 ( $24 \text{ as}$ ).

在我们的方案中还有一个值得考虑的问题, 就是所用低频场的脉宽. 尽管我们在计算中将其当成

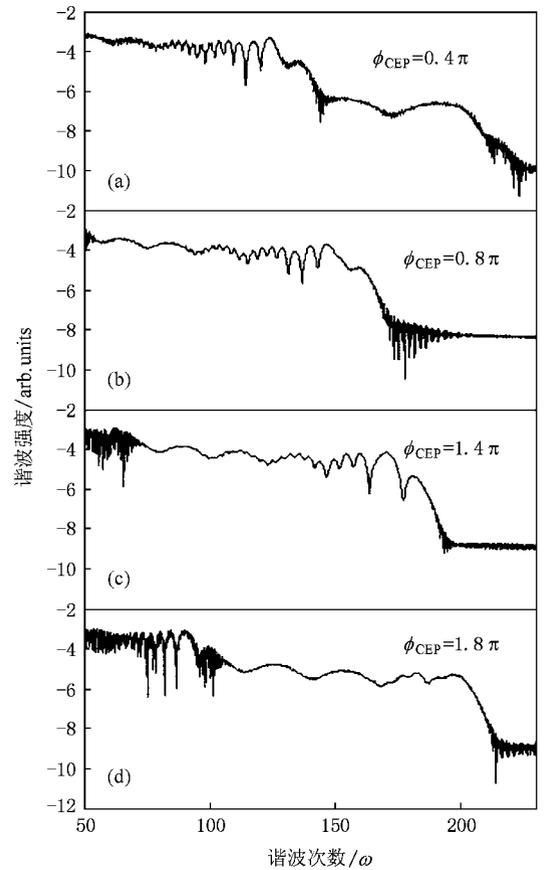


图 3 (a)–(d) 分别为飞秒脉冲的载波包络相位为  $0.4\pi$ ,  $0.8\pi$ ,  $1.4\pi$  和  $1.8\pi$  时的谐波谱 (其余的参数和图 1 相同)

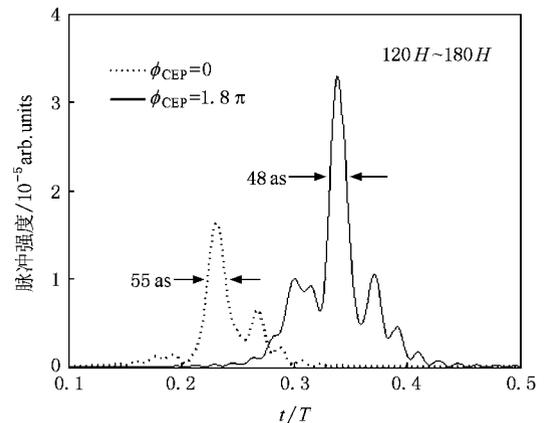


图 4 飞秒脉冲的载波包络相位为  $0\pi$  和  $1.8\pi$  时, 对 120 次到 180 次谐波进行叠加得到的阿秒脉冲时域包络 (其余参数和图 1 相同)

平面波来处理, 但是实际当中强度如此高的低频场一般只能是脉冲形式. 因此我们必须考虑氢原子在单独低频场作用下的电离概率, 这直接决定了低频场的脉宽. 经过我们的计算, 氢原子在低频场单独作

用下几乎不受影响,低频场脉冲甚至可以大于几个皮秒,而这样的脉冲,在实验上可以通过掺钛蓝宝石激光系统以及光参量放大技术(OPA)来实现.另外,值得指出的是,在我们的方案中,低频场的波长小范围的变动基本不会对结果造成影响,但是如果低频场的波长太长以至在整个脉冲的持续时间内低频场可以完全当成静电场来处理,这样图 2(d)中  $P_2'$  的最大值会显著增大而导致超连续谱的谱宽明显变窄.

## 4. 结 论

本文提出一种直接得到脉宽小于 50 as 的单个

脉冲的新方法.利用波长为 800 nm 脉宽为 5 fs 的超短脉冲叠加上波长为 10  $\mu\text{m}$ ,强度为超短脉冲强度的 10%且脉宽足够长的低频场脉冲驱动氦原子,谐波谱可以拓展到  $I_p + 8.2U_p$ ,同时,高于  $4.2U_p$  的谐波几乎是连续的,这样超连续谱的宽度就可以达到 140 eV.如果继续调节超短脉冲的载波包络相位,当  $\varphi_{\text{CEP}} = 1.8\pi$  时,超连续谱可以进一步被拓宽至 155 eV.对这些谐波进行叠加,则可以直接得到脉宽小于 50 as 的单个脉冲.

- [ 1 ] Hentschel M ,Kienberger R ,Spielmann C ,Reider G A ,Milosevic N ,Brabec T ,Corkum P B ,Heinzmann U ,Drescher M ,Krausz F 2001 *Nature* ( London ) **414** 509
- [ 2 ] Drescher M ,Hentschel M ,Kienberger R ,Tempea G ,Spielmann C ,Reider G A ,Corkum P B ,Krausz F 2001 *Science* **291** 1923
- [ 3 ] Paul P M ,Toma E S ,Bregier P ,Mullot G ,Auge F ,Balcou Ph ,Muller H G ,Agostini P 2001 *Science* **292** 1689
- [ 4 ] 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 ]
- [ 5 ] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [ 6 ] Christov P ,Mumane M M ,Kapteyn H C 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 1251
- [ 7 ] Corkum P B ,Burnett N H ,Ivanov M Y 1994 *Opt. Lett.* **19** 1870
- [ 8 ] Altucci C ,Delfin C ,Roos L ,Gaarde M B ,L 'Huillier A ,Mercer I ,Starczewski T ,Wahlstrom C G 1998 *Phys. Rev. A* **58** 3943
- [ 9 ] Tckerbakof O ,Mevl E ,Descamps D ,Plumridge J ,Constant E 2003 *Phys. Rev. A* **68** 043804
- [ 10 ] Sola J ,Mevl E ,Elouga L ,Constant E ,Strelkov V ,Poletto L ,Villoresi P ,Benedetti E ,Caumes J P ,Stagira S ,Vozzi C ,Sansone G ,Nisoli M 2006 *Nature Physics* **2** 319
- [ 11 ] Pfeifer P ,Gallmann L ,Abel M J ,Neumark D M ,Leone S R 2006 *Opt. Lett.* **31** 975
- [ 12 ] Cao W ,Lu P X ,Lan P F ,Wang X L ,Yang G 2007 *Phys. Rev. A* **74** 063821
- [ 13 ] Sansone G ,Benedetti E ,Calegari F ,Vozzi C ,Avaldi L ,Flammini R ,Poletto L ,Villoresi P ,Altucci C ,Velotta R ,Stagira S ,Silvestri S D ,Nisoli M 2006 *Science* **314** 443
- [ 14 ] Zeng Z N ,Cheng Y ,Song X ,Li R X ,Xu Z Z 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 203901
- [ 15 ] Lan P F ,Lu P X ,Cao W ,Li Y H ,Wang X L 2007 *Phys. Rev. A* **76** 011402(R)
- [ 16 ] Eberly J H ,Su Q ,Javanainen J 1989 *Phys. Rev. Lett.* **62** 811  
Li X X ,Xu Z Z ,Tang Y 1997 *Acta Phys. Sin.* **46** 267 ( in Chinese )  
[ 李学信、徐至展、汤 燕 1997 物理学报 **46** 267 ]
- [ 17 ] Ferr M D ,Fleck J A ,J R ,Steiger A 1982 *J. Comput. Phys.* **47** 412
- [ 18 ] Burnett K ,Reed V C 1992 *Phys. Rev. A* **45** 3347
- [ 19 ] deBohan A ,Antoine P ,Milosevic D B ,Piroux B 1998 *Phys. Rev. Lett.* **81** 1837

# Direct generation of isolated sub-50 attosecond pulse via controlling quantum paths by a low frequency field<sup>\*</sup>

Hong Wei-Yi Yang Zhen-Yu Lan Peng-Fei Lu Pei-Xiang<sup>†</sup>

( *Wuhan National Laboratory for Optoelectronics ,Huazhong University of Science and Technology ,Wuhan 430074 ,China* )

( Received 7 September 2007 ; revised manuscript received 23 January 2008 )

## Abstract

We propose a new method to directly generate an isolated sub-50 attosecond pulse. The combination of a 5 fs driving laser pulse with the wavelength of 800 nm and a low frequency field with the wavelength of 10  $\mu\text{m}$  is adopted. The intensity of the low frequency field is 10% that of the driving pulse. It is shown that the harmonic spectrum is extended to  $I_p + 8.2U_p$  and the harmonics above  $I_p + 4.2U_p$  become continuous. By adjusting the phase of the carrier-envelope of the few-cycle pulse ,the bandwidth of the supercontinuum can be further broadened and a close-to-Fourier-limit sub-50 as pulse is directly obtained.

**Keywords** : attosecond pulse , supercontinuum

**PACC** : 7220H , 4265K , 3000

<sup>\*</sup> 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 ).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail :lupeixiang@mail.hust.edu.cn