

啁啾激光与半周期脉冲形成的组合场 驱动原子产生单个阿秒脉冲*

李伟 王国利 周效信[†]

(西北师范大学物理与电子工程学院, 甘肃省原子分子物理与功能材料重点实验室, 兰州 730070)

(2011年1月24日收到; 2011年8月19日收到修改稿)

提出了由波长为 800 nm、脉冲宽度为 5 fs 的啁啾激光与半周期脉冲形成组合场, 并利用这种组合场驱动一维模型氢原子获得单个阿秒脉冲. 通过数值求解一维氢原子的含时薛定谔方程, 发现氢原子在组合场驱动下高次谐波谱的截止位置可以扩展到 $I_p + 21.6U_p$. 对第二平台区域不同范围内高次谐波的叠加都能得到单个阿秒脉冲, 最短可达 37 as, 特别是对平台区域的前端进行叠加不仅能够得到较短的单个阿秒脉冲, 而且与截止位置附近高次谐波构造的阿秒脉冲相比, 强度提高了 3 个数量级.

关键词: 啁啾激光场, 半周期脉冲, 高次谐波, 阿秒脉冲

PACS: 32. 80. Rm, 42. 65. Ky, 42. 65. Re

1. 引言

阿秒脉冲的产生对研究原子分子内部电子的动力学行为具有重要的意义, 它作为一种研究超快科学的工具, 已经越来越引起科学家们的重视^[1]. 目前获得阿秒脉冲的方法主要有以下两种: 一种是受激拉曼散射^[2]; 另一种是由强飞秒激光脉冲驱动原子气体产生高次谐波, 再由高次谐波叠加产生阿秒脉冲. 由于高次谐波波段范围很宽, 可延伸到软 X 射线的区域, 在截断位置附近有超连续性的优点, 所以很快便成为了实现阿秒脉冲的首选方案^[3]. 高次谐波的发射可以用 Corkum^[4] 提出的半经典“三步模型”来解释: 基态电子通过隧道电离进入到连续态; 然后处于连续态的电子在激光场的作用下运动并获得能量; 当激光场反向时电子减速, 其中有一部分电子在激光场的驱动下返回原子核附近并以一定的概率与原子核复合回到基态, 同时辐射出高能光子即为高次谐波. 该过程在激光场的每半个周期会重复一次, 因此产生的阿秒脉冲是以阿秒脉冲链的形式存在, 而在实际应用中人们更重视单个阿

秒脉冲的实现, 因此科学工作者提出了多种方案来实现单个阿秒脉冲的输出. 在实验方面, Hentschel 等^[5] 利用只有若干个光周期的短脉冲激光驱动原子得到 650 as 的单个阿秒脉冲; Sansone 等^[6] 将偏振门技术用于若干个光周期的激光脉冲与原子相互作用, 从而得到了 130 as 的单个阿秒脉冲; 最近, Goulielmakis 等^[7] 通过对高次谐波进行滤波技术成功获得了 80 as 的脉冲. 在理论方面, 人们提出了使用两色激光^[8-13]、三色组合场^[14]、激光场附加谐波脉冲^[15] 以及偏振方向随时间变化的激光^[16] 与原子相互作用产生阿秒脉冲. 文献[17, 18] 曾提出利用啁啾激光驱动原子产生单个阿秒脉冲, 由于啁啾激光场能增大激光的有效周期, 使电离后的电子能在激光场中获得更高的能量, 从而能得到更短的阿秒脉冲. 因此用啁啾激光驱动原子产生单个阿秒脉冲是一种重要的理论方法^[19-21]. 另一方面, Orlando 等^[22] 用激光场和半周期脉冲驱动原子也能产生单个阿秒脉冲, 但这种阿秒脉冲的宽度仍然较宽, 且宽度在飞秒量级的半周期脉冲不易实现. 最近一些学者从理论上提出了实现飞秒量级的半周期脉冲的方法^[23], 这为我们研究阿秒脉冲的产生提供了新

* 国家自然科学基金(批准号: 11044007, 11064013)、高等学校博士学科点专项科研基金(批准号: 20096203110001)和西北师范大学创新基金(批准号: NWNNU-KJCGC-03-62)资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: zhouxx@nwnu.edu.cn

的手段. 文献[24]利用两束同色激光加半周期脉冲的组合场驱动原子,发现半周期脉冲的加入能很好地扩展高次谐波谱的平台区域,从而产生单个阿秒脉冲.

由于半周期脉冲与其他场组合同样可以增加激光的有效周期,因此本文提出在啁啾激光场的基础上叠加经过优化的半周期脉冲可以进一步增加组合场的有效周期,从而能使高次谐波的截止位置得到更进一步的扩展. 本文将研究这种组合场驱动一维模型氦原子产生高次谐波的规律,通过叠加不同频段的高次谐波实现单个阿秒脉冲的输出.

2. 理论方法

在偶极近似和长度规范下,一维模型原子在激光场中的运动行为由含时薛定谔方程描述(本文除特别说明外,均采用原子单位)

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

式中 $E(t)$ 为激光场的电场分量, $V(x)$ 为一维模型氦原子的模型势. 本文采用软库仑势的形式

$$V(x) = \frac{-1}{\sqrt{a^2 + x^2}},$$

其中 a 是可调参数,为了保证模型氦原子与真实氦原子具有相同的基态能量 (-24.5 eV),我们取 $a = 0.485$. (1) 式的解可用分裂算符方法对时间进行演化,

$$\begin{aligned} \psi(x, t + \Delta t) = & \exp\left(\frac{i\Delta t}{4} \frac{\partial^2}{\partial x^2}\right) \exp(-i\Delta t(V(x) \\ & - xE(t))) \exp\left(\frac{i\Delta t}{4} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2}\right)\right) \psi(x, t) \\ & + O(\Delta t^3). \end{aligned} \quad (2)$$

(2) 式的求解过程在文献[25]中已有详细描述. 求解(2)式得到波函数后,运用 Ehrenfest 定理^[26], 电子的平均加速度为

$$\begin{aligned} a(t) = & \langle \psi(x, t) | -\frac{\partial V(x)}{\partial x} \\ & + E(t) | \psi(x, t) \rangle. \end{aligned} \quad (3)$$

由于高次谐波的强度与电子的平均加速度的傅里叶变换的模方成正比,所以高次谐波谱的强度为

$$P_q(\omega) = |a_q(\omega)|^2. \quad (4)$$

这里

$$a_q(\omega) = \int_0^t a(t) \exp(-iq\omega t) dt$$

为 $a(t)$ 的傅里叶变换.

对一定范围内的高次谐波叠加可得到阿秒脉冲

$$I(t) = \left| \sum_q a_q \exp(iq\omega t) \right|^2. \quad (5)$$

为了分析高次谐波谱在时间频率空间的特性,我们利用小波变换来分析某一频率的谐波随时间的演化,从而得到频率为 ω 的谐波随时间 t_0 变化的振幅

$$A_\omega(t_0, \omega) = \int a(t) w_{t_0, \omega}(t) dt, \quad (6)$$

式中

$$w_{t_0, \omega}(t) = \sqrt{\omega} W[\omega(t - t_0)]. \quad (7)$$

这里 $W(x)$ 为 Morlet 小波变换的窗函数^[27], 可以表示为

$$W(x) = \frac{1}{\sqrt{\tau}} \exp(ix) \exp(-x^2/(2\tau^2)). \quad (8)$$

从(6)–(8)式可知, $A_\omega(t_0, \omega)$ 的值依赖于参数 τ 的取值,在谐波频率一定的情况下,选取不同的 τ 值计算后发现,尽管得到的 $A_\omega(t_0, \omega)$ 绝对值大小有差异,但是 $A_\omega(t_0, \omega)$ 随时间演化的规律几乎不变. 在本文的计算中选取 $\tau = 15$.

在求解含时薛定谔方程(1)时,首先要给出初始波函数. 考虑到从 $t = 0$ 时刻激光场开始作用到原子上,所以原子在初始时刻处于无外场的基态,其初始波函数即为基态波函数. 在无外场的情况下体系的波函数满足

$$H_0 \phi_n(x) = E_n \phi_n(x). \quad (9)$$

这里

$$H_0 = -\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} + V(x),$$

E_n 为体系的能量本征值 ($n = 1, 2, 3, \dots$), $\phi_n(x)$ 为本征函数. $\phi_n(x)$ 可用 7 阶 B 样条函数展开,即

$$\phi_n(x) = \sum_{i=1}^N c_i B_{i,k}(x), \quad (10)$$

其中 $N = 98$, 其展开系数 c_i 和对应的本征能量 E_n 都可以通过对角化方法确定.

3. 结果及讨论

在计算中,我们采用的激光场形式为啁啾激光场^[19]和单极(unipolar)半周期脉冲形成的组合场,电场分量为

$$E(t) = E_0 f(t) \cos[\omega t + \delta(t)] + E_{\text{uni}}(t). \quad (11)$$

这里 E_0 和 ω 分别为激光场的电场峰值和角频率; $f(t)$ 为高斯包络; $\delta(t)$ 为基波脉冲的啁啾相位,

$$\delta(t) = -\beta \tanh[(t - t_0)/\tau],$$

其中 β, t_0 和 τ 为用于控制啁啾形状的可调参数;

$E_{\text{uni}}(t)$ 为单极半周期脉冲^[22], 可表示为

$$E_{\text{uni}}(t) = k\theta(t - t'_0) \times E_0 \left[\frac{a(t - t'_0)^3 \exp[-8(t - t'_0)/\tau']}{\tau'^3} - \frac{b(t - t'_0)^5 \exp[-(t - t'_0)/\tau']}{\tau'^5} \right], \quad (12)$$

其中 $\theta(t)$ 为阶跃函数, t'_0 为半周期脉冲相对于啁啾脉冲的时间延迟, τ' 为半周期脉冲的脉冲宽度, a 和 b 为无量纲参数且由半周期脉冲最大峰值来确定, k 为控制半周期脉冲峰值的参数, 半周期脉冲的电场峰值为 kE_0 .

利用(11)式的组合场驱动一维模型氦原子, 我们计算了氦原子产生的高次谐波谱, 在计算中基频场强度取为 $1.0 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$, 中心波长取 800 nm, 激光脉冲宽度为 5.0 fs; 对于啁啾参数, 取 $\beta = 7.1$, $t_0 = 198$, $\tau = 210$; 对于半周期脉冲, 取 $k = 0.7$, $a =$

400 , $b = 10^{-5}$, $t'_0 = -0.11T$ (T 为激光电场的周期), $\tau' = 5.0 \text{ fs}$. 图 1 给出了这样的组合场随时间的变化和计算得到的高次谐波谱. 从图 1(b) 可以看出, 由于半周期脉冲的加入使得高次谐波谱的平台区得到了明显的扩展, 也使谐波谱的平台区变得光滑连续. 对这种平台的扩展可以通过 Corkum^[4] 的三步模型做如下解释: 当组合场到达峰值 A 点附近(见图 1(a)), 电子被电离, 处于连续态的电子在激光场中加速运动; 当激光场电场分量在 C 点反向时, 电子会在反向电场作用下减速运动然后再反向加速, 从而获得动能; 当电子继续加速运动在 D 点附近时与母离子复合并辐射出高次谐波. 由图 1(a) 可以看出, 半周期脉冲的加入增大了组合场在 C 点与 D 点之间的时间间隔和电场峰值, C 点与 D 点之间时间间隔的增大能使电子返回母离子时的加速时间增加, 而 C 点与 D 点之间电场峰值的增加能使电子在组合场中获得更大的加速度. 这两种效应都能使电子从激光场中获得更高的能量, 从而有效地扩展了高次谐波谱的平台区域, 使谐波截止位置可以扩展到 $I_p + 21.6 U_p$ (U_p 为电子的有质动力能).

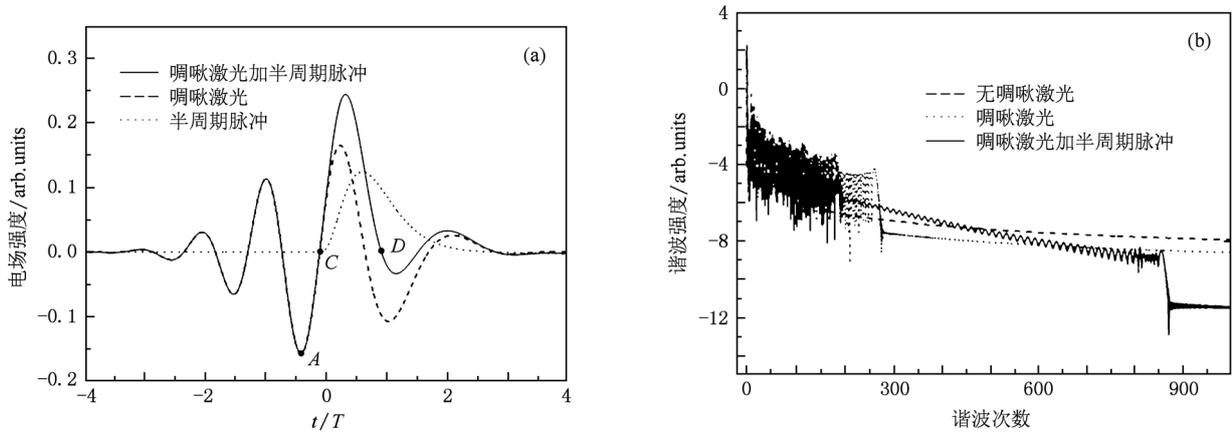


图 1 激光电场分量的形状和对应的高次谐波谱 (a) 激光场随时间的变化, (b) 一维模型氦原子的高次谐波谱

为了进一步说明高次谐波平台区域阿秒脉冲的发射特性, 我们进行了经典计算与分析. 通过求解电子在组合场中的经典方程, 能够给出电子在组合场中的电离时间 t_i 和复合时间 t_c 与电子动能 E_k 之间的关系, 图 2 给出了本文的计算结果. 从图 2 可以看出, 当电子动能 $E_k > 5U_p$ 时, 对于给定的能量存在着两个电子路径的贡献, 长路径(电离早复合迟)和短路径(电离迟复合早), 且长路径与短路径所对应的电子复合时间几乎重合. 因此从发射特性

看, 它们几乎是同时发射, 可以推断这种发射对应的脉冲时间宽度将会很窄. 对高次谐波形成两个平台的原因, 也可以从经典结果给出解释, 在组合场情况下谐波的发射主要存在两个复合事件, 与图 2 中的 B 点和 A 点, 相对应的能量就是电子从组合场中获得的动能, 分别为 $4.3U_p$ 和 $21.6U_p$, 就是图 1(b) 中谐波谱对应两个平台的截止位置.

为了证实上述经典理论的结果, 我们进一步利用 Morlet 小波变换方法^[27] 对高次谐波发射过程进

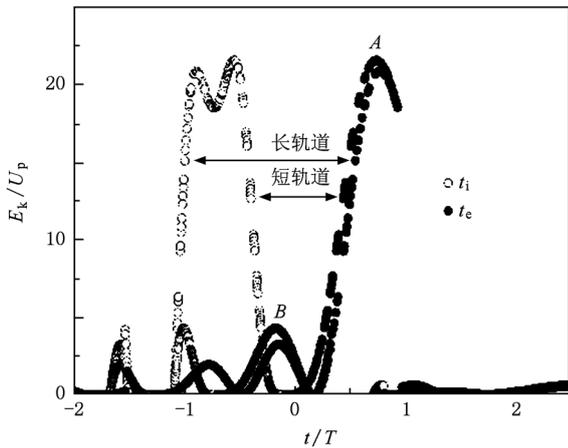


图2 组合场作用下电子动能的经典分析

行时频分析,结果如图3所示.从图3(a)可以看出,谐波发射B点对应的能量是高频谐波第一个平台的截止位置,且B点能量很好地对应经典的结果(图2中B点);对于谐波第二个平台区域,其阶数

从200开始一直延伸到接近900为止(图3),覆盖的能量范围很宽.从图3可以看出,在组合场作用下该区域的主要贡献只有一个轨道的贡献.但从经典分析的结果可知,这仍然是由两个电子轨道贡献的结果,只不过这两条轨道由于电子返回母离子的时刻几乎相同而难以区分.不过,在第二个平台的截止位置800阶附近(见图3(c)),高频谐波发射的时间明显变长,由经典分析可知(见图2中的A点),这是由于在截止位置附近电子长轨道与短轨道返回母离子的时间有差别,导致第二截止位置附近的高次谐波发射时间明显变长.通过以上的经典分析结合小波变换的结果,可以清楚地了解氦原子在这种组合场中发射高频谐波出现两个平台的原因以及高频谐波发射过程中能量随时间的变化规律.可以预见,由于第二个平台谐波的能量范围较宽,且电子长短轨道发射时间几乎重合,对其中若干个谐波进行叠加会得到脉冲宽度较窄的阿秒脉冲.

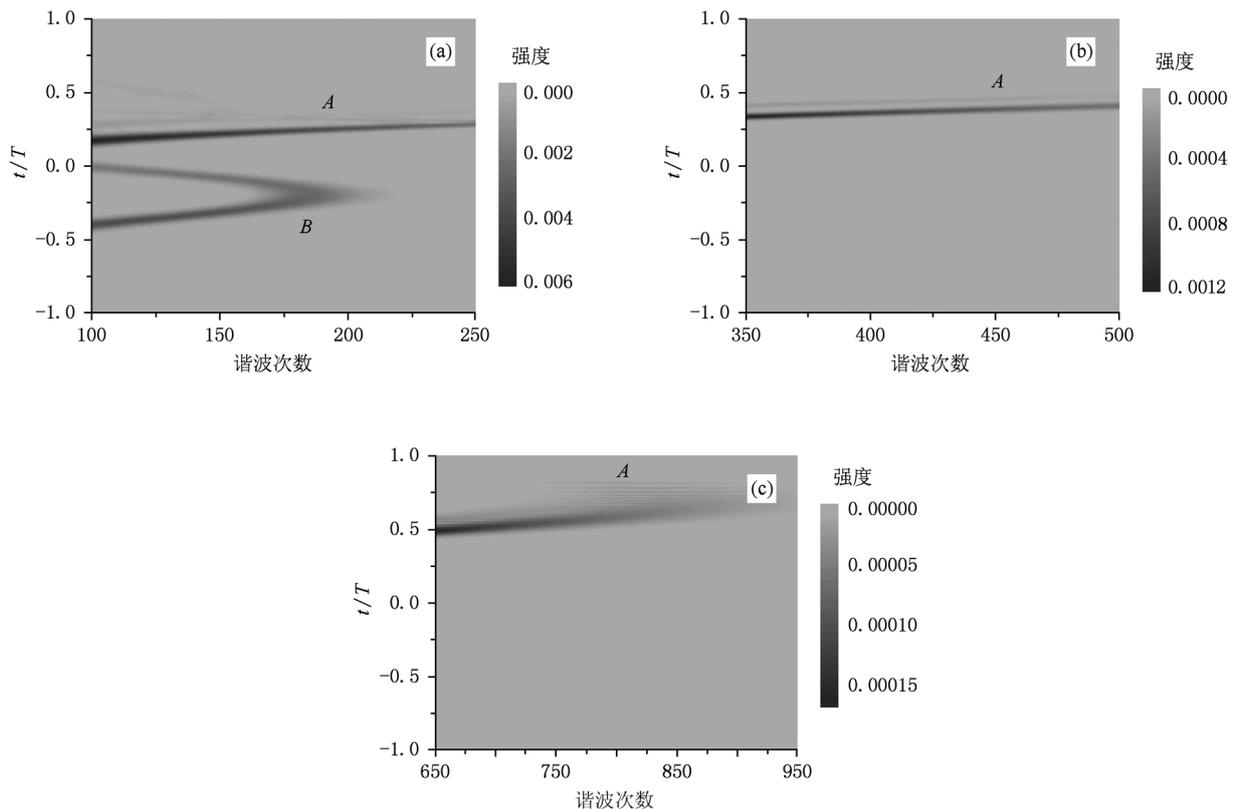


图3 组合场下高频谐波的时频分析 (a)100—250阶高频谐波,(b)350—500阶高频谐波,(c)650—950阶高频谐波

我们利用(5)式对组合场驱动下氦原子发射的高次谐波进行叠加得到了阿秒脉冲,图4给出了对第二个谐波平台不同的谐波范围叠加后得到阿秒

脉冲的时域包络曲线.图4是本文对800—850阶、750—810阶、650—720阶、400—475阶、300—375阶、250—320阶的谐波进行叠加的结果,依次得到

宽度为 65, 48, 41, 37, 38 和 40 as 的脉冲, 且全部呈现的是单个阿秒脉冲. 从图 4(a) 可以看出, 对截止位置附近谐波进行叠加, 可以得到 65 as 的脉冲, 并且伴随有弱的干涉现象. 就像上述经典分析所预言的, 这是由于两个轨道返回的时刻有差异, 导致发射时间变宽, 而干涉现象是由于在该能量区间还有其他轨道的贡献所引起的. 从本文叠加不同阶次谐波得到的阿秒脉冲看, 随着阶次的降低, 也像经典分析预言的一样, 仍然能够得到单个的阿秒脉冲, 且最短可达 37 as. 特别是对第二平台区域的前端

谐波进行叠加, 不仅能得到短的单阿秒脉冲, 而且所得到的单个脉冲较截止位置附近构造的脉冲强度提高了 3 个数量级(图 4(f)), 这对于阿秒脉冲的应用是十分重要的. 由此可知, 利用啁啾激光和半周期脉冲形成的组合场驱动氦原子所发射的阿秒脉冲不仅在很宽的谐波范围内都能得到单个阿秒脉冲, 而且相对于目前人们常用截止位置附近构造的阿秒脉冲, 其发射强度能够提高 3 个数量级.

4. 结 论

本文提出了由波长为 800 nm、脉冲宽度为 5 fs 的啁啾激光场和脉冲宽度为 5 fs 的半周期脉冲形成组合场, 并利用这种组合场驱动氦原子, 数值求解一维氦原子的含时薛定谔方程, 研究了氦原子发射高次谐波的规律. 研究表明, 在这种组合场驱动下氦原子发射的高次谐波谱得到大幅度的扩展, 谐波截止位置可以扩展到 $I_p + 21.6U_p$, 并且在较宽的谐波范围内有很好的连续性. 通过经典分析结合小波变换的方法解释了高次谐波的发射特征和机理, 特别是对第二平台区域的高次谐波构造阿秒脉冲进行了详细的分析. 研究发现, 半周期脉冲的加入不仅使高次谐波的平台区域得到扩展, 而且在较宽的谐波范围内, 对谐波有贡献的电子长轨道和短轨道返回母离子的时间几乎相同, 使得发射高次谐波的时间特性得到改善. 经过对整个第二平台区域不同范围阶次的高次谐波谱进行叠加, 都能得到单个阿秒脉冲, 除了在截止位置附近得到的脉冲宽度较宽外, 在其他区域得到的脉冲宽度都很窄, 最窄可达 37 as. 特别对第二平台区域前端的高次谐波叠加, 不仅得到了较短的单个阿秒脉冲, 而且阿秒脉冲的强度相对于人们常用截止位置附近的高次谐波构造的脉冲强度高出 3 个数量级, 这也是利用这种组合场驱动原子产生单个阿秒脉冲的最大特点.

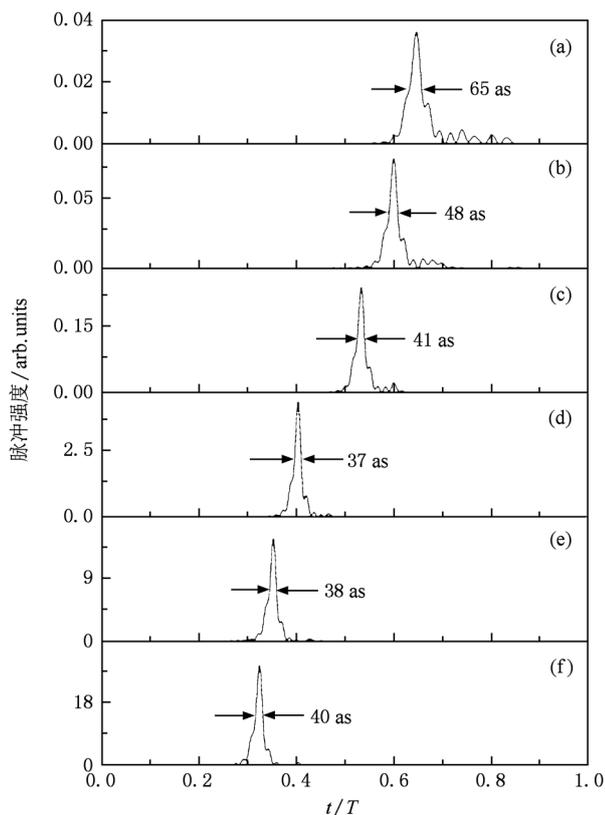


图 4 氦原子在组合场中产生的阿秒脉冲 (a) 叠加谐波 800—850 阶, (b) 叠加谐波 750—810 阶, (c) 叠加谐波 650—720 阶, (d) 叠加谐波 400—475 阶, (e) 叠加谐波 300—375 阶, (f) 叠加谐波 250—320 阶

[1] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
 [2] Kaplan A E 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 1243
 [3] Agostini P, DiMauro L F 2004 *Rep. Prog. Phys.* **67** 813
 [4] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
 [5] 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

[6] Sansone G, Beenedetti 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
 [7] Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, Yakovlev V S, Gagnon J, Uiberacker M, Aquila A L, Gullikson E M, Attwood D T, Kienberger R, Krausz F, Kleineberg U 2008 *Science* **320** 1614

- [8] Zeng Z N, Cheng Y, Song X H, Li R X, Xu Z Z 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 203901
- [9] Zhang G T, Liu X S 2009 *J. Phys. B* **42** 125603
- [10] Ye X L, Zhou X X, Zhao S F, Li P C 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 1579 (in Chinese) [叶小亮、周效信、赵松峰、李鹏程 2009 物理学报 **58** 1579]
- [11] Hong W Y, Yang Z Y, Lan P F, Zhang Q B, Li Q G, Lu P X 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 4914 (in Chinese) [洪伟毅、杨振宇、兰鹏飞、张庆斌、李钱光、陆培祥 2009 物理学报 **58** 4914]
- [12] Chen J C, Zeng S L, Yang Y J 2010 *Phys. Rev. A* **82** 043401
- [13] Du H C, Wang H Q, Hu B T 2010 *Phys. Rev. A* **81** 063813
- [14] Lu R F, He H X, Guo Y H, Han K L 2009 *J. Phys. B* **42** 225601
- [15] Chen J G, Yang Y J, Chen Y 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 033202 (in Chinese) [陈基根、杨玉军、陈 漾 2011 物理学报 **60** 033202]
- [16] Du H C, Hu B T 2010 *Opt. Express* **18** 25958
- [17] Zhao S F, Zhou X X, Li P C, Chen Z J 2008 *Phys. Rev. A* **78** 063404
- [18] Li P C, Zhou X X, Wang G L, Zhao Z X 2009 *Phys. Rev. A* **80** 053825
- [19] Xiang Y, Niu Y P, Gong S Q 2009 *Phys. Rev. A* **79** 053419
- [20] Xu J J, Zeng B, Xu Y L 2010 *Phys. Rev. A* **82** 053822
- [21] Wu J, Zhang G T, Xia C L, Liu X S 2010 *Phys. Rev. A* **82** 013411
- [22] Orlando G, Corso P P, Fiordilino E, Persico F 2009 *J. Mod. Opt.* **56** 1761
- [23] Song X H, Yang W F, Zeng Z N, Li R X, Xu Z Z 2010 *Phys. Rev. A* **82** 053821
- [24] Pan H L, Li P C, Zhou X X 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 043203 (in Chinese) [潘慧玲、李鹏程、周效信 2011 物理学报 **60** 043203]
- [25] Li P C, Zhou X X, Dong C Z, Zhao S F 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 750 (in Chinese) [李鹏程、周效信、董晨钟、赵松峰 2004 物理学报 **53** 750]
- [26] Burnett K, Reed V C, Cooper J, Knight P L 1992 *Phys. Rev. A* **45** 3347
- [27] Antoine P, Piraux B, Maquet A 1995 *Phys. Rev. A* **51** R1750

Single attosecond pulse generated by model helium atom exposed to the combined field of an intense few-cycle chirped laser pulse and a half cycle pulse*

Li Wei Wang Guo-Li Zhou Xiao-Xin[†]

(Key Laboratory of Atomic and Molecular Physics and Functional Materials of Gansu Province, College of Physics and Electronic Engineering, Northwest Normal University, Lanzhou 730070, China)

(Received 24 January 2011; revised manuscript received 19 August 2011)

Abstract

We propose an efficient method to generate an ultrashort attosecond pulse when a model He is exposed to the combination of an intense few-cycle chirped laser pulse and a half cycle pulse. By solving the time-dependent Schrödinger equation numerically, we find that the cut-off energy of the harmonics is extended effectively to $I_p + 21.6U_p$. By superimposing some high-order harmonics in different regions for the second plateau, the obtained pulses are all single attosecond ones. Minimum pulse achieves 37 as. Especially, by superimposing the lower order harmonics of the second plateau, one can obtain single attosecond pulse, and also the intensity of the single pulse is three order of magnitude higher than the attosecond pulse obtained near cut-off of harmonics.

Keywords: intense few-cycle chirped laser, half cycle pulses, high-order harmonic generation, attosecond pulse

PACS: 32.80.Rm, 42.65.Ky, 42.65.Re

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11044007, 11064013), the Doctoral Program Foundation of Institution of Higher Education, China (Grant No. 20096203110001), and the Innovative Foundation of Northwest Normal University, China (Grant No. NWNNU-KJCXGC-03-62).

[†] Corresponding author. E-mail: zhouxx@nwnu.edu.cn