

双色激光脉冲辐照叠加态生成强的 38 as 孤立脉冲*

陈基根^{1)†} 杨玉军²⁾ 俞旭萍¹⁾ 何龙君¹⁾ 徐圆圆¹⁾

1) (台州学院物理与电子工程学院物理与材料工程系, 台州 318000)

2) (吉林大学原子与分子物理研究所, 长春 130012)

(2010年6月17日收到; 2010年7月17日收到修改稿)

采用多周期 800 nm 激光组合 1 600 nm 红外激光脉冲辐照氦离子 He^+ 叠加态生成强、短孤立阿秒脉冲. 结果表明, 相对于 800 nm 单色激光辐照基态情形, 截止频率由 70 次谐波大幅度展宽到 280 次谐波, 且获得频宽为 108 eV 并由单一短量子路径贡献的连续辐射谱, 叠加该连续谱 210 次到 280 次谐波获得了脉宽为 38 as 的强、短孤立脉冲, 其强度比单色场情形提高了 11 个数量级. 研究进一步表明, 两束激光脉冲的时间延迟从 0.05π 到 -0.05π 之间获得的孤立阿秒脉冲是最优化的, 且脉冲持续时间均为 38 as, 这使得该方案在实验上具有可操作性.

关键词: 组合激光脉冲, 相干叠加态, 阿秒脉冲

PACS: 32. 80. Rm, 42. 50. Hz

1. 引言

强激光与原子、分子、团簇以及固体等相互作用, 会发射出相干辐射波, 辐射波的频率是入射激光频率的整数倍, 这种光波发射被称为高次谐波发射. 高次谐波辐射, 由于其在光谱方面的优良特性, 成为人们实现阿秒相干脉冲的首选光源^[1-3]. 高次谐波辐射机理可以很好地用“三步”模型得到解释^[4]: 处在基态的电子波包在激光场的作用下, 先隧穿激光场和原子势形成的势垒, 然后在激光场驱动下电离电子波包回到母离子附近, 与基态波包干涉, 放出阿秒相干光. 若能控制电子波包在很短的时域内电离, 则有望获得孤立的阿秒脉冲. 采用只有几个光学周期的超短激光脉冲可以使大部分电子波包在其峰值中心处电离, 因而可以获得单一的阿秒脉冲^[5]. 然而, 由于谐波截止区域连续辐射谱的频带宽度小于 20 eV, 导致产生的阿秒脉冲持续时间最短为 250 as, 这远远大于原子中电子运动的典型时间尺度. 因此, 人们期望能进一步获得频带更宽时域更短的孤立阿秒脉冲. Sansone 等人利用偏振门技术获得了孤立的 130 as 脉冲, 由于产生阿秒脉冲过程中只使用了一部分入射激光能量, 导致其强度较弱^[1]. 2008 年, 德国马普量子光学研究所

的科学家研制成功当前实验室中获得的最快阿秒光脉冲, 其闪光时间仅为 80 as^[6]. 上述实验获得的阿秒脉冲可成功观察深藏在原子内电子的游离过程, 但得到的阿秒脉冲因产生的光子能量大都散落在软 X 射线能量范围, 用来侦测单一原子、小分子是合适的, 却不能穿透一些凝聚态物质、生物分子系统.

为进一步缩短脉宽、提高强度, 人们从理论上提出了多种方案产生孤立阿秒脉冲. 其中, 双色量子路径控制方案, 由于可获得频带超宽且由单一量子路径形成的连续辐射谱, 成为当前最具吸引力的方案之一. 在高次谐波的产生过程中, 在入射激光的半个光学周期内, 有两个主要的量子路径对每一级次的谐波有贡献, 一个路径是电子先电离后复合, 该路径称为长路径, 另一个路径电子后电离先复合, 该路径称为短路径. 因这两个路径有不同的发射时刻, 因此谐波的相位是不同步的, 几次谐波的叠加导致不规则的脉冲串. 但是, 当其中单一量子路径被选出时, 意味着谐波的相位锁定, 即谐波是同时发射, 叠加这些相位锁定的谐波可以获得一个清晰的有规则的孤立阿秒脉冲. 因此, 在单一量子路径控制方案中, 可以实现孤立阿秒脉冲的产生. 最近, 利用双色量子路径控制方案人们已取得了一系列成果^[7-11], 阿秒脉冲的脉冲持续时间越来越

* 国家自然科学基金(批准号: 10604021)资助的课题.

† E-mail: kiddchen@126.com

越接近 1 个时间原子单位. 但是, 在该方案中大部分驱动激光脉冲采用载波相位稳定的 5 fs/800 nm 钛宝石激光, 如此超短的激光脉冲, 要获得稳定的载波相位, 目前在大多数实验室中实现有较大的难度. 因此, 近些年, 尽管理论上双色量子路径控制方案取得了不断的进展, 但很少看到实验上利用该方案制备阿秒脉冲的相关报道.

为此, 本文提出采用多周期 800 nm 激光组合 1600 nm 红外激光脉冲辐照氦离子 He^+ 生成超短孤立阿秒脉冲. 我们的研究表明, 通过调控两束激光脉冲的相对相位, 可以实现短量子路径选择, 生成频带超宽的连续辐射谱. 同时考虑到双色控制量子路径方案中, 连续谱区的谐波都是由在双色激光电场较弱峰值处的电离电子与基态复合产生, 导致谐波的转化效率较低, 叠加生成的阿秒脉冲强度较弱. 因此, 本文采用双色激光脉冲辐照相干叠加态, 提高连续谱谐波的转化效率, 进而增强阿秒脉冲的强度.

若无特殊说明, 本文均采用原子单位.

2. 理论方法

在长度规范下, 强激光和原子相互作用的一维含时薛定谔方程为

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

对该方程的求解, 在单电子近似下采用 Crank-Nicholson 数值积分方法^[12]. V 为原子势函数, 本文选用修正的软化库仑势^[13]来描述:

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

其中, 软化势参数 q, α 选为 2, 0.5 用来模拟氦离子 He^+ . 在本文的计算过程中, 体系的初态选为 He^+ 的基态 $|0\rangle$ 及基态和第一激发态 $|1\rangle$ 的相干叠加态:

$$\psi(x, 0) = (|0\rangle + e^{-i\delta} |1\rangle) / \sqrt{2}. \quad (3)$$

其中 δ 为 $|0\rangle$ 和 $|1\rangle$ 两个束缚态的相对相位. 我们的数值研究结果表明, 改变 δ 的值对谐波结果几乎不产生任何影响, 因此, 在本文将 δ 设为 0.

(1) 式中 $F(t)$ 为线偏振的组合激光脉冲

$$\begin{aligned} \bar{F}(t) &= E_0 f(t) \propto (\omega_0 t) + E_1 f(t - \tau_{\text{delay}}) \\ &\propto (\omega_1 (t - \tau_{\text{delay}}) + \varphi), \end{aligned} \quad (4)$$

其中 $E_{0,1}$ 分别为 800 nm 激光和 1600 nm 激光的峰值场幅, φ 是两束激光脉冲的相对相位, 本文选为 π , τ_{delay} 表示两束激光脉冲的时间延迟, $f(t)$ 为激光脉冲的包络, 采用 \sin^2 的形式.

通过数值求解方程 (1) 可得体系在任意时刻的含时波函数 $\Psi(x, t)$, 然后对体系的加速度偶极矩^[14]

$$\begin{aligned} d_A(t) &= \frac{d^2}{dt^2} \langle \Psi(x, t) | X | \Psi(x, t) \rangle \\ &= -\langle \Psi(x, t) | \frac{dV(x)}{dx} | \Psi(x, t) \rangle - F(t) \end{aligned} \quad (5)$$

进行 Fourier 变换可得加速度形式的谐波发射功率谱

$$P_a(\omega) = \left| \frac{1}{(t_f - t_i) \omega^2} a_q \right|^2, \quad (6)$$

$$a_q = \int d_A(t) e^{-iq\omega t} dt. \quad (7)$$

其中, t_i, t_f 为 Fourier 变换的初时刻和末时刻, q 表示谐波级次. 再对加速度偶极矩做相应的 Morlet 小波变换^[15], 则可得某一次谐波的时间特性. 即, 频率为 ω 的谐波在时刻 t 的发射功率幅值为

$$d_\omega(t) = \int d_A(t') \omega_{t,\omega}(t') dt', \quad (8)$$

其中小波核为 $\omega_{t,\omega}(t') = \sqrt{\omega} W(\omega(t' - t))$. 对本文所用的 Morlet 小波, 其形式为

$$W(x) = \frac{1}{\sqrt{\tau}} e^{ix} e^{-\frac{x^2}{2\tau^2}}, \quad (9)$$

该小波变换的窗口函数随着频率的变化而变化, 但窗口中的振荡数恒定.

此外, 通过叠加几次谐波则可获得超短脉冲, 脉冲的时间形貌表示为^[16,17]

$$I(t) = \left| \sum_q a_q e^{iq\omega t} \right|^2. \quad (10)$$

3. 结果与分析

图 1 给出了双色激光脉冲辐照 He^+ 叠加态生成的谐波发射功率谱. 为了比较, 图 1 中也给出了 800 nm 单色激光脉冲辐照 He^+ 基态的谐波谱. 单色激光脉冲为 10 fs/800 nm 的钛宝石激光, 强度为 $2.84 \times 10^{14} \text{ Wcm}^{-2}$, 组合激光脉冲由 10 fs/800 nm 和 10 fs/1600 nm 的激光合成, 峰值强度均为 $2.84 \times 10^{14} \text{ Wcm}^{-2}$. 从图 1 中可注意到, 单色场谐波谱的截止位置约为 70 次, 这和 $I_p + 3.2 U_p$ (I_p 为 He^+ 电离能, $U_p = E^2 / (4\omega_0^2)$ 为 800 nm 激光脉冲的有质动力能)

截止规则是一致的. 从图 1 中可进一步观测到, 单色激光脉冲谐波谱平台尾部谐波呈现较明显的分立性, 这种有规则的分立性是由于电离电子的多个量子路径对同一次谐波相互干涉形成. 因此, 叠加这些谐波只能得到阿秒脉冲串. 然而, 对于双色激光脉冲辐照叠加态情形, 由于 1600 nm 长波长激光加入, 谐波谱的截止频率令人惊讶地展宽 280 次. 此外, 从图中还可发现, 平台尾部谐波的发射效率相对于单色场辐照基态情形, 提高了近 7 个数量级, 这与 Zhang 等人^[8]及 Zhai 等人^[11]计算得到的结果相符合. 而且, 谐波谱尾部呈现频宽约 108 eV 且非常规则的 X 射线波段超连续辐射, 叠加这部分谐波有望获得孤立的阿秒脉冲, 而不是阿秒脉冲串. 为解释双色激光脉冲谐波谱的上述特性, 本文试图利用半经典的“三步”模型给出清晰的物理图像.

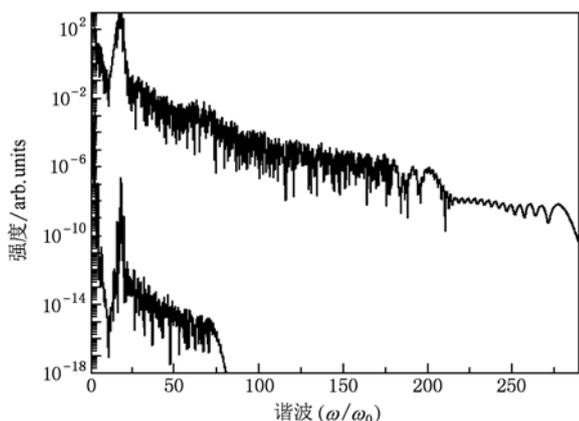


图 1 单色激光脉冲辐照 He⁺ 基态和组合激光脉冲辐照 He⁺ 叠加态生成的高次谐波谱 (单色激光脉冲为 10 fs/800 nm 的钛宝石激光, 强度为 $2.84 \times 10^{14} \text{ Wcm}^{-2}$, 组合激光脉冲由 10 fs/800 nm 和 10 fs/1600 nm 的激光合成, 峰值强度均为 $2.84 \times 10^{14} \text{ Wcm}^{-2}$)

图 2 给出了双色激光场产生高次谐波的电子动力学过程. 图中实心圆曲线、空心三角曲线分别表示谐波辐射随电离时刻及复合时刻的变化关系. 从图 2 可观察到, 电子在 4.326 个 800 nm 光学周期电离时, 生成最高次谐波 280 次 (用字母 P₁ 标出), 这和图 1 中观测到的谐波截止频率相一致. 当电子在 2.995 个光学周期电离时, 具有第二大的复合时刻动能 (用字母 P₂ 标出), 约为 261 eV, 具有此动能的电离电子和基态复合, 产生 203 次谐波. 在图 2 中可注意到, 对于 203 次到 280 次之间的谐波, 只有两个量子路径对其有贡献, 一个是先电离后复合的长路径, 另一个是后电离先复合的短路径, 相应的电

离电子在连续态经历的时间分别约为一个光学周期和半个光学周期.

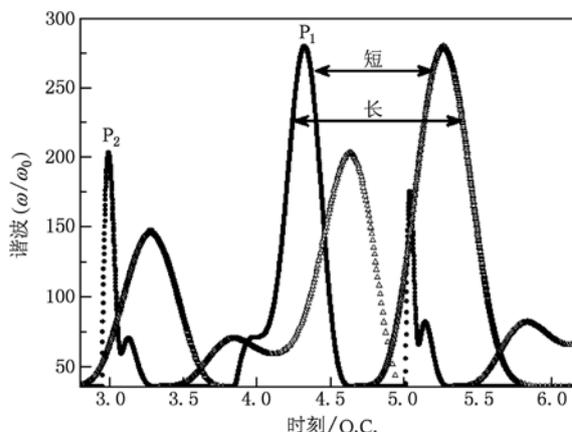


图 2 组合脉冲情形, 谐波随电离时刻 (实心圆曲线) 及复合时刻 (空心三角曲线) 的变化关系 (组合激光脉冲参数同图 1)

为进一步证实连续辐射谱的任一级次谐波均由两个量子路径形成, 本文利用小波变换方法对连续辐射谱进行了时频分析, 如图 3 所示. 从图中可清晰地看到, 每个峰对应峰值中心左右两边都有两个分支, 左分支对应短量子路径, 右分支对应长量子路径; 对于最高峰 P₁, 我们可以明显注意到, 左分支的强度明显比右分支的强度强很多. 右分支的强度非常弱, 在图中几乎观察不到, 这说明长路径对连续谱的贡献可以忽略不计. 最高峰中, 单一短量子路径形成的连续谱谐波级次大约从 210 次到 280 次, 对应的频带宽度约为 108 eV. 小波时频分析图的结果表明, 在本文的方案中, 只有一个短量子路径对超连续辐射谱的谐波有贡献, 使得这部分谐波呈现出光滑有规则的特性, 这与图 1 中观测得到的结果是相符合的. 宽频带且由单一量子路径形成的 X 射线波段连续谱, 谐波的发射几乎同时发生, 可以

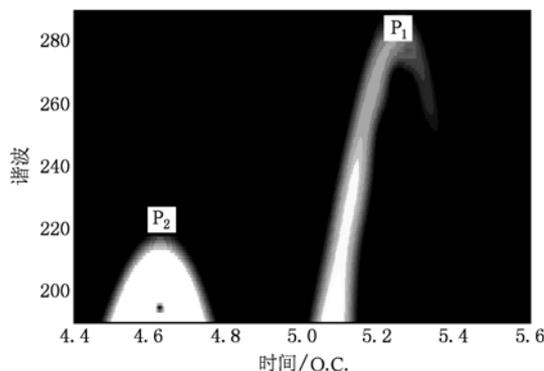


图 3 图 1 中组合激光脉冲连续辐射谱的小波时频分析图

用来产生超短的孤立阿秒脉冲. 图 4 给出了由双色激光脉冲谐波 210 次到 280 次叠加生成的孤立阿秒脉冲, 为了比较, 图 4 右下角的框图给出了由单色场谐波 61 次到 71 次生成的阿秒脉冲时域特征, 阿秒脉冲的时域包络是对谐波谱直接做反向傅里叶变换得到的. 可以清楚地看到, 单色场情形产生了一个阿秒脉冲链, 每半个光学周期有两个相邻的光脉冲. 然而, 在组合脉冲情形, 一个非常干净的孤立阿秒脉冲获得了, 脉冲持续时间为 38 as, 其强度比单色场情形提高了将近 11 个数量级.

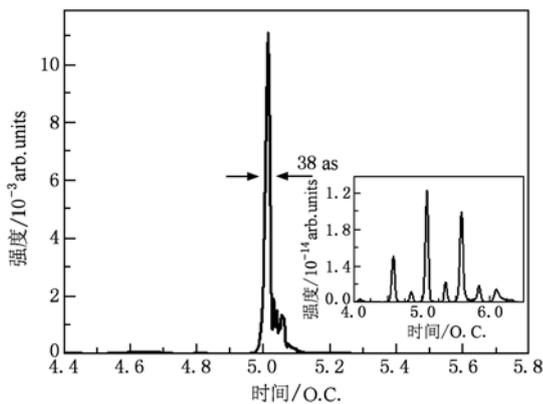


图 4 叠加组合激光脉冲谐波 210 次到 280 次生成的孤立阿秒脉冲. 右下角框图为叠加单色场谐波 61 次到 71 次生成的阿秒脉冲时域包络

本文进一步研究了时间延迟 $\omega\tau_{\text{delay}}$ 对双色激光脉冲情形生成孤立阿秒脉冲的影响, 如图 5 所示. 图中, 所有阿秒脉冲都是通过叠加 210 次谐波到 280 次谐波获得. 从图 5 中可观察到, 时间延迟从 0.1π 到 -0.2π 之间都能生成短于 50 as 的孤立脉冲, 其中延迟相位从 0.05π 到 -0.1π 之间阿秒脉冲的持续时间为 38 as, 其他延迟相位下阿秒脉冲的脉宽均为 42 as. 当延迟相位为 -0.05π 时, 阿秒脉冲的强度最强. 此外, 从图中还可注意到, 时间超前的阿秒脉冲强度比时间延迟的阿秒脉冲要下降的快; 主脉冲附近均有一些强度较弱的卫星脉冲, 当延迟

相位为 -0.1π 时, 卫星脉冲与主脉冲强度之比最大, 其值为 1:4.4. 从上述分析可看出, 延迟相位从 0.05π 到 -0.05π 之间获得的孤立阿秒脉冲是最优化的. 实验上, 保证两束不同频率的激光脉冲完全同步难度是非常大的, 目前可以做到两束激光的延迟相位接近 $\pm 0.05\pi$. 因此, 我们的方案在实验上具有可操作性.

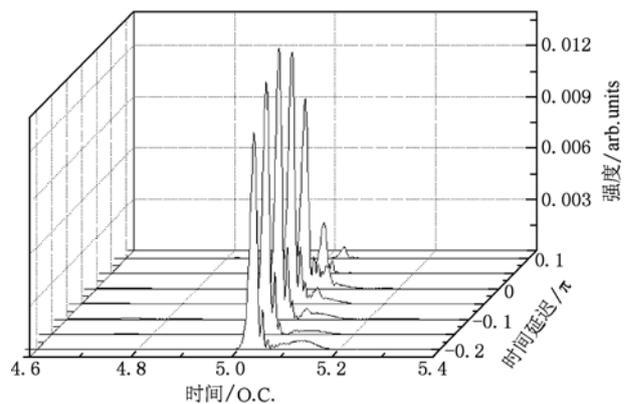


图 5 时间延迟对组合脉冲情形生成孤立阿秒脉冲的影响. 阿秒脉冲通过叠加 210 次谐波到 280 次谐波生成

4. 结 论

综上所述, 本文数值计算了 10 fs 的双色激光脉冲和 He⁺ 叠加态相互作用产生的谐波发射功率谱. 结果表明, 由于 1600 nm 波长激光的加入, 使得谐波截止频率由单色场情形下的 70 次谐波大幅度地展宽到 280 次谐波, 而且获得频宽为 108 eV 并由单一短量子路径贡献的连续辐射谱, 过滤该连续谱直接获得了脉宽为 38 as 的孤立脉冲, 其强度比单色场辐照基态情形提高了 11 个数量级. 研究还表明, 在本文的方案中, 两束激光脉冲的时间延迟 $\omega\tau_{\text{delay}}$ 可以在较宽的范围内调整, 延迟相位从 0.05π 到 -0.05π 之间获得的孤立阿秒脉冲, 脉冲持续时间均为 38 as, 且是最优化的, 这使得我们的方案在实验上具有可操作性.

[1] Sansone G, Benedetti E, Calegari F, Vozzi C, Avaldi L, Flammini R, Poletto L, Villoresi P, Altucci C, Velotta R, Stagira S, Silvestri S De, Nisoli M 2006 *Science* **314** 443
 [2] Corkum P B, Krausz F 2007 *Nature* **3** 381
 [3] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
 [4] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994

[5] Kienberger R, Goulielmakis E, Uiberacker M, Baltuska A, Yakovlev V, Bammer F, Scrinzi A, Westerwalbesloh Th, Kleineberg U, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2004 *Nature* **427** 817
 [6] 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
- [7] Zeng Z, Cheng Y, Song X, Li R, Xu Z 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 203901
- [8] Zhang G T, Liu X S 2009 *J. Phys. B* **42** 125603
- [9] Zhao S F, Zhou X X, Li P C, Chen Z 2008 *Phys. Rev. A* **78** 063404
- [10] Hong W, Lu P, Lan P, Yang Z, Li Y, Liao Q 2008 *Phys. Rev. A* **77** 033410
- [11] Zhai Z, Yu R F, Liu X S, Yang Y J 2008 *Phys. Rev. A* **78** 041402 (R)
- [12] Liu S, Chen G, Chen J G, Zhu Q R 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 1574 (in Chinese) [刘 硕、陈 高、陈基根、朱颀人 2009 物理学报 **58** 1574]
- [13] Li H S, Li P C, Zhou X X 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 7633 (in Chinese) [李会山、李鹏程、周效信 2009 物理学报 **58** 7633]
- [14] Chen J G, Chen G, Chi F P, Yang Y J 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 0236 (in Chinese) [陈基根、陈 高、池方萍、杨玉军 2010 物理学报 **59** 0236]
- [15] Chen J G, Chen G, Zeng S L, Yang Y J, Zhu Q R 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 4104 (in Chinese) [陈基根、陈 高、曾思良、杨玉军、朱颀人 2008 物理学报 **57** 4104]
- [16] 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]
- [17] Cheng D, Yu B H, Tang Q B 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 4564 (in Chinese) [陈 东、余本海、汤清彬 2010 物理学报 **59** 4564]

Isolated intense 38 attosecond pulse generation from the combined laser pulse irradiating the coherent superposition state*

Chen Ji-Gen^{1)†} Yang Yu-Jun²⁾ Yu Xu-Ping¹⁾ He Long-Jun¹⁾ Xu Yuan-Yuan¹⁾

1) (College of Physics and Electronic Engineering, Taizhou University, Taizhou 318000, China)

2) (Institute of Atomic and Molecular Physics, Jilin University, Changchun 130012, China)

(Received 17 June 2010; revised manuscript received 17 July 2010)

Abstract

A scheme to efficiently generate an intense short isolated attosecond pulse is presented by the combined laser pulse irradiating the coherent superposition state. The combined pulse is composed of a multi-cycle 800 nm laser and a 1600 nm one. Compared with the case of the fundamental laser irradiating the ground state, the cutoff position is significantly extended from 70th to 280th harmonic, a broadband supercontinuum spectrum with 108 eV spectral width can be produced which directly generates an isolated 38 attosecond pulse, the intensity of which is increased eleven orders of magnitude. Our simulation also shows that the value of the time delay has a large range to keep the isolated sub-50-as pulse generation. Moreover, the value of the time delay in the range between $\pm 0.05\pi$ is optimal. This result shows that the scheme appears feasible for an experimental demonstration.

Keywords: combined laser pulse, coherent superposition, isolated attosecond pulse

PACS: 32.80.Rm, 42.50.Hz

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10604021).

† E-mail: kiddchen@126.com