

中红外偏振态门驱动产生高效的极宽超连续谱*

刘昆陇 洪伟毅 王少义 张庆斌 陆培祥†

(武汉光电国家实验室, 华中科技大学, 武汉 430074)

(2010年7月13日收到; 2010年9月14日收到修改稿)

研究了在中红外偏振态门驱动下高效产生极宽超连续谱的过程. 利用波长为 2000 nm 的偏振态门激光场可以将电子的回复控制在半个光周期内, 并且将谐波谱的截止区拓展到 270 eV. 在偏振态门中加入 0.5 fs 的紫外控制脉冲, 可以对谐波的电离过程进行控制, 把谐波的强度提高了 4—5 个数量级, 并得到了谱宽为 240 eV 的极宽超连续谱. 该极宽超连续谱在傅里叶变换极限下支持脉宽仅为 16 as 的单个脉冲的产生. 通过过滤超连续谱中不同次数的谐波, 可以得到一系列波长可调的 110 as 的高强度单脉冲.

关键词: 高次谐波, 阿秒, 偏振态门, 超连续谱

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

1. 引言

阿秒脉冲的产生对于超快科学的发展有非常重要的意义, 作为一种具有极高分辨率的工具, 阿秒脉冲使得观察和控制原子内部电子的动力学过程成为可能^[1]. 由于高次谐波的频谱覆盖了从红外到软 X 射线波段, 于是高次谐波很快成为了实现阿秒脉冲产生的首选方案^[2-4], 也是目前唯一能在实验上获得阿秒脉冲的方案. 根据傅里叶变换极限可知, 带宽越宽的连续谐波谱有利于产生脉宽越窄的阿秒脉冲. 观测阿秒时间尺度的超快物理现象需要一个脉宽小于电子动力学过程的特征时间的单阿秒脉冲. 因此, 如何拓展高次谐波的超连续部分的谱宽从而获得更短脉宽的单阿秒脉冲成为了研究的焦点. 最近 Goulielmakis 等成功获得了低于 100 as 的单个脉冲^[5]. 在他们的实验中, 利用了脉宽极短 (3.3 fs) 的驱动光产生了 40 eV 的超连续谱, 但超连续谱的效率并不高, 而且驱动光的脉宽已经无法再进一步压缩, 因此如何获得更宽的超连续谱, 以支持产生脉宽小于一个原子单位 (约 24 as) 的阿秒脉冲, 仍然是一个极大的挑战.

高次谐波的辐射机理可以通过 Corkum^[6] 提出的半经典“三步模型”来解释: 电离, 加速, 复合. 当

电子与原子核复合的时候, 将会辐射出一个光子, 光子的能量等于电子回复时的动能与电子的电离能之和. 该模型表明谐波辐射的时频特性是由电子在电场中的运动情况决定的. 高次谐波辐射的这种性质暗示了: 可以通过在谐波辐射过程中独立地或者同时地控制不同步骤的电子动力学过程, 从而达到产生超连续谱的目的. 有报道指出, 波形可控的双色场可以控制电子在电场中的加速过程, 并加大了半个光周期内辐射的光子的最大能量与次大能量之差, 从而获得带宽为几十个电子伏特的超连续谱^[7-9], 但这种方式产生的超连续谱的强度比谐波谱平台区的强度要低很多^[10]. Lan 等^[11] 发现利用双色场也可以控制电子的电离过程, 将之称为“电离门”: 电离率的峰值可以约束在半个光周期内, 峰值强度得到了增加, 并有效地提高了超连续谱的强度. 另外一种可以有效控制谐波辐射过程中的电子动力学的方法是偏振态门技术^[12]. 这种技术是基于“谐波的效率强烈依赖于驱动电场的椭圆率”这一原理的^[13]. 利用椭圆率随时间变化的偏振态激光场, 可以将电子的回复限制在半个光周期内并在平台区产生超连续谱^[14-17]. 最近, Mashiko 等提出了一种新技术, 称为“双光门”技术. 他们结合了电离门和偏振态门技术, 同时控制电子的电离过程和复合过程, 从而直接产生高效

* 国家自然科学基金 (批准号: 10904045) 资助的课题.

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

的宽带超连续谱^[18].

由于有质动力能与驱动场的波长平方成正比,所以采用中红外的驱动脉冲有利于拓展谐波的截止区和增加超连续谱的带宽^[19].但是,谐波的转换效率与驱动光波长的5—6次方成反比(相同强度下)^[20],波长较长的驱动光很不利于产生高强度的超连续谱,进而降低了通过超连续谱所对应的阿秒脉冲的强度.低强度的阿秒脉冲将会大大限制它在实验研究中的应用.有报道指出,在驱动场中加入紫外控制脉冲可以触发电离过程,增加电子波包的产生效率,从而提高了谐波的强度^[10, 21].在中红外驱动场的作用下,由于电离率很低^[22],在加入紫外控制脉冲之后,谐波的强度将会更加显著地提高.本文研究了中红外偏振态门驱动下的紫外脉冲辅助的高次谐波辐射过程.利用紫外脉冲和偏振态门分别对电子的电离步骤和回复步骤进行控制.通过对谐波辐射过程进行经典分析,选择恰当的时刻加入紫外脉冲,使超连续谱的效率的提高达到最佳效果,最终获得了带宽为240 eV的超连续谱,并且超连续谱的强度提高了4—5个数量级.在傅里叶变换极限下,该超连续谱对应了脉宽仅为16 as的单脉冲.通过过滤该超连续谱上不同阶次的谐波,可以得到一系列波长可调的高强度的110 as单脉冲.

2. 计算结果和讨论

本文中的偏振态门是通过两束波长为2000 nm、脉宽为20 fs、相对延迟同为20 fs的左旋和右旋的圆偏振高斯脉冲叠加产生的^[23, 24].两个脉冲的强度均为 $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$,载波包络相位均为 $\pi/2$.假设脉冲是沿着z方向传播,那么这两个脉冲的合成脉冲在x方向和y方向的电场强度分别为

$$\begin{aligned} E_{x,\omega_0}(t) = & E_0(e^{-2\ln(2)(t-T_d/2)^2/\tau_p} \\ & + e^{-2\ln(2)(t+T_d/2)^2/\tau_p}) \\ & \times \cos(\omega_0 t + \phi_{CE})\mathbf{x}. \end{aligned} \quad (1)$$

$$\begin{aligned} E_{y,\omega_0}(t) = & E_0(e^{-2\ln(2)(t-T_d/2)^2/\tau_p} \\ & - e^{-2\ln(2)(t+T_d/2)^2/\tau_p}) \\ & \times \sin(\omega_0 t + \phi_{CE})\mathbf{y}. \end{aligned} \quad (2)$$

其中, E_0 为脉冲电场强度, ω_0 为圆频率, τ_p 为脉冲宽度, ϕ_{CE} 为载波包络相位. T_d 是两个脉冲的相对延时.这里我们把激光场的周期 $T_0 = 2\pi/\omega_0$ 定义为一个光周期.为了研究偏振态门驱动的紫外脉冲辅助的高次谐波辐射过程,我们采用了一个波长100

nm、脉宽0.5 fs、强度为 $3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 的紫外控制脉冲.该脉冲的电场表示为

$$\begin{aligned} E_{uv}(t) = & E_{uv} e^{-2\ln(2)(t-T_{duv})^2/\tau_{puv}^2} \\ & \times \cos(\omega_{uv}(t - T_{duv}))\mathbf{x}. \end{aligned} \quad (3)$$

其中, $E_{uv}, \omega_{uv}, \tau_{puv}$ 分别为紫外脉冲的强度、频率和脉宽, T_{duv} 是紫外脉冲与偏振态门之间的相对延时.

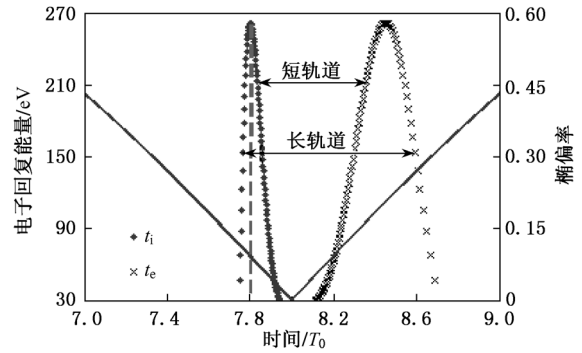


图1 经典分析得到的电子回复能量与电子的电离时间和谐波的发射时间之间的关系 其中实线表示激光场的椭偏率随时间的变化

为了清楚地展现本文的电子动力学控制方案,首先对中红外偏振态门驱动下的经典电子动力学过程进行分析.图1给出了用“三步模型”计算得到的电子回到原子核附近时的回复能量与电子的电离时间 t_i 和回复时间 t_e (也就是谐波的发射时间)之间的关系.图1中的实线表示激光场的椭偏率随时间 T_0 的变化.从图1中可以看出,电子只有在椭偏率很低的时候才能与原子核复合.这是由于当椭偏率较大的时候,电子受横向(y方向)电场的作用而作横向漂移,导致不能与母离子复合;而当椭偏率较小的时候,激光场接近线偏振光,此时电子在电场作用下加速后能够与母离子复合并发射谐波.由于电子的回复被限制在半个光周期内,从图1中可以看到电子回复时所发射的谐波将会产生一个超连续谱,并且超连续谱的谱宽可以达到240 eV.不过对于该超连续谱,每次谐波对应了两个发射时间,分别来自长轨道和短轨道的贡献,如图1的标记所示.长短轨道之间的干涉会导致超连续谱中出现调制结构.这种干涉对于用超连续谱来产生超短的单阿秒脉冲是很不利的.从图1还可以得到一个重要信息,那就是长短轨道电子的电离时刻分别发生在 $t = 7.8T_0$ 之前和之后.

如图2(a)所示,在 $t = 7.8T_0$ 时刻,我们在偏振态门激光场中加入一个紫外短脉冲.图2(b)给出了偏振态门中加入紫外脉冲后的电离概率随时间的

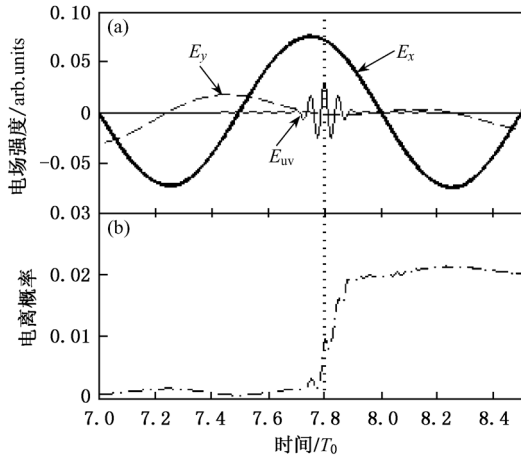


图2 激光电场及电离概率曲线 (a)中红外偏振态门在 x 方向和 y 电场,以及紫外控制脉冲电场;(b)在偏振态门中加入紫外脉冲后的电子电离概率随时间的变化

变化,可见在加入紫外脉冲之前电离率非常低,而加入之后电离率迅速增加. 因此,在 $t = 7.8T_0$ 之后电离的短轨道电子的电离率得到了很大提高,从而大大增加了这部分电子所对应的谐波强度. 相对而言,长轨道电子对应的谐波强度要弱很多. 此外,由于长轨道电子的渡越时间比短轨道电子要长,考虑到电子波包的扩散效应,长轨道电子所贡献的谐波强度将会更低. 因此短轨道电子的回复将在谐波的辐射过程中起主导作用,并导致一个光滑的超连续谱的产生. 总体而言,在我们方案中,利用中红外的偏振态门很好地把电子的回复限制在半个光周期之内,并在适当时刻加入紫外脉冲,不仅可以提高谐波的强度,还可以选择量子轨道,从而产生支持单个阿秒脉冲的极宽的宽带超连续谱.

为了验证上述方案,我们接下来通过求解二维含时薛定谔方程来研究在单电子近似下的原子与激光场的相互作用,其理论模型见文献[25]. 图3(a)给出了氦原子在激光场驱动下产生的谐波谱,其中深色粗线表示偏振态门加紫外脉冲作用下的谐波谱,浅色细线则表示只在偏振态门作用下的谐波谱. 从图3中可以看出,在加入紫外脉冲之前,平台区上的谐波强度 I 相对很低,这是由于电离率很低而导致的;平台区上的超连续谱有很深的调制结构,这正是前面提到过的长短轨道的相互干涉的结果. 当在偏振态门中的适当时刻($t = 7.8T_0$)加入紫外控制脉冲之后,谐波的强度提高了4—5个数量级. 超连续谱从50次谐波一直延伸到截止区的440次谐波,整个谱宽达到240 eV. 并且整个平台区变

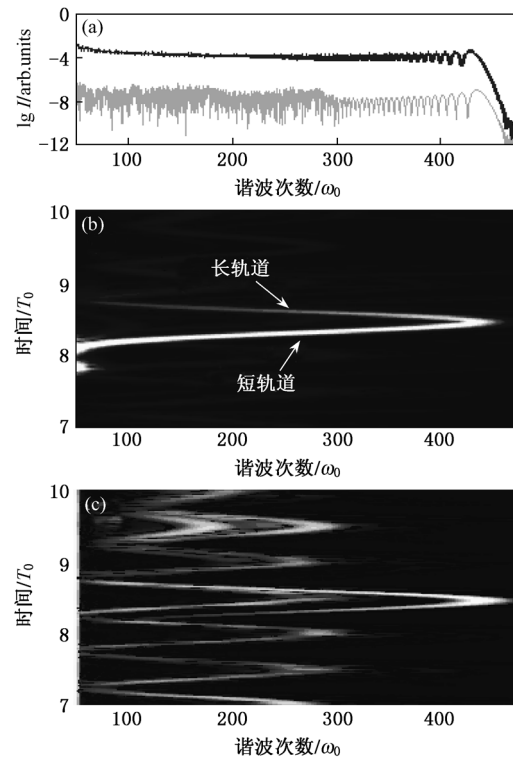


图3 谐波谱及时频结构图 (a)中红外偏振态门驱动氦原子产生的谐波谱,粗线和细线分别表示加入紫外脉冲和没加紫外脉冲的情况;(b),(c)分别是加入紫外脉冲情况下和不加紫外脉冲情况下谐波信号的时频结构

得很光滑和规则,调制结构也大大地减小了. 结合前文的经典分析可以知道,这是由于在加入紫外脉冲之后,短轨道电子的电离率大大地提高了. 通常在电离率很低的情况下,谐波的强度主要由电离率来决定. 因此短轨道电子对应的谐波强度得到了很大的提高,对超连续谱的产生起主导作用,而相对而言长轨道电子则贡献很少. 值得注意的是,由于紫外脉冲的边缘效应,截止区附近的长轨道谐波也得到一定程度的增强,长短轨道发生干涉从而使得超连续谱在截止区附近产生了较小的调制结构.

为了更深入地理解我们这个方案中的超连续谱的时间频率特性,我们通过时频分析的方法给出了谐波信号的辐射时间与谐波阶次的关系,如图3(b)所示. 作为对比,图3(c)给出了没加紫外脉冲情况下谐波信号的时频结构. 对比图3(b)和(c)可以明显看到,在加入紫外脉冲后,只有在 $t = 8.3T_0$ 附近有一个很高的峰,并且从50次到440次谐波辐射都主要源于该峰;对于这个峰,短轨道对应的谐波强度很明显比长轨道的要强很多,也就是说,短轨道电子对谐波辐射起主导作用. 从图3(b)

和(c)中还可以看到,在谐波截止区附近,长轨道对应的谐波确实得到了一定的增强,但相对短轨道谐波而言,长轨道谐波的强度仍然是比较低的.因此,根据时频分析图,我们可以得到这样的结论:从50次到440次谐波是连续的,形成一个谱宽为240 eV的极宽的超连续谱,而在截止区附近存在较小的调制结构.这些结论与图3(a)中所给出的谐波谱是一致的.

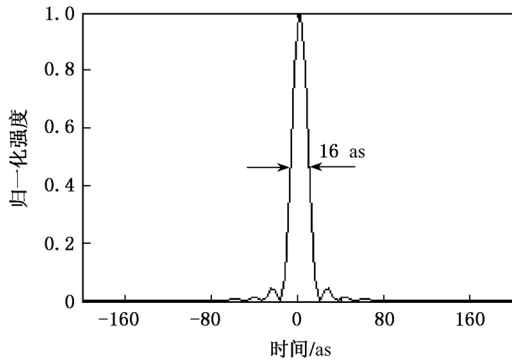


图4 傅里叶变换极限下240 eV超连续谱所对应单阿秒脉冲(假设相位一致)

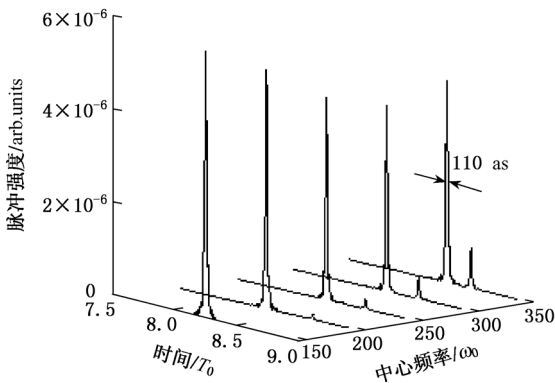


图5 以不同中心频率过滤出超连续谱中37 eV的谐波进行叠加得到的一系列波长可变的阿秒脉冲

超连续谱的时域特性是更加让人关注的问题.我们得到的超连续谱的谱宽达到240 eV,但由于高次谐波的产生过程决定了辐射信号必定存在啁啾,

因此直接选择整个连续谱并不能得到一个很窄的阿秒脉冲,必须通过选择适当的色散材料来补偿啁啾才能选择更宽的带宽,如Sansone等^[14]成功地利用薄铝片的负色散性质补偿了短轨道产生谐波时所伴随的正啁啾,获得了130 as的单个脉冲输出.根据Zheng等^[26]最近提出的啁啾补偿的新技术,通过在驱动场中加入倍频场,并适当调节两者之间的延时,可以对超宽带连续谱进行啁啾补偿.啁啾补偿后选择整个240 eV的超连续谱,并假设谐波的相位一致,所得到的单阿秒脉冲如图4所示.阿秒脉冲的脉宽仅为16 as,低于一个原子单位(约24 as).在没有啁啾补偿的情况下,也可以通过过滤该超连续谱上不同阶次的谐波,产生一系列波长可调的单阿秒脉冲.如图5所示,以不同的中心频率过滤出超连续谱中带宽为37 eV的谐波进行叠加,得到了中心波长为5.7—13.3 nm的110 as的单脉冲.对于所得到的波长较短的阿秒脉冲,在主脉冲旁边出现一个子脉冲,这是由于长轨道电子引起的,但子脉冲的强度不到主峰的1/5,因此相对来说可以忽略不计.波长可调的单阿秒脉冲在毫微光刻、高分辨率的层析X射线摄影以及远紫外干涉测量等领域都有重要的应用.

3. 结 论

研究了中红外偏振态门驱动下紫外脉冲辅助的高次谐波辐射过程.利用了高次谐波产生效率对激光场椭圆偏率的依赖性以及紫外脉冲对电离的可触发性这两个性质,对谐波辐射过程中的电子电离及其回复过程进行控制.中红外驱动光拓展了谐波谱的截止区,而紫外脉冲提高了谐波的效率,并且选择了短轨道,获得了平滑的、调制很小的240 eV超连续谱,对应的傅里叶极限脉冲宽度为16 as.通过过滤超连续谱上不同中心频率的部分谐波,可得到波长可调的110 as的高强度单脉冲.

[1] Kienberger R, Goulielmakis E, Uiberacker M, Baltuska A, Yakovlev V, Bammer F, Scrinzi A, Westerwalbesloh Th, Kleineberg U, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2007 *Nature* **427** 817
 [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, Breger 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、徐志展 2004 物理学报 **53** 2316]
 [5] 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
- [6] Corkum P 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [7] Cao W, Lu P X, Lan P F, Wang X L, Yang G 2007 *Opt. Express* **15** 530
- [8] Lan P F, Lu P X, Li Q G, Li F, Hong W Y, Zhang Q B 2009 *Phys. Rev. A* **79** 043413
- [9] Zheng Y H, Zeng Z N, Li X F, Chen X W, Liu P, Xiong H, Lu H, Zhao S T, Wei P F, Zhang L, Wang Z G, Liu J, Cheng Y, Li R X, Xu Z Z 2008 *Opt. Lett.* **33** 234
- [10] Hong W Y, Li Y H, Lu P X, Lan P F, Zhang Q B, Wang X B 2008 *J. Opt. Soc. Am. B* **25** 1684
- [11] Lan P F, Lu P X, Cao W, Li Y H, Wang X L 2007 *Phys. Rev. A* **76** 021801
- [12] Chang Z 2004 *Phys. Rev. A* **70** 043802
- [13] Zhang Q B, Hong W Y, Lan P F, Yang Z Y, Lu P X 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 7848 (in Chinese) [张庆斌、洪伟毅、兰鹏飞、杨振宇、陆培祥 2008 物理学报 **57** 7848]
- [14] Sansone G, Benedetti E, Calegari F, Vozzi C, Avaldi L, Flammini R, Poletto L, Villoresi P, Altucci C, Velotta R, Stagira S, De Silvestri S, Nisoli M 2006 *Science* **314** 433
- [15] Sola I J, Mével 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 *Nat. Phys.* **2** 319
- [16] Tzallas P, Skantzakis E, Kalpouzos C, Benis E P, Tsakiris G D, Charalambidis D 2007 *Nat. Phys.* **3** 846
- [17] Oron D, Silberberg Y 2006 *Phys. Rev. A* **72** 063816
- [18] Mashiko H, Gilbertson S, Li C, Khan S D, Shakya M M, Moon E, Chang Z 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 103906
- [19] Hong W, Lu P, Li Q, Zhang Q 2009 *Opt. Lett.* **34** 2102
- [20] Tate J, Auguste T, Muller H G, Salières P, Agostini P, DiMauro L F 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 013901
- [21] Lan P F, Lu P X, Cao W, Wang X L 2007 *Phys. Rev. A* **76** 043808
- [22] Takahashi E, Kanai T, Ishikawa K, Nabekawa Y, Midorikawa K 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 253901
- [23] Teherbakoff Q, Mével E, Descamps D, Plumridge J, Constant E 2003 *Phys. Rev. A* **68** 043804
- [24] Shan B, Ghimire S, Chang Z 2005 *J. Mod. Opt.* **52** 277
- [25] Hong W Y, Yang Z Y, Lan P F, Zhang Q B, Li Q G, Lu P 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]
- [26] Zheng Y H, Zeng Z N, Zou P, Zhang L, Li X F, Liu P, Li R X, Xu Z Z 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 043904

Efficient generation of ultra-broadband supercontinuum in the mid-infrared polarization gating*

Liu Kun-Long Hong Wei-Yi Wang Shao-Yi Zhang Qing-Bin Lu Pei-Xiang[†]

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

(Received 13 July 2010; revised manuscript received 14 September 2010)

Abstract

We theoretically investigate the process of the efficient ultra-broadband supercontinuum generation in the mid-infrared polarization gating. The polarization gating at 2000 nm is adopted to restrict the recombination of the electron into one-half optical cycle and extend the spectrum cut-off to 270 eV. And a 0.5 fs ultraviolet pulse is synthesized to the polarization gating to control the ionization process. Then the harmonic intensity is enhanced by 4—5 orders, and a 240eV supercontinuum is obtained, supporting a 16 as pulse generation. By filtering out different ranges of the supercontinuum, isolated 110 as pulses with tunable central wavelengths are efficiently generated.

Keywords: high harmonic generation, attosecond, polarization gating, supercontinuum

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

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10904045).

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