

# 三色激光控制量子路径生成短于 30 阿秒的孤立脉冲\*

陈基根<sup>1)†</sup> 曾思良<sup>2)</sup> 杨玉军<sup>3)</sup> 程超<sup>1)</sup>

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) (北京应用物理与计算数学研究所计算物理重点实验室, 北京 100088)

3) (吉林大学原子与分子物理研究所, 长春 130012)

(2011 年 9 月 13 日收到; 2011 年 10 月 29 日收到修改稿)

采用多周期的 800 nm 钛宝石激光组合 1600 nm 中红外脉冲辐照氦离子产生高次谐波发射功率谱. 相对于单色场情形, 谐波谱出现明显的双平台结构, 且在第二平台区出现了光滑的连续辐射谱, 其转化效率相对于第一平台低了约两个数量级. 通过附加脉宽为 1 fs 的 27 次谐波脉冲到双色激光场的特定时域, 可以控制电子电离在半个光学周期内迅速提升, 获得了由单一短量子路径贡献的连续辐射谱, 使得第二平台区谐波的转化效率相对于组合场情形增强 4 个数量级, 且连续谱的频谱范围从第二平台区扩展到第一平台区, 叠加该连续谱 190 次到 285 次谐波生成了脉宽为 29 as 的强、短孤立脉冲.

**关键词:** 组合激光, 谐波脉冲, 阿秒脉冲

**PACS:** 32.80.Rm, 42.50.Hz

## 1 引言

阿秒脉冲能够追踪、控制原子和分子中电子运动的超快过程, 因此阿秒脉冲的产生吸引了人们极大的兴趣<sup>[1-3]</sup>. 利用高次谐波辐射是目前获取阿秒脉冲的主要方法, 根据 Corkum 等人提出的“三步”模型<sup>[4]</sup>, 谐波辐射可分为电子的电离、加速和复合三个子过程, 当电离电子和基态复合时, 放出高能光子, 光子的频率等于电子复合时的动能加上原子的电离能. 为了获取孤立的阿秒脉冲, 人们基于高次谐波提出了很多方法, 例如采用载波相位稳定且只有几个光学周期的驱动脉冲<sup>[5]</sup>、双色激光脉冲<sup>[6-12]</sup>、偏振门技术<sup>[1]</sup>和双光学门技术<sup>[13]</sup>等等. 最近, 人们利用双色激光脉冲控制量子路径方案不断取得突破, 孤立阿秒脉冲的持续时间已接近一个时间原子单位. 但是, 在双色激光脉冲方案中,

由于连续辐射谐波是电子在双色激光电场中较弱的电场峰值处电离, 然后再和基态复合形成, 导致连续谐波的转化效率不高, 相应地, 利用该区域谐波生成的阿秒脉冲强度较弱.

利用紫外阿秒脉冲较短的脉冲宽度和较高的单光子频率特性是提高阿秒脉冲强度的一个行之有效方法. 通过紫外阿秒脉冲或谐波脉冲可以控制电离电子的动力学过程, 增强特定时域电子的电离, 从而使连续谐波和阿秒脉冲的产额明显增强. Zhang 等人将 0.5 fs/29.6 nm 阿秒脉冲注入到 5 fs/800 nm 激光和 10 fs/1200 nm 双色激光场中, 得到了 39 as 的强孤立脉冲<sup>[14]</sup>. Du 等人在少周期的 800 nm 激光和低频场构成的组合场中加入 27 次谐波脉冲, 获得了 24 as 的孤立脉冲<sup>[15]</sup>. 在上述双色场附加紫外阿秒脉冲或谐波脉冲方案中, 基频驱动激光脉冲都是采用载波相位稳定的少周期的 800 nm 钛宝石激光, 这目前在大多数实验室中

\* 国家自然科学基金 (批准号: 10904006), 浙江省自然科学基金 (批准号: Y6110578) 和中国工程物理研究院科学技术发展基金 (批准号: 2011B0102026) 资助的课题.

† E-mail: kiddchen@aphy.iphy.ac.cn

获取有很大难度。

为此, 本文采用多周期的 800 nm 钛宝石激光组合 1600 nm 中红外脉冲辐照氦离子产生高次谐波发射功率谱. 结果表明, 相对于单色场情形, 谐波谱出现明显的双平台结构, 且在第二平台区出现了光滑连续的辐射谱, 其谐波转化效率相对于第一平台低了两个数量级. 为提高连续谐波转化效率, 将脉宽为 1 fs 的 27 次谐波脉冲附加到双色激光场的特定时域, 使得第二平台区谐波的转化效率相对于双色场情形增强了 4 个数量级, 连续谱频率范围从第二平台区扩展到第一平台区, 且由单一的短量子路径贡献形成, 叠加该连续谱 190 次到 285 次谐波生成了脉宽为 29 as 的强、短孤立脉冲.

## 2 理论方法

在电偶极近似和长度规范下, 强激光和原子相互作用的一维含时薛定谔方程为 (若无特殊说明, 本文均采用原子单位)

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

对上述方程采用 Crank-Nicholson 数值积分方法<sup>[16]</sup>进行求解, 在实际计算中, 空间边界取  $\pm 1600$ , 同时为避免电离电子波包在边界上的非物理反射, 加入了  $\cos^{1/8}$  形式的包络函数<sup>[17]</sup>. 方程 (1) 中  $V(x)$  采用长程的软化库仑势<sup>[18]</sup>

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

这里  $q = 2.0$  和  $a = 0.5$  对应氦离子基态电离能 54.4 eV. 线偏振的三色激光脉冲电场为

$$F(t) = f(t) [E_0 \cos(\omega_0 t) + E_1 \cos(\omega_1 t + \phi) + E_{xuv} f(t - \tau_{\text{delay}}) \times \cos[\omega_{xuv}(t - \tau_{\text{delay}})]], \quad (3)$$

其中  $\omega_0, \omega_1$  分别为 800 nm 和 1600 nm 激光的中心频率,  $\phi$  为相对相位, 本文令其为  $\pi$ ,  $E_0, E_1$  分别为两束激光脉冲的电场峰值.  $f(t)$  为激光脉冲的包络, 采用  $\sin^2$  的形式, 脉冲的半高全宽为 10 fs.  $\omega_{xuv}, E_{xuv}$  分别为 27 次谐波脉冲的频率和电场峰值,  $\tau_{\text{delay}}$  为谐波脉冲相对于基频驱动激光脉冲的时间延迟.

通过数值求解方程 (1) 可得体系在任意时刻的含时波函数  $\psi(x, t)$ , 然后对体系加速度的偶极矩<sup>[19]</sup>

$$d_A(t) = -\left\langle \psi(x, t) \left| \frac{dV(x)}{dx} \right| \psi(x, t) \right\rangle - F(t). \quad (4)$$

进行 Fourier 变换可得加速度形式的谐波发射功率谱<sup>[20]</sup>

$$P_a(\omega) = \left| \frac{1}{(t_f - t_i)\omega^2} \int_{t_i}^{t_f} d_A(t) e^{-i\omega t} dt \right|^2. \quad (5)$$

其中,  $t_i, t_f$  为 Fourier 变换的初、末时刻. 对加速度偶极矩进行相应的小波变换, 则可得到某一次谐波的时域特征, 即频率为  $\omega$  的谐波在  $t$  时刻的发射功率幅值为

$$d_\omega(t) = \int d_A(t') \omega_{t,\omega}(t') dt'. \quad (6)$$

其中小波核为  $\omega_{t,\omega}(t') = \sqrt{\omega} W(\omega(t' - t))$ . 本文采用 Morlet 小波<sup>[21]</sup>

$$W(x) = \frac{1}{\sqrt{\tau}} e^{ix} e^{-\frac{x^2}{2\tau^2}}. \quad (7)$$

该小波变换的窗口函数是随着频率变化而变化的函数, 并且窗口中的振荡数是恒定值.

## 3 结果与分析

图 1 中的黑、灰实线分别给出了单色及双色激光脉冲辐照  $\text{He}^+$  生成的高次谐波发射功率谱. 单色激光脉冲为 10 fs 的钛宝石激光, 强度为  $1.4 \times 10^{15} \text{ Wcm}^{-2}$ ; 双色激光脉冲由 10 fs/800 nm 和 10 fs/1600 nm 的激光组合而成, 峰值强度分别为  $1.4 \times 10^{15} \text{ Wcm}^{-2}$ ,  $3.16 \times 10^{13} \text{ Wcm}^{-2}$ . 这里, 采用的 10 fs/1600 nm 的激光脉冲, 可以利用光参量放大技术获得<sup>[22]</sup>. 从图 1 中观察到, 单色场谐波谱的截止位置约为 207 次, 这与  $I_P + 3.2U_P$  ( $I_P$  为  $\text{He}^+$  电离能,  $U_P = E^2/(4\omega_0^2)$  为 800 nm 激光脉冲的有质动力能) 的截止规则相符合. 从图 1 还可进一步注意到, 靠近截止位置附近的单色谐波谱呈现明显的分立峰值结构, 这种分立性源于不同电离时刻的电离电子对同一次谐波相互干涉形成. 因此, 叠加平台尾部的谐波可以获得阿秒脉冲串. 然而, 对于双色激光脉冲情形, 由于较弱的 1600 nm 红外激光加入, 谐波谱的截止频率展宽到约 291 次. 而且, 双色谐波谱具有明显的双平台结构, 在第二平台区呈现出光滑有规则连续辐射谱. 为解释上述双色激光脉冲谐波谱的特性, 本文利用半经典的“三步”模

型研究了电离电子的动力学过程.

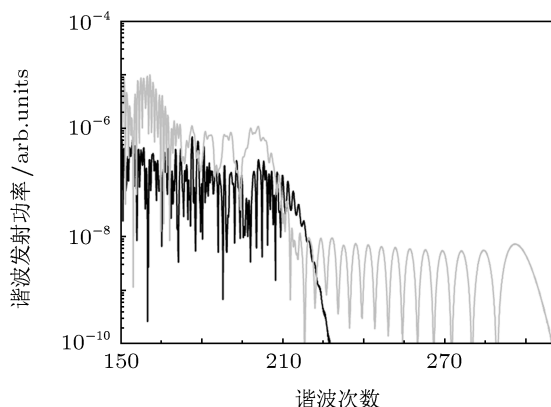


图 1 单色激光脉冲 (黑实线) 和双色组合激光脉冲 (灰实线) 辐照氩离子产生的高次谐波发射功率谱. 单色激光脉冲为 10 fs/800 nm 的钛宝石激光, 强度为  $1.4 \times 10^{15} \text{ Wcm}^{-2}$ , 双色激光脉冲由 10 fs/800 nm 和 10 fs/1600 nm 的激光合成, 峰值强度分别为  $1.4 \times 10^{15} \text{ Wcm}^{-2}$ ,  $3.16 \times 10^{13} \text{ Wcm}^{-2}$

图 2(a) 给出了谐波随电离时刻 (空心三角曲线) 及复合时刻 (实心圆曲线) 的变化关系. 从图 2(a) 观察到, 电子在 4.512 个 800 nm 光学周期电离时, 可以产生截止谐波 291 次 (用字母 A 标出), 这和图 1 双色场谐波谱的第二平台截止频率相一致. 当电子在 3.0 个光学周期电离时, 电离电子与基态复合时具有约为 275.8 eV 的第二高复合动能, 对应的谐波次数为 213 次 (用字母 B 标出). 电子在 4.014 个光学周期电离时, 生成 203 次谐波 (用字母 C 标出), 这与双色谐波谱的第一平台截止位置基本符合. 从图 2(a) 中可以看到, 对于 213 次到 293 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, 如图 2(a) 中所示, 这导致了连续辐射谱的产生. 此外, 有两个长量子路径和一个短量子路径对 203 次到 213 次之间的谐波有贡献. 而对于低于 203 次的谐波, 则至少有五个量子路径对其有贡献. 这是双色场谐波谱双平台结构的产生原因之一. 图 2(b) 给出了由 ADK 模型<sup>[23]</sup> 计算得到的归一化电离率和组合激光脉冲电场. 从图中可以观察到, 第二平台区谐波 (图 2(a) 中高于 B 峰以上的谐波) 对应的电离率要低于 D 峰对应的电离率, 而 D 峰与 C 峰的谐波高度相当, 这是导致双平台结构的另一个重要因素. 另外, 从图 2(b) 中还可观察到, 对于第二平台区谐波, 长路径的电离率比短路径的相对高一点点. 这说明, 在双色激光脉冲情形, 长、短两个量子路径对连续谐波的贡献相当. 图 3 给出了双

色激光脉冲情形连续辐射谱的时频特性. 从图中可以清晰地看到, 只有一个峰对其有贡献, 且此峰的右分支 (对应于图 2 中的长路径) 强度比左分支 (对应于图 2 中的短路径) 的要强一些, 这和“三步”模型计算分析得到的结果相一致.

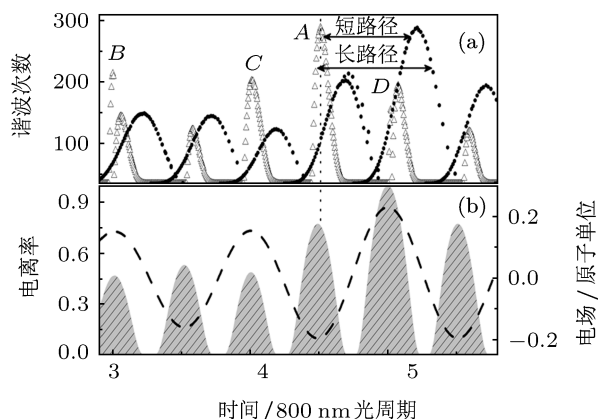


图 2 双色组合脉冲情形 (a) 谐波随电离时刻 (空心三角曲线) 和复合时刻 (实心圆曲线) 的变化关系; (b) 用 ADK 模型<sup>[23]</sup> 计算得到的归一化电离率 (灰色区域) 和双色组合激光脉冲电场 (虚线)

从图 2、图 3 的分析中可以看出, 附加弱的 1600 nm 中红外激光脉冲, 可以获得连续辐射谱, 但由于有两个量子路径对每一次谐波有贡献, 因此, 叠加这些连续谐波也只能获得阿秒脉冲串. 此外, 连续谐波的转换效率不高, 导致生成的阿秒脉冲强度不强. 为获得强、短孤立阿秒脉冲, 我们设想在双色组合激光脉冲的基础上, 附加紫外阿秒脉冲控制电子的电离动力学过程, 使得只有一个量子路径对连续辐射谱谐波有贡献, 同时产生连续谐波的电离产额明显增强. 从图 2(a) 可以观察到, 双色激光脉冲的连续谐波主要在 4.5 个基频光学周期附近的半个光学周期内电离产生. 为此, 我们在基频场的 4.6 个光学周期处叠加 1 fs 的 27 次谐波脉冲, 使得只有一个短量子路径对连续谐波有贡献.

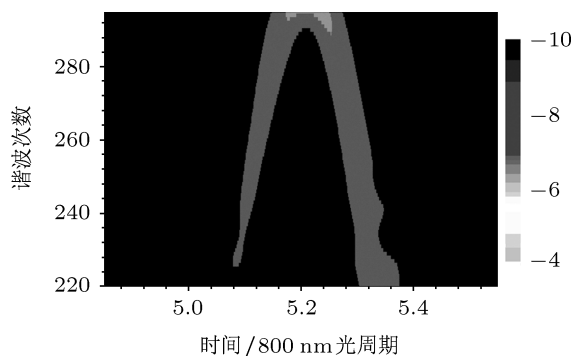


图 3 双色组合脉冲谐波谱的时频分析图

图 4 给出了双色激光场附加谐波脉冲之后获得的高次谐波发射功率谱 (如图黑实线所示), 谐波脉冲的强度为  $8.8 \times 10^{13} \text{ Wcm}^{-2}$ . 为了比较, 图 4 也给出了双色激光脉冲的谐波谱, 如图中灰实线所示. 从图 4 可以看到, 谐波脉冲的加入, 使得整个谐波谱抬高, 且只存在一个谐波平台. 相应的连续谱谐波发射效率增强了将近 4 个数量级, 而且连续谱的范围扩大, 展览到双色激光脉冲谐波谱第一平台区的尾部. 图 5 给出了三色激光脉冲 150 次谐波到 290 次谐波的时频分析谱. 从图中可以清晰得看到, 只有一个峰对 190 次到 290 次谐波有贡献, 且该峰的左分支强度明显强于右分支, 说明主要是一个短量子路径对这些谐波有贡献. 从图 5 中还可观察到, 这些谐波几乎是同时发射, 表明这些谐波相位锁定, 可以用来生成孤立的阿秒脉冲.

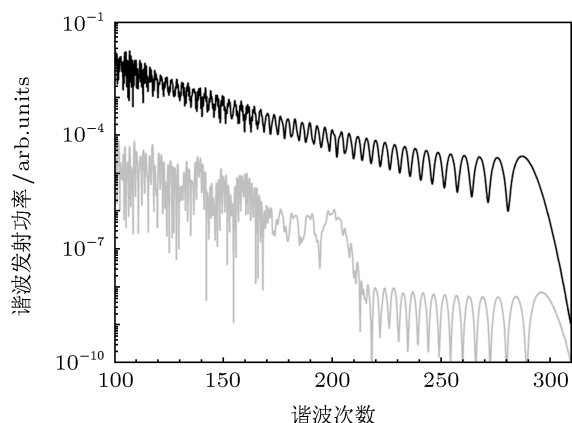


图 4 双色组合激光脉冲 (灰实线) 及附加 27 次谐波脉冲 (黑实线) 产生的高次谐波功率谱. 谐波脉冲脉宽为 1 fs, 强度为  $8.8 \times 10^{13} \text{ Wcm}^{-2}$ , 双色激光脉冲参数同图 1

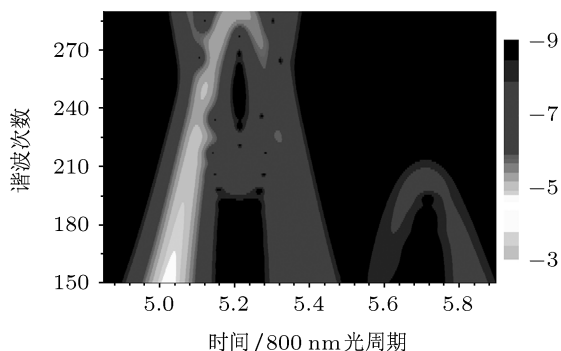


图 5 三色组合激光脉冲谐波谱的时频分析图

图 6 给出了叠加三色激光脉冲谐波 190 次到 285 次获得的阿秒脉冲, 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. 为了比较,

图 6 中右下角的框图给出了由单色场 207 次到 219 次间的奇次谐波叠加生成的阿秒脉冲时域特征. 可以清楚地看到, 单色场情形产生了一个阿秒脉冲链, 每半个基频光学周期有两个相邻的光脉冲. 然而, 在三色激光脉冲情形, 一个孤立阿秒脉冲可以获得, 脉冲持续时间约为 29 as, 其强度比单色场情形提高了将近 8 个数量级.

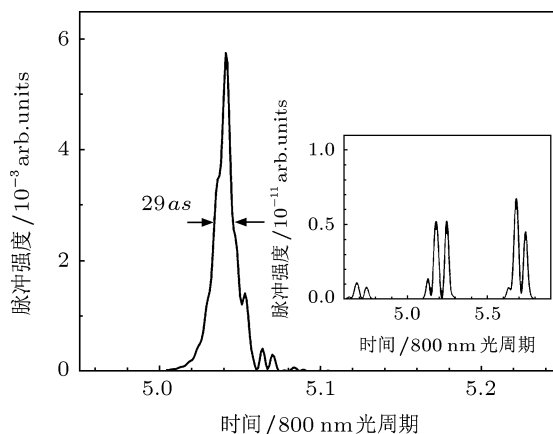


图 6 三色激光脉冲情形叠加 190 次到 285 次谐波生成的孤立阿秒脉冲. 右下角框图为单色激光脉冲情形叠加 207 次到 219 次谐波生成的阿秒脉冲时域包络

此外, 本文还研究了 H27 次谐波脉冲强度对阿秒脉冲强度的影响. 随着 H27 次谐波脉冲强度的增强, 电离产额逐渐增大, 谐波转化效率提高, 相应的阿秒脉冲强度增强. 但是, H27 次谐波脉冲强度过强时, 会导致  $\text{He}^+$  基态全部电离, 由于谐波产生过程是个受激复合过程, 基态的耗尽使得谐波效率降低, 相应的阿秒脉冲强度也会下降.

## 4 结论

综上所述, 本文数值研究了多周期的 800 nm 钛宝石激光组合 1600 nm 中红外脉冲辐照氦离子产生的高次谐波发射功率谱. 相对于单色驱动激光脉冲情形, 谐波截止频率得到明显展宽, 谐波谱出现了双平台结构, 但第二平台的谐波转化效率比第一平台低了两个数量级. 为此, 利用紫外阿秒脉冲超短脉宽且具有高单光子频率特性, 在双色组合激光脉冲的特定时间域叠加 27 次谐波脉冲, 使得电离主要在 4.5 个基频光学周期附近的半个光学周期内产生, 且只有一个短量子路径对连续辐射谱有贡献, 从而获得强、短孤立阿秒脉冲. 结果表明, 27 次谐波脉冲的加入, 使得第二平台区谐波效率相对于双

色场情形提高了四个数量级,且连续谱的频谱范围从第二平台扩展到第一平台,叠加该连续谱 190 次

谐波到 285 次谐波生成了脉宽为 29 as 的孤立脉冲.

- [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] Zeng Z, Cheng Y, Song X, Li R, Xu Z 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 203901
- [7] Zhang G T, Liu X S 2009 *J. Phys. B* **42** 125603
- [8] Zhao S F, Zhou X X, Li P C, Chen Z 2008 *Phys. Rev. A* **78** 063404
- [9] Hong W, Lu P, Lan P, Yang Z, Li Y, Liao Q 2008 *Phys. Rev. A* **77** 033410
- [10] Zhai Z, Yu R F, Liu X S, Yang Y J 2008 *Phys. Rev. A* **78** 041402 (R)
- [11] Chen J G, Yang Y J, Zeng S L, Liang H Q 2011 *Phys. Rev. A* **83** 023401
- [12] Chen J G, Zeng S L, Yang Y J 2010 *Phys. Rev. A* **82** 043401
- [13] Feng X M, Gilbertson S, Mashiko H, Wang H, Khan S D, Chini M, Wu Y, Zhao K, Chang Z 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 183901
- [14] Zhang G T, Wu J, Xia C L, Liu X S 2009 *Phys. Rev. A* **80** 055404
- [15] Du H C, Wang H Q, Hu B T 2010 *Phys. Rev. A* **81** 063813
- [16] Chen J G, Yang Y J, Yu X P, He L J, Xu Y Y 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 053206 (in Chinese) [陈基根, 杨玉军, 俞旭萍, 何龙君, 徐圆圆 2011 物理学报 **60** 053206]
- [17] 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]
- [18] 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]
- [19] 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]
- [20] Zeng S L, Zou S Y, Yan J 2009 *Chin. Phys. Lett.* **26** 053202
- [21] 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]
- [22] Vozzi C, Calegari F, Benedetti E, Gasilov G, Cerullo G, Nisoli M, Silvestri S De, Stagira S 2007 *Opt. Lett.* **32** 2957
- [23] Ammosov M V, Delone N B, Krainov V P 1986 *Sov. Phys. JETP* **64** 1191

# Isolated intense sub-30-as pulse generation by quantum path control in the three-color laser pulse\*

Chen Ji-Gen<sup>1)†</sup> Zeng Si-Liang<sup>2)</sup> Yang Yu-Jun<sup>3)</sup> Cheng Chao<sup>1)</sup>

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

2) (*Science and technology computation physics laboratory, Institute of Applied Physics and Computational Mathematics, Beijing 100088, China*)

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

(Received 13 September 2011; revised manuscript received 29 October 2011)

## Abstract

We theoretically investigate the high-order harmonic generation from He<sup>+</sup> in the two-color laser pulse, which is composed of a multi-cycle 800 nm laser and 1600 nm laser. Compared with the case of the fundamental laser, the harmonic spectrum presents a two-plateau structure, and a broadband supercontinuum appears in the second plateau, of which the efficiency is approximately 2 orders of magnitude lower than that of the first plateau. Adding the 27th harmonic pulse to the two-color laser at a proper time, we can control the ionization mostly occurring at half the optical cycle, and the short quantum path can be picked out, the second plateau is heightened four orders of magnitude compared with the case of the two-color case. Furthermore, the supercontinuum spectrum is extended from the second plateau to the first one. An intense isolated pulse with a duration of 29 as is obtained by superposing the 190th—285th harmonics in the continuous region.

**Keywords:** combined laser pulse, harmonic pulse, attosecond pulse

**PACS:** 32.80.Rm, 42.50.Hz

---

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10904006), the Natural Science Foundation of Zhejiang Province (Grant No. Y6110578), and the Science and Technology Funds of China Academy of Engineering Physics (Grant No. 2011B0102026).

† E-mail: kiddchen@aphy.iphy.ac.cn