

利用两色组合激光场驱动氦原子产生单个阿秒脉冲*

黄峰 李鹏程 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)

(2012年4月10日收到; 2012年5月24日收到修改稿)

对由波长为 1600 nm 和 800 nm 两色激光形成组合场驱动氦原子产生的高次谐波进行了研究, 通过改变组合场中主要发射高次谐波期间电场的上升沿和下降沿随时间不同的变化率, 使电子长路径和短路径发射谐波的特性发生变化, 将由此产生的高次谐波进行叠加时可以得到更短的阿秒脉冲, 再调节两束激光场的延迟时间, 能够有效地实现抑制电子短路径的贡献, 从而得到脉宽为 33.7 as 的单个阿秒脉冲.

关键词: 组合场, 高次谐波, 阿秒脉冲

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

1 引言

阿秒(as)脉冲的出现为人们研究原子分子内的各种超快过程提供了强有力的手段^[1]. 由于阿秒脉冲的时间宽度极短, 构造这样的超短脉冲需要频谱范围很宽的光辐射才能够实现. 而原子在强激光场中产生的高次谐波频率宽度可以从真空紫外直至软X射线的范围, 且在截断位置附近有超连续分布的特点, 所以使用原子在激光场中发射的高次谐波成为产生阿秒脉冲的首选光源^[2]. 一般而言, 原子在强激光场中产生的非线性现象主要是高次谐波发射和阈上电离(包括二次电离), 当激光强度较低时, 阈上电离属于多光子电离, 而原子发射的谐波主要是原子中的电子在低激发态之间跃迁产生, 谐波的阶数较低, 这些现象可以用微扰法处理. 随着激光强度的增加, 阈上电离和高次谐波发射都会逐渐增强, 且发生的机理也有所不同, Corkum^[3]提出的半经典“三步模型”可以很好地解释这些现象: 当激光与原子相互作用时, 原子中的价电子会隧穿电离而成为自由电子, 当外加的激光场反向时, 那些没有反向的电子会被直接电离(这些光电子的能

量较低), 而那些反向的电子经激光场加速而被重新拉回到母离子附近; 这时电子若与母离子发生弹性碰撞, 就会产生能量较高的光电子, 若与母离子中的其他电子发生碰撞, 就会产生非序列双电离; 若电子与母离子复合, 这时电子从激光场中获得的能量以光的形式释放出来, 即高次谐波(HHG), 所辐射出的高次谐波最大能量为 $N\omega = I_P + 3.17U_P$, 其中 I_P 是原子的电离能, $U_p = E^2/4\omega^2$ 是电子在激光场中的有质动力能, E 是入射激光电场的振幅, ω 是入射激光场的角频率. 由上面的“三步模型”可知, 原子在强激光场中的阈上电离(包括非序列电离)与高次谐波发射是有竞争的, 当激光强度在原子的隧穿电离区域时, 主要是高次谐波的发射, 且展示出高次谐波的平台区域, 这个平台区域正是合成阿秒脉冲的理想光源. 当驱动的激光场是长脉冲时, 由高次谐波构造的阿秒脉冲是一个脉冲链^[4,5], 将阿秒脉冲链直接用于超快过程的测量是困难的, 人们更希望得到单个的阿秒脉冲, 因此研究单个阿秒脉冲的产生具有重要的意义.

由高次谐波获得单个阿秒脉冲的主要方法有: 偏振门技术和组合场驱动原子产生单个阿秒脉冲. 偏振门技术^[6]主要是根据线偏振激光驱动原子

* 国家自然科学基金(批准号: 11044007, 11047016, 11264036)、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: NWNU-KJCXGC-03-62)资助的课题.

† E-mail: zhouxx@nwnu.edu.cn

能有效产生高次谐波, 而椭圆偏振激光产生的高次谐波效率极低的原理来实现单个阿秒脉冲的发射; 而用组合场驱动原子产生单个阿秒脉冲主要是通过对组合场的参数进行优化, 实现对电离电子的路径选择来产生单个阿秒脉冲, 例如用两色激光^[7-10]、三色激光^[11]、激光加半周期场^[12]、啁啾激光与谐波场^[13]、啁啾激光与静电场^[14]以及基频激光场附加谐波脉冲^[15]等构成的组合场。

最近我们使用两束同色激光场与中红外场构造的组合场驱动一维氦原子产生单个阿秒脉冲, 得到了单个阿秒脉冲其最短脉宽达 42 as^[16], 同时我们的最新研究还表明, 在组合场周期一定的情况下, 组合场电场分量的上升沿和下降沿随时间变化的快慢也会影响阿秒脉冲的宽度^[17]. 基于这样的思路, 本文将在文献 [16] 的基础上利用两束非同色的激光场(波长分别为 1600 nm 和 800 nm)能够实现组合场中在主要发射高次谐波期间电场的上升沿和下降沿随时间不同的变化规律也能使高次谐波的平台得到拓宽, 在两束激光具有一定的延迟时间下, 能够实现更短的单个阿秒脉冲发射.

2 理论模型

采用偶极近似, 在长度规范下一维氦原子在强激光场中的含时薛定谔方程为(采用原子单位)

$$i\frac{\partial\psi(x,t)}{\partial t} = H(x,t)\psi(x,t), \quad (1)$$

其中 H 为体系的哈密顿量: $H(x,t) = -(1/2)(\partial^2/\partial x^2) + V(x) - xE(t)$, $V(x)$ 是一维氦原子的模型势, 采用软库仑势的形式: $V(x) = -1/\sqrt{a^2 + x^2}$, 当 $a = 0.485$ 时就能得到真实氦原子基态能量 -24.58 eV, $E(t)$ 为激光场的电场分量.

(1) 式的解可用分裂算符的方法得到

$$\begin{aligned} \psi(x,t + \Delta t) &= e^{(\frac{i\Delta t}{4}\frac{\partial^2}{\partial x^2})} \\ &\times e^{(-i\Delta t(V(x) - xE(t)))} e^{(\frac{i\Delta t}{4}\frac{\partial^2}{\partial x^2})} \\ &\times \psi(x,t) + o(\Delta t^3), \end{aligned} \quad (2)$$

具体的求解过程在文献 [18] 中已有描述. 在得到含时波函数后, 运用 Ehrenfest 定理^[19], 得到电子的平均加速度

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

高次谐波谱的强度

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

其中, $a_q(\omega) = \int_0^t a(t) e^{-iq\omega t} dt$ 为 $a(t)$ 的傅里叶变换.

对一定频宽范围的高次谐波进行叠加可得到阿秒脉冲

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

为了分析高次谐波谱发射的时间-频率特性, 我们利用小波变换得到频率为 ω 的谐波随发射时间 t_0 的变化

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

式中

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

其中

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

为 Morlet 小波变化的窗函数^[20]. 从 (6)–(8) 式可以看出 $A_\omega(t_0, \omega)$ 的值依赖于参数 τ 的取值. 在谐波频率值取一定的情况下, 通过选取不同的 τ 值计算发现, 尽管 $A_\omega(t_0, \omega)$ 值的大小会有差异, 但 $A_\omega(t_0, \omega)$ 随时间演化的规律几乎不变, 在计算中取 $\tau = 15$.

在求解 (1) 式的含时薛定谔方程时, 首先要确定体系的初始波函数. 考虑 $t = 0$ 时刻激光场开始作用到原子上时, 原子处于无外场的情况, 因此初始波函数为体系的基态波函数. 在本文计算初始波函数时用 7 阶 220 个 B 样条函数展开, 再通过对角化的方法确定其展开系数.

3 结果与讨论

按照两束同色激光场构成的组合场所取的电场形式^[21]

$$E_S(t, \tau_{\text{delay}}) = \varepsilon(t + \tau_i/2) - \varepsilon(t - \tau_i/2), \quad i = 1, 2,$$

其中

$$\varepsilon(t) = \begin{cases} E_i \cos^2\left(\frac{\omega_i t_i}{2N_i}\right) \sin(\omega_i t_i), & \text{当 } |t| < \frac{N_i T_i}{2} \text{ 时,} \\ 0, & \text{其他,} \end{cases}$$

$$i = 1, 2.$$

对于同色组合场而言, $N_1 = N_2$ 分别为这两束激光的周期数, $E_1 = E_2$ 为两束激光的电场峰值强度, $T_1 = T_2$ 为两束激光的周期, $\omega_1 = \omega_2$ 为激光场的角频率, $\tau_1 = \tau_2$ 为两束激光的时间延迟. 由这样的组合场驱动原子, 在发射高次谐波的主周期内电场的上升沿和下降沿随时间的变化率是对称的(只是符号相反), 为了实现电场分量在一个发射高次谐波主周期内的上升沿和下降沿随时间有不同的变化率, 且在上升沿随时间的平均变化率比下降沿时间的平均变化率慢, 这样更有利实现更短阿秒脉冲的形成 [17]. 因此我们提出由两束波长不同的激光场构造的组合场来驱动氦原子产生高次谐波, 两束激光的强度不同, 且长波长的激光主导组合场的上升沿, 这样就能保证组合场中电场的上升沿随时间变化较慢. 我们在计算中使用的激光中心波长分别为 1600 nm 和 800 nm, 激光场强度分别为 $E_1 = 1 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ 和 $E_2 = 6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 脉冲周期总数 $N_1 = N_2 = 4$, 两束激光的时间延迟分别为 $\tau_1 = 1.0T$ 和 $\tau_2 = 0.0T$.

图 1 给出了采用上述两束非同色激光参数以及由此形成组合场的电场分量随时间的变化. 从图 1(b)可以看出组合场中央极大左右的电场上升沿和下降沿随时间变化的快慢(平均说来)是不同的, 而在中央极大附近正是主要发射高次谐波的过程. 利用这种组合场驱动一维氦原子所产生的高次

谐波谱由图 2 给出, 由图可以看出其高次谐波谱展示了多个平台, 并且截止位置达 1500 多阶, 相应光子的能量可以达到 1196 eV, 与我们在文献 [16] 中使用两束同色激光形成组合场产生的高次谐波相比增加了 577 eV(截止位置拓宽的原因将在下面给出解释), 并且在较宽的频段范围内, 高次谐波展示出了很好的连续性, 有利于产生更短的阿秒脉冲. 实验上可以通过滤波的形式选择一定频率范围的高次谐波来合成阿秒脉冲, 选择不同频率范围的高次谐波合成的阿秒脉冲会对阿秒脉冲的形状和宽度有很大影响, 一般选择高次谐波的频率范围使能够合成的阿秒脉冲形状比较规则且宽度较窄. 从理论上获得阿秒脉冲也是通过对谐波谱的平台区域内不同阶数的高次谐波进行叠加, 叠加不同频率范围的高次谐波可以考察不同情况下阿秒脉冲的特性. 图 3 是分别叠加 970—1150 阶和 1040—1215 阶谐波得到的阿秒脉冲, 由图可以看出得到的阿秒脉冲有两个, 其主脉冲宽度分别为 32.3 as 和 32.7 as, 相较于文献 [16] 得到的最短脉冲 42 as, 脉冲宽度变小了, 说明使用这种(平均说来)上升沿较慢而下降沿较快的组合场有利于产生更短的阿秒脉冲. 改变组合场上升沿和下降沿随时间变化的快慢能够实现更短的阿秒脉冲可以通过半经典“三步模型”中的复合过程给与定性解释. 我们知道, 高次谐波的发射时刻就是电子与母离子的复合时刻. 一般说来, 发射某一频率的高次谐波(在平台区域)过程中电子的长路径和短路径都有贡献, 而短路径的复合时刻在电场达到峰值之前的上升沿, 这时上升沿的电场强度随时间变化较慢, 电场上升持续的时间较长, 使得复合过程持续的时间也较长, 即发射过程持续的时间较长, 发射过程也相应延长. 这样不仅

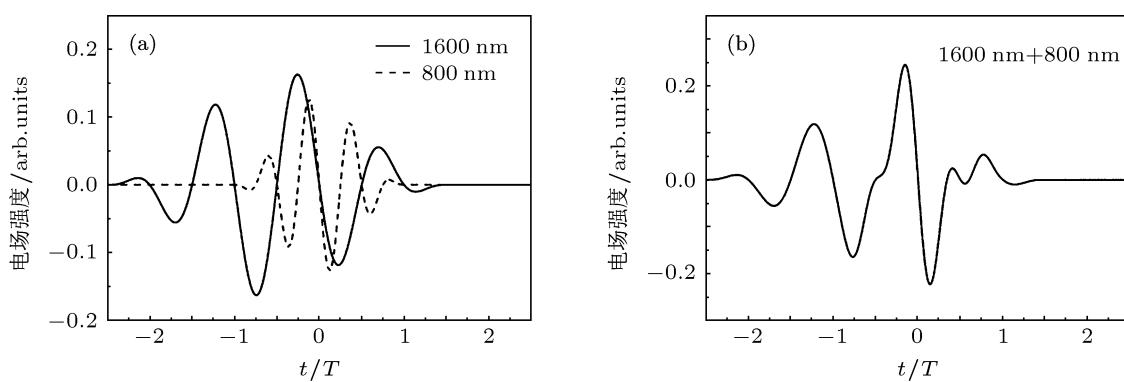


图 1 (a) $\tau_1 = 1.0T$ (实线) 和 $\tau_2 = 0.0T$ (虚线) 的单色激光场随时间变化; (b) 组合场随时间的变化

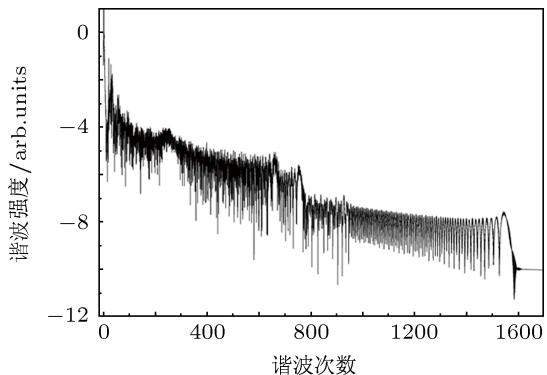
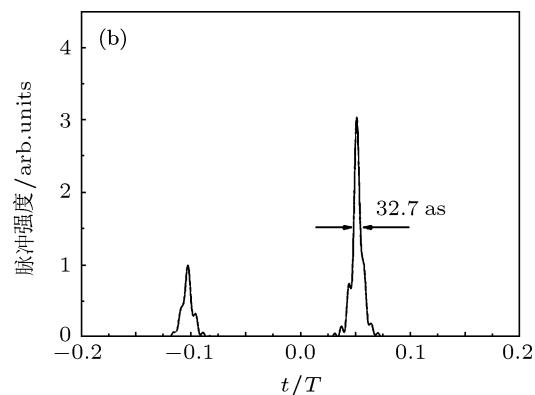
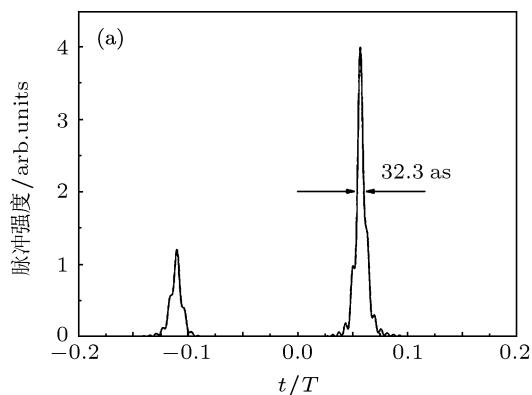
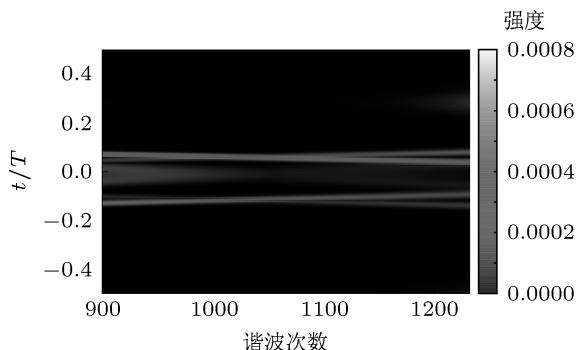


图 2 He 原子在组合场中产生的高次谐波谱

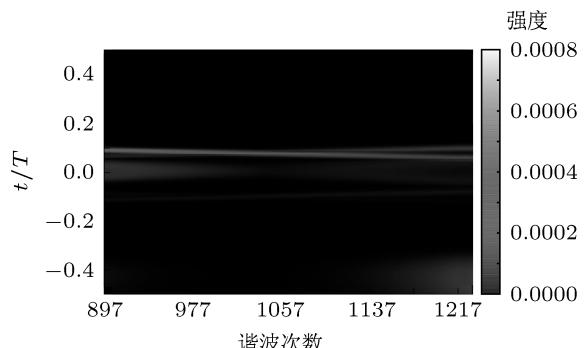
使发射阿秒脉冲的强度降低, 并且宽度也有所增加, 图 3(a) 和 3(b) 中较弱的阿秒脉冲正是如此, 同时, 对于电子长路径而言, 上升沿的组合场仍然对长路径电子进行加速, 当电场峰值一定的情况下, 加速

的时间越长, 电子从组合场获得的能量越大, 相应发射高次谐波的阶数就越高, 从而使高次谐波的截止位置延伸的越宽, 这就是相对于文献 [16] 高次谐波截止位置延伸的原因; 而对于组合场的电场达到峰值后, 其强度开始下降, 这时电子与母离子复合过程主要是电子长路径的贡献, 电场的下降沿若随时间变化较快, 那么电场下降持续的时间就短, 电子长路径的复合过程就能在很短时间内完成, 从而得到的阿秒脉冲不仅强度高(相对于短路径贡献而言), 而且脉冲的宽度较窄, 这正是图 3(a) 和 3(b) 中对应较强的脉冲. 由于不同阶数的阿秒脉冲发射时刻是不同的, 因此如果叠加频率范围更宽的高次谐波所合成的阿秒脉冲就会使得到的阿秒脉冲宽度大大增加, 且阿秒脉冲的形状也很不规则.

图 3 延迟时间 $1.0T$ 的组合场所产生的阿秒脉冲 (a) 叠加谐波 970—1150 阶; (b) 叠加谐波 1040—1215 阶图 4 延迟时间 $1.0T$ 的组合场下高次谐波发射的时频分析(900—1230 阶)

为了分析阿秒脉冲发射过程的谐波能量随时间的变化关系, 我们利用(6)式的小波变换对谐波的发射过程进行了时频分析, 图 4 给出了小波变换的结果. 从图 4 可以看出, 对于某一个给定的能量, 存在着两个不同电子路径的贡献(电子电离早而复

合迟的称为长路径, 而电离迟而复合早的称为短路径), 并且发现电子长路径的贡献比短路径的贡献大(特别是在 1050 阶附近表现的特别明显), 这与图 3 中的结果一致, 即后一个发射的阿秒脉冲强度

图 5 延迟时间 $0.9T$ 的组合场下高次谐波发射的时频分析(900—1230 阶)

高。我们的目的是得到单个的阿秒脉冲，为此需要将其中的一个脉冲进行抑制。利用我们在文献[22]中使用的可以通过调节两束激光的时间延迟，来达到对某一个电子路径贡献进行抑制的目的，在其他条件不变的情况下，我们将两束激光的延迟时间从 $\tau_1 = 1.0T$ 减小为 $\tau_1 = 0.9T$ ，并对得到的高次谐波谱进行时频分析（如图5所示），从时频分析图4

与图5的对比来看，我们发现电子的长路径贡献被选出来，而电子的短路径对高次谐波的贡献几乎完全被抑制。仍然叠加与前面相同的谐波阶数能够得到相应的阿秒脉冲（如图6所示），最终可以得到单个阿秒脉冲，其相应的宽度为33.7 as。虽然相对于原来的脉冲宽度有少许的增加，但是单个阿秒脉冲的形状非常规则。

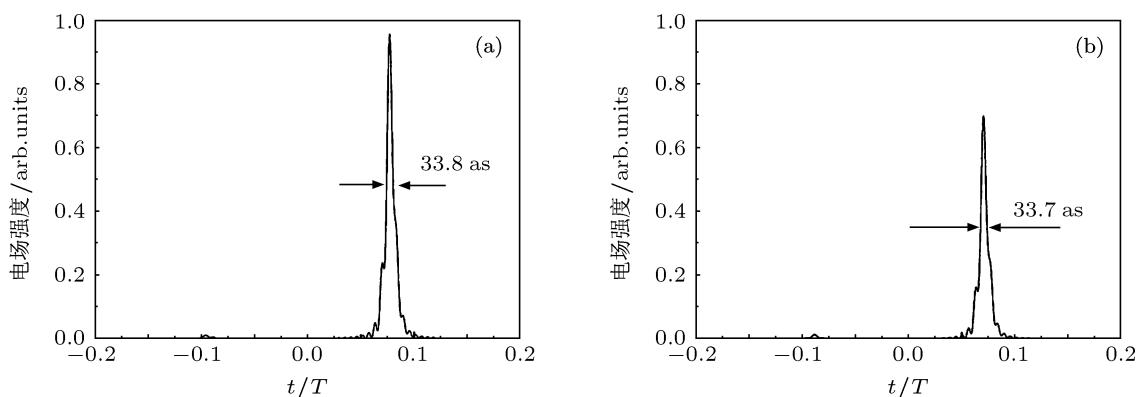


图6 延迟时间 $0.9T$ 的组合场下所产生的阿秒脉冲 (a) 叠加谐波970—1150阶; (b) 叠加谐波1040—1215阶

4 结论

本文采用波长分别为1600 nm和800 nm的两束非同色激光构成组合场，并利用这种组合场驱动一维氦原子，通过分裂算符法数值求解氦原子在这种组合场的含时薛定谔方程，从理论上研究了氦原子发射高次谐波及由此构造的阿秒脉冲规律。研究结果表明：在构成这种组合场时，通过改变电子在复合时刻的组合场形状，能够改变阿秒脉冲的发射特性。这些发射特性能够通过半经典“三步模型”中的复合过程给予解释：在电子复合的半个周期内组合场有上升沿和下降沿，这种上升沿和下降沿对应的分别是电子短路径和电子长路径的复合过程，

通过使组合场上升沿变化较慢，持续的时间较长，使短路径电子的复合时刻变长，从而使短路径复合的电子所发射的阿秒脉冲强度变小，同时，还能够使长路径的电子获得更长的加速时间，从组合场中获得更多的能量，使高次谐波的截止位置得到进一步的延伸；另一方面，使组合场下降沿随时间变化得快，这样可以缩短长路径电子的复合时间，从而使高次谐波在相对集中的时间内发射，这样相较于短路径电子发射阿秒脉冲，由长路径电子复合过程能够发射出更强、宽度更短的阿秒脉冲。最后我们通过改变构成组合场的两束非同色激光脉冲的延迟时间，有效地抑制电子短路径对阿秒脉冲的贡献，得到脉宽为33.7 as的单个阿秒脉冲。

- [1] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [2] Winterfeldt C, Spielmann C, Gerber G 2008 *Rev. Mod. Phys.* **80** 117
- [3] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [4] Paul P M, Toma E S, Breger P 2001 *Science* **292** 1689
- [5] Mairesse Y, DeBohan A, Frasinski L J 2003 *Science* **302** 1540
- [6] Sansone G, Benedetti E, Calegari F 2006 *Science* **314** 443
- [7] Du H C, Wang H Q, Hu B T 2010 *Phys. Rev. A* **81** 063813
- [8] Chen J G, Zeng S L, Yang Y J 2010 *Phys. Rev. A* **82** 043401
- [9] Xia C L, Liu X S 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 043303 (in Chinese)
[夏昌龙, 刘学深 2012 物理学报 **61** 043303]
- [10] 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]
- [11] Lu R F, He H X, Guo Y H 2009 *J. Phys. B* **42** 22560
- [12] Orlando G, Corso P P, Fiordilino E 2009 *J. Mod. Opt.* **56** 1761

- [13] Li P C, Zhou X X, Wang G L, Zhao Z X 2009 *Phys. Rev. A* **80** 053825
- [14] Xiang Y, Niu Y P, Gong S Q 2009 *Phys. Rev. A* **79** 053419
- [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] Pan H L, Wang G L, Zhou X X 2011 *Chinese Sci. Bull.* **56** 2561 (in Chinese) [潘慧玲, 王国利, 周效信 2011 科学通报 **56** 2561]
- [17] Liu I L, Li P C, Chu S I 2011 *Phys. Rev. A* **84** 033414
- [18] 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]
- [19] Burnett K, Reed V C, Cooper J, Knight P L 1992 *Phys. Rev. A* **45** 3347
- [20] Antoine P, Piraux B, Maquet A 1995 *Phys. Rev. A* **51** R1750
- [21] Pérez-Hernández J A, Hoffmann D J 2009 *J. Phys. B* **42** 134004
- [22] 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]

Isolated attosecond pulse generated by a model helium atom exposed to the combined field*

Huang Feng Li Peng-Cheng Zhou Xiao-Xin[†]

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

(Received 10 April 2012; revised manuscript received 24 May 2012)

Abstract

We theoretically study the high-order harmonic generation (HHG) of a model He atom exposed to a combined field of 1600 nm and 800 nm laser pulses. The changing of rising rate and falling rate with time for the combined field during main HHG, can present the different characteristics of high-order harmonic generation from the short electron trajectories and the long electron trajectories. By superimposing several harmonics generated from He atom driven by the combined field, we could obtain shorter attosecond pulses. Finally, by adjusting the time delay between two laser pulses, we can effectively suppress the contribution of the short electron trajectories to HHG, and obtain an isolated attosecond pulse with duration 33.7 as.

Keywords: combined field, 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, 11047016, 11264036), the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China (Grant No. 20096203110001), and the Innovative Foundation of Northwest Normal University (Grant No. NWNU-KJCXGC-03-62).

† E-mail: zhouxx@nwnu.edu.cn