

任意夹角的双色偏振激光作用下 孤立阿秒脉冲的产生*

夏昌龙 刘学深†

(吉林大学原子与分子物理研究所, 长春 130012)

(2010年12月3日收到; 2011年4月18日收到修改稿)

本文选取脉宽为 12 fs 波长为 2000 nm 和 800 nm 的两束线性偏振激光, 适当调节两束激光的偏振方向的夹角 θ , 发现当 $\theta = \pi/2$ 时, 高次谐波谱的第二级平台出现了“漏斗形”凹槽. 当 θ 为 $\pi/6$ 时, 得到了 290 eV 的超宽连续谱的高次谐波发射, 利用小波变换合理的解释了高次谐波形状及截止位置. 在该段连续谱上任意截取 70 eV 宽度的频率, 都可以得到脉宽约为 60 as 的孤立阿秒脉冲. 适当减小截取范围可以得到线性偏振的脉宽 94 as 的孤立阿秒脉冲. 这为实验中产生能灵活调节的孤立阿秒脉冲提供了一种方案.

关键词: 双色偏振激光, 孤立阿秒脉冲, 高次谐波发射

PACS: 33.20.Xx, 42.65.Ky, 32.80.Rm

由于阿秒脉冲是研究原子内部超快物理过程的强大工具^[1,2], 近年来对阿秒物理的研究非常热门^[3-5], 如何获得更短脉宽, 更强光强, 更易调控的阿秒脉冲成为研究焦点. 近来实验上产生阿秒脉冲的方法主要是利用高次谐波发射, 当强激光场与原子、分子或团簇相互作用时, 由于高阶非线性效应, 会产生入射激光频率整数倍的高次谐波, 叠加一定频率级次的谐波可以得到阿秒脉冲. Corkum 等人^[6]利用“三步模型”很好地解释了其产生机理及高次谐波平台截止规律, 具体来说, 电子在强激光场下发生遂穿电离或多光子电离, 电离电子在外激光场下做加速运动并获得能量, 当激光场方向改变时, 一部分电子运动方向改变有可能与母核离子复合同时辐射出高能光子, 即发射出高次谐波.

目前人们产生阿秒脉冲主要有几种方案, 一种是少周期方案, Goulielmakis 等人^[4]实验上利用有效脉宽为 1.5 周期的近红外激光脉冲, 成功获得了 80 as 的孤立阿秒脉冲; 利用少周期叠加一个 2 倍频^[7]或者叠加一个紫外场^[8]能展宽谐波平台并可以合成孤立阿秒脉冲. 我们近来利用短脉冲 5 fs(800 nm) 啁啾脉冲和 12 fs(1600 nm) 组合场, 适当地调整啁啾参数, 得到 38 as 的孤立阿秒脉冲^[9]. 另一种是偏振门方案^[5,10], 其机理是利用高

次谐波发射效率随着椭圆率的增加而急剧减小, 通过控制合成场椭圆率随时间的变化, 可以使多周期激光脉冲仅在部分时间对高次谐波发射起作用, 其他部分不起作用. 使用长脉冲获得阿秒脉冲, 成为更多实验室的愿望.

我们在文献^[11]中研究了垂直线偏振激光外加一静电场, 得到了 75 as 的孤立阿秒脉冲, 通过适当调整静电场的强度, 可以得到线性偏振的孤立阿秒脉冲. Zou 等人^[12]利用中红外激光 (2000 nm) 与 909 nm 的激光组合场获得了水窗波段的谐波谱. 2008 年 Hong 等人^[13]使用有偏振夹角的双色激光场, 选用脉宽为 5 fs 的 800 nm 主激光和 400 nm 辅激光脉冲的组合场, 产生了 82 eV 的超连续高次谐波谱. 近来有人^[14]研究发现随驱动激光波长的增大, 截止位置附近原子发射高次谐波的转化效率比平台区域的转化效率低, 但获得的阿秒脉冲的宽度会随波长的增大而缩短. 本文在以上工作基础上, 选取有偏振夹角的中红外 (2000 nm) 和近红外 (800 nm) 线性激光组合, 改变偏振夹角为 $\pi/2$ 时, 发现高次谐波平台不明显, 出现了一个“漏斗形”谐波谱. 当夹角为 $\pi/6$ 时, 获得了长达 290 eV 的超宽连续谱, 通过在平台区叠加 70 eV 宽度的谐波, 得到了约 60 as 的孤立阿秒脉冲.

* 国家自然科学基金 (批准号: 10974068, 11174108) 和吉林大学研究生创新基金资助项目 (批准号: 20111032) 资助的课题.

† E-mail: liuxs@jlu.edu.cn

改变叠加宽度为 40 eV 时, 可以得到脉宽小于 100 as 的线性偏振的孤立阿秒脉冲.

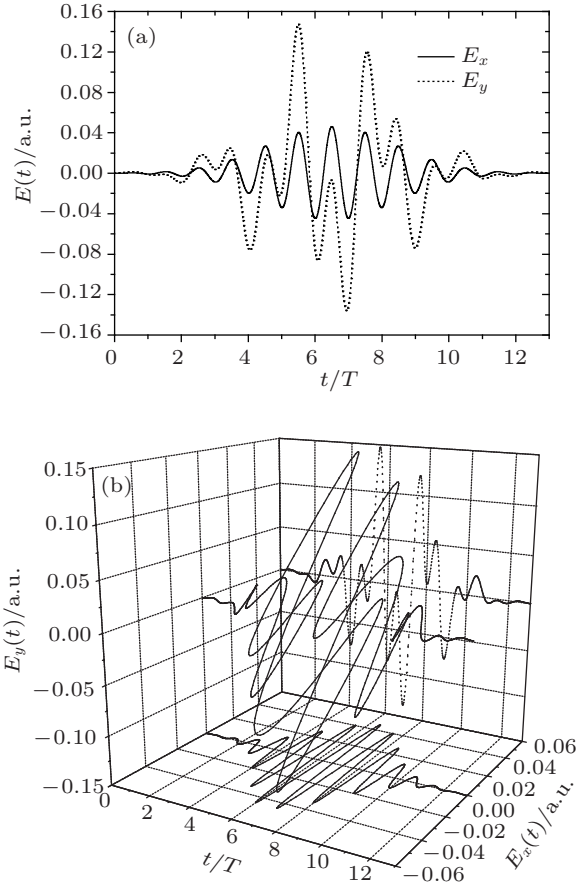


图 1 当 $\theta = \pi/6$ 时驱动激光脉冲随时间的变化 (a) 实线表示 x 方向电场强度, 点线为 y 方向电场强度; (b) 激光脉冲的三维形状, 其中深黑实线为合成场形状

本文利用二维分裂算符法^[15]数值计算了强激光场与氦原子相互作用的二维含时薛定谔方程, 初态波函数选用虚时演化法的计算结果. 在计算中, 势能选取“软核势”, $V(x, y) = -q/\sqrt{x^2 + y^2 + a^2}$, q 和 a^2 为软核参量, 在本文中分别取 $q = 1.5$, $a^2 = 0.6$, 这与氦原子的第一电离能 0.9 a.u. 一致. 我们选取光强为 $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 的入射激光, x 方向分量与 y 方向分量激光电场的具体表达形式为

$$E_x(t) = E_0 f(t - \tau_{\text{delay}}) \cos(\omega_1(t - \tau_{\text{delay}})) \times \sin(\theta), \quad (1)$$

$$E_y(t) = E_0 f(t - \tau_{\text{delay}}) [\cos(\omega_2(t - \tau_{\text{delay}}) + \phi) + \cos(\omega_1(t - \tau_{\text{delay}})) \cos(\theta)], \quad (2)$$

$f(t) = \exp[-4 \ln(2)t^2/\tau^2]$ 为入射激光脉冲的包络, $\tau = 12 \text{ fs}$ 是激光脉冲的半高全宽. E_0 为激光电场振幅, $\omega_1 = 0.057$, $\omega_2 = 0.0228$ 为入射激光的频率, 对应波长分别为 800 nm 和 2000 nm. $\varphi = 0.9\pi$ 是

两束激光的相对相位, θ 为两入射激光偏振方向夹角. 选取不同的 θ 值, 我们计算的总时间为 $13T$ (T 为 800 nm 激光的光学周期), (1), (2) 式中的 τ_{delay} 取 $13T/2$. 当 $\theta = \pi/6$ 时, 激光波形随时间的变化如图 1(a) 所示, 其三维形式如图 1(b) 所示.

从图 1 中可以看出 E_x 随着时间演变是比较有规律的, 而 E_y 由于有两个激光频率分量, 主峰之间出现了小振荡, 总激光电场强度大小方向都是随时间变化的, 即含时椭圆率是随时间不断变化的, 适当的变化能减弱电子长短轨道的干涉, 发射的高次谐波有利于孤立阿秒脉冲的合成. 当 $\theta = \pi/2$ 时, 即入射激光为正交偏振双色场, 与我们在文献 [11] 中没有加静电场时的条件类似, 只是将 x 方向上 800 nm 的激光由 12.5 fs, $1.5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 变为 12 fs, $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 但高次谐波发射谱却差别很大, 如图 2 中黑点杠线所示, 在第二平台出现了一个“漏斗形”凹槽, 这可能是由于 x, y 两分量方向的激光场强相当, 在产生这些级次谐波时的椭圆率较大, 效率降低的缘故. 凹槽的出现使产生这段频率谐波的效率不均衡, 是不利于孤立阿秒脉冲合成的. 当改变 θ 为 $\pi/6, \pi/4, \pi/3$ 时, 如图 2 所示, 我们得到了平滑的双平台结构, 其效率基本差不多, 对应第一平台的截止位置分别为 210 eV, 200 eV, 185 eV, 第二平台的截止位置分别为 500 eV, 470 eV, 430 eV, 显然当 $\theta = \pi/6$ 时, 谐波的截止位置最大. 高次谐波谱的第二平台非常平滑, 说明长短轨道干涉很小, 这对合成孤立阿秒脉冲是非常有利的.

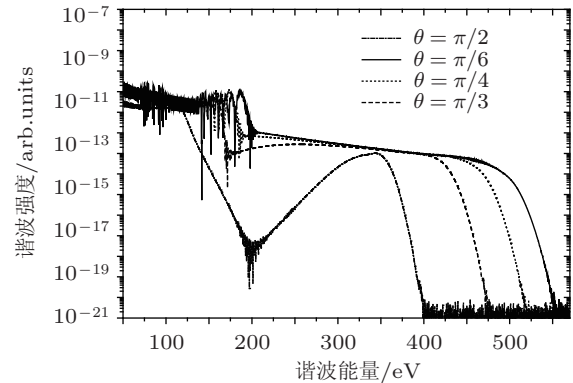


图 2 高次谐波发射谱, θ 为 $\pi/2, \pi/6, \pi/4, \pi/3$ 分别用点杠线、实线、点线和杠线表示

我们对偶极加速度作小波变换, 可以很好的解释平台结构形状. 图 3 给出了 θ 为 $\pi/2, \pi/6$ 时的小波变换, 如图所示, 图中的三个主要峰分别标为 A, B, C 和 A_1, B_1, C_1 . 图 3(a) 中 A 峰位置约在 160 eV, 这与谐波谱中第一平台截止位置对应, B 峰的左边出现了断连, 说明在 t 约为 $6.8T$ 时发射的

谐波频率小于 250 eV 的效率很小, 对平台贡献很小. 在 160 eV 到 250 eV, A, B, C 三个峰对应的效率都较低, 这与谐波谱中出现凹槽的位置正好对应. 在图 3(b) 中, A 峰位置对应约为 210 eV 与高次谐波谱中第一平台截止位置正好对应, 在大于 210 eV 范围内有贡献的只有 B_1, C_1 峰, 其效率都比 A_1 峰小, 这与第二平台比第一平台效率低相符合. 另外从图 3(b) 中可以看出, A_1 峰长短轨道同时存在, 这对合成阿秒脉冲来说容易产生不同轨道的干涉, 不易产生孤立阿秒脉冲, 而大于 210 eV 的 B_1, C_1 峰只有短轨道, 这样的结果是非常有利于孤立阿秒脉冲合成的.

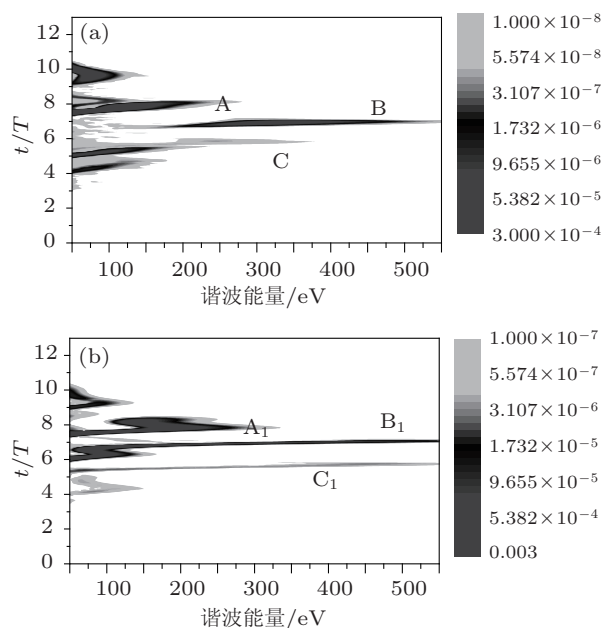


图3 高次谐波对应的小波变换 (a) θ 为 $\pi/2$; (b) θ 为 $\pi/6$

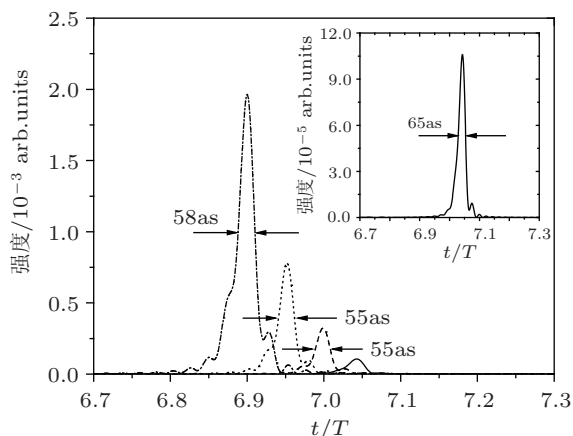


图4 叠加 70 eV 频率宽度得到的阿秒脉冲形状 (点杠线、点线、杠线和实线分别表示的叠加范围为 220—290 eV, 290—360 eV, 360—430 eV, 430—500 eV. 插图为实线图的放大图)

由于 θ 为 $\pi/6$ 时谐波平台截止位置最大, 平台区域最宽, 本文只研究 θ 为 $\pi/6$ 时阿秒脉冲形状.

根据测不准原理, 叠加越宽的频谱才能得到越短的阿秒脉冲, 但是较宽的频率其相位和发射时间不容易一致, 往往得不到傅立叶变换极限的脉冲. 我们叠加第二平台区内 (220 eV—500 eV) 间隔 70 eV 的高次谐波, 得到了如图 4 所示的孤立阿秒脉冲, 脉宽分别为 58 as, 55 as, 55 as, 65 as. 从图中可以看出, 叠加相同的谱宽, 随着叠加频率越大, 产生的阿秒脉冲的相对强度越低, 这与图 2 中平台效率随能量增加而减小对应.

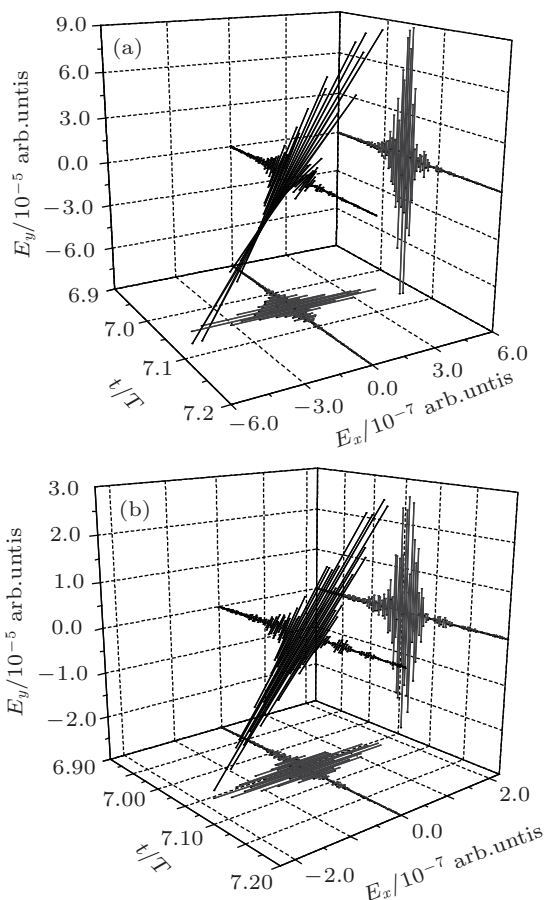


图5 孤立阿秒脉冲对应的三维表示 (a) 表示叠加 430—500 eV(图 4 中实线) 的阿秒脉冲; (b) 表示叠加 460—500 eV 得到的阿秒脉冲

将上面讨论的阿秒脉冲放在三维空间里, 我们发现, 阿秒脉冲的偏振方向是随着时间变化而变化的, 图 5(a) 给出截取 430—500 eV 时的阿秒脉冲随时间变化的三维描述, 在前面的工作中^[11], 我们通过加入适当的静电场可以将这种变化调节成线性偏振. 在本文所选的激光参量, 无需额外加条件, 只要滤取高次谐波时选择叠加区域更小点就可以得到线性偏振的阿秒脉冲. 当截取 40 eV(460—500 eV) 频宽时可以得到 94 as 的孤立阿秒脉冲, 虽然其脉宽变宽, 但是阿秒脉冲的偏振方向却不再随时间有明显的变化, 如图 5(b) 所示. 这说明得到

的是线性偏振的孤立阿秒脉冲. 通过计算我们发现, 在 400—500 eV 范围内任意截取 40 eV 宽度的其他频段, 都可以得到脉宽为 100 as 左右的线性偏振的孤立阿秒脉冲, 这对实验上灵活选择阿秒脉冲频率提供了很大方便.

本文选取脉宽为 12 fs, 不同偏振方向的双色长脉冲, 通过调整其偏振方向的夹角, 发现在我们选取的激光参量情况下, 当两束激光偏振方向夹角 θ 为 $\pi/2$ 时, 高次谐波谱出现“漏斗形”的凹槽

结构, 利用小波变换我们对其给出了初步解释. 当 θ 为 $\pi/6$ 时, 得到了长达 290 eV 的超连续的高次谐波发射谱. 在超连续谱范围内任意选择 70 eV 的超宽频谱, 都可以得到 60 as 左右的孤立阿秒脉冲, 如此宽的频率选择, 为实验中选择不同频率的阿秒脉冲提供了很大的方便. 适当的减小叠加频宽, 例如 40 eV 时, 可以得到线性偏振的脉宽在 100 as 左右的孤立阿秒激光脉冲, 这使实验中灵活使用阿秒脉冲提供了更大的可行性.

-
- [1] Föhlich A, Feulner P, Hennies F, Fink A, Menzel D, Sanchez-Portal D, Echenique P M, Wurth W 2005 *Nature* **436** 373
- [2] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann Ch, Reider G A, Milosevic N, Brabec T, Corkum P, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2001 *Nature* **414** 509
- [3] Sansone G, Benedetti 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
- [4] Goulielmakis E, Schultze M, Hofsteter M, Yakovlev V S, Gagnon J, Uiberacker M, Aquila A L, Gullikson E M, Attwood D T, Kienberger R, Krausz F, U Kleineberg 2008 *Science* **320** 1614
- [5] Feng X, Gilbertson S, Mashiko H, Wang H, Khan S D, Chini M, Wu Y, Zhao K, Chang Z 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 183901
- [6] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [7] Zeng Z N, Cheng Y, Song X H, Li R X, Xu Z Z 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 203901
- [8] 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]
- [9] Wu J, Zhang G T, Xia C L, Liu X S 2010 *Phys. Rev. A* **82** 013411
- [10] 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]
- [11] Xia C L, Zhang G T, Wu J, Liu X S 2010 *Phys. Rev. A* **81** 043420
- [12] Zou P, Li R X, Zeng Z N, Xiong H, Liu P, Leng Y X, Fan P Z, Xu Z Z 2010 *Chin. Phys. B* **19** 019501
- [13] Hong W Y, Lu P X, Lan P F, Li Q G, Zhang Q B, Yang Z Y, Wang X B 2008 *Phys. Rev. A* **78** 063407
- [14] Cheng C Z, Zhou X X, Li P C 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 033203 (in Chinese) [成春芝, 周效信, 李鹏程 2011 物理学报 **60** 033203]
- [15] Feit M D, Fleck J A, JR, Steiger A 1982 *J. Comput. Phys.* **47** 412

Generating isolated attosecond pulses at an arbitrary angle of the two-color polarized laser pulse*

Xia Chang-Long Liu Xue-Shen[†]

(Institute of Atomic and molecular physics, Jilin University, Changchun 130012, China)

(Received 3 December 2010; revised manuscript received 18 April 2011)

Abstract

By adjusting the polarized angle of a two-color laser field that is synthesized by a 12 fs/2000 nm and 12 fs/800 nm, we find that the spectrum of the high-order harmonic generation has a “funnel structure” in the second plateau when θ is $\pi/2$. And when θ is $\pi/6$, a bandwidth of supercontinuum about 290 eV is observed. We illustrate the structure of the high-order harmonic generated spectrum by the time-frequency analysis. An isolated attosecond pulse is obtained by intercepting an arbitrary 70 eV width in the supercontinuum plateau, and whose full width at half maximum (FWHM) is about 60 as. When we intercept a narrow width of the bandwidth of supercontinuum, a linear polarized attosecond pulse with FWHM 94 as is obtained. All those are convenient to generate and use attosecond pulse in experiment.

Keywords: two-color polarized laser pulse, isolated attosecond pulse, high-order harmonic generation

PACS: 33.20.Xx, 42.65.Ky, 32.80.Rm

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grand Nos. 10974068, 11174108), and the Graduate Innovation Fund of Jilin University (Grand No. 20111032).

[†] E-mail: liuxs@jlu.edu.cn