

# 双色激光脉冲辐照下 38 as 孤立短脉冲的产生\*

陈高<sup>1)†</sup> 杨玉军<sup>2)</sup> 郭福明<sup>2)</sup>

1) (长春理工大学学院物理系, 长春 130022)

2) (吉林大学原子与分子物理研究所, 长春 130012)

(2012 年 10 月 6 日收到; 2012 年 12 月 11 日收到修改稿)

通过数值求解一维含时薛定谔方程, 本文研究了具有特定波长的双色激光脉冲与氦原子相互作用产生的高次谐波和阿秒脉冲, 这里双色激光脉冲由 5 fs 较低强度基频钛宝石主脉冲与另一束较高强度的 1330 nm 红外附加脉冲构成. 研究发现, 若两束脉冲之间的相对相位选择合适, 可以获得宽带连续辐射的高次谐波谱, 叠加该连续辐射谱可获得脉宽为 38 as 的孤立短脉冲. 进一步研究发现, 不同于以往孤立阿秒脉冲研究中选出长、短量子路径之一作为辐射源, 这里单阿秒脉冲来源于长、短两个量子路径的贡献, 只是这两个量子路径在很宽的谐波次数变化范围内辐射时刻比较集中.

**关键词:** 双色激光脉冲, 阿秒脉冲, 量子路径

**PACS:** 32.80.Rm, 42.50.Hz, 42.65.Re

**DOI:** 10.7498/aps.62.073203

## 1 引言

孤立阿秒脉冲的产生提供了测量基本超快电子过程的一个手段, 如探测原子和分子中内壳层电子动力学<sup>[1-3]</sup>. 目前, 高次谐波产生是实验上实现阿秒脉冲光源的唯一手段, 因此基于高次谐波过程的阿秒脉冲产生一直是人们关注的焦点, 在今天阿秒科学的研究中成为最积极的研究方向之一.

高次谐波是指强激光脉冲与原子、分子、团簇以及固体等介质相互作用产生的相干辐射波. 该过程可由半经典的“三步”模型<sup>[4]</sup>给出合理解释: 处在束缚态的电子隧穿由原子势和激光电场形成的势垒, 电子电离后在振荡的电场中运动, 当电场反向时, 部分电离电子回到母离子附近, 与基态复合, 放出高能光子, 且光子的能量为  $\omega_h = I_p + E_{kin}$ , 其中  $I_p$  是原子的电离势,  $E_{kin}$  为电子与基态复合时具有的动能. 前人的研究表明, 所有高次谐波辐射谱均呈现如下特征行为: 最初几次谐波, 随着谐波次数增加发射效率快速下降; 接着, 在达到某次谐波后出现一个强度几乎不随谐波次数变化的

区域(称为平台区); 最后, 在平台区末端的某一阶次谐波附近, 谐波强度快速下降, 出现截止. 由于谐波谱呈现平台区以及平台区谐波的独特优点, 使它成为获得极紫外及软 X 射线波段阿秒脉冲相干辐射源的重要手段<sup>[5]</sup>. 实验上通过过滤谐波谱截止区附近的谐波, 已获得一串 250 as 的脉冲链<sup>[6]</sup>. 然而要将阿秒脉冲链用于探测过程显然非常困难, 研究工作的开展转向如何获得孤立阿秒脉冲. 基于高次谐波产生手段, 当前提出了四种主要方法获得孤立阿秒脉冲. 第一种是偏振门技术, 利用该技术 Sansone 等人在实验上实现了孤立的 130 as 的短脉冲辐射<sup>[7]</sup>. 第二种是少周期驱动方案, 德国马普量子光学研究所的 Goulielmakis 等人利用该方案在实验上获得了 80 as 的孤立短脉冲<sup>[8]</sup>. 第三种是双光学门技术, Chang 等人利用该技术获得了 67 as 的孤立短脉冲<sup>[9]</sup>. 第四种是双色激光脉冲控制方案, 该方案在最近几年不断取得新的进展<sup>[10-13]</sup>. Zeng 等人利用 800 nm 强激光脉冲与 400 nm 弱激光脉冲组合, 获得了 65 as 的孤立短脉冲<sup>[10]</sup>. Wu 等人利用 800 nm 强啁啾脉冲与 1600 nm 弱控制脉冲组合, 获得了 38 as 的孤立短脉冲<sup>[11]</sup>. Xu 等人利用强

\* 国家自然科学基金(批准号: 10604021)资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: chengao@cust.edu.cn

800 nm 啁啾脉冲与弱 800 nm 无啁啾控制脉冲组合, 获得了 11 as 的孤立短脉冲<sup>[12]</sup>. 在高次谐波产生过程中, 在入射光场的半个光学周期内, 有两个主要的量子路径对每一阶次的谐波有贡献, 一个路径是电子先电离后复合的长路径, 另一个是电子后电离先复合的短路径. 当前双色场方案主要集中在量子路径控制方案, 即通过选择合适的控制脉冲选出其中一个量子路径, 而抵制另一个量子路径的出现, 以此获得频带超宽的连续辐射谱.

不同于前人给出的双色场方案, 在本论文中, 我们同样采用 800 nm 弱激光脉冲与 1330 nm 的强激光脉冲组合, 通过合理控制两束脉冲之间的相对相位延迟, 优化双色激光场的脉冲形状来控制截止位置附近超连续谐波由长、短两个量子路径构成, 并且, 在很宽的谐波次数变化范围内辐射时刻比较集中, 即超连续谱上的谐波相位完全匹配. 这样, 即使每一频率的谐波辐射时间较长, 但由于不同次谐波的相位一致, 干涉后的脉宽短, 该方案完全不同于以往孤立阿秒脉冲研究中选出长、短量子路径之一作为辐射源的方法, 最终获得了 38 as 的孤立短脉冲.

## 2 理论模型和计算方法

本文采用 Crank-Nicolson 直接数值积分法<sup>[13]</sup>, 直接求解强激光和原子相互作用的含时 Schrödinger 方程. 在长度规范和电偶极近似下, 强激光和单原子作用的一维含时 Schrödinger 方程为 (若无特殊说明, 以下均采用原子单位)

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

$V_a(x)$  为原子势函数, 本文选用修正的软核库仑势<sup>[14]</sup>来描述:

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

取  $q = 1.1, a = 1$ , 使得体系的基态能量为  $\epsilon_0 = -0.9$ , 对应氢原子的基态. 我们选这个态为原子在激光场中演化前的状态.

$E_{\text{mix}}(t)$  为线偏振的双色激光电场, 它的形式为

$$E_{\text{mix}}(t) = E_1 f_1(t) \cos(\omega_1 t) + E_2 f_2(t) \cos(\omega_2 t + \phi), \quad (3)$$

$E_i$  表示波长为 800 nm 的钛宝石脉冲和 1330 nm 的红外脉冲的峰值振幅, 脉冲包络函数  $f_i(t) = \sin^2(\pi t/T)$ , 其中  $T = 5T_0$  ( $T_0$  是钛宝石脉冲的光

学振荡周期), 相当于 5 fs 的半高全宽.  $\omega_i$  表示两束脉冲的角频率,  $\phi$  是两束脉冲之间的相对相位. 在具体实验过程中, 红外脉冲可通过调整 800 nm 主脉冲的光学参量过程来实现.

通过数值求解方程 (1) 可得体系在任意时刻的含时波函数  $\psi(x, t)$ , 进而得到加速度偶极矩:

$$d_A(t) = \frac{d^2}{dt^2} \langle \psi(x, t) | x | \psi(x, t) \rangle = -\langle \psi(x, t) | \frac{dV_a(x)}{dx} | \psi(x, t) \rangle - E(t). \quad (4)$$

体系的高次谐波光谱可以通过偶极加速度的傅里叶变换得到

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

其中  $t_i, t_f$  为傅里叶变换的初时刻和末时刻. 再对加速度偶极矩做相应的 Morlet 小波变换, 则可得某一次谐波的时间特性. 即, 频率为  $\omega$  的谐波在时刻  $t$  的发射功率幅值为

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

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

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

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. 本文选择  $\tau = 40$ .

在求解 Schrödinger 方程的过程中, 我们人为地设置空间边界  $x = \pm 2000$ , 步幅  $dx = 0.02$ , 时间网格点 0.01. 为了避免波包在空间边界的反射, 加入了  $\cos^{1/8}$  形式的面具函数, 这个函数在  $|x| = 1700$  到 2000 的空间距离从 1 缓慢变化到 0.

## 3 结果与分析

图 1(a) 中黑实线展示了氢原子与双色场作用得到的高次谐波辐射谱. 计算中钛宝石基频脉冲与 1330 nm 的红外脉冲的峰值振幅分别为  $E_1 = 0.04$  和  $E_2 = 0.16$ , 两束脉冲的脉宽均为 5 fs, 相对相位  $\phi = -\pi/8$ . 为了比较, 图 1(a) 中虚线给出了该原子与单一基频钛宝石主脉冲相互作用得到的谐波谱. 图 1(b) 给出了该原子与单一 1330 nm 红外脉冲作用得到的谐波谱. 两束单脉冲的峰值振幅均取为 0.2, 脉宽为 5 fs. 由图可见, 不同辐照条件下谐波谱截止位置及连续的带宽明显不同. 对于单

一钛宝石脉冲情况, 谐波谱截止位置为 187 次; 单一 1330 nm 红外脉冲情况, 谐波谱截止位置为 833 次, 两种单色场条件下的截止频率与截止位置公式  $E_{\text{cutoff}} = I_p + 3.17U_p$  预言结果一致 ( $U_p = E^2/4\omega^2$  是有质动力能), 且仅截止位置附近的几次谐波是连续的. 而当组合脉冲被采用时, 谐波谱呈现出截止位置分别为 125 次和 361 次的双平台结构, 且第二个平台上 125—361 次谐波具有规则的 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. 为解释组合脉冲辐照下氢原子谐波谱的上述特性, 下面从半经典三步模型出发尝试给出清晰的物理解释.

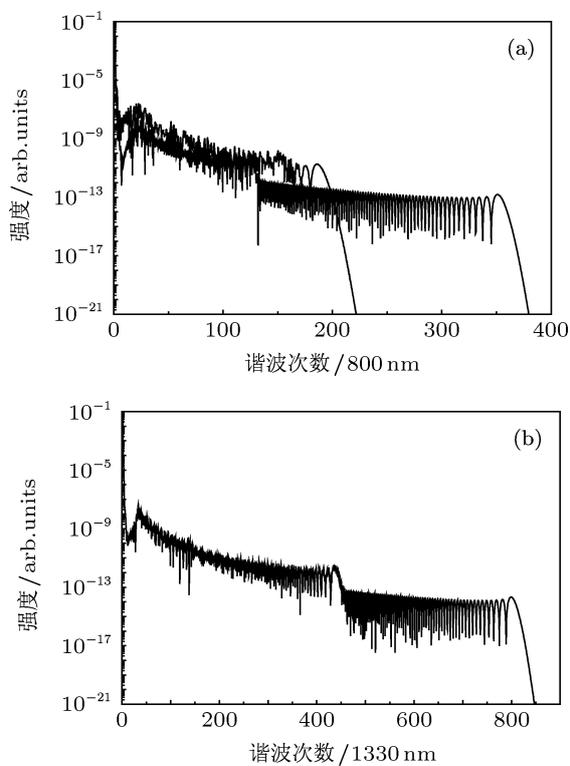


图 1 (a) 800 nm 单色激光脉冲(虚线)、组合激光脉冲(实线)与氢原子相互作用生成的高次谐波辐射谱, 单色脉冲的峰值振幅  $E_1 = 0.2$ , 组合脉冲的峰值振幅为  $E_1 = 0.04$  和  $E_2 = 0.16$ , 脉宽均为 5 fs; (b) 1330 nm 单色脉冲与氢原子相互作用生成的高次谐波辐射谱, 单色脉冲的峰值振幅  $E_2 = 0.2$ , 脉宽为 5 fs

依据三步模型公式, 我们数值计算了组合脉冲辐照下电子复合时刻具有的动能随电子电离时刻的变化关系, 如图 2 所示. 可以看到, 电子在  $t = 1.89$  个 800 nm 光学周期处电离时, 与原子核复合时具有的最大动能为  $10U_p$ , 相应的谐波次数为 361 次, 与图 1 中观测到的谐波谱截止频率一致. 而电子在  $t = 2.69$  光学周期处电离时, 与原子核复合时具有的动能为  $3.16U_p$ , 相应的谐波次数为 125 次, 对应

于谐波谱第一平台的截止位置. 对于图 2 中第一个光学周期之前电离的电子, 即使与原子核复合时有较大的动能, 但由于激光电场的低振幅导致产生的谐波效率低, 对谐波谱的贡献可以忽略. 由此可见, 半经典三步模型的计算结果与数值求解含时薛定谔方程的模拟结果完全一致.

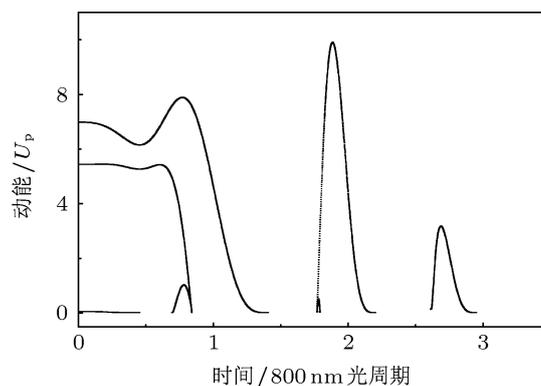


图 2 组合脉冲辐照下, 氢原子中电离电子与原子核复合时动能随电子电离时刻的变化关系

在图 1(a) 中我们还注意到, 对于 125 次到 361 次之间的谐波, 呈现出规则的连续性, 应该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. 为进一步证实连续辐射谱的谐波由两个量子路径形成, 我们利用小波变换方法计算了两种不同辐照条件下连续辐射谱的时频分析结果, 如图 3-5 所示. 从图 3 中可看到, 对于单一钛宝石基频脉冲的情况, 有多个峰值出现, 中间最高次数主峰与相邻主峰之间仅相差十几次谐波, 由此导致谐波谱截止位置附近的连续谱很窄, 且该连续谱由长、短两个量子路径构成, 对这些连续的谐波做小波变换得到的是阿秒脉冲链, 如图 6(a) 所示. 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. 图 4 给出的是单一 1330 nm 脉冲的辐照下的时频分析图, 图中仍有两个峰值, 每个峰值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. 对于高数值附近的左右两个分支, 从 700 次谐波开始, 长、短量子路径合并成一条轨迹, 然而只有截止位置附近的 799 次到 810 次谐波相位匹配, 因此小波变换后得到了如图 6(b) 所示的 170 as 的单脉冲. 而对于组合脉冲情形, 1330 nm 红外脉冲的注入引起基频脉冲电场包络发生显著变化, 进一步调整了电子波包的时空轨迹. 从图 5 中可看到, 时频图中仍然有两个峰值, 每个峰值左右两边都有两个分支.

对于高数值附近的左右两个分支, 在很宽的谐波次数变化范围内辐射时刻比较集中, 从 290 次谐波开始, 长、短量子路径合并一条轨迹, 且谐波辐射的中心时刻基本相同, 即不同次谐波之间的相位匹配很好. 虽然每一频率的谐波辐射时间较长, 但由于不同次谐波的相位一致, 干涉后的脉宽将大幅变短. 图 6(c) 展示了组合脉冲谐波谱上 290 次到 361 次谐波叠加生成的孤立阿秒脉冲时域图, 可以看到, 获得了一个规则的、孤立的 38 阿秒的短脉冲. 该方案不同于以往双色场方案中选出长、短量子路径之一作为短脉冲辐射源的方法, 它克服了单一量子路径中不同次谐波相位匹配程度不完全一致的问题, 因此获得了很好的效果.

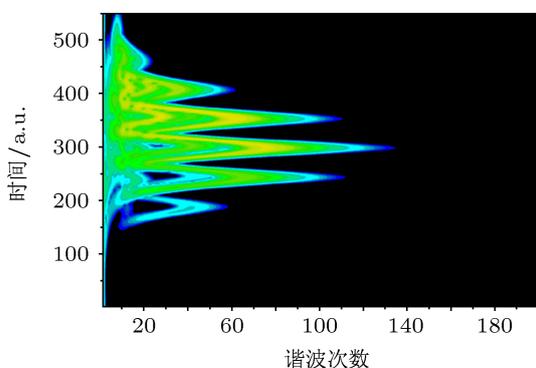


图 3 单一钛宝石光脉冲辐照下, 连续辐射谱的小波时频分析图

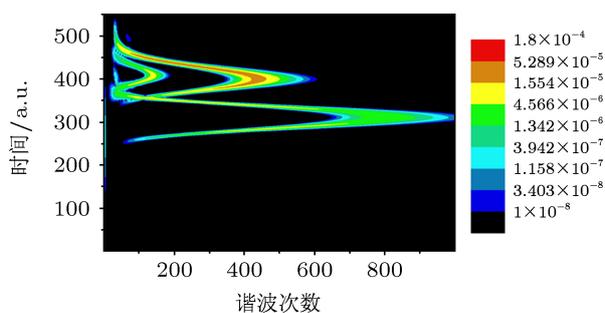


图 4 单一 1330 nm 光脉冲辐照下, 连续辐射谱的小波时频分析图

这里值得注意的是, 上述双色场计算中两束脉冲强度的选取与传统双色场方法不同, 即钛宝石基频脉冲的峰值强度小于 1330 nm 的红外脉冲的强度, 因此获得了 38 as 的孤立短脉冲. 在保持其他条件不变的情况下, 如果我们调换两束脉冲的峰值振幅, 即钛宝石基频脉冲与 1330 nm 的红外脉冲的峰值振幅分别取为  $E_1 = 0.16$  和  $E_2 = 0.04$ , 当两束脉冲之间的相对相位  $\phi = 0$  时 (最合适的相位条件),

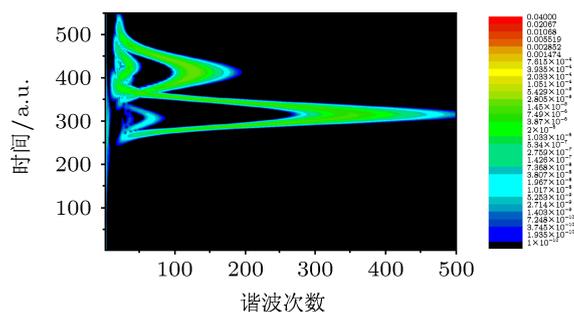


图 5 组合脉冲辐照下, 连续辐射的小波时频分析图 (组合脉冲参数同图 1)

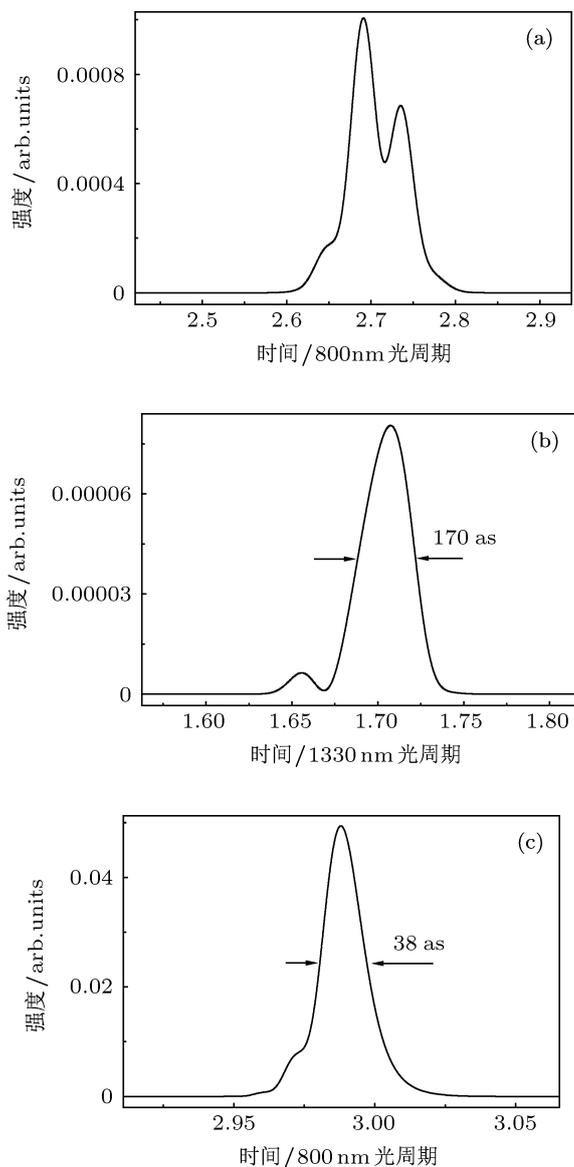


图 6 阿秒脉冲产生的时间包络曲线 (a) 场幅为  $E_1 = 0.2$  的单一钛宝石激光脉冲辐照下, 196—200 次谐波小波变换结果; (b) 场幅为  $E_2 = 0.2$  的单一 1330 nm 光脉冲辐照下, 799—810 次谐波小波变换结果; (c) 组合脉冲辐照氦原子产生的 290—361 次谐波小波变换结果

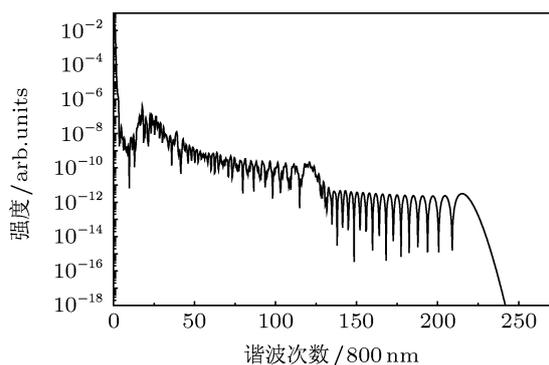


图7 组合激光脉冲与氦原子相互作用生成的高次谐波辐射谱. 组合脉冲的峰值振幅分别为  $E_1 = 0.16$  和  $E_2 = 0.04$ , 脉宽为 5 fs

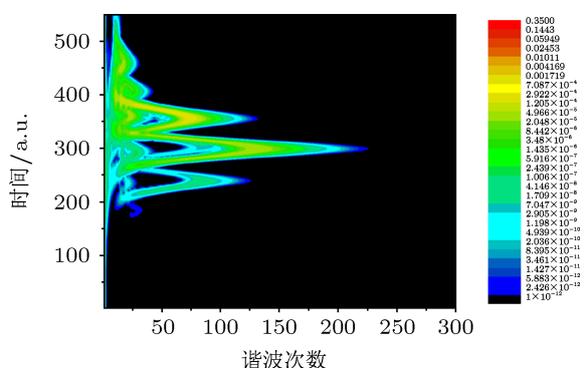


图8 组合脉冲辐照下, 连续辐射谱的小波时频分析图(组合脉冲参数同图6)

该双色场与氦原子相互作用得到的高次谐波辐射谱与时频分析结果展示在图7中, 可以看到, 谐波谱依旧呈现出双平台结构, 且截止位置附近130至224次谐波具有超连续的带宽, 应该由两个量子路径构成, 图8的时频分析结果证实了这个结论. 但从图8中, 我们也注意到, 对于高截止附近的两个量子路径分支, 随着谐波次数的变化, 谐波辐射时

刻变化明显比图5要快, 即截止位置附近谐波的辐射时刻不再集中, 因此仅当对谐波谱上216至224次谐波直接做反向傅里叶变换后才可得到100 as的孤立短脉冲, 如图9所示. 由此可见, 38 as孤立短脉冲的获得也得益于1330 nm红外脉冲的强度高于800 nm基频钛宝石脉冲的强度.

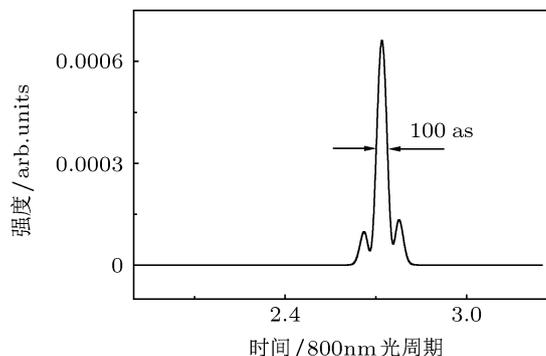


图9 组合脉冲辐照氦原子产生的216—224次谐波小波变换结果

## 4 结论

本文利用 Crank-Nicolson 直接数值积分方法数值计算了 5 fs 的双色激光脉冲与氦原子相互作用产生的高次谐波发射功率谱. 研究发现, 由于 1330 nm 波长激光的加入, 谐波谱的截止频率由单色场情形下 187 次大幅度地展宽到 361 次, 而且, 谐波谱呈现了双平台结构, 第二个平台上 125—361 次谐波具有非常规则的 X 射线波段超连续辐射谱, 叠加其部分谐波获得了 38 as 的孤立短脉冲. 时频分析展示了孤立阿秒脉冲的产生也可由长短两个量子路径构成, 只要这两个量子路径的辐射时刻相对集中. 不同次谐波之间相位基本匹配.

[1] 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  
 [2] Drescher M, Hentschel M, Drescher M, Kienberger R, Tempea G, Spielmann C, Reider G A, Corkum P B, Krausz F 2001 *Science* **291** 1923  
 [3] Drescher M, Hentschel M, Kienberger R, Uiberacker M, Yakovlev V, Scrinzi A, Westerwalbesloh T H, Kleineberg U, Heinzmann U, Krausz F 2002 *Nature* **419** 803  
 [4] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994  
 [5] Bartels R A, Paul A, Green H, Kapteyn H C, Mumane M M, Backus S, Christov I P, Liu Y, Attwood D, Jacobsen C 2002 *Science* **297** 376

[6] Paul P M, Toma E S, Breger P, Mullot G, Auge F, Balcou Ph, Muller H G, Agostini P 2001 *Science* **292** 1689  
 [7] 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  
 [8] Hong W Y, Zhang Q B, Yang Z Y, Lu P X 2009 *Phys. Rev. A* **80**, 053407  
 [9] Liu I L, Li P C, Chu Shih-I 2011 *Phys. Rev. A* **84** 033414  
 [10] Chen J G, Zeng S L, Yang Y J 2010 *Phys. Rev. A* **82** 043401  
 [11] 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]

[12] 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]  
[13] 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, 朱硕人 2009 物理学报 **58** 1574]  
[14] Eberly J H, Su Q, Javanainen J 1989 *Phys. Rev. Lett.* **62** 881

# Isolated 38 as pulse generation from two-color pulse\*

Chen Gao<sup>1)†</sup> Yang Yu-Jun<sup>2)</sup> Guo Fu-Ming<sup>2)</sup>

1) ( College of Science, Changchun University of Science and Technology, Changchun 130022, China )

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

( Received 6 October 2012; revised manuscript received 11 December 2012 )

## Abstract

We have investigated theoretically the high-order harmonics and attosecond pulse generation by numerically solving the one-dimensional time-dependent Schrödinger equation from a helium atom in a two-color laser field, which is synthesized by adding a 1330-nm infrared pulse with higher intensity to an 800-nm fundamental pulse with lower intensity. Our results clearly show that if the phase difference between the two pulses is selected suitably, the generation of high-order harmonics spectrum with a broadband supercontinuum characteristic can be achieved, and an isolated 38 as pulse can be realized. By the time-frequency analysis, we find that the isolated attosecond pulse comes from the contribution of the long and short quantum paths, and for these two quantum paths the change of emission time with the harmonics order is rather slow. This is different from the traditional isolated attosecond pulse generation that a single quantum path needs to be picked up to obtain an isolated attosecond pulse.

**Keywords:** high harmonics generation, single attosecond pulse, quantum path

**PACS:** 32.80.Rm, 42.50.Hz, 42.65.Re

**DOI:** 10.7498/aps.62.073203

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

† Corresponding author. E-mail: chengao@cust.edu.cn