

60 fs 长脉宽双色场作用下孤立阿秒脉冲的产生*

刘胜男 陈高† 孟健

(长春理工大学, 长春 130022)

(2011 年 9 月 30 日收到; 2011 年 12 月 9 日收到修改稿)

通过数值求解一维含时 Schrödinger 方程, 研究了具有较长脉宽双色激光脉冲与氢原子相互作用产生的高次谐波和阿秒 (as) 脉冲. 这里的双色激光脉冲由一束基频钛宝石主脉冲与另一束红外附加脉冲构成. 研究发现, 当合成脉冲的脉宽选为 12 fs 时, 选取合适的附加脉冲波长, 合成电场的振幅在始末端时间段能被大幅抑制, 仅中间部分的电场对谐波谱平台区和截止位置起主要贡献. 通过分析合成脉冲电场始末端时间段抑制的机理, 进一步扩展了合成脉冲脉宽到 60 as, 并得到 160 as 的孤立短脉冲. 这是迄今为止在孤立阿秒脉冲产生研究中所采用的最长脉宽. 该方案中的合成脉冲等效于单一 5 fs 短脉冲的作用, 却克服了 5 fs 脉冲低输出能量导致的阿秒脉冲能量低的困难.

关键词: 高次谐波, 孤立阿秒脉冲, 长脉宽组合脉冲

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

1 引言

阿秒脉冲可以即时跟踪和探测原子与分子中电子的运动, 对这些电子运动过程的深刻理解能导致新光源的发展、探索严重疾病的微观起源. 高次谐波产生是当前实验上能够实现阿秒 (as) 脉冲辐射源的惟一手段^[1-3]. 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. 研究发现, 所有高次谐波辐射谱均呈现如下特征行为: 最初的几次谐波, 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^[4].

采用高次谐波手段, 当前孤立阿秒脉冲的产生可通过以下技术实现.

当线偏振激光脉冲短于两个周期时, 合理地控制载波包络相位, 谐波谱截止区可实现相位匹配的宽带超连续谱, 实验上得到 80 as 的孤立短脉冲^[5], 这是迄今为止在实验上能够得到的最短脉冲. 然而, 该方案采用的几个周期量级的光脉冲能量较低, 导致产生的阿秒脉冲效率低, 很难用于激发 XUV 以及软 X 射线波段超快非线性现象.

一个可替代方案是利用高次谐波对抽运光偏振态响应及其灵敏的特性, 通过快速改变驱动激光场的偏振态使高次谐波在一极短的时间间隔内产生而获得单个阿秒脉冲^[6]. 然而, 为了得到一个极短的时间间隔, 有用的线偏振激光场强度比实际激光场强度低, 该方法得到的阿秒脉冲实际是以损失激光能量为代价, 与采用线偏振激光脉冲相比, 得到的阿秒脉冲效率低.

2006 年, Pfeifer 等^[7] 结合 12 fs 的基频钛宝石激光与它的二次谐波脉冲, 通过调整两束脉冲之间的相位, 在实验上得到了效率较高的 130 as 的孤立短脉冲, 这在阿秒研究领域是一个新的突破. 由于该方案不要求使用具有几个光学周期量级的超短

* 国家自然科学基金 (批准号: 10604021) 资助的课题.

† E-mail: chengao@cust.edu.cn

光脉冲, 克服了毛细管脉冲压缩装置、啁啾镜或者偏振门技术带来的脉冲能量低, 以及两束脉冲之间相对相位不容易控制等缺点, 在实验上比较容易实现. 该方案虽不能通过进一步展宽入射驱动脉冲的脉宽获得孤立阿秒脉冲, 但它提供了一个新的思路. 可以采用多周期双色场获得孤立阿秒脉冲, 且在实验上较易实现. 2010 年, Lan 等^[8] 利用 15 fs 钛宝石激光脉冲与一束 40 fs 的附加脉冲组合, 当附加脉冲波长为 1300 nm 时, 得到 220 as 的孤立短脉冲. 基于以上分析, 本文从组合脉冲电场的形状出发, 详细地分析了多周期双色场作用下孤立阿秒脉冲的产生机理, 进而采用 60 fs 的双色场得到了 160 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^[9], 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^[10]来描述:

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

取 $q = 1$, $a = 2$, 使得体系的基态能量为 $\varepsilon_0 = -0.5$, 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

$$E_{\text{mix}}(t) = E_1 f_1(t) \cos(\omega t) + E_2 f_2(t) \cos \left[\left(\omega - \frac{m\omega}{n} \right) t + \phi \right] \quad (m < n), \quad (3)$$

E_i 和 $f_i(t)$ 分别是波长为 800 nm 的钛宝石主脉冲和附加脉冲的峰值振幅和包络函数, ω 是主脉冲的角频率, ϕ 是两束脉冲之间的相对相位. 从 (3) 式中可看到, 附加脉冲的频率可通过调整整数 m 和 n 来改变. 在具体实验过程中可通过调整 800 nm 主脉冲的光学参量过程来控制.

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^[11], 则可得某一次谐波的时间特性. 即频率为 ω 的谐波在时刻 t 的发射功率幅值为

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

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

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

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 $\tau = 15$.

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^[12], 这个函数在 $|x| = 1700$ 到 2000 的空间距离从 1 缓慢变化到 0.

3 多周期双色场作用下孤立阿秒脉冲的产生

在多周期双色场辐照下, 体系中能否产生孤立阿秒脉冲, 需研究多周期双色场与氢原子相互作用的高次谐波产生过程. 计算中选取附加脉冲波长为 960 nm, 即 (3) 式中 $m = 1$ 和 $n = 6$. 两束脉冲的相对相位 $\phi = 0$, 脉宽均为 12 fs (附加脉冲脉宽在数值模拟中对计算结果影响很小). 主脉冲与附加脉冲电场的峰值振幅分别为 $E_1 = 0.07$ 和 $E_2 = 0.04$.

图 1 的黑实线展示了氢原子与双色场作用得到的高次谐波谱. 为了比较, 图 1 中虚线给出了该原子与不同强度的钛宝石主脉冲相互作用得

到的谐波谱. 由图可见, 三种不同辐照条件下谐波谱截止位置明显不同. 当较高强度主脉冲被采用时 ($E_1 = 0.11$), 谐波谱的截止位置为 61 次; 当较低强度的主脉冲被采用时 ($E_1 = 0.07$), 谐波谱的截止位置仅为 29 次. 两种情形下谐波谱截止位置与截止位置公式 $E_{\text{cutoff}} = I_p + 3.17U_p$ [13] 预言的结果一致, 这里 I_p 是电离势, U_p 是有质动力能. 而当组合脉冲被采用时, 谐波谱的截止位置为 67 次, 且截止位置附近出现超连续谱. 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, 当电子在 $t = 608$ a.u. 电离 (5.52 个光学周期), 与原子核复合时具有的最大动能为 $8.86U_p$, 相应的谐波次数为 67 次, 该结果与数值求解含时 Schrödinger 方程的模拟结果一致.

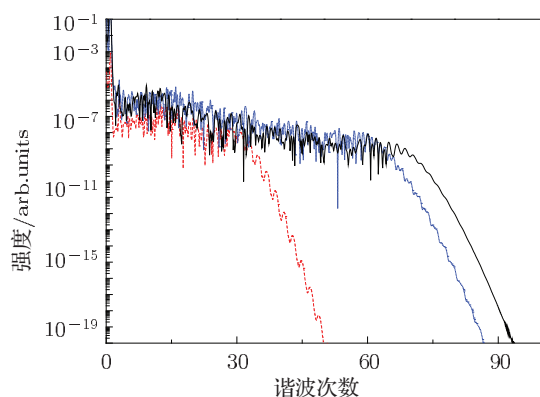


图 1 黑实线为组合脉冲与氢原子相互作用得到的谐波辐射功率谱; 点线是场幅为 $E_1 = 0.07$ 的单一钛宝石激光脉冲与氢原子相互作用产生的谐波辐射谱; 短线是场幅为 $E_1 = 0.11$ 的单一钛宝石激光脉冲与氢原子相互作用产生的谐波辐射谱

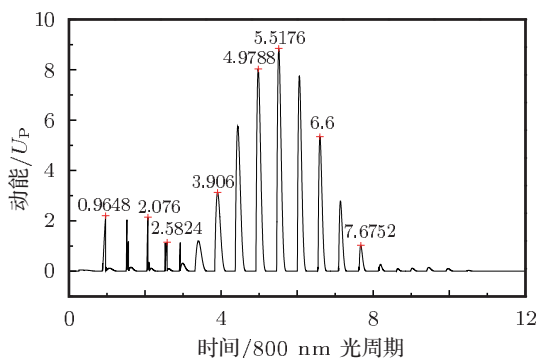


图 2 组合脉冲辐照下电子在复合时刻具有的动能随电子电离时刻的变化

图 3 展示了三种不同辐照条件下的时频分析结果. 在图 3(a) 和 (b) 中, 由于主脉冲在相邻半个光

学周期的对称性, 具有最大能量的光子每个光学周期辐射两次, 因此产生了周期性的阿秒脉冲链. 附加脉冲的注入引起主脉冲电场时间包络发生显著变化, 进一步调整了电子波包的时空轨迹. 图 3(c) 展示了组合脉冲谐波谱上 62 到 72 次谐波的时频分析结果, 可以看到产生了 140 as 的孤立短脉冲.

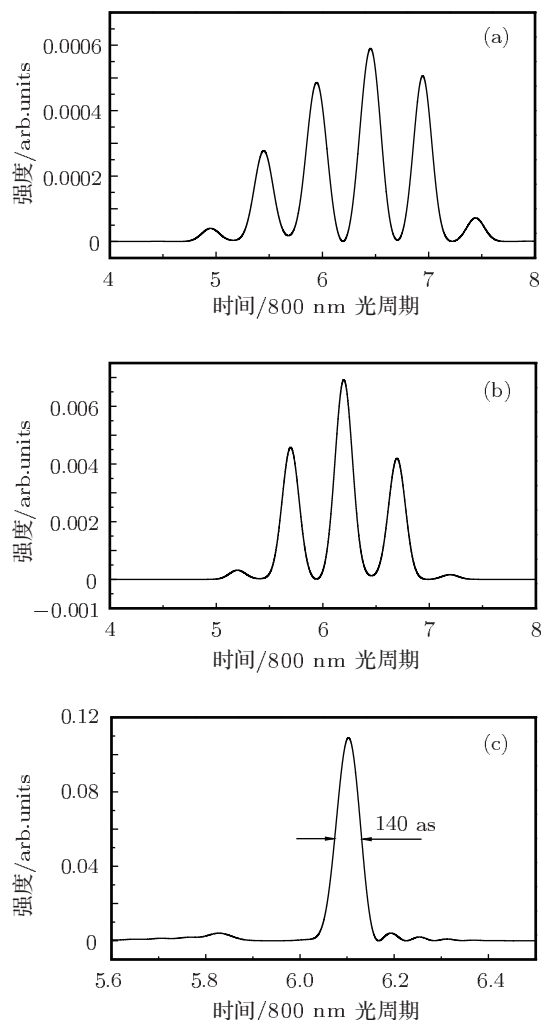


图 3 阿秒脉冲产生的时间包络曲线 (a) 场幅为 $E_1 = 0.07$ 的单一钛宝石激光脉冲辐照下产生的第 29 次谐波小波变换结果; (b) 场幅为 $E_1 = 0.11$ 的单一钛宝石激光脉冲辐照下产生的第 61 次谐波小波变换结果; (c) 组合脉冲辐照下产生的 62—72 次谐波小波变换结果

4 多周期双色场作用下孤立阿秒脉冲的产生机理

为了分析多周期双色场与原子作用产生孤立阿秒脉冲的机理, 图 4(c) 给出了合成脉冲电场随时间变化的曲线. 由图可见, 附加脉冲的注入将主脉

冲电场平均分成三个时间段, 其中两端时间段电场的振幅被大幅抑制, 仅中间时间段的电场对谐波谱平台区和截止区起主要贡献. 若采用该双色场作为入射驱动脉冲, 在高次谐波产生过程中将等效于单一 5 fs 短脉冲的作用, 即可用于获得孤立的阿秒短脉冲, 却克服了 5 fs 脉冲低输出能量导致的阿秒脉冲能量低的困难. 因此在图 3(c) 中出现了强度较高的 140 as 孤立短脉冲.

下面采用数学手段分析特定波长的附加脉冲注入后, 合成脉冲电场始末端时间段被抑制的原因, 有利于我们进一步展宽获得孤立阿秒脉冲的入射驱动脉冲宽度. 在 (3) 式中, 我们首先取 $E_1 = E_2$, 双色激光电场的形式化为

$$E_{\text{mix}}(t) = E_1 f_1(t) \left\{ \cos(\omega t) + \cos \left[\left(\omega - \frac{m\omega}{n} \right) t \right] \right\}. \quad (6)$$

经过简单的三角函数变换, (6) 式可写为

$$\begin{aligned} E_{\text{mix}}(t) &= 2E_1 f_1(t) \cos \left[\left(\omega - \frac{m\omega}{2n} \right) t \right] \\ &\quad \times \cos \left(\frac{m\omega}{2n} t \right) \\ &= 2E_1 f(t) \cos \left[\left(\frac{11}{12} \omega \right) t \right] \\ &\quad \times \cos \left(\frac{1}{12} \omega \right). \end{aligned} \quad (7)$$

这里合成电场由两个余弦函数乘积构成, 第一个余弦函数的振荡频率是 $11\omega/12$, 则光学周期是 $T_1 = 12T/11$ (T 是钛宝石激光脉冲的振荡频率). 在上面的计算过程中, 选取的脉冲包络函数包含 12 个钛宝石光学振荡周期, 通过简单的计算, 整个包络中应该包含 11 个 T_1 . 图 4(a) 给出了去掉 (7) 式中最后一个余弦函数后电场的时域包络曲线. 很显然包络中包含着 11 个光学振荡周期. 同样地, 对于 (7) 式中最后一个余弦函数, 当合成场的脉宽仍为包含 12 个光学周期的钛宝石脉冲时, 整个包络中仅有一个光学振荡周期, 即 $T_2 = 12T$, 如图 4(b) 所示. 在图 4(b) 中, 我们也看到以下两个时间段电场的振幅值很低, 即从第二个光学周期到第四个光学周期及第八个光学周期到第十个光学周期. 而在图 4(a) 中, 由于脉冲包络的限制, 电场的低振幅出现在前两个光学周期和最后两个光学周期. 两个余弦函数乘积的结果必然是电场的振幅呈现三个时间段, 在始端 (从开始到第四个光学周期) 和末端 (从第八个周期到最后) 两个时间段, 电场的振幅

被大幅抑制, 仅中间时间段的电场对谐波谱平台区和截止位置起主要贡献.

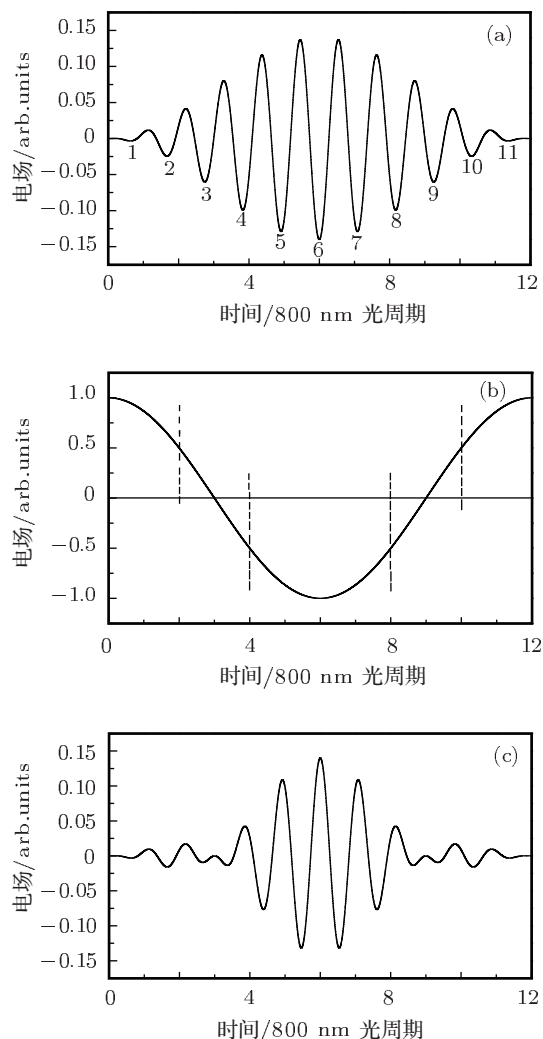


图 4 电场的振幅随时间变化曲线 (a) 频率为 $(1 - m/2n)\omega$ 的电场; (b) 频率为 $m\omega/2n$ 的电场; (c) 合成脉冲电场

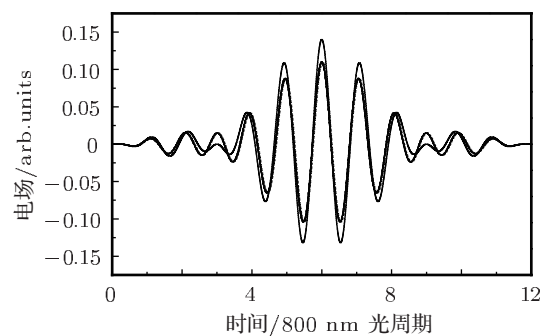


图 5 合成脉冲电场的振幅随时间变化曲线 点线: $E_1 = 0.07$ 和 $E_2 = 0.04$; 实线: $E_1 = 0.07$ 和 $E_2 = 0.07$

以上分析是在 $E_1 = E_2$ 的情况下给出的, 但它同样适用于 $E_1 \neq E_2$ 的情形. 图 5 中的实线和虚线展示了两种情形下电场振幅随时间变化的曲线. 可

见, 附加脉冲电场振幅的变化主要调整合成脉冲的峰值振幅, 并不影响合成脉冲始末端时间段振幅的大幅抑制.

5 60 fs 长脉宽双色场作用下孤立阿秒脉冲的产生

从上述合成脉冲电场形状的分析中看到, 对于脉冲包络中包含 12 个钛宝石光学周期的双色场, 仅包络峰值附近的 4 个光学周期对谐波谱平台区和截止位置起主要贡献. 若想进一步展宽入射的双色场脉宽, 依据以上分析, 对谐波谱有贡献的中间时间段将包含更多周期. 图 6 展示了脉冲包络中包含 18 个钛宝石光学周期时的组合脉冲电场. 图中显示了中间段的 6 个光学周期将对谐波谱平台区和截止位置起主要贡献. 如果再进一步延展组合脉冲的脉宽, 依此方案, 孤立阿秒脉冲将不再能够实现. 然而, 在分析 (7) 式中两个余弦函数乘积的过程中发现, 整个脉冲包络中包含余弦函数 $\cos(m\omega/2n)$ 的一个周期, 合成电场的包络呈现三个时间段. 若调整附加脉冲的频率, 使得整个脉冲包络中包含余弦函数 $\cos(m\omega/2n)$ 的三个周期, 合成电场的包络将呈现五个时间段, 且包络峰值附近的中间段有效电场长度将会进一步缩短, 约为整个脉宽的五分之一. 更进一步地, 让整个脉冲包络中包含余弦函数 $\cos(m\omega/2n)$ 的五个周期, 合成电场的包络将呈现九个小时段. 基于此, 我们在图 7(a) 中展示了由 60 个钛宝石光学周期构成的包络中包含余弦函数 $\cos(m\omega/2n)$ 的五个周期时的合成电场示意图, 可以看到主脉冲的大包络现在由九个小时段构成, 且仅中间第 5 个小时段对谐波谱截止位置的超连续谱有贡献. 采用该双色场与氢原子相互作用得到的高次谐波辐射谱如图 7(b) 所示, 可以看到截止位置附近 48 至 64 次谐波产生了超连续谱, 时频分析后得到了 170 as 的孤立短脉冲. 这是迄今为止在孤立阿秒脉冲产生研究中采用的最长入射驱动脉冲脉宽.

图 7 给出的结果是在两束脉冲之间相对相位 ϕ 取 0 时得到的. 当调整两束脉冲之间相对相位时, 合成脉冲电场的波形将发生改变, 进一步调整电子的运动轨迹. 图 8 展示的是当两束脉

冲相对相位在从 0 到 π 且以 $\pi/8$ 的弧度改变时, 得到的阿秒脉冲时域曲线图. 由图可见, 仅当 ϕ 取 $2\pi/8$ 和 $4\pi/8$ 时, 得到的是阿秒脉冲链, 其余相位处皆可获得孤立的阿秒短脉冲, 且在 0 和 $6\pi/8$ 时, 可分别获得 170 和 160 as 的孤立短脉冲.

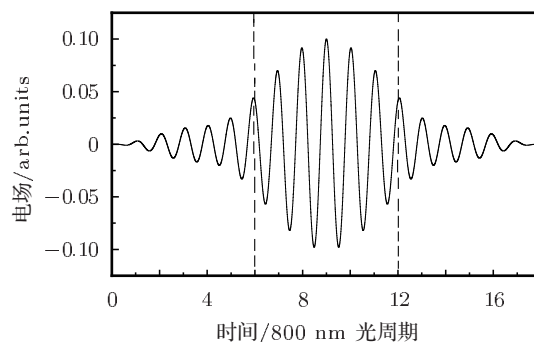


图 6 双色场脉宽为 18 fs 时的电场振幅随时间变化曲线

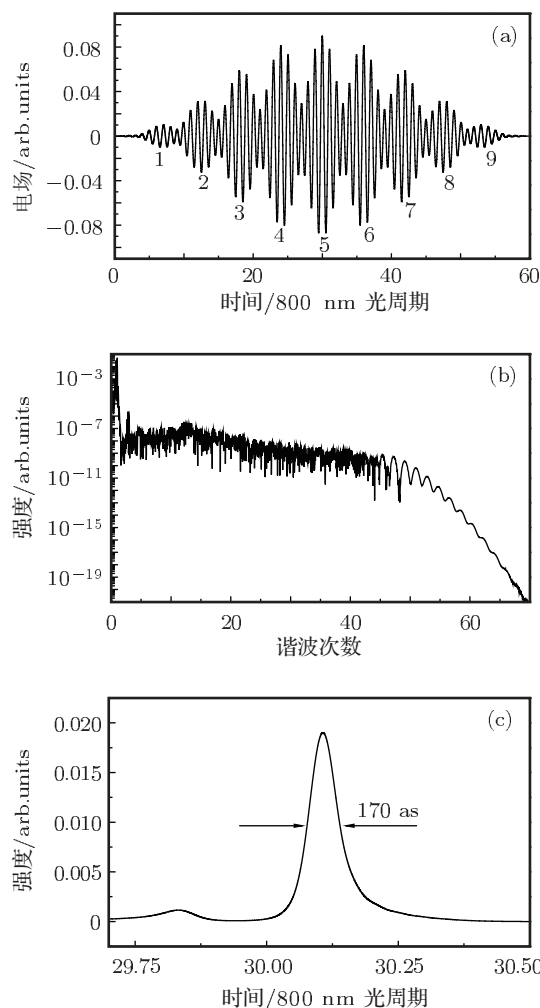


图 7 (a) 双色场脉宽为 60 fs 时的电场振幅随时间变化曲线; (b) 在 (a) 中双色脉冲辐照下的高次谐波功率谱; (c) 48—64 次谐波的时频分析结果

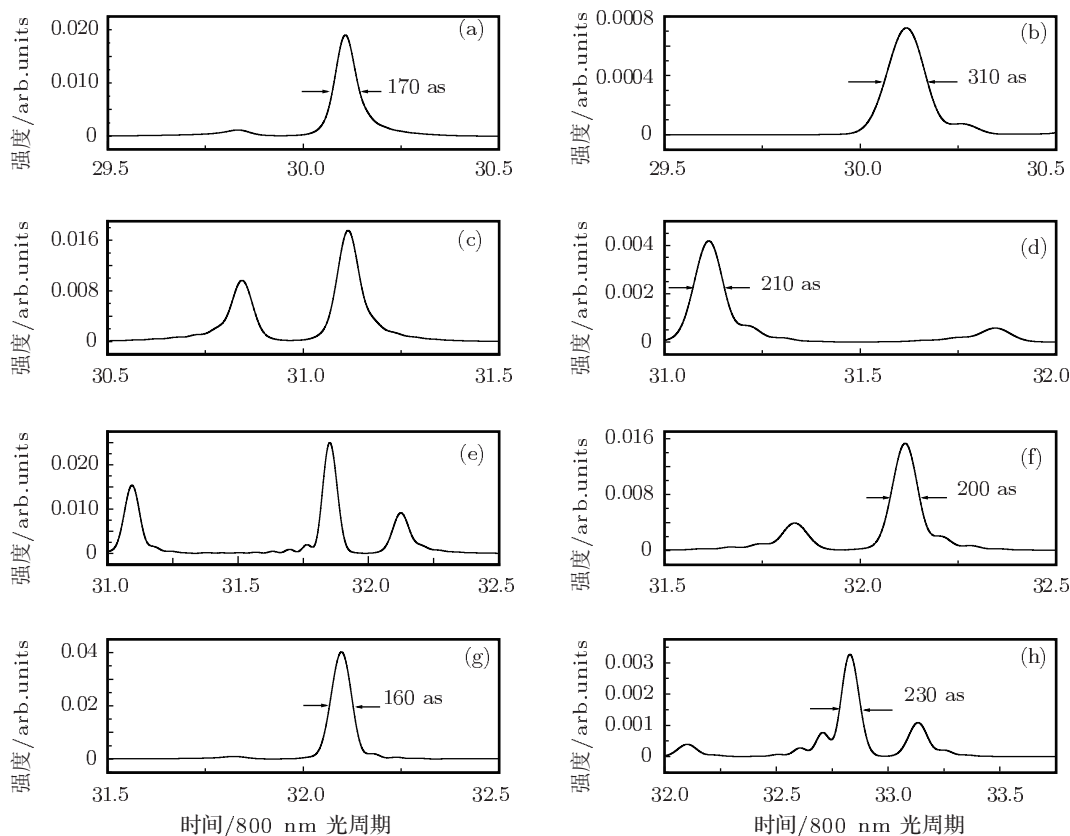


图8 两束脉冲之间的相对相位不同时阿秒脉冲的时域曲线 (a) 0; (b) $\pi/8$; (c) $2\pi/8$; (d) $3\pi/8$; (e) $4\pi/8$; (f) $5\pi/8$; (g) $6\pi/8$; (h) $7\pi/8$

6 结论

本文利用 Crank-Nicolson 直接数值积分方法求解了氢原子与长脉宽双色脉冲相互作用产生的高次谐波辐射谱, 通过对谐波谱做小波变换, 给出了截止位置附近谐波的时频分析. 研究发现, 采用长脉宽组合脉冲与原子相互作用, 只要附加脉冲的波长选择合适, 同样可以得到孤立的阿秒脉冲. 通过研究长脉宽双色场作用下孤立阿秒脉冲的产生机理, 首次利用 60 fs 的长脉宽获得 160 as 的孤立短脉冲. 该方案的实现大大减少了对传统使用的抽

运激光系统的要求, 人们可以选择常规的高功率抽运激光系统获得孤立阿秒脉冲.

本文方案可通过如下实验过程实现: 钛宝石激光系统输出 800 nm 驱动脉冲分成两束, 一束直接进入光学参量放大系统, 输出 1200—1500 nm 之间的信号光和 1650—2050 nm 之间闲频光, 闲频光的能量由中等密度的过滤器滤出, 另一束钛宝石脉冲与放大的信号光一起通过球镜聚焦后作用到惰性气体靶上. 两束脉冲的相对时间由延迟控制器调整, 半波片控制基频脉冲和控制脉冲的偏振状态.

- [1] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, Reider G A, Milosevic N 2001 *Nature* **414** 509
- [2] Drescher M, Hentschel M, Kienberger R, Tempea G, Spielmann C, Reider G A, Paul B, Corkum P B, Krausz F 2001 *Science* **291** 1923

- [3] Drescher M, Hentschel M, Kienberger R, Uiberacker M, Yakovlev V 2002 *Nature* **419** 803
- [4] 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

- [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] 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** 443
- [7] Pfeifer T, Gallmann L, Abel M J, Neumark D M, Leon S R 2006 *Opt. Lett.* **975** 977
- [8] Lan P F, Takahashi E J, Midorikawa K 2010 *Phys. Rev. A* **82** 053413
- [9] 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, 朱颀人 2009 物理学报 **58** 1574]
- [10] Eberly J H, Su Q, Javanainen J 1989 *Phys. Rev. Lett.* **62** 881
- [11] Bellini M, Corsi C, Gambino M C 2001 *Phys. Rev. A* **64** 023411
- [12] Balcou P, L' Huillier A, Escande D 1996 *Phys. Rev. A* **53** 3456
- [13] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994

Generation of isolated attosecond pulse from two-color pulse with duration of 60 fs*

Liu Sheng-Nan Chen Gao[†] Meng Jian

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

(Received 30 September 2011; revised manuscript received 9 December 2011)

Abstract

We theoretically investigate the high-order harmonic and attosecond pulse generation by numerically solving the one-dimensional time-dependent Schrödinger equation from a hydrogen atom in a two-color laser field, which is synthesized by adding a suitable multicycle infrared pulse to a multicycle 800 nm fundamental pulse. Our results clearly show that when there are 12 Ti: sapphire optical cycles in the pulse envelope, by adding a suitable second optical field, the electric field of the synthesized pulse presents three-segments, and only amplitude of the electric field in middle segment makes a major contribution to the plateau and cutoff region of the harmonic spectrum. By analyzing the compression mechanism of two-color electric field, we further enlarge the duration of the synthesized pulse to 60 fs, and obtain a single 160 as short pulse. This has been the longest pulse duration used for obtaining single attosecond pulse so far. Here the effect of synthesized pulses is similar to the effect of single 5 fs ultrashort pulse. This scheme greatly reduces the requirements for the pump laser system used traditionally for generating an isolated attosecond pulse, and it allows us to use a well-established conventional high-power pumping laser.

Keywords: high harmonic generation, single attosecond pulse, multicycle synthesized pulse

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

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

[†] E-mail: chengao@cust.edu.cn