

控制场对宽带超连续谱产生的影响^{*}

张庆斌 兰鹏飞 洪伟毅 廖 青 杨振宇 陆培祥[†]

(华中科技大学 武汉光电国家实验室 武汉 430074)

(2007 年 11 月 5 日收到 2008 年 9 月 8 日收到修改稿)

研究了控制场对宽带超连续谱产生的影响,计算表明控制脉冲的波长在 $1.6 \pm 0.2 \mu\text{m}$ 范围内调节时,谐波谱的超连续部分形状几乎没有变化,截止区位置和超连续谱宽度变化都小于 5%. 随着控制场相对于基频场强度的增加,谐波谱上超连续部分的宽度会增加. 采用强度为 $6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 波长为 800 nm, 脉冲宽度为 12 fs 的多光周期基频脉冲叠加脉冲宽度为 30 fs, 波长为 $1.6 \mu\text{m}$, 相对相位为 -0.1π , 相对强度为 20% 的控制场作为驱动脉冲, 选出了短量子轨道并产生 105 eV 的超连续谱, 获得了 70 as 的单个脉冲输出.

关键词: 宽带, 超连续谱, 阿秒脉冲, 短量子轨道

PACC: 7220H, 4265K

1. 引 言

电子在原子、分子中运动的典型时间尺度是百阿秒(attosecond, $1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$)量级,这一时间尺度小于任何单光周期的可见光脉冲. 极紫外(XUV)阿秒脉冲的产生可以使超快科学进入一个全新的领域. 例如阿秒脉冲可以用来跟踪电子的运动, 观察原子、分子中电子的弛豫过程, 观察内壳层电子的动力学行为和隧道电离等. 目前, 产生阿秒脉冲的方法主要有受激拉曼散射(SRS)^[1], 汤姆森散射^[2,3], 高次谐波产生(HHG)^[4,5]等. 高次谐波的辐射, 由于它的辐射谱呈现平台区以及延伸到极紫外甚至软 X 射线波段等特点而成为产生阿秒脉冲的首选光源^[6,7]. 由于在激光场中每半个光周期高次谐波都会辐射一次, 因此在时域上表现为阿秒脉冲链, 在实际应用中, 阿秒脉冲链将带来许多困难. 因此单阿秒的产生成为了研究的一个热点. 单阿秒的产生需要破坏高次谐波辐射的周期性, 利用脉冲宽度极短的只有几个光周期的脉冲作为驱动光, 选出截止区附近超连续的一段谐波谱^[7-9]可以获得单阿秒脉冲. Hentschel 等人在实验上利用 7 fs 的超短脉冲激光驱动原子得到了脉冲宽度为 650 as 的单个阿秒脉冲输出^[7], 但

这种方法面临的困难是超连续谱带宽难以超过 20 eV, 对应单阿秒脉冲的最小脉宽为 250 as^[8]. 研究人员在理论上提出了用多光周期的驱动脉冲产生单阿秒的方案^[10-14], 受带宽限制而难以突破 100 as. 众所周知的是随着频域上带宽的增加, 对应时域上脉冲的傅里叶极限脉宽越短, 因此超连续谱的带宽成为极短单个脉冲产生的关键问题. Sansone 等人将“偏振态门”技术用于 5 fs 超短脉冲后, 经过啁啾补偿得到了 130 as 的单个脉冲输出^[15], 这种方法由于只有一小部分驱动光的能量被利用而导致辐射出的阿秒脉冲能量较低. Lan 等人提出用 5 fs 超短脉冲与大核间距分子作用获得亚 100 as 单个脉冲^[16], 但是实验上控制分子的核间距存在一定的难度. Zeng 等人用 6 fs 的超短脉冲和它的倍频场获得了宽带超连续谱^[17], 我们也在文献 [18] 中提出了用 10 fs 基频脉冲和 $\omega/2$ 低频场产生 100 as 以下单个脉冲的机理. 本文用 12 fs 的多光周期基频脉冲叠加 $\omega/2$ 低频控制场选出短量子轨道, 得到 105 eV 的超连续谱, 对比于文献 [17] 中选择长量子轨道. 在数值计算中, 比较了一维和二维计算的模拟结果. 通过调节波长和相对强度等参数进一步研究了控制场对宽带超连续谱产生的影响, 得到控制场波长在中心波长附近可调, 超连续谱宽度随控制场相对强度增强而增加的

^{*} 国家重点基础研究发展计划(973)项目(批准号:2006CB806006)和国家自然科学基金(批准号:10574050, 10774054, 10734080)资助的课题.

[†] E-mail: lupeixiang@mail.hust.edu.cn

结论,为放宽实验限制条件提供了理论依据。

$$K(t) = \left| \sum_h a_h e^{iht} \right|^2. \quad (9)$$

2. 计算模型

本文的计算采用原子单位制(atomic unit, a.u.).在单电子近似条件下,激光场与原子相互作用的含时薛定谔方程可以表示为

$$i \frac{\partial \psi(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = \left[-\frac{1}{2} \nabla^2 + V(\mathbf{r}) - E(t) \cdot \mathbf{r} \right] \psi(\mathbf{r}, t), \quad (1)$$

其中 $V(\mathbf{r})$ 为库仑势, $E(t)$ 为激光场。

采用软核势形式^[19]来表示的库仑势为

$$V(\mathbf{r}) = -\frac{1}{\sqrt{a+r^2}}, \quad (2)$$

其中 a 为软核参数,通过调节 a 可以控制库仑势具有不同的势阱深度.本文中,一维情况下软核参数取 0.471,二维情况下软核参数取 0.07,对应的电离能为 24.6 eV,与氢原子相对应。

激光场在一维计算和二维计算中都沿 x 方向偏振,表达式为

$$E(t) = f(t, T_0) E_0 \cos \left[\omega_0 \left(t - \frac{T_1}{2} \right) + \varphi_0 \right] + f(t, T_1) E_1 \cos \left[\omega_1 \left(t - \frac{T_1}{2} \right) \right], \quad (3)$$

其中

$$f(t, T_0) = \sin^2 \left(\pi \left(t - \frac{T_1}{2} + \frac{T_0}{2} \right) / T_0 \right), \quad (4)$$

$$f(t, T_1) = \sin^2(\pi t / T_1), \quad (5)$$

E_0, ω_0 和 φ_0 分别为基频场的振幅、频率和相对相位, E_1, ω_1 分别为控制场的强度和频率. $f(t, T_0)$ 与 $f(t, T_1)$ 分别为基频场和控制场的包络, T_0 和 T_1 是表征基频场和控制场脉冲宽度的参数。

通过分裂算符^[20]和谱方法求解含时薛定谔方程得到任意时刻的波函数 $\psi(\mathbf{r}, t)$. 若基态波函数为 u_0 , 则 t 时刻电子处于基态的概率为

$$P_{\text{ground}} = \alpha(t)^2 = u_0 | \psi(\mathbf{r}, t) |^2. \quad (6)$$

激光场偏振方向的偶极子加速度为

$$a(t) = - \langle \psi(x, t) | \partial V(x) / \partial x - E(t) | \psi(x, t) \rangle. \quad (7)$$

对 $a(t)$ 进行傅里叶变换可以得到其频谱构成

$$P_h(\omega) = |a_h(\omega)|^2 \sim \left| \int a(t) e^{-iht} dt \right|^2, \quad (8)$$

对频谱上的数次谐波叠加就得到了时域上的阿秒脉冲

本文的计算中,一维模型时间步长为 0.1 a.u., 总时间点数为 10000,空间步长为 0.1 a.u.,总格点数为 8000.二维模型时间步长取 0.1 a.u.,总时间点数为 10000, x 方向空间步长取 0.3 a.u.,格点数为 2000, y 方向空间步长取 0.4 a.u.,格点数为 1500.由于波函数在计算边界处会发生反射,影响计算结果的准确度.以一维问题为例,我们采用吸收函数^[16]

$$\cos(2\pi(|x| - L_a)(L - L_a))^{1/8} \quad (|x| > L_a) \quad (10)$$

来处理边界问题,其中 L 为 x 正方向或负方向的边界, L_a 为吸收边界,每计算一个时间步长吸收一次。

3. 结果与分析

图 1(a) 是 5 fs 驱动脉冲的电场强度随时间变化图,图 1(b) 是 5 fs 驱动脉冲与氢原子作用后电子的回复动能 E_k 随电离时刻(●)以及回复时刻(×)变化的示意图.图 1(c) 是 10 fs 基频脉冲和 30 fs 控制脉冲所组成的复合驱动脉冲的电场强度随时间变化图,图 1(d) 是复合脉冲与氢原子作用后电子的回复动能 E_k 随电离时刻(●)以及回复时刻(×)变化的示意图.如图 1(a)(c) 所示,电子主要在电场峰值 A_1, A_2, A_3 处被电离通过 R_1, R_2, R_3 回复.从图 1(b) 中可以看出通过 R_1, R_2, R_3 回复的最大动能分别为 95 eV, 115 eV, 90 eV, 即从 95—115 eV 约 20 eV 的带宽全部是由过程 R_2 这半个光周期中辐射出的,选择谐波谱上这个带宽约为 20 eV 的区域,可以得到最小脉宽为 250 as 的单个脉冲.从图 1(d) 中可以看出通过 R_1, R_2, R_3 回复的最大动能分别为 115 eV, 190 eV, 105 eV, 其中 115—190 eV 约 75 eV 的谐波谱是超连续的,傅里叶极限约为 47 as.从图 1(c)(d) 中可以看出用 10 fs 基频场脉冲叠加 30 fs 控制场与图 1(a)(b) 中直接用 5 fs 脉冲相比,可以选择的谱宽更宽,更有利于获得 100 as 以下的单脉冲输出。

从 Corkum 的经典模型出发,

$$v = - \int_{t_i}^{t_r} [E_0(t) + E_1(t)] dt = v_1 + v_2, \quad (11)$$

$$E_k = \frac{1}{2} (v_1 + v_2)^2 = \frac{1}{2} (v_1^2 + v_2^2 + v_1 v_2) \quad (12)$$

其中 t_i, t_r 分别为电离时刻和回复时刻. v_1, v_2 分别为基频场和控制场加速电子产生的速度,交叉项 $v_1 v_2$ 通过 v_1 放大了较小的速度 v_2 的作用.因此,加

入强度较低的控制场就能极大的拓宽谱宽.

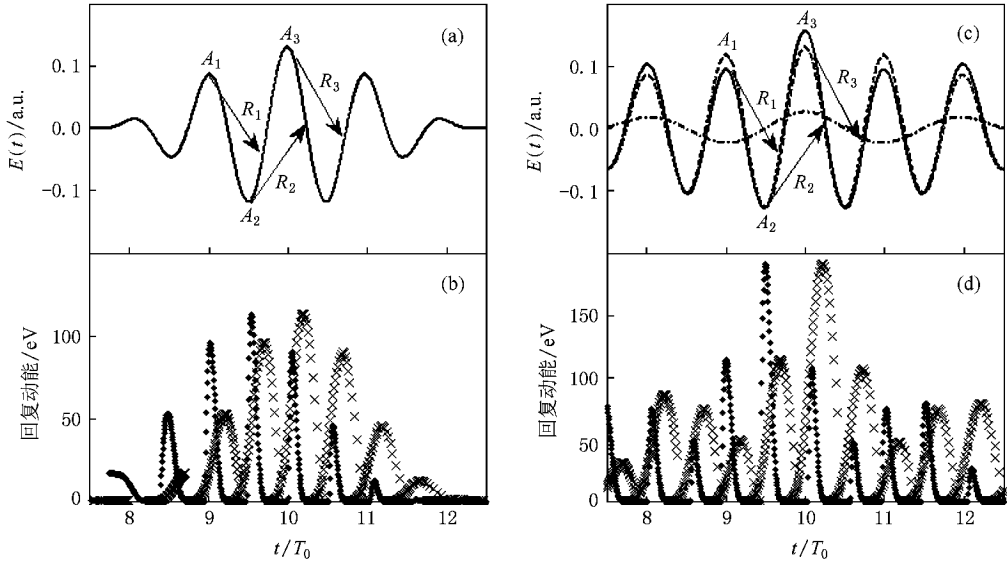


图 1 (a)是脉宽为 5 fs, 波长 $\lambda_0 = 800$ nm, $\phi_0 = 0$, 激光场强度 $I_0 = 6 \times 10^{14}$ W/cm² 的驱动脉冲的电场强度随时间变化图 (b)是 (a) 中脉冲与氢原子相互作用后电子回复的动能 E_k 随电离时刻 (●) 以及回复时刻 (×) 变化的示意图 (c)是脉宽为 10 fs, 波长 $\lambda_0 = 800$ nm, $\phi_0 = 0$, 激光场强度 $I_0 = 6 \times 10^{14}$ W/cm² 的驱动脉冲 (虚线) 和脉宽为 15 fs, 波长 $\lambda_1 = 1.6$ μ m, 激光场强度 $I_1 = 0.04 I_0$ 的控制脉冲 (点划线) 所组成的复合脉冲 (实线) 的电场强度随时间变化图 (d)是 (c) 中复合脉冲与氢原子相互作用后电子的回复动能 E_k 随电离时刻 (●) 以及回复时刻 (×) 变化的示意图

图 2 (a) (b) (c) 为一维情况下控制场波长分别为 1.4 μ m, 1.6 μ m, 1.8 μ m 时, 复合驱动脉冲与氢原子作用后产生的谐波谱. 从图 2 (a) (b) (c) 中可以看出, 谐波谱的超连续部分在形状上几乎是相同

的. 与控制场波长为 1.6 μ m 的情况比较, 截止区位置和超连续谱宽度变化都小于 5%, 即控制场波长在一定的范围内不会影响实验结果, 为实验上通过光参量放大技术 (OPA) 来实现低频控制场的输出降

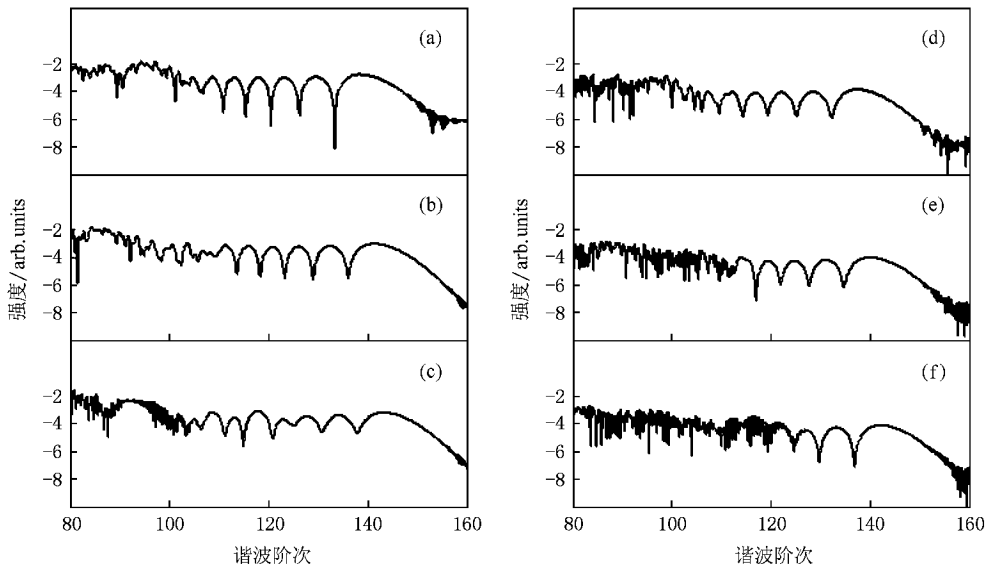


图 2 控制场波长不同时复合驱动场与氢原子作用的谐波谱图, 所使用基频场与图 1 (c) 中基频场相同, 控制场脉冲宽度为 10 fs, 相对强度强度为 4%, 波长分别为 (a) (d) 1.4 μ m (b) (e) 1.6 μ m (c) (f) 1.8 μ m, 其中 (a) (b) (c) 为一维计算结果 (d) (e) (f) 为二维计算结果

低了难度.图 3(d)(e)(f)分别为使用(a)(b)(c)中的激光参数得到的二维计算结果.比较两组结果,二维谐波谱与一维谐波谱在超连续谱宽,截止区位置等方面具有相同的性质.但是二维计算的谐波强度要比一维计算的谐波强度低 1—2 个数量级.这可以从两个方面加以解释:一方面,二维计算中考虑了 y 方向,电子波包在运动过程中在 y 方向会扩散,从而降低了谐波的产生效率;另一方面,采用软核参数的一维含时薛定谔方程计算与二维情况相比增强了电离概率,因此二维计算的谐波强度要低于一维计算情况.

图 3(a)(b)(c)为控制场相对于基频场的强

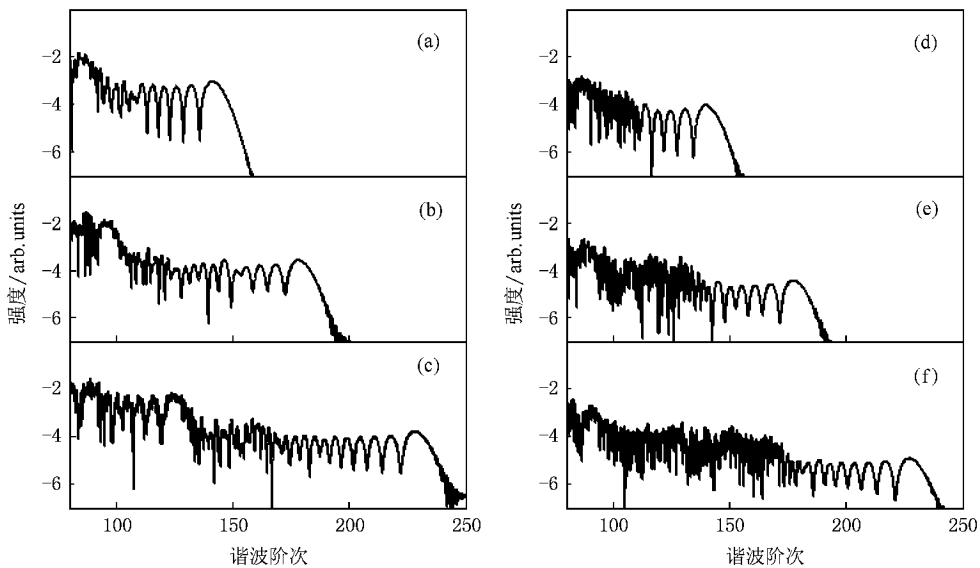


图 3 为不同控制场相对强度下的谐波辐射图.所使用基频场激光参数与图 1(c)相同,控制场的相对相位 $\phi_0 = -0.1\pi$ 波长为 $1.6 \mu\text{m}$ 相对强度分别为(a)(d)4% (b)(e)10% (c)(f)20% 其中(a)(b)(c)为一维计算结果(d)(e)(f)为二维计算结果

图 4(a)(b)分别为控制场相对强度为 20% 相对相位为 -0.1π 时一维和二维计算得到的谐波辐射图.图 4(c)是谐波信号的时频分析图.图 4(d)是超连续部分频率叠加后得到的脉冲辐射图.每半个光周期内,除截止区外,同一次谐波具有两次辐射时间,先电离后辐射的称为长轨道,后电离先辐射的称为短轨道^[4,21].时频图 4(c)中 105 eV 段中长轨道和短轨道都起作用,而控制脉冲的加入对电场形状进行调制使得短轨道产生的辐射要强于通过长轨道产生的辐射,因此短量子轨道可以被选出,对比于文献[17]的图 4(c)中选出长量子轨道.选择 60 eV (170—210 次谐波)的辐射谱,在时域上表现如图 4(d).如图 4(d)所示,图中有两个子脉冲,其中由短轨道所

度分别为 4% ,10% ,20% 的一维计算结果.获得的超连续谱宽度分别为 75 eV ,90 eV ,135 eV ,分别对应对于 110—155 次 ,135—195 次 ,165—245 次谐波.随着控制场强度的增加,图 1(c)中的 A_3 会被进一步加强.从而使得在 A_2 附近被电离,经过 R_2 回复的电子能量增加,平台区向高能部分拓展,而在 A_1 附近电离,经过 R_1 回复的电子能量也会增加,但增幅小于前一过程.随着控制场相对强度的增加,超连续部分宽度会增加.在不过电离的情况下,增加控制场的相对强度有利于得到宽带超连续谱.图 3(d), (e)(f)为使用与(a)(b)(c)相同激光参数得到的二维计算结果.

产生的一个子脉冲的宽度为 70 as 且强度远大于由长轨道所产生的子脉冲,可以认为这半个光周期内只辐射出了一个脉冲.由于谐波的产生过程决定了谐波谱存在固有啁啾,直接选择更宽的谱并不能进一步压缩脉宽.采用啁啾补偿的方法^[16],选择 105 eV 的超连续谱,对应的傅里叶极限脉宽为 34 as. Dudovich 等人将高次谐波的产生比作电子干涉仪,回复电子与基态电子相干辐射出谐波信号,因此电离率过低或者过电离情况下都会极大的降低高次谐波的转化效率^[22].当电子从基态电离的概率约为 50% 时,谐波产生效率较高.我们利用(6)式计算了在图 4 所选用的激光脉冲参数下电子处于基态的概率.计算结果表明,脉冲作用过后电子处于基态的概率仍然有 65% ,谐波转化效率较高.

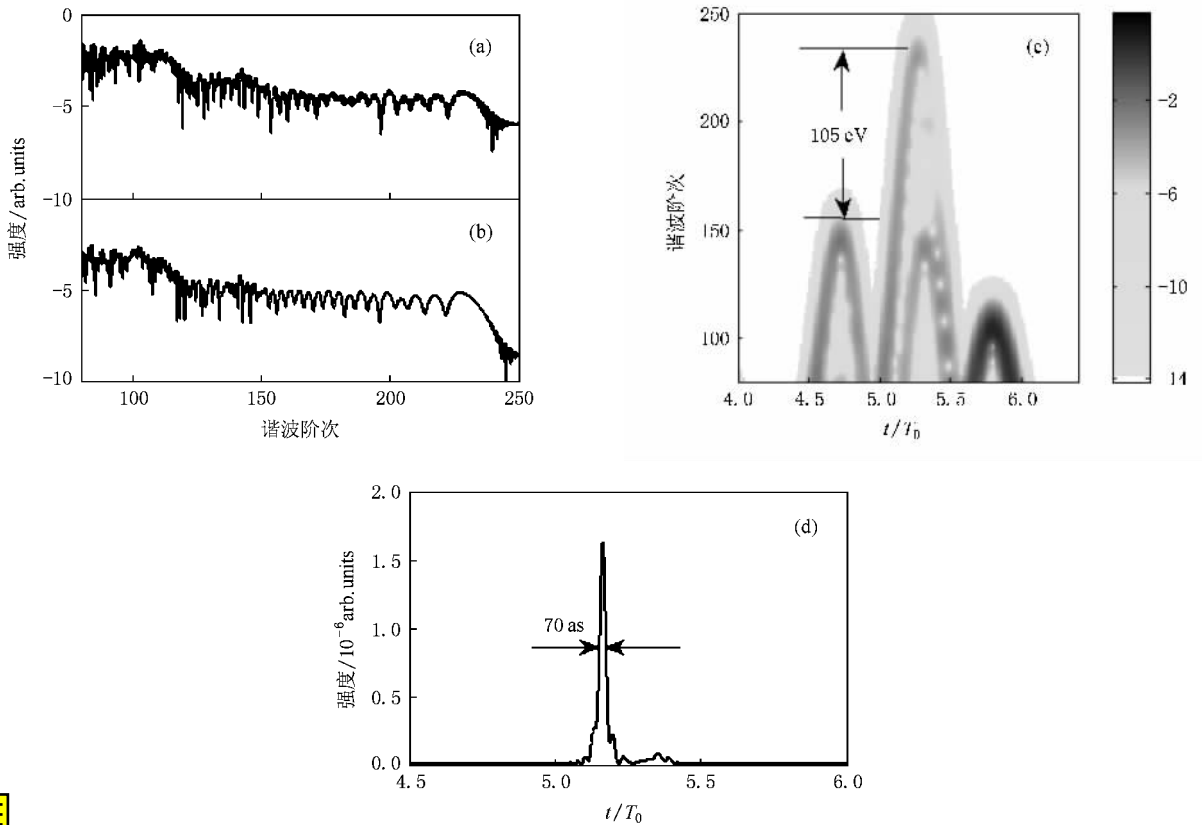


图4 基频场脉冲宽度为 12 fs, 强度为 6×10^{14} W/cm², 波长为 800 nm, 控制场相对强度为 20%, 波长为 1600 nm, 相对相位为 -0.1π , 脉冲宽度为 30 fs. (a) 一维计算的谐波辐射图 (b) 二维计算的谐波辐射图 (c) 原子高次谐波辐射的时频分析图 (d) 超连续谱上 60 eV(170—210 次谐波) 叠加后的到的时间辐射图

4. 结 论

本文研究了控制场对宽带超连续谱产生的影响, 计算中, 采用 12 fs 的多光周期的基频场叠加控制场可以在选出短量子轨道的同时产生 105 eV 的宽带超连续谱, 获得 70 as 的单个脉冲输出, 这为实

验上通过量子轨道调控获得 100 as 以下的单个脉冲提供了一种可行方案. 进一步研究表明, 控制场波长在 $1.6 \mu\text{m} \pm 0.2 \mu\text{m}$ 范围内变化对谐波谱的超连续部分形状几乎没有影响, 截止区位置和超连续谱宽度变化都小于 5%, 放宽了对控制场波长的限制. 随着控制场相对于基频场强度的增加, 谐波谱上超连续部分的宽度会增加.

- [1] Sokolov A V, Walker D R, Yavuz D D, Yin G Y, Harris S E 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 562
- [2] Lee K, Cha Y H 2003 *Phys. Rev. E* **67** 026502
- [3] Lan P F, Lu P X, Cao W, Wang X L 2005 *Phys. Rev. E* **72** 066501
- [4] Antoine P, Huillier A L', Lewenstein M 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 1234
- [5] Antoine P, Milosevic D B, Huillier A L', Gaarde M B, Salieres P, Lewenstein M 1997 *Phys. Rev. A* **56** 4960
- [6] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994

- [7] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, Reider G A, Milosevic N, Brabec T, Corkum P B, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2001 *Nature* **414** 509
- [8] Kienberger R, Goulielmakis E, Uiberacker M, Baltuska A, Yakovlev V, Bammer F, Scrinzi A, Westerwalbesloh T, Kleineberg U, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2004 *Nature* **427** 817
- [9] Baltuska A, Udem T, Uiberacker M, Hentschel M, Goulielmakis E, Gohle C, Holzwarth R, Yakovlev V S, Scrinzi A, Hänsch T W, Krausz F 2003 *Nature* **421** 611
- [10] Corkum P B, Burnett N H, Ivanov M Y 1994 *Opt. Lett.* **19** 1870

- [11] Pfeifer T , Gallmann L , Abel M J , Nagel P M , Neumark D M , Leone S R 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 163901
- [12] Cao W , Lu P X , Lan P F , Wang X L , Yang G 2007 *Opt. Express* **15** 530
- [13] Cao W , Lan P F , Lu P X 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 1608 (in Chinese) [曹 伟、兰鹏飞、陆培祥 2007 物理学报 **56** 1608]
- [14] Lan P F , Lu P X , Cao W , Wang X L , Hong W Y 2007 *Opt. Lett.* **32** 1186
- [15] Sansone G , Benedetti E , Calegari F , Vozzi C , Avaldi L , Flammini R , Poletto L , Villoresi P , Altucci C , Velotta R , Stagira S , Silvestri De S , Nisoli M 2006 *Science* **314** 433
- [16] Lan P F , Lu P X , Cao W , Wang X L , Yang G 2006 *Phys. Rev. A* **74** 063411
- [17] Zeng Z N , Cheng Y , Song X , Li R X , Xu Z Z 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 203901
- [18] Lan P F , Lu P X , Cao W , Wang X L 2007 *Phys. Rev. A* **75** R011402
- [19] Eberly J H , Su Q , Javanainen J 1989 *Phys. Rev. Lett.* **62** 811
Li X X , Xu Z Z , Tang 1997 *Acta Phys. Sin.* **46** 267 (in Chinese)
[李学信、徐至展、汤 燕 1997 物理学报 **46** 267]
- [20] Ferr M D , Fleck J A , J R , Steiger A 1982 *J. Comput. Phys.* **47** 412
- [21] Kim C M , Nam C H 2006 *J. Phys. B* **39** 3199
- [22] Dudovich N , Smirnova O , Levesqur J , Mairesse Y , Ivanov M Y , Villeneuve D M , Corkum P B 2007 *Nat. Phys.* **3** 381

The effect of controlling laser field on broadband supercontinuum generation^{*}

Zhang Qing-Bin Lan Peng-Fei Hong Wei-Yi Liao Qing Yang Zhen-Yu Lu Pei-Xiang[†]

(Wuhan National Laboratory for Optoelectronics , Huazhong University of Science and Technology , Wuhan 430074 , China)

(Received 5 November 2007 ; revised manuscript received 8 September 2008)

Abstract

The effect of controlling laser field on broadband supercontinuum generation is researched. By adjusting the wavelength of controlling field as much as $\pm 0.2 \mu\text{m}$ at $1.6 \mu\text{m}$, no effect has been found in supercontinuum obviously, the cut off range and the bandwidth of supercontinuum both vary less than 5%. With increasing of the intensity of the controlling field, the supercontinuum is broadened. A 12 fs/800 nm and a 30 fs/1.6 μm pulses are combined to serve as the driving pulse with the relative phase of -0.1π and relative intensity of 20%, the short quantum path is selected and a 105 eV supercontinuum is obtained.

Keywords : broadband , supercontinuum , attosecond pulse , short quantum path

PACC : 7220H , 4265K

^{*} Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant No. 2006CB806006) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10574050 , 10774054 , 10734080).

[†] E-mail : lupeixiang@mail.hust.edu.cn