

非平行偏振双色场驱动产生脉宽稳定的 单个宽谱阿秒脉冲*

洪伟毅 杨振宇 兰鹏飞 张庆斌 李钱光 陆培祥†

(武汉光电国家实验室, 华中科技大学, 武汉 430074)

(2008 年 9 月 10 日收到, 2008 年 12 月 3 日收到修改稿)

提出一种直接得到脉宽稳定的单个宽谱阿秒脉冲的新方法. 利用波长为 800 nm 脉宽为 5 fs 的超短脉冲叠加上偏振方向与主脉冲成 $\pi/3$, 脉宽同样为 5 fs 的二次谐波脉冲驱动氢原子, 可以得到宽度达到 50 eV 的超连续谱. 当二次谐波的强度大于 10^{14} W/cm² 时, 超连续谱的位置以及谱宽几乎不会随着二次谐波脉冲的强度的改变而改变. 对 85—125 eV 的超连续谱进行滤波可以直接得到 100 as 左右的单个阿秒脉冲, 这个性质对于实验上获得单个宽谱阿秒脉冲而言是非常有利的.

关键词: 阿秒脉冲, 超连续谱

PACC: 7220H, 4265K, 3000

1. 引 言

阿秒脉冲的产生对于超快科学的发展具有非常重要的意义. 作为一种具有极高分辨率的工具, 可用于观察和控制原子内部电子的动力学行为, 比如内壳层电子的弛豫和隧道电离过程等等. 由于高次谐波具有覆盖了从红外到极紫外甚至软 X 射线的谱宽, 于是很快便成为了突破飞秒极限, 实现阿秒 (attosecond, as) 脉冲产生的首选方案^[1-4], 也是目前唯一能在实验上得到阿秒脉冲的方案. 高次谐波的辐射过程可以用 Corkum 提出的经典“三步模型”^[5]来理解: 基态的电子通过多光子电离或者隧道电离进入到连续态, 连续态的电子在激光场的作用下运动并获得能量. 其中的一部分电子在激光场的驱动下又返回原子核附近并回到基态, 同时辐射出高能光子截止频率为 $I_p + 3.17U_p$, 其中 I_p 为电离能, $U_p = E^2/4\omega^2$ 为激光场的有质动力能. 这个过程每半个光周期重复一次, 这样在一般情况下得到的时域包络都是脉冲链的形式. 从实际应用的角度而言, 要将阿秒链用于探测是十分困难的, 因此如何产生单个的阿秒脉冲就成为了研究的焦点. Christov 等人发现^[6], 如果驱动光只有几个光周期, 那么谐波的相干

性可以很大的提高, 在截止区附近会出现连续谱, 从而实现了单个阿秒脉冲的输出. 这个想法由 Hentschel 等人在实验上完成^[1], 他们利用 7fs 的超短脉冲激光驱动原子得到了脉宽为 650as 的单个阿秒脉冲输出. 此外, Corkum 等人提出采用偏振态随时间变化的脉冲^[7], 即“偏振态门”的方法, 也可以得到单个阿秒脉冲的输出, 这种方法在实验上已经有报道^[8-10]. 许多研究人员还从理论上提出利用长的驱动脉冲产生单个阿秒的方案^[11, 12]. 然而, 上述方案得到的连续谱谱宽都在 20 eV 左右, 所对应的傅里叶极限脉宽大约为 250 as, 远高于而原子内部电子运动的时间尺度, 因此如何产生更短的单个阿秒脉冲就成为了研究者关注的问题. Sansone 等人将这种偏振态门技术用在几个光周期的脉冲上^[13], 同时通过啁啾补偿技术, 得到了脉宽为 130 as 接近单个光周期的单个脉冲. 要获得窄脉宽的单个脉冲, 连续谱的谱宽是一个最重要的参数. 最近有人提出可以利用平行偏振的双色场可以得到宽带超连续谱^[14, 15], 这样可以直接得到脉宽低于 100 as 的单个脉冲.

理论和实验研究表明: 每次谐波都对应两次不同的辐射时间, 分别称为短轨道和长轨道, 这个命名来源于电子在激光场中不同的渡越时间. 对于单个阿秒脉冲的产生来说, 长短轨道的干涉会导致超连

* 教育部博士点基金 (批准号 20040487023) 及国家自然科学基金 (批准号 :10774054) 资助的课题.

† E-mail: lupeixiang@mail.hust.edu.cn

续谱上出现调制,滤波之后得到的时域包络会出现两个峰而大大限制了阿秒脉冲的应用,因此,谐波辐射过程中的轨道控制对于单个阿秒脉冲的产生来说非常重要.宏观上可以通过调整准相位匹配^[16]或者空间滤波^[17]的方法选择短轨道.对于单原子响应来说,可以采用平行偏振的双色场^[18]或者垂直偏振的双色场^[19]来实现轨道选择.采用平行偏振的双色场产生单个的宽谱阿秒脉冲,同样存在长短轨道,不仅超连续谱的位置和谱宽敏感地依赖于双色场的相对相位和相对强度,而且轨道选择对这两个参数尤为敏感,这将会给实验带来许多困难.本文提出一种新的产生超连续谱的方法.利用 5 fs 的超短脉冲叠加上偏振方向与其成 $\pi/3$ 的二次谐波脉冲驱动氢原子,可以得到谱宽达到 50 eV 的超连续谱,同时很好地选出短轨道,对这部分超连续谱进行滤波可以直接得到 100 as 左右、具有很高信噪比的单个阿秒脉冲.另外,当改变二次谐波强度的时候,我们发现超连续谱的位置以及谱宽并未改变,只有超连续谱的平整度受轻微的影响.这样,在不同的二次谐波的强度下,在特定的谱宽内滤波都可以得到高信噪比的单个阿秒脉冲.

2. 理论模型

在本文中,对于单原子与外场的相互作用,采用原子单位(atomic unit, a. u.)以及单电子近似,二维含时薛定谔方程可以表示为

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

其中,库仑势 $V(x, y)$ 采用软核势模型来描述^[20]

$$V(x, y) = -\frac{1}{\sqrt{\epsilon + x^2 + y^2}}. \quad (2)$$

通过调节软核参数 ϵ 可以调节势场深度和基态能量.本文选取 $\epsilon = 0.07$,通过求解薛定谔方程的定态解可以得到此时的基态能量为 -24.6 eV,近似等于氢的基态能量.飞秒脉冲与偏振方向与其成 $\pi/3$ 的二次谐波脉冲所组成的复合场可以表示为

$$E(t) = f(t) \{ E_\omega \cos(\omega t) + E_{2\omega} \cos \theta \cos(2\omega t + \phi) \hat{x} + E_{2\omega} \sin \theta \cos(2\omega t + \phi) \hat{y} \}, \quad (3)$$

其中 E_ω 和 $E_{2\omega}$ 分别为基频场和二次谐波的振幅, $f(t) = \exp[-2\ln(2)t^2/\tau^2]$ 为双色场的包络.电场在

x 和 y 方向的分量如图 1(a) 和 (b) 所示.以基态波函数为初始条件,通过分裂算符和谱方法^[21]求解方程 (1),可以得到任意时刻的波函数 $\psi(x, y, t)$, 即波函数随时间的演化.根据艾伦费斯特定理,可以求得偶极子加速度在 x 和 y 方向的分量分别为

$$a_x(t) = -\langle \psi | \partial V(x, y) / \partial x - E(t) | \psi \rangle, \quad (4)$$

$$a_y(t) = -\langle \psi | \partial V(x, y) / \partial y - E(t) | \psi \rangle. \quad (5)$$

然后再对 $a(t)$ 进行傅里叶变换便可以得到相应的谐波谱强度分布

$$S_q(\omega) = \left| \int a(t) e^{-iq\omega t} dt \right|^2. \quad (6)$$

对数次谐波进行叠加,就可以得到阿秒脉冲的时域包络

$$I(t) = \left| \sum_q a_q e^{iq\omega t} \right|^2. \quad (7)$$

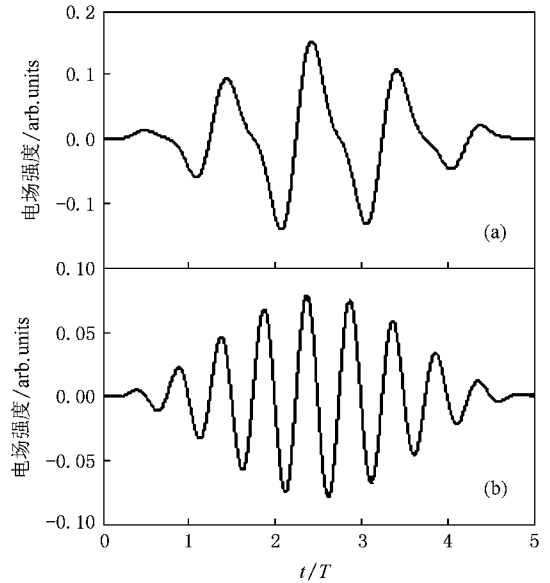


图 1 (a) x 方向 (b) y 方向的电场分量(基频场的强度为 $I = 6 \times 10^{14}$ W/cm², 波长为 800 nm, 脉冲宽度为 5 fs, 倍频场的强度为 $I = 3 \times 10^{14}$ W/cm², 相对相位 $\phi = 0.5\pi$, 偏振方向与基频场的偏振方向的夹角 $\theta = \pi/3$)

3. 结果和讨论

图 2 给出了利用波长为 800 nm 脉宽为 5 fs 的超短脉冲叠加上偏振方向与主脉冲成 $\pi/3$, 脉宽同样为 5 fs 的二次谐波脉冲驱动氢原子所得到的谐波谱(粗线所示为 x 和 y 方向谐波强度之和).基频场和倍频场的强度分别为 6×10^{14} W/cm² 和 3×10^{14} W/cm², 两者偏振方向的夹角为 $\pi/3$.从图中可以看

出,从 53 次(82 eV)到 85 次(132 eV)谐波都是连续的,超连续谱的谱宽达到 50 eV,同时,超连续谱非常的平整,这就意味着只有一条轨道对这部分谐波有贡献.这里我们同时给出了当基频场和倍频场的偏振方向为 $\pi/2$ 时的谐波谱(细线所示)做为比较,在这种情况下尽管谐波谱的截至区大于 $\pi/3$ 的情况,但是超连续谱的谱宽仅为 24 eV(90 次到 105 次谐波),同时,在超连续谱的部分,谐波强度随着谐波阶次的升高而急剧下降.从图中可以看出,超连续谱的强度比 $\pi/3$ 情况下的强度要低 3 个量级以上.

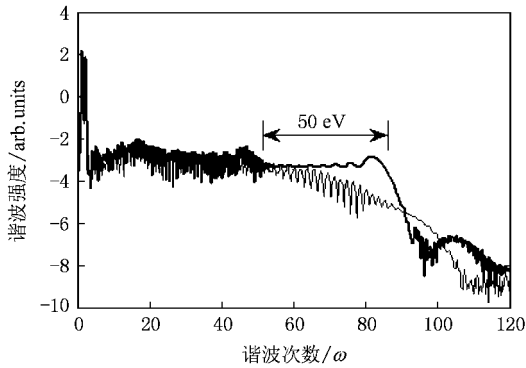


图 2 利用波长为 800 nm 脉宽为 5 fs 的超短脉冲叠加上偏振方向与主脉冲成 $\pi/3$, 脉宽同样为 5 fs 的倍频场脉冲驱动氦原子所得到的谐波谱(粗线所示为 x 和 y 方向谐波强度之和,细线是基频场和倍频场的偏振方向为 $\pi/2$ 时的谐波谱)

为了更进一步研究在我们这个方案中谐波谱的时间频率特性,我们通过时频分析的方法给出了谐波的辐射时间谐波阶次的关系.图 3(a)和(b)分别为 x 和 y 方向谐波的时频结构,从图中可以看出, x

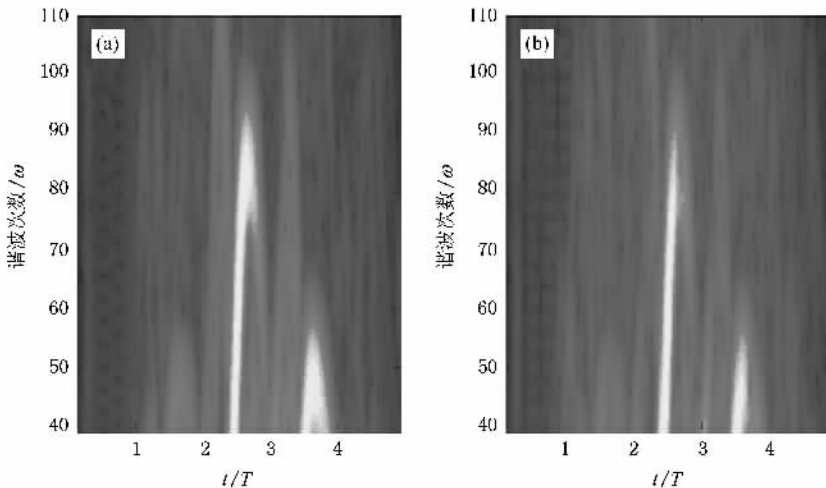


图 3 (a)和(b)分别为 x 和 y 方向谐波的时频结构

和 y 方向的谐波在 $2.5 T$ 和 $3.5 T$ 的时刻都有两个峰,同时两个方向的第一个峰都只有短轨道的贡献,也就是说,这部分的谐波是相位锁定的. x 方向第一个峰和第二个峰的最高谐波阶次分别为 85 (132 eV)和 53(82 eV). y 方向第一个峰和第二个峰的最高谐波阶次大概为 75(116 eV)和 50(78 eV).综合上述结果我们可以得到这样的结论:阶次高于 53 的谐波是连续的,而低于 53 次的谐波由于不同轨道的干涉而变得非常不规则.

图 2 和图 3 的结果可以利用经典“三步模型”来解释.图 4 给出了利用经典模型计算得到的在本方案中高次谐波辐射的电子动力学过程.图 4(a)为电子渡越时间随着电子的电离时间(黑点)以及回复时间(也就是谐波的发射时间)(灰点)之间的关系.如图所示,在整个脉冲过程中,分别有四组电离时间和回复时间(标记为 A, B, C 和 D),渡越时间的最大值为 $0.3 T$.在前面已经提到,谐波的长短轨道是由电子在激光场中的渡越时间来区分,先电离后回复的称为长轨道,后电离先回复的称为短轨道,一般而言,长轨道的渡越时间大于 $0.65 T$,而短轨道的渡越时间则小于 $0.65 T$.我们的方案中电子的渡越时间小于 $0.3 T$,因此只有短轨道对谐波有贡献,与量子模型计算的结果符合(如图 3 所示).另外,在图 4(b)中我们还给出了利用 Ammosov-Delone-Krainov (ADK)模型计算得到的电离率随时间的分布.在我们的方案中所用激光场的强度远低于氦原子的饱和激光强度,而根据“三步模型”,谐波的效率主要由第一步,也就是电离率决定.如图所示, B 和 D 附近的电离率远远低于 A 和 C 附近的电离率,因此 B 和 D

对谐波的贡献基本上可以忽略,而 A 和 C 的回复时间分别大概在 $2.5 T$ 和 $3.5 T$ 这两个时刻,因此谐波基本上都在这两个时刻辐射出来的.以上结论很好地解释了图 2 和图 3 中的结果.

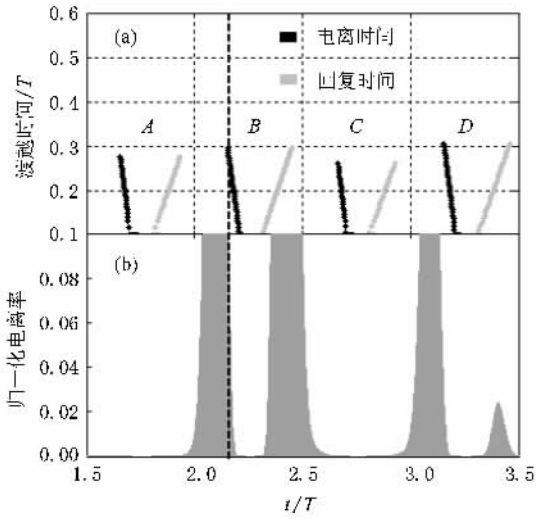


图 4 (a) 电子渡越时间随着电子的电离时间(黑点)以及回复时间(灰点)之间的关系 (b) 利用 ADK 模型计算得到的电离率随时间的分布

接下来我们进一步研究倍频场强度的变化对超连续谱的影响.图 5 (a) 到 (c) 给出了倍频场强度为 $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 下的谐波谱(其余参数和图 2 中一致)

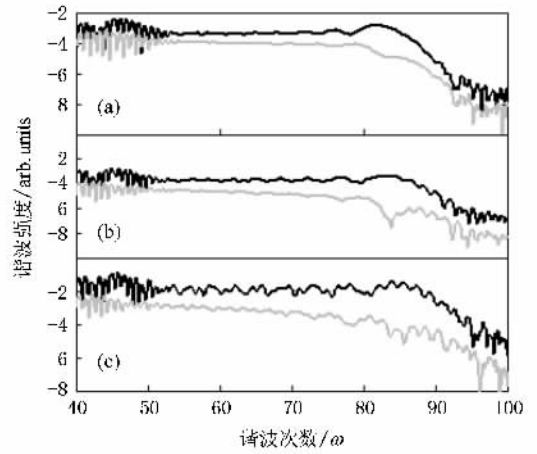


图 5 (a) 到 (c) 给出了倍频场强度为 $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 下的谐波谱(其余参数和图 2 中一致)

$\times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 下的谐波谱,其余的参数和图 2 中一致.图中黑线和灰线分别代表 x 方向和 y 方向的谐波谱.从图中可以看出,在不同强度的倍频场下, x 方向谐波谱的整体轮廓没有什么变化,截止区都在 85 次附近,同时超连续谱的范围都在 53 次到 85 次之间,只是谐波强度随着倍频场强度的减弱而整体下降,这是由于电离率降低造成的.另外,随着倍频场强度的下降, x 方向

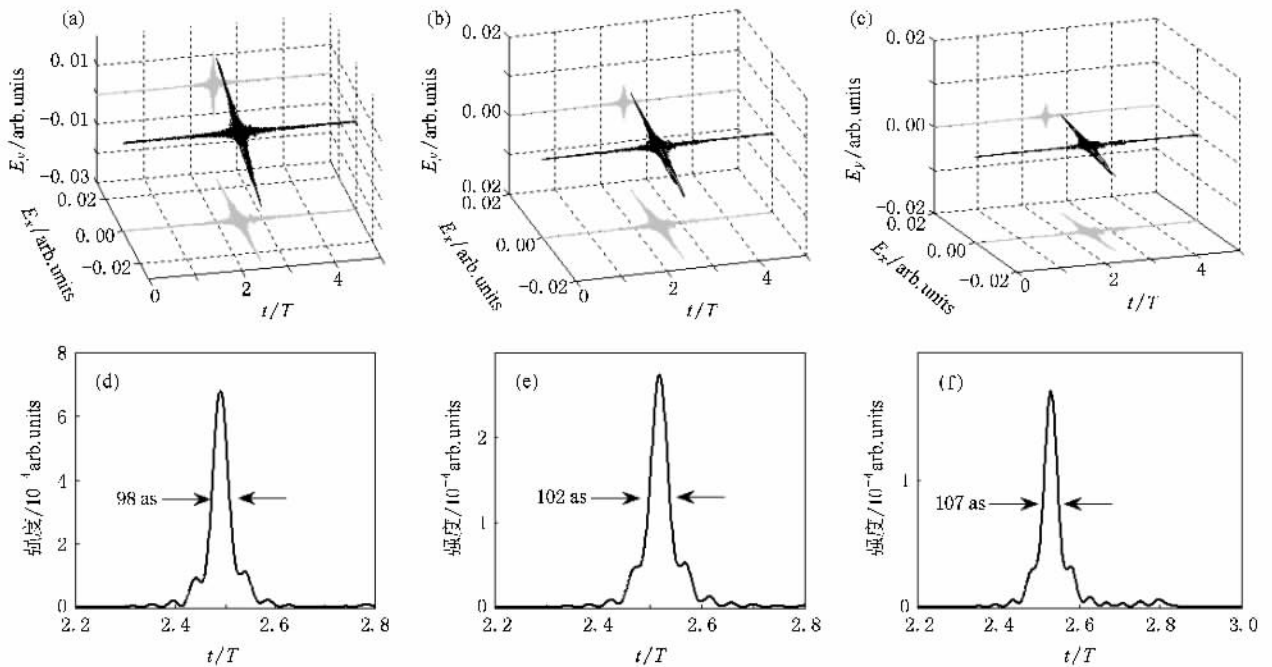


图 6 (a) 到 (c) 分别为 $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 倍频场强度下,对 85 eV 到 125 eV 的超连续谱进行滤波后所得到的阿秒脉冲的三维电场分布图 (d) 到 (f) 分别给出了对应的阿秒脉冲包络图

的超连续谱变的稍微有点不平整,这就意味着这部分谐波的相位锁定程度略微下降,而 y 方向的超连续谱的强度则快速的下降,尤其高能部分强度下降的非常快.

谐波的时域特性是更加让人关注的问题.图 6 (a)到(c)分别为上述三个不同的倍频场强度下,对 85 eV 到 125 eV 的超连续谱进行滤波后所得到的阿秒脉冲的三维电场分布图.从图中可以看出,在不同的倍频场强度下, x 方向和 y 方向都是单个的脉冲,随着倍频场强度的下降, x 方向和 y 方向的脉冲电场强度都随之下降,但是 y 方向的强度下降要快得多.通过对 x 方向和 y 方向的阿秒脉冲强度进行求和,图 6(d)到(f)分别给出了对应的阿秒脉冲包络图.在倍频场强度分别为 $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 的情况下,对 85 eV 到 125 eV 的超连续谱进行滤波所得阿秒脉冲的脉宽(半高全宽)分别为 98 as, 102 as 和 107 as,非常接近其傅里叶极限脉宽(95 as 左右).另外,所得阿秒脉冲的信噪比非常高,经过我们的计算,在这三种情况下,周围小脉冲最大的强度与主脉冲的强度之比仅为 1.5%, 3% 和 5%.

4. 结 论

本文提出一种直接得到脉宽稳定的单个宽谱阿

秒脉冲的新方法.利用波长为 800 nm 脉宽为 5 fs 的超短脉冲叠加上偏振方向与主脉冲成 $\pi/3$,脉宽同样为 5 fs 的二次谐波脉冲驱动氦原子,可以得到宽度达到 50 eV 的超连续谱,同时可以直接选出短轨道.当二次谐波的强度大于 10^{14} W/cm^2 时,超连续谱的位置以及谱宽几乎不会随着二次谐波脉冲的强度的改变而改变,只有超连续谱的强度逐渐增大.对 85—125 eV 的超连续谱进行滤波可以直接得到 100 as 左右的单个脉冲.这种性质对于实验实现单个宽谱阿秒的输出是非常有利的.而对于其他偏振角度的情况,经过我们的计算,当偏振角从 $\pi/3$ 逐渐减小到 0 的时候,超连续谱的调制会逐渐增大,这就意味着谐波的相位锁定程度下降,不利于阿秒脉冲的产生.另外,当偏振角减小时,超连续谱的位置和宽度对双色场相对强度的依赖性也逐渐增大.而当偏振角大于 $\pi/3$ 时,尽管轨道可以很好的选出,但是对谐波发射时间的限制减小了,也就是说超连续谱的宽度减小,同时由于电离率减小的缘故谐波强度也随之减小.因此, $\pi/3$ 为最佳偏振角.实验上, 5 fs 相位稳定的脉冲可以通过层叠成丝压缩技术实现,倍频场可以通过 BBO 晶体倍频得到.另外,在我们的方案中,谐波谱对倍频场的脉宽并不敏感,只要脉宽小于 10 fs 基本上不会影响到结果.但是双色场的相对相位必须精确控制,这方面从目前的技术上来说是可以做到的.

- [1] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, Reider G A, Milosevic N, Brabec T, Corkum P B, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2001 *Nature (London)* **414** 509
- [2] Drescher M, Hentschel M, Kienberger R, Tempea G, Spielmann C, Reider G A, Corkum P B, Krausz F 2001 *Science* **291** 1923
- [3] Paul P M, Toma E S, Breger P, Mullot G, Auge F, Balcou P, Muller H G, Agostini P 2001 *Science* **292** 1689
- [4] Zeng Z N, Li R X, Xie X H, Xu Z Z 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2316 [Chinese] 曾志男、李儒新、谢新华、徐至展 2004 物理学报 **53** 2316]
- [5] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [6] Christov P, Mumane M M, Kapteyn H C 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 1251
- [7] Corkum P B, Burnett N H, Ivanov M Y 1994 *Opt. Lett.* **19** 1870
- [8] Altucci C, Delfin C, Roos L, Gaarde M B, L'Huillier A, Mercer I, Starczewski T, Wahlstrom C G 1998 *Phys. Rev. A* **58** 3943
- [9] Tckerbakof O, Mevel E, Descamps D, Plumridge J, Constant E 2003 *Phys. Rev. A* **68** 043804
- [10] Sola J, Mevel E, Elouga L, Constant E, Strelkov V, Poletto L, Villorosi P, Benedetti E, Caumes J P, Stagira S, Vozzi C, Sansone G, Nisoli M 2006 *Nature Physics* **2** 319
- [11] Pfeifer P, Gallmann L, Abel M J, Neumark D M, Leone S R 2006 *Opt. Lett.* **31** 975
- [12] Cao W, Lu P X, Lan P F, Wang X L, Yang G 2007 *Phys. Rev. A* **74** 063821
- [13] Sansone G, Benedetti E, Calegari F, Vozzi C, Avaldi L, Flammini R, Poletto L, Villorosi P, Altucci C, Velotta R, Stagira S, Silvestri S D, Nisoli M 2006 *Science* **314** 443
- [14] Zeng Z N, Cheng Y, Song X, Li R X, Xu Z Z 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 203901
- [15] Lan P F, Lu P X, Cao W, Li Y H, Wang X L 2007 *Phys. Rev. A* **76** 011402 (R)
- [16] Antoine P, L'Huillier A, Lewenstein M 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 1234
- [17] Lopez-Martens R, Varju K, Johnsson P, Mauritsson J, Mairesse Y, Salieres P, Gaarde M B, Schafer K J, Persson A, Svanberg S, Wahlstrom C, L'Huillier A 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 033001

- [18] Cao W , Lu P , Lan P , Hong W , Wang X 2007 *J. Phy. B* **40** 869
 [19] Kim C M , Kim I J , Nam C H 2005 *Phys. Rev. A* **72** 033817
 [20] Eberly J H , Su Q , Javanainen J 1989 *Phys. Rev. Lett.* **62** 811
 Li X X , Xu Z Z , Tang Y 1997 *Acta Phys. Sin.* **46** 267 (in Chinese) 李学信、徐至展、汤 燕 1997 *物理学报* **46** 267]
 [21] Feit M D , Fleck J A , Steiger A 1982 *J. Comput. Phys.* **47** 412

Generating isolated broadband attosecond pulses with stable pulse duration in a non-collinear polarized two-color field^{*}

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

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

(Received 10 September 2008 ; revised manuscript received 3 December 2008)

Abstract

A new method to generate isolated broadband attosecond pulses with stable pulse duration is proposed. By adopting a few-cycle driving pulse combined with its second harmonic field, of which the polarization angle is $\pi/3$ to the driving pulse, the short path is well selected and a smooth supercontinuum with the bandwidth of about 50 eV is observed. For the intensity of the second harmonic field higher than 10^{14} W/cm², the intensity variation of the second harmonic field can hardly affect the location and the bandwidth of the generated supercontinuum. Pure isolated attosecond pulses with the duration of about 100 as can be generated by directly filtering out a supercontinuum from 85—125 eV, which facilitates the experimental implement for the isolated attosecond pulse generation.

Keywords : attosecond pulse , supercontinuum

PACC : 7220H , 4265K , 3000

^{*} Project supported by the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education (Grant No. 20040487023) and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10774054).

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