

阿秒电离门调控宽带超连续谱的传播特性*

李钱光^{1,2)} 兰鹏飞¹⁾ 洪伟毅¹⁾ 张庆斌¹⁾ 陆培祥^{1)†}

1) 华中科技大学武汉光电国家实验室, 武汉 430074)

2) 孝感学院物理与电子信息工程学院, 孝感 432000)

(2008 年 11 月 19 日收到, 2008 年 12 月 23 日收到修改稿)

通过数值模拟三维传播方程研究了双色场阿秒电离门技术调控产生高次谐波的传播特性. 发现波长 800 和 400 nm 的 5 fs 双色场电离门调控产生的谐波在传播 0.5 mm 后由于短轨道满足相位匹配条件, 实现了短轨道的选择. 在平台区得到了高效率、无调制的宽带超连续谱(谱宽达 80 eV). 模拟不同传播距离的结果表明该连续谱能够在介质中稳定存在. 对该连续谱中 60—90 eV 的谐波直接进行滤波可以得到高效率、脉冲宽度约为 135 as 的单脉冲. 这种性质对实验上实现利用阿秒电离门调控产生高效率宽谱单阿秒非常有利.

关键词: 传播效应, 阿秒脉冲, 超连续谱

PACC: 7220H, 4265K

1. 引 言

阿秒脉冲的产生对于超快科学的发展具有非重要的意义, 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. 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, 实现阿秒脉冲产生的首选方案^[1-5]. 高次谐波的辐射过程可以用 Corkum 提出的经典“三步模型”^[6]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 $I_p + 3.17 U_p$, 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^[7]发现, 如果驱动光只有几个光周期, 那么谐波的相干性可以有很大的提高, 在截止区附近会出现超连续谱, 从而实现单

个阿秒脉冲的输出. 这个想法由 Hentschel 等^[1]首次在实验上完成. 他们利用 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. 此外 Corkum 等^[8]提出采用偏振态随时间变化的脉冲, 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^[9-11]. 由于谱对应的傅里叶极限脉冲宽度与谱宽成反比, 要产生更短的脉冲必须增大超连续谱的谱宽. 最近有研究表明利用双色场可以得到宽带超连续谱^[12, 13], 这样可以直接得到脉冲宽度低于 100 as 的单个脉冲. 然而, 在双色场方案中, 产生宽带超连续谱的电子在电场次高峰附近的半个光周期内电离, 次高峰的电场强度远低于最高峰的电场强度, 电子在这半个光周期中电离率很低, 超连续谱的产生效率也很低, 限制了它的应用. 在高效率的阿秒脉冲产生方面, 最近有研究表明利用阿秒电离门可以得到强度高得多的阿秒脉冲^[14], 但是, 该方案只从单体角度进行了分析, 没有考虑传播效应对它的影响. 理论和实验表明: 传播效应对高次谐波的产生有很大影响^[15-17]. 例如, 当激光脉冲在介质中形成自引导脉冲后能够明显地增强高次谐波的产生^[17]. 因此, 传播效应对阿秒电离门调控产生高效率阿秒脉冲的影响令人们关注.

* 湖北省教育厅优秀青年人才基金(批准号: Q200726001)、高等学校博士学科点专项科研基金(批准号: 20040487023)和国家自然科学基金(批准号: 10574050)资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: lupeixiang@mail.hust.edu.cn

本文采用三维传播方程模拟利用阿秒电离门技术产生高次谐波的传播特性,分别从谐波的谱结构、强度和时域特性三个方面分析传播对谐波的影响,并从理论上得到了一种产生高效率单阿秒脉冲的途径.利用 5 fs 波长为 800 nm 的激光附加一个强度为激光强度 4% 的倍频电场脉冲驱动长度为 0.5 mm 的 He 原子气体靶,很好地选出了短轨道,得到了平台区谱宽达到 80 eV、高效率的超连续谱,对其中一些阶次的谐波进行叠加很容易地得到了 135 as 高效率的单脉冲.若进行适当的啁啾补偿,可以得到脉冲宽度达 50 as、高效率的单脉冲.

2. 理论模型

对于单原子与外场的相互作用,可以用 Lewenstein 模型^[18]描述.采用原子单位(a.u.),原子在外场中运动的偶极矩可表示为

$$d_{nl}(t) = i \int_0^{\infty} d\tau \left(\frac{\pi}{\varepsilon + i\tau/2} \right)^{3/2} d^*(p_s(t, \tau)) - A(t) a^*(t) \exp[-iS_s(t, \tau)] \times E_f(t - \tau) d(p_s(t, \tau) - A(t - \tau)) \times a(t - \tau) + \text{c.c.}, \quad (1)$$

式中 $E_f(t) = E_0 \sin^2(\pi t/T) \cos[\omega_0(t - T/2)] + E_1 \sin^2(\pi t/T) \cos[2\omega_0(t - T/2) + \varphi]$ 是驱动激光场, E_0 和 E_1 分别是基频场和倍频场的最大场强, ω_0 是基频场的频率, φ 是基频场与倍频场之间的相对相位, T 决定激光场的脉冲宽度. $A(t)$ 为激光场失势. $p_s(t, \tau) = \frac{1}{\tau} \int_{t-\tau}^t A(t') dt'$ 和 $S_s(t, \tau) = I_p \tau - \frac{1}{2} p_s^2(t, \tau) \tau + \frac{1}{2} \int_{t-\tau}^t A^2(t') dt'$ 分别代表正则动量和经典作用量, I_p 是原子电离能. $d(p) = i \frac{2^{7/2} (2I_p)^{5/4}}{\pi} \frac{p}{(p^2 + 2I_p)^3}$ 是类 H 原子从基态到连续态的跃迁偶极矩阵元. $a(t) = \exp[-\int_{-\infty}^t w(t') dt']$ 是原子的基态振幅, 其中 $w(t')$ 是原子电离率.

原子在激光场作用下的电离概率可以根据 Ammosov-Delone-Krainov(ADK)模型^[19]计算得到

$$w(t) = \omega_p |C_{n^* l^*}|^2 G_{lm}(4\omega_p/\omega_l)^{2n^* - m - 1} \times \exp(-4\omega_p/3\omega_l), \quad (2)$$

式中 $\omega_p = I_p/\hbar$, $\omega_l = e|E(t)|(2m_e I_p)^{-1/2}$, $n^* =$

$(I_{ph}/I_p)^{1/2}$, $|C_{n^* l^*}|^2 = 2^{2n^*} [n^* \Gamma(n^* + l^* + 1) \Gamma(n^* - l^*)]^{-1}$, $G_{lm} = (2l + 1) \chi(l + |m|)! \times (2^{-|m|}) \chi(|m|) \chi(l - |m|)!$. 其中 I_{ph} 是 H 原子的电离能, l 和 m 分别为角量子数和磁量子数, e 和 m_e 是电子的电量和质量. 对于有效量子数 l^* , 当 $l \ll n$ 时, $l^* = 0$; 其他情况, $l^* = n^* - 1$.

激光脉冲和高次谐波在柱坐标系下的传播方程可以分别表示为

$$\nabla^2 E_l(r, z, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E_l(r, z, t)}{\partial t^2} = \frac{\omega_p^2(r, z, t)}{c^2} E_l(r, z, t), \quad (3)$$

$$\nabla^2 E_h(r, z, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E_h(r, z, t)}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 P_{nl}(r, z, t)}{\partial t^2}, \quad (4)$$

式中, E_l 和 E_h 分别是激光脉冲和高次谐波的电场强度, $\omega_p(r, z, t) = \left[\frac{e^2 n_e(r, z, t)}{\varepsilon_0 m_e} \right]^{1/2}$ 是等离子体频率, $P_{nl}(r, z, t) = [n_0 - n_e(r, z, t)] d_{nl}(r, z, t)$ 是气体产生的非线性极化强度, n_0 和 $n_e(r, z, t)$ 分别是气体原子密度和自由电子密度, $n_e(r, z, t) = n_0 \left\{ 1 - \exp\left[-\int_{-\infty}^t w(r, z, t') dt'\right] \right\}$. 这里我们假定激光沿 z 轴传播, 且径向对称. 将(1)式计算得到的原子偶极矩 d_{nl} 作为源代入(4)式, 按照 Priori 等^[20]采用的方法求解传播方程, 可以导出传播后高次谐波的电场 E_h . 对部分谐波进行叠加, 可以得到阿秒脉冲的时域包络, 即

$$K(t) = \left| \sum_q E_{hq} e^{iq\omega t} \right|^2. \quad (5)$$

3. 结果和讨论

图 1 给出了我们计算中采用激光脉冲的电场强度及 He 原子电离概率和谐波谱. 激光脉冲的波长为 800 nm, 脉冲宽度为 5 fs, 强度为 6×10^{14} W/cm², 倍频场的强度为激光脉冲强度的 4%, 相对相位为零. 如图 1(a)所示, 在基频场的峰值 t_1 和 t_3 附近, 基频场的电场方向与倍频场的电场方向相反, 总电场被削弱, 电离被压制, 从而在整个脉冲作用过程中, He 原子仅在 t_2 附近很短的时间(约 270 as)内发生电离, 即形成阿秒电离门. 从图 1(b)可以看出, He 原子高次谐波平台区的超连续谱中存在强烈的调制. 这是因为电离进入到连续态的电子在激光电

场的作用下运动并获得能量,返回原子核附近并回到基态,同时辐射谐波的过程经有两个不同的量子路径,长轨道和短轨道. 而长轨道和短轨道分别对应不同的辐射时间,电离后约 0.5 个光周期和 1 个光周期,不同时间辐射的谐波相互干涉使超连续谱中出现了强烈的调制.

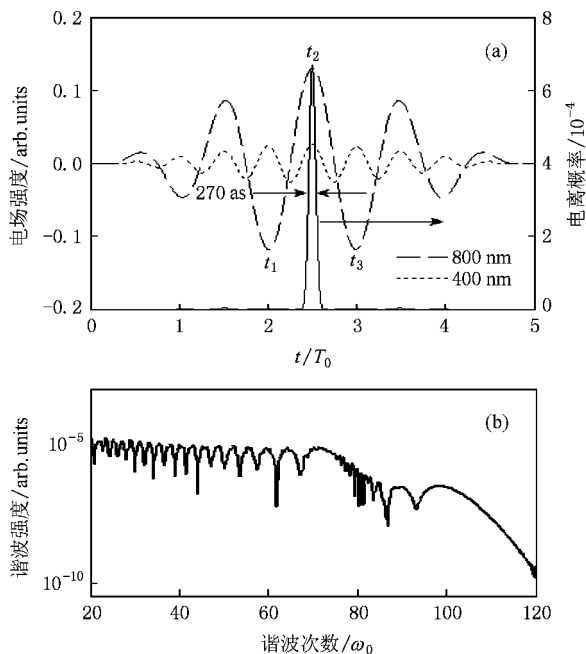


图 1 激光脉冲的电场强度及 He 原子电离概率和谐波谱 (a)激光脉冲的电场强度和 He 原子电离概率 (b)He 原子谐波谱. 激光波长为 800 和 400 nm, 脉冲宽度 5 fs, 强度为 6×10^{14} 和 1.2×10^{13} W/cm², 相对相位为零

图 2(a)给出了传播 0.5 mm 后 He 气的谐波谱 (He 气密度均匀, $n_0 = 2.6 \times 10^{18}$ cm⁻³), 激光脉冲采用沿 z 轴传播的高斯光束, 束腰半径为 25 μm, 焦点位于 He 气前 2 mm, 其他参数与图 1 相同. 可以发现传播后在谐波谱的平台区产生了从 24 次到 76 次谱宽达 80 eV 无调制的超连续谱结构, 而且传播之后的谐波强度比传播之前增强了一个量级. 这是由于在传播过程中谐波相位随传播距离不断变化, 短轨道对应的谐波逐渐满足相位匹配条件, 谐波强度也随着逐渐增强. 长轨道对应的谐波不满足相位匹配条件, 谐波强度逐渐降低. 短轨道与长轨道对应的谐波强度之比不断增大, 实现了对短轨道的选择. 传播前谐波中长轨道和短轨道叠加产生的调制消失, 形成了无调制的超连续谱结构, 谐波强度也得到很大增强. 这也可以通过对比传播前后谐波谱的时频图得到验证, 分别如图 2(b)和(c)所示.

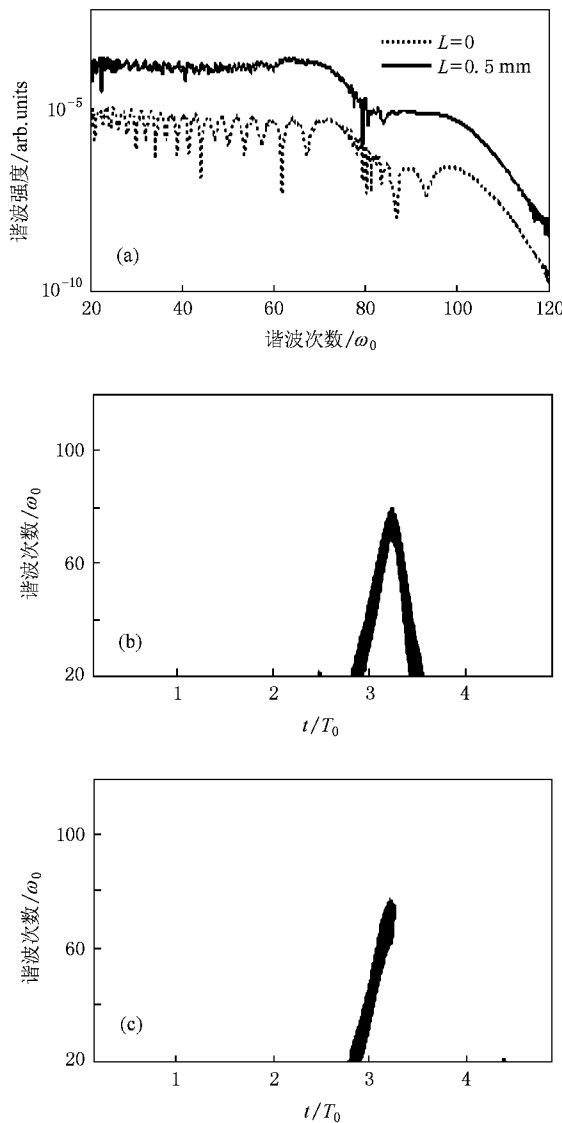


图 2 传播前后的谐波谱和时频图 (a)传播前后的谐波谱, (b)传播前谐波的时频图 (c)传播 0.5 mm 谐波的时频图. 气体密度 $n_0 = 2.6 \times 10^{18}$ cm⁻³, 激光参数与图 1 相同

如图 3 所示, 我们改变传播距离, 计算了传播不同距离 (0.5, 0.75 和 1 mm, 其他参数与图 2 相同) 后 He 气的谐波谱. 我们发现当传播距离大于 0.5 mm 后谐波基本没有变化, 谐波谱的结构和强度基本稳定, 只是超连续谱的平整度在低阶次有轻微的改变. 低阶次谐波谱平整度的轻微改变是由于随着传播距离增大, 激光脉冲强度不断降低, 单原子辐射谐波的截止频率下降 (例如传播 1 mm 后单原子辐射谐波的截止频率为 $50 \omega_0$ (ω_0 是基频场频率)) 这些新辐射的谐波叠加在已经满足相位匹配条件的谐波上会稍微降低其相位匹配度, 对谐波谱的平整度造成微弱的影响. 谐波强度在传播 0.5 mm 后基本稳定是由于气体

密度很低,对激光脉冲和谐波的吸收很小,可以忽略.而且在我们计算的激光强度下原子只有 0.8% 被电离.等离子体频率远小于高次谐波的频率,等离子体色散也可以忽略,当谐波的相位匹配条件满足后谐波强度就能基本保持稳定直到相位匹配条件被破坏.

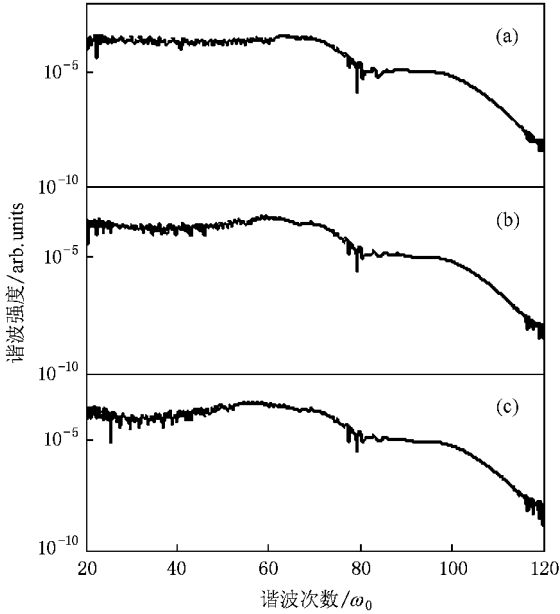


图 3 传播不同距离后的谐波谱 (a) 0.5 mm (b) 0.75 mm, (c) 1 mm

传播对谐波时域特性的影响更令人关注.我们分别研究了图 2(a) 中传播前和传播后谐波的时域特性,如图 4 和图 5 所示.图 4(a) 和 (b) 中分别给出了从 40 次到 60 次谐波(谱宽约 31 eV)传播前和传播后的时域包络.传播前在 $3.05T_0$ 和 $3.37T_0$ (T_0 为基频场光周期)附近各有一个脉冲宽度约为 135 as

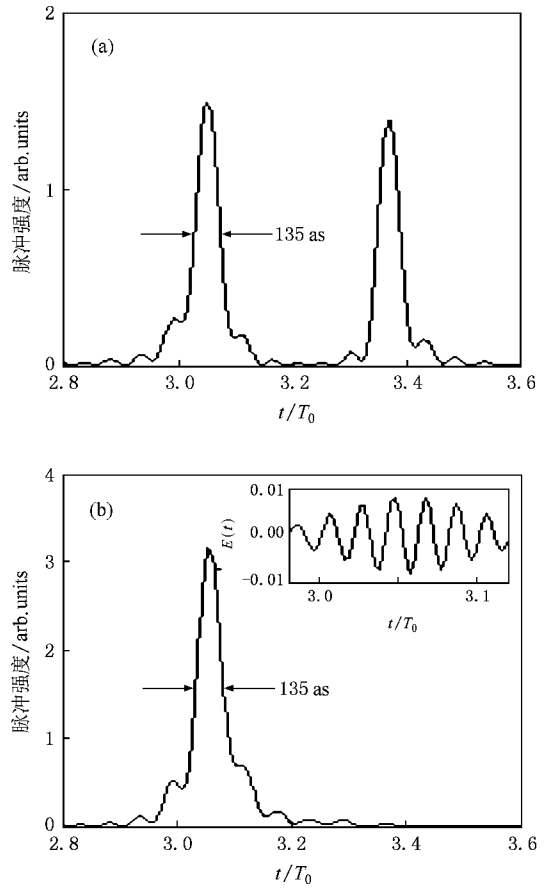


图 4 传播前后的时域包络和电场分布 (a) 传播前 40—60 次谐波的时域包络 (b) 传播 0.5 mm 后 40—60 次谐波的时域包络和电场分布.其他参数与图 2 相同

的脉冲,分别对应短轨道和长轨道,二者强度大致相当. $3.05T_0$ 附近的强度略高;传播后,由于传播效应选择了短轨道,短轨道对应脉冲的脉冲宽度基本不变,仍为 135 as,强度增强了约 2000 倍,而长轨道对

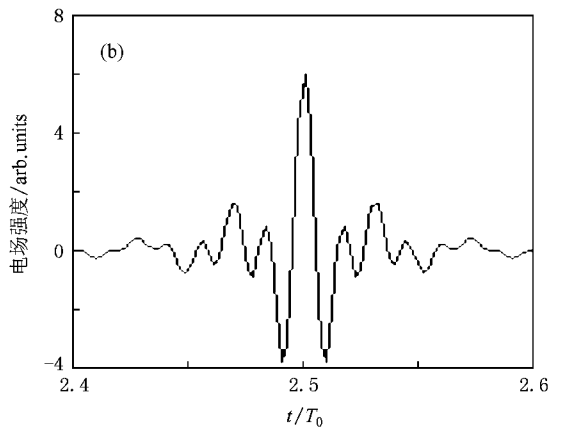
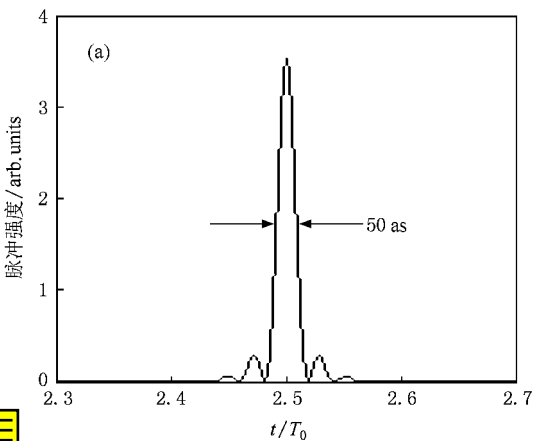


图 5 啁啾补偿后 24—76 次谐波时域包络和电场分布 (a) 时域包络 (b) 电场分布.其他参数与图 2 相同



应的脉冲已经消失,从而实现了高效率的单个阿秒脉冲输出.图 4(b)右上角还给出了该单阿秒脉冲的电场分布,可以看出它是几个光周期的单阿秒脉冲.从图 4(c)可以看出谐波存在正啁啾,如果选用适当的负色散材料进行啁啾补偿,可以进一步改善连续谱的相干特性^[11].假设从 24 次到 76 次的整个连续谱(谱宽为 80 eV)的啁啾得到完全补偿,则该连续谱可以支持傅里叶极限脉冲宽度达 50 as,约 1.5 个光周期高效率的单个脉冲输出,如图 5 所示.

4. 结 论

本文模拟了传播效应对利用阿秒电离门技术在

低密度气体中产生高效率、宽带超连续谱和单个阿秒脉冲的影响.采用三维传播方程数值模拟了波长为 800 和 400 nm 脉冲宽度为 5 fs 的激光脉冲作用在 He 气体上不同距离的传播.发现在传播过程中与短轨道对应的谐波逐渐满足相位匹配条件,强度不断增强,最后产生了谱宽达 80 eV、无调制、高效率的超连续谱,而且该连续谱在产生后能稳定传播一定距离.对该连续谱中 60—90 eV 的谐波进行滤波可以直接得到脉冲宽度约为 135 as、高效率的单脉冲,而整个连续谱则支持傅里叶极限脉冲宽度达 50 as、接近单光周期、高效率的单个脉冲输出.这种性质对实验上实现阿秒电离门调控产生稳定、高效的宽谱单阿秒脉冲非常有利.

- [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* **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] Hong W Y, Yang Z Y, Lan P F, Lu P X 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 5853 (in Chinese) [洪伟毅、杨振宇、兰鹏飞、陆培祥 2008 物理学报 **57** 5853]
- [5] Cao W, Lan P F, Lu P X 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 2482 (in Chinese) [曹 伟、兰鹏飞、陆培祥 2007 物理学报 **56** 2482]
- [6] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [7] Christov P, Murnane M M, Kapteyn H C 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 1251
- [8] Corkum P B, Burnett N H, Ivanov M Y 1994 *Opt. Lett.* **19** 1870
- [9] 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
- [10] Tckerbakof O, Mevel E, Descamps D, Plumridge J, Constant E 2003 *Phys. Rev. A* **68** 043804
- [11] 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
- [12] Zeng Z N, Cheng Y, Song X, Li R X, Xu Z Z 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 203901
- [13] Lan P F, Lu P X, Cao W, Li Y H, Wang X L 2007 *Phys. Rev. A* **76** R011402
- [14] Lan P F, Lu P X, Cao W, Li Y H, Wang X L 2007 *Phys. Rev. A* **76** R051801
- [15] Geissler M, Tempea G, Scrinzi A, Schnurer M, Krausz F, Brabec T 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 2930
- [16] Villoresi P, Ceccherini P, Poletto L, Tondello G 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 2494
- [17] Tosa V, Kim H T, Kim I J, Nam C H 2005 *Phys. Rev. A* **71** 063801
- [18] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, L'Huillier A, Corkum P B 1994 *Phys. Rev. A* **49** 2117
- [19] Ammesov M V, Delone N B, Krainov V P 1986 *Sov. Phys. JETP* **64** 1191
- [20] Priori E, Cerullo G, Nisoli M, Stagira S, De Silvestri S 2000 *Phys. Rev. A* **61** 063801

Propagation characteristics of the broadband supercontinuum with an attosecond ionization gate^{*}

Li Qian-Guang^{1,2)} Lan Peng-Fei¹⁾ Hong Wei-Yi¹⁾ Zhang Qing-Bin¹⁾ Lu Pei-Xiang^{1)†}

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

2) *School of Physics and Electronic-Information Engineering, Xiaogan College, Xiaogan 432000, China*

(Received 19 November 2008 ; revised manuscript received 23 December 2008)

Abstract

The propagation of high-order harmonics with attosecond ionization gate is simulated with three-dimensional propagation equation. After 0.5 mm propagation distance, the short trajectories in the harmonics, which are generated by two 5 fs laser pulses centered at 800 and 400 nm, are selected and a highly efficient smooth supercontinuum with the bandwidth of about 80 eV is obtained in the plateau, because of the phase matching. Simulation results of different propagation distances show the broadband supercontinuum can last steadily. A highly efficient pure isolated attosecond pulse with the duration of about 135 as can be generated by directly filtering out of the harmonics from 60—90 eV in the supercontinuum, and a single 50 as pulse can be generated, which facilitates the experimental implementation for the isolated attosecond pulse generation.

Keywords : propagation effect, attosecond pulse, supercontinuum

PACC : 7220H, 4265K

^{*} Project supported by the Foundation for Excellent Youths of the Education Bureau of Hubei Province, China (Grant No. Q200726001), the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education Institutions, China (Grant No. 20040487023) and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10574050).

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