原子在两色组合激光场中产生的单个阿秒脉冲*

1) 西北师范大学物理与电子工程学院,兰州 730070)
 2) 兰州重离子加速器国家重点实验室原子核理论研究中心,兰州 730000)
 (2008 年 6 月 19 日收到 2008 年 7 月 7 日收到修改稿)

利用分裂算符法求解含时薛定谔方程,对一维氦原子处于红外场(IR)与紫外场(UV)组合的两色激光场中产生的高次谐波进行研究,分析了由高次谐波产生的阿秒脉冲的特征.发现在组合场中可以通过增加红外场的强度, 来缩短阿秒脉冲的宽度,通过调节组合场中两束激光的时间延迟,提高一个电子轨道对谐波的贡献,而抑制另一个 电子轨道的贡献,从而得到低于 100 as 的单个脉冲.

关键词:强激光场,组合场,高次谐波,阿秒脉冲 PACC:3280,4250

1.引 言

阿秒脉冲是研究原子分子尺度内微观动态过程 及各种超快过程的有力工具.近年来,阿秒量级相 干脉冲的出现为实现对电子在原子和分子中运动的 超快动力学过程进行直接观测成为可能^{12]}.目前 阿秒脉冲的产生主要方法有受激拉曼散射^[3]、汤姆 逊散射^[4]和原子在激光场中产生的高次谐波,而高 次谐波由于在截断位置附近的一个所谓平台区域呈 现超连续分布,使它成为了实现阿秒脉冲的首选 光源^[5].

当高强度的激光场作用于原子或分子体系时, 原子或分子会辐射出频率为激光场频率奇数倍的高 次谐波,这些高次谐波呈现出典型的特征:低阶的谐 波强度随阶数的增加迅速衰减,然后在较宽的频谱 范围内强度几乎不变,展示一个平台区域,最后在某 一阶次附近突然截止. 高次谐波的发射机理可用 "三步模型^{%6]}来解释:基态的电子通过隧道电离进 入到连续态,处于连续态的电子在激光场的作用下 运动并获得能量,当激光场反向时,又返回原子核附 近并被复合到基态,同时辐射出高能光子,所辐射光 子的最大能量为 I_p+3.1U_p,其中 I_p 是原子的电离 能 , $U_p = E^2/4\omega^2$ 是电子在激光场中的有质动力能 , *E* 是入射激光电场的峰值强度 , ω 是入射激光场的 角频率.

目前 利用高次谐波获取单个阿秒脉冲主要有 两条途径:1)利用几个光周期的超短脉冲驱动 光^[7 8],如 Hentschel 等人利用 7 fs 的超短脉冲激光^[9] 驱动原子得到了脉宽为 650 as 的单个阿秒脉冲.2) 利用偏振态随时间变化的驱动光^[10],如 Sansone 等 人将偏振门技术用于几个光周期的脉冲上^[11],得到 了接近单个光周期的单个阿秒脉冲.最近,Lan, Zeng和 Zhai 等人分别利用双色场驱动原子产生了 单个阿秒脉冲^[12—14].本文则通过理论模拟研究了 采用一个红外场和紫外场所构成的组合激光场作为 产生阿秒脉冲的驱动源,与一维模型氦原子相互作 用,通过提高红外激光场的强度,不仅提高了高次谐 波的转化效率,拓宽了高次谐波的平台,而且可以得 到 81 as 的单个脉冲,并对通过提高红外激光场的强 度来缩短阿秒脉冲的宽度进行了分析.

2. 理论模型

在偶极近似和长度规范下,一维原子在激光场 中的行为由含时薛定谔方程描述(采用原子单位)

^{*} 国家自然科学基金(批准号:10674112),甘肃省自然科学基金(批准号:3ZS061-A25-013),甘肃省教育厅基金(批准号:0601-23)和西北师 大创新工程(批准号:NWNU-KJCXGC-03-21)资助的课题。

[†] 通讯联系人. E-mail zhouxx@nwnu.edu.cn

$$i \frac{\partial \Psi(x,t)}{\partial t} = H(x,t)\Psi(x,t), \quad (1)$$

式中 H(x,t)是体系的哈密顿量

$$H(x,t) = \frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} + V(x) - xE(t),$$

其中 E(t)为激光场的电场分量 ,V(x)是一维氦原 子的模型势 ,我们采用软库仑势形式 V(x) = -1/ $\sqrt{\alpha + x^2}$ 取 $\alpha = 0.485$,可以得到基态能量 - 24.5 eV ,与氦原子的基态能量相同.(1)式的解可用分裂 算符的方法进行时间演化

$$\Psi(x,t + \Delta t) = \exp\left[\frac{i\Delta t}{4}\frac{\partial^2}{\partial x^2}\right]$$

$$\times \exp\{-i\Delta t[V(x) - xE(t)]\}$$

$$\times \exp\left[\frac{i\Delta t}{4}\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2}\right)\right]\Psi(x,t)$$

$$+ o(\Delta t^3), \qquad (2)$$

具体求解过程在文献 15 冲已有详细描述.

一旦得到含时波函数 ,运用 Ehrenfest¹⁶〕定理 ,电 子的平均加速度为

$$a(t) = \Psi(x,t) \left| - \frac{\partial V(x)}{\partial x} \right| \Psi(x,t) . \quad (3)$$

高次谐波谱的强度为

$$P_q(\omega) = |a_q(\omega)|^2 , \qquad (4)$$

其中, $a_q(\omega) = \int_0^t a(t) e^{-iq\omega t} dt 为 a(t) 的傅里叶$ 变换.

由高次谐波产生的阿秒脉冲可以通过对一定范 围内的高次谐波进行叠加得到

$$I(t) = \left| \sum_{q} a_{q} e^{iqot} \right|^{2}.$$
 (5)

为了分析高次谐波谱在时间频率空间的特性, 我们利用小波变换来分析某一频率的谐波随时间的 演化,可以得到频率为 *w* 的谐波随时间 *t*0 的变化

$$A_{\omega}(t_0 \omega) = \int a(t) w_{t_0} \omega(t) dt = A_{\omega}(t_0), \quad (6)$$

式中

$$w_{t_0} (t) = \sqrt{\omega} W [\omega (t - t_0)], \qquad (7)$$

其中

$$W(x) = \frac{1}{\sqrt{\tau}} e^{ix} e^{-x^2/2\tau^2}$$
 (8)

为 Morlet 小波变换的窗函数^[17]. 从(6)—(8)式可以 看出 , $A_{\omega}(t_{0},\omega)$ 的值依赖于参数 τ 的取值. 在谐波 频率一定的情况下 ,选取不同的 τ 值计算发现 ,尽 管 $A_{\omega}(t_{0},\omega)$ 值的绝对大小会有差异 ,但是 $A_{\omega}(t_{0},\omega)$ ω)随时间演化的规律几乎不变. 在我们的计算中 , 在求解(1)式的含时薛定谔方程时,首先要给出 初始波函数.考虑到从 *t* = 0 时刻激光场开始作用 到原子上,因此原子在初始时刻处于无外场的基态, 其初始波函数为基态波函数.

在无外场作用下,一维原子的本征值方程为

$$H_0\phi_n(x) = E_n\phi_n(x), \quad (9)$$

其中 $H_0 = -\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} + V(x,y), E_n$ 为体系的能量本 征值 , $\phi_n(x)$ 是本征函数. 在求解(9)式的本征值和 本征函数时 ,我们用对角化方法进行求解. 为此我 们将 $\phi_n(x)$ 用 7 阶 ,38 个 *B* 样条函数展开 $\phi_n(x) = \sum_{i=1}^{N} c_i B_{i,k}(x)$,其展开系数 c_i 和对应的本征能量 E_n 都可以通过对角化方法确定.

3. 计算结果与讨论

在计算中,我们采用的激光场为红外场(IR)和 紫外场(UV)的组合,其电场分量可以表示为 $E_j(t) = E_{0,i}f_j(t - \tau_j)\cos\{\omega_j(t - \tau_j)], j = IR, UV,$ $E_{0,i}\pi_{\omega_i}$ 是振幅和圆频率 $f_j(t)\pi_{\tau_i}$ 是高斯包络和



图 1 组合激光场的电场分量随时间变化 相位延迟为 – 1.1π

峰值位置, $\tau = \tau_{UV} - \tau_R$ 是紫外场相对于红外场的时 间延迟 取红外场周期为横坐标的时间单位, $\omega_R \tau$ 即为组合场中紫外场相对于红外场的相位延迟.对 紫外场我们取强度和脉宽分别为 2×10^{13} W/cm² 和 0.6 fs,为了使电子先从基态跃迁到第一激发态,根 据原子在两个定态之间的频率条件 $\hbar\omega = E_2 - E_1$, 可得 ω_{UV} 约为 0.583 个原子单位,因此我们取紫外 场的中心波长为 78 nm.

图 1 给出了由强度为 3×10^{13} W/cm² 的红外和 强度为 2×10^{13} W/cm² 紫外场在一定的延迟时间形 成的组合场的电场分量,为了比较氦原子在单个红 外场和组合激光场驱动下发射高次谐波的差别,以 及不同组合场驱动下高次谐波的差别 图 2 给出了 相应的计算结果.图 χ a)的两条曲线分别表示了单 个红外场与红外场和紫外场所构成的组合场中产生 的谐波谱,其中单个红外场强度为 3 × 10¹⁴ W/cm², 中心波长和脉宽分别为 1065 nm 和 5 fs 组合场所用 参数与图 1中的参数相同,可以看出组合场相对于 单个红外场产生的高次谐波截止位置几乎不变 但 谐波的转化效率提高了两个数量级,并且谐波变的 更加光滑和规则。如果提高组合场中红外场的强 度 其他参数不变 ,将红外场强度由 3 × 10¹⁴ W/cm² 提高到 6×10¹⁴ W/cm²,所得到的谐波谱如图 2(b)所 示,由图可以看出,当红外场强度为6×10¹⁴ W/cm² 的组合场产生的谐波谱,与红外场强度为 3 × 10¹⁴ W/cm² 组合场产生的谐波谱相比,转化效率几乎不 变,但截止位置拓宽到近200阶,这样平台的范围得 到了很大的拓展. 若红外场强度提高至 8 × 10¹⁴ W/ cm² 形成的组合场所得的谐波谱 如图 2(c)所示 就 会发现截止位置达到 260 阶,平台进一步得到了拓

宽. 当组合场中红外场的强度进一步增加到 1 × 10¹⁵ W/cm² 时所得的谐波谱,如图 2(d),截止位置甚至 达到 300 阶以上. 因此,可以看到随着组合场中红 外场强度的增大,高次谐波的截止位置相应提高了, 平台区域得到了很大的拓展.

为了得到组合场中的阿秒脉冲,进一步认识不 同红外场强度下的组合场产生阿秒脉冲与产生阿秒 脉冲宽度的关系 我们计算了不同红外场强度下的 组合场产生的阿秒脉宽,图3为氦原子在不同红外 场强度下的组合场产生阿秒脉冲的时域包络曲线, 除红外场的强度取不同值外,其他参数与图1相同. 图 3(a) 表示在红外场强度为 3 × 10¹⁴ W/cm² 的组合 场产生的阿秒脉冲时域包络 ,是对截止位置附近的 85—105 阶谐波进行叠加.得到脉宽约为 152 as 的两 个脉冲;当组合场中红外场强度为 6×10^{14} W/cm² 时从160-190阶谐波进行叠加,可得脉宽约102 as的两个脉冲,脉冲宽度得到了缩短;图3(c)(d) 分别表示在红外场强度为 8×10^{14} W/cm² 和 1×10^{15} W/cm² 时的组合场,对其在截止位置附近分别从 205-255 260-310 阶谐波进行叠加,可以得到脉冲 宽度分别约为 81 as 和 71 as 的两个脉冲,由此可以 看出 随着组合场中红外场强度的提高 明显地可以



图 2 原子在单个红外场与不同组合场产生的谐波谱 组合场相位延迟为 – 1.1π 紫外场强度为 2×10¹³ W/cm² (a)单个红 外场(点线)和组合场中(实线)产生的谐波谱(红外场强度为 3×10¹⁴ W/cm²; (b)红外场强度为 3×10¹⁴ W/cm²(实线)和 6× 10¹⁴ W/cm²(点线)与紫外场组合产生的谐波谱; (c)红外场强度为 3×10¹⁴ W/cm²(实线)和 8×10¹⁴ W/cm²(点线)与紫外场组 合产生的谐波谱; (d)红外场强度为 3×10¹⁴ W/cm²(实线)和 1×10¹⁵ W/cm²(点线)与紫外场组合产生的谐波谱



图 3 组合激光场中不同红外场强度下所产生的阿秒脉冲时间包络 组合场相位延迟为 – 1.1π (a)红外场强度为 3 × 10¹⁴ W/cm²; (b)红外场强度为 6 × 10¹⁴ W/cm²; (c)红外场强度为 8 × 10¹⁴ W/cm²; (d)红外场强度为 1 × 10¹⁵ W/cm²

看到阿秒脉冲的时间宽度大大缩短了. 当然,红外 场的强度如果继续增加,会引起原子的明显电离,这 样原子产生高次谐波的效率会降低.

为了进一步理解高次谐波特性与阿秒脉冲发射 的物理机理之间的关系,我们通过变化组合场中的 红外场强度,对氦原子在不同强度红外场作用下的 时频特征做了分析.图(a)是组合场中红外场强度 为 3×10^{14} W/cm² 时对应的时频分析图,我们可以看 到有两个峰,较高的是 R_1 ,较低的是 R_2 ,若从85— 105 阶谐波进行叠加,显然只有 R_1 被选作对谐波有 贡献,而且在半个红外场的光学周期内对于同一阶 次的谐波有两次发射,它们分别对应于两条不同的 电子轨道,电子的长轨道和短轨道^[6,18],在时间包络 上它们分别对应于阿秒脉冲的双峰,短轨道相比于 长轨道贡献比较弱,对应的阿秒脉冲的左峰就比右 峰低(如图(a)所示).

当红外场的强度分别为 6×10^{14} W/cm² $,8 \times 10^{14}$ W/cm² 和 1×10^{15} W/cm² 时对应的时频分析 ,如图 4 (b)(c) 和(d)所示 ,同样我们可以看到在时频图上 也都有两个峰 ,分别为 R_1 和 R_2 ,对来自于 R_1 的谐 波的贡献 ,与图 4(a)的情况类似 ,它们分别对应两 条不同的电子轨道 ,但随着红外场强度的增加 ,时频 分析图中的峰值 R_1 对应的谐波阶次显著的增加 , 这表明原子在这种组合场中所产生的高次谐波截止 频率得到了延宽,而且,不论是电子的长轨道还是短 轨道的斜率也随着红外场强度的增大而增大,发射 的时间越来越短,因而阿秒脉冲时间宽度也越来越 短.虽然阿秒脉冲的时间宽度大大缩短了,但由于 电子的长轨道和短轨道对高次谐波的贡献相当,且 两条量子轨道之间存在着干涉效应,因此依然无法 得到单个的阿秒脉冲.如果将其中的一个量子轨道 抑制后,仅有一个量子轨道对高次谐波有贡献,这样 不仅避免了两条量子轨道之间的干涉效应,而且会 得到单个的阿秒脉冲.

按照高次谐波发射的三步模型,对同一阶谐波 有贡献的是电子的长轨道和短轨道,因此可以通过 调节两束激光的时间延迟,来达到提高某一个电子 轨道对谐波的贡献,而抑制另一个电子轨道的贡献. 为此我们取红外场强度为 8×10^{14} W/cm²,通过调节 两束激光的时间延迟来得到单个阿秒脉冲.为了方 便起见,我们用紫外场相对于红外场的相位延迟 $\omega_{IR}\tau$ 表示时间延迟,这样可以通过调节组合场中的 相位延迟来达到选择电子轨道的目的.如图5(a), (b)和(c)所示,随着延迟相位从 -1.11π 变到 -1.14π ,第二个脉冲的强度越来越低,电子长轨道 逐渐被抑制,短轨道被选了出来,因此产生了脉宽为 81 as 的单个脉冲,且单个脉冲的强度也有一定的提 高;另一方面,若延迟相位从 -1.09π 逐渐变到



图 4 组合激光场中所产生的高次谐波谱的时间频率分析图 组合场相位延迟为 -1.1π 红外场强度为(a) 3×10^{14} W/cm² (b) 6×10^{14} W/cm² (c) 8×10^{14} W/cm² (d) 1×10^{15} W/cm²



图 5 组合激光场中不同时间延迟下产生的阿秒脉冲红外激光场强度取为 8×10^{14} W/cm² (a) $\omega_{IR}\tau = -1.11\pi$; (b) $\omega_{IR}\tau = -1.12\pi$; (c) $\omega_{IR}\tau = -1.14\pi$; (d) $\omega_{IR}\tau = -1.09\pi$; (e) $\omega_{IR}\tau = -1.08\pi$; (f) $\omega_{IR}\tau = -1.06\pi$

-1.06π则第一个脉冲的强度越来越低,如图 5
 (d)(e)和(f)所示,这样,电子的长轨道被选了出来,而短轨道被抑制,同样可以得到强度较高、脉宽仍为 81 as 的单个脉冲.

因此,通过调整组合场的时间延迟,可以达到选择只有一个电子轨道对谐波有贡献的目的,从而得 到单个阿秒脉冲,这种选择只需调节组合场的延迟时 间就可以选出电子的短轨道,或选择电子的长轨道.

4.结 论

本文采用红外场和紫外场所构成的组合场作为

产生阿秒脉冲的驱动源,利用分裂算符法求解含时 薛定谔方程,对一维氦原子处于这种两色组合场中 产生的高次谐波进行了研究,分析了由高次谐波叠 加产生的阿秒脉冲特征.结果发现如果增加组合场 中的红外场强度,高次谐波的平台区域得到大幅度 的拓宽,对应的阿秒脉冲宽度也明显缩短,但对于同 一阶谐波而言,由于是两个电子轨道的贡献,得到的 是由两个阿秒脉冲组成的脉冲串.通过调节组合场 中两束激光的相位延迟,提高某一个轨道对谐波的 贡献,抑制另一个电子轨道的贡献,可以得到脉宽为 81 as 的单个脉冲,由此可见,通过调节组合场的强 度和时间延迟是得到超短阿秒脉冲的有效途径.

- [1] Agostini P , DiMauro L F 2004 Rep. Prog. Phys. 67 813
- [2] Ivanov M Y, Kienberger R, Scrizi A, Villeneuve D M 2006 J. Phys. B 39 R1
- [3] Kaplan A E 1994 Phys. Rev. Lett. 73 1243
- [4] Zheng J, Sheng Z M, Zhang J, Wei Z Y, Yu W 2005 Acta Phys. Sin. 54 1018 (in Chinese) [郑 君、盛政明、张 杰、魏志义、 余 玮 2005 物理学报 54 1018]
- [5] Antoine P , L'Huillier A , Lewenstein M 1996 Phys. Rev. Lett. 77 1234
- [6] Corkum P B 1993 Phys. Rev. Lett. 71 1994
- [7] 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
- [8] Kien F L , Midorikawa K , Suda A , 1998 Phys. Rev. A **58** 3311
- [9] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, Reider G A, Milosevic N, Brabec T, Corkum P, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2001 Nature 414 509

- [10] Corkum P B , Burnett N H , Ivanov M Y 1994 Opt . Lett . 19 1870
- [11] Sansone G , Beendetti 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] Lan P F , Lu P X , Cao W , Wang X L 2007 Phys. Rev. A 76 043808
- [13] Zeng Z, Cheng Y, Song X et al 2007 Phys. Rev. Lett. 98 203901
- $\left[\begin{array}{ccc} 14 \end{array}\right] \ \ \, Zhai \; Z$, Liu X S 2008 J . Phys . B 41 125602
- [15] Li P C, Zhou X X, Dong C Z, Zhao S F 2004 Acta Phys. Sin. 53 750 (in Chinese)[李鹏程、周效信、董晨钟、赵松峰 2004 物理 学报 53 750]
- [16] Burnett K, Reed V C, Cooper J, Knight P L 1992 Phys. Rev. A 45 3347
- [17] Antoine P , Piraux B , Maquet A 1995 Phys. Rev. A 51 R1750
- [18] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, L'Huillier A, Corkum P B 1994 Phys. Rev. A 49 2117

Ye Xiao-Liang¹) Zhou Xiao-Xin¹^{(2)†} Zhao Song-Feng¹) Li Peng-Cheng¹)

1 X College of Physics and Electronic Engineering , Northwest Normal University , Lanzhou 730070 , China)

2) Center of Theoretical Nuclear Physics, National Laboratory of Heavy Ion Accelerator of Lanzhou, Lanzhou 730000, China)

(Received 19 June 2008; revised manuscript received 7 July 2008)

Abstract

By solving the time-dependent Schrödinger equation with split-operator method, we study the high harmonics of onedimensional helium atom exposed to the two-color laser field composed of IR field and UV field, and analyze the characteristics of the attosecond pulse produced by the high-order harmonics. It is found that the width of the attosencond pulse is shortened by the increasing intensity of IR field in the combined laser field. By adjusting the time delay between two lasers, we can enhance the contribution of one of the electron trajectories and suppress that of the other. Thus we can obtain an isolated sub-100 as pulse.

Keywords : intense laser fields , combined laser field , high-order harmonic , attosecond pulse PACC : 3280 , 4250

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10674112), the Natural Science Foundation of the Gansu Province (Grant No. 3ZS061-A25-013), the Foundation of Education Department of Gansu Province (Grant No. 0601-23), and the Foundation of Northwest Normal University (Grant No. NWNU-KJCXGC-03-21).

[†] Corresponding author. E-mail : zhouxx@nwnu.edu.cn