

文章编号: 0258-7025(2010)05-1213-05

利用中红外激光产生单个阿秒脉冲的理论研究

杜小杰 周效信 李鹏程

(西北师范大学物理与电子工程学院, 甘肃 兰州 730070)

摘要 采用中红外(MIR)激光和紫外(UV)场所构成的组合场作为产生阿秒脉冲的驱动光源,利用分裂算符方法求解了一维模型氦原子在强激光场中的含时薛定谔方程,获得了由波长为 1400 nm 和 78 nm 形成的组合场驱动氦原子产生的高次谐波谱和阿秒脉冲,并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,得到的单个阿秒脉冲比红外场和紫外场作为驱动源产生的脉冲更短。

关键词 非线性光学;中红外激光;分裂算符;高次谐波;阿秒脉冲

中图分类号 O437 文献标识码 A doi: 10.3788/CJL20103705.1213

Theoretical Study on Single Attosecond Pulse Generated by Midinfrared Intense Laser Pulse

Du Xiaojie Zhou Xiaoxin Li Pengcheng

(College of Physics and Electronic Engineering, Northwest Normal University, Lanzhou, Gansu 730070, China)

Abstract We investigate the generation of isolated broadband attosecond pulses for a model of He atom driven by a midinfrared (MIR) laser pulse in combination with a ultraviolet (UV) controlling pulse. By solving the time-dependent Schrödinger equation with split-operator method, the high-order harmonic and attosecond pulse are obtained with MIR and UV pulses, whose wavelengths are 1400 nm and 78 nm respectively. By adjusting the time delay of two lasers, we can enhance the contribution of one electron trajectory and suppress the other electron trajectory. Thus we obtain a shorter isolated attosecond pulse, compared with the pulse produced by the He atom driven by the infrared and ultraviolet fields.

Key words nonlinear optics; midinfrared laser fields; split-operator; high-order harmonic; attosecond pulse

1 引 言

阿秒脉冲是观测原子内部电子过程的重要工具,如内壳层电子弛豫和光隧道电离。目前产生阿秒脉冲的方法主要有两种:受激拉曼散射^[1]和高次谐波。高次谐波由于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。阿秒脉冲产生过程依赖于高强度飞秒脉冲中电场的快速振荡。当光与原子相互作用时,高强度电场使原子中价电子

电离并加速。然后,当外加电场反向时,将电离的电子重新拉回原子核,而被重新捕获的电子将其额外能量以脉冲辐射的形式释放出来,即发射高次谐波。如果驱动的激光是长脉冲,这时产生的阿秒脉冲是一个脉冲链^[2,3],脉冲之间的间隔为半个激光周期。将阿秒脉冲链直接应用于超快测量是困难的,人们更希望使用单个的阿秒脉冲作为测量工具。理论上获得单个阿秒脉冲的方法主要有:偏振门技术^[4],利用几个光周期的超短脉冲驱动光^[5~7],如张

收稿日期: 2009-06-08; 收到修改稿日期: 2009-08-24

基金项目: 国家自然科学基金(10674112)、甘肃省自然科学基金(3ZS061-A25-013)、甘肃省教育厅基金(0601-23)和西北师范大学创新项目(NWNU-KICXGC-03-21)资助课题。

作者简介: 杜小杰(1977—),男,硕士研究生,主要从事强激光场与物质相互作用等方面的研究。

E-mail: dxj9906080@yahoo.com.cn

导师简介: 周效信(1954—),男,教授,博士生导师,主要从事强激光场与原子分子相互作用的理论等方面的研究。

E-mail: zhouxx@nwnu.edu.cn(通信联系人)

庆斌等^[8]利用波长为 1600 nm 的基频场组成偏振态门,同时叠加 800 nm 的倍频场来调制驱动脉冲,结果获得了脉宽为 100 as 的脉冲。最近,叶小亮等^[9]用脉冲宽度为 5 fs,波长为 1065 nm 的红外场与脉冲宽度为 0.6 fs,波长为 78 nm 的紫外场构成的组合场作用于氦原子,获得了脉宽为 81 as 的单个脉冲。此方法虽然得到了较短的单个阿秒脉冲,但要得到更短的单个阿秒脉冲是很困难的,因为当红外场强度再增大时,无论怎样调节红外场和紫外场的时间延迟,都无法得到更短的单个阿秒脉冲。

根据高次谐波产生的理论,要提高谐波截断位置的阶数,驱动光应利用波长较长的激光。随着激光技术的进一步发展,人们已突破近红外激光作为驱动光源的限制,而把目光逐渐投向了中红外激光^[10]。但随驱动光波长变长,高次谐波的转换效率一般将降低^[11,12],因此可通过偏振门技术或双色场方法既能提高谐波转换效率也可获得脉宽更短的单个脉冲。如 He 等^[13]研究了波长从 400~1400 nm 激光的偏振率,并得出了由 800 nm 和 1400 nm 激光各自产生的阿秒脉冲,脉宽分别为 640 as 和 466 as,显然通过增大驱动光波长的办法可缩短阿秒脉宽。由于求解三维真实原子的含时薛定谔方程计算量巨大,需要耗费大量的计算机机时,为了减少计算量,1989 年 Eberly 等^[14]使用一维模型原子代替三维真实原子来模拟强激光场与原子的相互作用,成功地解释了实验结果。由于使用一维模型势代替三维真实库仑势一方面大大减少了机时,其产生的高次谐波除了绝对强度存在差异以外,它们的平台趋势及截止位置与三维真实原子的结果符合得很好^[15,16]。对于高次谐波的研究,人们更关注的是谐波的相对强度及其截止位置,采用一维模型原子能够很好地描述高次谐波的性质^[16]。本文利用驱动光波长为 1400 nm,并叠加上一短紫外脉冲形成组合场,与氦原子相互作用,利用分裂算符方法求解了一维模型氦原子在强激光场中的含时薛定谔方程,获得了高次谐波谱和阿秒脉冲,并通过调节两束激光的时间延迟,相比于红外场驱动,可得到脉宽更短的单个阿秒脉冲。

2 理论和计算

在偶极近似和长度规范下,强激光场中氦原子在实验室坐标系中的含时薛定谔方程为(采用原子单位):

$$i \frac{\partial}{\partial t} \varphi(t) = H \varphi(t). \quad (1)$$

一维模型氦原子的哈密顿量为

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

式中 $-xE(t)$ 是电子与激光场相互作用项, $V(x)$ 采用一维软库仑势^[17]

$$V(x) = -\frac{1}{\sqrt{a^2 + x^2}}, \quad (3)$$

式中 a 为可调参数。选 $a = 0.485$ 使基态波函数能量的本征值跟氦原子的基态能量相同。(1)式的解可表示为

$$\varphi(t + \Delta t) = \exp(-iH\Delta t)\varphi(x, t). \quad (4)$$

用分裂算符方法对(4)式中的指数算符进行劈裂,得

$$\varphi(x, t + \Delta t) = \exp\left(\frac{i\Delta t}{4} \frac{\partial^2}{\partial x^2}\right) \exp\{-i\Delta t[V(x) - xE(t)]\} \exp\left(\frac{i\Delta t}{4} \frac{\partial^2}{\partial x^2}\right) \varphi(x, t) + O(\Delta t^3), \quad (5)$$

由(5)式可以看出,波函数从 t 演化到 $t + \Delta t$ 可通过三步来完成,波函数的具体演化过程在文献^[17]中已有详细阐述。

在求解(1)式的含时薛定谔方程时,首先要确定初始波函数。考虑到从 $t = 0$ 时刻激光场开始作用到原子上,此时原子处于无外场的基态,因此初始波函数为基态波函数。初始波函数用 7 阶 38 个 B 样条函数展开,再通过对角化方法确定其展开系数。

因为高次谐波的强度与电子平均加速度的傅里叶变换模的平方成正比,首先计算出电子的平均加速度

$$a(t) = \langle \varphi(x, t) | -\frac{\partial V(x)}{\partial x} + E(t) | \varphi(x, t) \rangle, \quad (6)$$

由此,高次谐波谱的强度可表示为

$$P(\omega) = |a(\omega)|^2, \quad (7)$$

式中

$$a(\omega) = \int_0^t a(t) \exp(-i\omega t) dt, \quad (8)$$

对数阶高次谐波进行叠加,可以得到阿秒脉冲

$$I(t) = \left| \sum_q a_q \exp(iq\omega t) \right|^2, \quad (9)$$

式中 $a_q = \int a(t) \exp(-iq\omega t) dt$ 。

为了分析高次谐波谱在时间频率空间的特性,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 ω 的谐波随时间 t_0 的变化

$$A_{\omega}(t_0, \omega) = \int a(t) \omega w_{t_0, \omega}(t) dt = A_{\omega}(t_0), \quad (10)$$

式中

$$\omega w_{t_0, \omega}(t) = \sqrt{\omega} W[\omega(t - t_0)], \quad (11)$$

式中

$$W(x) = \frac{1}{\sqrt{\tau}} \exp(ix) \exp\left(-\frac{x^2}{2\tau^2}\right) \quad (12)$$

为 Morlet 小波变换的窗函数。从(10)~(12)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 $A_{\omega}(t_0, \omega)$ 随时间演化的规律几乎不变。在计算中, 选取 $\tau = 15$ 。

3 结果与讨论

在计算中, 激光场为中红外场和紫外场的组合, 它们的极化方向相同, 其电场分量可以表示为

$$E(t) = E_{\text{MIR}} f_1(t) \cos(\omega_{\text{MIR}} t + \phi) + E_{\text{UV}} f_2(t - \tau) \cos[\omega_{\text{UV}}(t - \tau)], \quad (13)$$

式中 $f_1(t) = \exp[-2\ln(2)(t/\tau_1)^2]$, $f_2(t - \tau) = \exp\{-2\ln(2)[(t - \tau)/\tau_2]^2\}$ 分别为中红外场和紫外场的高斯包络。 E_{MIR} 和 ω_{MIR} 分别是波长为 1400 nm 中红外场的电场振幅和角频率, 脉冲宽度为 $\tau_1 = 7.0$ fs。 E_{UV} 和 ω_{UV} 分别是紫外场的电场振幅和角频率, 脉冲宽度为 $\tau_2 = 0.6$ fs。 $\tau = \tau_2 - \tau_1$ 是紫外场相对于中红外场的相位延迟, 为了方便起见, 用紫外场相对于中红外场的相位延迟 $\omega_{\text{MIR}}\tau$ 表示时间延迟。 ϕ 是初相位。在计算中取 $\phi = 0$, 中红外场的强度为 8.0×10^{14} W/cm², 紫外场强度为 2×10^{13} W/cm², 其中中红外场可通过光学参量放大器(OPA)来实现。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, 因此取紫外场的中心波长为 78 nm, E_2 和 E_1 分别为原子在第一激发态和基态的能量, 紫外场可通过其他原子发射的高次谐波来实现。

图 1 给出了由强度为 8.0×10^{14} W/cm² 的中红外场和强度为 2×10^{13} W/cm² 的紫外场在延迟时间为 $\omega_{\text{MIR}}\tau = -1.06\pi$ 时形成的组合场的电场分量。图 2 是图 1 所示组合场作用于氦原子产生的高次谐波谱, 根据经验公式 $N\omega_{\text{MIR}} = I_p + 3.17U_p$ 计算得谐波阶数截止位置 $N = 550$ order, 与图 2 中所示谐波阶数截止位置一致。从图 2 可以看出谐波谱呈现两个平台, 为了得到阿秒脉冲对第二个平台中 490~550 阶谐波进行叠加, 可以得到如图 3 所示的阿秒

脉冲。从图中可以看出有两个脉冲, 脉宽分别为 70 as 和 82 as, 左边脉冲强度比右边脉冲强度稍高。为了进一步了解 490~550 阶高次谐波的发射特性, 应用小波变换计算得出了谐波的时频分析, 如图 4 所示。从时频图上可以看到也有两个主峰, 它们分别对应两条不同的电子轨道, 即电子的短轨道和长轨道, 先发射谐波的是电子的短轨道, 后发射谐波的是电子的长轨道。从时频图上可以看出短轨道比长轨道对谐波的贡献稍强一些, 因而对应的阿秒脉冲左峰比右峰稍高一些。为了得到单一的阿秒脉冲, 按照先前的研究^[9], 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。因此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, 经优化计算得出当相位延迟为 -1.02π 时, 可得到脉宽为 70 as 的单个脉冲, 如图 5 所示。

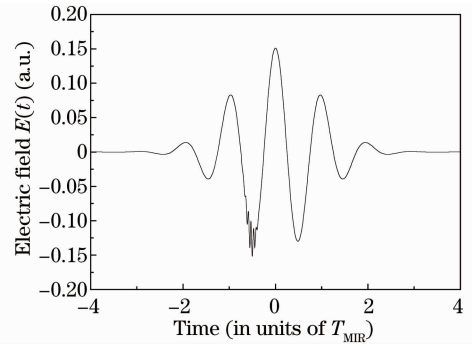


图 1 组合场的电场分量随时间的变化

Fig. 1 Variation of the electric field with time

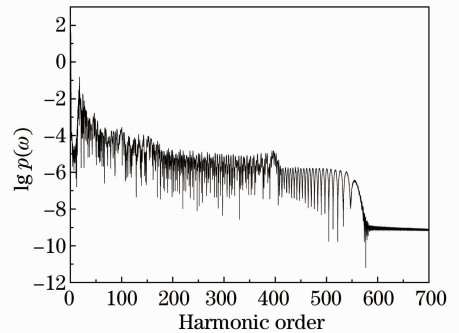


图 2 He 原子在组合场中产生的高次谐波谱
Fig. 2 Harmonic spectrum of He atom in the combined field

图 6 是当组合场相位延迟为 -1.02π 时的谐波时频分析, 从图中可以看出对谐波的贡献主要是电子的长轨道, 而短轨道对谐波的贡献很小, 几乎可以忽略不计, 因此对 490~550 阶谐波叠加可得到如图 5 所示的阿秒脉冲。

与文献^[9]所得单个阿秒脉冲结果相比较, 上面

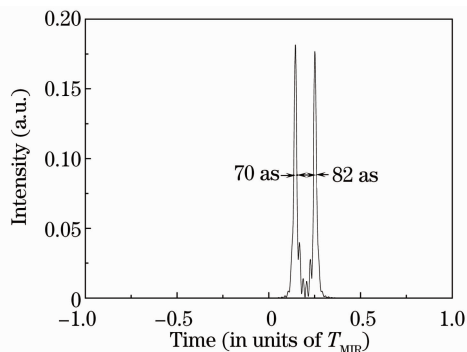


图 3 组合场所产生的阿秒脉冲(相位延迟为 -1.06π)

Fig. 3 Temporal profiles of the attosecond pulses by the combined field (The phase delay is -1.06π)

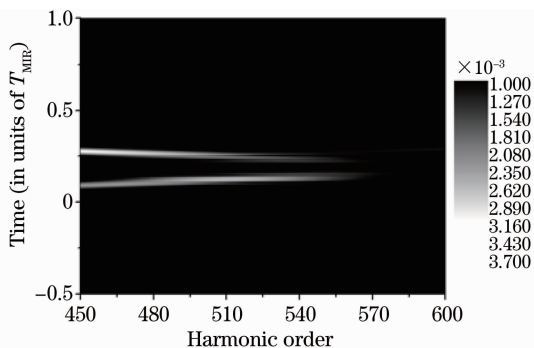


图 4 组合场所产生的高次谐波的时间频率分析(相位延迟为 -1.06π)

Fig. 4 Time-frequency spectrogram of the harmonics in the combined field (The phase delay is -1.06π)

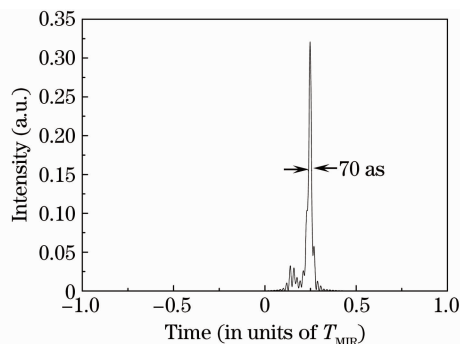


图 5 组合场所产生的阿秒脉冲(相位延迟为 -1.02π)

Fig. 5 Temporal profiles of the attosecond pulses by the combined field (The phase delay is -1.02π)

由中红外激光驱动原子得到的单个阿秒脉冲的重要意义在于由中红外组合场得到的阿秒脉冲比由红外组合场得到的阿秒脉冲更短,这可以通过经典的三步模型给予解释。当激光与原子相互作用时,高强度的电场使原子中价电子电离并使电子远离母离子;然后,当激光场反向时,电离电子会在反向电场力的作用下向母离子运动并从激光场获得动能,而反向电子从激光场获得的最大动能与反向加速的时

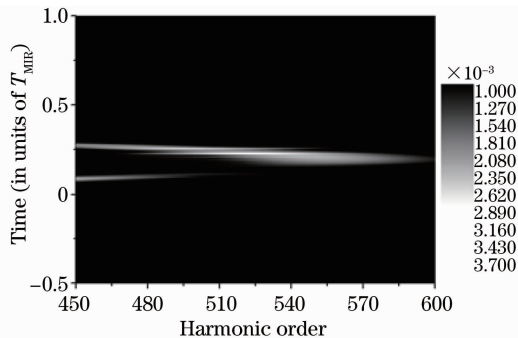


图 6 组合场所产生的高次谐波谱的时间频率分析(相位延迟 -1.02π)

Fig. 6 Time-frequency spectrogram of the harmonics in the combined field (The phase delay is -1.02π)

间有关,加速的时间越长,则电离电子所获得的动能就越大。由于中红外激光的周期比红外激光的周期长,电子在中红外激光场反向时加速的时间也就越长,因此在中红外组合场驱动下,反向电子可以获得更高的能量,这样电子与母离子复合时就会释放出更高能量的光子,即有效扩展了高次谐波的截止位置。用高次谐波构造阿秒脉冲,如果高次谐波的截止位置越高,有可能在截止位置附近形成较宽的超连续谱,才有可能利用截止位置附近的超连续谱获得更短阿秒脉冲。因此利用中红外场驱动原子可以实现比红外场驱动原子得到更短阿秒脉冲。从产生阿秒脉冲的宽度而言,中红外场作为驱动光源优于红外场,但驱动光的波长越长,电子波包的扩散效应会越大,导致高次谐波的转换效率降低。为了改变这一状况,可给中红外场激光场再叠加一紫外脉冲,使得电子先从基态跃迁到第一激发态,这样电子就会更容易隧道电离,高次谐波发射效率得到提高,使得电子波包的扩散效应引起高次谐波转换效率的降低得到补偿,不至于引起阿秒脉冲强度的明显降低。

4 结 论

采用中红外激光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,对一维氢原子处于这种两色组合场中产生的高次谐波进行了研究,分析了由中红外场产生的高次谐波和由高次谐波叠加产生的阿秒脉冲。通过调节组合场中两束脉冲的时间延迟,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,得到的单个阿秒脉冲比红外场和紫外场作为驱动源产生的脉冲更短。这是因为当电场反向

时,电子在中红外场中运动的时间更长,电子获得的动能更大,从而使高次谐波的截止位置越高,所得到的阿秒脉冲就更短。虽然利用中红外激光场驱动原子提高了高次谐波的截止位置,但随着波长变长,高次谐波的转换效率降低了,为了提高高次谐波的转换效率,可通过给中红外场再叠加一紫外脉冲,虽然所加紫外脉冲对高次谐波截止位置不产生影响,但可以补偿由于驱动光源波长变长引起高次谐波转换效率的降低。

参 考 文 献

- 1 A. E. Kaplan. Subfemtosecond pulses in mode-locked 2π solitons of the cascade stimulated Raman scattering [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1994, **73**(9): 1243~1256
- 2 P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger *et al.*. Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation [J]. *Science*, 2001, **292**(5522): 1689~1692
- 3 Y. Mairesse, A. De Bohan, L. J. Frasinski *et al.*. Attosecond synchronization of high-harmonic soft x-rays [J]. *Science*, 2003, **302**(5650): 1540~1543
- 4 G. Sansone, E. Benedetti, F. Calegari *et al.*. Isolated single-cycle attosecond pulses [J]. *Science*, 2006, **314**(5798): 443~446
- 5 M. Hentschel, R. Kienberger, Ch. Spielmann *et al.*. Attosecond metrology [J]. *Nature*, 2001, **414**(6863): 509~513
- 6 R. Kienberger, E. Goulielmakis, M. Uiberacker *et al.*. Atomic transient recorder [J]. *Nature*, 2004, **427**(6977): 817~820
- 7 Zheng Yinghui, Xiong Hui, Peng Yan *et al.*. Generation of high-order harmonic continuum supporting single attosecond pulse in argon driven by intense 7 fs laser pulse [J]. *Acta Optica Sinica*, 2006, **26**(9): 1439~1440
郑颖辉,熊辉,彭滢等. 7 fs 超快强激光驱动 Ar 原子产生支持单个阿秒脉冲的高次谐波连续谱 [J]. *光学学报*, 2006, **26**(9): 1439~1440
- 8 Zhang Qingbin, Hong Weiyi, Lan Pengfei *et al.*. Control of attosecond pulse generation with modulated polarization gating [J]. *Acta Physica Sinica*, 2008, **57**(12): 7849~7852
张庆斌,洪伟毅,兰鹏飞等. 利用调制的偏振态门控制阿秒脉冲的产生 [J]. *物理学报*, 2008, **57**(12): 7849~7852
- 9 Ye Xiaoliang, Zhou Xiaoxin, Zhao Songfeng *et al.*. The single attosecond pulse generated by atom exposed to two-color combined laser field [J]. *Acta Physica Sinica*, 2009, **58**(3): 1580~1584
叶小亮,周效信,赵松峰等. 原子在两色组合激光场中产生的单个阿秒脉冲 [J]. *物理学报*, 2009, **58**(3): 1580~1584
- 10 P. Agostini, L. F. DiMauro. Atoms in high intensity mid-infrared pulses [J]. *Contemporary Physics*, 2008, **49**(3): 179~197
- 11 J. Tate, T. Auguste, H. G. Muller *et al.*. Scaling of wavepacket dynamics in an intense midinfrared field [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2007, **98**(1): 013901
- 12 K. Schiessl, K. L. Ishikawa, E. Persson *et al.*. Quantum path interference in the wavelength dependence of high harmonic generation [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2007, **99**(25): 253903
- 13 F. He, C. Ruiz, A. Becker. Single attosecond pulse generation with intense mid-infrared elliptically polarized laser pulse [J]. *Opt. Lett.*, 2007, **32**(21): 3224~3226
- 14 J. H. Eberly, Q. Su, J. Javanainen. Nonlinear light scattering accompanying multiphoton ionization [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1989, **62**(8): 881~884
- 15 S. C. Rae, X. Chen, K. Burnett. Saturation of harmonic generation in one and three-dimensional atoms [J]. *Phys. Rev. A*, 1994, **50**(2): 1946~1949
- 16 Zhao Songfeng, Zhou Xiaoxin, Jin Cheng. Investigation of high order harmonic generation and ionization of model hydrogen atoms and real hydrogen atom in intense laser field [J]. *Acta Physica Sinica*, 2006, **55**(8): 4078~4085
赵松峰,周效信,金成. 强激光场中模型氢原子和真实氢原子的高次谐波与电离特性研究 [J]. *物理学报*, 2006, **55**(8): 4078~4085
- 17 Li Pengcheng, Zhou Xiaoxin, Dong Chenzhong *et al.*. Investigation of the high harmonic generation and ionization of atoms with long-range and short-range potentials in intense laser fields [J]. *Acta Physica Sinica*, 2004, **53**(3): 750~755
李鹏程,周效信,董晨钟等. 强激光场中程势与短程势原子产生高次谐波与电离特性研究 [J]. *物理学报*, 2004, **53**(3): 750~755