

文章编号: 0253-2239(2003)03-0317-04

# 激光脉冲绝对相位对产生阿秒脉冲的影响\*

曾志勇 李儒新 徐至展

(中国科学院上海光学精密机械研究所强光光学开放实验室, 上海 201800)

**摘要:** 在用超短激光脉冲产生和测量阿秒脉冲的过程中, 绝对相位成为一个非常重要的影响因素。讨论了绝对相位对阿秒脉冲的产生和激光振荡的关系的影响, 发现高次谐波的产生过程非常稳定, 阿秒脉冲和驱动它的激光振荡之间的稳定的相位关系并不会受绝对相位的随机性的破坏, 从而为采用交叉相关技术直接测量由强场原子高次谐波过程产生的阿秒脉冲宽度提供了理论依据, 正确解释了文献[13]上报道的实验结果。

**关键词:** 激光技术; 阿秒脉冲; 绝对相位; 激光振荡

中图分类号: O437 文献标识码: A

## 1 引 言

在激光与物质的相互作用进入强场物理领域后, 对于阿秒量级的超短脉冲的研究一直非常活跃<sup>[1~12]</sup>。在物质的相互作用过程中, 许多基本的物理过程都是在一个可见光光周期甚至在一个光周期以内完成的, 如内壳层光电离、电子隧穿等, 对于这些过程的了解, 首先就需要极短的、阿秒量级的“光探针”。产生这种光脉冲的方法, 理论上提出了两种, 一是受激拉曼散射(SRS)<sup>[3]</sup>, 另一种就是高次谐波<sup>[1, 2, 4~13]</sup>, 这两种方法都可以产生足够宽的频谱并支持产生阿秒脉冲链。理论研究表明, 对于高次谐波, 可以用随时间变化的椭圆度调制或直接在截止区附近用滤波片滤出一部分频谱, 就可以产生极短的阿秒脉冲链。但是由于产生的阿秒脉冲链的时间间隔为  $T_L/2$  ( $T_L$  为激光脉冲的振荡周期), 而要从这一串脉冲链中选择出单个的阿秒脉冲又是非常困难的, 因此实验上一直采用的方法是直接用超短的抽运激光脉冲来产生单个的阿秒脉冲。最近的实验结果表明<sup>[11, 13]</sup>, 在采用脉宽为 7 fs 的超短激光脉冲与氦气相互作用时, 可以在软 X 射线波段获得并测量出脉宽达几百阿秒的极短脉冲, 并用之测量红外激光的载波振荡。

在文献[11, 13]的实验中, 作者首先采用脉宽为

7 fs 的超短激光脉冲与氦气相互作用产生高次谐波, 然后用带通滤波片从中滤出光子能量为 90 eV、波长为 14 nm 的软 X 射线, 然后将此软 X 射线和激光脉冲一起打到氦气靶上, 由于高能软 X 射线光子能够使氦气发生光电效应电离出电子, 产生的电子将在激光场中运动。电子的运动由电子产生时刻的激光电场强度和相位决定<sup>[11]</sup>, 通过改变阿秒脉冲和激光振荡之间的时间延迟来改变产生的电子在激光场中运动后的能谱, 从而测量出激光载波的振荡, 并估算阿秒脉冲的宽度。由于实验中所用的激光脉宽只有 7 fs, 因此超短激光脉冲的绝对相位<sup>[14~16]</sup>成为影响阿秒脉冲产生和电子运动的一个重要因素, 如果激光脉冲的绝对相位是完全随机的, 而阿秒脉冲的产生也是随机的, 这种随机性显然会由于多脉冲的累积而极大地影响最终的测量结果。但是在实验中却并没有观测到这种影响, 因此文献[13]的作者认为, 有两种可能性可以解释他们实验结果的稳定性。一是高次谐波的产生过程确实非常稳定, 这似乎是不可能的; 另一种则可能是由于大部分绝对相位对于产生高次谐波是不利的, 而只有少量对于高次谐波产生过程有利的绝对相位才对实验结果有所贡献, 而这后者的可能性更大。

根据我们的计算表明, 并不存在对高次谐波产生过程不利的绝对相位, 虽然部分绝对相位会影响阿秒脉冲的强度, 但是并没有很大的变化, 相反, 正是由于高次谐波的产生过程非常稳定, 才使激光脉冲的绝对相位并没有对文献[13]的实验结果产生太大的影响。

\* 国家自然科学基金(19974058)、国家杰出青年科学基金(69925513)、国家重点基础研究发展规划(G1999075204)和国家 863 计划资助课题。

E-mail: zhinan.zeng@mail.siom.ac.cn

收稿日期: 2002-01-14; 收到修改稿日期: 2002-04-26

## 2 数值计算

本文通过数值求解一维含时薛定谔方程,并采用单电子近似和软核势模型,计算高次谐波谱,并采用小波变换分析阿秒脉冲的产生过程。下面是一维含时薛定谔方程,所有参量均采用原子单位(a. u.):

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

其中  $\Psi(x)$  为电子波函数,势函数  $V(x)$  采用软核势描述:

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

常量  $b$  为 0.4713,基态能量等于  $-0.9043$  a. u.,近似对应于氦原子的第一电离能。激光场采用如下形式描述:

$$E(t) = E_0(t) \cos(\omega_L t + \varphi), \quad (2)$$

$E_0(t)$  为激光脉冲包络,采用  $\exp(-t^2/\tau^2)$  的形式描述,则激光脉冲宽度为  $\sqrt{2 \ln 2} \tau$ ;  $\omega_L$  为激光频率,本文采用波长为 800 nm 的激光,因此约等于 0.057 a. u.;  $\varphi$  为超短激光脉冲的绝对相位。为了便于比较,在我们的计算中将采用两种激光脉冲,其宽度分别为 28 fs 和 7 fs,由于激光周期只有约 2.667 fs,因此这两种脉冲可以分别看作长脉冲和短脉冲对原子的相互作用。

通过求解含时薛定谔方程,我们可以得到原子偶极加速度  $a(t)$ ,然后对偶极加速度进行傅里叶变换,可以得到高次谐波谱。由于本文主要分析高次谐波过程中产生的阿秒脉冲,因此将采用如下形式的滤波片:

$$W(\omega_0, \Delta\omega; \omega) = \exp[-(\omega - \omega_0)^2 / (\Delta\omega)^2], \quad (3)$$

其中  $\omega$  为谐波频率,  $\omega_0$  为其中心频率。

在此没有考虑实际滤波片对不同频率的高次谐波引入的色散影响,这是因为本文目的在于讨论超短激光脉冲绝对相位的随机性对产生阿秒脉冲的影响,滤波片引入的色散并不会影响本文的结果。

通过以下的计算公式,我们可以分析阿秒脉冲的产生特性:

$$S(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} a(t) \exp(i\omega t) dt, \quad (4)$$

$$E_x(\omega_0, t) = \left| \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} S(\omega) W(\omega_0, \Delta\omega; \omega) \exp(i\omega t) d\omega \right|. \quad (5)$$

上述表达式中的  $S(\omega)$  为高次谐波谱,而  $E_x(\omega_0, t)$

则是中心频率为  $\omega_0$  的高次谐波产生的阿秒脉冲的时域包络。

## 3 讨 论

图 1(a)、图 1(b) 分别为 7 fs 和 28 fs 的激光脉冲产生的阿秒脉冲。激光脉冲包络峰值对应的时间为  $32T_L$  ( $T_L$  为激光光周期,约为 2.667 fs)。频率轴的 1 到 25 表示从高次谐波平台区到截止区的 25 个采样点,对应于高次谐波的不同频率辐射,如图给出了不同频率的时域包络形状。从图中可以看出,无论长脉冲还是短脉冲,产生的高次谐波在截止区附近的高频辐射都有很好的时域包络,这说明在此附近产生的高次谐波有良好的相位特性,能够产生很好的阿秒脉冲链。而在平台区产生的高次谐波,越远离截止区,其包络形状起伏越大,脉冲宽度越宽。

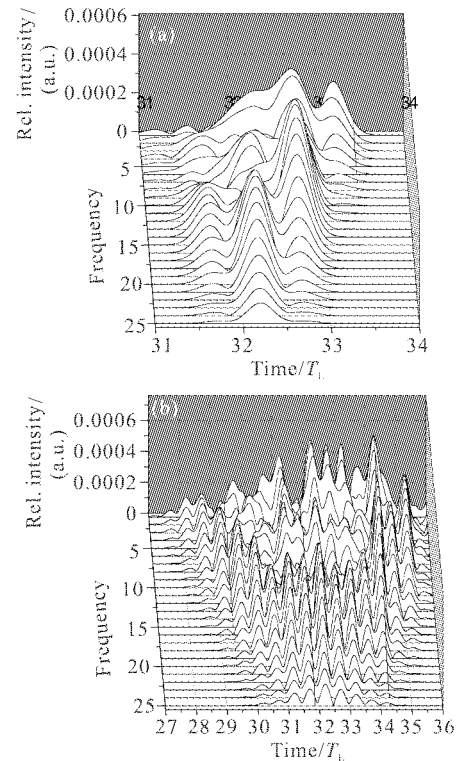


Fig. 1 (a) and (b) show the attosecond pulses with different frequencies generated by the laser pulses of 7 fs and 28 fs, respectively

通过对图 1(a)、图 1(b) 的比较,我们可以看出,对于 28 fs 的激光脉冲,虽然在截止区附近也能产生时间间隔为半个激光周期的阿秒脉冲链,但是由于很多脉冲集中在一起,无法提取出单个的阿秒脉冲,因此并不适合作为阿秒脉冲的产生源。而对于 7 fs 的激光脉冲,在截止区附近可以产生近似单个的阿秒脉冲,其脉冲宽度约为 950 as。这些都是已知的

一些结论,从图中我们可以获得更加直观的结果,同时也可以证明我们的计算过程是合理的。下面我们将分析超短脉冲绝对相对对产生阿秒脉冲的影响,计算中采用的是上述 7 fs 的短脉冲。

在文献[13]的实验中,作者发现计算的结果与实验的结果非常吻合,也就是说激光器产生的超短脉冲的绝对相位的随机性在实验中并没有明显的体现。他们认为有两种可能性,一种是高次谐波产生过程非常稳定,而另一种可能是实验中的软 X 射线是由一部分有利于高次谐波过程的绝对相位产生的,这使最后的实验结果并没有受到超短脉冲绝对相对相位的影响。他们认为后一种可能性更大。

而在本文的计算中,我们发现,在高次谐波过程中确实存在这种稳定性,使实验结果受到绝对相位影响将是非常小的。在文献[13]的实验中,通过改变产生的阿秒脉冲与激光载波之间的延迟,测量这种延迟对产生的光电子能谱的影响,从而可以精确测量载波振荡,并算出阿秒脉冲宽度。而光电子能谱的宽度变化,则由光电子产生时刻的光场强度和相位决定<sup>[11]</sup>,因此,如果光电子产生时刻对应的激光场相位是恒定的,由于包络对光场强度的影响是非常小的 $[dE_0(t)/(dt) \ll E_0(t)\omega_L]$ ,即使对于只有 7 fs 的激光脉冲,那么最后获得的电子能谱将是稳定的,不会受到光场绝对相位的影响。本文的计算结果正好表明了这一点,即绝对相位并不会影响阿秒脉冲与载波振荡之间的延迟,文献[13]的实验结果的稳定性就是由这种稳定性决定的。

在以下计算中,阿秒脉冲相对于载波振荡的位置  $\Delta\phi = \phi - \phi_c$ ,其中  $\phi_c$  为产生的阿秒脉冲相对于激光脉冲包络中心的位置。图 2 给出了不同激光绝对相位下 7 fs 激光脉冲产生的阿秒脉冲,其中时间轴的 32 对应于超短激光脉冲的包络中心,即脉冲峰值处,从图中可以看出,阿秒脉冲并不总是在包络峰值处产生的,而是随着激光绝对相位的变化有所移动。图 3 给出了随激光脉冲绝对相位的变化,阿秒脉冲的产生位置随脉冲包络和载波振荡的相对位置的变化。从图中可以看出,随着绝对相位的变化,阿秒脉冲的产生位置基本上与激光载波振荡同步变化,图 3(b)显示两者之间的相对位置的变化不超过  $0.018T_L$ (即 48 as 左右,远小于 1 fs),这么小的变化当然足以保证文献[13]中的实验结果的稳定性。但是这也显示,如果激光脉冲的绝对相位不能得到控制,其随机性仍然会限制测量的时间分辨率。

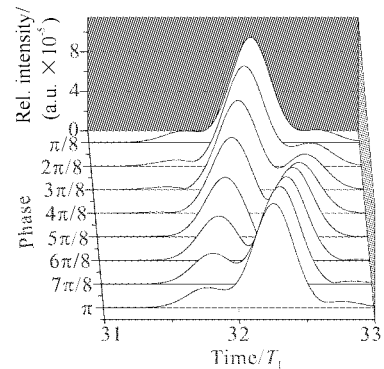


Fig. 2 The attosecond pulses generated by a 7 fs laser pulse with different absolute phases

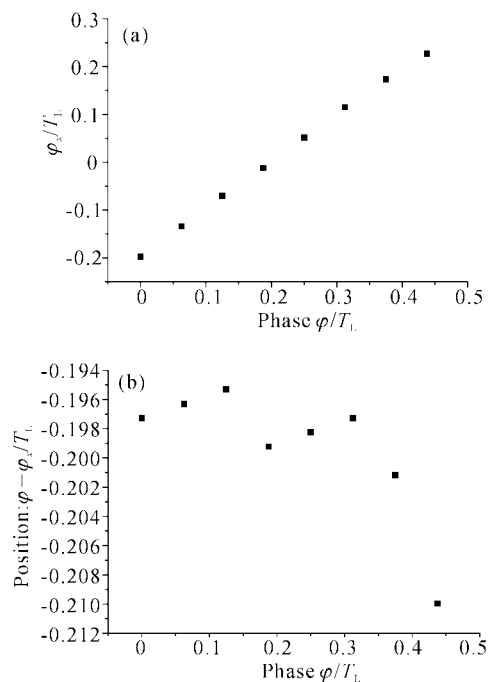


Fig. 3 (a) The position of the attosecond pulse as a function of the absolute phase; (b) The relative position of the attosecond pulse and the laser oscillation as a function of the absolute phase

**结论** 从以上的结果可知,在用超短激光脉冲产生阿秒脉冲的过程中,激光脉冲绝对相位的变化并不能显著改变阿秒脉冲相对于载波振荡的位置,文献[13]的实验结果的稳定性也正是由这一点保证的。在计算中我们还发现,入射激光的强度变化也不能改变截止区阿秒脉冲的产生位置,具体的理论分析还有待进一步的研究,可能跟在截止区附近的高次谐波辐射只能由少数的电子运动轨道产生有关。

同时,这个结果还表明,阿秒脉冲的产生位置同时也标识了激光振荡的位置,因此这个结果将有可能用于测量超短激光脉冲的绝对相位。

衷心感谢吴海涛硕士提供的一维含时薛定谔方程计算程序。

### 参 考 文 献

- 1 Ivanov M, Corkum P B, Zuo Z *et al.*, Routes to control of intense-field atomic polarizability. *Phys. Rev. Lett.*, 1995, **74**(15):2933~2936
- 2 Protopapas M, Lappas D G, Keitel C H *et al.*, Recollisions, bremsstrahlung, and attosecond pulses from intense laser fields. *Phys. Rev. (A)*, 1996, **53**(5):2933~2936
- 3 Sokolov A V, Walker D R, Yavuz D D *et al.*, Raman generation by phased and antiphased molecular states. *Phys. Rev. Lett.*, 2000, **85**(3):562~565
- 4 Antoine P, Huillier A L, Lewenstein M, Attosecond pulse trains using high-order harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 1996, **77**(7):1234~1237
- 5 Antoine P, Milosevic D B, Huillier A L *et al.*, Generation of attosecond pulses in macroscopic media. *Phys. Rev. (A)*, 1997, **56**(6):4960~4969
- 6 Christov I P, Murnane M M, Kapteyn H C, High-harmonic generation of attosecond pulses in the "single-cycle" regime. *Phys. Rev. Lett.*, 1997, **78**(7):1251~1254
- 7 Kien F L, Midorikawa K, Suda A, Attosecond pulse generation using high harmonics in the multicycle regime of the driver pulse. *Phys. Rev. (A)*, 1998, **58**(4):3311~3319
- 8 Papadogiannis N A, Witzel B, Kalpouzos C *et al.*, Observation of attosecond light localization in higher order harmonic generation. *Phys. Rev. Lett.*, 1999, **83**(21):4289~4292
- 9 Milosevic D B, Becker W, Attosecond pulse trains with unusual nonlinear polarization. *Phys. Rev. (A)*, 2000, **62**(1):011403
- 10 Scrinzi A, Geissler M, Brabec T, Attosecond cross correlation technique. *Phys. Rev. Lett.*, 2001, **86**(3):412~415
- 11 Drescher M, Hentschel M, Kienberger R *et al.*, X-ray pulses approaching the attosecond frontier. *Science*, 2001, **291**(5510):1923~1927
- 12 Paul P M, Toma E S, Breger P *et al.*, Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. *Science*, 2001, **292**(5522):1689~1692
- 13 Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C *et al.*, Attosecond metrology. *Nature*, 2001, **414**(6863):509~513
- 14 Dietrich P, Krausz F, Corkum P B, Determining the absolute carrier phase of a few-cycle laser pulse. *Opt. Lett.*, 2000, **25**(1):16~18
- 15 Yudin G L, Ivanov M Y, Nonadiabatic tunnel ionization: looking inside a laser cycle. *Phys. Rev. (A)*, 2001, **64**(1):013409-1~13409-4
- 16 Paulus G G, Grasbon F, Walther H *et al.*, Absolute-phase phenomena in photoionization with few-cycle laser pulses. *Nature*, 2001, **414**(6860):182~184

## Effect of the Absolute Carrier Phase of A Few-Cycle Laser Pulses on the Generation of Attosecond Pulse

Zeng Zhinan Li Ruxin Xu Zhizhan

(Laboratory for High Intensity Optics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, The Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800)

(Received 14 January 2002; revised 26 April 2002)

**Abstract:** In the generation and measurement of attosecond pulse using a few-cycle laser pulse, the absolute phase of the laser pulse has been an important factor. The relation between the generation of attosecond pulse and the laser oscillation and how the absolute phase affects this relation are discussed. According to our calculation, the random of the absolute phase will not destroy the stability between the attosecond pulse and the laser oscillation. This result supports the direct measurement of the duration of the attosecond pulse with cross-correlation technique theoretically and gives an exact explanation for the experiment result in Ref. [13].

**Key words:** laser technique; attosecond pulse; absolute phase; laser oscillation