

利用正交偏振双色场产生孤立阿秒脉冲

孙佳楠, 尹燕奔, 陈高*

长春理工大学物理学院, 吉林 长春 130022

摘要 利用强场近似理论开展了正交偏振双色场与氦原子相互作用产生高次谐波和阿秒脉冲的理论研究。正交偏振双色场由少周期的 4 fs 钛宝石驱动脉冲激光和与它偏振方向垂直的 8 fs 倍频控制脉冲构成。研究发现,通过合理选择两束脉冲之间的相对相位,能够控制高次谐波发射过程中长、短电子轨道的选择。当相对相位调整为 1.2π 时,平台谐波主要来自短轨道电子的贡献,由于其运动时间短、波包扩散少,且没有与长轨道电子谐波产生干涉,沿驱动脉冲电场方向的高次谐波谱具有较高强度和较小调制幅度的超连续平台区,通过对第 120 次到第 180 次超连续谐波进行傅里叶变换,可产生脉宽为 54 as 的高强度孤立阿秒脉冲。所提方案对组合脉冲相对相位的选取要求并不严苛,在 0.3π 的变化范围内皆可获得脉宽较短的孤立阿秒脉冲,同时控制脉冲电场强度的变化对上述数值模拟结果的影响也很小。

关键词 超快光学; 高次谐波产生; 阿秒脉冲; 正交偏振双色场; 电子轨道

中图分类号 O436 文献标志码 A

DOI: 10.3788/AOS222118

1 引言

阿秒脉冲是目前能够获得持续时间最短的辐射脉冲,其超高的时空分辨率成为人们研究原子分子中超快电子动力学过程的重要工具。目前飞秒脉冲强激光与原子或分子相互作用产生高次谐波的方法是产生桌面阿秒脉冲辐射源的唯一有效手段^[1-5]。高次谐波产生是一种非微扰的高阶非线性过程,可以用 Corkum^[6]提出的半经典三步模型理论进行描述:首先,电子通过隧穿方式被电离;然后,电子在激光场的作用下经历了加速、减速及反向再加速的过程;最后,电子回到母离子附近复合并发射高能光子,产生高次谐波。高次谐波频谱有如下明显特征:它在低阶时迅速下降,然后出现一个谐波强度几乎不变的平台区,最后以一个尖锐的截止峰结束。截止能量可表示为 $E_{\text{cutoff}} = I_p + 3.17U_p$, 其中 $U_p = \frac{E_0^2}{4\omega_0^2}$ (E_0 为激光场的峰值振幅, ω_0 为激光场的中心频率)表示有质动力能, I_p 为电离能。

近二十年来,人们利用高次谐波产生手段在实验和理论上提出了诸多先进的技术,如少周期激光脉冲^[7-8]、双色场或多色场^[9-10]、偏振控制^[11-13]方案等,用于产生孤立阿秒脉冲。正交偏振双色场是由波长不同且偏振方向相互垂直的两束线偏振脉冲构成,其兼具偏振调制和双色场的特点,已成为控制电子运动的有效方法^[14]。2008年, Yu 等^[15]使用脉宽为 9 fs 的由 800 nm

和 1300 nm 脉冲组成的正交偏振双色场与氦原子相互作用,通过对电子运动轨道的分析证明了电离电子在垂直于光束传播方向的平面上沿弯曲轨道运动后,可以重新复合回母离子,得到 115 as 的孤立阿秒脉冲。2009年, Yu 等^[16]研究了双原子分子在少周期正交偏振双色激光场中产生高次谐波的原理,其中氮气分子产生的谐波谱与同一激光场中氩气分子产生的谐波谱相比,超连续谱带宽增大,可以得到 83 as 较短脉宽的孤立阿秒脉冲。2011年, Yao 等^[17]从理论上证明了由多周期 10 fs(脉宽)/1500 nm(波长)与 40 fs/2400 nm 组成的正交偏振双色场与氦原子相互作用,在亚周期时间尺度上电子波包动力学的快速变化将高次谐波发射限制在一个小的光谱区域,由此产生波长可调且具有窄带宽的极紫外辐射,最终得到 50 as 的孤立阿秒脉冲。2016年, Du 等^[18]采用少周期垂直偏振的 800 nm 钛宝石脉冲激光与 400 nm 倍频场叠加,并与氮气分子相互作用,研究发现通过合理选择两束脉冲的相对相位,可以控制不同原子核对高次谐波发射的贡献,明显抑制两个原子核之间的干涉,通过叠加超连续谐波可产生持续时间为 80 as 的孤立短脉冲。可见,正交偏振双色场方案是产生孤立阿秒脉冲的有效手段之一。

最近研究发现,通过合理选择正交偏振双色场中两束脉冲之间的相对相位可以控制电子的运动轨道,能够实现单一电子轨道的选择^[19-20]。2017年, Li 等^[21]利用多周期的 1800 nm 基频光和与之垂直偏振的

收稿日期: 2022-12-08; 修回日期: 2023-01-09; 录用日期: 2023-03-06; 网络首发日期: 2023-03-13

基金项目: 吉林省自然科学基金(20220101028JC)

通信作者: *chengao@cust.edu.cn

900 nm 倍频光与氦原子相互作用,通过改变双色场之间的相对相位,操控电子与母核的碰撞过程,抑制轨道间的干涉效应,由此得到多个光谱段的准连续谱,经傅里叶变换最终得到脉宽约为 360 as 的孤立阿秒脉冲。2020 年,Abbing 等^[22]在实验上利用由 40 fs/800 nm 钛宝石脉冲及其较弱的 400 nm 二次谐波组成的正交偏振双色场与氦原子相互作用,证明了正交偏振场中二次谐波的引入为电子提供了额外的横向动量分量,极大地改变了产生高次谐波的隧穿电离过程,实现了单一轨道的选择。基于以上工作,本实验通过由 4 fs/800 nm 钛宝石驱动脉冲激光及 8 fs/400 nm 倍频控制脉冲合成的少周期正交偏振双色场与氦原子相互作用来产生高次谐波和孤立阿秒脉冲。研究结果表明,当选择两束脉冲的相对相位为 1.2π 时,在驱动脉冲电场方向可得到强度较高且具有小调制幅度的超连续平台结构的高次谐波发射谱,截取平台区的超连续谐波进行傅里叶变换,得到了脉宽为 54 as 的孤立阿秒脉冲。另外,在当前选择的脉冲激光参数下,正交偏振双色场中阿秒脉冲的产生受控制脉冲电场强度变化的影响很小,对两束脉冲之间相对相位的选取要求也并不严苛。

2 理论方法

采用 Lewenstein 强场近似理论对氦原子在正交偏振双色激光场辐照下的高次谐波发射谱^[23-25]进行数值模拟。在外部场中电子的含时偶极矩^[26](若无特殊说明,本文中均采用原子单位)可以描述为

$$d_{nl}(t_i) \approx i \int_{-\infty}^{t_i} \left[\frac{\pi}{\epsilon + i(t_i - t_f)/2} \right]^{3/2} d_x^*[\mathbf{p}_{st}(t_f, t_i) - A(t_f)] \cdot \exp[-iS_{st}(\mathbf{p}_{st}, t_f, t_i)] d[\mathbf{p}_{st}(t_f, t_i) - A(t_f)] \cdot \mathbf{E}(t_f) g(t_f) dt_f + \text{c.c.}, \quad (1)$$

式中: ϵ 为无穷小的正数; $A(t_i)$ 和 $E(t_i)$ 分别为脉冲激光的矢势和电场强度; \mathbf{p}_{st} 为与电子定态相位相关的正则动量; $S_{st}(\mathbf{p}_{st}, t_f, t_i)$ 为经典作用量; t_f, t_i 分别为电离时刻和复合时刻; $d(\mathbf{p}) = i \frac{7}{2^2} \frac{(2I_p)^5}{\pi} \frac{\mathbf{p}}{(\mathbf{p}^2 + 2I_p)^3}$ 为类氢原子电偶极近似表达式; $g(t_i)$ 为基态电子的振幅,可通过对电离速率 $w_{ADK}(t)$ 积分求得。

$$\mathbf{p}_{st}(t_f, t_i) = \frac{1}{(t_i - t_f)} \int_{t_f}^{t_i} A(t) dt, \quad (2)$$

$$S_{st}(\mathbf{p}_{st}, t_f, t_i) = I_p(t_i - t_f) - \frac{1}{2} p_{st}^2(t_f, t_i)(t_i - t_f) + \frac{1}{2} \int_{t_f}^{t_i} A^2(t) dt, \quad (3)$$

$$g(t_i) = \exp \left[- \int_{-\infty}^{t_i} w_{ADK}(t) dt \right]. \quad (4)$$

$g(t_i)$ 中原子电离速率 $w_{ADK}(t)$ 可以通过

Ammosov-Delone-Krainov(ADK)模型计算^[27],相应的表达式为

$$w_{ADK}(t) = \omega_p |C_{n^*}|^2 \left(\frac{4\omega_p}{\omega_t} \right)^{2n^*-1} \exp \left(- \frac{4\omega_p}{3\omega_t} \right), \quad (5)$$

式中: $\omega_p = I_p$; $n^* = Z(I_{ph}/I_p)^{1/2}$; $\omega_t = |E(t)|/\sqrt{2I_p}$; $|C_{n^*}|^2 = 2^{2n^*}/(n^*)^{F(n^*+1)F(n^*)}$; Z 为氦原子的静电荷数; I_{ph} 为氦原子的电离能。

偶极加速度由含时偶极矩 $\mathbf{a}(t) = \frac{d^2}{dt^2} \mathbf{d}_{nl}(t)$ 给出,对偶极加速度进行傅里叶变换即可得到单个原子的高次谐波发射谱:

$$P_A(\omega) = \left| \frac{1}{t_f - t_i} \frac{1}{\omega^2} \int_{t_i}^{t_f} \mathbf{a}(t) \exp(-i\omega t) dt \right|^2. \quad (6)$$

式中: ω 为傅里叶变换频率。叠加其中的超连续波段即可合成阿秒脉冲,其形式为

$$I(t) = \left| \sum_q a_q \exp(-iq\omega t) \right|^2, \quad (7)$$

式中: q 为谐波阶次; $a_q = \int a(t) \exp(-iq\omega t) dt$, 其中积分的下限和上限分别为脉冲激光电场的起止时间。

3 结果与讨论

对两束波长不同且具有一定时间延迟的正交线偏振组合场与氦原子相互作用的高次谐波发射谱进行数值模拟。组合脉冲的电场强度为 $E(t) = E_1(t)\mathbf{x} + E_2(t)\mathbf{y}$, 其中 $E_1(t)$ 和 $E_2(t)$ 分别为钛宝石驱动脉冲及其倍频控制脉冲的电场,具体形式为

$$E_1(t) = E_x f_x(t) \cos(\omega_x t + \varphi_x + \Delta\varphi), \quad (8)$$

$$E_2(t) = E_y f_y(t) \cos(2\omega_x t + \varphi_y), \quad (9)$$

式中: E_x, ω_x 表示驱动脉冲电场的峰值振幅和频率; E_y 表示控制脉冲电场的峰值振幅; φ_x 和 φ_y 分别为驱动脉冲和控制脉冲电场的载波包络相位。正交线偏振双色场的脉冲包络函数分别为 $f_x(t) = \exp\left\{-2\ln\left[2(t + t_d/2)^2\right]/\tau_x^2\right\}$ 和 $f_y(t) = \exp\left\{-2 \times \ln\left[2(t - t_d/2)^2\right]/\tau_y^2\right\}$, 其中 τ_x 和 τ_y 分别为 x 和 y 方向电场的脉冲宽度, t_d 为两束脉冲之间的时间延迟,由 t_d 可以得出这两束脉冲之间的相对相位 $\Delta\varphi = t_d \times \omega_x$ 。所选基频驱动脉冲的参数为 $\tau_x = 4$ fs, $\omega_x = 0.057$ a.u. (800 nm), $E_x = 1.4 \times 10^{15}$ W/cm²; 倍频脉冲的相应参数为 $\tau_y = 8$ fs, $\omega_y = 0.114$ a.u. (400 nm), $E_y = 3.51 \times 10^{14}$ W/cm²; 两束脉冲的载波包络相位 $\varphi_x = \varphi_y = 0$, 脉冲之间的相对相位 $\Delta\varphi = 1.2\pi$ 。基频驱动脉冲电场强度和脉宽的选择综合考虑了谐波谱截止位置、超连续谱带宽及轨道选择等因素。

图 1(a) 的红色实线给出了具有一定时间延迟且

偏振方向相互垂直的两束线偏振脉冲合成的电场随时间的变化曲线,蓝色点划线和绿色划线分别表示 800 nm 钛宝石脉冲激光电场强度(沿 x 轴)和 400 nm 倍频激光电场强度(y 轴)随时间的变化。图 1(a)中合成电场中间部分是随时间变化的椭圆偏振场。图 1(b)中的红色实线、黑色点线是在图 1(a)的正交偏振双色场辐照下氦原子分别在 x 方向和 y 方向发射的高次谐波谱,蓝色点划线和绿色划线展示了 4 fs/800 nm 单色场和 8 fs/400 nm 单色场分别辐照氦原子时得到的高次谐波发射谱。为了确保图像清晰可辨,图 1(b)中 4 fs/800 nm 单色场的谐波效率增加了 3 个数量级,而 8 fs/400 nm 单色场的谐波效率下调了 3 个数量级。

可以明显看到,800 nm 单色场单独辐照氦原子时产生的谐波谱虽具有超连续平台的特点,但其超连续结构仅包含从第 160 次到第 190 次的 30 次谐波,400 nm 单色场的谐波谱没有出现明显的平台区。在正交偏振双色场的情况下, x 、 y 两个方向的高次谐波谱的截止位置皆为第 180 次谐波,较 800 nm 单色场谐波谱截止虽稍有提前,但其超连续谱的带宽从第 120 次延伸到第 180 次谐波,且其振荡幅度明显减小(由于 y 方向谐波谱的平台效率较 x 方向低 2~4 数量级,下面将不对其开展研究)。由此可见, x 方向谐波谱具有较高强度的超连续平台区,将非常有利于较高强度孤立阿秒脉冲的产生。

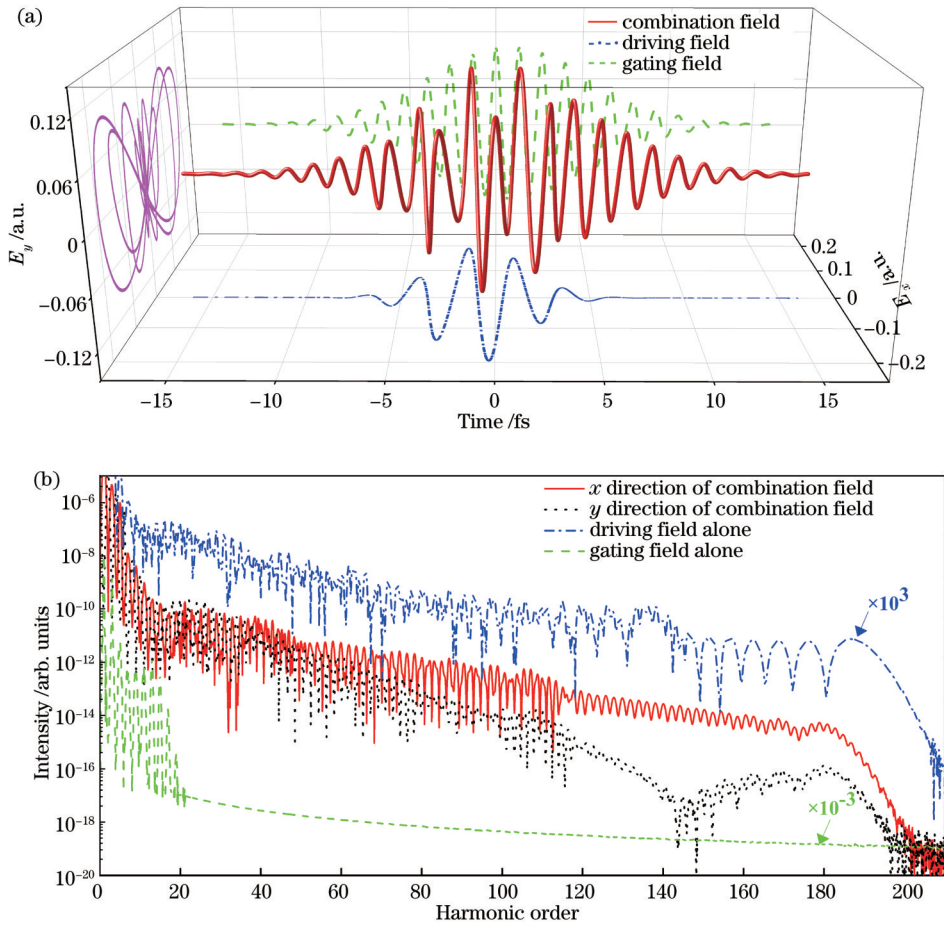


图 1 激光电场与高次谐波发射谱。(a)电场随时间的变化曲线;(b)脉冲分别辐照氦原子时产生的高次谐波谱
Fig. 1 Laser electric field and high-order harmonic emission spectra. (a) Electric field as a function of time; (b) high-order harmonic spectra from helium atom irradiated by electric fields

为说明上述高次谐波谱的特点,从半经典三步模型理论出发详细分析电子在正交偏振双色场中的动力学行为。半经典方程为

$$\ddot{x}(t) = -E_x \cos(\omega_x t + \Delta\varphi), \quad (10)$$

$$\dot{x}(t) = -\frac{E_x}{\omega_x} [\sin(\omega_x t + \Delta\varphi) - \sin(\omega_x t_0 + \Delta\varphi)], \quad (11)$$

$$x(t) = \frac{E_x}{\omega_x^2} [\cos(\omega_x t + \Delta\varphi) - \cos(\omega_x t_0 + \Delta\varphi) + \omega_x(t - t_0) \sin(\omega_x t_0 + \Delta\varphi)], \quad (12)$$

$$\ddot{y}(t) = -E_y \cos(\omega_y t), \quad (13)$$

$$\dot{y}(t) = -\frac{E_y}{2\omega_x} [\sin(2\omega_x t) - \sin(2\omega_x t_0)], \quad (14)$$

$$y(t) = \frac{E_y}{(2\omega_x)^2} [\cos(2\omega_x t) - \cos(2\omega_x t_0) + 2\omega_x(t - t_0) \sin(2\omega_x t_0)], \quad (15)$$

$$E_k = \frac{\dot{x}(t)^2 + \dot{y}(t)^2}{2}, \quad (16)$$

式中: $\Delta\varphi$ 为脉冲之间的相对相位; t_0 为初始时刻; E_k 为动能。计算过程中, 电子的初始位置在原点, 初始速度取为 0, 电离后没有考虑库仑势函数的作用, 只考虑经典电子在经典光场作用下的运动, 通过计算不同时刻电离电子的轨迹得到电子返回母体离子的能量, 最后给出电子返回母体离子并跃迁到基态时辐射谐波次数在电子电离和复合时刻的变化。

图 2(a) 所示为高次谐波次数随着电子电离时刻及复合时刻的演化, 其中黑色正方形、红色圆形点线分别表示电子在电离时刻及复合时刻的高次谐波。可以看到, 该高次谐波存在 A、B、C、D、E 5 个电离复合峰, 其中

在最高峰 B 和 C 位置附近电离的电子与母离子复合时能够产生的最大谐波次数皆为 180 次, 因此单看电离复合曲线不能得到图 1(b) 中超连续平台结构的谐波谱。接下来利用 ADK 模型计算氦原子的电离速率(填充区域面积的物理意义为电子的电离数量), 见图 2(b) 中的蓝色填充区域。可以看到, 在峰 A、B 和 E 附近电子的电离速率小, 对谐波产生的贡献小, 而在另外两个峰 C 和 D 处电子具有较大的电离速率, 分别为 0.17 和 0.20, 因此谐波谱的谐波主要由峰 C 和 D 附近电离的电子与母离子复合产生。由图 2(a) 可知: 电子在峰值位置 C (-1.5 fs) 附近电离, 在 0 fs 附近与母离子复合时可以辐射高达 180 次的谐波; 电子在峰值位置 D (0 fs) 附近电离, 在 1.5 fs 附近与母离子复合时最多可以辐射 120 次谐波。由于谐波谱上第 120 次之前的谐波存在干涉效应, 因此得到了从第 120 次到第 180 次的超连续谐波发射谱, 与图 1(b) 中的超连续谱范围一致。

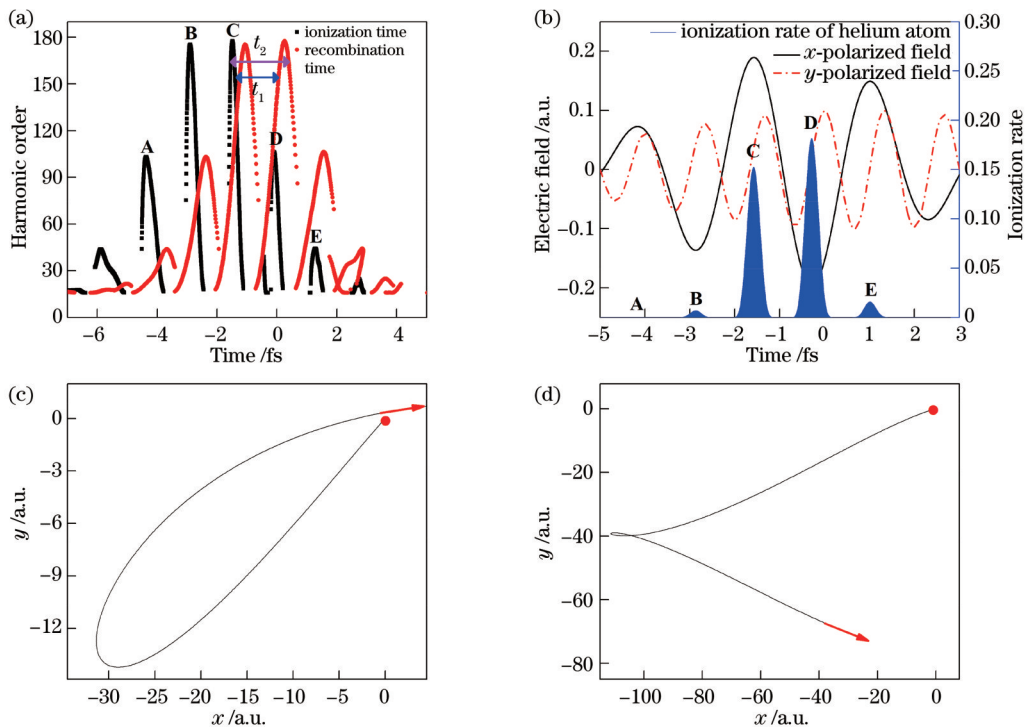


图 2 电子在正交偏振双色场中的半经典运动。(a) 高次谐波次数随电离时刻和复合时刻的变化曲线; (b) x 方向驱动脉冲电场、 y 方向控制脉冲电场及氦原子电离速率随时间的变化曲线; (c) 第 125 次谐波电子从电离到复合回母离子的二维经典运动短轨道; (d) 第 125 次谐波电子从电离到复合回母离子的二维经典运动长轨道

Fig. 2 Semi-classical motion of electrons in an orthogonally polarized two-color field. (a) Evolution of the harmonic order with ionization and recombination time; (b) variations of the amplitude of x -polarized and y -polarized fields and the ionization rate of the helium atom with time; (c) for the 125th harmonic, the short trajectory of two-dimensional classical motion of the electron from ionization to return to parent ion; (d) for the 125th harmonic, long trajectory of two-dimensional classical motion of the electron from ionization to return to parent ion

为了说明 x 方向超连续谐波谱的调制幅度较小, 分析了正交偏振双色场作用下电子的长轨道(电离时刻较早、复合时刻较晚)和短轨道(电离时刻较晚, 复合时刻较早)对谐波发射的影响, 电子的长短轨道如图 2(a) 的 t_1 和 t_2 所示。随机选取超连续谐波谱上的第 125

次谐波作为例子(与超连续平台上的其他次谐波的结果基本一致), 图 2(c)、(d) 所示分别为电子从电离到复合回母离子的短轨道和长轨道的二维经典图像, 其中电子的初始位置(电离时刻)用红色实心点表示, 红色箭头表示复合回母离子的电子运动方向。需要指出

的是,电子在椭圆偏振场中运动,受到 x 和 y 两个方向上力的驱动,其中沿 x 轴的运动主要受到 800 nm 基频电场的作用,沿 y 轴的运动主要受到 400 nm 倍频电场的作用。通常情况下,在椭圆偏振场中电离的电子重新回到母核附近的概率较小,精确地返回到初始位置的概率更小。然而,由于电子波包具有扩散效应,返回到母核周边的电子仍有一定概率与母离子重新结合。但是,若返回的电子距离其母离子位置过远,则不能通过电子波包扩散与母离子复合,因此不会发射高次谐波^[16]。从图 2(c) 可以看到,在短轨道中运动的电子可以回到母核附近,而在图 2(d) 所示长轨道中运动的电子只能回到距母离子 60 a.u. 的位置,即使考虑电子波包的扩散效应,也难有高次谐波发射。因此,第 125 次谐波主要来自短轨道的贡献。由于缺少长轨道的调制,图 1(b) 所示的超连续谐波平台结构具有较小的调制幅度。

为了进一步验证上述分析的合理性,利用小波变换方法计算正交偏振双色场辐照氦原子时高次谐波发射的时频分析图,结果如图 3 所示。可以明显看出,该时频谱仅包含短轨道谐波发射的贡献,长轨道的谐波发射峰基本消失,说明在所选择的正交偏振场参数下,短轨道在谐波产生中起主要作用,与上述电子运动轨道分析结果一致。3 个峰值 P1、P2 和 P3 的短轨道分别对应 -1.5 fs、-0.5 fs 和 1 fs 的发射峰,与图 2(a) 的 B、C 和 D 峰电离电子的复合时刻对应。由图 2(b) 可知,只有高强度的峰值 P1 和 P3 对谐波谱的产生有贡献,侧峰 P3 对应图 2(a) 中 1 fs 的发射峰,这部分辐射使谐波谱上第 120 次之前的谐波由于干涉而变得不规则,因此得到从第 120 次到第 180 次共 60 次谐波呈现超连续特点的谐波谱。

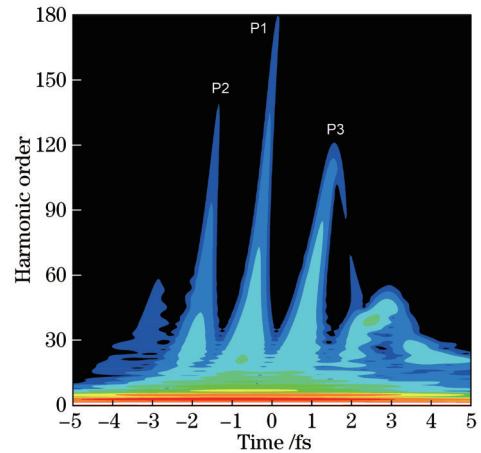


图 3 高次谐波发射的时频谱

Fig. 3 Time-frequency spectra of high-order harmonic emission

图 4 所示为由叠加频谱中整个超连续波段谐波生成的阿秒脉冲时域图,其中图 4(b) 为正交偏振场情形下生成的阿秒脉冲时域图,为了方便比较,图 4(a) 给出了 800 nm 钛宝石脉冲激光生成的阿秒脉冲时域图。从图 4(a) 可以看到,通过叠加第 160 次到第 190 次谐波,可以得到脉宽为 126 as、强度为 1.9×10^{-9} 的孤立阿秒脉冲。从图 4(b) 可以看到,通过叠加第 120 次到第 180 次谐波,可以得到脉宽为 54 as、强度为 3.2×10^{-6} 的孤立阿秒脉冲,与图 4(a) 所示的脉冲相比,该阿秒脉冲的强度提高了 3 个数量级,脉宽也明显缩短,且脉冲波形非常理想,这一结果得益于超连续平台上从第 120 次到第 180 次的 60 次谐波具有很好的相位关系。另外,图 4(b) 所示阿秒脉冲的辐射时刻与图 3 中 P1 的辐射时刻完全重合,说明这个脉冲主要来自短轨道电子的贡献。

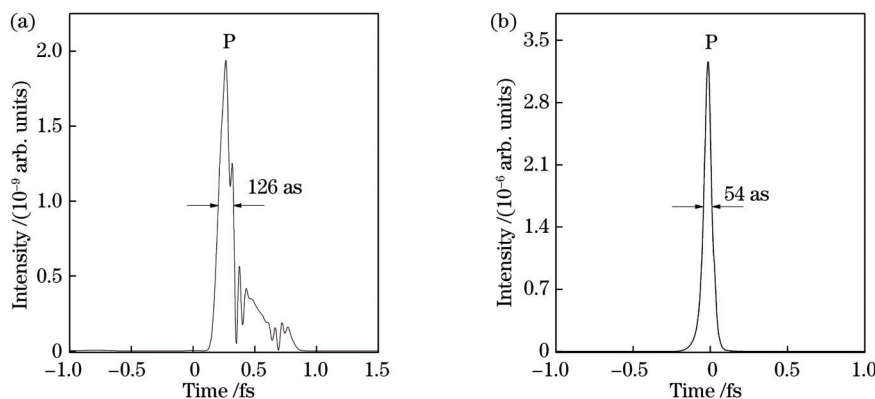


图 4 阿秒脉冲产生时域谱。(a) 800 nm 钛宝石脉冲激光;(b) 正交偏振双色场

Fig. 4 Time-domain spectra generated by attosecond pulse. (a) 800 nm laser field of Ti sapphire; (b) orthogonally polarized two-color field

在上述正交偏振双色场方案中,两束脉冲的相对相位差取为 1.2π 。数值模拟发现这些相位差的选取并不严苛,当调整两束脉冲之间的相位差在 $1.05\pi \sim 1.35\pi$ 范围内变化时都会得到具有宽带超连续的高次

谐波发射谱,截取超连续谐波谱上的谐波(第 120 次至第 180 次)进行傅里叶变换时所生成的阿秒脉冲时域谱如图 5(a) 所示,模拟计算中除 $\Delta\varphi$ 以外的参数与图 1 中相同。从图 5(a) 可以看到, $\Delta\varphi$ 取值为 $1.05\pi \sim 1.35\pi$ 时

都可以得到孤立的阿秒脉冲,但它们的脉宽会有一些变化。分别调整驱动脉冲和控制脉冲电场的载波包络相位,发现当驱动脉冲电场的载波包络相位在 $-\pi/14 \sim \pi/9$ 范围内变化,控制脉冲电场的载波包络相位在 $-\pi/4 \sim \pi/8$ 范围内变化时都可以得到超连续谱。另外,进一步分析了控制脉冲电场强度对阿秒脉冲产生的影响。控制脉冲电场强度分别调整为基频电场强度 (E_{base}) 的 20%、30%、40%、50%、60%、70%,同样可

以得到具有宽带超连续谱的高次谐波发射谱,截取整个超连续波段的谐波(第 120 次至第 180 次)进行傅里叶变换时所生成的阿秒脉冲时域谱如图 5(b) 所示。模拟计算中除了控制脉冲电场强度以外的参数均与图 1 中所用参数相同。可以看到,在所选择的控制脉冲电场强度变化范围内,都可以得到脉宽小于 60 as 的孤立阿秒脉冲,并且孤立阿秒脉冲的强度随着控制脉冲强度增加呈小幅增加趋势。

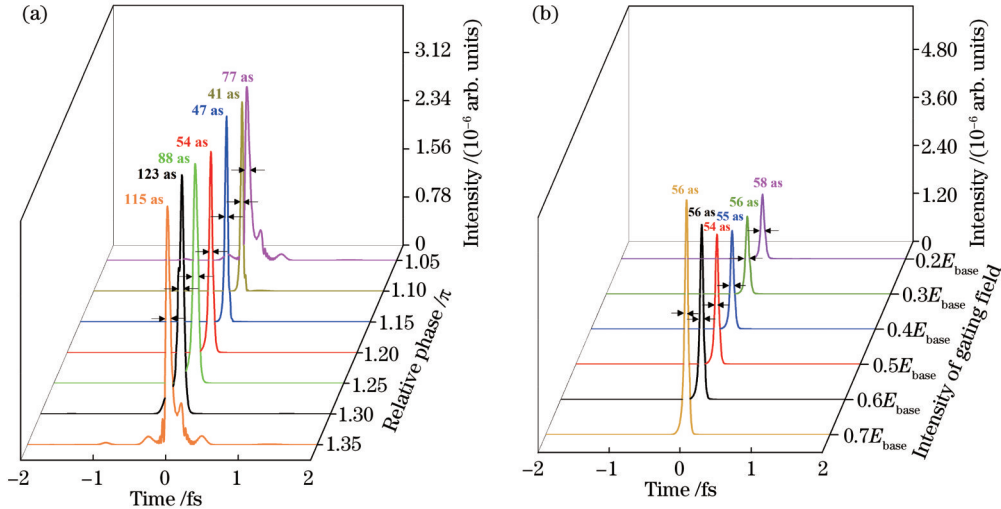


图 5 正交偏振双色场驱动下,叠加整个超连续波段的谐波(第 120 次至第 180 次)生成的阿秒脉冲时域谱。(a) 相对相位取不同值; (b) 控制场的强度取不同值

Fig. 5 Attosecond pulse time-domain spectra generated by superimposing harmonics from 120th to 180th order in the case of orthogonally polarized two-color field. (a) Relative phase $\Delta\varphi$ takes different values; (b) intensity of gating field takes different values

为了说明所选择的垂直偏振双色场所具有的优势,对具有同样参数的平行偏振双色场进行数值模拟,结果如图 6 所示,其中红色实线是正交偏振双色场辐照氦原子时产生的高次谐波谱,蓝色点划线和黑色点线表示相对相位分别为 0.4π 和 1.6π 时平行偏振双色场辐照氦原子时产生的高次谐波谱。为确保图像清晰可辨,图 6 中平行双色场的蓝色点划线和黑色点线所

示的谐波效率分别下调了 2 个和 4 个数量级。当相位为 0.4π 时,平行偏振双色场产生的高次谐波发射谱有两个平台区,从第 140 次到第 260 次的第二平台区虽具有较宽的超连续带宽,但其谐波转换效率较正交偏振双色场低 2 个数量级。当相位为 1.6π 时,平行偏振双色场虽具有与正交偏振双色场等高的谐波强度,但其超连续谱的截止频率以及带宽都低于正交偏振双色场

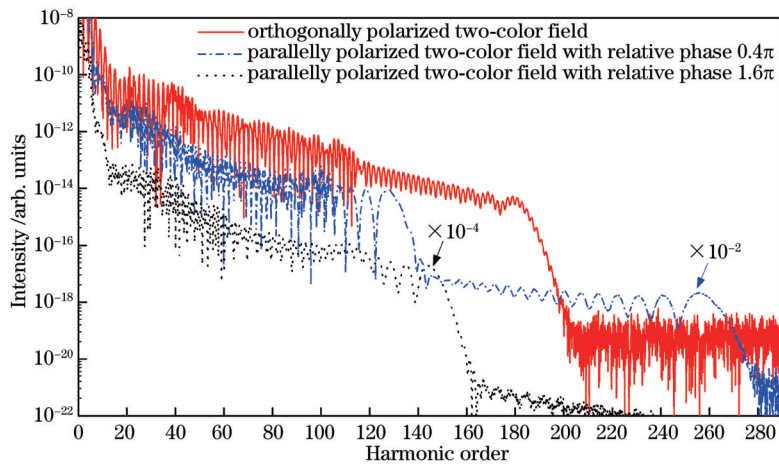


图 6 双色场辐照氦原子时产生的高次谐波谱

Fig. 6 High order harmonic spectra from helium atom irradiated by two-color field

的相应结果。

4 结 论

利用钛宝石脉冲激光(4 fs/800 nm)与其二次谐波脉冲(8 fs/400 nm)合成的正交偏振双色场与氦原子相互作用,得到了具有较小振荡幅度的宽带超连续谐波发射谱,并依据电子运动轨道分析说明了超连续谐波谱来源于运动时间短及波包扩散少的短轨道电子的单一贡献。通过对超连续谐波进行傅里叶变换得到脉宽为 54 as 的较高强度孤立阿秒脉冲。正交偏振双色场方案的优势是在单原子响应过程中即可实现单一量子轨道(短轨道)的选出,并且孤立阿秒脉冲受控制脉冲电场强度变化的影响较小,对两束脉冲之间的相对相位选取要求也并不严苛。所提正交偏振双色场方案较同样参数下平行偏振的双色场方案,在综合考虑谐波发射谱的截止位置和谐波转换效率等方面具有明显的优势。

参 考 文 献

- [1] Wu J, Zhang G T, Xia C L, et al. Control of the high-order harmonics cutoff and attosecond pulse generation through the combination of a chirped fundamental laser and a subharmonic laser field[J]. *Physical Review A*, 2010, 82(1): 013411.
- [2] Ge X L, Du H, Wang Q, et al. Selection of quantum path in high-order harmonics and isolated sub-100 attosecond generation in few-cycle spatially inhomogeneous laser fields[J]. *Chinese Physics B*, 2015, 24(2): 023201.
- [3] 曾志男, 李儒新, 谢新华, 等. 采用双脉冲驱动产生高次谐波阿秒脉冲[J]. *物理学报*, 2004, 53(7): 2316-2319.
Zeng Z N, Li R X, Xie X H, et al. High-order harmonic attosecond pulses driven by a two-pulse laser[J]. *Acta Physica Sinica*, 2004, 53(7): 2316-2319.
- [4] Du H C, Hu B T. Broadband supercontinuum generation method combining mid-infrared chirped-pulse modulation and generalized polarization gating[J]. *Optics Express*, 2010, 18(25): 25958-25966.
- [5] Drescher M, Hentschel M, Kienberger R, et al. X-ray pulses approaching the attosecond frontier[J]. *Science*, 2001, 291(5510): 1923-1927.
- [6] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization[J]. *Physical Review Letters*, 1993, 71(13): 1994-1997.
- [7] Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, et al. Single-cycle nonlinear optics[J]. *Science*, 2008, 320(5883): 1614-1617.
- [8] Christov I P, Murnane M M, Kapteyn H C. High-harmonic generation of attosecond pulses in the "single-cycle" regime[J]. *Physical Review Letters*, 1997, 78(7): 1251-1254.
- [9] Pfeifer T, Gallmann L, Abel M J, et al. Single attosecond pulse generation in the multicycle-driver regime by adding a weak second-harmonic field[J]. *Optics Letters*, 2006, 31(7): 975-977.
- [10] Mashiko H, Gilbertson S, Li C Q, et al. Double optical gating of high-order harmonic generation with carrier-envelope phase stabilized lasers[J]. *Physical Review Letters*, 2008, 100(10): 103906.
- [11] Corkum P B, Burnett N H, Ivanov M Y. Subfemtosecond pulses[J]. *Optics Letters*, 1994, 19(22): 1870-1872.
- [12] Li J, Ren X M, Yin Y C, et al. 53-attosecond X-ray pulses reach the carbon K-edge[J]. *Nature Communications*, 2017, 8(1): 1-5.
- [13] Sansone G, Benedetti E, Calegari F, et al. Isolated single-cycle attosecond pulses[J]. *Science*, 2006, 314(5798): 443-446.
- [14] Zheng Y H, Diao H H, Zeng Z N, et al. Manipulating electron recollision in a midinfrared laser field[J]. *Physical Review A*, 2015, 92(3): 033417.
- [15] Yu Y L, Song X H, Fu Y X, et al. Theoretical investigation of single attosecond pulse generation in an orthogonally polarized two-color laser field[J]. *Optics Express*, 2008, 16(2): 686-694.
- [16] Yu Y L, Xu J J, Fu Y X, et al. Single attosecond pulse generation from aligned molecules using two-color polarization gating[J]. *Physical Review A*, 2009, 80(5): 053423.
- [17] Yao J P, Cheng Y, Chen J, et al. Generation of narrow-bandwidth, tunable, coherent XUV radiation using high-order harmonic generation[J]. *Physical Review A*, 2011, 83(3): 033835.
- [18] Du H, Pan X F, Liu H F, et al. Controlling the contributions to high-order harmonic generation from different nuclei of N_2 with an orthogonally polarized two-color laser field[J]. *Chinese Physics B*, 2016, 25(9): 093202.
- [19] Brugnera L, Hoffmann D J, Siegel T, et al. Trajectory selection in high harmonic generation by controlling the phase between orthogonal two-color fields[J]. *Physical Review Letters*, 2011, 107(15): 153902.
- [20] He X, Dahlström J M, Rakowski R, et al. Interference effects in two-color high-order harmonic generation[J]. *Physical Review A*, 2010, 82(3): 033410.
- [21] Li G C, Zheng Y H, Zeng Z N, et al. Intense keV IAP generation by orthogonally polarized multicycle midinfrared two-color laser fields[J]. *Chinese Optics Letters*, 2017, 15(7): 071901.
- [22] Abbing S R, Campi F, Sajjadian F S, et al. Divergence control of high-harmonic generation[J]. *Physical Review A*, 2020, 13(5): 054029.
- [23] Keldysh L. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave[J]. *Zh Eksperim Teor Fiz*, 1965, 20(5): 1307-1314.
- [24] Faisal F M. Multiple absorption of laser photons by atoms[J]. *Journal of Physics B*, 1973, 6(4): L89-L92.
- [25] Reiss H R. Effect of an intense electromagnetic field on a weakly bound system[J]. *Physical Review A*, 1980, 22(5): 1786-1813.
- [26] Lewenstein M, Salières P, L'Huillier A. Phase of the atomic polarization in high-order harmonic generation[J]. *Physical Review A*, 1995, 52(6): 4747-4754.
- [27] Ammosov M V, Delone N B, Krainov V P. Tunnel ionization of complex atoms and atomic ions in electromagnetic field[J]. *Proceedings of SPIE*, 1986, 0664: 138-141.

Generation of Isolated Attosecond Pulse Using Orthogonally Polarized Two-Color Fields

Sun Jianan, Yin Yanben, Chen Gao*

School of Physics, Changchun University of Science and Technology, Changchun 130022, Jilin, China

Abstract

Objective Attosecond pulses are currently the shortest radiation pulses that can be obtained, and their ultra-fine temporal and spatial resolution has become an important tool to study ultra-fast electron dynamics in atoms and molecules. At present, the high-order harmonic generation from the interaction of femtosecond pulses with atoms or molecules is the only effective means to produce desktop attosecond pulse radiation sources. Thus, researchers have proposed many advanced techniques for generating isolated attosecond pulses in experiments and theories, such as few-cycle laser pulses, dual-color or multi-color fields, and polarization gating schemes. The orthogonally polarized dual-color fields, composed of two linearly polarized pulses with different wavelengths and perpendicular polarization directions, have become an effective way to control electron motion with the characteristics of polarization modulation and two-color field. By numerically simulating the interaction between helium atoms and orthogonally polarized dual-color fields composed of 4 fs/800 nm driving pulses and 8 fs/400 nm gating pulses, we obtain a 54 as high-intensity isolated attosecond pulse. The advantage of this scheme is that a single quantum trajectory (short trajectory) can be selected during a single atomic response. Additionally, the isolated attosecond pulse is less affected by the relative phase between the two pulses and by the change in the electric field intensity of the gating pulse.

Methods The high-order harmonic generation from the interaction of the orthogonally polarized two-color field with helium atom is studied numerically by the strong field approximation theory. Attosecond pulses are synthesized by superimposing the super-continuum harmonic spectra. The ionization rate of helium atoms is calculated through the ADK tunneling ionization theory model, and the classical trajectory of electrons is calculated using the semi-classical three-step model theory proposed by Corkum.

Results and Discussions An orthogonally polarized bichromatic field consisting of a 4 fs/800 nm driving pulse and an 8 fs/400 nm gating pulse interacting with helium atoms is employed to obtain a super-continuous harmonic spectrum with high intensity and small oscillation amplitude. The supercontinuum harmonic range extends from 120th to 180th order (Fig. 1), which is fully consistent with the calculation results of the semi-classical three-step model theory [Figs. 2(a) and (b)]. The electron trajectory shows that the platform harmonics mainly come from the contribution of short-orbit electrons. Due to its short motion time, less wave packet diffusion, and no interference with the harmonics generated by long-orbit electrons, the high-order harmonic spectrum in the direction of the driving pulsed electric field presents the characteristics of a super-continuous platform region with higher intensity and smaller modulation amplitude [Fig. 2(c) and (d)]. To further verify the rationality of the classic analysis, we adopt the wavelet transform method to calculate the time-frequency analysis diagram of the high-order harmonic emission when the orthogonally polarized two-color field irradiates the helium atom. The obtained results are consistent with the above supercontinuum harmonic spectrum range (Fig. 3). By superimposing the entire supercontinuum band in the spectrum, an isolated attosecond pulse with a duration of 54 as and an intensity of 3.2×10^{-6} is generated [Fig. 4(b)]. The results are three orders of magnitude stronger and shorter than the isolated attosecond pulse with a duration of 126 as and an intensity of 1.9×10^{-9} generated in a single 800 nm titanium sapphire laser pulse [Fig. 4(a)]. In addition, we find that under the current selected pulse laser parameters, the selection requirements of the relative phase among the combined pulses are not strict, and isolated attosecond pulses with shorter pulse widths can be obtained in the range of 0.3π . Additionally, controlling the change of pulse electric field intensity exerts little effect on the above numerical simulation results (Fig. 5). Furthermore, in terms of the cutoff position of the harmonic emission spectrum and harmonic conversion efficiency, the proposed orthogonally polarized bichromatic field scheme has obvious advantages over the parallel polarized bichromatic field scheme with the same parameters.

Conclusions We obtain the broadband super-continuous harmonic spectrum with small oscillation amplitude through the orthogonally polarized bichromatic field synthesized by a titanium gemstone pulse and its second harmonic pulse interacting with helium atoms. The origin of the super-continuous harmonic spectrum is explained based on analyzing the electronic motion orbit, and it is attributed to a single contribution of short-track electrons with a short motion

time and less wave packet dispersion. By performing Fourier transformation on the supercontinuum harmonic, a high-intensity isolated attosecond pulse with a duration of 54 as is obtained. The isolated attosecond pulse is less affected by the relative phase between the two pulses and by the change in the electric field intensity of the gating pulse.

Key words ultrafast optics; high-order harmonic generation; attosecond pulse; orthogonally polarized two-color field; electron trajectory