

利用脉宽 10 fs 偏振控制脉冲获得孤立阿秒脉冲*

宋浩 吕孝源 朱若碧 陈高†

(长春理工大学理学院, 长春 130022)

(2019 年 3 月 19 日收到; 2019 年 6 月 10 日收到修改稿)

利用强场近似理论开展了具有较长脉宽的偏振控制脉冲与氦原子相互作用产生高次谐波和阿秒脉冲发射的理论研究. 研究发现, 当具有 10 fs 脉冲宽度的偏振控制脉冲被用作驱动脉冲时, 只要恰当地调整两束反向旋转圆偏振脉冲峰值之间的时间延迟和强度比, 即使不附加二次谐波脉冲, 仍然可以得到效率较高且规则分布的高次谐波平台结构, 傅里叶变换后得到了 175 as 的孤立短脉冲. 该方案一方面通过调整两束脉冲峰值之间时间延迟突破了传统偏振控制方案中要求偏振门宽度为半个光学周期的限制, 另一方面通过调整两束脉冲峰值之间的强度比避免了偏振门前端多个光学周期电场引起气体介质电离不利于谐波相位匹配的弊端.

关键词: 高次谐波, 阿秒脉冲, 偏振控制方案

PACS: 42.65.Ky, 31.15.V-, 03.65.Sq, 34.50.Fa

DOI: 10.7498/aps.68.20190392

1 引言

孤立阿秒脉冲可用于跟踪和控制原子、分子及固体中电子的运动过程而备受人们关注^[1,2]. 高次谐波发射谱因具有独特的超连续平台结构成为目前实现阿秒脉冲的唯一有效手段^[3-5].

高次谐波发射是指强激光脉冲与原子、分子、团簇以及固体等介质相互作用时产生的相干辐射波^[6]. 该过程可由半经典的“三步”模型^[7]给出合理解释: 当激光场辐照原子介质时, 处在束缚态的电子隧穿由原子势和激光电场形成的势垒, 电子电离后在振荡的电场中运动, 当电场反向时, 部分电离电子回到母离子附近, 与基态复合, 放出高能光子, 且光子的能量为 $h\nu = I_p + E_{\text{kin}}$, 其中 I_p 是原子的电离势, E_{kin} 为电子与原子基态复合时具有的动能. 之前的研究表明, 所有高次谐波辐射谱均呈现如下特征行为: 最初几次谐波, 随着谐波次数增加发射效率快速下降; 接着, 在达到某次谐波后出现一个强度几乎不随谐波次数变化的区域 (称为

平台区); 最后, 在平台区末端的某一阶次谐波附近, 谐波强度又快速下降, 出现截止. 由于谐波谱呈现平台区以及平台区谐波的独特优点, 使它成为获得极紫外及软 X 射线波段阿秒脉冲相干辐射源的重要手段^[8].

当前基于高次谐波发射获得孤立阿秒脉冲的研究主要有以下几种技术: 太赫兹场方案^[9]、偏振控制方案^[4,10,11]、少周期方案^[12]、电离控制方案^[13]、阿秒灯塔方案^[6]以及最近提出的相对论等离子体镜方案^[14]. 迄今为止, 瑞士苏黎世联邦理工学院 Gaumnitz 等^[15]已实现了最短 43 as 孤立短脉冲的产生.

偏振控制方案主要是利用高次谐波强度对激光偏振状态敏感的特性获得孤立阿秒脉冲产生. 基于偏振脉冲的椭圆率为 0.2 时的高次谐波强度比线偏振光情形减少一个数量级, Corkum 等^[10]提出控制驱动脉冲光场在半个光学周期的时间窗口里是线性偏振, 而其余时间都是椭圆偏振的椭圆率随时间变化的激光场产生高次谐波, 最终获得了单一阿秒脉冲. 事实上, 该驱动光场可由具有一定时

* 吉林省基础研究计划基金 (批准号: 20170101046JC) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: chengao@cust.edu.cn

间延迟的两束反旋圆偏振光合成. 实验上, 通常由全波片和零级四分之一波片实现偏振控制方案中的驱动光场. 当全波片光轴与入射线偏振脉冲光轴夹角为 45° 时, 入射线偏振脉冲通过该波片后分成两束垂直偏振且强度相等的线偏振脉冲, 两束脉冲之间时间延迟由全波片厚度和折射率控制. 若零级四分之一波片光轴与全波片光轴夹角为 45° 时, 具有一定时间延迟的两束等强度线偏振脉冲转换为两束等强度反旋圆偏振脉冲, 若合理地调整两束脉冲峰值之间的时间延迟, 可在交叠区产生具有线性偏振特点的半个光学周期的偏振门.

相比于阿秒脉冲产生的其他方案, 偏振控制方案的优势是在实验上较易操作, 且谐波辐射仅发生在偏振门内的线性半个光学周期内, 因此可得到在整个平台区及截止位置附近都连续的谐波谱, 满足阿秒脉冲产生对超宽光谱带宽的要求. 然而, 该方案中为了获得较强的孤立阿秒脉冲, 需采用短脉宽的驱动脉冲获得半个光学周期的偏振门. Chang^[16] 利用脉宽 5 fs 的驱动脉冲及 5 fs 的时间延迟在理论上得到了 58 as 的孤立短脉冲. 然而, 相比于 5 fs 超短脉冲的产生, 具有较长脉冲宽度的飞秒脉冲在实验中较易实现, 且脉冲强度也较强. 因此, 有必要开展利用较长脉宽的偏振控制脉冲方案获得孤立阿秒脉冲的研究. 当前, 对于具有较长脉冲宽度的偏振控制脉冲, 为了确保偏振门的宽度为线性半个光学周期, 两束反向旋转圆偏振脉冲峰值之间的时间延迟应大幅增加, 这导致了偏振门外电场强度远高于偏振门内的场强, 因此得到的谐波谱效率很低. 为了克服这个困难, Zhao 等^[17] 在 2012 年提出了双光学控制方案, 即在脉宽为 7 fs 偏振控制脉冲基础上附加一束二次谐波脉冲, 从而将偏振门的宽度从半个周期释放到一个光学周期, 最终得到了 67 as 的孤立短脉冲. 然而, 二次谐波脉冲的加入增加了实验操作的困难.

本文说明了当采用具有 10 fs 脉冲宽度的偏振控制脉冲时, 只要恰当地调整两束反向旋转圆偏振脉冲之间的时间延迟和强度比, 即使不附加二次谐波脉冲, 仍然可以得到有效孤立阿秒脉冲的产生. 调整两束脉冲峰值之间时间延迟的目的在于将偏振门宽度从半个光学周期调整到接近一个周期, 偏振门宽度释放使得偏振门内合成脉冲电场强度增加到与偏振门外的场强接近一致, 克服了激光场能量大量损失导致谐波效率低的弊端. 另外, 在通常

偏振控制方案研究中, 偏振门内用以产生谐波的电场宽度为半个光学周期, 其中前 1/4 周期电场负责谐波产生过程中原子的电离, 后 1/4 周期电场负责电离电子与母离子的复合. 当偏振门的宽度调整到接近一个光学周期时, 其中前半光学周期电场负责谐波产生过程中原子的电离, 然而研究发现, 这半个光学周期的前 1/4 周期电场仅对 40 阶次附近谐波产生有贡献, 平台及截止谐波的产生仍然来自于后 1/4 周期电场, 因此通过调整两束脉冲峰值之间的时间延迟有望得到规则平台且效率较高的谐波谱. 两束反旋圆偏振脉冲峰值电场之间强度比的调整不仅可以使偏振门前端电场峰值强度低于后端电场强度, 而且调整后偏振门前端的光学周期数也有所减少, 这将避免具有较长脉宽驱动脉冲因偏振门前端多个光学周期电场引起气体介质电离不利于谐波相位匹配的弊端, 同时也确保了偏振门内有足够电子电离实现有效高次谐波发射.

2 理论方法

高次谐波产生包括单原子响应和谐波在介质中传播两个过程. 单原子响应是指单个原子在激光电场作用下的高次谐波发射, 而介质中所有原子总的高次谐波发射可以通过传播方程给出. 考虑传播过程只在增强阿秒脉冲和高次谐波发射强度及消除长轨迹等方面存在影响, 因此本文研究忽略传播过程. 本文利用 Lewenstein 强场近似理论模型^[18–20] 数值模拟了 10 fs 偏振控制脉冲辐照下氦原子的高次谐波发射, 以此探究用较长脉宽的偏振控制方案获得孤立阿秒脉冲的研究. 由于激光脉冲的椭圆率随时间变化, 因此需要分别计算 x, y 两个不同方向上的偶极矩, 沿 y 方向的谐波谱强度远低于沿 x 方向的谐波谱强度, 这一点已经在之前的研究中得到验证. 因此只需计算出 x 方向上的偶极矩, 其具体表达式如下^[21](除非另有说明, 否则本文均采用原子单位):

$$\begin{aligned}
 x(t) \approx & i \int_{-\infty}^t dt' \left[\frac{\pi}{\epsilon + i(t-t')/2} \right]^{3/2} \\
 & \cdot d_x^* [\mathbf{p}_{\text{st}}(t', t) - \mathbf{A}(t)], \\
 & \cdot \exp[-iS_{\text{st}}(\mathbf{p}_{\text{st}}, t', t)] \\
 & \times \mathbf{d}[\mathbf{p}_{\text{st}}(t', t) - \mathbf{A}(t')] \\
 & \cdot \mathbf{E}(t') g(t) + \text{c.c.}, \quad (1)
 \end{aligned}$$

式中 ε 是一个正的小数, $\mathbf{E}(t)$ 是脉冲电场, $\mathbf{A}(t)$ 是它的相关矢势. 基态布居数

$$g(t) = \exp \left[- \int_{-\infty}^t \omega_{\text{ADK}}(t'') dt'' \right],$$

其中, 电离速率 $\omega_{\text{ADK}}(t'')$ 由 Ammosov-Delone-Krainov (ADK) 理论计算 [22].

电子的准经典作用表示为

$$S_{\text{st}}(\mathbf{p}_{\text{st}}, t', t) = (t - t') I_p - \frac{1}{2} p_{\text{st}}^2(t', t) (t - t') + \frac{1}{2} \int_{t'}^t A^2(t'') dt'', \quad (2)$$

这里 I_p 是氦原子的电离势, \mathbf{p}_{st} 是与电子定态相位相关的正则动量, 其表示为

$$\mathbf{p}_{\text{st}}(t', t) = \frac{1}{t - t'} \int_{t'}^t \mathbf{A}(t'') dt''. \quad (3)$$

最后, 我们给出了 (1) 式中基态和连续态之间的无场偶极跃迁矩阵元

$$d_x[\mathbf{p}_{\text{st}}(t', t) - \mathbf{A}(t)] = i \frac{2^{7/2}}{\pi} (2I_p)^{5/4} \frac{p_{\text{st},x}(t', t) - A_x(t)}{\left\{ [p_{\text{st},x}(t', t) - A_x(t)]^2 + [p_{\text{st},y}(t', t) - A_y(t)]^2 + 2I_p \right\}^{3/4}}. \quad (4)$$

同样, 我们也可以给出

$$\mathbf{d}[\mathbf{p}_{\text{st}}(t', t) - \mathbf{A}(t')] \mathbf{E}(t') = i \frac{2^{7/2}}{\pi} (2I_p)^{5/4} \frac{[p_{\text{st},x}(t', t) - A_x(t')] E_x(t') + [p_{\text{st},y}(t', t) - A_y(t')] E_y(t')}{\left\{ [p_{\text{st},x}(t', t) - A_x(t')]^2 + [p_{\text{st},y}(t', t) - A_y(t')]^2 + 2I_p \right\}^{3/4}}. \quad (5)$$

通过傅里叶变换偶极矩, 可以得到来自单个原子的谐波谱. 需要指出的是, 本文考虑了高于 30 次的谐波辐射, 30 次谐波的光子能量为 46 eV, 明显大于氦原子的电离势. 根据文中采用的激光脉冲参数可计算出偏振门中心的 Keldysh 参数 $\gamma = 0.54 < 1$, 可见 Lewenstein 模型在这些给定条件下有效.

通过叠加谐波频谱上超连续分布谐波, 可得到

$$\xi(t) = \frac{\left| \exp \left\{ -2 \ln 2 [(t + T_d/2) / \tau_p]^2 \right\} - \exp \left\{ -2 \ln 2 [(t - T_d/2) / \tau_p]^2 \right\} \right|}{\exp \left\{ -2 \ln 2 [(t + T_d/2) / \tau_p]^2 \right\} + \exp \left\{ -2 \ln 2 [(t - T_d/2) / \tau_p]^2 \right\}}. \quad (9)$$

对于高于 21 次的谐波, 当椭圆率从 0 增加到 0.2 时, 谐波强度下降超过一个数量级. 因此, 阿秒

超短阿秒脉冲的产生

$$I(t) = \left| \sum_q a_q e^{iq\omega t} \right|^2, \quad (6)$$

其中 $a_q = \int a(t) e^{-iq\omega t} dt$.

3 结果与分析

在我们的数值模拟中, 由左旋和右旋圆偏振高斯脉冲叠加形成的椭圆率随时间变化的偏振控制脉冲电场形式为 $\hat{E}(t) = E_{\text{drive}}(t) \hat{x} + E_{\text{gate}}(t) \hat{y}$, 其中驱动脉冲和控制脉冲电场形式依次为

$$E_{\text{drive}} = \frac{E_0}{\sqrt{2}} \left(\sin\theta \exp \left\{ -2 \ln 2 [(t + T_d/2) / \tau_p]^2 \right\} + \cos\theta \exp \left\{ -2 \ln 2 [(t - T_d/2) / \tau_p]^2 \right\} \right) \cdot \cos(\omega t + \varphi), \quad (7)$$

$$E_{\text{gate}} = \frac{E_0}{\sqrt{2}} \left(\sin\theta \exp \left\{ -2 \ln 2 [(t + T_d/2) / \tau_p]^2 \right\} - \cos\theta \exp \left\{ -2 \ln 2 [(t - T_d/2) / \tau_p]^2 \right\} \right) \cdot \sin(\omega t + \varphi), \quad (8)$$

这里 E_0 和 ω 分别是入射脉冲激光的电场强度和载波频率, T_d 是两束脉冲峰值之间的时间延迟, τ_p 是脉冲宽度, φ 是载波包络相位. 角度 θ 是全波片光轴与入射线偏振脉冲光轴之间的夹角, 当 $\theta = 45^\circ$ 时, 偏振控制方案中两束反旋圆偏振脉冲的峰值电场强度比为 1, 我们称其为对称偏振控制方案, 本文中研究偏振门宽度效应时采用了此方案. 当 θ 偏离 45° 时, 两束反旋圆偏振脉冲的峰值电场强度不再相等, 此情形称为不对称偏振控制方案. 在不对称偏振控制方案中, 若 $\theta < 45^\circ$, 右旋圆偏振光的峰值场强度低于左旋圆偏振光的峰值场强度, 即偏振门前端电场强度低于后端电场强度, 本文中考虑两束脉冲峰值之间强度比较效应时采用了不对称偏振控制方案.

在对称偏振控制方案中, 合成脉冲电场的含时椭圆率为

脉冲仅在 $t = t_c$ (t_c 为完全线偏振时刻) 附近且椭圆率 $\xi \leq 0.2$ 的时间范围内产生, 该时间范围称为

偏振门宽度, 其表达式为

$$\delta t_G = \frac{\xi_{th} \tau_p^2}{\ln 2 T_d}, \quad (10)$$

式中阈值椭圆率 ξ_{th} 取值小于 0.2. 从 (10) 式可以看到偏振门宽度与两束圆偏振脉冲峰值之间的时间延迟 T_d 及入射脉冲的脉宽 τ_p 有关. 通常情况, 为了获得孤立阿秒脉冲, 偏振门宽度应该短至 $T_0/2$ (T_0 是入射脉冲光场的一个光学周期), 因此

可通过增加两束脉冲峰值之间的时间延迟以及采用短脉宽超短脉冲两种方法减少偏振门宽度.

实验中人们通常选取脉宽为 5 fs 的钛宝石脉冲激光作为驱动脉冲, 为了确保偏振门的宽度为半个光学周期, 两束脉冲峰值之间的时间延迟应取为 5.5 fs, 此时 $T_d \approx \tau_p$, 偏振门内合成电场的峰值振幅 $E(t_c) = \sqrt{2}E_0$, 很显然, 偏振门内合成脉冲电场强度高于入射驱动脉冲的电场强度, 图 1(a) 和

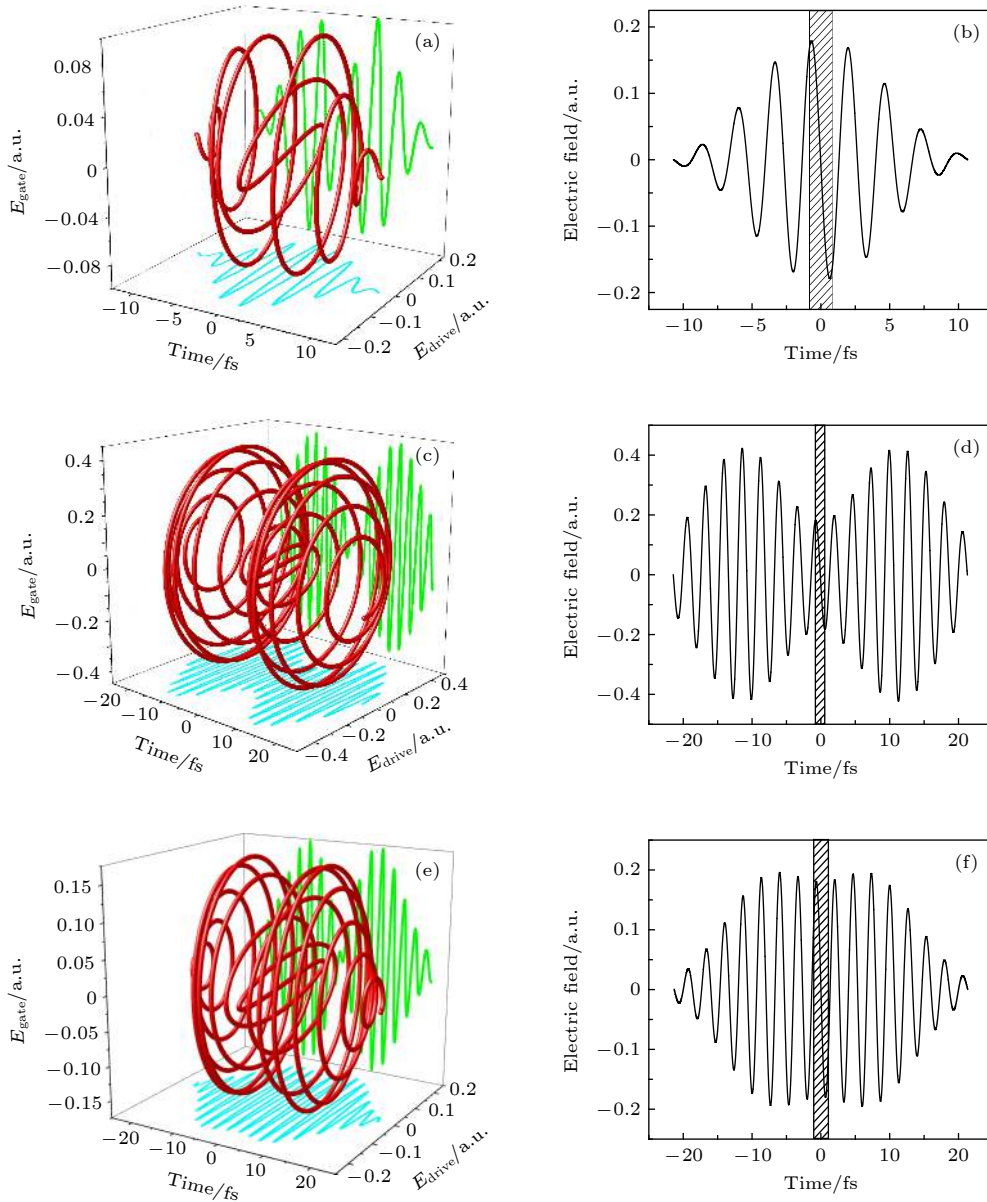


图 1 偏振控制脉冲总电场 (红色曲线)、控制场 (绿色曲线) 及驱动场 (蓝色曲线) 随时间变化三维图 (a) 5 fs 脉宽和 5 fs 时间延迟; (c) 10 fs 脉宽和 22.5 fs 时间延迟; (e) 10 fs 脉宽和 15 fs 时间延迟; (b), (d), (f) 显示了与 (a), (c), (e) 图相对应的驱动脉冲电场随时间变化曲线图 (阴影部分是偏振门)

Fig. 1. Three dimensional diagrams for the total electric field (red), gating field (green), and driving field (blue) in polarization gating pulse as a function of time: (a) 5 fs pulse width and 5 fs time delay; (c) 10 fs pulse width and 22.5 fs time delay; (e) 10 fs pulse width and 15 fs time delay. Panels (b), (d), (f) correspond to the driving electric field versus time in panels (a), (c), (e), respectively (shaded portion is polarization gate).

图 1(b) 分别展示了偏振控制脉冲总电场及驱动脉冲电场随时间变化的曲线图, 图 1(b) 中的阴影部分是偏振门的位置. 当选取脉宽为 10 fs 的偏振控制脉冲辐照时, 为了确保偏振门的宽度为半个光学周期, 两束脉冲峰值之间的时间延迟应取为 22.5 fs , 此时 $T_d \gg \tau_p$, 偏振门内合成电场的峰值振幅为 $E(t_c) = E_0 \exp\left[-\frac{\ln 2}{2} \left(\frac{T_d}{\tau_p}\right)^2\right]$, 明显低于每一束脉冲的峰值场振幅, 图 1(c) 和图 1(d) 分别展示了该情形下偏振控制脉冲总电场及驱动脉冲电场随时间的变化, 图 1(d) 中的阴影部分是偏振门的位置. 可以看到, 偏振门外的场强远远高于偏振门内的场强, 激光场能量损失将导致得到的谐波谱转换效率很低. 然而, 若将两束反旋圆偏振脉冲峰值之间的时间延迟减小到 15 fs, 偏振门的宽度将从半个光学周期调整到接近一个光学周期, 如图 1(e) 和图 1(f) 所示, 此时偏振门内合成脉冲电场强度与偏振门外的场强接近一致, 显然偏振门外激光电场能量损失导致谐波谱转换效率低的问题将得到缓解.

图 2 中的红色实线给出了脉宽为 10 fs 且偏振门宽度接近一个光学周期时的偏振控制脉冲与氦原子相互作用得到的高次谐波发射谱. 数值模拟过程中入射钛宝石驱动脉冲的载波频率 ω 为 0.057 , 脉冲的载波包络相位 $\varphi = \pi/2$. 两束脉冲峰值之间的时间延迟 T_d 取为 15 fs, 对应的偏振门宽度为 $0.82 T_0$. 当输入脉冲的峰值场振幅为 0.35 a.u. 时, 偏振门内的峰值场幅则为 0.18 a.u. . 从图 2 可以看到, 谐波频谱的截止(频率)位置达到 158 次谐波, 且整个平台区及截止位置都呈现了规则分布的特点. 为了比较, 我们也给出了脉宽为 10 fs 且偏振门宽度为半个光学周期时的偏振控制脉冲与氦原子相互作用得到的高次谐波发射谱, 如图 2 中的黑色实线所示. 计算中脉冲的载波包络相位仍取为 $\varphi = \pi/2$, 两束脉冲峰值之间的时间延迟 T_d 取为 22.5 fs , 对应的偏振门宽度为 $0.5 T_0$. 当输入脉冲的峰值场振幅为 0.35 a.u. 时, 偏振门内的峰值场幅则为 0.09 a.u. . 从图 2 可以看到, 谐波频谱的截止频率为 55 次, 而且具有规则结构的平台宽度仅为 25 次, 特别注意的是谐波平台的效率低了 2 个数量级. 如果调整偏振门内峰值场振幅为 0.18 a.u. , 此时需要入射驱动脉冲的峰值场振幅达到 0.84 a.u. . 在该参数下, 偏振门到达前原子中的电子已全部电离, 不能得到高次谐波发射谱. 可见, 若想利用具

有较长脉冲宽度的偏振控制脉冲方案获得有效孤立阿秒脉冲的产生, 应合理地调整两束反向旋转圆偏振脉冲峰值之间的时间延迟.

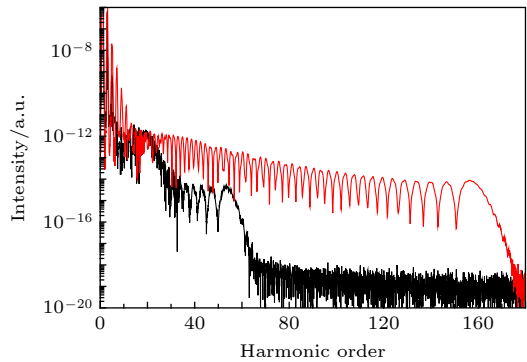


图 2 脉宽为 10 fs 的偏振控制脉冲与氦原子相互作用得到的高次谐波发射光谱, 其中黑线表示 $\delta t_G = T_0/2$ 的偏振控制脉冲, 红线表示 $\delta t_G = 0.82 T_0$ 的偏振控制脉冲

Fig. 2. High order harmonic generation from helium atom in a polarization gating pulse with 10 fs pulse width. The black curve is from the polarization gate width $\delta t_G = \frac{T_0}{2}$, the red curve is from the polarization gate width $\delta t_G = 0.82 T_0$.

为了解释偏振门宽度接近一个光学周期时谐波平台及截止位置呈规则分布的特点, 利用半经典三步模型理论计算了偏振门内不同时刻电离电子的复合时刻及该时刻电子具有的动能, 如图 3 所示. 图中黑色和红色实线分别给出了谐波随着电离时刻以及复合时刻的变化曲线. 根据半经典理论, 阿秒脉冲辐射在驱动激光场的每个光学周期内发生两次. 如果将偏振门宽度调整为一个光学周期, 由于两次谐波辐射之间的干涉效应, 应该获得不规则的高次谐波频谱. 但从图 3 可以看出, 若将偏振

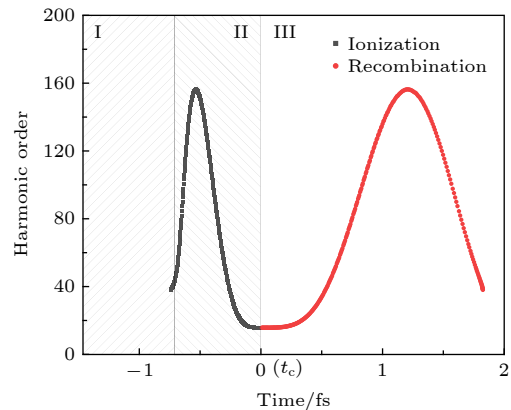


图 3 谐波阶次随电离时刻及复合时刻的变化关系图

Fig. 3. Evolution of the harmonics with ionization (black) and recombination (red) time.

门中心 t_c 之前半个光学周期分成前后两个 $1/4$ 周期, 那么前 $1/4$ 周期 (区域 I) 电离的电子仅对 40 次左右的谐波有贡献, 平台和截止区谐波产生仍然主要来源于后 $1/4$ 周期电离电子的贡献 (区域 II), 因此我们将偏振门宽度增加到 0.82 个光学周期时, 仍然能够获得仅由单一长短轨迹构成的规则平台结构. 这里长轨迹是指在电场中先电离后复合的电子运动轨迹, 短轨迹指在电场中后电离而先复合的电子运动轨迹.

偏振门宽度不同导致谐波谱平台转换效率差

别可以通过原子电离概率得到合理解释. 对于脉宽为 10 fs 的偏振控制脉冲, 偏振门宽度增加减小了两束脉冲峰值之间的时间延迟, 进而使偏振门内的合成电场强度大幅增加, 减少了电场在偏振门外的损失, 正如图 1(f) 所展示的 (对比图 1(d)). 很显然, 当该合成脉冲辐照氦原子时, 原子的电离概率将发生明显改变, 正如图 4(b) 中的红色实线所展示. 为了方便分析, 图中也展示了驱动脉冲电场强度 (黑色曲线) 以及偏振控制脉冲的椭圆率 (蓝色曲线) 随时间的变化曲线. 可以看到, 在偏振门内第

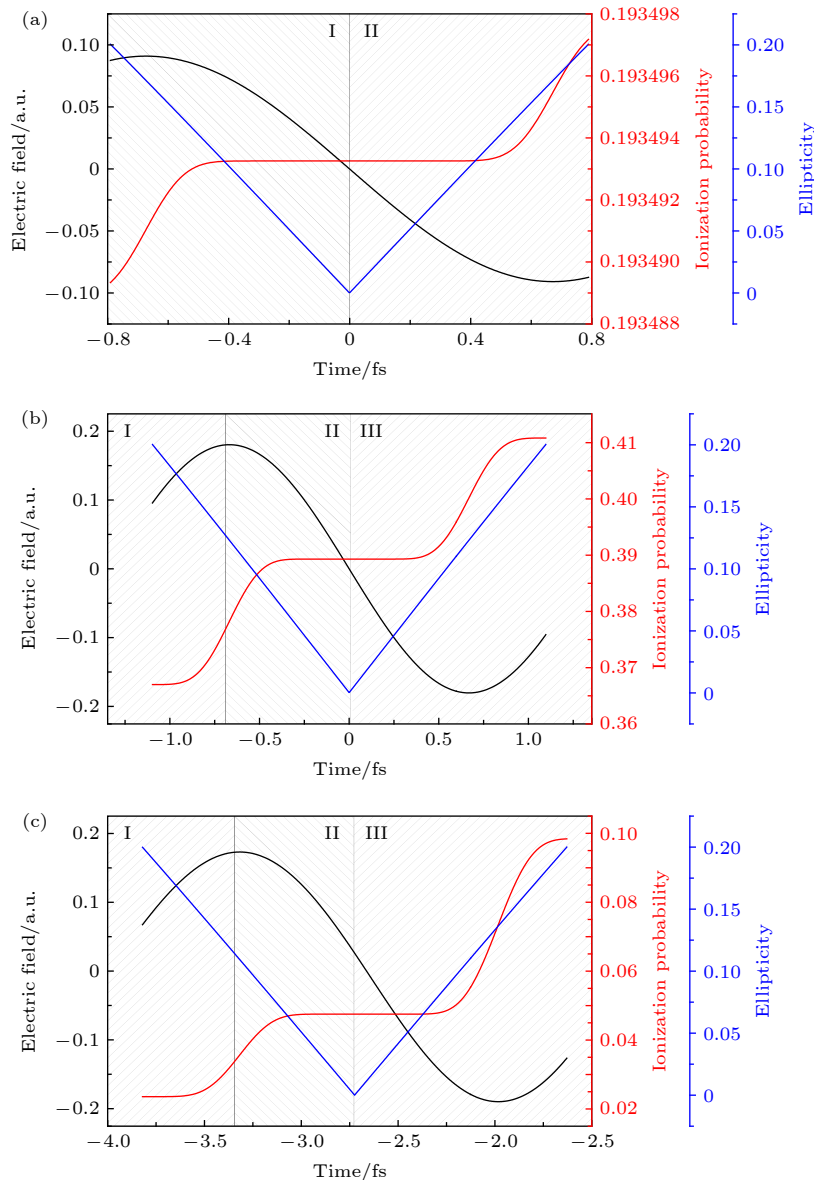


图 4 偏振门内原子电离概率 (红线)、驱动脉冲电场 (黑线)、椭圆率 (蓝线) 随时间变化曲线 (a) 对称偏振控制方案 $\delta t_G = 0.5 T_0$; (b) 对称偏振控制方案 $\delta t_G = 0.82 T_0$; (c) 不对称偏振控制方案 $\delta t_G = 0.82 T_0$

Fig. 4. Atomic ionization probability (red line), electric field of driving pulse (black line), ellipticity (blue line) in the polarization gate as function of time: (a) Symmetric polarization gating scheme $\delta t_G = 0.5 T_0$; (b) symmetric polarization gating scheme $\delta t_G = 0.82 T_0$; (c) asymmetric polarization gating scheme $\delta t_G = 0.82 T_0$.

二个 1/4 周期 (图 4(b) 中的 II 区) 开始时原子的电离概率为 37.69%, 在偏振门中心原子的电离概率为 38.92%, 偏振门内用以产生谐波的有效原子电离概率为 1.23%, 远超偏振门为半个光学周期时的有效原子电离几率 0.004%, 如图 4(a) 中的红色实线所示. 因此, 偏振门宽度从半个光学周期调整到接近一个光学周期后高次谐波发射谱的效率提高了 2 个数量级.

综上所述, 当采用具有较长脉宽的偏振控制脉冲方案时, 通过合理调整偏振门宽度可以得到在整个平台区和截止位置都规则分布的高次谐波发射谱, 然而, 该方案中, 我们发现在偏振门到达之前, 原子的电离概率已经高达 36.69%, 这部分电离不仅不利于谐波产生过程中的相位匹配, 而且由于原子基态布居大幅衰退影响偏振门内高次谐波产生的效率. 接下来尝试调整两束反向旋转圆偏振脉冲峰值之间强度比使偏振门前端的电场强度小于偏振门后端电场强度 (即前面所述的不对称偏振控制方案), 避免具有较长脉宽驱动脉冲因偏振门前端多个光学周期电场引起气体介质电离衰退原子基态布居的弊端, 从而确保偏振门内有足够电子电离实现较高效的高次谐波发射.

图 5(a) 展示了全波片光轴与入射线偏振脉冲光轴之间偏振角 θ 为 20° 时的不对称偏振控制脉冲电场随时间变化曲线图, 可以看到偏振门前端的峰值电场强度明显小于偏振门后端的峰值电场强度, 而且, 偏振门中心的位置已经从 0 前移到 -2.7 fs, 明显减小了偏振门前端光学周期数. 图 5(b) 展示了该不对称偏振控制脉冲与氦原子相互作用得到的高次谐波发射谱. 计算中选择的脉冲激光参数同对称偏振控制脉冲一致. 偏振门内的电场峰值强度为 0.18 a.u., 两束脉冲峰值之间的时间延迟为 15 fs, 两束脉冲的脉宽为 10 fs. 为了比较, 我们也给出了对称偏振控制脉冲与氦原子相互作用得到的高次谐波发射谱, 如图 5(b) 中的红色实线所示. 可以看到, 利用不对称偏振控制脉冲得到的谐波谱强度明显高于对称偏振控制脉冲情形, 且谐波谱截止位置从 156 次延展到了 172 次. 下面从原子电离概率分布说明谐波谱效率提高的原因. 图 4(c) 给出了不对称偏振控制脉冲作用下原子的电离概率随时间变化曲线图, 可以看到在偏振门的第二个 1/4 周期 (图 4(c) 中的 II 区) 开始时原子的电离概率为 3.37%, 偏振门中心原子的电离概率为 4.75%, 有效原子电离概率达到 1.38%, 高于对称偏振控制方案中的有效电离概率 1.23%. 更重要的是, 在不对称偏振控制方案中, 原子的低电离概率有利于谐波在介质传播过程中满足相位匹配条件.

为了说明图 5(b) 中谐波谱平台及截止位置呈现规则分布特点的原因, 在图 6 中利用小波变换方法计算了不对称偏振控制脉冲辐照下高次谐波发射的时频分析图像. 图中平台上的谐波主要由长短两个量子轨迹构成, 长轨迹对应于 -2 fs 附近时刻的发射峰, 短轨迹对应于 -1 fs 附近时刻的发射峰, 两个轨迹干涉后得到了规则分布的谐波谱平台结构. 但我们也发现在 0.5 fs 位置附近有 50—75 次谐波的辐射, 这部分谐波主要来自于在偏振门后半光学周期电离的电子回到离核较远的地方复合得到的, 其低效率使得谐波谱上 50—75 次谐波有

高次谐波发射谱. 计算中选择的脉冲激光参数同对称偏振控制脉冲一致. 偏振门内的电场峰值强度为 0.18 a.u., 两束脉冲峰值之间的时间延迟为 15 fs, 两束脉冲的脉宽为 10 fs. 为了比较, 我们也给出了对称偏振控制脉冲与氦原子相互作用得到的高次谐波发射谱, 如图 5(b) 中的红色实线所示. 可以看到, 利用不对称偏振控制脉冲得到的谐波谱强度明显高于对称偏振控制脉冲情形, 且谐波谱截止位置从 156 次延展到了 172 次. 下面从原子电离概率分布说明谐波谱效率提高的原因. 图 4(c) 给出了不对称偏振控制脉冲作用下原子的电离概率随时间变化曲线图, 可以看到在偏振门的第二个 1/4 周期 (图 4(c) 中的 II 区) 开始时原子的电离概率为 3.37%, 偏振门中心原子的电离概率为 4.75%, 有效原子电离概率达到 1.38%, 高于对称偏振控制方案中的有效电离概率 1.23%. 更重要的是, 在不对称偏振控制方案中, 原子的低电离概率有利于谐波在介质传播过程中满足相位匹配条件.

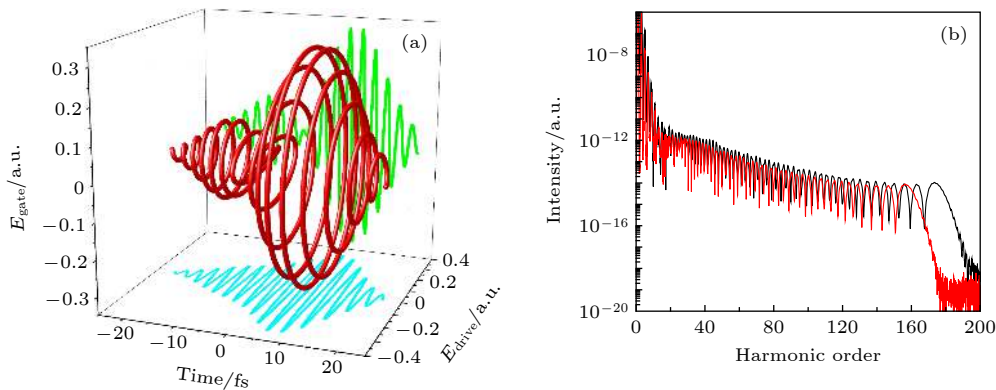


图 5 (a) 不对称偏振控制脉冲总电场 (红色曲线)、控制场 (绿色曲线) 及驱动场 (蓝色曲线) 随时间变化三维图; (b) 高次谐波发射谱

Fig. 5. (a) Three-dimensional diagrams for the total electric field (red curve), gating field (green curve) and driving field (blue curve) in the asymmetric polarization gating pulse as a function of time; (b) high harmonic emission spectra.

轻微的调整, 通过放大图 5(b) 中的黑色实线可以看到这一现象.

图 7(a) 和图 7(b) 分别展示了不对称和对称偏振控制方案中叠加谐波谱上呈规则分布谐波生成的阿秒脉冲时域图. 偏振角为 20° 时, 通过叠加 80—172 次谐波, 得到了一个阿秒脉冲链, 如图 7(a) 所示. 第一个阿秒脉冲 a 对应着谐波发射的短轨

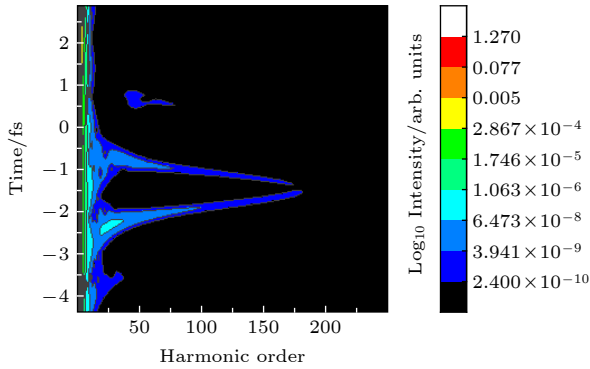


图 6 不对称偏振控制方案中谐波发射的时频分析图像
Fig. 6. Time-frequency analysis of harmonic emission in asymmetric polarization gating scheme.

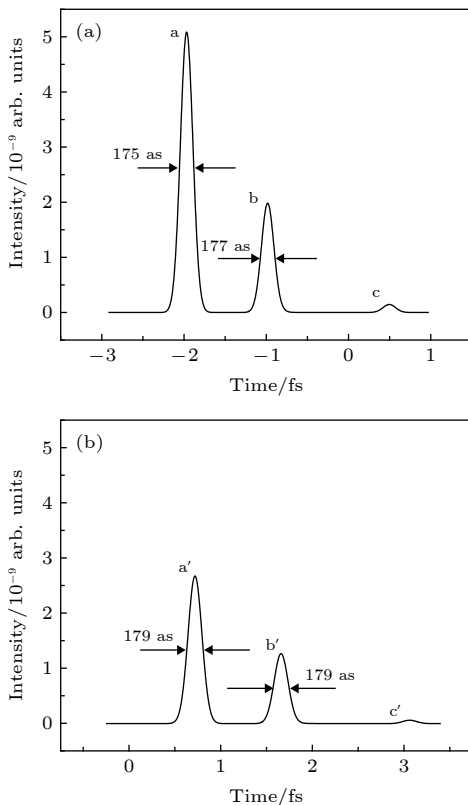


图 7 阿秒脉冲产生时域图 (a) 不对称偏振控制方案; (b) 对称偏振控制方案

Fig. 7. Attosecond pulse generation from (a) asymmetric polarization gating scheme and (b) symmetric polarization gating scheme.

迹, 其半高全宽为 175 as, 第二个阿秒脉冲 b 对应着谐波发射的长轨迹, 其半高全宽为 177 as, 最后一个弱阿秒脉冲 c 对应着离核较远电子与核复合产生的辐射. 而对称偏振控制脉冲情形, 通过叠加 80—156 次谐波, 同样得到了一个阿秒脉冲链, 如图 7(b) 所示. 第一个阿秒脉冲 a' 对应着谐波发射的短轨迹, 其半高全宽为 179 as, 第二个阿秒脉冲 b' 对应着谐波发射的长轨迹, 其半高全宽为 179 as, 最后一个弱阿秒脉冲仍然来自于离核较远电子与核复合产生的辐射. 在高次谐波产生的数值模拟中, 长轨迹 b 和 b' 的贡献可通过求解传播方程被抑制, 因此最终得到的仍然是单一阿秒脉冲 a 和 a'. 更重要的是, 当采用不对称偏振控制脉冲情形, 单一阿秒脉冲的强度提高了两倍, 这与上述原子电离概率的分析结果是一致的.

4 结 论

本文利用三维强场近似理论说明了脉宽为 10 fs 的两束不对称反旋圆偏振控制脉冲可用以获得强度较高孤立阿秒脉冲的产生. 不同于通常偏振控制脉冲方案, 为了获得有效的高次谐波发射, 我们一方面将两束脉冲峰值之间的时间延迟从半个光学周期调整到接近一个光学周期, 从而确保了偏振门内合成脉冲电场具有较高的强度, 另一方面调整了两束脉冲的峰值强度比, 确保了偏振门前端原子低电离概率, 这使得谐波产生过程中的相位匹配条件容易得到满足. 相比于双光学控制方案, 该方案具有实验操作相对容易的优势.

参考文献

- [1] Schultze M, Fiess M, Karpowicz N, Gagnon J, Korbman M, Hofstetter M, Neppl S, Cavalieri A L, Komminos Y, Mercouris T, Nicolaides C A, Pazourek R, Nagele S, Feist J, Burgdörfer J, Azzeer A M, Ernstorfer R, Kienberger R, Kleineberg U, Goulielmakis E, Krausz F, Yakovlev V S 2010 *Science* **328** 1658
- [2] Drescher M, Hentschel M, Kienberger R, Uiberacker M, Yakovlev V, Scrinzi A, Westerwalbesloh T, Kleineberg U, Heinzmann U, Krausz F 2002 *Nature* **419** 803
- [3] Sansone G, Benedetti E, Calegari F, Vozzi C, Avaldi L, Flammini R, Poletto L, Villoresi P, Altucci C, Velotta R, Stagira S, De Silvestri S, Nisoli M 2006 *Science* **314** 443
- [4] Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, Yakovlev V S, Gagnon J, Uiberacker M, Aquila A L, Gullikson E M, Attwood D T, Kienberger R, Krausz F, Kleineberg U 2008 *Science* **320** 1614
- [5] Vincenti H, Quéré F 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 113904

- [6] Chen J G, Yang Y J, Chen J, Wang B B 2015 *Phys. Rev. A* **91** 043403
- [7] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [8] Agostini P, DiMauro L F 2004 *Rep. Prog. Phys.* **67** 813
- [9] Yuan K J, Bandrauk A D 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 023003
- [10] Corkum P B, Burnett N H, Ivanov M Y 1994 *Opt. Lett.* **19** 1870
- [11] Li J, Ren X, Yin Y, Zhao K, Chew A, Cheng Y, Cunningham E, Wang Y, Hu S, Wu Y, Chini M, Chang Z 2017 *Nat. Commun.* **8** 794
- [12] Ferrari F, Calegari F, Lucchini M, Vozzi C, Stagira S, Sansone G, Nisoli M 2010 *Nat. Photonics* **4** 875
- [13] Lan P, Lu P, Cao W, Li Y H, Wang X L 2007 *Phys. Rev. A* **76** 21801
- [14] Kormin D, Borot A, Ma G J, Dallari W, Bergues B, Aladi M, Földes I, Veisz L 2018 *Nat. Commun.* **9** 4992
- [15] Gaumnitz T, Jain A, Pertot Y, Huppert M, Jordan I, Ardana-Lamas F, Wörner H J 2017 *Opt. Express* **25** 27506
- [16] Chang Z 2005 *Phys. Rev. A* **71** 023813
- [17] Zhao K, Zhang Q, Chini M, Wu Y, Wang X W, Chang Z H 2012 *Opt. Lett.* **37** 3891
- [18] Keldysh L V 1965 *Sov. Phys. JETP* **20** 1307
- [19] Faisal F H M 1973 *J. Phys. B* **6** L89
- [20] Reiss H R 1980 *Phys. Rev. A* **22** 1786
- [21] Lewenstein M, Salières P, L’Huillier A 1995 *Phys. Rev. A* **52** 4747
- [22] Ammosov M V, Delone N B, Krainov V 1986 *Proc. SPIE* **664** 1191

Isolated attosecond pulse generation from polarization gating pulse with 10 fs duration*

Song Hao Lü Xiao-Yuan Zhu Ruo-Bi Chen Gao[†]

(School of Science, Changchun University of Science and Technology, Changchun 130022, China)

(Received 19 March 2019; revised manuscript received 10 June 2019)

Abstract

Isolated attosecond pulses make it possible to study and control the ultrafast electron processes in atoms and molecules. High order harmonic generation (HHG) is the most promising way to generate such pulses, which is benefited from the broad plateau structure of the typical HHG spectrum. In previous HHG studies on the polarization gating pulse with longer pulse duration, one needs to dramatically increase the separation in time between the two counter-rotating circularly-polarized pulses to generate the nearly-linear half-cycle “polarization gate”. This leads to a low harmonic conversion efficiency because the field outside the polarization gate is much stronger than inside the polarization gate. In this paper, by using Lewenstein model, we theoretically simulate the high-order harmonic generation from helium atom subjected to the polarization gating pulse with 10 fs pulse duration. It is found that high-order harmonic spectra each with a higher efficiency and regular structure can still be obtained by reasonably adjusting the delay time ratio and the amplitude ratio of electric fields between the two counter-rotating pulses. Further, a single 175 as pulse in the time domain is obtained by Fourier transforming the 80th order harmonics into the 172nd order harmonic without compensating for the harmonic chirp. This scheme has two main advantages. First, the adjustment of the polarization gate width from half optical cycle into nearly one cycle ensures higher intensity of the synthesized electric field inside the polarization gate. Second, the suitable adjustment of the amplitude ratio between two electric fields ensures the low ionization probability before the polarization gate, and thus further fulfills the harmonic phase matching condition in the process of the propagation.

Keywords: high order harmonic generation, attosecond pulse, polarization gating scheme

PACS: 42.65.Ky, 31.15.V–, 03.65.Sq, 34.50.Fa

DOI: 10.7498/aps.68.20190392

* Project supported by the Basic Research Project of Jilin Province, China (Grant No. 20170101046JC).

[†] Corresponding author. E-mail: chengao@cust.edu.cn