论文

He⁺离子在啁啾激光和低频脉冲组合场中产生的单个阿秒脉冲

成春芝, 李鹏程, 周效信*

西北师范大学物理与电子工程学院, 甘肃省原子分子物理与功能材料重点实验室, 兰州 730070

*联系人, E-mail: zhoux@nwnu.edu.cn

收稿日期: 2011-03-19; 接受日期: 2011-05-31; 网络出版日期: 2011-12-20

国家自然科学基金(批准号: 11044007, 11047016)、高等学校博士学科点专项科研基金(编号: 20096203110001)及西北师范大学创新项目(编号: NWNK-JCXGC-03-62)资助

摘要 利用数值求解含时薛定谔方程的方法, 从理论上研究了一维模型 He⁺离子在波长为 1064 nm 的线性啁啾激光和低频脉冲形成的组合场中产生的高次谐波以及由这种高次谐波构造的阿秒脉冲特征. 发现在组合场中, 由于啁啾脉冲的作用和在适当的时刻加入了高频脉冲, 不仅使高次谐波谱的平台区域能得到很大的扩展, 而且谐波转化效率也得到有效地提高, 当对第二平台区域的不同范围内高次谐波迭加都可得到单个阿秒脉冲, 最短可达 21 阿秒. 最后通过经典分析和时频分析解释了这种高次谐波展宽与阿秒脉冲发射过程的特点.

关键词 组合场, 高次谐波, 阿秒脉冲

PACS: 32.80. Rm, 42.65. Ky, 42.65. Re

doi: 10.1360/132011-360

阿秒(as)脉冲的出现为探测电子超快过程提供了强有力的工具^[1], 比如利用阿秒脉冲可以探测原子分子中内壳层电子的动力学行为和超快过程^[2,3], 因此对阿秒脉冲的研究具有重要的科学意义和广泛的应用前景而引起人们极大的兴趣^[4]. 由于原子在强激光场中产生的高次谐波在平台区末端呈现超连续分布, 使它成为实现阿秒脉冲的重要方法之一.^[5-7] 由这种方法已经在实验上实现了 80 as 的单个脉冲输出^[3].

高次谐波的辐射过程可以用 Corkum 等人^[8]提出的“三步模型”来解释: 在激光场作用下, 电子首先隧

穿激光场和库仑场共同形成的势垒而电离, 隧穿后的电子会在激光场的驱动下运动, 当激光场反向后, 电子向母离子运动并获得动能, 当电子运动到母离子附近时与母离子复合回到基态, 并将从激光场中获得的动能以光子的形式辐射出来, 即产生高次谐波. 所辐射光子的最大能量满足半经验公式^[9]: $E_{\max} = I_p + 3.17U_p$, 其中 I_p 是原子的电离能, $U_p = E_0^2/(4\omega^2)$ 是有质动力能(其中 E_0 是入射激光的峰值电场, ω 是激光的角频率). 这个过程在激光场的每半个周期重复一次, 由此对高次谐波进行叠加, 所获

引用格式: 成春芝, 李鹏程, 周效信. He⁺离子在啁啾激光和低频脉冲组合场中产生的单个阿秒脉冲. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2012, 42: 47-53
Cheng C Z, Li P C, Zhou X X. Isolated pulse generation of He⁺ ion in an intense chirped laser and its high frequency pulse (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2012, 42: 47-53, doi: 10.1360/132011-360

得脉冲往往是阿秒脉冲链. 然而从实际应用角度而言单个阿秒脉冲更具有实用价值, 所以如何实现更短、更强的单个阿秒脉冲是国内外学者努力的目标.

目前由高次谐波实现阿秒脉冲主要方法有两个: 一种是利用偏振门方法控制谐波仅仅在某一个特定之间发射而形成阿秒脉冲. 另一种方法是控制电子的路径来实现阿秒脉冲的输出, 这是因为在高次谐波发射过程中, 除截止位置附近的谐波外每阶谐波都与两条主要的电子路径有关, 即长路径和短路径. 这两条路径的谐波相位没有被锁定, 所以发射时间不同, 对这样的多阶谐波进行叠加只能得到不规则的阿秒脉冲链. 为了得到单个的阿秒脉冲, 人们采用了各种方法来控制电子路径, 如采用双色场^[10-13], 单色场加半周期脉冲^[14], 双色场加谐波脉冲^[15], 三色场^[16], 可调的啁啾脉冲和静电场的组合^[17]等.

最近, 我们提出利用非线性啁啾红外激光和紫外高频脉冲的组合场作用到氢原子上获得了 58 as 的单个脉冲^[18], 但由于非线性啁啾激光在实验上较难实现, 因此我们通过线性啁啾激光和高频脉冲形成的组合场作用到类氢 He⁺离子上产生了脉宽为 26 as 的单个阿秒脉冲^[19]. 但这种单个阿秒脉冲仅仅通过叠加截止位置附近的高次谐波得到, 这样的阿秒脉冲强度较低, 从应用角度而言是不利的. 在本文中, 我们对线性啁啾脉冲进一步优化, 使得电子在激光场中获得更高的动能, 由此发射的高次谐波的平台区域得到很大的扩展, 并对平台区不同范围内的高次谐波进行叠加, 均能得到单个阿秒脉冲, 并且所得到的阿秒脉冲强度相对于截止位置附近构造的脉冲强度有显著的提高.

1 理论模型

在偶极近似和长度规范下, 强激光场中一维模型原子的含时薛定谔方程可以表示为(若无特殊说明, 均采用原子单位)

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

其中 $E(t)$ 为激光场的电场分量, $V(x)$ 是一维模型 He⁺离子的模型势, 我们采用软库仑势形式

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

我们取 $a = 0.5$, $Z = 2.0$. 由此给出的原子基态能级为 $E_0 = 2.0$ a.u., 与真实类氢 He⁺离子的基态能级相同.

(1)式只能利用数值方法解出, 我们利用分裂算符方法进行求解. 当 t 时刻的波函数给定后, $t + \Delta t$ 时刻的波函数可由下式给出

$$\begin{aligned} \psi(x, t + \Delta t) = & \exp \left[\frac{i\Delta t}{4} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \right] \exp \{ -i\Delta t [V(x) - xE(t)] \} \\ & \times \exp \left[\left(\frac{i\Delta t}{4} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \right) \right] \psi(x, t) + o(\Delta t^3), \end{aligned} \quad (2)$$

具体求解过程在文献[20]中已有详细描述.

一旦得到含时波函数, 运用 Ehrenfest^[21]定理, 电子的平均加速度为

$$a(t) = \left\langle \psi(x, t) \left| -\frac{dV(x)}{dx} + E(t) \right| \psi(x, t) \right\rangle, \quad (3)$$

高次谐波谱的强度为

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

其中, $a_q(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^t a(t) e^{iq\omega t} dt$ 为 $a(t)$ 的傅里叶变换, 通过对多阶高次谐波进行叠加, 可以得到阿秒脉冲:

$$I(t) = \left| \sum_q a_q e^{iq\omega t} \right|^2. \quad (5)$$

为了了解高次谐波谱在时间与频率空间的特点, 我们借助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

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

式中

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

其中

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

为小波变换的窗函数^[22]. 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 $A_\omega(t_0, \omega)$ 随时间演化的规律几乎不变. 在我们的计算中, 选取 $\tau = 15$.

2 计算结果和讨论

在计算中, 我们使用由线性啁啾激光与高频脉冲形成组合场的电场分量可以表示为

$$E(t) = E_1 f_1(t) \cos[\omega t + \phi(t)] + E_2 f_2(t - \tau_{\text{delay}}) \cos[35\omega(t - \tau_{\text{delay}})], \quad (9)$$

其中 E_1 和 E_2 分别是基频激光场和高频场的电场振幅, τ_{delay} 是高频场相对基频场的时间延迟, ω 是基频场的角频率, 高频场的角频率为基频场的第 35 阶谐波, $f(t)$ 是高斯包络, $\phi(t)$ 是线性啁啾, 其表达式为

$$\phi(t) = \beta \left(\frac{t - t_0}{\tau} \right)^2, \quad (10)$$

这里 β 是线性啁啾参数, 若 $\beta > 0$ 表示正啁啾, 若 $\beta < 0$ 表示负啁啾; τ 和 t_0 可以用来调整啁啾脉冲的形状, 这种形式的线性啁啾在实验上已经实现. 在计算中, 所采用的组合场参数为红外激光的强度

$$I_1 = 1.7 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2,$$

波长为 1064 nm, 高斯型包络, 其脉宽为 5 fs; 谐波场的场强

$$I_2 = 1.0 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2,$$

高斯型包络, 脉宽为 1.5 fs, 它们的相位延迟 $\omega\tau_{\text{delay}} = -1.2\pi$, 啁啾参数 $\beta = 8.0$, $t_0 = 200$, $\tau = 210$.

图 1 给出了啁啾激光和第 35 阶谐波脉冲(35H)组合场的电场分量随时间变化关系, 激光场的两个局域最大位置分别用 A 和 B 标记. 可以看出激光的啁啾脉冲不仅将激光场的对称性破坏, 而且使 A 到 C

图 1 组合场的电场分量随时间变化, 相位延迟 -1.2π

Figure 1 The electric component of the combined field is as a function of time, phase delay $\omega\tau_{\text{delay}} = -1.2\pi$.

之间的有效周期得到了很大地增加, 这使得在 A 处被电离的电子能够从组合场中获得更高的能量.

为了比较模型 He^+ 在无啁啾红外激光、啁啾激光以及啁啾激光和第 35 次谐波脉冲组合场驱动下发射高次谐波的差别, 图 2 给出了对高次谐波相应的计算结果. 从图中可以看出, 在啁啾红外激光的情况下, 高次谐波的平台被明显的展宽了, 这是由于啁啾脉冲的加入增加了激光场的有效周期, 使得激光场反向后, 电子在激光场的加速时间增大, 从而可以在激光场中获得更高的能量, 当返回母核复合时会发出更高阶次的谐波, 即高次谐波的截止位置得到了延伸. 当在适当的时间($\omega\tau_{\text{delay}} = -1.2\pi$)加入第 35 阶谐波场, 在该谐波场与啁啾激光形成的组合场驱动原子发射的高次谐波强度则得到了明显提高. 第 35 阶谐波的光子能(40.75 eV)非常接近 He^+ 离子中电子从 1s-2p 的跃迁能(40.8 eV). 而对于模型 He^+ 离子来说, 这个 1s-2p 的跃迁能(40.8 eV)非常接近于基态和第二激发态之间的能量差(39.8 eV), 因此在组合场中我们选择第 35 阶谐波脉冲.

由图 2 我们可以看出在线性啁啾激光和第 35 阶谐波脉冲的组合场作用下产生的高次谐波谱的平台确实被有效的拓展和提高了, 使谐波的截止位置延伸到 $I_p + 14.3U_p$, 同时也使谐波谱的平台区域变得光滑连续. 而对这种谐波谱在平台区域进行叠加有可能获得更短的单个阿秒脉冲. 图 3 给出了对第二个谐波平台不同的谐波范围迭加后得到阿秒脉冲的时

图 2 模型 He^+ 离子在无啁啾红外激光、啁啾红外激光、啁啾红外激光和高频脉冲组合场作用下产生的谐波谱比较
Figure 2 The HHG power spectra generated from a model He^+ ion in a chirp-free fundamental field (dotted line), in a chirped fundamental field (solid line), in the chirped fundamental laser in combination with a 35th harmonics pulse (dashed line).

图3 模型 He^+ 离子在啁啾激光和第35次谐波脉冲组合场作用下产生的阿秒脉冲

Figure 3 The attosecond pulse produced from the model He^+ ion in the chirped fundamental laser in combination with a 35th harmonics.

域包络曲线. 图 3(a)–(c)分别是我们对 1710–1840 阶次、1855–2010 阶次、2160–2265 阶次的谐波进行迭加的结果, 依次得到脉宽为 23, 21, 27 as 的脉冲, 且全部呈现的是单个阿秒脉冲. 从我们迭加不同阶次谐波得到的阿秒脉冲来看, 随着阶次的降低, 仍然能够得到单个的阿秒脉冲, 且最短可达 21 as, 这样短的脉冲已经比一个原子的时间单位还要短, 这对阿秒脉冲的应用来说是有重要意义的, 并且相对于目前人们常用截止位置附近构造的阿秒脉冲来说其发射强度也有了很大的提高(见图 3(b)与(c)).

为了进一步理解发射单个阿秒脉冲的机理, 我们进行了经典计算与分析. 图 4(a)给出了模型 He^+ 离

子在啁啾激光与高频脉冲组合场中电子动能随电离时间和返回时间的关系图, 我们可以看到当动能大于 $2U_p$ 时, 对应每一个能量存在两个经典电子路径的贡献, 先电离后复合的路径称为长路径(Long), 而后电离先复合的路径称为短路径(Short). 随着电子动能的增大, 短路径与长路径的复合时间逐渐靠近; 当动能达到 $6U_p$ 时, 短路径和长路径对应的复合时间几乎相等. 这样对高次谐波形成两个平台的原因, 也可以从经典结果给出解释, 在组合场情况下, 谐波的发射主要存在两个复合事件, 相应与图中的 A 和 B 点, 对于 A 峰电子的动能为 $2.2U_p$, 与经验公式^[8] $N_{\max} = (I_p + 3.1U_p)/\omega$ 计算出来的一致. B 峰电子的动能为 $14.3U_p$, 所以高次谐波的截止位置被拓宽到 $I_p + 14.3U_p$. 对于谐波发射 A 所对应的发射时刻附近, 存在着强度相当的两个电子路径, 这形成了高次谐波的第一个平台, 对这样的谐波叠加, 得到的并不是单个阿秒脉冲; 但对于谐波发射 B 来说, 在较大的能量范围内, 由于两个电子路径合并到一起, 几乎是同时发射, 这形成了高次谐波的第二个平台, 对这样的高次谐波进行叠加, 意味着在较宽的能量范围内都能得到单个的阿秒脉冲, 且会随着能量的降低, 脉冲的强度会有较大的增加(对应于图 2 谐波谱在第 2 个平台区的低能区强度较高).

为了证实上述经典理论分析结果, 我们进一步利用 Morlet 小波变换方法^[22](见(6)式)对高次谐波发射过程进行时间-频率分析. 图 4(b)–(d)给出了 He^+ 离子在组合场中发射高次谐波小波变换的结果. 由图可见同样存在两个主要的谐波发射事件, 分别用 A 和 B 标记. 可以看出, 每个谐波发射时间与图 4(a)中电子返回能量图像中的发射时间完全一致. 对于谐波发射 A, 反映的是谐波的第一个平台每一阶谐波的发射时刻, 可以看出两个量子路径对谐波的发射的贡献基本是相同的, 且 A 点能量很好地对应经典的结果(见图 4(a)中的 A 点). 对于谐波发射 B, 在阶次较低的区域长路径和短路径都对谐波的贡献较大, 但随着谐波阶数的增加, 两条电子的量子路径逐渐合并, 说明这两条量子路径发射高次谐波的时间逐渐靠近, 因此, 对 1710–1840 阶高次谐波进行迭加, 显然两个路径还未完全重合, 所以得到的单个阿秒脉冲略显不规则, 周围会出现一些低峰, 正如图 3(a)所示; 若对 1855–2010 阶和 2160–2275 阶高次谐波进行迭加, 电子长短路路径发射时间几乎重合, 如图 3(b)

图 4 (a) 组合场中 He^+ 离子电离时刻 t_i (○) 与返回时刻 t_e (●) 电子动能与时间的经典分析图; (b) 组合场情况下 25–700 阶的高次谐波时频分析图; (c) 组合场情况下 800–1500 阶的高次谐波时频分析图; (d) 组合场情况下 1650–2400 阶的高次谐波时频分析图

Figure 4 (a) Kinetic energy of electron vs its ionized time t_i (○) and returned time t_e (●) in the combined fields classically; (b) wavelet time-frequency profile of HHG power spectra from 25ω to 700ω ; (c) from 800ω to 1500ω ; (d) from 1650ω to 2400ω .

和(c)所示, 相当于一个量子路径的贡献. 我们知道只有一个量子路径对谐波有贡献时, 发射的高次谐波就可以在很短的时间内完成, 对应的是单个阿秒脉冲. 因此, 当两个量子路径重合时我们得到的是单个阿秒脉冲. 由上面的分析可以看出小波变换的结果(即量子计算结果)与经典分析的结果是一致的, 这就理解了我们和谐波区域不同阶次叠加能得到如此短的单个阿秒脉冲(21 as), 这对阿秒脉冲的应用来说是十分重要的.

3 结论

本文采用线性啁啾红外激光场和高频脉冲场的组合场作为产生阿秒脉冲的驱动源, 数值求解了模型 He^+ 离子在组合场的含时薛定谔方程, 研究了 He^+

离子发射高次谐波的规律. 结果发现, 啁啾脉冲的作用使得高次谐波平台明显展宽, 而且在啁啾红外激光的适当时刻加入一个频率一定的高频场使原子的基态与某一激发态之间产生共振, 这样就能提高谐波发射的转换效率, 同时在较宽的谐波范围内有很好的连续性. 通过经典分析和小波变换时间-频率分析发现, 在较宽的谐波范围对谐波有贡献的电子长路径和短路径返回母离子的时间几乎相同, 通过这种方式, 就能使两个电子路径对高阶的高次谐波的贡献发生并合, 这样的并合不仅能得到单个阿秒脉冲, 而且所得到的阿秒脉冲的强度有较大的提高. 经过对第二平台区域不同范围阶次的高次谐波谱进行迭加, 都能得到单个阿秒脉冲, 脉宽最短可达 21 as, 这一脉宽已经比原子的时间单位 24 as 还短, 这对人们研究原子分子内电子动力学的性质是有重要意义的.

参考文献

- 1 Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics. *Rev Mod Phys*, 2009, 81: 163–234
- 2 Drescher M, Hentschel M, Kienberger R, et al. Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy. *Nature*, 2002, 419: 803–807
- 3 Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, et al. Single-cycle nonlinear optics. *Science*, 2008, 320: 1614–1617
- 4 Scrinzi A, Ivanov M Y, Kienberger R, et al. Attosecond physics. *J Phys B*, 2006, 39: R1–R37
- 5 Antoine P, L'Huillier A, Lewenstein M. Attosecond pulse trains using high-order harmonics. *Phys Rev Lett*, 1996, 77: 1234–1237
- 6 Zou P, Li R X, Zeng Z N, et al. Generation of an isolated sub-100 attosecond pulse in the water-window spectral region. *Chin Phys B*, 2010, 19: 019501
- 7 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. *Phys Rev A*, 2010, 82: 013411
- 8 Corkum P B. Plasma perspective on strong-field multiphoton ionization. *Phys Rev Lett*, 1993, 71: 1994–1997
- 9 Krause J L, Schafer K J, Kulander K C. High-order harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime. *Phys Rev Lett*, 1992, 68: 3535–3538
- 10 Lan P F, Lu P X, Cao W, et al. Efficient generation of an isolated single-cycle attosecond pulse. *Phys Rev A*, 2007, 76: 043808
- 11 Pfeifer T, Gallmann L, Abel M J, et al. Heterodyne mixing of laser fields for temporal gating of high-order harmonic generation. *Phys Rev Lett*, 2006, 97: 163901
- 12 Chen J G, Zeng S L, Yang Y J. Generation of isolated sub-50-as pulses by quantum path control in the multicycle regime. *Phys Rev A*, 2010, 82: 043401
- 13 Zhang G T, Liu X S. Generation of an extreme ultraviolet supercontinuum and isolated sub-50 as pulse in a two-colour laser field. *J Phys B-At Mol Opt Phys*, 2009, 42: 125603
- 14 Orlando G, Corso P P, Fiordilino E. Generation of isolated attosecond pulses using unipolar and laser fields. *J Mod Opt*, 2009, 56: 1761–1767
- 15 Du H C, Wang H Q, Hu B T. Isolated short attosecond pulse generated using a two-color laser and a high-order pulse. *Phys Rev A*, 2010, 81: 063813
- 16 Lu R F, He H X, Guo Y H, et al. Theoretical study of single attosecond pulse generation with a three-color laser field. *J Phys B-At Mol Opt Phys*, 2009, 42: 225601
- 17 Xiang Y, Niu Y P, Gong S Q. Control of the high-order harmonics cutoff through the combination of a chirped laser and static electric field. *Phys Rev A*, 2009, 79: 053419
- 18 Zhao S F, Zhou X X, Li P C, et al. Isolated short attosecond pulse produced by using an intense few-cycle shaped laser and an ultraviolet attosecond pulse. *Phys Rev A*, 2008, 78: 063404
- 19 Li P C, Zhou X X, Wang G L, et al. Isolated sub-30-as pulse generation of an He^+ ion by an intense few-cycle chirped laser and its high-order harmonic pulse. *Phys Rev A*, 2009, 80: 053825
- 20 Li P C, Zhou X X, Dong C Z, et al. Investigation of the high harmonic generation and ionization of atoms with long-range and short-range potentials in intense laser fields (in Chinese). *Acta Phys Sin*, 2004, 53: 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. *物理学报*, 2004, 53: 750–755]
- 21 Burnett K, Reed V C, Cooper J, et al. Calculation of the background emitted during high-harmonic generation. *Phys Rev A*, 1992, 45: 3347–3349
- 22 Antoine P, Piraux B, Maquet A. Time profile harmonics generated by a single atom in a strong electromagnetic field. *Phys Rev A*, 1995, 51: R1750–R1753

Isolated pulse generation of He^+ ion in an intense chirped laser and its high frequency pulse

CHENG ChunZhi, LI PengCheng & ZHOU XiaoXin^{*}

Key Laboratory of Atomic and Molecular Physics & Functional Materials of Gansu Province, College of Physics and Electronic Engineering, Northwest Normal University, Lanzhou 730070, China

By solving the time-dependent Schrödinger equation numerically, theoretically we study the high-order harmonics of a model He^+ ion exposed to the combined field of an intense chirped laser pulse and its high frequency pulse, and analyze the characteristics of the attosecond pulse produced by the high-order harmonics (HHG). Due to the presence of the chirped pulse and the high frequency pulse in the case of the combined fields, it is shown that the plateau of the high-order harmonics is extended largely and the conversion efficiency of high-order harmonics is enhanced effectively. By superimposing some orders harmonics in different region of the second plateau, all of the pulses obtained are single attosecond ones, minimum pulse achieves 21 as. To better understand the physical reasons of HHG enhancement and attosecond pulse emission, we perform classical analysis and the time-frequency analysis.

combined field, high-order harmonics, attosecond pulse

PACS: 32.80. Rm, 42.65. Ky, 42.65. Re

doi: 10.1360/132011-360