双色激光场中极端远紫外超连续谱相干辐射产生* /**

程 亚 徐至展[†]

(中国科学院上海光学精密机械研究所强场激光物理国家重点实验室 上海 201800)

摘 要 通过脉宽为周期量级的超快强场激光脉冲与惰性气体原子的极端非线性相互作用,能够产生单个的阿秒 量级的极端远紫外光脉冲。然而,现有的周期量级的激光脉冲的最短脉宽仍在两个光周期左右,尚不足以支持产生脉 宽短于 100as 的单个极端远紫外脉冲。文章作者首次提出通过在一个周期量级(如 6fs)激光脉冲上再叠加一个强度 较弱但相对位相精确控制的二倍频激光,能够直接实现单个的 65as 光脉冲。如进一步经过位相补偿,将有望产生一 个脉宽仅为 23as 的单脉冲,从而将阿秒光脉冲的时间宽度推进到短于一个原子时间单位。 关键词 周期量级的超快强场激光脉冲,高次谐波产生,极端远紫外超连续谱,阿秒光脉冲

Generation of an ultra-broad extreme ultraviolet supercontinuum in a two-color laser field

CHENG Ya XU Zhi-Zhan[†]

(State Key Laboratory of High Field Laser Physics , Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics , Chinese Academy of Sciences , Shanghai 201800 , China)

Abstract Single isolated attosecond (as) extreme ultraviolet (XUV) pulses can be generated via the nonlinear optical interaction between intense few-cycle laser fields and noble gas atoms. However, limited by today's ultrashort pulsed laser technology, currently the shortest pulse duration of the few-cycle optical pulses is about two cycles, which is still not sufficiently short for generating single sub-100 as XUV pulses. Therefore, we propose to superimpose a relative-phase-controlled weak second-harmonic wave on the intense few-cycle pulse (e.g. 6fs) by which a single 65 as XUV pulse can be directly generated without any phase compensation process. Further, if the phase dispersion can be properly compensated, a single 23 as XUV pulse can be produced, which is below one atomic time unit (24 as).

Keywords intense few-cycle laser field , high-order harmonic generation , extreme ultraviolet supercontinuum , attosecond optical pulse

由于电子围绕原子核运动的时间尺度在亚飞秒 (1fs = 10⁻¹⁵s)量级^[1],因此阿秋(1as = 10⁻¹⁸s)量级 的极端远紫外(extreme ultraviolet,简称 XUV)相干 光脉冲的出现为实现对电子在原子和分子中运动的 超快动力学过程进行直接观测提供了可能。目前尽 管已经有若干方法可以产生阿秒光脉冲的序列,如 对拉曼谱边带或者惰性气体中产生的高次谐波进行 傅里叶合成等等^[2],而迄今实验上成功实现单个阿 秒光脉冲的主要途径有如下两条(1)利用周期量 级的驱动激光脉冲产生高次谐波(HHG)的方法^[3]; (2)通过偏振门技术缩短高次谐波产生的有效时间 的方法^[4]。受到目前可实现的最短驱动激光脉宽的 限制利用上述前一种方法在当前仍无法实现脉宽

* *本文应《物理》编辑部邀请撰写,介绍发表于 Phys. Rev. Lett., 2007 98 203901 一文内容 2007 - 08 - 10 收到初稿 2007 - 09 - 11 收到修改稿

† 通讯联系人. Email zzxu@ mail. shenc. ac. en

^{*} 国家重点基础研究发展计划(批准号 2006CB806000)资助项目

短于 100 as 的 XUV 光脉冲。而利用后一种偏振门 技术尽管在目前已经产生了脉宽约为 130 as 的 XUV 光脉冲^[5] 然而在合成偏振门的过程中只有小 部分的驱动脉冲能量能被真正用于阿秒脉冲的产 生 ,从而降低了阿秒脉冲的产生效率。为了解决这 一系列问题 ,我们首次提出^[6]利用一个强度相对较 弱的二倍频激光场 ,对周期量级主驱动基频激光场 进行波形整形 ,可以在当前已经具备的超快强场激 光技术条件下 ,突破实现脉宽短于 100 as 的单个 XUV 光脉冲。

在我们的数值模拟中,采用了由一个脉宽为 6fs、中心波长为800nm的周期量级基频激光脉冲与 二倍频光脉冲(脉宽为16个光周期)所构成的组合 激光场,作为产生阿秒脉冲的驱动源。事实上,长脉 冲二倍频光的脉宽选取对模拟结果的影响不大。模 拟计算中采用了氦原子作为模型原子,并假设基频 和二倍频激光脉冲的峰值强度分别为1.4×10¹⁵ W/ cm²和5.5×10¹³ W/cm²。首先,我们在图1中展示 了数值模拟中所考虑的三种激光场的电场分量形式:虚线表示单个6 fs 脉冲的电场分量;点状虚线表示 示无时延的双色激光场的电场分量;实线表示在基 频光脉冲和二倍频光脉冲之间有一个-166.7as 时 延的双色激光场的电场分量。



图 1 三种激光场中的电场随时间变化曲线(这里横坐标时间 以周期 T 为单位,虚线对应于 6 fs 单脉冲激光场;点状虚线对应 于时延为 0 的双色激光场;实线对应于时延为 – 166.7 as 的双 色激光场)

随后,我们在图 2 中比较了三种不同的激光驱 动场中氦原子所产生的高次谐波谱。由图 2 可以明 显看到,由单个脉宽为 6fs 的主驱动脉冲所产生的 高次谐波,其在位于截止区附近的 XUV 超连续谱带 宽仅为~30eV。正如图 3 所示,这样窄的带宽条件 是不足以支持产生单个的短于 100as 的 XUV 脉冲。

该结论也与过去的文献报道结果相一致[7]。然而, 仅仅通过在基频脉冲上叠加一个无时延的弱二倍频 脉冲 即可将 XUV 超连续谱展宽到约为 75 eV(见 图 2 中的曲线 Ⅱ) 在这种情况下 XUV 超连续光谱 的展宽主要源于高次谐波谱中截止区的拓展⁷¹。为了 进一步增加 XUV 超连续谱的谱宽并产生更加光滑 的频谱 我们在双色激光场的两个脉冲之间引入了 一个相对时延,并通过数值模拟对该时延进行优化。 出乎意料的是,当该时延值被调节到-166.7as 时 (相当于 T/16 其中 T 为主驱动脉冲光周期),XUV 超连续谱的谱宽将会剧增到 148 eV(见图 2 中的曲 线 III) 在截取该 XUV 超连续谱并对其做一个简单 的傅里叶逆变换后 则显示能够在无需进行位相补 偿的条件下直接产生一个65 as 脉宽的单个 XUV 脉 冲(见图 3 中的曲线Ⅱ)。如果进一步将这部分 XUV 超连续谱的位相色散得到全部补偿,则在理论 上可以产生一个脉宽仅为 23 as 的单个 XUV 脉冲 (见图3中的曲线I);这意味着利用超快强场激光 脉冲在惰性气体中产生的高次谐波,有望获得单个 的脉宽仅为数十个阿秒的 XUV 脉冲。作为比较,我 们也展示了在单个6fs 激光场中所产生的阿秒脉冲 (见图3中的曲线 III)。该阿秒脉冲的时间包络曲 线清晰地显示 在这种情况下产生的阿秒脉冲是由 两个强度相当的子脉冲构成的 ,且每个子脉冲自身 的脉宽都超过了 100 as。更详细的分析表明,这两 个子脉冲的产生起源于高次谐波产生过程中所存在 的两条不同的电子轨道的贡献,即通常所谓的'长" 电子轨道与"短"电子轨道[2]



图 2 不同激光场中产生的 XUV 超连续谱(曲线 I 对应于 6 fs 单脉冲激光场,曲线 II 对应于无延时的双色激光场,曲线 III 对 应于时延为 – 166.7 as 的双色激光场)

为了理解上述的 XUV 超连续谱谱宽剧增的物



图 3 位相补偿前(曲线 II)和位相补偿后(曲线 I)的双色激光 场中所产生的阿秒脉冲时间包络。曲线 III 表示未经位相补偿 的单个 6 fs 驱动激光场中所产生的阿秒脉冲时间包络

理机制,我们对氦原子在三个不同激光场中的偶极 矩响应做了时间频率分析^[89]。图4为时间频率分 析图 它给出了高次谐波谱段中不同频率的 XUV 光 子发射时间。图中所标示的各个峰值 A, B, C 分别 表示在上述激光驱动场中,电子在电场强度最高的 三个光场半周期内返回母核时(即电子返回母核的 时间依次对应于图 1 中所标示的 t_3 , t_2 , t_1)所发射 的高次谐波所对应的截止光子频率。由图 4 可见, XUV 超连续谱的谱宽主要取决于峰值 B 与峰值 A和 C 之间的差值。从图 4(a)中可以看出,在仅采用 脉宽为 6fs 的单色激光场的情况下 峰值 B 与峰值 A和 C 之间的差值有限,这就限制了超连续谱的谱宽。 一旦二倍频脉冲被无时延地叠加在基频脉冲之上, 峰值 B 显著地增加 而峰值 A 和峰值 C 则没有明显 改变 如图 4(b)所示。这表明在该情况下 XUV 超 连续谱谱宽的增加主要源于双色激光场中所产生的 高次谐波截止频率的延伸。而当我们进一步在双色 激光场中引入 - 166.7 as 的时间延迟后,可以明显 地看到峰值 A 和 C 在很大程度上被抑制了 ,而峰值 B则比上两种情况均有了进一步增加。从而 峰值 B 与峰值AC间的差别得到显著增强。最终导致了谱 宽为 148eV 的 XUV 超连续谱的产生。

上述时间频率分析中所得到的结果也被我们的 经典模型分析所证实^[6]。从物理本质上看,产生超 宽的 XUV 超连续谱的关键是在周期量级脉宽的超 快激光场中,设法增强电子在脉冲包络中心区域即 电场最强的半个光周期内所获得的返回动能,同时 降低电子在其他相邻光场半周期内获得的返回动 能。而要达到这个目的,最显而易见的手段是缩短



图4 (a)单色激光场和(b)延时为0的双色激光场以及(c) 时延为 – 166.7as 的双色激光场中所产生的 XUV 超连续谱的时间频率分析图(图中的色彩标度为对数单位)

激光脉宽。然而迄今为止,产生脉宽为5fs以下的超 快强场激光脉冲仍面临很大的技术困难。因此,本 文中所提出的双色激光场方案为克服这一障碍提供 了一个非常有力的手段,并在实质上起到了缩短周 期量级驱动脉冲的时间宽度的效果。更进一步讲, 在周期量级脉宽的主驱动基频激光场中,引入一个 二倍频或者是其他波长的辅助光场,然后通过精确 控制两个脉冲间的时延和强度比,对周期量级主驱 动激光场的波形直接进行整形,这将为在周期甚至 亚周期时间尺度内操控电子的超快动力学行为提供 强有力的新手段。因此,该项研究不仅使得突破当 前难以产生短于100as的单个光脉冲的技术瓶颈成 为可能,而且也为进一步开拓出周期甚至亚周期量 级时间尺度的量子相干操控等新科学前沿提供重要 技术手段。

综上所述,我们提出了双色激光驱动场中产生 超宽 XUV 超连续谱相干辐射并进而突破实现单个 的短于 100as 的 XUV 光脉冲的新途径,并揭示了其 物理机制。数值模拟和经典分析计算所得到的结果

高度一致并互相印证。我们的结果再次表明 超快 强激光场中的高次谐波产生现象是一个极端非线性 相互作用过程,对激光场的轻微变化非常敏感。在 此之前 国际上已有研究组证实 通过在长脉冲的基 频激光场上叠加一个弱的二倍频光,能够有效地控 制电子在光场中的运动并可观测到高次谐波谱的明 显改变^[10-12]。最近的实验研究也表明,在脉宽为9 fs 的基频驱动激光脉冲上叠加一个弱的二倍频光脉 冲 将可望产生能支持单个的 200as 光脉冲的 XUV 超连续谱,但其中的物理机制未被充分理解和阐 明^{13]}。不同于上述已有研究工作,我们的研究第一 次提出,如果要产生脉宽短于 100as 的单个 XUV 光 脉冲 应当进一步缩短基频主驱动脉冲的脉宽 并精 细地控制两个双色脉冲间的强度比和时延。我们的 结果也首次表明 利用惰性气体中产生的高次谐波, 将有望实现脉宽接近甚至小于一个原子时间单位 (1个原子时间单位等于 24as)的单个阿秒光脉冲。 作为一个比较,电子在氢原子中的第一玻尔轨道上 绕原子核一周的时间约为6个原子时间单位,即大 约150as。因此 脉宽接近原子时间单位的阿秒光脉 冲的产生将为观察原子、分子中的超快电子动力学 行为提供前所未有的高时间分辨率。最后还应该指 出,目前在世界上已有一些实验室具备我们在上述 研究中所涉及的激光条件,因此,该方案有望在不久 的将来被实验证实。

参考文献

- [1] M. Drescher et al. Nature (London), 2002, 419:803
- [2] Agostini P , DiMauro L F. Rep. Prog. Phys. , 2004 , 67 : 813
- [3] Brabec T , Krausz F. Rev. Mod. Phys. , 2000 , 72 : 545
- [4] Sola I J et al. Nature Phys. , 2006 , 2 : 319
- [5] Sansone G et al. Science , 2006 , 314 : 443
- [6] Zeng Z , Cheng Y , Song X et al. Phys. Rev. Lett. , 2007 , 98 :203901
- [7] Baltuška A et al. Nature (London), 2003, 421:611
- [8] Tong X M , Chu Shih-I. Phys. Rev. A , 2000 , 61 :021802
- [9] Carrera J J , Tong X M , Chu Shih-I. Phys. Rev. A , 2006 , 74 :023404
- [10] Pfeifer T et al. Opt. Lett. , 2006 , 31 : 975
- [11] Dudovich N et al. Nature Phys. , 2006, 2:781
- [12] Mauritsson J et al. Phys. Rev. Lett. , 2006 , 97 :013001
- [13] Oishi Y et al. Opt. Express, 2006, 14:7230

· 书评和书讯 ·

探索高等科教书店物理类书目推荐(VI)

作者	书名	定价	作者	书名	定价
H. Haken H. C. Wolf	原子和量子物理学 第6版(影印)	98.0	E. Kaxiras	固体中的原子和电子结构(影印)	69.0
G. Müller	弱相互作用规范理论 第3版(影印)	82.0	卢希庭	原子核物理(修订版)	36.0
S. Y. Lee	加速器物理学(影印)	50.0	杨福家	原子核物理(第二版)	22.0
赵籍九	粒子加速器技术	63.0	宁平治	原子核物理基础 核子与核	34.0
D. H. PERSKINS	高能物理学导论(影印)	68.0	黄时中	原子结构理论	24.0
M. F. LANNUNZIATA	放射性分析手册(第二版)	242.0	张钧	激光核聚变靶物理基础	46.0
丁大钊	中子物理学 – 原理. 方法与应用(上下册)	98.0	蔡章生	核动力反应堆中子动力学	25.0
阮可强	核临界安全	36.0	编委会	核爆炸物理概论(上下册)	56.0
肖伦	放射性同位素技术	38.0	徐克尊	高等原子分子物理学(第二版)	54.0
G. Maruhn	核模型(影印)	74.0	关洪	原子论的历史和现状	22.0
王祥云	核化学与放射化学	47.0	廖继志	近代原子核模型	4.6
潘自强	电离辐射防护和辐射源安全(上下册)	188.0	N. Majlis	磁性的量子理论(影印)	39.0
谢仲生	核反应堆物理分析(修订本)	26.0	I. N. Levine	量子化学 第5版(影印)	126.0
谢仲生	核反应堆物理理论与计算方法	22.0	陈亚孚	超晶格量子阱物理	28.0
汲长松	中子探测实验方法	25.0	M. Carmeli	旋量理论导论(影印)	28.0
田东风	中子核反应激发函数(含盘)	48.0	M. Remoissenet	孤子波 第2版(影印)	40.0
郭志敏	放射性固体废物处理技术	78.0	盛篪	硅锗超晶格及低维量子结构	46.0
任凤仪	国外核燃料后处理	66.0	黄念宁	量子真空物理导引	36.0
王淦昌	惯性约束核聚变	58.0	P. R. Holland	运动的量子理论(影印)	98.0
胡永明	反应堆物理数值计算方法	20.0	F. S. Levin	量子理论导论(影印)	126.0
我店时经营到过去菜为结合 以为到过了佐老和士夫院校师佐伊伊伊侯居昭复为宫宫 动河广士法老女店华尼式女母本沟					

我店以经营科技专著为特色,以为科技工作者和大专院校师生提供优质服务为宗旨,欢迎广大读者来店指导或来电查询。 电话 010 – 82872662、62556876、89162848 网址 http://www.explorerbook.com

电子邮箱 explorerbook@ vip. 163. com 邮政编码 :100080 通讯地址 北京市海淀区海淀大街 31 号 313 北京探索高等科教书店 联系人 徐亮、秦运良