

文章编号: 1001-3806(2012)03-0342-04

## 极紫外阿秒脉冲产生过程的本征原子相位分析

王超, 刘虎林, 田进寿, 徐向晏, 曹希斌, 温文龙, 王俊锋

(中国科学院西安光学精密机械研究所 瞬态光学与光子技术国家重点实验室 西安 710119)

**摘要:** 为了研究高次谐波极紫外阿秒脉冲产生过程中的谐波相位匹配问题, 基于光场电离高次谐波产生过程3步分析模型得出了高次谐波产生过程的理论描述解析式, 并以此分析了阿秒脉冲产生过程中的高次谐波本征原子相位。由研究可知, 除最高阶谐波外, 对同一阶高次谐波产生有贡献的电子均有两类——长轨迹电子和短轨迹电子, 各高次谐波长轨迹电子产生的谐波谱相之间几乎不存在线性关系, 而短轨迹电子产生的高次谐波谱相之间则存在着良好的线性关系。结果表明, 抑制各谐波长轨迹电子有助于产生更小脉宽阿秒脉冲。此结果对极紫外阿秒脉冲产生实验中的高次谐波相位匹配有重要的参考价值。

**关键词:** 非线性光学; 高次谐波产生; 隧穿电离; 本征原子相位

**中图分类号:** O437 **文献标识码:** A **doi:** 10.3969/j.issn.1001-3806.2012.03.014

## Analysis of intrinsic atomic phase in process of extreme ultraviolet attosecond pulse generation

WANG Chao, LIU Hu-lin, TIAN Jin-shou, XU Xiang-yan, CAO Xi-bin, WEN Wen-long, WANG Jun-feng  
(State Key Laboratory of Transient Optics and Photonics, Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710119, China)

**Abstract:** In order to analyze the phase matching of extreme ultraviolet high harmonics in the process of attosecond pulses generation, the analytic expressions were achieved based on the three-step analysis model for optical field ionization high-harmonic generation (HHG), and the harmonic spectral phase in the process of attosecond pulse generation was analyzed. It was found that, except the highest order harmonic, the spectral phase contribution of each harmonic consists of two sources of long trajectory electrons and short ones, and that, unlike the generated harmonics by the former, the spectral phase of those harmonics from the latter has regular phase relation among each other. The final conclusion is drawn that suppressing the long trajectory electrons can reduce the pulse width of attosecond pulses, which is of great significance to the issue of high harmonic phase matching in generation of attosecond pulses.

**Key words:** nonlinear optics; high-harmonic generation; tunneling ionization; intrinsic atomic phase

### 引言

到21世纪初,激光脉冲脉宽已经达到接近于3.5fs的极限水平(对780nm中心波长光脉冲,此脉冲包络仅包含1.3个载波周期),但时间分辨超快现象研究向更深层次的拓展,迫切需要能够提供可为之使用的探测手段——更短的光脉冲,这使得可见、近红外甚至其它电磁波段新型脉冲光源的开发都已在人们的研究探索之列。载波-包络相位锁定的超短超强光脉

冲的出现,使得光学已经从微扰非线性光学机制阶段进入非微扰非线性光学机制——强场非线性光学机制阶段<sup>[1]</sup>,强场光学高次谐波产生(high-harmonic generation, HHG)理论研究的不断深入,拉开了以2001年首次产生脉宽在亚飞秒量级单阿秒光脉冲为序幕的阿秒研究热潮<sup>[2-6]</sup>。目前,强场原子分子相互作用高次谐波产生已经被证明为行之有效的产生新光源——频率在极紫外电磁波段的阿秒量级脉宽光脉冲的主要方法。阿秒脉冲产生及相关应用技术的实现具有十分重要的科学意义和应用价值:高次谐波所处的极紫外电磁波段使得光脉冲脉宽从飞秒量级进入了阿秒量级,自诞生之日起这种新型光源便成为了一种新的探测手段,这样的探测手段使得研究阿秒量级微观超快瞬态现象成为可能<sup>[7-8]</sup>,如之前未曾触及的原子、分子中束缚电子的量子动力学过程和轻元素化学反应研究,以

基金项目:国家自然科学基金面上基金资助项目(11175198);国家自然科学基金青年基金资助项目(60901036)

作者简介:王超(1980-),男,助理研究员,现从事高次谐波阿秒光脉冲产生和应用方面的研究。

E-mail: igodwang@gmail.com

收稿日期:2011-09-14;收到修改稿日期:2011-10-12

及电子及核子运动的触发和跟踪都已在人们的研究内容之列。作为阿秒脉冲产生的物理机制,光场电离高次谐波产生过程已经决定了这样一个事实:无论采用何种具体类型的阿秒脉冲产生方法,脉冲产生过程中的谐波相位匹配问题都是不可回避的,它的作用正如近红外超短飞秒激光脉冲产生过程中的锁模技术。因此,分析阿秒脉冲产生过程中的谐波相位问题,对阿秒脉冲的产生及应用都有着重要的研究意义。

在强场原子分子相互作用高次谐波产生过程中,谐波谱相由几何相位和本征原子相位两部分共同决定。其中前者来源于激发场——基频高斯光场等相位面相对于平面波场的几何偏离,后者来源于对谐波产生有贡献的电离自由电子在外光场中的运动时间。本文中主要分析后者。

### 1 强光场隧穿电离

根据与之作用的光强度的大小(或光电场的强弱)物质非线性光学效应可大致分为 3 种物理机制:微扰非线性光学物理机制、强场非线性光学物理机制以及相对论性非线性光学物理机制<sup>[9]</sup>,其中后两者又称光场电离非线性光学机制。对光场电离非线性光学物理机制,外加激光场光场强度已经可与原子中外层电子所受到的库仑场相比拟或者更强,在此影响下库仑势阱状态发生显著的变化,此时这样外层电子便可在外电场的半个振动周期内通过量子隧穿效应甚至是无障碍电离的形式脱离原子势的束缚而成为自由电子。当前用以产生阿秒光脉冲的高次谐波产生过程则属于光场电离机制中的原子隧穿电离。

线偏振强激光场隧穿电离如图 1 所示。在脉冲中部当光电场振幅分别在偏振方向达到峰值的时刻,处于光场中原子内部的电子所感受到的势能分布将出现最大程度的倾斜(这里为简明起见,势能以 2 维平面表示),即图 1 中 a 与 b 所示。当然,从这两个时刻势能的分布也可看出:势能面的倾斜方向将直接由电场的振动方向决定,而其倾斜的程度则由电场在那一时刻的振动幅度所决定。而对距离脉冲中部较远的时刻,比如图中所示的  $E(t) \approx 0$  的时刻 c,位于原子势阱

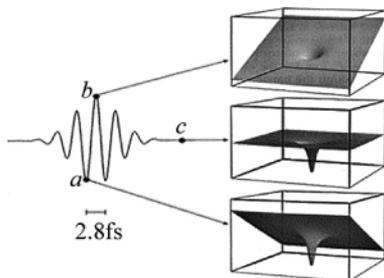


Fig. 1 Effect of linearly polarized laser on atomic potential energy distribution

中的电子其所感受到的势能分布仅仅受到微小的扰动。也就是说,处于强光场中的原子系统,其内部电子在不同的时刻所感受到的势能分布有很大的变化,势能面的严重倾斜将导致势垒宽度在某一方向上的减小,而使电子可能通过量子隧穿效应电离为自由电子。对圆偏振光情形,电子所感受到的势能面的倾斜度不变,但其将随着电场的变化(或时间)而旋转。已有理论及实验表明,只有线偏振或偏振度较高的激光场才可以有显著的高次谐波产生<sup>[3,8,10]</sup>。

### 2 高次谐波本征原子相位

关于高次谐波产生过程的理论描述,最有代表性的理论分析模型便是由 CORKUM 从半经典物理学角度提出的高次谐波产生 3 步理论模型<sup>[10]</sup>,如图 2 所示。图中虚线表示外光场不存在时原子内部电子感受到的电势分布,而实线则代表强光场影响下有利于电子隧穿电离的电势分布,  $W_b$  为原子在无场空间的电离能。基于此模型,隧穿电离高次谐波产生整个过程可以分解为如下 3 步物理过程: (1) 原子内部电子通过隧穿电离机制而成为自由电子(见图中①),电子刚电离时的速度近似为 0; (2) 自由电子一经产生,即刻在外光场中运动(见图中②),此时原子核对电子的作用力可以忽略不计,此运动可用经典动力学理论描述; (3) 一些特定时刻电离产生的自由电子在光场改变方向时能够与原子核重新结合,假定此时其在外场中获得动能为  $W_{kin}$ ,则两者结合后电子回到基态并以光子形式释放能量产生高次谐波  $\hbar\omega_x = W_{kin} + W_b$ (见图中③),这里  $\omega_x$  为极紫外高次谐波的频率,  $\hbar$  为普朗克常量。

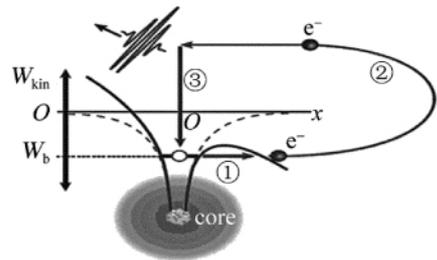


Fig. 2 Three-step analysis model for high-harmonic generation

在原子坐标系中,将原子核的位置设为坐标的零点。设电子电离的时间为  $t = t_i$ ,根据上述 3 步模型可知,电子在外光场中运动的初始条件为:  $v(t_i) = 0$ ,  $x(t_i) = 0$ 。由于产生高次谐波的自由电子在光场中运动的范围远小于光波的波长,因而为计算简单起见,忽略光场空间变化而假设线偏振光场为  $\vec{E}(t) = E_0 \times \cos(\omega_1 t) \hat{x}$ 。据此,电子运动可作如下的描述:

$$\dot{v} = \frac{e}{m_e} E(t) \quad (1)$$

式中  $e$  为电子电量,  $m_e$  为电子质量。由(1)式进一步

可得:

$$|v(t)| = \frac{eE_0}{m_e\omega_1} [\sin(\omega_1 t) - \sin(\omega_1 t_i)] \quad (2)$$

$$x(t) = \frac{eE_0}{m_e\omega_1^2} [\cos(\omega_1 t) - \cos(\omega_1 t_i) + \omega_1(t - t_i) \sin(\omega_1 t_i)] \quad (3)$$

式中  $\omega_1$  表述所用激光场的载波频率, 则对于某一电子电离时间  $t_i$ , 自由电子返回原子核时间  $t_r$  即为下列关系式大于  $t_i$  的最小值解:

$$x(t) = 0 \quad (4)$$

也即:

$$\cos(\omega_1 t) = \cos(\omega_1 t_i) - \omega_1(t - t_i) \sin(\omega_1 t_i) \quad (5)$$

在忽略倍数关系的条件下, (5) 式的左边即为所用光场的描述函数, 右边即为光场函数在时刻  $t = t_i$  的切线函数。这意味着电子返回时间  $t_r$  即为两函数交点的时间坐标。在得出  $t_r$  的基础上, 电离电子在外光场中的自由运动时间  $\tau = t_r - t_i$  及其返回原子核时的动能  $W_{kin}(t_i)$  即可分别求得:

$$W_{kin}(t_i) = \frac{e^2 E_0^2}{2m_e \omega_1^2} [\sin(\omega_1 t_r) - \sin(\omega_1 t_i)]^2 = 2U [\sin(\omega_1 t_r) - \sin(\omega_1 t_i)]^2 \quad (6)$$

$$t_i = \frac{1}{\omega_1} \arctan \left[ \frac{-\omega_1 \tau + \sin(\omega_1 \tau)}{1 - \cos(\omega_1 \tau)} \right] \quad (7)$$

式中  $U = e^2 E_0^2 / (4m_e \omega_1^2)$  为电子在外光场中的质动能。

由 (3) 式、(5) 式与 (6) 式可知, 自由电子在给定外加光场中的运动轨迹  $x(t)$ 、返回的时间  $t_r$  以及返回时的能量  $W_{kin}(t_i)$  都依赖于其产生的时间  $t_i$ 。光场的周期性使得相关分析可以仅考虑半个周期  $0 \leq \omega_1 t_i \leq \pi$ , 也即  $0 \leq t_i \leq 0.5T$ 。根据前面对电子返回时间求解方法的简明分析, 电离时间位于  $0$  与  $0.25T$  之间的电子可以在外光场的作用下返回原子核, 而电离时间位于  $0.25T$  与  $0.5T$  之间的电子则不具备返回原子核的可能性, 如图 3 与图 4 所示,  $t_i = 0$ ,  $t_i = 0.05T$  和  $t_i = 0.10T$  时刻的电离电子存在满足  $x(t) = 0$  的解, 而  $t_i = 0.35T$  时刻的电子则不然。同时亦可发现,  $t_i = 0.25T$  时刻的电子也不能返回原子核而产生高次谐波。实际上, 对于临近  $t = 0.25T$  的时间区域, 较弱的光场已不再具备产生强场原子隧穿电离的基本条件。因此, 对高次谐波产生有贡献的电子来源于隧穿电离发生在光场峰值附近, 且光场由强变弱的时间区域内的电子。

不同时刻隧穿电离电子的返回能量及返回时间分别如图 5、图 6 所示。联合两图可知: 不同时刻电离产生的自由电子也可能具有相同的返回能量, 如  $t_1$  与

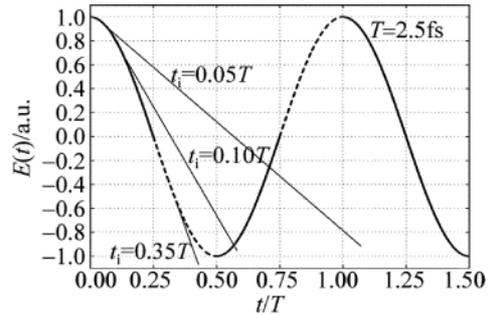


Fig. 3 Electron return time during the process of HHG

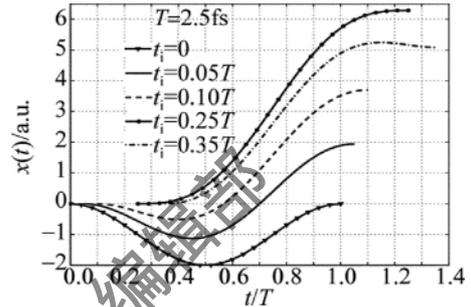


Fig. 4 Electron displacement against atomic nucleus during the process of HHG

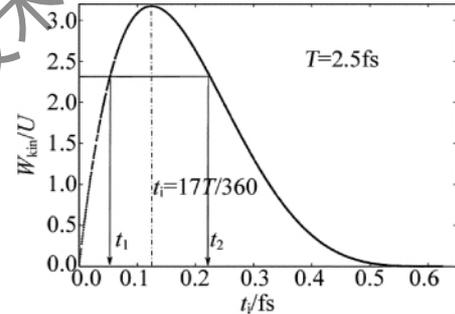


Fig. 5 Electron return energy during the process of HHG

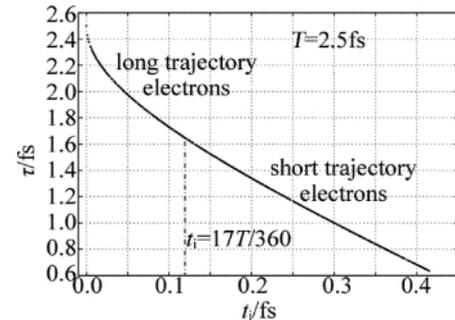


Fig. 6 Electron flight time during the process of HHG

$t_2$  两个时刻。这就是说, 除最高阶谐波之外, 对同一阶高谐波产生有贡献的电子均有两类: 一类电子其电离时刻较早, 但返回原子核的时刻较晚, 因而其在外光场中的飞行时间  $\tau = t_r - t_i$  较长, 此类电子被称为长轨迹电子; 而另一类电子则具有相反的情形, 被称为短轨迹电子。图 5 数值计算结果显示: 对最高阶谐波有贡献的电子其电离时间为  $t_i = 17T/360$ , 返回动能为  $W_{kin}(t_i) = 3.17U$ 。根据参考文献 [11] 和参考文献 [12], 对同一阶谐波产生有贡献的两类电子, 其对谐波

谱相的贡献正比于自由电子在光场中飞行时间  $\tau$ 。据此由图6可知,各长轨迹电子产生的高次谐波其谐波谱相之间几乎不存在线性关系,而短轨迹电子产生的高次谐波谱相之间则存在着良好的线性关系。因此,在高次谐波产生阿秒脉冲群或单阿秒脉冲实验中,如果能采用其它辅助实验条件抑制长轨迹电子对高次谐波产生的贡献,那么这将非常有利于产生宽度更小的阿秒脉冲。

在考虑驱动光场相位的情况下,也即  $\vec{E}(t) = E_0 \cos(\omega_1 t + \varphi) \hat{x}$ ,由上面  $\varphi = 0$  情况下高次谐波产生过程理论描述及相关参量的求解过程可知,光场相位  $\varphi$  仅影响原子内部电子隧穿电离时间  $t_i$  及返回原子核的时间  $t_r$ (相对于光场函数坐标系),电子自由运动时间  $\tau$  及返回动能  $W_{\text{kin}}$  仍将保持不变。因此,上述理论分析可视为高次谐波产生过程的通用解析描述。

### 3 结论

根据高次谐波产生过程的理论描述解析式,分析了阿秒脉冲产生过程中的高次谐波本征原子相位,得到结论:除最高阶谐波之外,对同一阶高次谐波产生有贡献的电子均有两类——在外光场中飞行时间较长的长轨迹电子以及飞行时间相对较短的短轨迹电子,各长轨迹电子产生的高次谐波其谐波谱相之间几乎不存在线性关系,而短轨迹电子产生的高次谐波谱相之间则存在着良好的线性关系。结果表明:抑制各高次谐波长轨迹电子有助于产生更小脉宽阿秒脉冲。本文中的理论分析结果对产生极紫外阿秒脉冲实验中的高次谐波相位匹配有重要的参考价值。

文章中部分概念的理解得到了 CORKUM P B 教

授(National Research Council of Canada)在2009年第2届阿秒物理国际会议期间的指点,在此特别表示感谢。

### 参考文献

- [1] KRAUSZ F, IVANOV M. Attosecond physics[J]. *Reviews of Modern Physics*, 2009, 81(1): 163-234.
- [2] SALIERES P, CARRE B, DEROFF L L, *et al.* Feynman's path-integral approach for intense-laser-atom interactions[J]. *Science*, 2001, 292(5518): 902-905.
- [3] CHANG Z H. Single attosecond pulse and xuv supercontinuum in the high-order harmonic plateau[J]. *Physical Review*, 2004, A70(4): 043802/1-043802/8.
- [4] AGOSTINE P, DIMAURO L F. The physics of attosecond light pulses[J]. *Reports on Progress in Physics*, 2004, 67(6): 813-855.
- [5] SANSONE G, BENEDETTI E, CALEGARI F, *et al.* Isolated single-cycle attosecond pulses[J]. *Science*, 2006, 314(5798): 443-446.
- [6] GOULIELMAKIS E, SCHULTZE M, HOFSTETTER M, *et al.* Single-cycle nonlinear optics[J]. *Science*, 2008, 320(5883): 1614-1617.
- [7] CORKUM P B, KRAUSZ F. Attosecond science[J]. *Nature Physics*, 2007, 3(3): 381-387.
- [8] UBERACKER M, UPHUES Th, SCHULTZE M, *et al.* Attosecond real-time observation of electron tunnelling in atoms[J]. *Nature*, 2007, 446(7135): 627-632.
- [9] BRABEX T, KRAUSZ F. Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics[J]. *Reviews of Modern Physics*, 2000, 72(2): 545-591.
- [10] CORKUM P B. Plasma perspective on strong-field multiphoton ionization[J]. *Physics Review Letters*, 1993, 71(13): 1994-1997.
- [11] SALIERES P, L' HULLIER A, LEWENSTEIN M. Coherence control of high-order harmonics[J]. *Physics Review Letters*, 1995, 74(19): 3776-3779.
- [12] ANTOINE Ph, L' HULLIER A, LEWENSTEIN M. Attosecond pulse trains using high-order harmonics[J]. *Physics Review Letters*, 1996, 77(7): 1234-1237.
- [13] SONG Y L, FANG G Y, WANG Y X, *et al.* Excited state absorption performance and optical limiting properties of new organometallic fullerene-C<sub>60</sub>[J]. *Applied Physics Letters*, 1999, 74(3): 332-334.
- [14] SHEIK B M, SAID A A, WEI T H, *et al.* Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam[J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1990, QE26(4): 760-769.
- [15] LI L, HUANG Y Q, LIU S Z, *et al.* Synthesis of novel nonlinear optical material of 5-(2-methylthio-4-methyl-5-pyrimidinyl)-2,4-pentadienyl sorbate[J]. *Journal of Luoyang Institute of Technology*, 2010, 31(4): 101-104(in Chinese).
- [16] SHEIK B M, SAIDA A, STRYLAND E W. High-sensitivity, single-beam  $n_2$  measurements[J]. *Optics Letters*, 1989, 14(17): 955-957.

(上接第333页)

polydiacetylene nanocrystals: nonlinear optical properties and chain orientation[J]. *Journal of Physical Chemistry*, 1999, B103(50): 11050-11056.

- [10] ZHOU N Z, ERIKA F, ZHAO Y M. Preparation of fullerene-polyene nanospheres via thermally induced solid-state polymerization[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2005, 127(41): 14154-14155.
- [11] CHEN Q Y, LI K, WANG Z Y, *et al.* Cross-linked C<sub>60</sub> polymer breaches the quantum gap[J]. *Nano Letters*, 2004, 4(9): 1673-1675.
- [12] SUN Y P, LAWSON G E, RIGGS J E, *et al.* Photophysical and nonlinear optical properties of C<sub>60</sub> fullerene derivatives[J]. *Journal of Physical Chemistry*, 1998, A102(208): 5520-5528.