

# 初始粒子数布居对高次谐波的影响

李学信 徐至展 张文琦

(中国科学院上海光机所强光光学开放研究实验室 上海 201800)

**提要** 通过数值求解一维短程势含时薛定谔方程,研究了初始粒子数布居对谐波辐射的影响。结果表明,当中等强度的激光( $10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>)作用于具有较高电离能的原子或离子时,如果初始粒子数全部位于基态,这时的原子或离子不发生电离,只能得到低次谐波,如果部分粒子位于基态而部分粒子位于激发态,这时高次谐波增强,低次谐波受到抑制,原子发生部分电离,当初始粒子数全部位于激发态时,谐波转换效率降低,谐波次数减少,原子全部电离,这说明部分电离有利于谐波辐射,在一定程度上证明了半经典两步模型的假设<sup>[1,2]</sup>。

**关键词** 高次谐波,初始粒子数布居,一维短程势含时薛定谔方程

## 1 引言

近年来,强场高次谐波一直是强场原子物理学中一个非常活跃的研究课题<sup>[1~10]</sup>。它不仅能产生激光新谱线拓宽激光谱线范围,同时也是少数几个真正可行的能产生极紫外及 X 射线激光的方法之一。已有几个实验研究组在实验上获得了波长短于 10 nm 的谐波辐射<sup>[3~5]</sup>。为达到真正实用的目的,必须设法提高谐波的转换效率,如采用双色相干场<sup>[6]</sup>,由于实验技术上的困难,目前还没有真正获得具有高转换效率的高次谐波辐射。为理解谐波辐射过程以及为实验提供理论基础,对谐波理论方面进行了大量工作<sup>[7,8]</sup>,出发点为以无外场时的基态波函数为初始条件,然后数值求解含时薛定谔方程,求得任何时刻的波函数,进而求出谐波辐射谱。我们知道,初始粒子数布居对计算结果影响很大,在激光与原子作用过程中,部分原子可能发生电离,部分原子可能通过多光子吸收或热电子碰撞而达到激发态,这种粒子数布居可能对谐波辐射产生巨大影响,因而在理论处理中,认为初始粒子数全部位于基态是不全面的。本文通过数值求解一维短程势含时薛定谔方程,研究了初始粒子数布居对谐波辐射的影响,并对一些观察到离子谐波的实验进行了不同解释<sup>[9]</sup>。

## 2 一维短程势模型以及含时薛定谔方程的数值解

对线偏振光,用一维势模型是合理的,同时也是方便的。计算中选取势的表达式为  $V(x) = -\frac{be^{-\gamma|x|}}{\sqrt{a^2+x^2}}$ , 其中,  $\gamma = 0.5$ , 可以看出只有在  $x = 0$  的附近,库仑势才有较大的影响,调节  $a$  和  $b$  的值可得到不同的原子势。在计算中取  $a = 1$  和  $b = 2$ , 采用原子单位和单电子近似, 将得到如

下的定态薛定谔方程

$$\left(-\frac{1}{2}\frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{be^{-\gamma|x|}}{\sqrt{a^2+x^2}}\right)\Psi(x) = \epsilon\Psi(x) \quad (1)$$

其中,  $\epsilon$  为本征能量。通过数值求解方程(1), 可以得到一系列本征能量  $\epsilon_n$  和本征波函数值  $\Psi_n(x)$ , 共有 3 个束缚态, 其能量分别为  $E_0 = -1.12814$ ,  $E_1 = -0.239992$  和  $E_2 = -0.0241473$ , 相应的波函数分别用  $\Psi_0(x)$ ,  $\Psi_1(x)$  和  $\Psi_2(x)$  表示。在外激光场  $E(t) = E \times f(t)\sin\omega t$  作用下, 含时薛定谔方程为

$$i\frac{\partial\Psi(t,x)}{\partial t} = \left[-\frac{1}{2}\frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{be^{-\gamma|x|}}{\sqrt{a^2+x^2}} + xEf(t)\sin\omega t\right]\Psi(t,x) \quad (2)$$

其中  $f(t)$  为脉冲包络, 可以根据情况选取, 在我们的计算中有如下形式

$$f(t) = \begin{cases} \sin^2\frac{t\pi}{2t_1} & 0 \leq t \leq t_1 \\ 1 & t_1 < t \leq t_2 \end{cases} \quad (3)$$

其中  $t_1 = 10$ ,  $t_2 = 20$ , 即光脉冲有 10 个周期的上升沿和 10 个周期的强度稳定段。求解的方法是利用前面求出的基态波函数  $\Psi_0(x)$  作初始条件, 然后数值求解方程(2), 可以得到各个时刻总的波函数  $\Psi(t_j, x_i)$ , 根据求得的波函数  $\Psi(t_j, x_i)$  可以得到电偶极矩的期待值  $d(t_j) = \sum_i \Psi^*(t_j, x_i)x_i\Psi(t_j, x_i)\delta x$ , 其中  $t_j$  和  $x_i$  分别为数值计算中的第  $j$  个时间点和第  $i$  个空间点,  $\delta x$  为空间步长。对  $d(t_j)$  进行傅里叶变换就可得到光辐射振幅  $d(\Omega) = \sum_j d(t_j)e^{-i\Omega t_j}\delta t$ ,  $\delta t$  为时间步长。而  $|d(\Omega)|^2$  就是相应的光谱强度。这里把初始条件取为束缚态波函数的叠加, 而不是通常的基态波函数

$$\Psi(x) = g\Psi_0(x) + e_1\Psi_1(x) + e_2\Psi_2(x) \quad (4)$$

其中  $g, e_1$  和  $e_2$  分别为电子在基态、第一和第二激发态出现的几率振幅, 满足  $g^2 + e_1^2 + e_2^2 = 1$ 。计算中取  $e_2 = 0$ ,  $E = 0.07$  (高次谐波实验中的典型激光强度) 和  $\omega = 0.056$  (波长 800 nm)。分别对  $g = 1, e_1 = 0$ ;  $g = \sqrt{0.75}, e_1 = \sqrt{0.25}$ ;  $g = e_1 = \sqrt{0.5}$ ;  $g = \sqrt{0.25}, e_1 = \sqrt{0.75}$  和  $g = 0, e_1 = 1$  五种情况进行了计算。计算结果如图 1~5 所示, 其中(a) 为谐波信号, 强度以对数表示, 图中只标出了指数部分, 即 -8 表示  $10^{-8}$  等。

### 3 计算结果与讨论

$g = 1$  时的计算结果如图 1 所示, 由图 1(b) 可以看出, 这时的原子不发生电离, 粒子数布居在基态和第一激发态之间快速转移, 只有低次谐波产生, 这说明当中等强度激光作用于具有高电离能的原子或离子时, 如果初始粒子数全部位于基态, 这时的外场不足以引起原子的电离, 外场相对内部库仑势而言是微扰的, 只能产生低次谐波。图 2 对应于  $g = \sqrt{0.75}, e_1 = \sqrt{0.25}$  时的结果, 由图 2(b) 可以看出, 这时的波函数已不再归一化, 即有部分波包扩散到所取空间范围以外, 可认为原子发生了电离, 基态上的粒子数变化不大, 而第一激发态上的粒子数布居很快下降为零, 因为第一激发态的能量为  $E_1 = -0.239992$ , 外场很容易导致位于第一激发态上的原子发生电离, 这时的谐波辐射具有高次谐波, 而且转换效率较高。同时也可看出, 低次谐波强度受到抑制, 这个结果表示, 原子的部分电离有利于谐波辐射, 即高次谐波是由原子电离后产生的自由电子再次回到其母离子时产生的, 证明了半经典两步模型的正确性<sup>[1,2]</sup>。图 3, 图 4 分别对应于  $g = e_1 = \sqrt{0.5}$  和  $g = \sqrt{0.25}, e_1 = \sqrt{0.75}$  时的计算结果, 可以看出除了低次谐波进一步受到抑制, 高次谐波转换效率进一步提高, 原子电离更快以外, 与图 2 的情况基本相同,

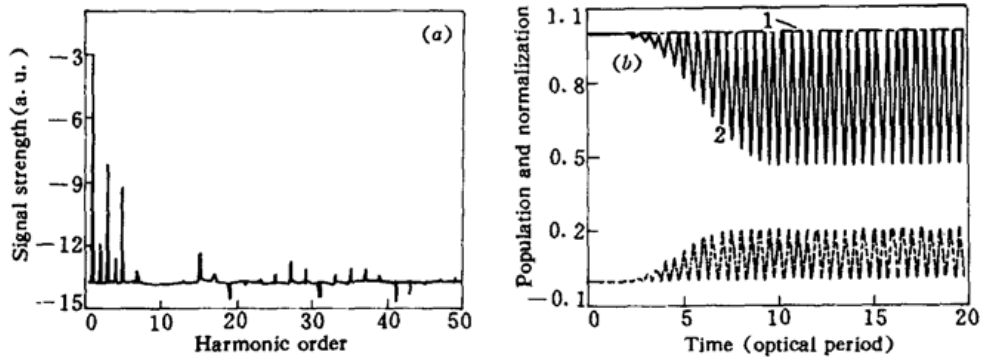


图 1 (a) 谐波辐射谱; (b) 波函数的归一化(1)与基态(2)和第一激发态(3)的粒子数布居  
 $g = 1, e_1 = 0, e_2 = 0$

Fig. 1 (a) Harmonic spectrum; (b) Normalization of the wavefunction (1) and population of the ground state (2) and the 1st excited state (3) for  $g = 1, e_1 = 0, e_2 = 0$

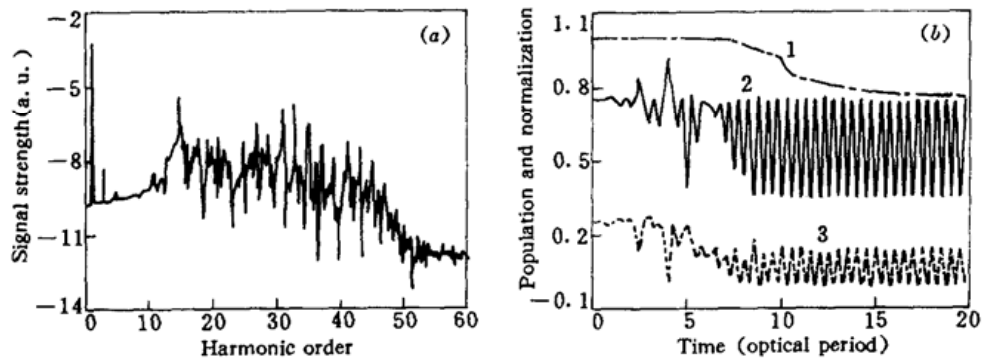


图 2 (a) 谐波辐射谱; (b) 波函数的归一化(1)与基态(2)和第一激发态(3)的粒子数布居  
 $g = \sqrt{0.75}, e_1 = \sqrt{0.25}, e_2 = 0$

Fig. 2 (a) Harmonic spectrum; (b) Normalization of the wavefunction (1) and population of the ground state (2) and the 1st excited state (3) for  $g = \sqrt{0.75}, e_1 = \sqrt{0.25}$  and  $e_2 = 0$

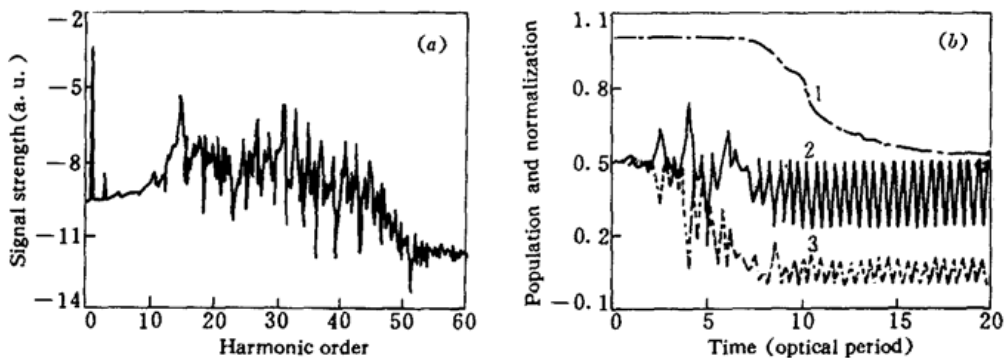


图 3 (a) 谐波辐射谱; (b) 波函数的归一化(1)与基态(2)和第一激发态(3)的粒子数布居  
 $g = \sqrt{0.5}, e_1 = \sqrt{0.5}, e_2 = 0$

Fig. 3 (a) Harmonic spectrum; (b) Normalization of the wavefunction (1) and population of the ground state (2) and the 1st excited state (3) for  $g = \sqrt{0.5}, e_1 = \sqrt{0.5}$  and  $e_2 = 0$

这说明适当的电离都有利于谐波辐射。对  $e_1 = 1$  的结果由图 5 所示,从图 5(b) 可以看出,原子电离很快,在前 8 个光周期原子全部电离,这时的谐波辐射转换效率很低,谐波次数不高,而且

背景噪声很大。原因是谐波是由电子返回基态产生的,当原子完全电离时,电子远离原子核,很少有机会返回基态,因此只能获得较弱的谐波信号。这说明原子的完全电离不利于谐波辐射,这也说明在实验上单靠提高激光强度来获得具有高转换效率的高次谐波是行不通的。综上所述所有结论,可以认为适当的电离有利于谐波辐射,对于具有高电离能的原子或离子可通过改变初始离子数布居来获得具有高转换效率的高次谐波,同时也对一些观察到离子谐波的实验具有一些不同的看法。同时观察到原子谐波和离子谐波的实验只有少数几个<sup>[9,10]</sup>,实验中采用高强度激光(在  $10^{16} \text{ W/cm}^2$  以上),这个强度足以引起工作气体的电离或多重电离,进而产生离子。理论上表明高次谐波是由离子产生的,理论处理上认为离子处于基态,然后利用离子的饱和激光强度进行计算。我们认为,离子处于许多高能电子的包围之中,离子不可避免地要和电子发生碰撞,同时也可能吸收外场能量而达到激发态。另一方面,原子电离产生的电子会大大降低激光强度,使离子根本无法感受到高强度激光,因此从离子获得谐波的过程可能不是直接从基态而是从基态和激发态的叠加态获得的。

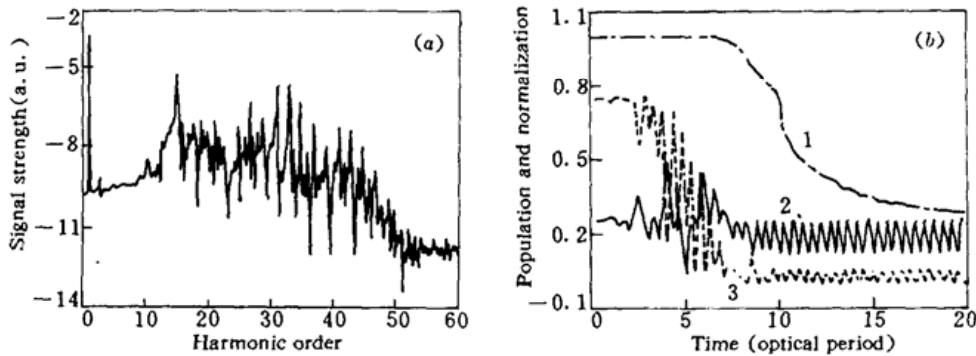


图 4 (a) 谐波辐射谱;(b) 波函数的归一化(1)与基态(2)和第一激发态(3)的粒子数布居

$$g = \sqrt{0.25}, e_1 = \sqrt{0.75}, e_2 = 0$$

Fig. 4 (a) Harmonic spectrum; (b) Normalization of the wavefunction (1) and population of the ground state (2) and the 1st excited state (3) for  $g = \sqrt{0.25}, e_1 = \sqrt{0.75}$  and  $e_2 = 0$

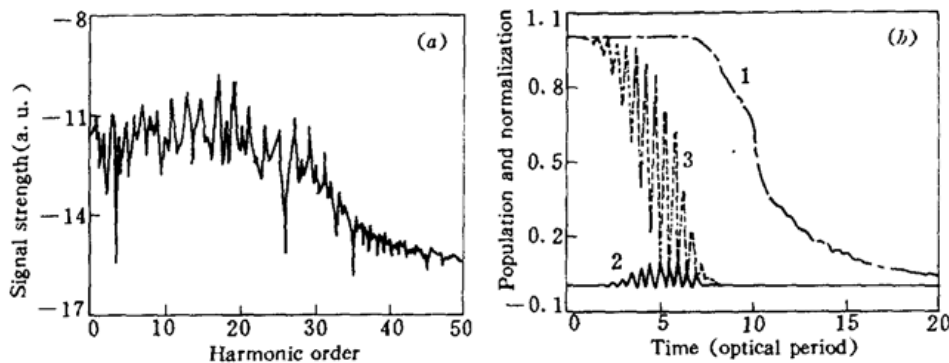


图 5 (a) 谐波辐射谱;(b) 波函数的归一化(1)与基态(2)和第一激发态(3)的粒子数布居

$$g = 0, e_1 = 1, e_2 = 0$$

Fig. 5 (a) Harmonic spectrum; (b) Normalization of the wavefunction (1) and population of the ground state (2) and the 1st excited state (3) for  $g = 0, e_1 = 1$  and  $e_2 = 0$

## 参 考 文 献

- 1 P. B. Corkum. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, 71 : 1994
- 2 K. J. Schafer, B. Yang, L. F. Dimauro *et al.*. Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff.

- Phys. Rev. Lett.*, 1993, **70** : 1599
- 3 J. J. Macklin, J. D. Kmetec, C. L. Gordon III. High order harmonic generation using intense femtosecond pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, **70** : 766
  - 4 A. L'Huillier, P. Balcou. High order harmonic generation in rare gases with a 1-ps 1053 nm laser. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, **70** : 774
  - 5 J. Zhou, J. Peatross, M. M. Murnane *et al.*. Enhanced high harmonic generation using 25 fs laser pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 1996, **76** : 752
  - 6 S. Watanabe, K. Kondo, Y. Nabekawa *et al.*. Two-color phase control in tunneling ionization and harmonic generation by a strong laser field and its third harmonic. *Phys. Rev. Lett.*, 1994, **73** : 2692
  - 7 J. H. Eberly, Q. Su, J. Javanainen. Nonlinear light scattering accompanying multiphoton ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 1989, **62** : 881
  - 8 J. L. Krause, K. J. Schafer, K. C. Kulander. High order harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime. *Phys. Rev. Lett.*, 1992, **68** : 3535
  - 9 N. Sarukura, K. Hata, T. Adachi *et al.*. Coherent soft X-ray generation by the harmonics of an ultrahigh power KrF laser. *Phys. Rev. A*, 1991, **43** : 1669
  - 10 S. G. Preston, A. Sanpera, M. Zepf *et al.*. High order harmonics of 248.6 nm KrF laser from helium and neon ions. *Phys. Rev. A*, 1996, **53** : R31

## The Effect of Initial Population on the Generation of High-order Harmonics

Li Xuexin Xu Zhizhan Zhang Wenqi

(Laboratory for High Intensity Optics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics,  
Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800)

**Abstract** By solving the time-dependent Schrödinger equation with a one-dimensional short range potential, the effect of initial population on the high harmonics generation was studied. The results reveal that when a moderate intensity laser acts on an atom or ion of high ionizational potentials, if the initial population is on the ground state, the atom or ion will not be ionized, only lower harmonics can be obtained. If the initial population is partly on the ground state and partly on the excited states, the atom will be ionized partly, and the lower harmonics will be weak and the high harmonics be increased. If the initial population is on the excited states, the atom will be ionized completely, and the orders and the conversion efficiency will be lower. These results show that partial ionization of the atom will enhance the harmonic generation, and the two-step semiclassical model is confirmed to some extent<sup>[1,2]</sup>.

**Key words** high harmonics, initial population, the time-dependent Schrödinger equation with one dimensional short range potential