

强激光啁啾脉冲中原子的高次谐波辐射

胡素兴 徐至展

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

摘 要 数值计算了强激光啁啾脉冲中原子的谐波辐射。啁啾效应使谐波发生移动和展宽, 即相对于无啁啾脉冲情形, 负啁啾脉冲中谐波平台的前半部分发生兰移, 而后半部分谐波谱则发生红移。当正啁啾脉冲时, 谱移动则正好相反。无论正负啁啾, 所有的谐波谱均被展宽。若正确的相位条件被满足, 个别谐波谱宽支持亚飞秒脉冲的产生。这些结果与最近的啁啾谐波实验符合得很好, 但后半部分谐波谱的反向移动在该实验中并没有观察到。本文的计算表明, 人们可以利用激发脉冲的频率啁啾进行高次谐波的调谐、并有可能获得超短的软 X 射线辐射。

关键词 啁啾脉冲, 高次谐波, 软 X 射线辐射。

1 引 言

强激光与物质相互作用能产生高次谐波。非微扰的相互作用模型能洞察其作用机理。高次谐波已从单体气体靶^[1-5]、分子^[6]和团簇^[7]中产生。气体靶通常被选作非线性介质。高达 135 次谐波已从 L'Huillier 和 Balcou 的实验中观察到^[1]; Macklin 等人利用 125 fs、806 nm 的激光作用在氖靶上产生了 109 级谐波^[2]; 目前为止最短的谐波为 2.7 nm, 它是美国 Michigan 超快实验组利用 26 fs 超短激光脉冲照射 He 靶产生的^[3]; Zhou 等人用超短(25 fs)脉冲与多种惰性气体作用产生了很高的谐波转换效率^[4]。

对高次谐波辐射的理论描述已经作了很多工作^[8-13]。Krause 等人^[10]用三维的薛定谔(Schrödinger)方程数值解给出了谐波平台的截止规则, 即 $I_p + 3.2U_p$, 这儿 I_p 是原子的电离势, $U_p \sim \lambda^2 I$ 是电子在激光场中的有质动力能, λ 和 I 分别是激光波长和光强。Kulander 等人建议用一个经典图像来理解这一截止规则^[11]。1993 年 Corkum 提出了一个半经典的三步过程来解释它^[12], 即电子首先隧穿到连续态, 然后从静止开始在激光场中作经典运动, 最后重新与离子复合而发射谐波。这模型给“ $3.2U_p$ ”一个清楚的物理意义, 即自由电子在激光场中所能获得的最大平均运动能。全量子的描述得出了相同的结果^[13]。到目前为止, 长脉冲(大于 100 fs)谐波实验几乎都能由这些理论模型解释。

啁啾是目前产生高功率激光的一个重要技术^[14]。频率啁啾的激光脉冲已被使用来控制振动波包的演化^[15]。本文将通过数值求解含时薛定谔方程, 研究啁啾对谐波辐射的影响。文中通过作啁啾模型数值计算, 并对结果进行了讨论。

2 啁啾模型

在高功率激光器中,啁啾有意或无意地被引入。其中啁啾的一个源来自于自相位调制(SPM)效应。Kondo 等人已在 100 fs 的脉冲中观察到自相位调制效应^[5]。由于自相位调制引起激光的频率偏移正比于负的光强的时间微分。其公式为

$$E(t) = E_0 f(t) \cos \left[\left[\omega_0 \mp \alpha dI(t)/dt \right] t \right] \quad (1)$$

式中 E_0 、 ω_0 分别为脉冲的峰值电场强度和中心频率, $f(t)$ 为脉冲形状。 $I(t) \sim |E(t)|^2$ 为 t 时刻的激光光强。符号“ \mp ”和“ \pm ”分别对应正负啁啾。参数 α 表征啁啾的程度。在该啁啾的强激光脉冲中,单原子的运动用含时的薛定谔方程来描述。在通常的单电子和偶极近似下,一

维相互作用薛定谔方程表示如下(为方便,取原子单位 $m = e = \hbar = 1$)

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

其中模型原子势选为软库仑势 $V(x) = -Q/\sqrt{1+x^2}$ ^[16]。在计算中,势深参数 $Q = 1.2952$ 以便模拟 He 原子。在快速傅里叶变换技术辅助下,利用短时传播子算法^[17-18]来求解方程(2),电子的偶极加速度 $a(t)$ 在每一时间步长上作如下计算

$$a(t) = \langle \Psi(x, t) | -\frac{\partial H}{\partial x} | \Psi(x, t) \rangle \quad (3)$$

式中 H 为系统的哈密顿函数。将 $a(t)$ 作傅里叶分析,便得到原子的相对谐波谱。在计算中,选取一类高斯型脉冲,即 $f(t) = \sin^2(\pi/T_p)$, 其中 T_p 为整个脉冲持续。激光脉冲的中心波长为 814 nm, 峰值光强为 $I_0 = 5 \times 10^{14}$ W/cm² 其远小于该相互作用系统的饱和光强。

3 结果和讨论

图 1 是原子分别在正啁啾、无啁啾和负啁啾激光脉冲中单原子谐波谱的比较,啁啾参数

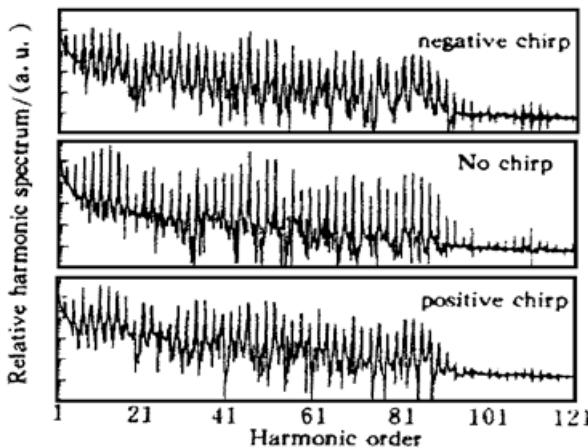


Fig. 1 Harmonic spectra emitted by a single atomic helium respectively irradiated by the negatively chirped, no chirped and positively chirped pulses. The laser center wavelength is $\lambda_0 = 814$ nm, the peak intensity $I_0 = 5 \times 10^{14}$ (W/cm²) and the pulse duration $T_p = 20$ optical cycles. The chirp parameter α is equal to 0.666

α 等于 0.666。可见大部分级次的相对谐波幅度在啁啾情形下均发生衰减,但个别级次谐波则在负啁啾中被增强,如 29 级谐波。虽然谐波谱被不同程度展宽但其平台截止区并未向低频端退缩。这与最近实验^[4]不同,原因在于他们在引入啁啾时拉长了激光脉冲,因而低电离势的 Ar 靶不能经受整个 200 fs 的啁啾脉冲长度,这样原子的快电离使得最高谐波退向低频端,正如他们所说,其谐波是脉冲前沿所贡献的。而在本文的计算中,当引入啁啾时,脉冲长度仍保持 20 个周期,这是由于耗时的数值计算不允许处理太长的脉冲与原子相互作用。因此高电离势的 He 原子是可以承受较短的啁啾激光脉冲。于是该脉冲后沿也对谐波发射有贡献,从而谐波级次并没有减少。

为了更好地看到啁啾对谐波谱的影响,把图 1 中的一些谐波级次重画在图 2 和图 3 中。为了比较,

用实线画出了无啁啾情形下的谐波谱。从图 2 可见, 在负啁啾脉冲中, 谐波的前半部分(从 11 级到 51 级)发生了兰移, 而后半部分则发生红移, 且有不同程度的展宽如图 2 中点划线所示。图 3 是正啁啾情况, 与图 2 相比, 其谱移动正好反过来, 即前半部分红移, 后半部分谐波兰移如虚线所示。但谱展宽则比负啁啾时较轻微。

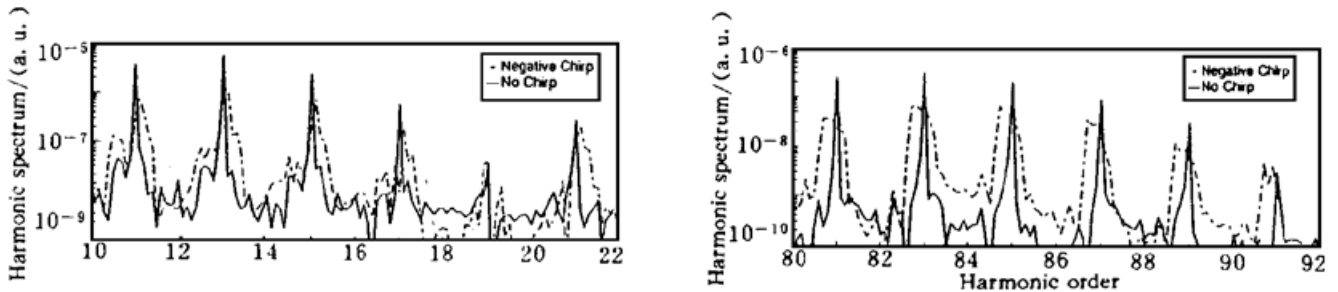


Fig. 2 Comparison of some harmonic orders of Fig. 1 in cases of between the negatively chirped and no chirped pulses

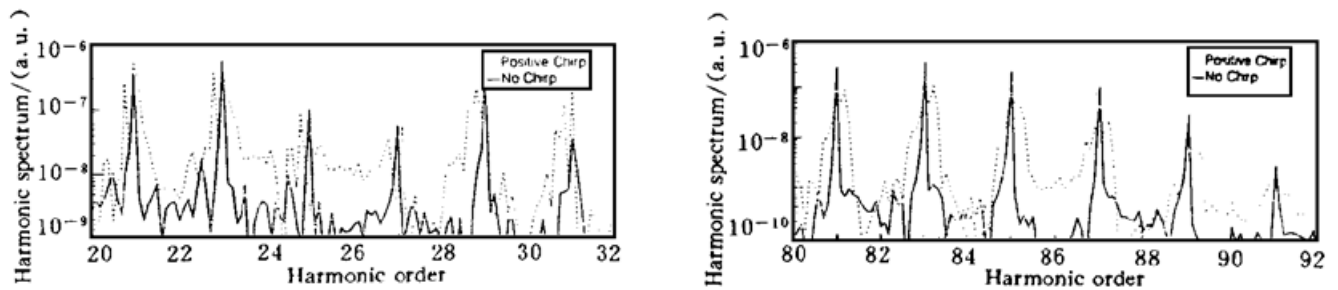


Fig. 3 Comparison of some harmonic orders of Fig. 1 in cases of between the positively chirped and no chirped pulses

在 Zhou 的实验^[4]中, 他们没有观察到谐波谱后半部分的反常移动。其原因如前所述, 即长啁啾脉冲使低电离势的 Ar 原子快速电离, 因而原子未感受到与前沿相反频率变化的脉冲后沿。而本文的较短脉冲前后沿均贡献给电离势较高的 He 原子发射谐波。因此, 原子可以响应后沿的频率变化, 从而使谐波后半部分出现与前半部分相反的移动。在负啁啾下, 如果正确的相位条件被满足, 某些谐波级次的带宽足可以支持亚飞秒软 X 射线脉冲。

图 4 是电离几率作为相互作用时间的函数。可见正负啁啾对电离均有抑制作用, 特别是负啁啾其抑制效果更明显。因为原子较容易在负啁啾脉冲的高频前沿中不被电离, 于是原子可以感受到更宽的频带从而辐射出宽带谐波。

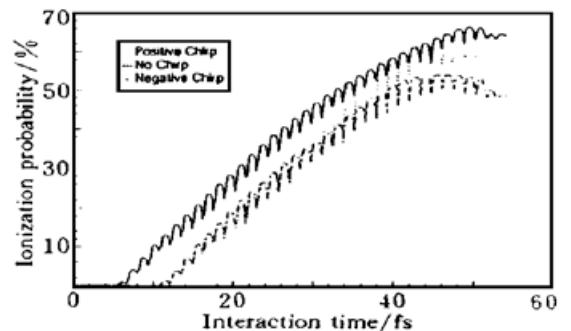


Fig. 4 Ionization probability as a function of the interaction time. The laser parameters are same as these of Fig. 1

结束语 本文数值计算了啁啾激光脉冲中原子的谐波辐射。啁啾效应使谐波发生移动和展宽, 即相对于无啁啾脉冲情形, 负啁啾脉冲中谐波平台的前半部分发生兰移, 而后半部分谐波谱则发生红移。当改变啁啾符号为正时, 谱移动则正好相反。无论正负啁啾, 所有的谐波谱均被展宽。若正确的相位条件被满足, 个别谐波谱宽支持亚飞秒脉冲的产生。这些结果与最近的啁啾谐波实验^[4]符合得很好, 但后半部分谐波谱的反向移动在该实验中并没有观察到。本文的计算表明, 人们可以利用激发脉冲的频率啁啾进行高次谐波的调谐, 并有可能获得超短的软 X 射线辐射。

参 考 文 献

- [1] A. L'Huillier, Ph. Balcou, High-order harmonic generation in rare gases with a 1-ps, 1053 nm laser. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, **70**(6) : 774~ 777
- [2] J. J. Macklin, J. D. Kmetec, C. L. Gordon III, High order harmonic generation using intense femtosecond pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, **70**(6) : 766~ 769
- [3] Z. Chang, A. Rundquist, H. Wang *et al.*, Generation of coherent soft X-rays at 2.7 nm using high harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 1997, **79**(16) : 2967~ 2970
- [4] J. Zhou, J. Peatross, M. M. Murnane *et al.*, Enhanced high harmonic generation using 25 fs laser pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 1996, **76**(5) : 752~ 755
- [5] K. Kondo, N. Sarukura, K. Sajiki *et al.*, High-order harmonic generation by ultrashort KrF and Ti:Sapphire lasers. *Phys. Rev. (A)*, 1993, **47**(4) : R2480~ R2483
- [6] Y. Liang, S. August, S. L. Chin *et al.*, High harmonic generation in atomic and diatomic molecular gases using intense picosecond laser pulses. *J. Phys. (B)*, 1994, **27**(20) : 5119~ 5130
- [7] T. D. Donnelly, T. Ditmire, K. Neuman *et al.*, High order harmonic generation in atom clusters. *Phys. Rev. Lett.*, 1996, **76**(14) : 2472~ 2475
- [8] J. H. Eberly, Q. Su, J. Javanainen, High-order harmonic production in multiphoton ionization. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1989, **7**(4) : 1289~ 1298
- [9] K. C. Kulander, B. W. Shore, Calculations of multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in Xe. *Phys. Rev. Lett.*, 1989, **62**(3) : 524~ 527
- [10] 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**(24) : 3535~ 3538
- [11] K. C. Kulander, K. J. Schafer, J. L. Krause, in *Proceeding of the Workshop; Super Intense Laser Atom Physics (SILAP) III*, ed. B. Piraux. New York: Plenum Press, 1993, 157~ 262
- [12] P. B. Corkum, Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, **71**(13) : 1994~ 1997
- [13] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov *et al.*, Theory of high harmonic generation by low-frequency laser fields. *Phys. Rev. (A)*, 1994, **49**(3) : 2117~ 2132
- [14] M. D. Perry, G. Mourou, Terawatt to petawatt subpicosecond lasers. *Science*, 1994, **264**(5) : 917~ 924
- [15] B. Kohler, V. V. Yakovlev, J. W. Che *et al.*, Quantum control of wave packet evolution with tailored femtosecond pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 1995, **74**(17) : 3360~ 3363
- [16] Q. Su, J. H. Eberly, J. Javanainen, Dynamics of atomic ionization suppression and electron localization in an intense high-frequency radiation field. *Phys. Rev. Lett.*, 1990, **64**(8) : 862~ 865
- [17] M. D. Feit, J. A. Fleck Jr., A. Steiger, Solution of the schrödinger equation by a spectral method. *J. Comput. Phys.*, 1982, **47**(2) : 412~ 433
- [18] R. W. Heather, An asymptotic wavefunction splitting procedure for propagating spatially extended wavefunctions: Application to intense field photodissociation of H_2^+ . *Comput. Phys. Commun.*, 1991, **63**(2) : 446~ 459

High-Order Harmonic Emission From a Single Atom in the Intense Chirped Laser Pulses

Hu Suxing Xu Zhizhan

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, The Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800)

(Received 29 October 1996)

Abstract High-order optical harmonic emission from a single atom exposed in the intense chirped laser pulses has been calculated. Harmonic spectral shifting

and broadening are found. Namely, for the negatively chirped pulses, blue-shifting can be observed in the front part (11 st ~ 51 st order) of the harmonic plateau. But the back part from 53rd to 91st harmonic orders occur to red-shift. When the sign of chirp is changed to be positive, the spectral shifting is just reverse. Regardless the sign of chirp every harmonic order is broadened in different degree for different order number. The bandwidths of individual peaks are broad enough to support subfemtosecond pulses if the pertinent phase conditions can be met. These calculation results agree well with the recent experiment performed by Zhou et al.^[4] although the opposite spectral shifting in the back part of harmonic plateau is not reported in their experiment. It indicates that a tunable, ultrashort soft X-ray source can be obtained by controlling the degree and sign of chirp.

Key words chirped laser pulses, high-order harmonic, soft X-ray radiation.