

# 偶次和半整数次谐波的产生

吴海涛 龚尚庆 金石琦 徐至展

(中国科学院上海光学精密机械研究所强光光学开放研究实验室, 上海 201800)

**摘 要** 用数值求解一维含时薛定谔方程的方法计算了由频率分别为  $\omega$  及  $1.5\omega$  的激光组成的双色场作用下的模型原子产生的高次谐波谱。发现由于双色场的相干效应, 在其谐波谱中不仅产生了奇次谐波, 还产生了偶次谐波和半整数次谐波。分析了各次谐波产生的原因以及对谐波转化效率产生影响的主要因素。

**关键词** 高次谐波, 双色场, 薛定谔方程, 数值求解。

## 1 引 言

近年来, 强光物理成为一门活跃的研究学科<sup>[1]</sup>。原子在强激光场的作用下, 因其高度的非线性响应导致产生高次谐波(HHG)<sup>[1~4]</sup>。高次谐波谱的特征是: 转化效率从基频开始先是迅速下降; 随后是一个谐波平台区, 其中各次谐波的强度差别不大; 最后是一个很陡的截止<sup>[1, 5]</sup>。由于平台区的存在, 高次谐波可能是产生真空远紫外线(XUV)和软 X 射线的重要方法, 因此引起人们极大的兴趣<sup>[6, 7]</sup>。Krause 等人<sup>[8]</sup>发现, 在隧穿机制下, 最高次谐波的能量约为:  $E_c = I_p + 3.17U_p$ , 其中  $I_p$  为原子的电离势,  $U_p = E^2/(4\omega^2)$  为电子在外场中的平均抖动能。这即为“截止规则”。对此截止规则, 人们提出一个半经典的解释<sup>[9, 10]</sup>, 即高次谐波产生的“碰撞模型”: 电子首先在“隧穿”过程中进入连续态(获得势能  $I_p$ ); 然后在外场的作用下运动, 其中一部分被电离, 而另一部分回到原子核附近, 其获得的最大动能为  $3.17U_p$ <sup>[9]</sup>; 因此, 当电子返回基态时, 其辐射出的光子的最大能量即为  $E_c$ 。

在中心对称介质中, 宇称守恒使得单色场的高次谐波谱是一系列位于入射激光频率的奇数倍处的峰<sup>[11, 12]</sup>。最近, 人们发现双色场有利于提高高次谐波的转化效率和截止能量<sup>[1]</sup>, 并且谐波谱也可能不仅仅是由奇次谐波组成。一种简明的解释认为双色场的耦合作用使得产生某次谐波的可能通道大大增加<sup>[13]</sup>, 因此有助于提高转化效率; 另一种解释认为在第二束光(往往是高频光)的作用下, 电子在运动过程中受到阻碍(因为高频光的周期小, 电场反向更快), 因此其与原子核相互作用的几率增加, 导致谐波转化效率的提高。文献[12]用半经典理论给出了双色场时截止位置的计算方法, 结果显示, 截止位置主要由入射场的能量决定。因此在双色场作用时, 因为入射光的总能量增加, 谐波谱的截止位置也有所提高<sup>[1]</sup>。李学信<sup>[13, 14]</sup>、Zuo 等人<sup>[12]</sup>用基频与二倍频光( $\omega, 2\omega$ )的双色场产生了偶次谐波。Taleb 等人<sup>[6]</sup>则

用频率为  $\omega$  和  $5.5\omega$  的双色场研究了原子的电离问题。文献[14] 中讨论了用双色场可能产生分数次的谐波。本文讨论了用频率为  $\omega$  和  $1.5\omega$  的双色场作用于原子, 不仅可以产生奇次谐波, 还可以产生偶次谐波和半整数次谐波。

## 2 理论及方法

产生高次谐波所需的强激光, 其场强已经接近甚至超过原子核的库仑势, 因此, 微扰论不再适用。人们提出了各种非微扰论方法来处理强场问题: 如弗洛凯(Floquet) 理论, 缀饰态理论, 经典轨道理论等方法<sup>[15]</sup>, 以及直接数值求解含时薛定谔方程。本文用数值求解一维含时薛定谔方程的方法计算模型原子在强单色场和双色场作用下的高次谐波行为。

令电子质量为  $m$ , 电子电荷为  $e$ , 普朗克常数  $\hbar$  分别等于 1, 得到原子单位下的一维含时薛定谔方程:

$$i \frac{\partial \Psi(x, t)}{\partial t} = H(x, t) \Psi(x, t). \quad (1)$$

在用线偏振光时, 在强场范围内采用一维模型是合理的。偶极近似下的含时哈密顿量为

$$H(x, t) = -\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} + V(x) + xE(t),$$

其中  $V(x)$  为库仑势场,  $E(t)$  为外场。为了避免  $x = 0$  时的奇异性, 势场取为软核势模型(Soft-core potential)<sup>[16]</sup>:  $V(x) = -\frac{1}{\sqrt{1+x^2}}$ , 其基态能量为  $-0.6698$  原子单位。为了简化起见, 外场取为方波脉冲的形式:

$$E(t) = \begin{cases} E \sin \omega t & \text{单色场,} \\ E_1 \sin \omega_1 t + E_2 \sin \omega_2 t & \text{双色场.} \end{cases}$$

最后, 假设在相互作用之前电子处于基态。

因此, (1) 式是一个初值问题。用标准的有限差分克兰克-尼科尔森(Crank-Nicolson) 方法<sup>[11]</sup>, 可以有效地计算出电子波函数在外场和原子核的联合势场中从基态开始的演化。由波函数可以计算随时间变化的电偶极加速度:

$$a(t) = \langle \Psi(x, t) | -\frac{dV(x)}{dx} | \Psi(x, t) \rangle. \quad (2)$$

对  $a(t)$  作傅里叶变换可得到其频谱构成, 而谐波谱(强度谱) 写为:

$$P(\omega) = |a(\omega)|^2 = \left| \int a(t) \exp(-i\omega t) dt \right|^2. \quad (3)$$

## 3 结果与讨论

首先分别计算了单色场(a)  $\omega_1 = \omega = 0.056$  原子单位,  $E_1 = 0.05$  原子单位的谐波谱, 及(b)  $\omega_2 = 1.5\omega$ ,  $E_2 = 0.05$  原子单位的谐波谱, 结果见图 1 所示。在本文中, 所有计算都取脉冲宽度为  $\omega$  光的 20 个周期长。从图 1 可以看出其截止位置分别为第 25 次谐波和第 13 次谐波, 这与“截止规则”符合得很好。同时可以发现高频光( $\omega_2$ ) 的谐波谱的截止位置低, 但其转化效率相对要高一些, 这与李学信等人的结果一致<sup>[13, 14]</sup>。

为了考察双色场的作用, 计算了双色场(a)  $\omega_1 = \omega = 0.056$  原子单位,  $\omega_2 = 1.5\omega$ ,  $E_1 =$

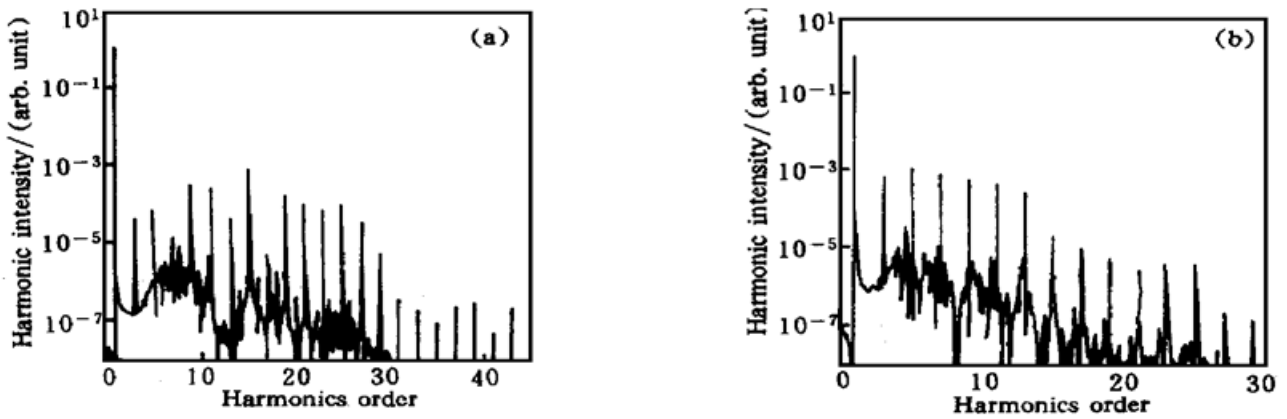


Fig. 1 Harmonics spectrum of a model atom under different lasers. (a)  $\omega_1 = \omega = 0.056$  atomic unit,  $E_1 = 0.05$  atomic unit; (b)  $\omega_2 = 1.5\omega$ ,  $E_2 = 0.05$  atomic unit

0.05原子单位,  $E_2 = E_1$  和(b)  $\omega_1 = \omega = 0.056$  原子单位,  $\omega_2 = 1.5\omega$ ,  $E_1 = 0.05$  原子单位,  $E_2 = 0.1E_1$  的谐波谱, 如图2所示。图2(a)与图2(b)谐波谱的截止位置分别为40和30左右(这里谐波次数是相对于 $\omega$ 而言的,下同),这也与理论计算的结果一致<sup>[12]</sup>。其中当 $E_2 = E_1 = 0.05$ 原子单位时,其谐波谱的转化效率有较大提高。这一方面是入射光的总能量增加了,另一方面则正是双色场之间相干作用的结果[注意到图2(a)与图1(a)相比其谐波能量提高了1~2个量级]。但图2最引人注目的特点是:它具有丰富的谐波成分,包括奇次,偶次,甚至半整数次谐波。其中1、3、5、7等次谐波和1.5、4.5、7.5、10.5等次谐波的出现是在预料中的,因为 $\omega_1$ 光或 $\omega_2$ 光本身在单独起作用时就能够产生这些谐波成分。但是,其中的偶次谐波和其它半整数次谐波的出现必然是由双场之间的耦合作用引起的。由图2(b)可以看出,尽管 $\omega_2$ 光的能量比 $\omega_1$ 光小很多( $I_2 = I_1/100$ ),但在谐波平台区内的偶次谐波和半整数次谐波的能量却也都相当大。计算表明,当用 $\omega_2 = 1.5\omega$ ,  $E_2 = 0.005$ 原子单位的单色场作用于原子时,不能产生高次谐波。因此可以说明,双色场之间耦合作用的影响是相当大的。由于 $\omega_2$ 光的存在,不仅使得偶次,半整数次谐波的产生成为可能,而且 $\omega_2$ 光在这里起到一个能量转换通道的作用。有相当部分的 $\omega_1$ 光的能量通过 $\omega_2$ 光的作用注入到各次谐波中去,使得各次谐波的转化效率都大为提高。图2的另一个明显特点是:低次谐波如2次、2.5次等被抑制,这显然是与微扰理论相矛盾的。

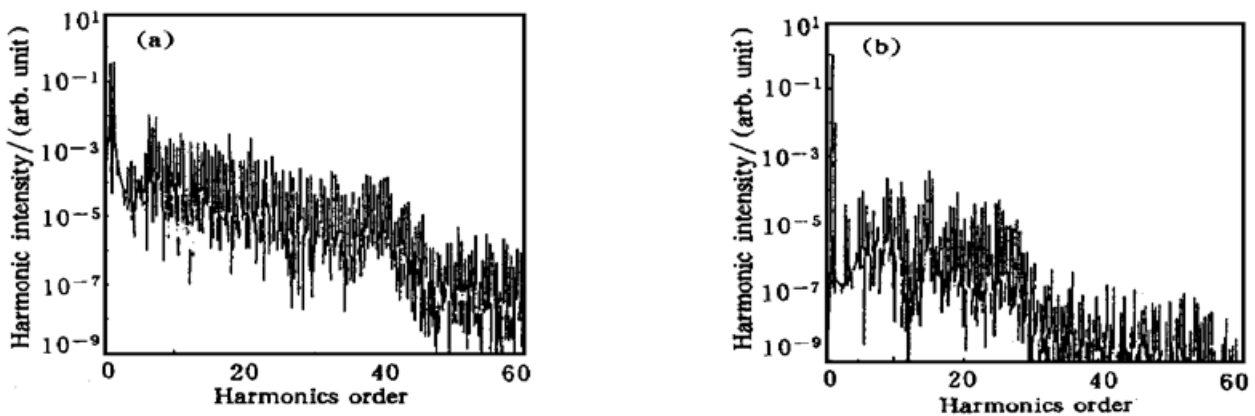


Fig. 2 Harmonics spectrum of a model atom under two-color coherent fields. with frequency  $\omega = 0.056$  atomic unit and  $1.5\omega$  respectively. (a)  $E_1 = 0.05$  atomic unit,  $E_2 = E_1$ ; (b)  $E_1 = 0.05$  atomic unit,  $E_2 = 0.1E_1$

用光子的吸收和发射的观点可以成功地解释双色场的谐波行为。中心对称性和宇称守恒要求: 每发射一个谐波光子, 必须吸收奇数个光子。因此, 在  $\omega$  和  $1.5\omega$  双色场的作用下, 可以总结出如表 1 所示的发射一个谐波光子的吸收规则。

Table 1. The absorption rule of HHG

	1.5 $\omega$ photons	1 $\omega$ photons
integer harmonics	2n	2m + 1
odd harmonics	4n	2m + 1
even harmonics	4n + 2	2m + 1
semi-integer harmonics	2n + 1	2m
odd harmonics of 1.5 $\omega$	2n + 1	m = 3k
others	2n + 1	m = 3k + 1 or 3k + 2

$n, m, k$  are integers.

由表 1 可以得出: 偶次谐波最低为 4 次 ( $n = 0$  吸收两个  $1.5\omega$  的光子,  $m = 0$  吸收一个  $\omega$  光子), 半整数次谐波除  $1.5\omega$  自身外最低为 3.5 次 ( $n = 0$  吸收一个  $1.5\omega$  的光子,  $m = 1$  吸收两个  $\omega$  光子)。由此得出 2 次和 2.5 次谐波是被抑制的, 这与图 2 完全符合。另外, 只要在相互作用过程中电子能够吸收到两个以上的  $1.5\omega$  光子, 则产生偶次谐波的几率就等于产生奇次谐波的几率。同样, 只要电子能吸收到一个以上的  $1.5\omega$  光子, 其产生半整数次谐波的几率就等于产生奇次谐波的几率。这就可以理解为什么平台区的各次谐波的能量都差不多。但如果  $E_2$  太小, 达不到上述的两个条件, 则偶次谐波和半整数次谐波的能量就小于奇次谐波的能量。图 3(a)、图 3(b) 分别为图 2(a)、图 2(b) 的奇次、偶次、和半整数次谐波之间能量大小的比较。其中图 3(a) 中各套谐波的能量从总体看差不多, 而图 3(b) 中偶次和半整数次谐波的能量要小于奇次谐波的能量, 而偶次谐波的能量相对而言又略小于奇次谐波, 这些都与上述推论相符合。

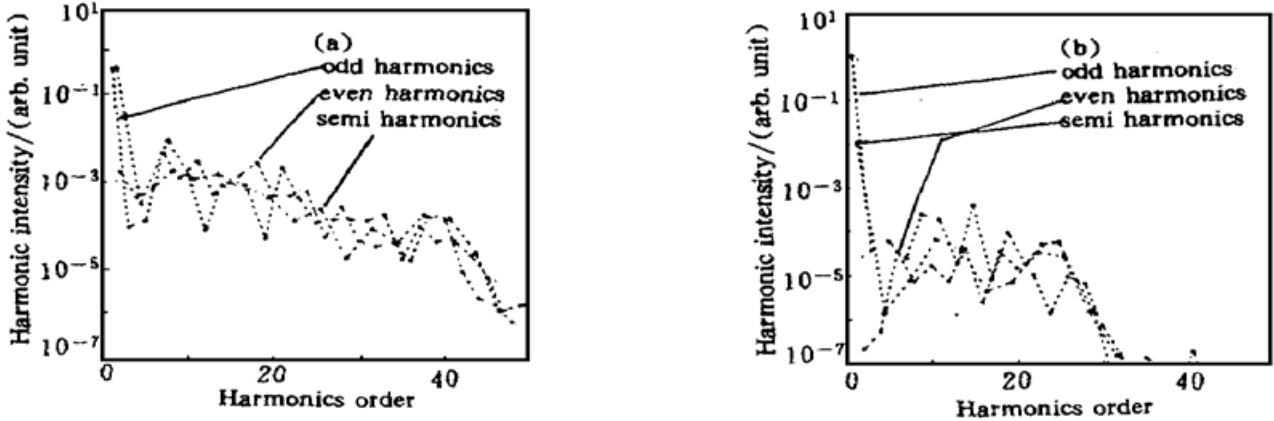


Fig. 3 The harmonics intensity comparison of odd harmonic, even harmonic and semi-integer harmonic, the parameters of (a) and (b) are the same as Fig. 2 (a) and Fig. 2 (b) respectively

由表 1 还可以得出: 第 3 次、5 次谐波的产生不需要吸收  $\omega_2$  光子, 所以其能量应与  $E_2$  无关; 而第 4.5 次谐波 (实际是  $\omega_2$  光的 3 次谐波) 的产生也不需要吸收  $\omega_1$  光子, 即其能量只与  $E_2$  有关而与  $E_1$  无关。图 4(a) 显示了第 3 次、5 次和 7 次谐波的能量随  $E_2$  的变化。可见, 与 7 次谐波相比, 3 次和 5 次谐波的能量随  $E_2$  的变化要小得多 (当然不可能毫无变化, 毕竟双色场是耦合的, 只是对 3 次和 5 次谐波这一特例而言,  $\omega_2$  光没有贡献而已)。图 4(b) 显示了第 4.5

次、7.5次谐波的能量随 $E_1$ 的变化。可以看出,与7.5次谐波相比,4.5次谐波的能量随 $E_1$ 的变化要小一些。图4(c)则显示了第3次、5次和7次谐波的能量随 $E_1$ 的变化。图4(d)显示了第4.5次和7.5次谐波的能量随 $E_2$ 的变化。分别把图4(a)与图4(c)、图4(b)与图4(d)相比,发现结果与前面的推论完全一致。

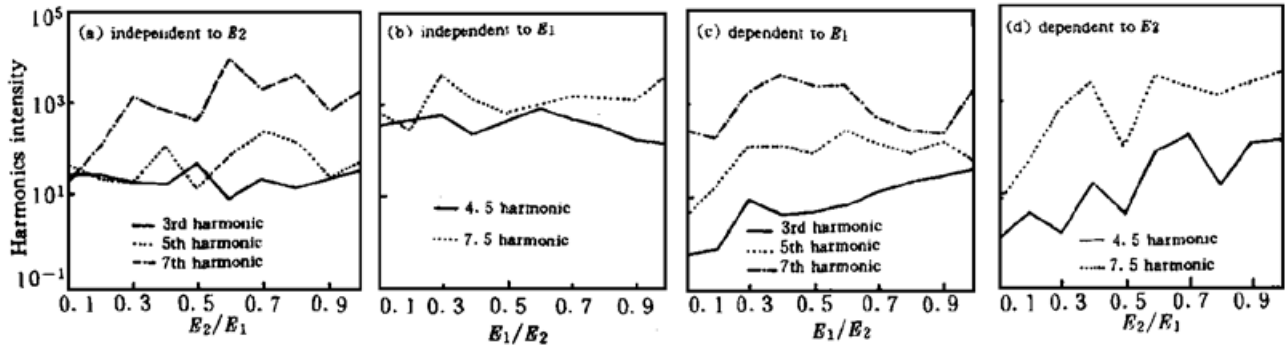


Fig. 4 Harmonics intensity vs laser field intensity for a model atom under different two-color coherent fields. (a) the 3<sup>rd</sup> harmonic, 5<sup>th</sup> harmonic and 7<sup>th</sup> harmonic intensity vs  $E_2/E_1$ , where  $E_1 = 0.05$  atomic unit; (b) the 4.5<sup>th</sup> harmonic and 7.5<sup>th</sup> harmonic intensity vs  $E_1/E_2$ , where  $E_2 = 0.05$  atomic unit; (c) the 3<sup>rd</sup> harmonic, 5<sup>th</sup> harmonic and 7<sup>th</sup> harmonic intensity vs  $E_1/E_2$ , where  $E_2 = 0.05$  atomic unit; (d) the 4.5<sup>th</sup> harmonic and 7.5<sup>th</sup> harmonic intensity vs  $E_2/E_1$ , where  $E_1 = 0.05$  atomic unit

最后,以上分析可以作如下推广:产生偶次或半整数次谐波不限于由 $\omega$ 和 $1.5\omega$ 组成的双色场的作用。作者计算了 $\omega$ 与 $2.5\omega$ , $\omega$ 与 $5.5\omega$ 的双色场产生的谐波谱,均得到了类似的结果。

**结 论** 本文用数值方法求解一维含时薛定谔方程,从而计算出模型原子在强激光场作用下的高次谐波行为。对由频率分别为 $\omega$ 和 $1.5\omega$ 的激光场组成的双色场,由于双色场之间相干耦合的作用,其谐波组成比单色场情况时丰富得多,其中有奇次,偶次和半整数次谐波。作者总结出了发射各次谐波所需吸收的光子数的规则,并以此详细讨论了谐波谱的特征:极低的2次和2.5次谐波被抑制;第3次和5次谐波的发射与 $E_2$ 无关,而第4.5次谐波的发射与 $E_1$ 无关。另外,双色相干场对谐波谱的截止位置和转化效率都有影响,但比较而言,截止位置的改变主要是由于入射光的总能量的改变;而转化效率不仅受入射光的总能量的影响,更主要地由于双色场之间的相干作用,使得谐波谱的转化效率大为提高。

### 参 考 文 献

- [1] Protopapas M, Keitel C H, Knight P L. Atomic physics with super-high intensity lasers. *Rep. Prog. Phys.*, 1997, **60**: 389~ 486
- [2] Watson J B, Sanpera A, Chen X *et al.*. Harmonic generation from a coherent superposition of states. *Phys. Rev. (A)*, 1996, **53**(4): R1962~ R1965
- [3] de Morrison Faria C F, D rrr M, Sandner W. Importance of excited bound states in harmonic generation. *Phys. Rev. (A)*, 1998, **58**(4): 2990~ 2999
- [4] Hu S X, Xu Z Z. Enhanced harmonic emission from ionized clusters in intense laser pulses. *Appl. Phys. Lett.*, 1997, **71**(18): 2605~ 2607
- [5] Gauthey F I, Keitel C H, Knight P L. *et al.* Phase of harmonics from strongly driven two-level atoms. *Phys. Rev. (A)*, 1997, **55**(1): 615~ 621

- [6] Taleb R, Vénier V, Maquet A. Theory of two-color pump-probe determination of ionization dynamics. *Phys. Rev. (A)*, 1998, **57**(6) : R4098~ R4101
- [7] Kien F L, Midorikawa K, Suda A. Atto-second pulse generation using high harmonics in the multi-cycle regime of the driver pulse. *Phys. Rev. (A)*, 1998, **58**(4) : 3311~ 3319
- [8] 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**(24) : 3535~ 3538
- [9] Corkum P B. Plasma perspective on strong-field multi-photon ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, **71**(13) : 1994~ 1997
- [10] Schafer K J, Yang B R, Dimauro L F *et al.*. Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, **70**(11) : 1599~ 1602
- [11] Protopapas M, Lappas D G, Keitel C H *et al.*. Re-collision, bremsstrahlung, and atto-second pulse from intense laser fields. *Phys. Rev. (A)*, 1996, **53**(5) : R2933~ R2936
- [12] Zuo T, Bandrauk A D. Control of high-order harmonic generation in strong laser fields. *Phys. Rev. (A)*, 1995, **51**(5) : 3991~ 3998
- [13] 李学信, 徐至展. 双色相干场高次谐波. 光学学报, 1997, **17**(8) : 1011~ 1014
- [14] 李学信. 超短超强激光场中高次谐波辐射的理论及实验研究[博士学位论文]. 上海: 中国科学院上海光机所, 1998
- [15] Krause J L, Schafer K J, Kulander K C. Calculation of photo-emission from atoms subject to intense laser fields. *Phys. Rev. (A)*, 1992, **45**(7) : 4998~ 5010
- [16] Eberly J H, Su Q, Javanainen J. Nonlinear light scattering accompanying multi-photon ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 1989, **62**(8) : 881~ 884

## Even Harmonic and Semi-Integer Harmonic Generation

Wu Haitao    Gong Shangqing    Jin Shiqi    Xu Zhizhan

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

(Received 30 December 1998; revised 1 February 1999)

**Abstract** By numerically integrating the one-dimensional time-dependent Schrödinger equation, the high-order harmonic generation (HHG) spectrum of a model atom irradiated by two-color coherent fields with frequency  $\omega$  and  $1.5\omega$  is calculated respectively. It is found that there exist odd harmonics, even harmonics and semi-integer harmonics due to the coherent interaction between two colors. The origin of these harmonics and main factors influencing the harmonic efficiency are discussed in detail.

**Key words** high-order harmonic generation, two-color coherent fields, one-dimensional time-dependent Schrödinger equation, numerical solution.