文章编号:0253-2239(2001)10-1153-04

采用附加共振高频场提高强场高次谐波的产生效率*

曾志男 李儒新 程 亚 屈卫星 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实验室,上海 201800)

摘要: 提高高次谐波效率一直是强场物理研究中的一个重要课题,对此人们采取了很多方法,如采用双色场、实现相位匹配、附加一个强电场或强磁场等。本文在研究双色场高次谐波的过程中,发现原子的能级结构对于高次 谐波的产生效率有极大的影响,据此提出利用附加共振高频场来大幅度提高高次谐波的产生效率。 关键词: 双色场高次谐波;原子能级结构;原子光电离

中图分类号:O437 文献标识码:A

1 引 言

在激光与物质的相互作用进入强场物理领域 后,出现了如高次谐波、阈上电离等许多高阶的非线 性物理现象。高次谐波能够获得极短波长的相干 光,有可能成为很好的软 X 射线相干光源,因此一 直是一个非常活跃的研究领域。由于高次谐波的转 换效率很低,因此人们提出了多种方法来提高它的 转换效率,如采用双色场^{1~71},可将谐波效率提高 2~4个数量级,通过相位匹配^[8,9],可使某一级次或 几个相邻级次的高次谐波效率提高 2~3 个数量级。

但是,迄今为止,在高次谐波的研究中,很少涉 及到介质(如氢,氦,氖等)的原子结构,即使在单电 子模型中,也只考虑一个原子基态。因此,在高次谐 波产生的物理图像中,认为基态电子直接通过多光 子电离或隧道电离进入连续态,连续态的电子在激 光场中运动,最后,其中的一部分电子在激光场的驱 动下又返回到原子核附近并复合至基态,从而辐射 出高能光子,产生高次谐波。由此可见,在此过程 中,高次谐波的产生效率与最终复合至基态的电子 数目有关,本文通过分析,发现可以采用附加共振高 频场来提高强场高次谐波的产生效率。

2 计算结果

本文通过数值求解含时薛定谔方程,并采用单

* 国家自然科学基金(19974058)、国家杰出青年科学基金 (69925513)、上海应用物理中心、国家重点基础研究发展规 划项目、国家科委 863高科技项目、中国科学院"百人计划" 项目和"引进国外杰出人才项目资助课题。

收稿日期 2000-09-11; 收到修改稿日期 2000-12-05

电子近似和软核势模型,研究双色场对产生高次谐 波的影响。其中软核势的形式取为:

$$V(x) = -1/\sqrt{a^2 + x^2}$$

通过调节 a 的数值 ,可调节势场深度和基态能量 ,本 文取 a^2 为 0.4713 ,通过求解薛定谔方程的定态解可 以知道此时基态能量为 -0.9043 atom unit(a.u.), 近似等于氦的第一电离能。同时 ,双色场的形式为:

 $E(t) = f(t] E_0 \sin(\omega_0 t) + E_n \sin(n\omega_0 t)],$ 其中 f(t)为脉冲包络 本文取 f(t) = 1,即方形脉 冲。基频光场(即 ω_0)的波长为 800 nm 相当于 $\omega_0 =$ 0.057 a.u.,脉冲长度为 100 个基频光周期,约为 266 fs。这样,含时薛定谔方程可以表示为:

$$i\frac{\partial\Psi(t,x)}{\partial t} = \left\{-\frac{1}{2}\frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{1}{\sqrt{a^2 + x^2}}-\right.$$

 $x[E_1\sin(\omega_0 t) + E_n\sin(n\omega_0 t)]\Psi(t,x).$ (1)

以基态的定态波函数为初始条件,数值求解 (1)式,可以得到不同时刻的 $\Psi(t,x)$,即电子波函 数随时间的演化,利用 $\Psi(t,x)$ 可以求出

 $a(t) = \Psi(t,x) | -\frac{dV}{dx} + E(t) | \Psi(t,x) , (2)$ 然后对 a(t)进行傅里叶变换

$$d(\Omega) = \left| a(t) \exp(i\Omega t) dt \right|, \quad (3)$$

从而就可得到相应的光谱强度 $|d(\Omega)|^2$ 。图 1(a)是 取 $E_0 = 0.05$ a.u., $E_n = 0$ (即单色场)的结果,可以 看到此时的谐波效率极低。图 1(b)图 1(c)图 1 (d)则是双色场的结果,其中 $E_0 = 0.05$ a.u., n =11 ,而 E_n 则分别为 0.00005 a.u.、0.0005 a.u.、 0.005 a.u.,相当于基频场强度的 10⁻⁶、10⁻⁴ 和 10⁻² ,从中可以看到显著的谐波效率变化。在以往 的双色场高次谐波(即 $1\omega_0 - 2\omega_0$ 和 $1\omega_0 - 3\omega_0$ 双色场)计算中,只有当高频场强度和基频场强度相当时(即没有量级上的差别),高次谐波效率才会有显著

的变化,而在加入了n = 11的高频场后,即使当高频场强度比基频场弱很多(1/100),高次谐波效率也有极大的变化,可提高4个量级以上。



Fig.1 The harmonic spectra driven by the two-color laser. (a) $E_0 = 0.05$ a. u. , $E_{11} = 0$; (b) $E_0 = 0.05$ a. u. ,; $E_{11} = 0.0005$ a. u. ; (c) $E_0 = 0.05$ a. u. , $E_{11} = 0.0005$ a. u. ; (d) $E_0 = 0.05$ a. u. , $E_{11} = 0.005$ a. u. . The high-order harmonic generation efficiency is enhanced by more than 4 orders from (b) to (d)

图 2 为 3 种双色场驱动下基态电子布居数的变 化,可看出,此时基态电子的电离已经不能简单地用 ADK 理论等来解释了,因为现在的光场强度没有明 显的变化(最大的高频场强度只有基频场的1/100), 而基态电子的电离出现了显著的变化。



Fig. 2 Ground state electron population subjected to the twocolor laser. A: $E_0 = 0.05$ a. u. and $E_{11} = 0.00005$ a. u. ; B: $E_0 = 0.05$ a. u. and $E_{11} = 0.0005$ a. u. ; C: E_0 = 0.05 a. u. , $E_{11} = 0.005$ a. u. .

为了研究基态电子电离的如此显著的变化,选 取 *E*₀ = 0.05 a.u.,*E*₁ = 0.005 a.u.,*n* 分别取 2、3、 5、7、9、11、13、15、17。图 3 为计算结果。

图 4 则是选取 n=2 5 9,13,17 计算的谐波谱。 软核势中除了存在基态能级外,还存在许多激发态

能级 这点与真实原子是非常相似的。对于我们选 择的参数 软核势的基态能量为:-0.9043 a.u. 其 第一激发态的能量为:-0.3111 a.u.,第二激发态 能量为:-0.1647 a.u.,等等。当高频场光子能量 接近或等于基态能级和激发态能级之间的能量差 时 就会在基态和激发态之间建立共振 使得在相对 很弱的光场下(只是相对于基频场很弱,实际上并不 弱),也会有大量的基态电子跃迁到激发态。在本文 的模型中,基态和第一激发态之间的能量差为 0.5932 a.u.,比较接近于 11 次谐波的光子能量 (0.6284 a.u.)。同时,对于 E₀ = 0.05 a.u.的基频 光,如果要把电子从基态直接电离(多光子电离或隧 道电离)显然是很困难的(根据 ADK 公式可以计 算)但是如果事先通过共振把电子从基态布居到激 发态 然后让基频光场把电子从激发态电离 显然就 要容易多了 从而可以使电子的电离率大大提高 这 就是高频光场所起的作用。从图中可看出 F 曲线 (0 n = 11)表示的基态电离率最大,就是因为此时 的高频场的光子能量最接近基态与激发态之间的能 量差。同时从图 4 中可以看出,在电子电离最大时 谐波效率也最高,也就是电子共振电离对于谐波效 率有极大的影响,可以极大地提高谐波的产生效率。



Fig.3 Ground state population changes evidently with the frequency of the high-frequency field, showing the effect of possible resonant excitation of the ground state. From A to I, the two-color laser fields are $E_0 = 0.05$ a.u., $E_n = 0.005$ a.u. and n = 2 3 5 7 9 ,11 ,13 ,15 ,17 respectively



Fig. 4 The harmonic spectra driven by the two-color laser with the same parameters as in Fig. 3. From (a) to (e), n = 2.5.9, 13, 17 respectively. The harmonic generation efficiency reaches its maximal when n = 9

3 理论分析

对于高次谐波产生效率的提高,可通过高次谐 波的量子理论^[10,11]来分析。在高次谐波的量子理 论中,电子首先通过多光子电离或隧道电离到 Volkov态,然后再从 Volkov态跃迁回基态,辐射高 能光子,产生高次谐波。因此产生高次谐波的偶极 跃迁矩阵元可以表达成如下形式^[11]:

$$d_{Nm}^{+} = -\sum_{\sigma} \frac{1}{2\pi T^{2}} \int_{0}^{T} dt \int_{0}^{T} dt' \frac{1}{R(t,t')} \Phi_{a}(t) \exp(i\Omega t) d_{\varepsilon} \left[\Phi_{K_{m}}(t) \Phi_{K_{m}}(t') \right] V_{F}(t') \Phi_{a}(t') , (4)$$

式中 R(t,t')表示 t 和 t' 时刻电子之间的距离 ,在 本文的光强下可以认为是正比于电场强度的。 $\Phi_a(t) | \exp(i\Omega t) d_{\varepsilon} | \Phi_{K_m}(t)$ 为在激光场作用下电 子从 Volkov 态跃迁回基态 辐射频率为 Ω 的高能光 子 称为激光感应复合。 $\Phi_{K_m}(t') | V_{F}(t') | \Phi_a(t')$ 则表示电子吸收 m 个光子跃迁到 Volkov 态 , $V_{F}(t')$ 即电子与激光场的相互作用项。而 $\sigma = \pm 1$,表示 Volkov 态的 K_m 相对于光场的电场分量存在平行和 反平行两种情况。 $T = 2\pi/\omega$,为激光周期。

从(4)式可看出,高次谐波的产生效率由两部分 决定,一是电子从基态向 Volkov 态的跃迁几率,另 一个是电子从 Volkov 态向基态复合的几率,可近似 认为总的产生效率由两部分几率相乘决定。同时还 可看出,这两部分是相互矛盾的。激光强度提高,电 子从基态向 Volkov 态跃迁的几率可以提高,但由于 R(t,t')的存在,将使电子与原子核的复合几率减 小[其实 R(t,t')可看作是表征电子波包扩散程度 的参量,激光场越强,电子波包扩散得越厉害,必然 使电子的复合几率降低]。由此可知,高次谐波的产 生效率本身是受到内在因素的限制的。

本文引入的高频场,在基态能级和激发态能级 之间建立共振,通过共振使电子从基态向 Volkov 态 的跃迁几率大大提高,但是由于引入的高频场强度 和基频光场相比非常弱,对总的光场强度没有明显 的影响,因此电子与原子核的复合几率将可以保持 不变,甚至可以因此而减小激光场强度来提高电子 的复合几率。通过这种方法,可使高次谐波的产生 效率获得极大的提高。

结论 在高次谐波的研究中,发现原子的能级结构 对高次谐波的产生效率有极大的影响。针对特定的 原子能级结构,采用特定的共振高频场,可以使高次 谐波的产生效率获得极大的提高。对于本文的能级 结构,当我们引入11次谐波的高频场时,产生的高 次谐波强度与只有基频场时相比,提高了4个量级 以上。同时也可以看到,无论是电子电离,还是高次 谐波的产生效率,都与原子结构有密切的关系。

在此感谢吴海涛硕士提供的一维含时薛定谔方 程计算程序和有益讨论。

参考文献

- [1] Milosevic D B, Piraux B. High-order harmonic generation in a bichromatic elliptically polarized laser field. *Phys. Rev.* (A), 1996, 54(2):1522~1531
- [2] Protopapas M, Sanpera A, Knight P L et al.. Highintensity two-color interactions in the tunneling and stabilization regimes. *Phys. Rev.* (A), 1995, 52(4): R2527~R2530
- [3] Watanabe S, Kondo K, Nabekawa Y et al.. Two-color phase control in tunneling ionization and harmonic generation by a strong laser field and its third harmonc. *Phys. Rev. Lett.*, 1994, 73 (20) 2692~2695
- [4] Perry M D, Crane J K. High-order harmonic emission from mixed fields. *Phys. Rev.* (A), 1993, 48(6) R4051 ~R4054
- [5] Kondo K, Kobayashi Y, Sagisaka A et al.. Tunneling ionization and harmonic generation in two-color fields. J. Opt. Soc. Am (B), 1996, 13(2):424~429
- [6] Zuo T, Bandrauk A D, Ivanov M et al.. Control of highorder harmonic generation in strong laser fields. Phys. Rev. (A), 1995, 51(5) 3991~3998
- [7] 李学信,徐至展.双色相干场高次谐波.光学学报, 1997, 17(8):1011~1014
- [8] Tamaki Y, Nagata Y, Obara M *et al*. Phase-matched high-order-harmonic generation in a gas-filled hollow fiber. *Phys. Rev.* (A), 1999, **59** (5) 4041~4044
- [9] Durfee Ⅲ C G, Rundquist A R, Backus S et al.. Phase matching of high-order harmonics in hollow waveguides. Phys. Rev. Lett., 1999, 83 (11) 2187~2190
- [10] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y et al.. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Phys. Rev.* (A), 1994, 49(3) 2117~2132
- [11] Kuchiev M Y, Ostrovsky V N. Quantum theory of high harmonic generation as a three-step process. *Phys. Rev.* (A), 1999, 60(4) 3111~3124

Great Enhancement of High-Order Harmonic Generation Efficiency by Special Two-Color Laser Driving Field

Zeng Zhinan Li Ruxin Cheng Ya Qu Weixing Xu Zhinan

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

(Received 11 September 2000; revised 5 December 2000)

Abstrct: How to enhance the efficiency of high-order harmonic generation is an important topic in high-field physics. Many ways including two-color laser field, phase-matched in a gas-filled hollow fiber and adding a magnetic field, etc. are adopted. In the investigation of two-color field high-order harmonic generation, it is found that the atomic energy-level structure greatly affects the high-order harmonic generation. For a certain level structure, a specially chosen high frequency additional driving field can greatly enhance the efficiency of high-order harmonic generation.

Key words: two-color field high-order harmonic generation; atomic photoionization