

双色激光脉冲谐波谱的截止频率分析

陈 高¹ 陈基根² 杨玉军³

(¹ 长春理工大学理学院, 吉林 长春 130022; ² 台州学院物理系, 浙江 椒江 318000)
³ 吉林大学原子与分子物理研究所, 吉林 长春 130012

摘要 采用 Crank-Nicholson 直接数值积分方法求解体系的含时薛定谔方程, 数值计算了 8 fs 的线偏振双色激光脉冲与氢原子相互作用产生的高次谐波发射功率谱, 双色激光脉冲由钛宝石基频激光及其二次谐波组成。相对相位为零时, 谐波谱出现了明显的双平台结构, 且在第二平台尾部出现了连续辐射谱, 通过过滤该连续辐射谐波, 获得了 110 as 的孤立脉冲, 验证了 Yu Oishi 等的结果, 特定相位条件下可以得到连续的谐波辐射谱。对此, 采用半经典的“三步”模型给出了合理解释, 并利用小波时频分析方法证实“三步”模型可以准确预言双色激光脉冲谐波谱的截止频率。

关键词 原子与分子物理学; 孤立阿秒脉冲; 双色激光脉冲; 高次谐波功率谱

中图分类号 O436 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS20092912.3255

Cutoff Frequencies Analysis of Bichromatic High-Order Harmonic Generation Spectra

Chen Gao¹ Chen Jigen² Yang Yujun³

(¹ College of Physics, Changchun University of Science and Technology, Changchun, Jilin 130022, China)
² Department of Physics, Taizhou University, Jiaojiang, Zhejiang 318000, China
³ Institute of Atomic and Molecular Physics, Jilin University, Changchun, Jilin 130012, China

Abstract The high-order harmonic generation (HHG) power spectra from a one-dimensional model atom irradiated is numerically calculated by linearly polarized 8 fs bichromatic laser pulses composed of a fundamental Ti:sapphire and its second harmonic lasers. It is found that, the distinct double plateau structure appears when the relative phase is zero, and an isolated 110 as pulse can be obtained from the continuous harmonics at the end of the second plateau. This validates Yu Oishi's experimental research conclusion that continuous harmonic spectra can be obtained at specific relative phase between the fundamental and its second harmonic lasers. The numerical results have been explained by a “three-step” model. Finally, the wavelet time-frequency analysis adopted verifies that the “three-step” model could exactly predict the cut-off frequencies of the bichromatic pulse HHG spectra.

Key words atomic and molecular physics; single attosecond pulse; bichromatic laser pulse; high-order harmonic generation

1 引 言

强激光与原子、分子、团簇以及固体等相互作用, 会发射出相干辐射波, 辐射波的频率是入射激光频率的整数倍, 这种光波发射被称为高次谐波发射。谐波发射功率谱的明显特征是在频域呈现出平台结构, 这种独特的结构, 使得人们利用高次谐波可获得

相干的极紫外(XUV)和 X 射线源^[1,2]; 同时, 也为阿秒脉冲的产生提供了坚实的基础^[3-5]。

谐波发射过程可由半经典的“三步”模型^[6]解释: 处在束缚态的电子隧穿由原子势和激光电场形成的势垒, 电子电离后在振荡的电场中运动, 当电场反向时, 部分电离电子回到母离子附近, 与基态复

收稿日期: 2009-04-09; 收到修改稿日期: 2009-05-14

基金项目: 国家自然科学基金(10604021)资助课题。

作者简介: 陈 高(1971—), 女, 博士, 讲师, 主要从事高次谐波和阿秒脉冲等方面的研究。E-mail: chengao@cust.edu.cn

合,并放出高能光子,且光子的能量为 $h\omega = I_p + E_{kin}$,其中 I_p 是原子的电离势, E_{kin} 为电子与基态复合时具有的动能。前人的研究表明,附加二倍频激光可以改变电子在激光场中的动力学过程,即“三步”模型中的“第二步”,导致谐波谱呈现出较复杂的结构,其截止谐波不能像单色场情形用截止规则预言^[7~10]。近期,人们从理论上和实验上还发现,利用基频及其二倍频组成的长激光脉冲驱动原子可以获得孤立阿秒脉冲^[11~14]。数值研究结果表明,尽管双色谐波谱的截止频率不能用一个简单的公式表示,但通过“三步”模型计算电离电子在复合时刻的动能随电离时刻变化曲线,可以很好地解释谐波谱的结构,并能准确预言出截止频率。这为优化双色激光脉冲谐波辐射提供了一个很好的窗口。而且,在特定相对相位下,还观测到谐波谱平台尾部出现了连续辐射谱,通过过滤该连续辐射谐波,获得了孤立的阿秒脉冲,验证了文献[9]在实验中得到的结论。若无特殊说明,本文均采用原子单位。

2 理论方法

在长度规范和电偶极近似下,强激光和单原子相互作用的一维含时薛定谔方程为

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

对该方程的求解,采用 Crank-Nicholson 数值积分方法^[15]。 V 为原子势函数,选用修正的软化库仑势^[16]来描述

$$V(x) = -\frac{q}{\sqrt{x^2 + a}}. \quad (2)$$

取 $q = 1, a = 2$,使得体系的基态能量为 $\epsilon_0 = -0.5$ 。对应氢原子的基态, $F(t)$ 为线偏振的双色激光脉冲。

$$F(t) = f(t)[E_0 \sin(\omega t) + E_1 \sin(2\omega t + \phi)], \quad (3)$$

式中 $\omega = 0.057$ 为入射基频激光场的中心频率, ϕ 为相对相位,为计算方便取为 0。 $f(t)$ 为激光脉冲的包络,采用 \sin^2 的形式,脉冲持续时间约为 8 fs(半高全宽)。基频的峰值场幅 E_0 均取为 0.1,二倍频的峰值场幅 E_1 取为 0.03。这样,凯耳什(Keldysh)参数 $\gamma = \sqrt{I_p / (2U_p)} = 0.56 [U_p = E_0^2 / (4\omega^2) + E_1^2 / 16\omega^2]$ 为双色激光场的有质动能,表明原子的电离主要以隧穿电离的方式进行^[17]。

实际计算时,空间边界取为 ± 1200 ,同时为避免波包从边界上的非物理反射,加入了 $\cos^{1/8}$ 形式的面具函数^[18]。通过数值求解(1)式可得体系在任意

时刻的含时波函数 $\Psi(x, t)$,然后对体系的加速度偶极矩^[19]

$$d_A(t) = \frac{d^2}{dt^2} \langle \Psi(x, t) | X | \rangle = - \langle \Psi(x, t) | \frac{dV(x)}{dx} | \rangle - E(t), \quad (4)$$

进行傅里叶(Fourier)变换可得加速度形式的谐波发射功率谱

$$P_a(\omega) = \left| \frac{1}{(t_f - t_i)\omega^2} \int_{t_i}^{t_f} a(t) \exp(-i\omega t) dt \right|^2, \quad (5)$$

式中 t_i, t_f 为 Fourier 变换的初时刻和末时刻。再对加速度偶极矩做相应的莫莱特(Morlet)小波变换,则可得某一次谐波的时间特性。即频率为 ω 的谐波在时刻 t 的发射功率幅值为

$$d_\omega(t) = \int d_A(t') \omega_{t,\omega}(t') dt', \quad (6)$$

式中小波核为 $\omega_{t,\omega}(t') = \sqrt{\omega} W[\omega(t' - t)]$ 。对本文所用的 Morlet 小波,其形式为

$$W(x) = \frac{1}{\sqrt{\tau}} \exp(ix) \exp(-\frac{x^2}{2\tau^2}). \quad (7)$$

该小波变换的窗口函数随着频率的变化而变化,但窗口中的振荡数恒定。本文选择 $\tau = 20$ 。

3 结果与分析

图 1,图 2 分别给出了单色、双色激光脉冲与氢原子相互作用的谐波发射功率谱。对于单色场谐波谱,从图 1 可以观察到,谐波谱的截止位置为 51 次,这和 $I_p + 3.17U_p$ ($U_p = E_0^2 / 4\omega^2$ 为基频激光脉冲的有质动能,下文同)截止规则是一致的。但是,双色激光脉冲谐波谱的截止频率不再符合上述截止规则,从图 2 可以看到,谐波谱出现了清晰的双平台结构,两个截止位置分别为 45 和 61 次,且第二平台尾

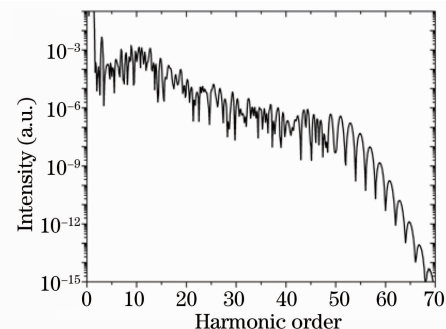


图 1 基频激光脉冲谐波辐射功率谱
Fig. 1 Harmonic spectrum driven by single fundamental pulse

部出现了连续辐射谱。对上述单色、双色激光场谐波谱结构和截止频率的差异,本文试图利用半经典的“三步”模型及小波变换给出合理的解释。

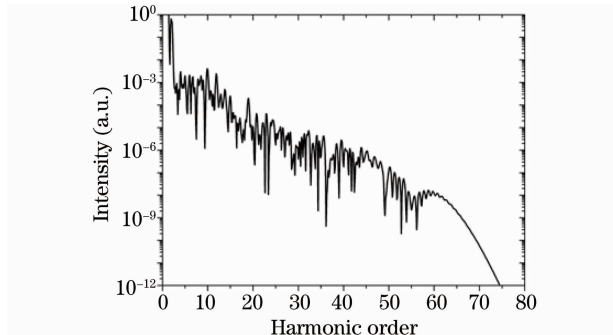


图 2 双色激光脉冲谐波辐射功率谱

Fig. 2 Harmonic spectrum driven by the synthesized pulse

由“三步”模型可以计算得到电子复合时刻动能随电离时刻的变化关系。从图 3(a)单色场情形的复合动能曲线可看出,电子所具有的最大复合时刻动能约为 $3.17 U_p$,当具有该动能的电离电子与基态复合,则放出能量为 $I_p + 3.17 U_p$ 的光子,这和图 1 谐波谱的截止频率是相一致的。对照图 3(b)单色激光脉冲电场可观察到,由于电场的对称性,使得脉冲中心两个连续的半个光学周期内电离的电子复合动能曲线也呈现对称性,截止谐波光子则在相应的两个电场峰值附近电离,如图 4 中的点线所示。从图 4(a)双色激光场的复合时刻动能曲线可注意到,电子返回母离子附近所具有的最大动能约为 $3.84 U_p$,当具有该动能的电离电子和基态复合,则辐射出能量为 $I_p + 3.84 U_p$ 的谐波光子,这和图 2 中 61 次截止谐波相符合。对照图 4(b)双色激光脉

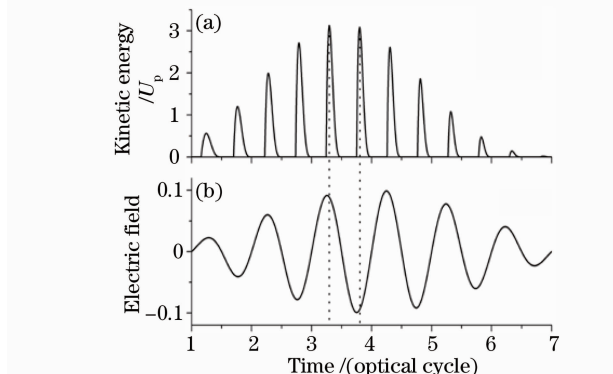


图 3 (a) 电子复合时刻动能随电离时刻的变化关系,
(b) 基频激光脉冲电场

Fig. 3 (a) The variation of the kinetic energy of electron at the recombination time as a function of ionization time, (b) the electric field of fundamental pulse as a function of time

冲电场可观察到,由于电场的对称性破坏,使得脉冲中心两个连续的半个光学周期内电离的电子复合动能曲线不再对称,出现一个高峰一个低峰,所具有的最大复合时刻动能分别为 $3.84 U_p$, $2.68 U_p$,后者与图 2 中第一平台谐波截止频率相对应。

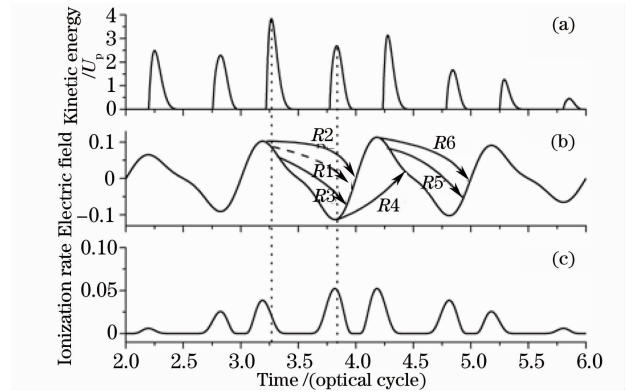


图 4 (a) 电子复合时刻动能随电离时刻的变化关系;
(b) 双色激光脉冲电场;(c) 电离率

Fig. 4 (a) The variation of the kinetic energy of electron at the recombination time as a function of ionization time; (b) the electric field of the synthesized pulse as a function of time; (c) ionization rate for the synthesized pulse

由图 4 还可以进一步解释双脉冲谐波谱的双平台结构及第一个截止频率。从图 4(a)观测到,对第二平台谐波有贡献的电离电子来自两个时域,第 3, 4 个光学周期的前半周期,且随着谐波级次的增加,对谐波发射有贡献的运动轨迹渐次减少,到 61 次谐波,只有一个轨迹对它起作用[图 4(b)中的 R1 轨迹],与此相应的谐波变得越来越连续且转化效率不断递减,这和图 2 中谐波谱第二平台形状相吻合;对于第一平台谐波而言,则有更多的运动轨迹对它们起作用(多轨迹的干涉导致第一平台谐波的不规则,这可从图 2 中明显观察到),而且随着谐波次数的增加,对谐波辐射起作用的轨迹也逐次减少,到 45 次谐波,则只有 5 个轨迹对它有贡献[图 4(b)中的 R2~R6 轨迹],即除 3-3.5, 4-4.5 两个时域的 4 个轨迹(两个长轨迹 R2, R6 和两个短轨迹 R3, R5)对它起作用外,还有在 3.83 个光学周期电离的电子对它起作用(R4 轨迹,相应的复合时刻动能为 $2.68 U_p$),这也是该次谐波为第一平台截止频率的一个原因。对照图 4(b)的双脉冲激光电场还可观察到,对第二平台尾部谐波起作用的电子都不是在每个光学周期的峰值处电离,而对第一平台尾部谐波起作用的电子有不少是在每个光学周期的峰值处电离。例如,61 次谐波是在 3.26 个光学周期产生,

该时刻电场幅值约为 0.086, 而 45 次谐波的一个主要轨迹 $R4$ 源于 3.83 个光学周期, 该时刻对应的电场幅值约为 -0.113 。由 ADK Ammo Sov-Delore-Kraiaov 理论可知^[20], 在隧穿电离机制下, 电离速率为 $\exp[-C/|E(t)|]$, 显然电子在 3.83 时刻的电离速率要比 3.26 时刻的电离速率大一些, 如图 4(c) 所示, 这也是 45 次谐波为第一平台截止频率的另一个原因。正是上述因素导致了双脉冲谐波谱的双平台结构。由上可知, 利用“三步”模型是可以解释双色激光脉冲谐波谱的双平台结构及相应的截止位置。

为进一步验证上述结论的正确性, 利用小波时频分析方法给出了双色激光脉冲谐波辐射小波时间频率谱, 如图 5 所示。从图中可观察到, 脉冲中心连续的两个半光学周期内出现了高低峰现象, 且高峰的效率低而低峰的效率较高, 这与上文用“三步”模型分析得到的结果相一致, 也和图 2 中谐波双平台结构对应。图 6 给出了双脉冲谐波谱截止频率时域包络。从图中注意到, 61 次谐波的复合时刻约为 3.97 个光学周期。对于任意谐波的复合时刻, 利用“三步”模型同样可以计算得到, 如图 7 所示。从图

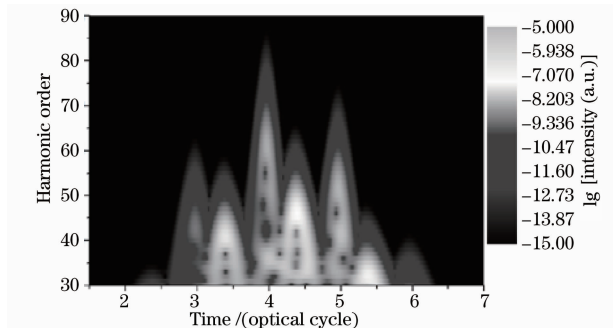


图 5 双色激光脉冲谐波辐射小波时频谱

Fig. 5 The time-frequency analysis result from the synthesized pulse

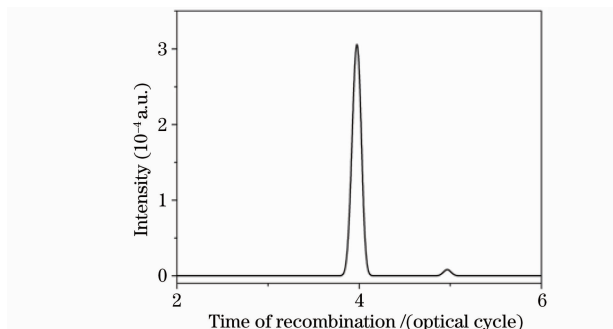


图 6 双色激光脉冲谐波谱 61 次谐波的时域包络

Fig. 6 The time profiles for the 61st harmonic from synthesized pulse

中可观察到, 用“三步”模型算出的 61 次谐波复合时刻也是 3.97 个光学周期。前者是在数值求解含时薛定谔方程的基础上得到, 而后者是通过半经典的模型计算获得, 二者的完全重合, 再一次证实利用“三步”模型可以预言双脉冲谐波谱的截止频率。

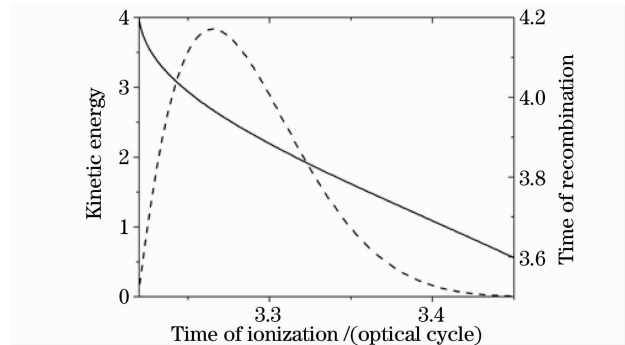


图 7 双色激光脉冲情形下电子的复合时刻(实线)及复合时刻动能(虚线)随电离时刻的变化关系

Fig. 7 The variation of the kinetic energy of electron as a function of the ionization times (solid) and times of the electron recombination (dot)

同时, 以 $\pi/8$ 为步长计算了其它相对相位下的双脉冲谐波谱。数值结果表明, 在 $5\pi/8$ 到 $7\pi/8$ 相位下谐波谱存在单一的平台, 但截止位置相对于单色场情形得到展宽, 其它相位下均出现了双平台结构。对不同相位下的谐波谱, 利用复合时刻动能随电离时刻变化关系都可以很好地解释谐波谱结构及相应截止频率。通过数值实验还发现, 在 0 到 $\pi/2$ 以及 π 相位下, 双脉冲谐波谱平台尾部均出现了连续辐射谱, 这说明在双色激光脉冲情形下是可以在较宽的相位区间获得孤立阿秒脉冲。从图 2 可以看出, 相对相位为零时, 第二平台尾部出现了明显的连续辐射谱。通过过滤 53 到 71 次谐波, 产生了脉宽

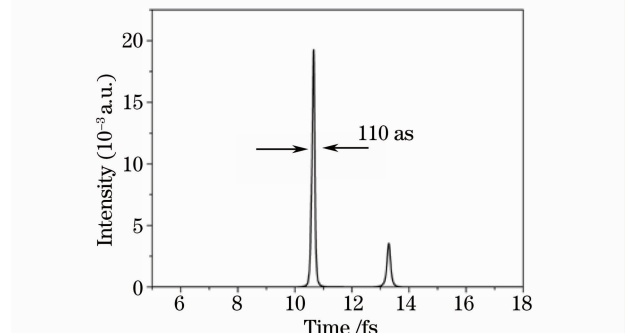


图 8 相对相位为零时, 叠加 53~71 次谐波获得的单一阿秒脉冲

Fig. 8 The single attosecond pulse generation by superimposing harmonics from the 53th to 71st at zero relative phase

为 110 as 的孤立脉冲, 如图 8 所示。

4 结 论

本文数值计算了 8 fs 的双色激光脉冲和氢原子相互作用产生的谐波发射功率谱。结果表明, 由于二倍频激光的加入, 电离电子在基频激光场下的动力学过程发生了变化, 导致复合时刻动能明显与单色场情形不同, 使得相对相位为 0 的谐波谱呈现出清晰的双平台结构。对此, 采用半经典的“三步”模型给出了合理解释, 并利用小波时频分析方法证实“三步”模型确实可以准确预言双色激光脉冲谐波谱的截止位置。另外, 若合理地选择双色激光脉冲的相对相位, 通过过滤连续辐射谱可获得孤立的阿秒脉冲。

参 考 文 献

- 1 R. A. Bartels, A. Paul, H. Green *et al.*. Generation of spatially coherent light at extreme ultraviolet wavelengths[J]. *Science*, 2002, **297**(5880): 376~378
- 2 T. Shiraiishi, M. Mori, K. Kondo *et al.*. Estimation of the pulse width of X-ray emission from Xe clusters excited by a subpicosecond intense Ti:sapphire laser pulse[J]. *Phys. Rev. A*, 2002, **65**(4): 045201
- 3 S. X. Hu, L. A. Collins. Attosecond pump probe: exploring ultrafast electron motion inside an atom[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2006, **96**(7): 073004
- 4 Zheng Yinghui, Xiong Hui, Peng Yan *et al.*. Generation of high-order harmonic continuum supporting single attosecond pulse in Argon driven by intense 7 fs laser pulse[J]. *Acta Optica Sinica*, 2006, **26**(9): 1439~1440
郑颖辉, 熊 辉, 彭 滢 等. 7 fs 超快强激光驱动 Ar 原子产生支持单个阿秒脉冲的高次谐波连续谱[J]. *光学学报*, 2006, **26**(9): 1439~1440
- 5 Zeng Zhihan, Li Ruxin, Xu Zhizhan. Effect of the absolute carrier phase of a few cycle laser pulses on the generation of attosecond pulse[J]. *Acta Optica Sinica*, 2003, **23**(3): 317~320
曾志男, 李儒新, 徐至展. 激光脉冲绝对相位对产生阿秒脉冲的影响[J]. *光学学报*, 2003, **23**(3): 317~320
- 6 P. B. Corkum. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, **71**(13): 1994~1997
- 7 D. B. Milošević, B. Piraux. High-order harmonic generation in a bichromatic elliptically polarized laser field[J]. *Phys. Rev. A*, 1996, **54**(2): 1522~1531
- 8 C. F. M Faria, D. B. Milošević, G. G. Paulus *et al.*. Phase-dependent effects in dromatic high order harmonic generation[J]. *Phys. Rev. A*, 2000, **61**(6): 063415(10)
- 9 C. F. M. Faria, W. Becker, M. Dörr *et al.*. Phase- and intensity-dependence of the cutoffs in two-color high harmonic generation[J]. *Laser Physics*, 1999, **9**(1): 388~394
- 10 C. F. M. Faria, L. M. Du. Enhancement of bichromatic high-order-harmonic generation with a high-frequency field[J]. *Phys. Rev. A*, 2001, **64**(2): 023415
- 11 Y. Oishi, M. Kaku, A. Suda *et al.*. Generation of extreme ultraviolet continuum radiation driven by a sub-10 fs two-color field[J]. *Opt. Express*, 2006, **14**(16): 7230~7237
- 12 T. Pfeifer, L. Gallmann, M. J. Abel *et al.*. Single attosecond pulse generation in the multicycle-driver regime by adding a weak second-harmonic field[J]. *Opt. Lett.*, 2006, **31**(7): 975~977
- 13 W. Cao, P. X. Lu, P. F. Lan *et al.*. Efficient isolated attosecond pulse generation from a multi-cycle two-color laser field[J]. *Optics Express*, 2006, **15**(2): 530~535
- 14 P. F. Lan, P. X. Lu, W. Cao *et al.*. Isolated sub-100-as pulse generation via controlling electron dynamics[J]. *Phys Rev A*, 2007, **76**(1): 011402
- 15 J. G. Chen, G. Chen, Y. J. Yang *et al.*. Simultaneous extension and enhancement of the HHG plateau by using combined lasers irradiating on a united two-atom system[J]. *Chin. Phys. Lett.*, 2005, **22**(3): 580~583
- 16 J. H. Eberly, Q. Su, J. Javanainen *et al.*. Nonlinear light scattering accompanying multiphoton ionization[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1989, **62**(8): 881~884
- 17 L. V. Keldysh. Ionizations in the field of strong electromagnetic wave[J]. *Sov. Phys. JETP*, 1965, **20**: 1307~1314
- 18 P. Balcou, A. L. Huillier, D. Escande *et al.*. High-order harmonic generation processes in classical and quantum anharmonic oscillators [J]. *Phys. Rev. A*, 1996, **53**(5): 3456~3468
- 19 Chen Jigen, Chen Gao, Zeng Siliang *et al.*. Effect of the carrier phase of ultra-short laser pulses on high-order harmonic generation spectra [J]. *Acta Physica Sinica*, 2008, **57**(7): 4104~4108
陈基根, 陈 高, 曾思亮 等. 超短脉冲的载波相位对高次谐波谱的影响[J]. *物理学报*, 2008, **57**(7): 4104~4108
- 20 M. V. Ammosov, N. B. Delone, V. P. Krainov. Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic[J]. *Sov. Phys. JETP*, 1986, **64**: 1191~1194