

载波相位对超短脉冲谐波谱的影响^{*}

陈基根¹⁾ 陈 高²⁾ 曾思良³⁾ 杨玉军⁴⁾ 朱颀人^{4)†}

1) 台州学院物理系, 椒江 318000)

2) 长春理工大学理学院, 长春 130022)

3) 北京应用物理与计算数学研究所, 北京 100088)

4) 吉林大学原子与分子物理研究所, 长春 130012)

(2007 年 9 月 1 日收到, 2007 年 9 月 29 日收到修改稿)

数值计算了线偏振的超短激光脉冲(脉冲持续时间为两个光学周期)与一维模型原子相互作用产生的高次谐波发射功率谱. 研究表明, 当载波相位发生变化时, 超短脉冲谐波谱的截止频率也随之改变, 而且在特定相位下, 谐波谱出现了明显的双平台结构. 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”模型可以准确预言超短脉冲谐波谱的截止频率.

关键词: 高次谐波, 超短脉冲, 载波相位

PACC: 3280, 4250

1. 引 言

强激光与原子分子相互作用可以产生入射波的高次谐波辐射, 它的发射功率谱具有如下特点: 随着谐波级次的增加, 谐波发射功率先是快速下降, 接着出现一个平台, 在该区域的谐波发射功率并不随着谐波级次的增加而明显地下降, 最后在平台末端出现一个截止. 这种独特的结构, 使得人们利用高次谐波可获得相干的 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].

近些年来, 由于超短激光技术的迅猛发展, 为高次谐波辐射研究提供了强有力的技术支持. 同时, 利用超短激光脉冲与原子分子相互作用产生谐波辐射的研究也越来越受到重视. 由于超短激光脉冲持续时间很短, 只有几个光学周期, 因此载波相位成为影响其谐波辐射的一个非常重要因素^[4]. 到目前为止, 对于超短激光脉冲产生的高次谐波对载波相位的敏感性, 前人已经做了很多工作. Bohan 等研究了载波相位对截止区域高次谐波的影响^[5]; Tempea 等指出由载波相位敏感性产生的时间抖动和强度波动对高次谐波阿秒脉冲的测量产生严重的限制^[6]; 王

迎松等发现, 当入射激光的脉冲持续时间仅为几个光学周期时, 入射激光场的载波相位对谐波谱平台区的高频部分和截止区域有非常明显的影响^[7]; Gurtler 等研究了超短脉冲和里德伯原子相互作用时, 载波相位对电离的影响^[8]; Zeng 等从理论上详细研究了超短脉冲载波相位对高次谐波阿秒脉冲产生和测量的影响^[9].

从上可知, 前人在载波相位影响超短脉冲谐波谱方面做了很多研究. 但是, 对于载波相位对超短脉冲谐波谱截止频率的影响, 相应的规律、物理机理还有待于人们进一步深入探究. 为此, 本文数值计算了超短激光脉冲(脉冲持续时间为两个光学周期)和原子相互作用产生的高次谐波发射功率谱, 研究了载波相位对谐波谱截止位置的影响. 为简化计算, 本文选择在一维条件下模拟超短激光脉冲与氢原子的相互作用. 在模拟过程中, 一维体系相对于三维体系确实要过高地计算电离电子和原子核多次碰撞的概率. 但对于本文选用的线偏振超短激光脉冲而言, 这种影响是很小的. 而且, 对于谐波发射功率谱, 前人的研究表明一维和三维的结果在定性上乃至半定量上都是一致的^[10,11]. 若无特殊说明, 本文均采用原子单位.

^{*} 国家自然科学基金(批准号: 10474028, 10604021)资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: qirenzhu2004@yahoo.com.cn

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

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

V 为原子势函数,本文选用修正的软化库仑势^[12]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. $F(t)$ 为线偏振的激光脉冲,即

$$F(t) = E_0 \sin^2(\omega t/4) \sin(\omega t + \phi), \quad (3)$$

其中 $\omega = 0.057$ 为入射激光脉冲的中心频率, ϕ 为相应的载波相位. E_0 为入射激光场的峰值场幅,这里取为 0.13. 这样, Keldysh 参数 $\gamma = \sqrt{I_p/(2U_p)} = 0.44$ (I_p 为原子电离势, $U_p = E_0^2/(4\omega^2)$ 为有质动力能),表明原子的电离主要通过隧穿电离的方式进行^[13].

对方程(1)的求解,采用 Crank-Nicholson 数值积分方法^[14]. 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^[15]. 通过求解方程(1)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^[16]

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

进行 Fourier 变换可得加速度形式的谐波发射功率谱

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

其中 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小波变换,则可得到任意一次谐波的时间特性^[17]. 即频率为 ω 的谐波在时刻 t 的发射功率幅值为

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

其中小波变换核为 $\omega_{t,\omega}(t') = \sqrt{\omega} W(\omega(t' - t))$. 本文选用 Morlet 小波^[18],其形式为

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

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(a)~(h) 给出了不同载波相位 ϕ 下的超短激光脉冲与原子相互作用的谐波发射功率谱,其中 ϕ 从 0 以 $\pi/8$ 逐步递增至 $7\pi/8$. 从图中可注意到,当 ϕ 从 0 逐渐变到 $7\pi/8$ 时,超短脉冲谐波谱的截止位置分别约为 57, 64, 72, 77, 80, 81, 39 和 47 次. 这说明超短脉冲谐波谱的截止频率随着相位的改变而改变,这一点和长脉冲情形是完全不同的. 从图 1(c)~(f) 中还可观察到,在 $\pi/4, 3\pi/8, \pi/2, 5\pi/8$ 的载波相位下,超短脉冲谐波谱出现了明显的双平台结构. $\pi/4$ 相位谐波谱的两个截止位置分别约为 15 次、64 次; $3\pi/8$ 相位谐波谱的两个截止位置分别约为 19 次、72 次; $\pi/2$ 相位谐波谱的两个截止频率分别约为 24 次、80 次; $5\pi/8$ 相位谐波谱的两个截止频率则分别约为 31 次、81 次. 对上述超短脉冲谐波谱的特性,本文试图采用半经典的“三步”模型^[19]给出合理解释.

由“三步”模型可知,处在束缚态的电子首先隧穿由原子势和激光场形成的势垒,而后在激光场中的作用下,它的运动遵循牛顿运动方程

$$a(t) = E_0 \sin^2(\omega t/4) \sin(\omega t + \phi), \quad (8)$$

$$v(t) = \frac{E_0}{2\omega} [\cos(\omega t_0 + \phi) - \cos(\omega t + \phi)] + \frac{E_0}{6\omega} [\cos(3\omega t/2 + \phi) - \cos(3\omega t_0/2 + \phi)] + \frac{E_0}{2\omega} [\cos(\omega t/2 + \phi) - \cos(\omega t_0/2 + \phi)], \quad (9)$$

$$x(t) = \frac{E_0}{2\omega^2} [\sin(\omega t_0 + \phi) - \sin(\omega t + \phi)] + \frac{E_0}{2} (t - t_0) \left[\frac{1}{\omega} \cos(\omega t_0 + \phi) - \frac{1}{3\omega} \cos(3\omega t_0/2 + \phi) - \frac{1}{\omega} \cos(\omega t_0/2 + \phi) \right] + \frac{E_0}{9\omega^2} [\sin(3\omega t/2 + \phi) - \sin(3\omega t_0/2 + \phi)] + \frac{E_0}{\omega^2} [\sin(\omega t/2 + \phi) - \sin(\omega t_0/2 + \phi)]. \quad (10)$$

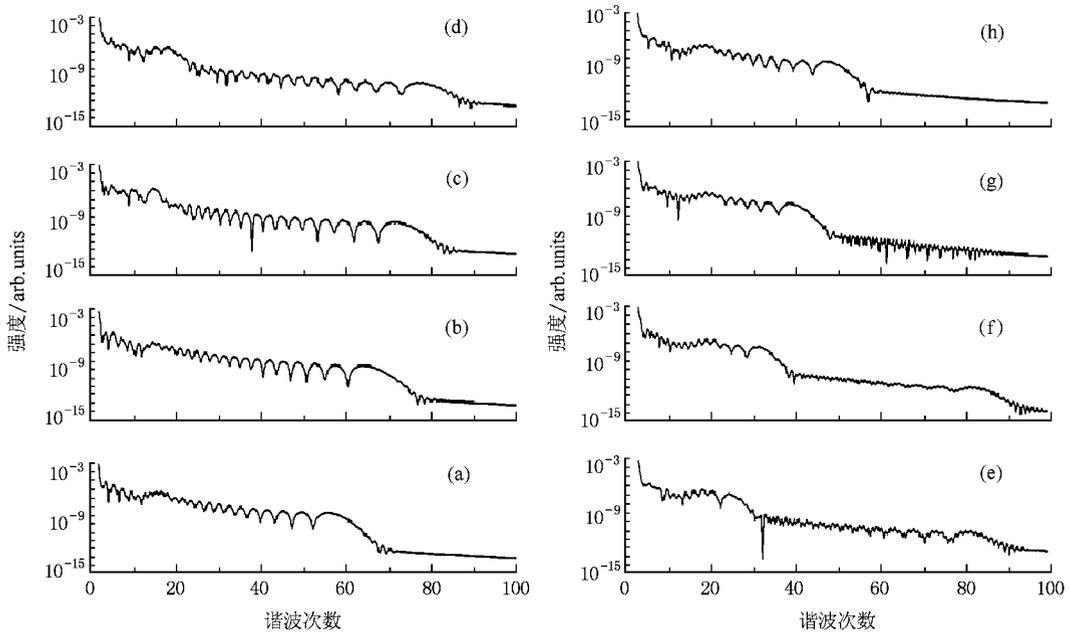


图1 超短脉冲谐波辐射功率谱(超短脉冲持续时间为2个光学周期,载波相位为(a)0 (b) $\pi/8$; (c) $\pi/4$ (d) $3\pi/8$; (e) $\pi/2$ (f) $5\pi/8$ (g) $3\pi/4$ (h) $7\pi/8$)

这里 $a(t)$, $v(t)$, $x(t)$ 分别为电离电子的加速度、速度及位移, t_0 为电子的电离时刻. 电子电离时, 它的空间位置及初速度均设为 0. 根据“三步”模型, 可以计算得到电离电子在超短激光脉冲驱动下回到核附近时所具有的动能随电离时刻的变化关系, 如图 2(a)–(h) 所示. 从图 2(a)–(h) 中可观察到, 当 ϕ 从 0 以 $\pi/8$ 逐步递增至 $7\pi/8$ 时, 电离电子在超短脉冲驱动下返回核附近所具有的最大动能分别约为 $2.08U_p$, $2.44U_p$, $2.76U_p$, $3.00U_p$, $3.14U_p$, $3.18U_p$, $1.32U_p$, $1.69U_p$ (对 $3\pi/4$, $7\pi/8$ 相位, 这里最大动能取为 $1.32U_p$ 和 $1.69U_p$, 具体理由下文将详细给出). 当具有这些动能的电离电子和氢原子基态复合时, 那么放出谐波光子的能量分别为 $I_p + 2.08U_p$, $I_p + 2.44U_p$, $I_p + 2.76U_p$, $I_p + 3.00U_p$, $I_p + 3.14U_p$, $I_p + 3.18U_p$, $I_p + 1.32U_p$, $I_p + 1.69U_p$, 对应的谐波次数则分别约为 57, 64, 72, 77, 80, 81, 39 和 47 次, 这一结果和图 1(a)–(h) 中超短脉冲谐波谱的截止位置是符合的. 而两者的完全一致也充分说明了利用“三步”模型是可以准确预言超短激光脉冲谐波谱的截止位置.

为进一步验证上述结论的正确性, 我们利用小波时频分析方法给出了 ϕ 为 0 的超短脉冲小波时间频率谱, 如图 3 所示. 从图中可清楚地看到, 超短脉冲谐波谱的截止频率约为 57 次, 这和“三步”模型算

出的结果是一致的. 而且, 从图中还可注意到, 该截止频率的复合时刻约为 1.44 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. 图 4 为电离电子的复合时刻及复合时刻动能随电离时刻的变化关系, 其中超短脉冲的 ϕ 为 0. 从图中可观察到, 用“三步”模型算出的该截止频率复合时刻也是 1.44 个光学周期. 这再一次证实利用“三步”模型是可以很好地解释超短脉冲谐波谱的截止频率.

从上可知, 当载波相位 ϕ 发生变化时, 超短脉冲谐波谱的截止频率也随之改变. 而对于长脉冲谐波谱, 它的截止频率几乎不随 ϕ 改变, 且与 $I_p + 3.17U_p$ 截止规则相符合. 对于两者截止频率随相位变化的差异, 我们认为主要原因在于: 在长脉冲情形下, 当 ϕ 发生变化时, 激光场尤其是包络极值附近的几个光学振荡只是产生了相应的相位平移, 但形状变化不大, 可认为激光电场的幅值基本没有改变, 如图 5 所示. 因此, 在该情形下, ϕ 变而长激光脉冲谐波谱的截止位置不变. 而在超短激光脉冲情形, 在绝大多数 ϕ 下, 脉冲包络的极值与光学振荡的极值已经不再可能重合, 而且当 ϕ 发生较大变化时, 激光场的形状也随之产生了很大差别, 且激光电场幅值(尤其峰值场幅)的变动也比较明显, 如图 6 所示. 因此, 随着 ϕ 的改变, 电离电子在超短激光

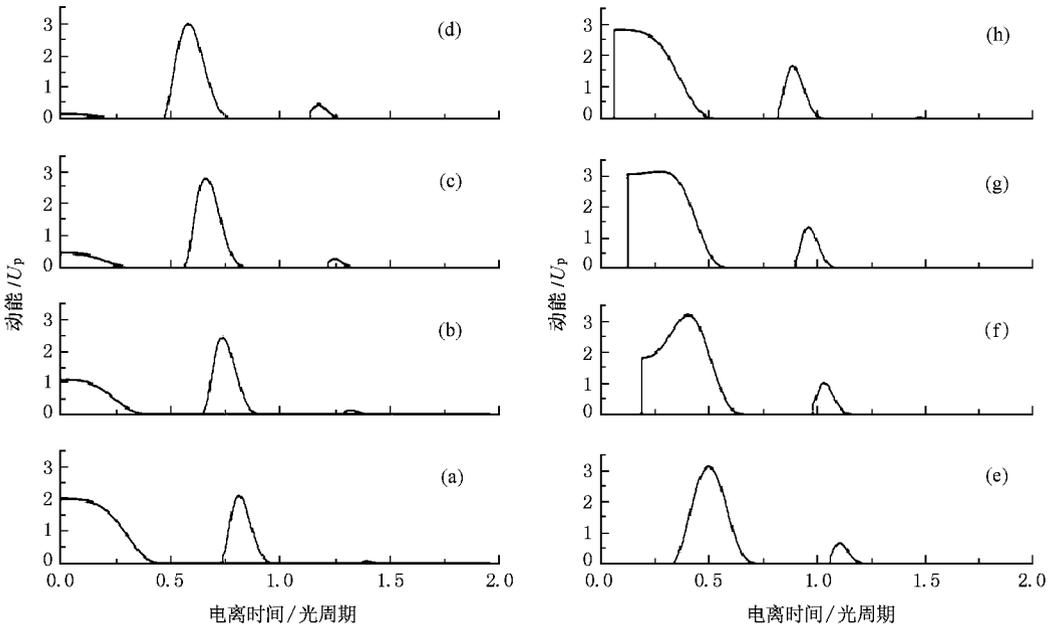


图 2 电离电子在超短激光脉冲驱动下回到核附近时所具有的动能随电离时刻的变化关系(超短脉冲的载波相位为(a)0 (b) $\pi/8$ (c) $\pi/4$ (d) $3\pi/8$ (e) $\pi/2$ (f) $5\pi/8$ (g) $3\pi/4$ (h) $7\pi/8$)

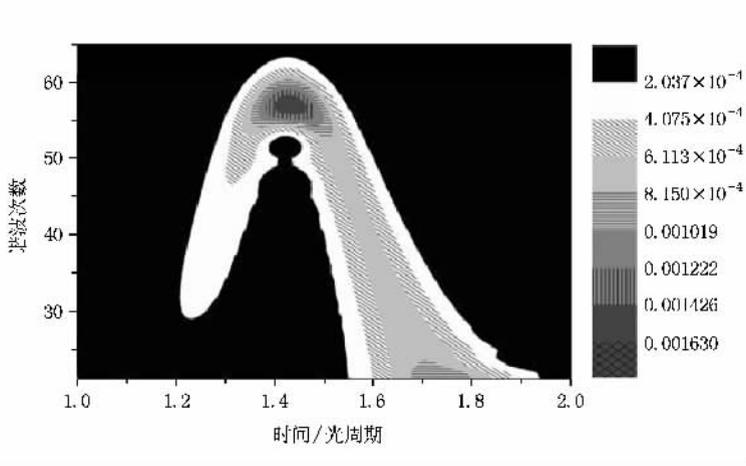


图 3 载波相位为 0 的超短脉冲小波时间频率谱

脉冲驱动下的运动轨迹也产生明显的不同,这最终导致电离电子在激光场中获得的最大动能有所差别,于是超短脉冲谐波谱的截止位置随着 ϕ 的变动而变动。

当 ϕ 为 $\pi/2$ 时,图 1(e)表明超短脉冲谐波谱具有明显的双平台结构。对此,仍然可以利用“三步”模型给出合理的解释。从图 2(e)中可看到, ϕ 为 $\pi/2$ 时,电离主要发生在两个时间域,一个时域约从 0.3 个光学周期到 0.75 个光学周期,另一个时域约从 1.05 个光学周期到 1.25 个光学周期。前者,电离电子获得的最大动能约为 $3.14U_p$,相应的电离时刻约

为 0.50 个光学周期,从图 6 中可注意到,该时刻对应的电场幅值约为 -0.065 ;后者,电离电子获得的最大动能约为 $0.68U_p$ (与此相应的谐波次数为 24 次)相应的电离时刻约为 1.10 个光学周期,该时刻电场幅值约为 0.103。显然,电子在 1.10 时刻的电离速率要比 0.50 时刻的电离速率大的多。从图 2(e)中还可观察到,对第一个平台的截止频率(24 次谐波)而言,对它有贡献的运动轨迹共有三个(第一个轨迹始于 0.38 个光学周期,此刻场幅为 -0.03 ;第二个从 0.63 个光学周期开始,相应的场幅为 -0.062 ;最后一个轨迹则在 1.10 个光学周期产

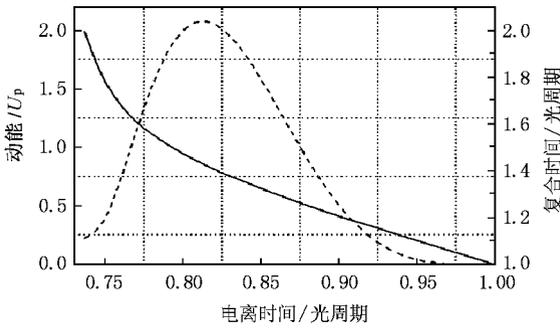


图 4 超短脉冲情形下电子的复合时刻(实线)及复合时刻动能(虚线)随电离时刻的变化关系(超短脉冲载波相位为 0)

因素导致 ϕ 为 $\pi/2$ 的超短脉冲谐波谱呈现出明显的双平台结构. 根据上述理由,也可以对图 1(c)(d), (f)中谐波谱出现的双平台结构给出很好的解释. 另外,从图 2(g)(h)中可注意到, ϕ 为 $3\pi/4, 7\pi/8$ 时,电离也主要发生在两个时域,且与 ϕ 为 $\pi/2$ 的情形类似. 从理论上而言,在上述两个相位下,谐波谱应当具有双平台结构. 但从图 1(g)(h)中,我们却观察不到,原因在于 ϕ 为 $3\pi/4, 7\pi/8$ 时,两者的前一个电离时域的电场幅值太小,最终使得这部分电离的电子对谐波谱贡献不大,而主要贡献则来自于后一个电离时域电离的电子. 从图 2(g)(h)中可观察到,在后一个电离时域,电离电子所能获得的最大动能约为 $1.32 U_p, 1.69 U_p$. 因此,相应的谐波截止位置为 39 和 47 次,和图 1(g)(h)相一致.

综上所述,当载波相位发生变化时,超短脉冲谐波谱的截止频率也随之改变,且在特定相位下,谐波谱出现了明显的双平台结构. 对超短脉冲谐波谱的这一特性,利用“三步模型”则可以给出合理的解释.

4. 结 论

本文数值计算了超短激光脉冲(脉冲持续时间为 2 个光学周期)和一维模型原子相互作用产生的谐波发射功率谱,研究了载波相位 ϕ 对谐波谱截止位置的影响. 计算结果表明,当超短脉冲的 ϕ 变动较大时,激光电场的形状产生了较为显著的变化,导致电离电子在超短脉冲驱动下获得的最大动能差异较大,使得谐波谱的截止位置随着 ϕ 的改变而改变. 而且,当 ϕ 为 $\pi/4, 3\pi/8, \pi/2, 5\pi/8$ 时,谐波谱呈现出明显的双平台结构. 我们认为两个主要因素导致这一结果:第一,电子在电离发生的两个时域内获得的最大动能不同,且两者电离时刻的电场幅值差别较大,导致在这两个时刻电离的电子数目差别较大;第二,前一个截止谐波有多个运动轨迹对它有所贡献,而后一个截止谐波只有一个轨迹对它起作用. 我们的研究结果还表明,利用“三步”模型确实可以准确预言超短脉冲谐波谱的截止频率.

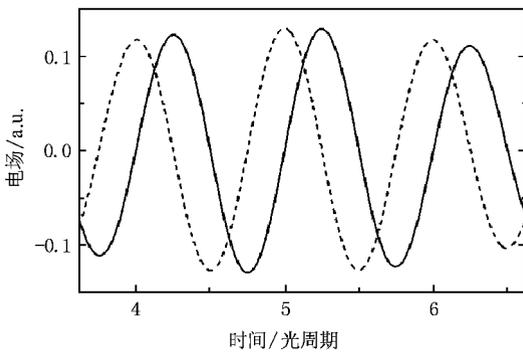


图 5 长脉冲包络附近的激光电场(长脉冲持续时间为 10 个光学周期,载波相位为虚线(0),实线($\pi/2$))

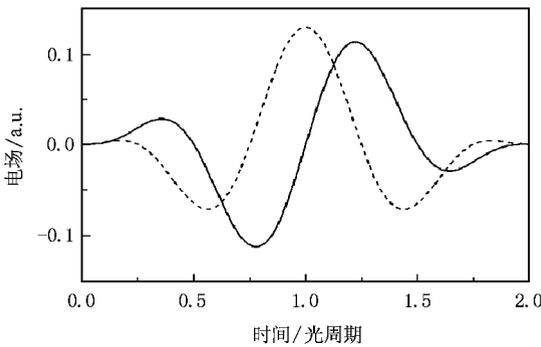


图 6 超短脉冲的激光电场(超短脉冲持续时间为 2 个光学周期,载波相位为实线(0),虚线($\pi/2$))

生)而只有一个运动轨迹对第二个平台的截止频率(80 次谐波)起作用. 我们认为,正是上述两个主要

[1] Bartels R A , Paul A , Green H , Kapteyn H C , Murnane M M , Backus S , Christov I P , Li Attwood D , Jacobsen C 2002 *Science* **297** 376

[2] Shiraishi T , Mori M , Kondo K 2002 *Phys. Rev. A* **65** 045201
 [3] Hu S X , Collins L A 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 073004
 [4] Paulus G G , Grasbon F , Walther H , Villorresi P , Nisoli M , Stagira

- S, Priori E, De Silvestri S 2001 *Nature* **414** 182
- [5] Bohan A, Antoine P, Milosevic D B, Piraux B 1998 *Phys. Rev. Lett.* **81** 1837
- [6] Tempea G, Geissler M, Brabec T 1999 *J. Opt. Soc. Am. B* **16** 669
- [7] Wang Y S, Xu Z Z 1999 *Acta Phys. Sin* **48** 1023 (in Chinese) [王迎松、徐至展 1999 物理学报 **48** 1023]
- [8] Gurtler A, Robicheaux F, Vrakking M J J, Van Der Zande W J, Noordam L D 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 063901
- [9] Zeng Z N, Li R X, Yu W, Xu Z 2003 *Phys. Rev. A* **67** 013815
- [10] Rae S C, Chen X, Burnett K 1994 *Phys. Rev. A* **50** 1946
- [11] Zhao S F, Zhou X X, Jin C 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 4078 (in Chinese) [赵松峰、周效信、金成 2006 物理学报 **55** 4078]
- [12] Eberly J H, Su Q, Javanainen J 1989 *Phys. Rev. Lett.* **62** 881
- [13] Keldysh L V 1965 *Sov. Phys. JETP* **20** 1307
- [14] Chen J G, Chen G, Yang Y J, Chi F P, Du W H, Zhu H Y, Zhu Q R 2005 *Chin. Phys. Lett.* **22** 580
- [15] Balcou P, Huillier A L, Escande D 1996 *Phys. Rev. A* **53** 3456
- [16] Yang Y J, Chen J G, Chi F P, Zhu Q R, Zhang H X, Sun J Z 2007 *Chin. Phys. Lett.* **24** 1537
- [17] Chen J G, Li C, Chi F P, Yang Y J 2007 *Chin. Phys. Lett.* **24** 86
- [18] Chu X, Chu S I 2001 *Phys. Rev. A* **64** 023411
- [19] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994

Effect of the carrier phase of ultra-short laser pulses on high-order harmonic generation spectra^{*}

Chen Ji-Gen¹⁾ Chen Gao²⁾ Zeng Si-Liang³⁾ Yang Yu-Jun⁴⁾ Zhu Qi-Ren^{4)†}

¹⁾ Department of Physics, Taizhou University, Jiaojiang 318000, China)

²⁾ College of Physics, Changchun University of Science and Technology, Changchun 130022, China)

³⁾ Institute of Applied Physics and Computational Mathematics, Beijing 100088, China)

⁴⁾ Institute of Atomic and Molecular Physics, Jilin University, Changchun 130012, China)

(Received 1 September 2007 ; revised manuscript received 29 September 2007)

Abstract

We numerically calculated the high-order harmonic generation (HHG) power spectra from a one-dimensional model atom irradiated by linearly polarized ultra-short laser pulses whose duration is two optical cycles. It was found that, the cut-off positions of the HHG spectra change when the carrier phases of the ultra-short laser pulses are altered, and the distinct double plateau structure appears in some special carrier phases. The above issues are reasonably explained by the three-step model. Finally, the wavelet time-frequency analysis verifies that the three-step model can accurately exactly predict the cut-off frequencies of the ultra-short pulse HHG spectra.

Keywords : high-order harmonic generation, ultra-short laser pulse, carrier phase

PACC : 3280, 4250

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10474028 and 10604021).

† Corresponding author. E-mail : qirenzhu2004@yahoo.com.cn