

# 采用双脉冲提高谐波谱的谱线密度 \*

刘 硕<sup>1)</sup> 陈 高<sup>1)†</sup> 陈基根<sup>2)</sup> 朱頔人<sup>3)</sup>

1) 长春理工大学理学院物理系,长春 130022)

2) 台州学院物理系,椒江 318000)

3) 吉林大学原子与分子物理研究所,长春 130012)

(2007 年 12 月 4 日收到 2008 年 4 月 21 日收到修改稿)

通过计算线偏振双脉冲激光场与一维氢原子模型相互作用产生的高次谐波辐射谱的含时 Schrödinger 方程。研究发现,选用适宜的双脉冲激光组合可以增加谐波谱的密度,这样的谐波谱特别适合作为产生孤立阿秒脉冲的光源。详细地分析了谐波谱线密度增加的物理机理,给出不同脉宽与谐波谱线密度增加的关系,从而可以有针对性地控制谐波谱线的疏密程度。

关键词:高次谐波,阿秒脉冲,双脉冲

PACC: 3280, 4250

## 1. 引 言

高次谐波产生是原子、分子、团簇以及固体等介质在强激光作用下发出的相干辐射波。因为谐波谱独特的平台区结构<sup>[1]</sup>,使它成为最有希望获得极紫外以及阿秒脉冲相干辐射源的手段之一<sup>[2]</sup>。阿秒脉冲的产生具有非常重要的应用<sup>[3]</sup>,如阿秒脉冲可以跟踪电子的运动,观察原子、分子中电子的弛豫过程,如内壳层电子的动力学行为等,它使超快科学的研究进入了一个全新领域。

通常情况,当一束激光脉冲与单原子相互作用时,谐波谱中仅有入射频率(基频)的奇数倍谐波产生,相邻两次谐波峰之间频率间隔相等。进一步采用时频分析手段,可以得到一串飞秒(fs)甚至是阿秒(as)量级的脉冲链,但很难获得孤立的阿秒脉冲<sup>[4]</sup>。理论上利用几个光学周期的可见光波段超短脉冲驱动,此时截止位置附近的谐波在驱动光的峰值附近产生,持续时间在半个光学周期内,达到了阿秒量级<sup>[1]</sup>。该方案的难点是实验上很难找到合适的光源。但通过增加谐波谱峰值密度的方法可以间接提高谐波的转换效率,即谐波峰不仅出现在基频的奇数次位置,也存在于两个相邻的奇数次谐波峰之间。事实上,一些理论<sup>[5,6]</sup>已经证实:采用基频场与

它的二次谐波组合,不但能得到奇次谐波,而且能同时得到偶次谐波,谐波谱的密度增加了一倍。最近 Fleischer 等人<sup>[4]</sup>利用形式为( $\omega, \omega + \delta\omega$ )的长程双脉冲激光脉冲与一维氢原子模型相互作用,得到峰值密度大幅增加的谐波谱。当  $\delta\omega = 0.1\omega$  时,在截止频率附近得到 70 as 的孤立短脉冲,但是 Fleischer 等人并没给出脉冲宽度和谱线密度增加的关系。本文在 Fleischer 等人的研究基础上,详细地分析了短程双脉冲激光与一维氢原子模型相互作用产生谐波谱线密度增加的物理机理,并给出不同脉宽与谐波谱线密度增加的关系,从而可以有针对性地控制谐波谱中谱线的疏密程度,为产生强度更强,脉宽更短的孤立阿秒脉冲提供理论基础。

## 2. 理论模型与计算方法

本文采用 Crank-Nicholson 数值积分法<sup>[7]</sup>,直接求解强激光和原子模型相互作用的含时 Schrödinger 方程。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<sup>[8]</sup>含时 Schrödinger 方程为(以下均采用原子单位)

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

\* 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:chengao@cust.edu.cn

$V_a(x)$  为原子势函数 ,本文选用修正的普薛尔 - 特勒势 (P-T 势) 来描述

$$V_a(x) = -\frac{U}{\cosh^2(\alpha x)}. \quad (2)$$

由于我们的目的是分析增加谐波谱线密度的物理机理 ,而并非给出详细的、定量的结果 . 从这个意义上来说 ,选择 P-T 势有两个明显的好处 :1 ) 它是一个短程势 ,可简化数值计算 2 ) 可以通过调整参数  $U$  和  $\alpha$  来选择束缚态的个数以及束缚态的能量 ,因此可模拟不同的真实原子 . 本文选取  $U = 1.75$ ,  $\alpha = 1.58$  这样每个势阱内只有一个束缚态 ,即基态 ,其能量为  $\epsilon_0 = -0.5$  ,与氢原子基态能量一致 .

$E(t)$  为线偏振的激光电场 ,单色场时它的表达式为

$$E(t) = E_0 f(t) \cos(\omega t + \phi), \quad (3)$$

式中  $f(t)$  为正弦平方形式的脉冲包络 ,其具体形式为  $f(t) = \sin^2\left(\frac{\pi t}{2T}\right)$ .  $\omega$  和  $E_0$  分别为入射激光脉冲的中心频率和峰值振幅 , $\phi$  为入射激光的初始相位 .

通过数值求解方程(1)可得体系在任意时刻的含时波函数  $\psi(x, t)$  ,进而得到加速度偶极矩

$$\begin{aligned} d_A(t) &= \frac{d^2}{dt^2} \psi(x, t) |x| \psi(x, t) \\ &= -\psi(x, t) \left| \frac{dV_a(x)}{dx} \right| \psi(x, t) - E(t). \end{aligned} \quad (4)$$

通过对偶极矩做傅里叶变换可得加速度形式的谐波发射功率谱

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

其中 ,  $t_i, t_f$  为傅里叶变换的初时刻和末时刻 .

在求解 Schrödinger 方程的过程中 ,我们人为地设置空间边界  $x = \pm 1500$  ,步幅  $dx = 0.02$  ,时间网格点为 0.01 . 为了避免波包在空间边界的反射 ,加入了  $\cos^{1/8}$  形式的面具函数<sup>[9]</sup> ,这个函数在  $|x| = 1200$  到 1500 的空间距离从 1 缓慢变化到 0 .

### 3. 结果与分析

计算过程中 ,双脉冲形式如下 :

$$\begin{aligned} E(t) &= E_0 f(t) \cos(\omega t) \\ &+ E_0 f(t) \cos\left[\left(\omega + \frac{m\omega}{n}\right)t\right] (m < n) \end{aligned} \quad (6)$$

式中激光场幅  $E_0 = 0.04$  ,频率  $\omega = 0.057$  和  $\delta\omega = \frac{m\omega}{n}$  脉冲包络采用  $\sin^2$  形式 ,包络中包含  $n = 36$  个基频光学振荡周期 ; 数值模拟中单脉冲激光场参数选取如下 : 角频率  $\omega = 0.057$  ,振幅  $E_0 = 0.06$  ,包络形式及光学周期数同双脉冲一致 .

从(6)式中可看到 ,当  $\omega$  确定后 , $\delta\omega$  的大小完全由  $n$  和  $m$  决定 . 当  $n = 36$ ,  $m = 9$  时 , $\delta\omega = 0.25\omega$  得到的高次谐波谱如图 1(a) ,从插图中可看出每两个相邻的奇次谐波峰内都包含 9 个小谐波峰 ,同时 ,我们对比给出单一激光脉冲与氢原子相互作用的谐波谱线 ,如图 1(b) 所示 . 从图 1 中可看出 ,双脉冲情形谐波谱的结构发生很大变化 ,表现为谐波谱中不但存在  $(\omega + \frac{\delta\omega}{2})$  的奇数次谐波 ,而且每个奇次谐波内还包含多个小的谐波峰 .

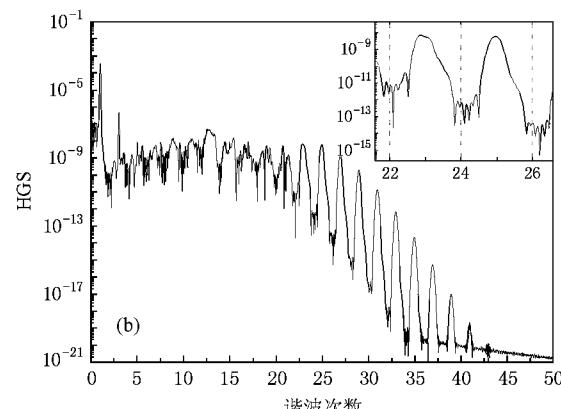
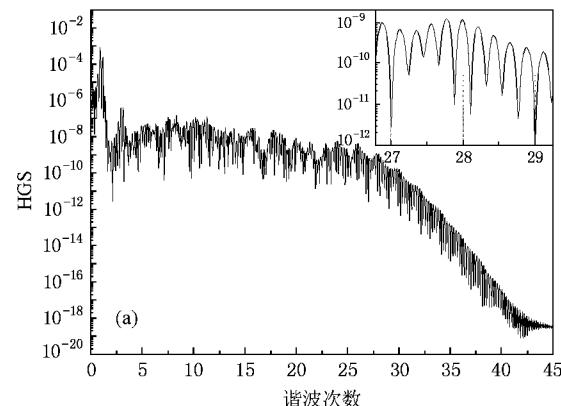


图 1 氢原子高次谐波辐射功率谱 (HGS) (a) 在双脉冲 ( $\omega, \omega + \delta\omega$ ) 辐照下 (b) 在单一基频光  $\omega$  辐照下

下面我们就以该谐波谱为例 ,分析采用双脉冲驱动增加谐波谱线密度的物理机理 .

双脉冲激光场经过简单的三角变换写为

$$E(t) = 2E_0 f(t) \cos\left(\left(\omega + \frac{m\omega}{2n}\right)t\right) \cos\left(\frac{m\omega}{2n}t\right). \quad (7)$$

该式可看成频率为 $\left(\omega + \frac{m\omega}{2n}\right)$ 的单色场,而 $\cos\left(\frac{m\omega}{2n}t\right)$ 和 $f(t)$ 一起看成调制包络形状的慢变函数。根据 Corkum 三步模型理论<sup>[10,11]</sup>,可以产生频率为 $\left(\omega + \frac{m\omega}{2n}\right)$ 奇数倍的谐波,从图 1(a)中得到,大的谐波峰恰好在 $\left(\omega + \frac{9\omega}{2n}\right)$ 的奇数倍位置。

同样,如果把(7)式中的 $\cos\left[\left(\omega + \frac{m\omega}{2n}\right)t\right]$ 和 $f(t)$ 一起看成调制包络形状的函数,把 $\left(\frac{m\omega}{2n}\right)$ 看成单色场的频率,由 Corkum 三步模型理论,可以产生频率为 $\left(\frac{m\omega}{2n}\right)$ 奇数倍的谐波,这样可算得每相邻两个大的奇数次谐波峰之间包含小的谐波峰的个数为

$$N = \frac{2\left(\omega + \frac{m\omega}{2n}\right)}{2\left(\frac{m\omega}{2n}\right)} = \left(1 + \frac{m}{2n}\right) \times \frac{2n}{m} = \frac{2n}{m} + 1. \quad (8)$$

在图 1(a)中, $m = 9, n = 36$ ,由(8)式算得包含小的谐波峰的个数应为 9 个。而图 1(a)的插图中给出相邻大的谐波峰之间包含小峰的个数恰为 9 个,所以理论分析结果和数值模拟结果一致。

按照相同的方法,图 2(a)和(b)中分别给出了 $m = 7, n = 28$  和  $m = 5, n = 20$  时氢原子体系辐射的谐波谱,每相邻两次大的谐波峰之间仍都包含 9 个小的谐波峰,这与(8)式算结果一致。这样可以通过调节  $m$  和  $n$  的取值,有针对性地控制谐波谱的疏密程度。

需指出的是,并非  $m$  取任何值都满足(8)式的条件。当  $m$  为偶数时,该条件不再满足,虽得到的谐波谱密度增加,但极其不规则。为了分析原因,我们给出了  $m$  取不同值,其他参数完全一致的双脉冲形式,如图 3 所示,这两个脉冲均包含 36 个光学周期的基频光。可以看到, $m$  不同导致激光场的形式迥然不同。 $m = 9$  时,激光脉冲由 8 个小包络构成,而且呈现的是两两对称结构。 $m = 8$  时,激光脉冲由 7 个小包络构成,最中间包络 4 对应着电场的最大场幅,而它两侧的包络是两两对称。鉴于激光场的这种特殊形状,可以解释为什么  $m$  为偶数时不满足

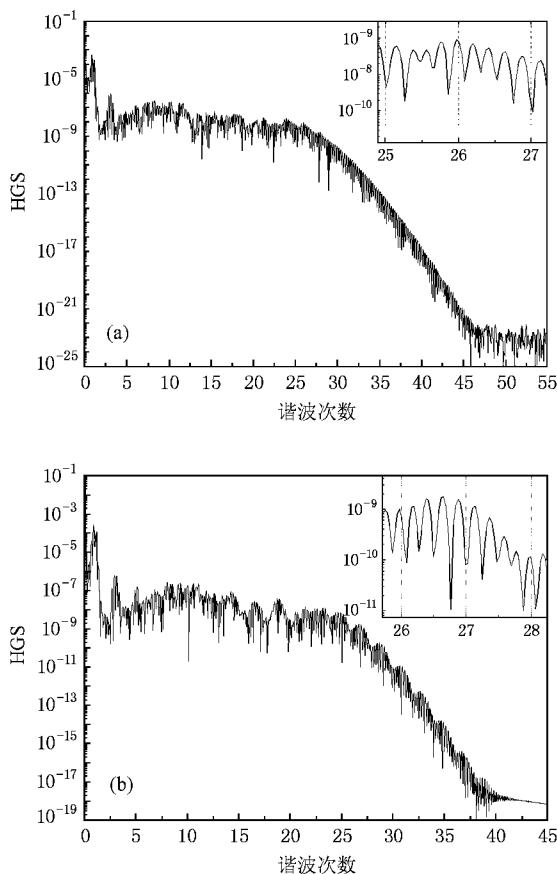


图 2 双脉冲与氢原子相互作用产生的高次谐波功率谱 (a)  $m = 7, n = 28$  (b)  $m = 5, n = 20$

(8)式的条件。当  $m = 8$  时,对截止位置附近的谐波起贡献的激光场是第 4 个包络,它相当于一个超短脉冲,得到的谐波谱应该是不规则的;而当  $m = 9$  时,包络 4 和 5 对高次谐波截止位置起主要作用,所以谐波的分立性比较好,得到规则的谐波谱。

最后还需强调的是:对于  $m = 1$  的情况也不符合(8)式,图 4 展示了  $m = 1, n = 20$  时的谐波谱,相邻两个大谐波峰之间包含小谐波峰的个数仅有 16 个,而由(8)式算得结果应为 41 个,导致这一矛盾的直接原因在于:无论脉宽长短,只要  $m = 1$ ,当把 $\left(\frac{\omega}{2n}\right)$  作为单色场频率时,整个脉冲只包含半个光学周期的基频光,其形状如图 5 所示。

根据谐波产生的三步模型理论,被激光场电离出的电子,在激光场中运动获得能量后,才可能与原子核复合并辐射高能光子。并且,在单一激光场的情况下,电子在激光场中电离时刻和复合时刻是相对应的<sup>[12]</sup>,并发生在不同的半个光学周期内,换句话说,如果电子在激光场的前半个光学周期内电离,

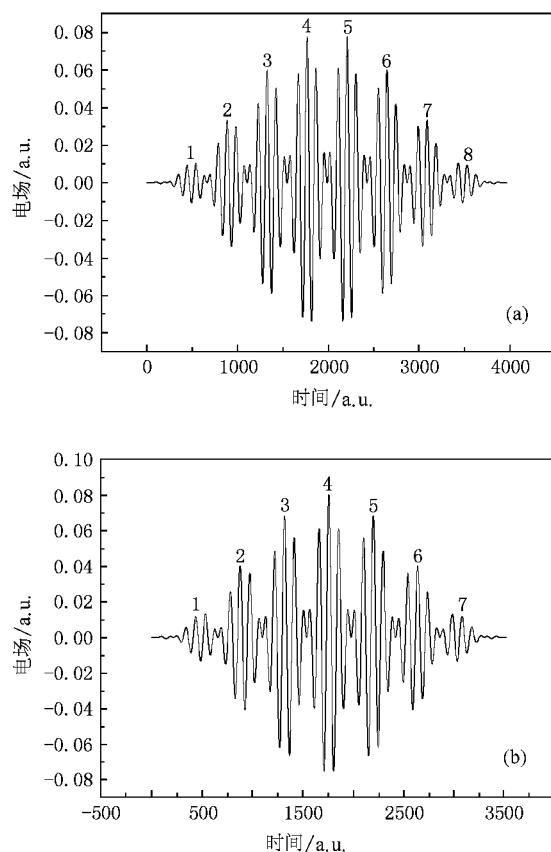


图 3 双脉冲线偏振激光场的形状(激光脉冲持续时间为 36 个光学周期) (a)  $m = 9$  (b)  $m = 8$

只能在后半个光学周期内复合。因此,对于形状如图 5 的激光脉冲形式,它不再符合产生  $(\frac{\omega}{2n})$  的奇数次谐波的条件。

## 4. 结 论

本文采用 Crank-Nicholson 中心差分算法求解双脉冲激光场与氢原子相互作用的含时 Schrödinger 方程,得到了体系的谐波发射功率谱。计算结果表明,

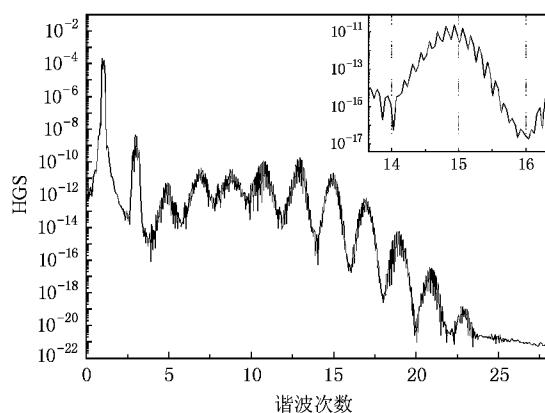


图 4 双脉冲与氢原子相互作用产生的高次谐波功率谱( $m = 7$ ,  
 $n = 28$ )

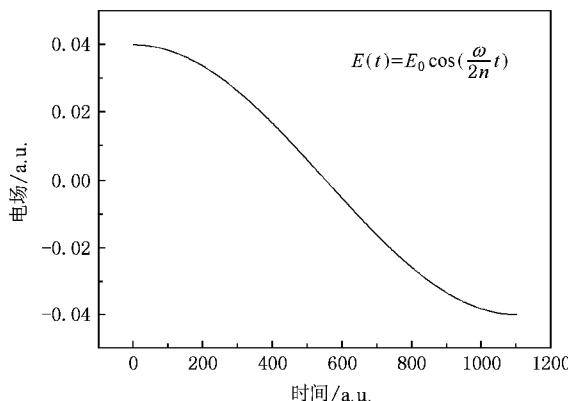


图 5 频率为  $(\frac{\omega}{2n})$  的单一激光脉冲形状

当采用合适的短程双脉冲( $\omega, \omega + \delta\omega$ )( $\delta\omega < \omega$ )组合时,谐波谱线的密度大幅度地增加,且呈现规律性的行为,密度增加的谐波谱特别适合作为产生阿秒脉冲的光源。基于此,我们详细地分析了增加谐波谱线密度的物理机理,给出不同脉宽与增加谐波谱线密度的关系,从而可有针对性地控制谐波谱中谱线的疏密程度。

- [1] Andre D. Bankrauk , Nguyen Hong Shon 2002 *Phys. Rev. A* **66** 031401(R)
- [2] Drescher M , Hentschel M , Kienberger R et al 2001 *Science* **291** 1923
- [3] Chritov I P , Murane M M , Kapteyn H C 1997 *Phys. Rev. Letts.* **98** 1251
- [4] Avner Fleischer , Nimrod Moiseyev 2006 *Phys. Rev. A* **74** 053806
- [5] Jones D J , Diddams S A , Sanka J K et al 2000 *Science* **288** 635
- [6] Mauritsson J , Johnsson P , G [REDACTED] E et al 2006 *Phys. Rev. Letts.* **97** 013001
- [7] Chen J G , Chen G , Yang Y J et al 2005 *Chin. Phys. Letts.* **22** 580
- [8] 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]
- [9] Balcock P , L'Huillier A , Escande D 1996 *Phys. Rev. A* **53** 3456
- [10] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Letts.* **71** 13
- [11] Santra R 2006 *Phys. Rev. Letts.* **96** 073906
- [12] Merdji H , Kovacev M , Boutou W et al 2006 *Phys. Rev. A* **74** 043804

# Increasing line-density of high-order harmonic generation spectra with bichromatic fields<sup>\*</sup>

Liu Shuo<sup>1)</sup> Chen Gao<sup>1)†</sup> Chen Ji-Gen<sup>2)</sup> Zhu Qi-Ren<sup>3)</sup>

1) Department of Physics, Science School, Changchun University of Science and Technology, Changchun 130022, China

2) Department of Physics, Taizhou Collage, Jiaojiang 318000, China

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

(Received 4 December 2007; revised manuscript received 21 April 2008)

## Abstract

By numerically solving time-dependent Schrödinger equation, we obtain high-order harmonic generation ( HHG ) spectra from the one-dimensional H atom model submitted to linear polarization bichromatic field. It is found that, appropriate bichromatic field could be a source of attosecond pulse generation since it produces a higher line-density in harmonic generation spectra( HGS ). Based on it, we analyze the mechanism of generating denser HHG spectral lines in detail, and give density-selection numerical experiential formulas for different pulses duration, to achieve further control of the line density of HGS.

**Keywords** : high-order harmonic generation, attosecond pulse, bichromatic field

**PACC** : 3280, 4250

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

† E-mail : chengao@cust.edu.cn