

# 原子在红外激光场中产生高次谐波及阿秒脉冲随波长的变化规律\*

成春芝 周效信<sup>†</sup> 李鹏程

(西北师范大学物理与电子工程学院, 兰州 730070)

(2010年3月26日收到; 2010年4月21日收到修改稿)

利用强场近似理论,研究了在长波红外激光场(波长 800—2000 nm)驱动下氢原子产生的高次谐波,分析了在截止位置附近高次谐波的转换效率随激光波长的变化规律.发现在截止位置附近原子发射高次谐波的转换效率比平台区域的转换效率低,但获得的阿秒脉冲的宽度会随波长的增大而缩短.

**关键词:** 强场近似, 高次谐波, 阿秒脉冲

**PACS:** 32.80.Rm, 42.65.Ky, 42.65.Re

## 1. 引言

阿秒( $10^{-18}$  s)脉冲可以探测原子内电子的超快动力学过程,比如原子内壳层电子弛豫过程<sup>[1]</sup>、原子中电子的隧穿电离过程<sup>[2]</sup>以及核动力学过程<sup>[3]</sup>等瞬态现象,因此,研究阿秒脉冲的实现有重要意义.原子在短脉冲强激光场中产生的高次谐波平台区的末端会出现超连续的特点,利用这些超连续性的谐波是实现阿秒脉冲的重要手段之一<sup>[4-9]</sup>.

高强度的激光场与原子或分子相互作用时,原子或分子会发射出频率为入射激光场频率奇数倍的电磁辐射,这种电磁辐射称为高次谐波.高次谐波的发射机理可用“三步模型”<sup>[10]</sup>来解释:在激光场作用下,原子中的电子首先隧穿由激光场和原子势共同形成的势垒而成为自由电子,隧穿后的自由电子将在激光场的驱动下运动并获得能量,当激光场反向时,电子被拉回原子核附近并与原子核复合,原子的电离能与电子从激光场获得的动能以光的形式辐射,所辐射光子的最大能量为  $E_{\max} = I_p + 3.17U_p$ ,该公式称为高次谐波谱在截止位置(cutoff)的能量半经验公式,该经验公式也被 Krause 等人<sup>[11]</sup>在 1992 年通过数值求解含时 Schrödinger 方程

所证实,其中  $I_p$  是原子的电离势,  $U_p = E_0^2/(4\omega^2)$  是有质动力能(其中  $E_0$  是入射激光的峰值电场,  $\omega$  是激光的角频率),因此  $U_p$  还可表示为  $U_p \propto I\lambda^2$ ,  $I$  是入射激光的峰值强度,  $\lambda$  是激光的波长.已有的研究表明<sup>[12]</sup>,通过增加  $U_p$  而得到更高的谐波截止位置,从而可以获得更短的阿秒脉冲.而  $U_p$  的表达式可以看出通过两种方式能达到增加  $U_p$  的目的,一种是增加激光强度来提高截止位置的能量,但是强度达到一定的数值后原子会被完全电离,这会大大降低高次谐波的发射效率;另一种方法就是在一定得激光强度下通过增加激光波长来拓宽高次谐波谱截止位置.

一般说来,利用长波长的激光驱动原子发射的高次谐波其转换效率会随波长的增加而降低.最近,一些学者从理论上研究了高次谐波的发射效率与波长的依赖关系表明,处于基态原子发射高次谐波的效率为  $\eta(\lambda) \propto \lambda^{-x}$  ( $x=4-6$ )<sup>[13-15]</sup>,而处于激发态原子所发射高次谐波的转换效率会有很大的提高,转换效率  $\eta(\lambda) \propto \lambda^{-x}$  ( $x=2-3$ )<sup>[16]</sup>.但是这些转换效率都是在高次谐波平台的前端(即谐波的能量较低)范围内得到的,而由高次谐波获得的阿秒脉冲(特别是单个的阿秒脉冲)大多是利用截止位置附近的高次谐波实现的,对于这些高能的高次

\* 国家自然科学基金(批准号:11044007, 11047016),高等学校博士学科点专项科研基金(批准号:20096203110001),西北师范大学创新项目(批准号:NWNU-KJCGC-03-62)资助的课题.

<sup>†</sup> 通讯联系人. E-mail:zhouxx@nwnu.edu.cn

谐波的转换效率随波长的变化规律仍不清楚. 本文将从理论上研究波长在 800—2000 nm 激光作用到氢原子上产生的高次谐波谱在截断位置附近的转换效率随激光波长的变化规律, 并进而研究由截断位置附近的超连续谐波构造的阿秒脉冲宽度与激光波长的依赖关系.

从理论上研究原子分子在强激光场中产生的高次谐波, 归结为求解原子分子在强激光场中的含时 Schrödinger 方程, 对于长波长激光与原子的相互作用, 由于所考虑的空间范围很大, 数值求解含时 Schrödinger 方程计算量大. 基于强场近似的 Lewenstein 模型<sup>[17]</sup>, 忽略了束缚态—束缚态之间的跃迁, 仅考虑基态与连续态之间的跃迁, 使计算量大为降低, Zhou 等人<sup>[18]</sup>曾将 Lewenstein 模型应用到氢原子发射的高次谐波, 并将结果与数值求解含时 Schrödinger 方程得到的结果进行了比较, 发现两者在平台区符合得很好, 特别是在截止位置附近两者的结果完全一致. 本文将继续利用强场近似 Lewenstein 模型研究氢原子与长波长激光相互作用产生高次谐波的特征.

## 2. 理论模型

在长度规范下, 采用偶极近似, 含时 Schrödinger 方程可以表示为(若无特殊说明, 均采用原子单位)

$$i |\psi(\mathbf{x}, t)\rangle = \left[ -\frac{1}{2} \nabla^2 + V(\mathbf{x}) - E(t)x \right] |\psi(\mathbf{x}, t)\rangle, \quad (1)$$

若仅考虑基态和连续态对高次谐波的贡献, 忽略其他束缚态的影响, 同时当电子处在连续态时, 忽略原子核对电子的作用. 这时含时波函数可展开为

$$|\psi(t)\rangle = e^{i\mu t} (a(t) |0\rangle + \int d^3 v b(\mathbf{v}, t) |v\rangle), \quad (2)$$

其中,  $a(t)$  为基态振幅,  $b(\mathbf{v}, t)$  为相应的连续态振幅,  $I_p$  原子的电离能,  $|0\rangle$  为基态波函数,  $|v\rangle$  为连续态波函数.

为了计算感应偶极矩的  $x$  分量, 必须计算  $x(t) = \langle \psi(t) | x | \psi(t) \rangle$ , 引入正则动量

$$\mathbf{p} = \mathbf{v} + \mathbf{A}(t), \quad (3)$$

得到  $x$  方向感应偶极矩为<sup>[17]</sup>

$$x(t) = i \int_0^t dt' \int d^3 p E \cos(t') \times d_x(\mathbf{p} - \mathbf{A}(t')) d_x^*(\mathbf{p} - \mathbf{A}(t))$$

$$\times \exp[-iS(\mathbf{p}, t, t')] + \text{c. c.}, \quad (4)$$

其中

$$S(\mathbf{p}, t, t') = \int_{t'}^t dt'' \left( \frac{[\mathbf{p} - \mathbf{A}(t'')]^2}{2} + I_p \right). \quad (5)$$

方程(4)有明确的物理意义: 积分中第一项  $E \cos(t')$   $d_x(\mathbf{p} - \mathbf{A}(t'))$  表示动量为  $\mathbf{p}$  的电子在  $t'$  时刻从基态跃迁到连续态的概率振幅, 此时电子具有正则动量  $\mathbf{p}$ .  $\exp[-iS(\mathbf{p}, t, t')]$  表示电子在激光的驱动下从  $t'$  时刻传播到  $t$  时刻引入的相位因子, 这里  $S$  为准经典作用量.  $d_x^*(\mathbf{p} - \mathbf{A}(t))$  表示电子在  $t$  时刻复合到原子核的概率振幅.

(4)式中对正则动量  $\mathbf{p}$  积分的主要贡献来自于

$$\nabla_{\mathbf{p}} S(\mathbf{p}, t, t') = 0, \quad (6)$$

所以对  $\mathbf{p}$  的积分可以用鞍点法计算, 表达式(4)最终可写为

$$x(t) = i \int_0^\infty d\tau \left( \frac{\pi}{\varepsilon + i\tau/2} \right)^{3/2} d_x^*(\mathbf{p}_{st}(t, \tau) - \mathbf{A}_x(t)) \times \exp[-iS(\mathbf{p}_{st}, t, \tau)] \times E(t - \tau) d_x(\mathbf{p}_{st}(t, \tau) - \mathbf{A}_x(t - \tau)) + \text{c. c.}, \quad (7)$$

其中

$$\mathbf{p}_{st}(t, \tau) = \int_{t-\tau}^t \mathbf{A}(t'') dt'' / \tau, \quad (8)$$

$$S(\mathbf{p}_{st}, t, \tau) = I_p \tau - \frac{1}{2} \mathbf{p}_{st}^2 \tau + \frac{1}{2} \int_{t-\tau}^t \mathbf{A}^2(t'') dt'', \quad (9)$$

式中  $\tau = t - t'$ ,  $\varepsilon$  为一很小的正数.

如果考虑基态的损耗, 则感应偶极矩(7)式可改写为

$$x(t) = i \int_0^\infty d\tau \left( \frac{\pi}{\varepsilon + i\tau/2} \right)^{3/2} d_x^*(\mathbf{p}_{st}(t, \tau) - \mathbf{A}_x(t)) a^*(t) \exp[-iS(\mathbf{p}_{st}, t, \tau)] \times E(t - \tau) d_x(\mathbf{p}_{st}(t, \tau) - \mathbf{A}_x(t - \tau)) \times a(t - \tau) + \text{c. c.}, \quad (10)$$

式中的  $a(t)$  为

$$a(t) = \exp \left[ - \int_{-\infty}^t w(t') dt' \right], \quad (11)$$

$w(t')$  为原子的电离速率, 可用原子的 ADK 模型<sup>[19]</sup> 计算得到.

通过对(10)式的原子偶极矩进行傅里叶变换, 再取模的平方即可得到原子的高次谐波强度  $|a_q(\omega)|^2$ . 由高次谐波产生的阿秒脉冲可以通过对一定范围内的高次谐波进行叠加得到

$$I(t) = \left| \sum_q a_q(\omega) e^{i\omega t} \right|^2, \quad (12)$$

其中,  $a_q(\omega) = \int x(t) e^{-iq\omega t} dt$ .

### 3. 计算结果与讨论

计算中,我们采用 Gaussian 型激光脉冲

$$E(t) = E_0 e^{-2\ln 2 t^2 / \tau_\omega^2} \cos(\omega t), \quad (13)$$

其中  $E_0$  和  $\omega$  为激光振幅和圆频率,  $\tau_\omega$  为脉宽. 所采用的激光参数为  $\tau_\omega = 10$  fs, 激光峰值强度  $I = 1.6 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>.

高次谐波产生的效率定义为在一定的能量范围内每单位时间内从靶原子所辐射出的能量<sup>[20]</sup>, 已有的理论研究表明处于基态的原子在一定的能量范围内(平台的低端附近)高次谐波产生的效率随波长的变化为  $\eta(\lambda) \propto \lambda^{-x}$  其中  $x$  在 4—6 范围内. 为了验证用强场近似得到的结果, 我们计算了氢原子在激光场中产生的高次谐波转换效率随波长的依赖关系. 图 1 给出了氢原子产生的高次谐波的转换效率, 能量的积分范围为 20—50 eV, 由于不同的重散射轨道的干涉效应<sup>[14]</sup> 显示出了一些波动. 由图可以看出  $\eta(\lambda) \propto \lambda^{-(4.3-5.5)}$ , 我们的结果与已有的理论结果<sup>[13-15]</sup> 一致.

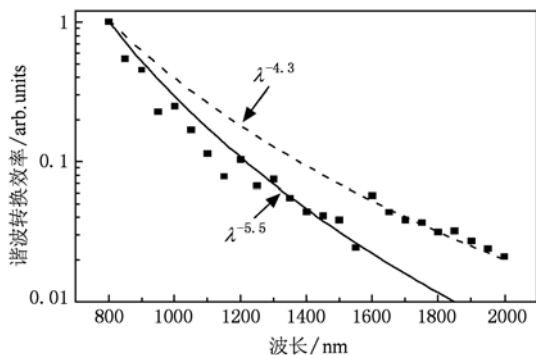


图 1 氢原子产生的高次谐波的转换效率随波长的变化

图 1 的高次谐波转换效率随波长的变化关系是在高次谐波能量在 20—50 eV 范围内得到的. 然而, 对于某一激光的波长而言, 不同能量范围的高次谐波转化效率是不同的. 图 2 给出了氢原子分别由波长为 800 和 1800 nm 的激光驱动产生的高次谐波图. 从图中可以看出, 在波长为 800 nm 激光驱动下, 高次谐波的强度在 20—50 eV 范围内基本覆盖了整个平台区域, 在 1800 nm 激光驱动下, 高次谐波的平台得到了很大的扩展, 但高次谐波在 20—50 eV 范围内与截止位置附近(140—170 eV)的强度差别很

大. 由此可见, 在截断位置附近高次谐波的转换效率较低.

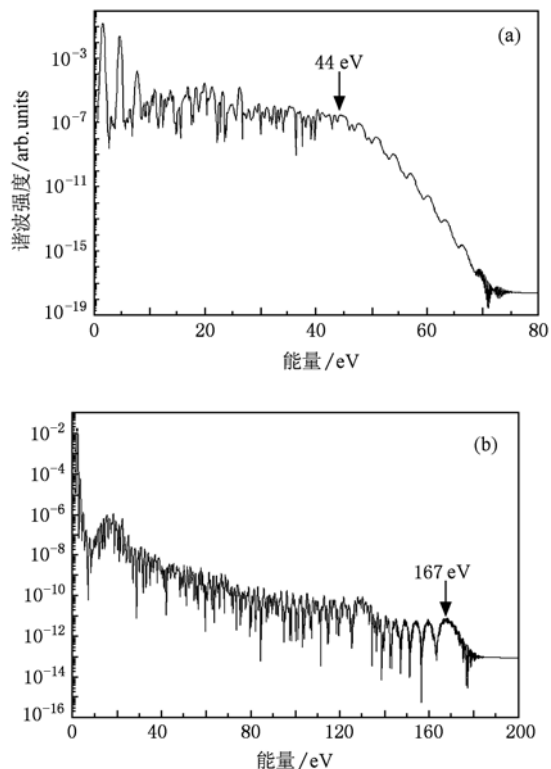


图 2 氢原子产生的高次谐波谱, 激光波长为 (a) 800 nm; (b) 1800 nm

然而在截止位置附近的高次谐波更有利于获得单个的阿秒脉冲, 因此有必要研究高次谐波在截断位置附近的转换效率随激光波长的变化关系. 为此我们需要定义每单位能量宽度内靶原子所辐射的高次谐波效率为

$$\Delta Y = \frac{1}{3c^3 \Delta e} \int_e^{e+\Delta e} |a(\omega)|^2 d\omega, \quad (14)$$

式中  $c$  为光在真空中速度,  $\Delta e$  为谐波的能量宽度,  $e$  为所考虑的谐波能量起始值. 氢原子高次谐波在截止位置附近的转换效率随波长的变化关系在图 3 中给出, 计算中激光参数与图 1 的参数相同. 由图可以看出在截止位置附近的转换效率随激光波长的增加急剧降低, 进行数值拟合后发现随波长增加呈现指数衰减, 即  $\eta(\lambda) \propto \lambda^{-x}$ , 这时  $x$  已达 11.5. 这种转换效率随激光波长的增加急剧降低的原因主要是电离的电子波包在空间的扩展引起的. 由于在截断位置附近的高次谐波(即高能的高次谐波)的主要贡献来源于在激光场中演化距离较长的电子波包与原子核的复合<sup>[12]</sup>, 而这些电子波包从电离到复合

所持续的时间较长,因此,波包在空间的扩展就越严重,当电子波包与原子核复合时,波包的强度就很低,导致高次谐波的强度就很弱.

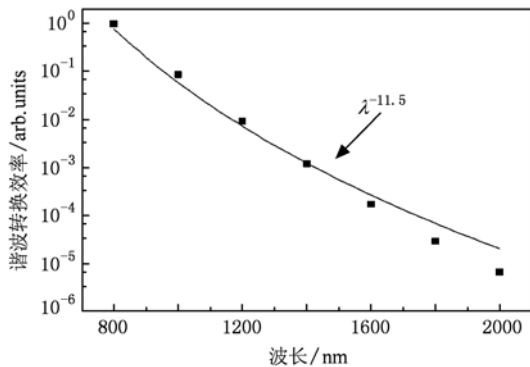


图3 截止位置附近氢原子产生高次谐波的效率随激光波长的变化

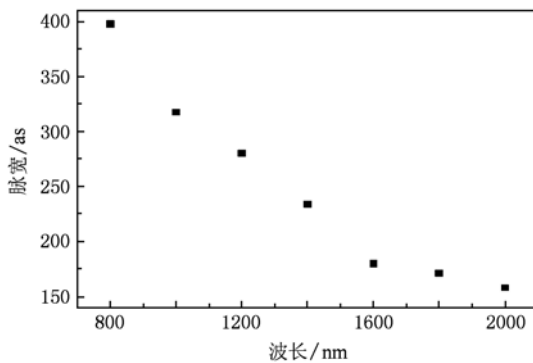


图4 阿秒脉冲的宽度随波长的变化

虽然随着激光波长的增加,截断位置附近谐波强度降低很快,但是高次谐波截止位置得到很大的拓展,这有利于获得短阿秒脉冲,因而我们又进一步研究了阿秒脉冲宽度随波长的变化.利用(12)式,在截断位置附近选取一定能量范围内超连续的高次谐波谱,能够得到2—3个光滑的阿秒脉冲串,并对其时间宽度求平均,得到阿秒脉冲的平均宽度随激光波长的变化,如图4所示.

从图中可以看出随着激光波长的增加,阿秒脉冲的宽度会逐渐变窄,当激光波长在800—1600 nm

范围内,阿秒脉冲的宽度随波长的增大迅速减小,而在1600 nm以上时,脉宽随激光波长的变化较小.由高次谐波构造的阿秒脉冲宽度随波长的增加而变窄的原因是在长波长的激光驱动下,高次谐波的截断位置得到了很大的拓展(截断位置与波长的平方成正比),这样用来构造阿秒脉冲的超连续谱在能量空间得到有效地增加,从而使得构造的阿秒脉冲在时间空间变得更短.由图4和图3的结果可以看出,随着驱动原子的激光波长的增加,阿秒脉冲宽度可进一步变窄,但其转换效率降低的也很快.因此,通过增加激光场的波长可以获得短阿秒脉冲,但是其强度很弱,这对阿秒脉冲的应用来说是不利的.由此可见,仅仅通过增加激光的波长来获得强度较高的阿秒脉冲有很大的局限性.

#### 4. 结 论

本文利用强场近似的Lewenstein模型研究了在单色的长波长激光驱动下氢原子产生的高次谐波谱随激光波长的变化规律,研究了由高次谐波构造的阿秒脉冲宽度随激光波长的变化.结果表明在高次谐波平台区域的末端(即高能谐波),其转换效率随波长的变化比平台区域的前端(低能谐波)低的多,这是由于截断位置附近的高次谐波的主要贡献来源于电子波包在激光场中演化的距离较长,随着激光波长的增加,这时电子波包的扩展就越明显,电子波包的强度就越低,使得电子回到原子核附近并与原子核复合的强度大大降低,因此随着激光波长的增加,在截断位置附近的高次谐波的转换效率就比平台区域的前端低的多.不过随着激光波长的增加,高次谐波的截止位置得到了很大提高,使得平台区域得到明显的拓展,这样由截断位置附近的高次谐波构造的阿秒脉冲宽度会随激光波长的增加而缩短,然而由于在截止位置附近的高次谐波的转换效率较低,因此,由单色长波长激光驱动原子产生的高次谐波所构造的阿秒脉冲的强度较弱,需要通过其他的途径(如两色甚至三色驱动)来提高阿秒脉冲的强度.

[1] Drescher M, Hentschel M, Kienberger R, Uiberacker M, Yakovlev V, Scrinzi A, Westerwalbesloh T, Kleineberg U, Heinzmann U, Krausz F 2002 *Nature* **419** 803

[2] Uiberacker M, Uphues T, Schultze M, Verhoef A J, Yakovlev V, Kling M F, Rauschenberger J, Kabachnik N M, Schröder H, Lezius M, Kompa K L, Müller H G, Vrakking M J J, Hendel S,

- Kleineberg U, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2007 *Nature* **446** 627
- [3] Krausz F, Wanor M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [4] Antoine P, L'Huillier A, Lewenstein M 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 1234
- [5] Zou P, Li R X, Zeng Z N, Xiong H, Liu P, Leng Y X, Fan P Z, Xu Z Z 2010 *Chin. Phys. B* **19** 019501
- [6] Ye X L, Zhou X X, Zhao S F, Li P C 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 1579 (in Chinese) [叶小亮、周效信、赵松峰、李鹏程 2009 物理学报 **58** 1579]
- [7] Zeng Z N, Li R X, Xie X H, Xu Z Z 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2316 (in Chinese) [曾志男、李儒新、谢新华、徐至展 2004 物理学报 **53** 2316]
- [8] Hong W Y, Yang Z Y, Lan P F, Zhang Q B, Li Q G, Lu P X 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 4914 (in Chinese) [洪伟毅、杨振宇、兰鹏飞、张庆斌、李钱光、陆培祥 2009 物理学报 **58** 4914]
- [9] Zheng J, Sheng Z M, Zhang J 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 2638 (in Chinese) [郑君、盛政明、张杰 2005 物理学报 **54** 2638]
- [10] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [11] Krause J L, Schafer K J, Kulander K C 1992 *Phys. Rev. Lett.* **68** 3535
- [12] Li P C, Zhou X X, Wang G L, Zhao Z X 2009 *Phys. Rev. A* **80** 053825
- [13] Tate J, Auguste T, Muller H G, Salières P, Agostini P, DiMauro L F 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 013901
- [14] Schiessl K, Ishikawa K L, Persson E, Burgdörfer J 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 253903
- [15] Frolov M V, Manakov N L, Starace A F 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 173001
- [16] Chen J, Zeng B, Liu X, Cheng Y, Xu Z Z 2009 *New Journal of Physics* **11** 113021
- [17] Lewenstein M, Balcon P, Ivanov M Y, L'Huillier A, Corkum P B 1994 *Phys. Rev. A* **49** 2117
- [18] Zhou X X, Tong X M, Zhao Z X, Lin C D 2005 *Phys. Rev. A* **72** 033412
- [19] Ammosov M V, Delone N B, Krainov V P 1986 *Sov. Phys. JETP* **64** 1191
- [20] Jackson J D 1998 *Classical Electrodynamics* (New York: Wiley) p624

## The wavelength dependence of high-order harmonic generation and attosecond pulses from atom in infrared laser field\*

Cheng Chun-Zhi Zhou Xiao-Xin<sup>†</sup> Li Peng-Cheng

(College of Physics and Electronic Engineering, Northwest Normal University, Lanzhou 730070, China)

(Received 26 March 2010; revised manuscript received 21 April 2010)

### Abstract

Basing on the strong-field approximation, we study high harmonic generation of hydrogen atom exposed to the long wavelength infrared laser field, and analyze the wavelength dependence of conversion efficiency of high-order harmonic generation near the cut-off position. It is found that high-order harmonic yield is much lower near cut-off than in the beginning of the plateau of the harmonic generation, but the width of the attosecond pulse is narrowed with increasing wavelength.

**Keywords:** strong-field approximation, high-order harmonic, attosecond pulse

**PACS:** 32.80.Rm, 42.65.Ky, 42.65.Re

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11044007, 11047016), the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China (Grant No. 20096203110001), and the Foundation of Northwest Normal University (Grant No. NWNNU-KJCXGC-03-62).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: zhoux@nwnu.edu.cn