

初始位相对超短脉冲强激光场 高次谐波辐射的影响^{*}

王迎松 徐至展

(中国科学院上海光学精密机械研究所强激光光学开放研究实验室, 上海 201800)

(1998 年 11 月 13 日收到)

通过求解含时 **Schrödinger** 方程, 用加窗 **Fourier** 分析的方法, 从理论上分析了入射激光场的初始位相对超短强激光场高次谐波辐射的影响. 发现相对于较长的入射激光脉冲其激光场初始位相对超短脉冲高次谐波辐射的影响非常显著, 对这一问题作了比较详细的探讨.

PACC: 3200;3280K;4265K

1 引 言

近几年来, 由于超短超强激光技术的飞速发展, 尤其是飞秒激光技术的发展, 谐波辐射的研究已经发生了质的飞跃, 聚焦后的激光功率密度已达到甚至超过了氢原子内部的库仑场强, 为研究超强激光场中原子的非微扰行为提供了强有力的技术手段. 目前, 利用超短强激光脉冲与原了气体相互作用产生高次谐波辐射的理论研究和实验研究正在受到人们的广泛关注, 因为, 高次谐波产生是获得相干的极紫外(XUV)和 X 射线辐射的主要的和最有前途的途径之一. 现在, 人们在台式激光器上就可以获得脉冲宽度短至仅为几个光周期的超短激光脉冲^[1]. 最近 **Chang**^[2] 和 **Spielmann**^[3] 等人分别用脉宽为 27fs 和 5fs 的 **Ti:sapphire** 激光($\sim 800\text{nm}$)脉冲与惰性气体相互作用, 产生的高次谐波辐射已经成功地进入到了“水窗”波段(4.4—2.3nm). 由于所用的激发激光脉冲只有几个光周期, 电场强度随时间的变化非常快, 初始位相可能会对谐波辐射过程产生显著的影响. 本文通过数值求解含时 **Schrödinger** 方程, 用 **Gabor** 时频分析方法^[4](加窗 **Fourier** 分析方法)对谐波谱的时间特性进行了分析, 肯定了我们的猜想. 经过数值模拟发现, 当入射激光脉冲的脉宽仅为几个光周期时, 入射激光场的初始位相对单原子高次谐波辐射谱有很大的影响, 尤其是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. 而当入射激光脉冲的宽度较长时, 激光场初始位相对谐波谱的影响则非常微弱. 分析表明, 通过对入射场位相的控制, 可以利用超短脉冲激光的高次谐波辐射来获得亚飞秒脉冲.

我们的理论模拟, 不仅有助于进一步理解单原子高次谐波辐射的物理机制, 还为更好地理解 and 解释高次谐波在宏观介质中的传输效应提供了对比的依据(在实验的过程中可

^{*} 中国科学院“九五”基础性研究重大项目资助的课题.

能会由于谐波在介质传输效应的影响而不能被明显地观察到), 为实现对高次谐波辐射过程的相干控制和实验的进一步深入开展提供了理论指导.

2 含时 Schrödinger 方程及其数值求解

为了研究单原子与线偏振激光场的相互作用, 采用偶极近似和单电子(SAE)模型^[5], 用 Grank-Nicholson“追赶法”对一维含时 Schrödinger 方程(采用原子单位)进行数值求解

$$i \frac{\partial}{\partial t} \varphi(x, t) = \left[-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} + V(x) + x E_0 f(t) \sin(\omega_0 t + \phi_0) \right] \varphi(x, t). \quad (1)$$

在这里, 原子的库仑场采用短程势模型 $V(x) = -\frac{b \exp(-\gamma|x|)}{\sqrt{a^2 + x^2}}$, $f(t)$ 为入射激光场的包络函数. 通过数值求解方程(1), 可以得到波函数 $\varphi(x, t)$. 由波函数 $\varphi(x, t)$, 可以得到偶极加速 $a(t)$,

$$a(t) = \langle \varphi(x, t) | [H, [H, x]] | \varphi(x, t) \rangle. \quad (2)$$

对 $a(t)$ 进行 Fourier 变换就可以得到高次谐波谱 $D(\omega)$.

$$D(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} a(t) \exp(-i\omega t) dt. \quad (3)$$

下面, 用加窗 Fourier 分析方法来研究入射激光场的初始位相对单原子高次谐波辐射的影响. 加窗 Fourier 分析方法的基本思想是, Fourier 变换是时频分析的基本工具, 为了到达时间域上的局部化, 在 Fourier 分析中的基本变换函数之前乘上一个时间上有限的时限(时间窗口)函数 $g(t)$, 然后用它们来作分析工具. 其基本变换方式为

$$G(\omega, \tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} a(t) g(t - \tau) \exp(-i\omega t) dt. \quad (4)$$

$G(\omega, \tau)$ 反映了 $a(t)$ 在时刻 τ 时频率为 ω 的“信号成分”的相对含量. 只要使 $\omega = \omega_0(3, 5, 7, \dots)$ 就可以得到基(3, 5, 7 等)次谐波的时间分布特性. 这里, 把窗口函数 $g(t)$ 取作 Gaussian 函数, $g(t) = \exp(-t^2/2\sigma_0^2)$.

3 计算结果与分析

计算过程中, 我们使用的参数为(均为原子单位) $\omega_0 = 0.112$; $\gamma = 0.5$; $a = b = 1$; $E_0 = 0.5$; $\phi_0 = 0$ 或 $\pi/2$; $f(t)$ 为高斯函数; 脉冲宽度(FWHM)取为 10 个光周期(相当于 13fs)或 2 个光周期(相当于 2.6fs).

图 1 是入射激光脉冲的宽度为 13fs, $\phi_0 = 0$ 或 $\pi/2$ 时的高次谐波辐射谱. 图 2 是入射激光脉冲的宽度为 2.6fs, $\phi_0 = 0$ 或 $\pi/2$ 时的高次谐波辐射谱. 试比较图 1(a)与图 1(b)和图 2(a)与图 2(b), 会发现入射激光场初始位相的变化对于长脉冲情况下谐波辐射谱的影响非常微弱(图 1), 而对于短脉冲情况, 初始位相的变化对谐波辐射谱具有很大的影响.

如图 2, 当 $\phi_0 = 0$ 时, 在平台区的远端(41 次至 61 次谐波), 谐波谱具有明显的峰结构, 各次谐波能够很清楚地分辨开来; 而当 $\phi_0 = \pi/2$ 时, 在平台区的远端(45 次至 61 次谐

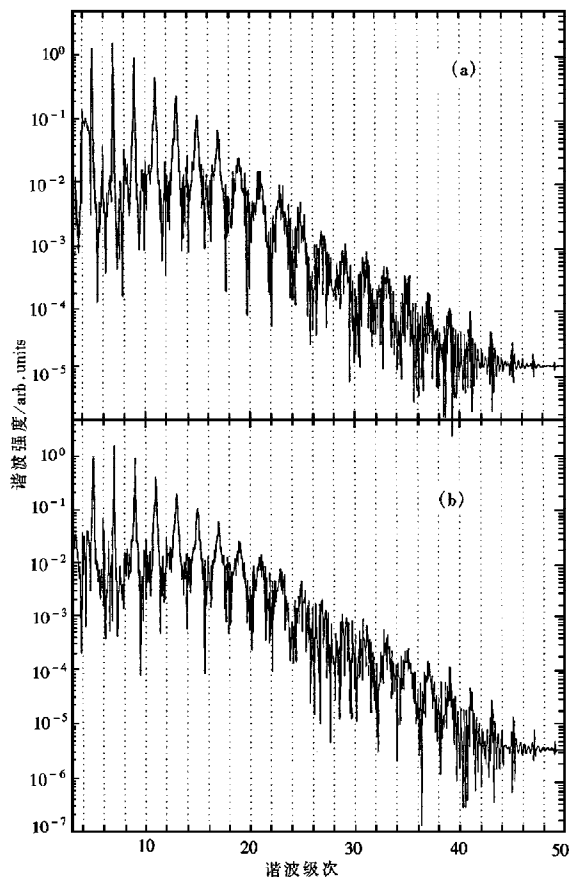


图 1 $\alpha_0 = 0.112$, $E_0 = 0.5$, 脉宽为 10 个光周期的入射激光场的高次谐波谱
入射光场的初始位相分别为 (a) $\phi_0 = 0$ 和 (b) $\phi_0 = \pi/2$

波), 谐波谱则没有明显的峰结构, 各次谐波几乎无法分辨开来. 此外, 入射激光脉冲宽度仅为 2 个光周期时, 所得到的高次谐波辐射谱还具有一个比较明显的特征, 那就是平台区由 31 次谐波附近为界被分为两个部分: 频率较高的部分的谐波谱都比较“干净”, 而低频部分则不然. 通过仔细比较图 2(a) 和图 2(b), 还会发现, $\phi_0 = \pi/2$ 时, 平台区的高频部分 (第 29 次至 49 次谐波) 的谐波辐射强度比 $\phi_0 = 0$ 时提高了大约一个数量级. 另外, 图 2 中的谐波谱具有明显的谱线蓝移现象.

在图 1 中, 没有发现像图 2 中这些比较明显的特征, 也没有明显的谱线蓝移现象出现.

为了解释这些现象, 对不同次谐波的时间特性进行了分析. 当入射激光脉冲的宽度为 10 个光周期时, 比较了不同初始位相时各次谐波在时域里的特性, 它们都具有几乎相同的时间轮廓, 只有一个 $\pi/2$ 的相移. 而当入射激光脉冲的宽度为 2 个光周期时, 情况完全不同. 为便于比较分析, 给出了入射激光脉冲的宽度为 2 个光周期时不同初始位相的入射激光场随时间变化的轮廓图 (图 3). 当 $\phi_0 = \pi/2$ 时, 入射激光场 (电场) 在 $t = 140 \text{ a. u.}$ 达到

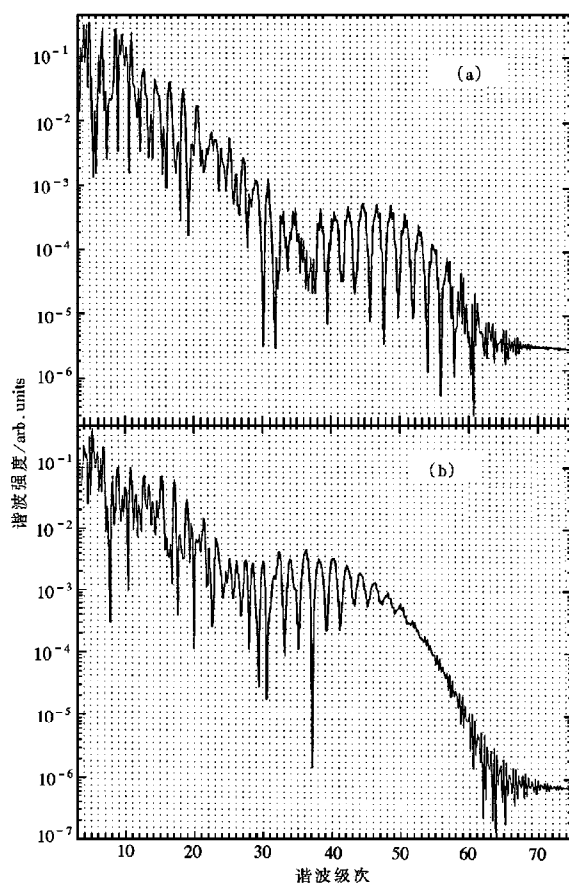


图 2 $\alpha_0=0.112$, $E_0=0.5$, 脉宽为 2 个光周期的入射激光场的高次谐波谱

入射光场的初始位相分别为 (a) $\phi_0=0$ 和 (b) $\phi_0=\pi/2$

振幅最大值;而当 $\phi_0=0$ 时,入射激光场(电场)分别在 $t=(140\pm 14)\text{a.u.}$ 两次达到振幅最大值.图 4 是对入射激光脉冲的宽度为 2 个光周期时不同级次谐波进行 Gabor 时频变换分析的结果.

从图 4 中,可以看到这样一个明显的变化:无论是 $\phi_0=\pi/2$ 或者 $\phi_0=0$,随着谐波级次的增加,谐波辐射越来越集中在更短的时间间隔内.

在平台区的低频部分,对于 $\phi_0=\pi/2$ 和 $\phi_0=0$ 两种情形,谐波辐射随时间的变化只相差一个 $\pi/2$ 的位相(如图 4(a)和图 4(b)),谐波都在每一个光周期内辐射两次.但随着谐波级次的增加,尤其是在平台区的高频部分,两种不同初始位相条件下的谐波辐射过程表现出显著的不同:当 $\phi_0=\pi/2$ 时,随着谐波级次的增加,在外场的作用过程中,谐波辐射的次数越来越少,在截止区内,仅仅辐射了一次,这次辐射最大值出现的时刻比入射激光场到达振幅极大的时刻延迟了 $1/4$ 个光周期,而且持续时间非常短,只有约 10a.u. ,相当于

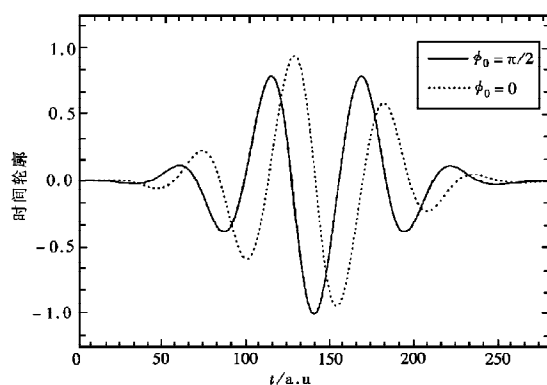


图3 脉冲宽度为2个光周期时,不同初始位相的入射激光场(电场部分)的时间特性

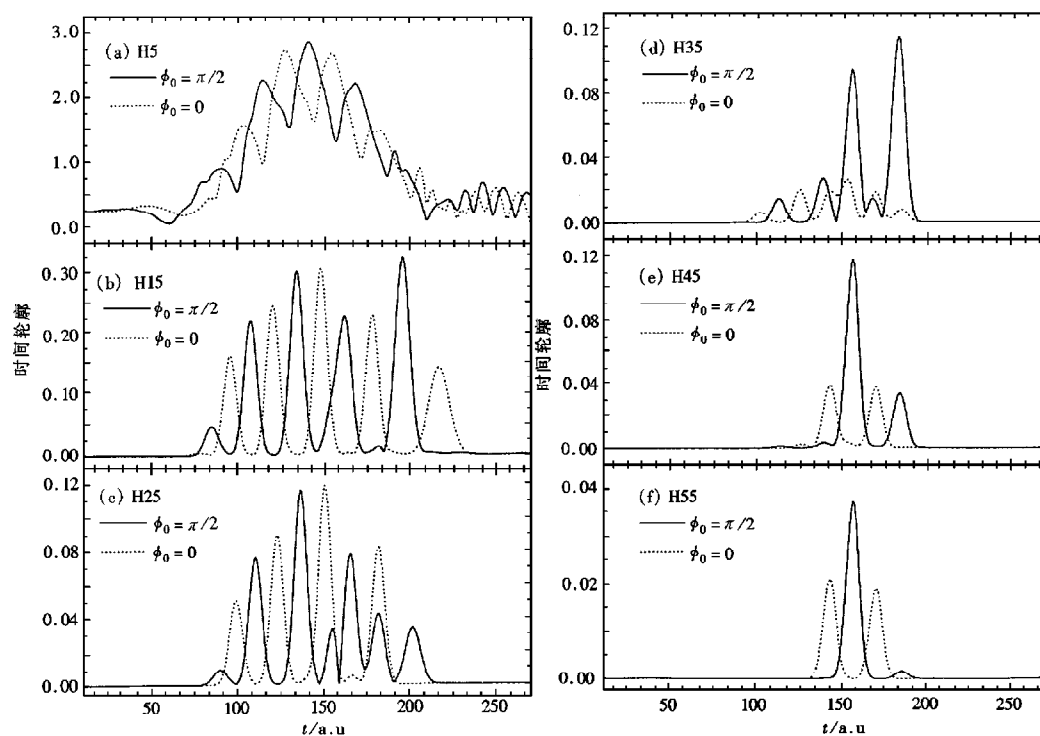


图4 入射激光场为 $\omega_0=0.112$, $E_0=0.5$, $\phi_0=0$ 和 $\pi/2$, 其脉宽为2个光周期时谐波的时域特性, 谐波级次分别为(a)5次, (b)15次, (c)25次, (d)35次, (e)45次和(f)55次

240as(1as = 10^{-3} fs); 当 $\phi_0=0$ 时, 虽然随着谐波级次的增加, 在外场的作用时间内谐波辐射的次数也是越来越少, 但在截止区内, 谐波辐射持续了两次, 并且两次辐射最大值出现的时刻, 也都比入射激光场到达振幅极大的时刻延迟了 $1/4$ 个光周期, 两次辐射极大值出

现的时刻刚好相差半个光周期, 单次辐射所持续的时间也约为 $10a.u.$ 。

经过上面的分析, 很容易解释我们得到的谐波谱, 如图 2. 在平台区的低频部分, 由于在不同初始位相条件下, 谐波的辐射只存在位相的延迟, 没有本质上的区别; 而在平台区的高频部分, 初始位相的不同对谐波的辐射过程有着非常大的影响, $\phi_0 = \pi/2$ 时谐波辐射持续的时间要比 $\phi_0 = 0$ 更短, 所以在 $\phi_0 = \pi/2$ 时, 截止区的谐波线宽较宽, 没有明显的峰结构. 在入射脉冲宽度为 10 个光周期时, 谐波谱没有明显的谱线蓝移, 说明激光强度随着时间的变化对谐波辐射过程的影响不大, 位相变化的影响当然也就表现不出来, 这时可以认为激光电场的振幅基本上是不变的; 相反, 当入射脉冲宽度为 2 个光周期时, 谐波谱具有较明显的谱线蓝移现象, 说明激光强度随着时间的变化对谐波辐射过程的影响非常厉害, 初始位相的不同会对谐波辐射过程产生很大的影响。

从上面的分析可以得出结论: 当入射激光脉冲短到只有几个光周期时, 通过控制它的位相, 完全可以获得亚飞秒脉冲系列或者单个亚飞秒脉冲, 这比其他获得亚飞秒脉冲的可能途径^[6]似乎更容易. 当然, 要实现这一点的前提是, 入射激光脉冲要具有非常稳定的位相; 通过调节入射场的位相关系, 还可以改善谐波的谱分辨。

从上面分析, 还可以得出以下结论: 谐波级次的越高, 产生谐波辐射所需要的外激光场强度越大, 这就是为什么随着谐波级次的增加, 在作用时间内谐波辐射的次数越来越少 (如图 4); 在其他条件不变的情况下, 缩短入射激光脉冲的宽度可以获得更高的谐波级次 (更短波长的谐波辐射). 这已是大家的共识。

4 结 论

通过求解含时 Schrödinger 方程, 用加窗 Fourier 分析的方法, 从理论上分析了单原子在超短强激光场的作用下产生的高次谐波辐射的过程中, 入射激光场的初始位相的影响. 结果表明, 当入射激光脉冲的脉宽仅为几个光周期时, 入射激光场的初始位相的变化对单原子高次谐波辐射过程有很大的影响, 尤其是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. 而当入射激光脉冲的宽度较长时, 激光场初始位相对谐波谱的影响则非常微弱. 通过控制入射激光场的位相, 完全有可能获得亚飞秒脉冲系列或者单个亚飞秒脉冲。

[1] S. Sartania *et al.*, *Opt. Lett.*, **22**(1997), 1256.

[2] Z. Chang *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **79**(1997), 2967.

[3] Ch. Spielmann *et al.*, *Science*, **278**(1997), 661.

[4] 秦前清, 杨宗凯, 实用小波分析 (西安电子科技大学出版社, 西安, 1995 年) [Qin Qianqing, Yang Zongkai, *Practical Wavelet Analysis*, (Xi'an University of Electronic Science and Technology Press, Xi'an, 1995), 10—24 (in Chinese)].

[5] J. L. Krause *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **68**(1992), 3535.

[6] Ph. Antoine *et al.*, *Phys. Rev.*, **A56**(1997), 4960.

PHASE-DEPENDENCE OF HIGH-ORDER HARMONIC SPECTRA WITH ULTRASHORT LASER PULSES

WANG YING-SONG XU ZHI-ZHAN

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

(Received 13 November 1998)

ABSTRACT

High-order harmonic spectra are obtained by numerically solving the one-dimension time-dependent Schrödinger equation with single-active-electron approximation. The influence of the initial phase of the excitation field on the single-atom high harmonic generation is analyzed through Gabor analysis of the acceleration of the atomic dipole. The influence of the initial phase on the process of the high harmonic generation is stronger for the shorter-duration pulses than for the longer case. A pulse train or a single pulse of subfemtosecond level could be obtained by high harmonic generation through the adjustment of the phase of the excitation laser field.

PACC: 3200; 3280K; 4265K