

非对称波形激光驱动的氢原子高次谐波频移及控制

魏博宁 焦志宏 周效信

Frequency shift and control of high-order harmonics of H atom driven by an asymmetric laser pulse

Wei Bo-Ning Jiao Zhi-Hong Zhou Xiao-Xin

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 073201 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20212146

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212146>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

强激光等离子体相互作用驱动高次谐波与阿秒辐射研究进展

Research progress of high-order harmonics and attosecond radiation driven by interaction between intense lasers and plasma

物理学报. 2021, 70(8): 084206 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210339>

相对论圆偏振激光与固体靶作用产生高次谐波

High order harmonics generation by relativistically circularly polarized laser-solid interaction

物理学报. 2018, 67(21): 214205 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181574>

原子错位堆栈增强双层MoS₂高次谐波产率

Enhancing high harmonic generation in bilayer MoS₂ by interlayer atomic dislocation

物理学报. 2021, 70(13): 134207 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210731>

基于高次谐波产生的极紫外偏振涡旋光

Extreme ultraviolet polarization vortex beam based on high harmonic generation

物理学报. 2020, 69(4): 044203 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20190834>

准直的O₂分子高次谐波谱中的干涉效应

Interference effect in high order harmonic generation by aligned O₂

物理学报. 2021, 70(20): 204206 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210433>

双色高频激光作用下原子低阶次谐波的理论研究

Theoretical investigation of atomic low-order harmonics under irradiation of two high frequency laser pulses

物理学报. 2018, 67(3): 033201 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172129>

非对称波形激光驱动的氢原子 高次谐波频移及控制*

魏博宁 焦志宏[†] 周效信

(西北师范大学物理与电子工程学院, 兰州 730070)

(2021 年 11 月 22 日收到; 2021 年 12 月 11 日收到修改稿)

提出了一种利用非对称波形激光脉冲与原子相互作用在隧穿区发射高次谐波谱的大频移方案. 通过数值求解偶极近似下的三维含时薛定谔方程, 研究了该激光驱动氢原子发射的高次谐波特性. 结果表明, 利用上升沿与下降沿不同的非对称激光驱动氢原子所发射的高次谐波在截止位置附近发生了大的频率红移和蓝移, 通过改变激光脉冲的上升沿或下降沿, 能调控谐波的频移量. 产生频移的原因是激光脉冲上升沿或下降沿对谐波贡献的不同所致, 当下降沿发射谐波的贡献大于上升沿的贡献时, 谐波发生红移, 反之则发生蓝移. 通过改变激光脉冲波形, 在隧穿电离区能够调控截止位置附近原子发射的高次谐波频率, 对于给定的某一阶谐波, 调控的范围可从奇次阶到邻近偶次阶之间的任意频率处.

关键词: 非对称激光波形, 高次谐波, 红移, 蓝移

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

DOI: 10.7498/aps.71.20212146

1 引言

原子分子在强激光场中发射的高次谐波^[1,2]具有很宽的频谱, 其频率范围能覆盖到紫外和极紫外、甚至软 X 射线波段, 是相干性很好的高频光源^[3], 由于有宽频的特点, 也是获得脉宽阿秒 (1 阿秒=10⁻¹⁸ 秒) 量级超短脉冲的主要途径^[4-7], 而且, 原子分子发射的高次谐波还可用来探测原子分子内部结构的信息^[8,9]. 因此, 研究原子分子在强激光场中发射高次谐波的性质, 是令人感兴趣的重要内容. 原子分子发射的高次谐波具有如下的典型特征: 低阶谐波的强度会随着阶数增加快速下降, 然后展示有一个频率较宽的平台区域. 在平台区域, 谐波的强度变化不大, 最后在某一阶处突然截止 (cutoff), 其发射过程可以用半经典的“三步模型”来描述^[10]: 原子或分子中的电子在强激光场作用

下发生隧穿电离, 然后, 被电离的电子在激光场的作用下离开母离子, 当激光场反向时, 电子返回并在激光场作用下获得动能, 最后与母离子复合, 发射出高次谐波. 可以证明, 原子分子在单色激光场作用下, 每半个周期会出现一个电子波包, 在激光场的持续作用下, 所有出现的电子波包叠加后, 只能发射频率等于激光频率奇数倍的光子^[11], 即高次谐波. 相对于同步辐射和自由电子激光系统, 高次谐波作为相干高频光源具有独特的优势^[12], 不仅是小型的桌面系统, 而且, 频率能覆盖很宽的波段范围, 可满足多学科领域的需求. 虽然, 高次谐波的频率范围很宽, 但当驱动激光的频率一定时, 获得的任一阶谐波的频率就一定为 $(2n+1)\omega$ (其中 ω 为激光的圆频率, n 为整数), 相邻阶谐波之间的频率差为 2ω . 在实际应用领域, 如果需要的高频光源对频率有严苛要求的话, 例如需要的频率刚好处在 2ω 之间的任意频率时, 高次谐波就很难满足

* 国家自然科学基金 (批准号: 11765018, 11764038, 91850209) 资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: jiaozh@nwnu.edu.cn

要求, 因此实现对高次谐波谱的频率进行调控有重要的应用价值. 当然, 在一些特殊情况下, 原子分子所发射谐波的频率也会发生一定程度的红移和蓝移, 已有实验和理论研究证实不仅原子在激光场中发射的谐波会有少许的蓝移^[13]或红移^[14], 而且, 分子在激光场中发射的谐波也会发生一定的红移^[15]. 不过一般情况下, 谐波的这种蓝移或红移量都很小. 只有在高强度激光作用下, 甚至饱和光强以上的激光场驱动原子, 高次谐波谱有可能产生较大程度的频移 (包括红移或蓝移), 如 Shin 等^[16]利用高强度激光与原子相互作用产生高次谐波的研究中, 在截止位置附近得到了较大的蓝移, 蓝移程度随激光强度的增大而增大, 最大蓝移可达 2ω , 从而实现了高次谐波频率的调控. 由于这类谐波蓝移的发生需要强度很高的激光, 一般在过垒电离区域, 在激光的上升沿能够把原子全部电离, 使得激光场在电场分量达到最大值之前就将原子的基态耗尽, 导致在激光的下降沿无谐波发射. 在过垒电离区域, 原子发射高次谐波的效率一般都较低, 而在隧穿区域具有更高的发射效率, 因此, 较大幅度的谐波频率红移 (或蓝移) 较难在隧穿区域实现.

近年来随着激光脉冲整形技术的成熟, 实现任何形状的激光脉冲输出已成为可能^[17,18], 最近的研究表明, 在激光通过纳米等离子元过程中能够实现飞秒量级的不对称波形脉冲 (即脉冲的上升沿和下降沿经历的时间不同)^[19]. 为此, 本文提出了一个在隧穿区域能够使得原子发射谐波频率产生较大幅度红移和蓝移的方案, 利用强度在隧穿电离区域的不对称波形激光脉冲驱动氢原子, 实现对截止位置附近高次谐波的红移或蓝移的控制, 通过调节激光下降沿宽度, 调控高次谐波的红移幅度. 反之, 也可通过调节激光上升沿时间宽度, 调控高次谐波的蓝移幅度. 通过控制激光场波形的不对称性, 在隧穿区域, 实现了对高次谐波截止位置附近频率红移或蓝移幅度的控制, 在红移情况下, 高次谐波频移的范围可从奇次阶降至邻近的偶次阶之间的任一频率处; 而对于蓝移的情况, 则高次谐波频移可从奇次阶增大到邻近的偶次阶间的任一频率位置.

2 理论方法

研究氢原子在激光场中发射高次谐波的性质, 需要计算原子在激光场中的感生偶极加速度, 为此,

首先需数值求解氢原子在激光场中的三维含时薛定谔方程, 得到氢原子在激光场中的含时波函数. 在偶极近似下, 由于在长度规范和速度规范下求解含时薛定谔方程能够得到相同的结果^[20], 本文选用长度规范下进行求解. 氢原子在线偏振激光场中运动的含时薛定谔方程为 (无特殊说明, 文中均采用原子单位):

$$i\frac{\partial}{\partial t}\psi(\mathbf{r}, t) = \hat{H}(\mathbf{r}, t)\psi(\mathbf{r}, t), \quad (1)$$

式中, 激光+原子体系的总哈密顿量 $\hat{H}(\mathbf{r}, t) = \hat{H}_0(\mathbf{r}) + V(\mathbf{r}, t)$, 其中 $\hat{H}_0(\mathbf{r})$ 和 $V(\mathbf{r}, t)$ 分别是无外场下氢原子的哈密顿量和激光与氢原子的相互作用能, 可表示为

$$\hat{H}_0(\mathbf{r}) = -\frac{1}{2}\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{\hat{L}^2}{2r^2} - \frac{1}{r}, \quad (2)$$

$$V(\mathbf{r}, t) = -\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t) = rE(t)\cos\theta, \quad (3)$$

其中, $\hat{L}$ 为原子的轨道角动量算符, $E(t)$ 为激光场的电场分量. (1) 式的解可用伪谱法求解, 求解过程已在文献^[21]中详细给出, 将体系的总哈密顿量按照无场下原子的哈密顿量 $\hat{H}_0(\mathbf{r})$ 和相互作用能 $V(\mathbf{r}, t)$ 进行分裂, 波函数对时间的演化过程为

$$\begin{aligned} & \psi(\mathbf{r}, t + \Delta t) \\ &= \exp\left(-\frac{i\hat{H}_0\Delta t}{2}\right) \exp\left[-iV\left(r, \theta, t + \frac{\Delta t}{2}\right)\right] \\ & \times \exp\left(-\frac{i\hat{H}_0\Delta t}{2}\right) \psi(\mathbf{r}, t) + O(\Delta t^3), \end{aligned} \quad (4)$$

这种算符分裂方式的优点是避免了通常分裂算符法在演化过程中需要在坐标和动量空间的反复变换. (4) 式的演化过程在球坐标下进行, 可以通过一个非线性变换, $r = L(1+x)/(1-x+\alpha)$, 将径向坐标的范围从 $[0, R_{\max}]$ 变换到 $[-1, 1]$, 变换中的 L 为映射参数, $\alpha = 2L/R_{\max}$, L 和 $R_{\max}$ 的取值依赖于激光的强度 ($L, R_{\max}$ 分别取 30 和 130 arb.units). 这种变换在近核附近的网格点取的较密, 而在远核空间的网格点取的相对稀疏, 这样既能保证计算结果的准确性, 又能节约计算时间. 在计算过程中通过对 (4) 式的重复演化, 一直计算到激光脉冲结束, 从而得到在激光脉冲作用下氢原子的含时波函数.

氢原子的含时波函数求得之后, 再由 Ehrenfest 定理计算氢原子的感生偶极加速度:

$$a(t) = \langle \psi(\mathbf{r}, t) | -\frac{\cos\theta}{r^2} - E(t) | \psi(\mathbf{r}, t) \rangle, \quad (5)$$

这时通过傅里叶变换将时域信号 $a(t)$ 变换到频域, 得到高次谐波的强度为

$$P(\omega) = |A(\omega)|^2, \quad (6)$$

其中, $A(\omega) = \int_0^T a(t) \exp(-i\omega t) dt$, 积分上限 T 为激光脉冲结束的时间.

为了详细分析原子在激光场中发射高次谐波谱的时间结构, 即任一频率的谐波随时间的变化关系, 利用小波变换来计算谐波的频率与时间关系^[22]:

$$A_\omega(t_0, \omega) = \int a(t) w_{t_0, \omega}(t) dt, \quad (7)$$

式中, $w_{t_0, \omega}(t) = \sqrt{\omega} W[\omega(t - t_0)]$, 这里的 Morlet 小波变换窗函数表示为

$$W(x) = \frac{1}{\sqrt{\tau}} \exp(ix) \exp\left(-\frac{x^2}{2\tau^2}\right). \quad (8)$$

由窗函数的形式可以看出, $A_\omega(t_0, \omega)$ 除了依赖诱导偶极加速度外, 还与参数 τ 的大小有关. 当谐波频率一定时, 取不同的 τ 值, 尽管 $A_\omega(t_0, \omega)$ 值的绝对大小会有一定差别, 但其随时间演化的规律却与 τ 值的关联度很小.

3 结果与讨论

提出利用非对称形状的线偏振激光脉冲驱动氢原子发射高次谐波, 这种非对称形状是指激光脉冲的上升沿和下降沿经历的时间不同. 采用两类不同的非对称形状激光脉冲驱动原子, 定义上升沿时间小于下降沿时间的激光脉冲为下降类脉冲(图中记为 Falling type), 或者相反为上升类脉冲(图中记为 Rising type). 为研究方便, 取激光上升沿和下降沿的电场分量为线性增加或下降. 在对下降类

和上升类激光脉冲驱动原子发射高次谐波的研究中, 依次采用 3 种不对称波形的激光(分别标记为 I, II, III). 对于下降类脉冲, 上升沿时间取为 $3T_0$, 下降沿时间依次取为 $31T_0$, $23T_0$, $15T_0$ (其中 $T_0 = 2\pi c/\lambda_0$ 为激光的周期, 激光波长 $\lambda_0 = 1064 \text{ nm}$); 对于上升类脉冲, 则相反.

当上升沿相同, 而下降沿不同时, 氢原子发射的高次谐波在截止位置附近的特点. 图 1(a) 给出了 I, II, III 3 种不同下降类脉冲的激光形状, 依次分别由黑色点虚线、红色双点虚线和蓝色实线表示. 由于研究隧穿区域原子发射高次谐波的性质, 因此激光峰值强度均取为 $I = 2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. 分别计算了该强度激光驱动下氢原子发射的高次谐波谱, 图 1(b) 给出了在截止位置附近的计算结果. 为了说明谐波移动的大小, 图中还给出了相同强度下对称的梯形激光脉冲产生的谐波谱, 其频率正好是激光频率的奇数倍, 如图 1(b) 紫红色虚线所示. 对比观察梯形激光产生的第 67 阶谐波(标记为 H67), I, II, III 种激光脉冲驱动下原子发射的谐波均向低频方向, 即长波方向移动(如图 1(b) 黑色箭头所示), 说明谐波发生红移. 并且红移大小与下降沿持续时间有关. 随着激光脉冲下降沿时间的减小, 产生谐波的红移更明显, 甚至达到相邻低一阶的偶数阶, 截止位置附近的 H65—H71 谐波皆如此, 说明通过控制激光脉冲下降沿的快慢, 能够控制谐波的红移量. 从图 1 还可以看出, 比 H65 阶低的谐波发生了一定程度的谱线分裂, 这一现象在更强激光与原子相互作用过程中也会出现, 可以归结为多个电子路径干涉的结果^[23,24], 在本文所研究的隧穿区, 平台区谐波的分裂也归结为多轨道干涉的结果.

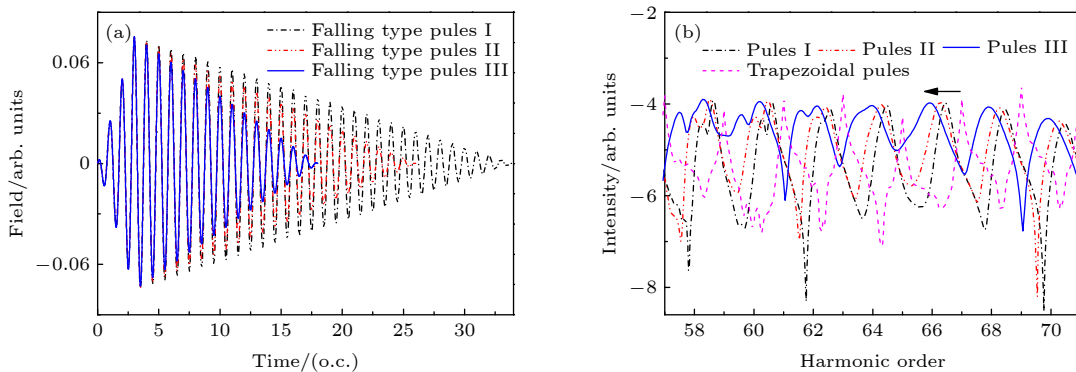


图 1 (a) 下降类激光脉冲波形; (b) 氢原子发射的高次谐波谱, 箭头表示谐波频移的方向

Fig. 1. (a) Waveform of laser pulse in falling type; (b) HHG spectra of H atom (arrow indicates the direction of frequency shift).

为考察谐波红移的大小随激光下降沿的变化, 对第 I 和 III 种脉冲驱动下的偶极加速度进行时频分析, 结果如图 2 所示. 从图 2(c) 和 2(d) 可以看出, 无论是第 I 还是第 III 种波形的情况, 谐波的发射主要是在激光的下降沿发生的, 而在激光上升沿, 只有当激光强度接近最大值时才有很弱的发射, 这样就导致在上升沿谐波的发射受到抑制, 下降沿发射谐波的强度远大于上升沿的贡献, 而且, 红移量也不同, 后者大于前者. 为了解发生这种谐波红移现象的原因, 可以通过强场近似理论进行分析. 根据单原子的强场近似理论, 第 n 阶谐波的瞬时能量 Ω_n 与激光强度随时间的变化率有关^[25]:

$$\Omega_n = \frac{\partial[n\omega_0 t + \phi_{\text{dip}}]}{\partial t} \approx n\omega_0 + \alpha_n \frac{\partial I}{\partial t}, \quad (9)$$

式中, ω_0 为激光圆频率, ϕ_{dip} 为原子偶极加速度的瞬时相位, α_n 为依赖于谐波阶数 n (n 为奇数) 的比例系数, I 为激光的瞬时强度. 由 (9) 式可看出, 第 n 阶谐波的瞬时能量与激光强度的变化有关, 当激光脉冲处在上升沿时, $\partial I/\partial t > 0$; 而在激光脉冲的下降沿, 则 $\partial I/\partial t < 0$. 对于上述的谐波发射情况来说, 上升沿对谐波的贡献极小, 下降沿发射谐波的贡献占主导地位. 在下降沿阶段, 由于 $\partial I/\partial t < 0$, 由 (9) 式可以发现, 第 n 价谐波能量在 $n\omega_0$ 基础上

有所减小, 即发生谐波的红移. 并且, 红移大小与激光强度变化率有关, 下降沿变化越快, 则谐波的红移就越显著, 这也正是图 2(d) 红移量大于图 2(c) 的原因. 通过控制激光脉冲下降沿变化的快慢, 就能控制谐波的红移量, 从计算的结果可以看出, 使用第 III 种激光脉冲, 在截止位置附近 (即 H65—H71) 谐波的红移程度可达到相邻较低阶的偶数阶谐波处 (如图 1(b) 所示). 分析认为, 当激光脉冲上升沿发射的谐波贡献远远大于下降沿贡献时, 这时 $\partial I/\partial t > 0$ 时, 谐波的频谱移动会与上述情况相反, 即发生谐波的蓝移.

图 3(a) 给出了上升类脉冲情况下 I, II, III 三种不同形状的激光波形, 激光峰值强度与下降类脉冲的相同, 相应氢原子发射的谐波谱如图 3(b) 所示. 与图 1(b) 结果相反, 这时在截止位置附近的谐波向高频方向移动 (图中黑色箭头), 发生蓝移. 蓝移大小与激光脉冲的上升沿有关, 上升沿的激光强度变化越大, 则蓝移的程度就越大, 也能够从奇数阶移动到邻近的偶数阶 (更高一阶). 通过相应的时频分析 (见图 4(c) 和 4(d)) 可以看出, 谐波的发射主要在脉冲的上升沿, 而在脉冲的下降沿期间几乎没有谐波发射. 在这种情形下, 上升沿激光脉冲的 $\partial I/\partial t > 0$, 根据 (9) 式的表示, 谐波会在奇数阶的

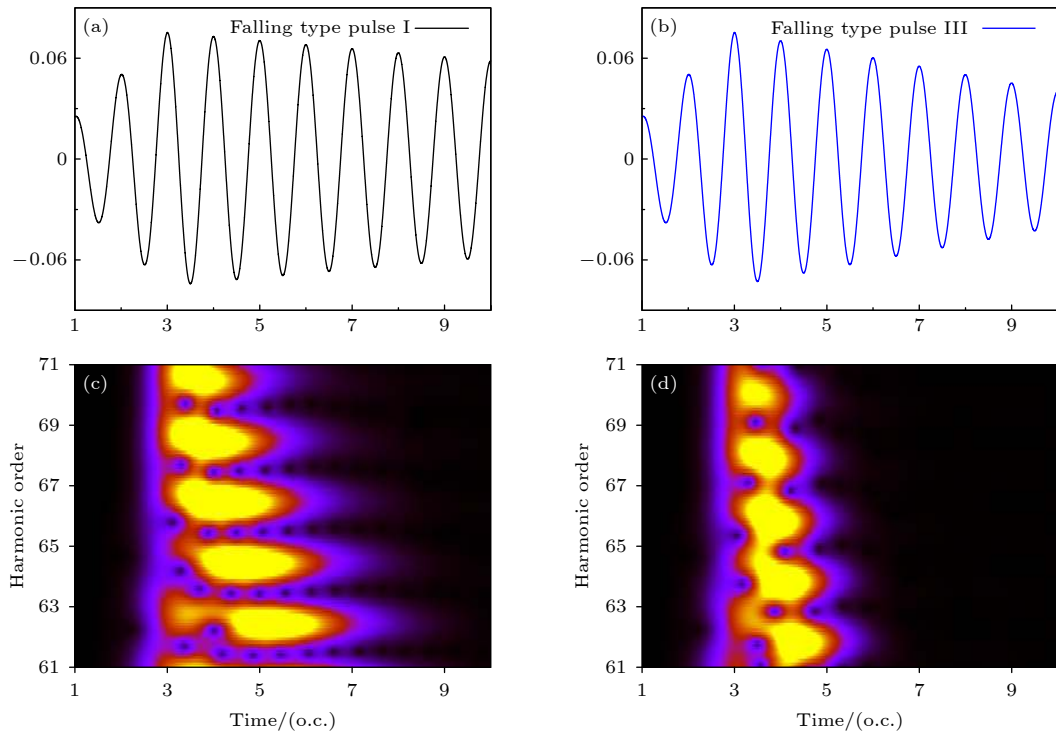


图 2 (a) (b) 下降类第 I, III 型激光脉冲波形; (c) (d) 相应高次谐波的时频分析

Fig. 2. (a) (b) Laser waveform I, III in falling type; (c) (d) time-frequency profile of the HHG spectra.

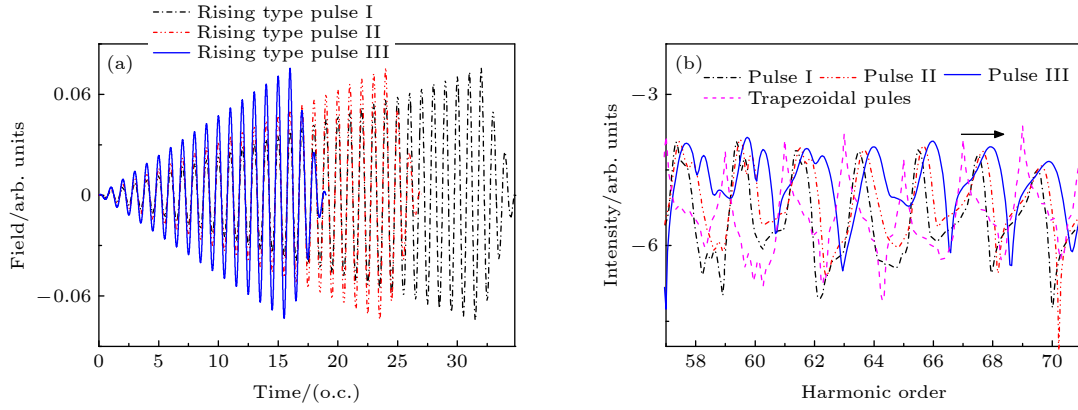


图 3 (a) 上升类激光脉冲波形; (b) 氢原子发射的高次谐波谱, 箭头表示谐波频移的方向

Fig. 3. (a) Waveform of laser pulse in rising type; (b) HHG spectra of H atom (arrow indicates the direction of frequency shift).

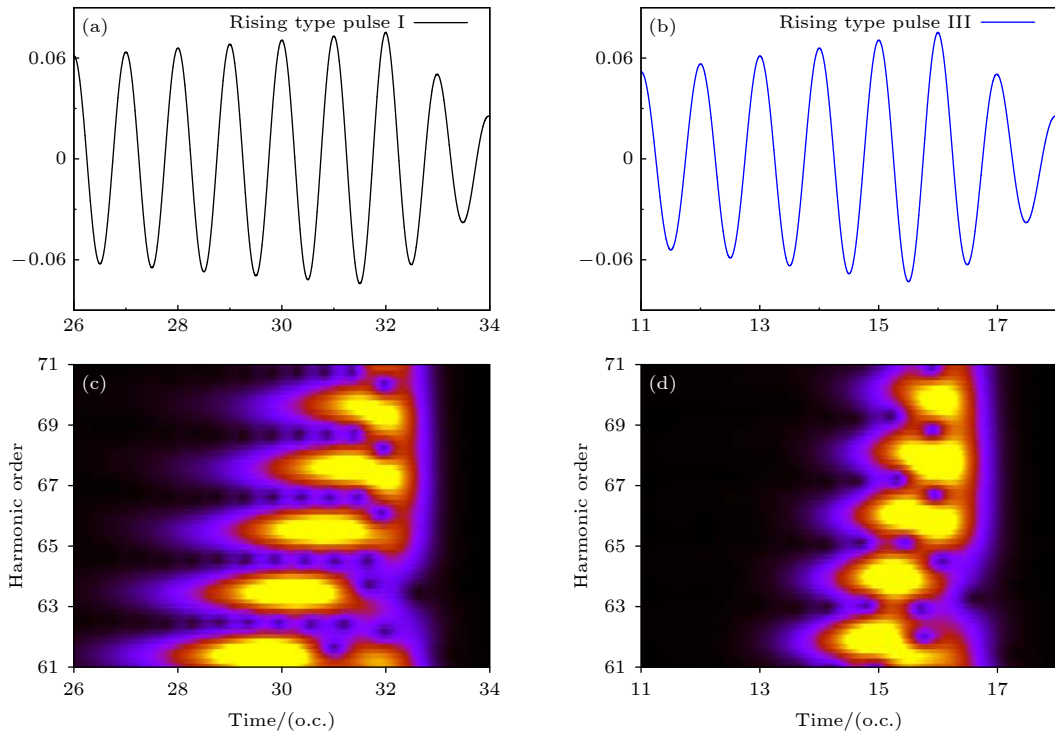


图 4 (a) (b) 上升类第 I, III 种激光脉冲; (c) (d) 相应高次谐波的时频分析

Fig. 4. (a) (b) Laser waveform I, III in rising type; (c) (d) time-frequency profile of the HHG spectra.

位置发生蓝移, 而蓝移的大小, 可以通过调控激光脉冲上升沿变化的快慢来实现.

以 H65 阶谐波为例, 图 5(a) 和 5(b) 给出氢原子在不同激光波形脉冲驱动下谐波的红移和蓝移量, 图中的频移量 Δn 以阶数为单位给出, 脉冲波形分别与图 1(a) 和 3(a) 中的激光脉冲相对应. 最大的红移或蓝移量 Δn 约为 -1 或 $+1$, 即第 n 阶谐波可以红移至第 $n-1$ 阶处, 或者蓝移至第 $n+1$ 阶处, 并且, 通过控制非对称激光脉冲的上升沿或下降沿, 能够使该阶谐波频移在奇数谐波和相邻的偶数谐波之间的任何位置. 此外, 通过谐波的频移量

和其相应的发射时间可以估算频移量 Δn 与激光强度变化率 $\partial I / \partial t$ 之间的关系. 如果通过时频分析得到谐波发射时间 Δt , 通过激光包络就可以估算激光强度变化率 $\Delta E^2 / \Delta t$, 其中 $E^2(t)$ 为激光波形平方, 即强度的包络. 对于 H65 红移谐波在下降类第 III 种场驱动下, 原子发射谐波的时间范围 Δt 约为 $3.5 T_0 - 4 T_0$, 激光强度随时间的变化率就可根据 $[E^2(3.5 T_0) - E^2(4 T_0)] / \Delta t$ 估算出来. 图 5(c) 分别给出了 H61 和 H65 阶的红移量 (蓝移量) 与激光强度变化率之间的关系, 其中, 红色点线表示红移, 蓝色点线表示蓝移. 如图 5(c) 所示,

谐波红移和蓝移的大小与激光强度变化率成线性关系, 这与 (9) 式的结论一致. 图 5(c) 还可以看出, 虽然 H61 和 H65 的随激光强度的变化率都为线性关系, 但是斜率稍有不同, 这也说明 (9) 式中的比例系数 α_n 的大小与阶数有关, H65 阶的比例系数稍大于 H61 阶的比例系数, 即在激光振幅变化率相同的情况下, H65 的红移量或蓝移量稍大于 H61 的频移量.

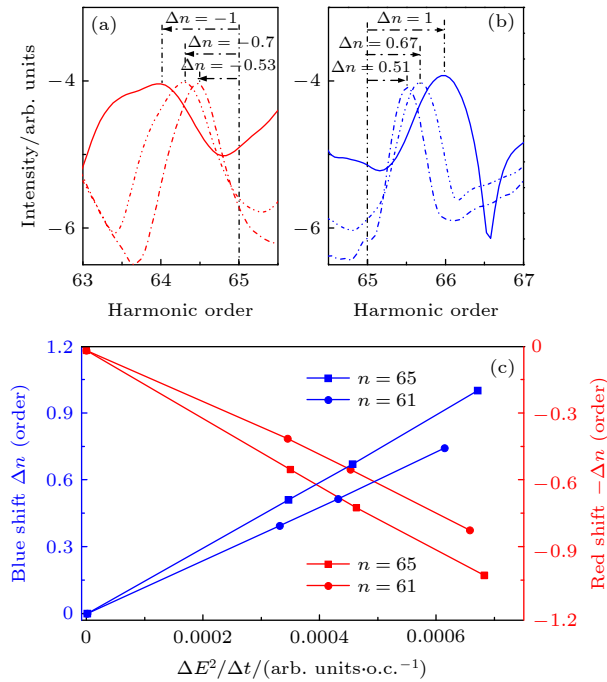


图 5 (a) (b) H65 阶谐波在第 III 种激光场下的红移、蓝移量; (c) H61 和 H65 谐波的红移量 (蓝移量) 与激光强度变化率之间的关系

Fig. 5. (a) (b) The redshift, blueshift of H65 in laser waveform III, respectively; (c) the redshift (blueshift) of H61 and H65 with the rate of change of laser intensity.

以下降类第 III 种激光脉冲产生的谐波为例进行讨论. 根据计算的氢原子在激光场中的时频分析图, 可以提取出任意价谐波发射的时间轮廓, 图 6 给出了 H61 阶 (平台区) 谐波的发射时间轮廓, 为了与截止位置附近的谐波进行比较, 图 6 也给出了 H65 阶 (截止区) 谐波的时间轮廓, 实线为谐波发射的时间轮廓, 竖直虚线表示自由电子回碰母离子的时刻, 它是通过准经典理论的计算获得^[10]. 在 H61 阶谐波发射过程中, 超过半高的发射峰有 5 个 (图 6(a)), 其中第 1, 2, 5 个峰的发射时间略早于经典计算的返回时刻, 表明这 3 个发射事件是短轨道过程, 而第 3, 4 峰的发射时刻与经典计算的

返回时刻重合, 表明这两个发射事件的长短轨道重叠, 因此, H61 阶谐波发射的主要贡献来自于这 5 个电子波包与母离子的回碰复合, 既有短轨道的贡献, 也有长轨道贡献, 而 H61 阶的谐波 (见图 6(a) 插图) 正是这 5 次发射事件干涉的结果, 出现了谱线的分裂; 而对于 H65 阶谐波的发射过程, 超过半高的两个发射峰 2 和 3 的贡献是主要的 (见图 6(b)), 且是长短轨道重叠的 (因发射时刻与经典计算的返回时刻重合) 单轨道过程, 而另外的两个短轨道 (1 和 4) 的贡献较小, 因此, H65 主要是来自于这两个发射强度相当的单轨道贡献, 其干涉的结果如图 6(b) 中的插图, 这一干涉导致谱线的轮廓有少许的不对称, 但是并未发生谱线的分裂.

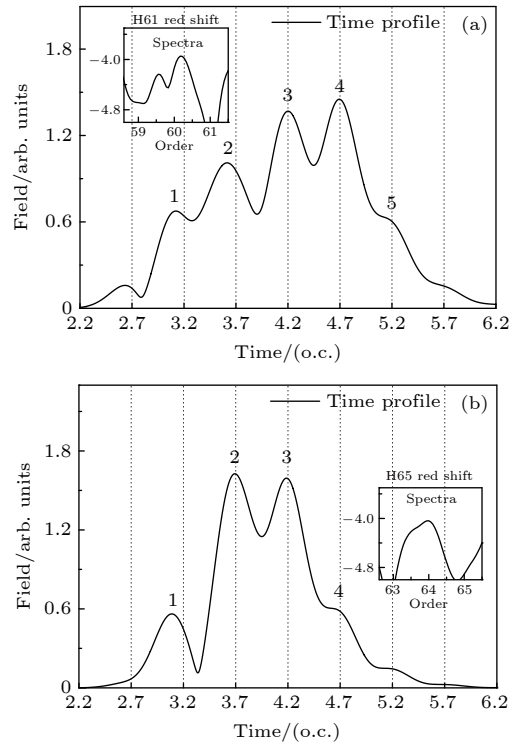


图 6 (a) H61 和 (b) H65 阶谐波的时间轮廓 (下降类第 III 种激光场作用)

Fig. 6. Fig.6, The time profile of H61 (a) and H65 (b) in the laser waveform III of the falling type, respectively.

4 结 论

本文提出了一种利用不对称波形激光脉冲驱动氢原子发射高次谐波, 在隧穿区产生较大谐波红移和蓝移的方法. 通过数值求解氢原子在激光场中的三维含时薛定谔方程, 研究了在不对称波形激光脉冲作用下, 激光波形不对称程度对原子发射谐波

频率的影响. 通过调控激光脉冲的上升沿或下降沿的持续时间, 能够实现截止位置附近谐波频率的调控, 调控的范围可以从奇数阶次到邻近的偶数阶次之间的任意频率处, 通过向下邻近的偶数阶 (红移) 和向上邻近的偶数阶 (蓝移), 能够覆盖相邻奇数阶之间 2ω 范围的任意频率. 相对于文献 [16] 仅能在过垒区实现较大频移的方法, 本文方案可以在隧穿区实现. 借助于激光通过等离基元过程对激光进行整形获得不对称波形的激光脉冲 [19], 其不对称程度可以通过改变等离基元的结构实现, 借助于这类不对称激光驱动原子, 在隧穿区同样能够实现谐波的较大频移, 且隧穿区原子发射谐波的效率较高, 对于通过高次谐波实现任意频率的相干辐射输出具有重要意义.

感谢南昌航空大学杜海伟博士的有益讨论.

参考文献

- [1] Winterfeldt C, Spielmann C, Gerber G 2008 *Rev. Mod. Phys.* **80** 117
- [2] Kohler M C, Pfeifer T, Hatsagortsyan K Z, Keitel C H 2012 *Adv. Atom. Mol. Opt. Phys.* **61** 159
- [3] Ravasio A, Gauthier D, Maia F R N C, Billon M, Caumes J P, Garzella D, Géléoc M, Gobert O, Hergott J F, Pena A M, Perez H, Carré B, Bourhis E, Gierak J, Madouri A, Mailly D, Schiedt B, Fajardo M, Gautier J, Zeitoun P, Bucksbaum P H, Hajdu J, Merdji H 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 028104
- [4] Corkum P B, Krausz F 2007 *Nat. Phys.* **3** 381
- [5] Calegari F, Sansone G, Stagiraand S, Vozzi C, Nisoli M 2016 *J. Phys. B:At. Mol. Opt. Phys.* **49** 062001
- [6] Villeneuve D M 2018 *Contemp. Phys.* **59** 47
- [7] Jiao Z H, Wang G L, Li P C, Zhou X X 2014 *Phys. Rev. A* **90** 025401
- [8] Morishita T, Le A T, Chen Z, Lin C D 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 013903
- [9] Itatani J, Levesquel J, Zeidler D, Niikura H, Pépin H, Kieffer J C, Corkum P B, Villeneuve D M 2004 *Nature* **432** 867
- [10] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [11] Protopapas M, Keitel C H, Knight P L 1997 *Rep. Prog. Phys.* **60** 389
- [12] Miao J, Ishikawa T, Robinson I K, Murnane M M 2015 *Science* **348** 530
- [13] Miyazaki K, Takada H 1995 *Phys. Rev. A* **52** 3007
- [14] Du H, Xue S, Wang H, Zhang Z, Hu B 2015 *Phys. Rev. A* **91** 063844
- [15] Bian X B, Bandrauk A D 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 193901
- [16] Shin H J, Lee D G, Cha Y H, Hong K H, Nam C H 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 2544
- [17] Weiner A M 2011 *Opt. Commun.* **284** 3669
- [18] Yao Y H, Lu C H, Xu S W, Ding J X, Jia T Q, Zhang S A, Sun Z R 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 184201 (in Chinese) [姚云华, 卢晨晖, 徐淑武, 丁晶新, 贾天卿, 张诗按, 孙真荣 2014 物理学报 **63** 184201]
- [19] Stebbings S L, Stüßmann F, Yang Y Y, Scrinzi A, Durach M, Rusina A, Stockman M I, Kling M F 2011 *New J. Phys.* **13** 073010
- [20] Han Y C, Madsen L B 2010 *Phys. Rev. A* **81** 063430
- [21] Tong X M, Chu S I 1997 *Chem. Phys.* **217** 119
- [22] Antoine P, Pirauxand B, Maquet A 1995 *Phys. Rev. A* **51** R1750
- [23] Kan C, Capjack C E, Rankin R, Burnett N H 1995 *Phys. Rev. A* **52** R4336
- [24] Tong X M, Chu S I 2000 *Phys. Rev. A* **61** 021802(R)
- [25] Lewenstein M, Salières P, L'Huillier A 1995 *Phys. Rev. A* **52** 4747

Frequency shift and control of high-order harmonics of H atom driven by an asymmetric laser pulse^{*}

Wei Bo-Ning Jiao Zhi-Hong[†] Zhou Xiao-Xin

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

(Received 22 November 2021; revised manuscript received 11 December 2021)

Abstract

A scheme of the large frequency shift for high-order harmonic generation (HHG) produced by atomic gas driven by an asymmetric laser pulse is proposed in the tunneling ionization regime. By numerically solving the three-dimensional time-dependent Schrodinger equation in the dipole approximation, we theoretically investigate the characteristics of HHG emitted from hydrogen atom driven by the laser pulse with different rising and falling times. Our results show that the HHG spectra of atomic H in cutoff region present a strong redshift and blueshift. The shift can be adjusted by varying the rising time or falling time of the laser pulse. The time frequency analysis, reveals that the reason for the frequency shift comes from different contributions from the rising time or falling time in the asymmetric laser pulse. If the contributed harmonics during the falling time is larger than that during the rising time, the red shift of HHG occurs. otherwise the blue shift appears. Therefore, by shaping the laser pulse waveform, the frequency of atomic HHG for a given order in the cutoff region in the tunneling ionization regime is tunable, which can cover the frequency range from the odd order to the adjacent even order.

Keywords: Keywords: asymmetric laser waveform, high-order harmonics, redshift, blueshift

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

DOI: 10.7498/aps.71.20212146

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11765018, 11764038, 91850209).

[†] Corresponding author. E-mail: jiaozh@nwnu.edu.cn