

doi: 10.3969/j.issn.0490-6756.2020.06.016

激光强度对单阶谐波增强的影响

刘航¹, 刘辉², 冯立强^{1,2}

(1. 辽宁工业大学化学与环境工程学院, 锦州 121001; 2. 辽宁工业大学理学院, 锦州 121001)

摘要: 通过调控激光波形, 理论上可以实现单阶谐波的增强。随后, 当基频场强度增强时, 单阶谐波增强现象消失。当控制场强度增强时, 单阶谐波增强倍率增大, 并且在某一特定光强下具有最大的增强值。理论分析表明, 单阶谐波的增强现象不仅来源于谐波辐射的折叠区域, 并且与多重谐波辐射能量峰的干涉有关。

关键词: 高次谐波; 单阶谐波增强; 激光强度; 谐波辐射干涉

中图分类号: O562.4 **文献标识码:** A **文章编号:** 0490-6756(2020)06-1121-04

Laser intensity effect on single-order harmonic enhancement

LIU Hang¹, LIU Hui², FENG Li-Qiang^{1,2}

(1. School of Chemical and Environmental Engineering, Liaoning University of Technology, Jinzhou 121001, China; 2. College of Science, Liaoning University of Technology, Jinzhou 121001, China)

Abstract: Through the laser waveform control, the enhancement of the single-order harmonic can be achieved. Further, when the fundamental laser intensity is increased, the enhancement of the single-order harmonic is disappeared. When the controlling laser intensity is increased, the enhanced ratio of the single-order harmonic can be enhanced and a maximum enhanced value can be found at the specific laser intensity. Theoretical analyses show that the enhancement of single-order harmonic is not only dependent on the folded structure of the harmonic emission process, but also related to the interference from different harmonic emission peaks.

Keywords: High-order harmonic generation; Single-order harmonic enhancement; Laser intensity; Interference of harmonic emission

1 引言

高次谐波是强激光场与原子、分子和固体相互作用时产生的一种非常重要的现象^[1]。在过去二十多年的时间里, 高次谐波在分子轨道成像^[2]; 化学反应追踪^[3]; 探测超快电子运动^[4]; 产生阿秒脉冲^[5]及单阶谐波脉冲^[6]等领域起到了关键作用。

当体系采用原子或分子时, 高次谐波的产生可由半经典的三步模型^[7]来理解。首先, 激光调

制库仑势使电子隧穿电离; 随后, 被电离的电子在激光驱动下加速并获得能量; 最后, 在激光反向驱动下, 电子有几率与原母核发生碰撞, 进而辐射出光子能量为基频场倍数的高阶谐波。一般来说, 谐波光谱连续区的强度变化不是很明显, 呈现谐波平台区。因此, 通过叠加平台区的谐波可以获得孤立阿秒脉冲^[8-10]。

除了利用高次谐波获得孤立的阿秒脉冲, 另外一个非常重要的应用是获得单阶谐波脉冲。这

收稿日期: 2019-05-16

基金项目: 国家自然科学基金(11504151); 辽宁省自然科学基金; 辽宁省教育厅基础研究项目

作者简介: 刘航(1985—), 女, 辽宁锦州人, 博士, 副教授。E-mail: liuhang20@126.com

通讯作者: 冯立强。E-mail: lqfeng1101@126.com

一应用对于获得自由电子激光器的种子光源非常有帮助。基于三步模型，谐波辐射每半个光学周期发生一次，因此，谐波辐射的相位(或辐射时间)是不一致的。这导致谐波辐射强度的下降。基于此点，研究人员利用多色场激光波形调制来实现局部谐波相位的匹配，进而获得单阶谐波的增强^[11-13]。最近，Liu 等^[14-15]利用激光波形调控机制理论获得了一种 W 形状的波形。在此波形下成功实现了单阶谐波的增强。但是，其对单价谐波增强的强度范围并没有研究。因此，本文理论研究了激光强度对单价谐波增强范围的影响。结果表明，单阶谐波的增强现象不仅来源于谐波辐射的折叠区域，并且与多重谐波辐射能量峰的干涉有关。这对 Liu 等^[14-15]的研究结果做出了补充。

2 计算方法

He 原子在激光场下的动力学行为可由薛定谔方程来描述，

$$i \frac{\partial \psi(r,t)}{\partial t} = H(t) \psi(r,t) = \\ [-\frac{1}{2} \nabla^2 + V(r) + zE(t)] \psi(r,t) \quad (1)$$

其中， $V(r) = -1.353/r$ 为 He 原子的库仑势能。组合驱动场可以描述为，

$$E(z,t) = E_1 f_1(t) \cos(\omega_1 t + bt^2) + \\ E_2 f_2(t) \cos(\omega_2 t) \quad (2)$$

$$f_i(t) = \exp[-2\ln(2)t^2/\tau_i^2] \quad (3)$$

这里， E_i 、 ω_i 和 τ_i ($i = 1, 2$) 分别表示双色组合场中各分量场的振幅、频率和脉宽。

高次谐波光谱可表示为：

$$S(\omega) \sim \left| \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int a(t) e^{-i\omega t} dt \right|^2 \quad (4)$$

其中， ω 表示谐波频率， $a(t) = -\langle \psi(r,t) | [H(t), [H(t), z]] | \psi(r,t) \rangle$ 为偶极加速度。

3 结果与讨论

图 1(a) 给出双色啁啾激光场驱动 He 原子辐射高次谐波图。其中，基频场为 15 fs-1600 nm， $I_1 = 2.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ， $b = 6 \times 10^{-5}$ 。控制场为 8.74 fs-800 nm， $I_2 = 2.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 。由图 1(a) 可知，在该波形下，谐波辐射光谱呈现单价谐波的增强现象。具体来说，第 523 次谐波与谐波平台区的强度相比被增强了 7.5 倍。图 1(b) 和 1(c) 给出了上述激光包络图以及谐波辐射的时频分析图^[16]。根据文献^[14-15]可知，在 W 波形下，谐波

辐射的增强来源于谐波辐射能量峰的叠加结构。对应于本文的激光波形可见[图 1(b) 所示]，当电子在 A 点附近发生电离后，被电离的电子在激光驱动下进行加速，最后在激光反向时与母核在 R 点附近回碰，进而呈现出谐波辐射能量峰 P_A ，如图 1(b) 和 1(c) 所示。这里，由于激光波形在 $t = 0 \sim 1.25 \text{ T}$ (T 为 1600 nm 激光的光学周期) 呈现出反向波包，导致电子在这一特殊结构下会首先减速然后再加速，进而在谐波辐射能量峰 P_A 上呈现了一个折叠区域[图 1(c) 所示]。这一折叠区域的范围只覆盖 523 次谐波，因此，第 523 次谐波与谐波平台区的其他谐波相比，其强度得到了增强。但是，仔细分析谐波辐射能量图可见，在 P_A 峰附近还有一个强度较弱的能量峰 P_B 。分析激光波形可知， P_B 是由电子在 B 点处电离在 R 点处回碰产生的。并且其能量也覆盖 523 次谐波范围。因此，第 523 次谐波的强度应该是由 P_A 和 P_B 共同作用产生的。但是，由于 P_A 和 P_B 谐波辐射时间不同，因此其谐波辐射相位不匹配会导致干涉减小的现象。也就是说，第 523 次谐波的强度的增强不仅是由于谐波能量峰的叠加结构产生的，而且还与不同谐波辐射能量峰的干涉有关。为了进一步确定这一结论，本文对不同激光强度下单价谐波增强的比率做了研究。

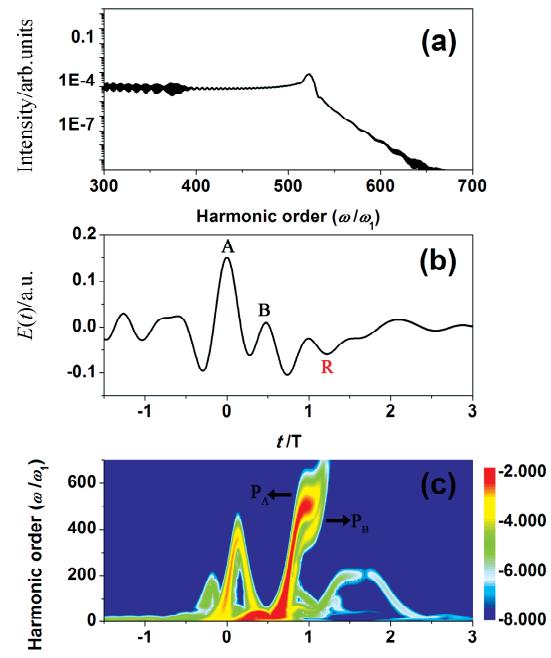


图 1 (a) 双色场啁啾场下谐波光谱图；(b)(c) 激光波形和谐波辐射时频分析图

Fig. 1 (a) The HHG spectrum driven by a two-color chirped field; (b) and (c) the laser profile and the time-frequency analyses of HHG driven by the above field

图 2(a)和 2(b)给出了改变基频场和控制场强度时谐波辐射谱图。如图 2(a)所示, 随着基频场强度增大, 单价谐波增强现象消失了。但是, 随着控制场强增大, 单价谐波增强比率呈现先增大后减小的现象, 如图 2(b)所示。并且, 在 $I_2 = 2.6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时, 单价谐波具有最大的增强比率。具体来说, 当 $I_2 = 2.6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时, 第 529 次谐波比谐波平台区其他谐波强度增大 15 倍。

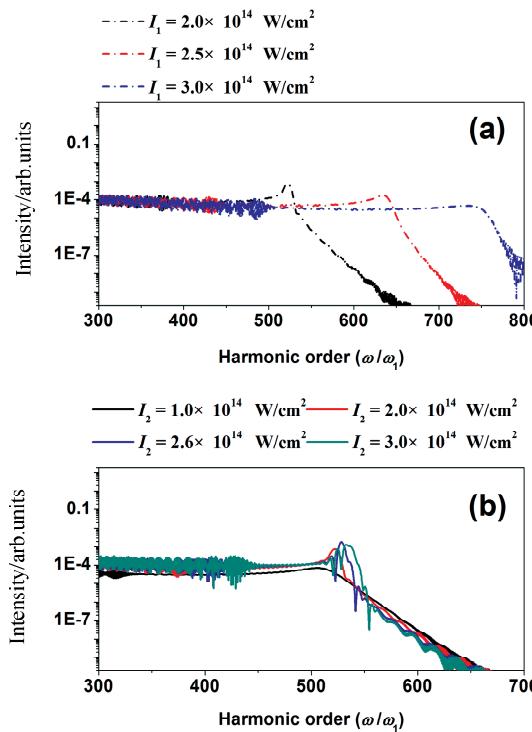


图 2 激光强度对单价谐波增强的影响:(a) 基频场强度; (b) 控制场强度

Fig. 2 The pulse intensity effect on the single-order harmonic enhancement: (a) fundamental pulse intensity and (b) controlling pulse intensity

为了理解单价谐波增强比率的不同, 图 3 和图 4 给出了不同激光强度下的激光波形以及在该激光场下谐波辐射的时频分析图。首先, 对于基频场强度增强的情况[图 3(a)~3(b)表示 $I_1 = 2.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 的情况, 图 3(c)~3(d)表示 $I_1 = 3.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 的情况], 随着激光强度的增大, 激光包络中反向波包的振幅大小逐渐减小[图 3(a)和 3(c)中箭头所示区域]。因此, 在谐波辐射过程中没有明显的折叠区域, 如图 3(b)和 3(d)所示。这是导致单价谐波增强现象消失的原因。其次, 对于控制场强度增强的情况[图 4(a)~4(b)表示 $I_2 = 2.6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 的情况, 图 4(c)~4(d)表示 $I_2 = 3.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 的情况], 谐波辐射能量峰 P_A 依

然存在叠加区域, 如图 4(b)和 4(d)所示。这是导致单价谐波增强的原因。随着激光强度增大, A 点和 B 点的激光振幅强度要比图 1(b)中的有所增强。具体来说, 当 $I_2 = 2.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时 $E_A = 0.15 \text{ a.u.}$, $E_B = 0.009 \text{ a.u.}$ [见图 1(b)]; 当 $I_2 = 2.6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时, $E_A = 0.161 \text{ a.u.}$, $E_B = 0.017 \text{ a.u.}$ [见图 4(a)]; 当 $I_2 = 3.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时, $E_A = 0.167 \text{ a.u.}$, $E_B = 0.021 \text{ a.u.}$ [见图 4(c)]。因此, 谐波辐射能量峰 P_A 和 P_B 的强度与图 1(c)中相比都被增强, 这是导致单价谐波增强比

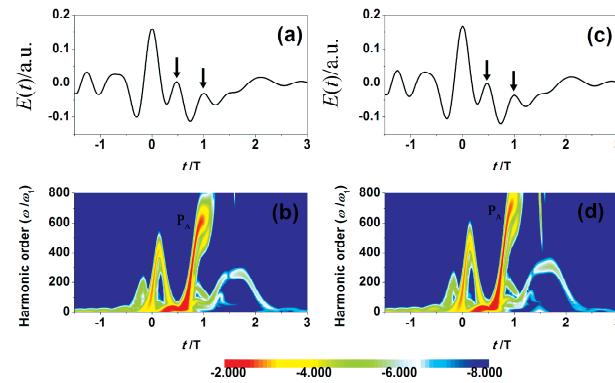


图 3 改变基频场强度下激光波形和諧波辐射时频分析图:(a)~(d) $I_1 = 2.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$; (c)~(d) $I_1 = 3.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$

Fig. 3 The laser profiles and the time-frequency analyses of HHG for the cases of changing fundamental pulse intensity: (a)~(b) $I_1 = 2.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ and (c)~(d) $I_1 = 3.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$

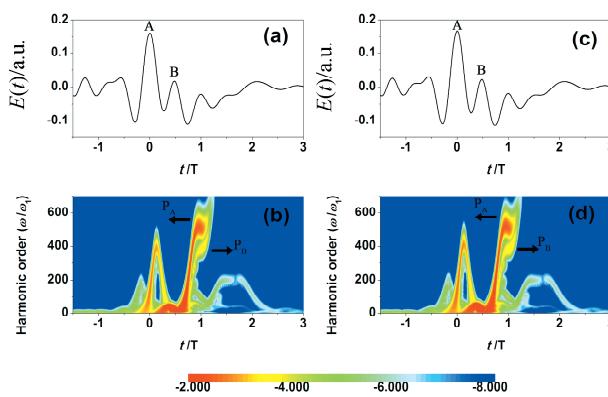


图 4 改变控制场强度下激光波形和諧波辐射时频分析图:(a)~(b) $I_2 = 2.6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$; (c)~(d) $I_2 = 3.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$

Fig. 4 The laser profiles and the time-frequency analyses of HHG for the cases of changing controlling pulse intensity: (a)~(b) $I_2 = 2.6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ and (c)~(d) $I_2 = 3.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$

率增大的原因。但是, 当 $I_2 = 3.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时, P_B 较强的强度会导致 P_A 和 P_B 能量峰干涉减小现象的增大, 这是导致单价谐波增强现象减小的原

因。这与本文在图 1 中分析的结果一致。

4 结 论

本文理论研究了激光强度对单价谐波增强范围的影响。计算结果表明：随着基频场强度增大，单阶谐波增强逐渐消失。随着控制场强度增大，单阶谐波增强强度呈现先增大再减小的现象。分析结果表明：单阶谐波增强不仅来源于谐波辐射能量峰的折叠区域，并且与多重谐波辐射能量峰的干涉有关。

参 考 文 献：

- [1] Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics [J]. Rev Mod Phys, 2009, 81: 163.
- [2] 冯立强. H_2^+ 分子双 H 核对高次谐波辐射的贡献 [J]. 原子与分子物理学报, 2018, 35: 267.
- [3] 陈德应, 王玉铨, 夏元钦. 高次谐波产生阿秒极紫外和 X 光脉冲研究新进展 [J]. 强激光与粒子束, 2008, 20: 1409.
- [4] 冯立强. 双色场驱动不对称分子产生超短 X 射线光源 [J]. 原子与分子物理学报, 2015, 32: 269.
- [5] Feng L Q, Chu T S. Generation of an isolated sub-40-as pulse using two-color laser pulses: Combined chirp effects [J]. Phys Rev A, 2011, 84: 053853.
- [6] Liu H, Li L, Feng L Q. Generation of wavelength tunable single-order harmonic via chirp gating modulation [J]. Chem Phys Lett, 2019, 725: 24.
- [7] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization [J]. Phys Rev Lett, 1993, 71: 1994.
- [8] Feng L Q, Li Y, Feng A Y. Nano-plasmonic-pump-probe effect on the intensity enhancement of attosecond pulse from hydrogen molecular ion [J]. Laser Phys Lett, 2018, 15: 115301.
- [9] Feng L Q, Chu T S. Intensity improvement in the attosecond pulse generation with the coherent superposition initial state [J]. Phys Rev A, 2012, 86: 053823.
- [10] Feng L Q. Molecular harmonic extension and enhancement from H_2^+ ions in the presence of spatially inhomogeneous fields [J]. Phys Rev A, 2015, 92: 053832.
- [11] Wei P F, Miao J, Zeng Z N, et al. Selective enhancement of a single harmonic emission in a driving laser field with subcycle waveform control [J]. Phys Rev Lett, 2013, 110: 233903.
- [12] Wei P F, Zeng Z N, Jiang J M, et al. Selective generation of an intense single harmonic from a long gas cell with loosely focusing optics based on a three-color laser field [J]. Appl Phys Lett, 2014, 104: 151101.
- [13] Wang X, Jing C, Lin C D. Coherent control of high-harmonic generation using waveform-synthesized chirped laser fields [J]. Phys Rev A, 2014, 90: 023416.
- [14] Liu H, Feng L Q. Waveform control in selective enhancement of single-order harmonic [J]. Laser Phys, 2019, 29: 065401.
- [15] 刘辉, 冯立强. 激光波形调控实现单阶谐波的增强 [J]. 四川大学学报: 自然科学版, 2020, 57: 311.
- [16] Antoine P, Piraux B, Maquet A. Time profile of harmonics generated by a single atom in a strong electromagnetic field [J]. Phys Rev A, 1995, 51: R1750.

引 用 本 文 格 式：

- 中 文: 刘航, 刘辉, 冯立强. 激光强度对单阶谐波增强的影响 [J]. 四川大学学报: 自然科学版, 2020, 57: 1121.
 英 文: Liu H, Liu H, Feng L Q. Laser intensity effect on single-order harmonic enhancement [J]. J Sichuan Univ: Nat Sci Ed, 2020, 57: 1121.