



准直的 O_2 分子高次谐波谱中的干涉效应

袁长全 郭迎春 王兵兵

Interference effect in high order harmonic generation by aligned O_2

Yuan Chang-Quan Guo Ying-Chun Wang Bing-Bing

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 204206 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20210433

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210433>

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

等离子体光栅靶的表面粗糙度对高次谐波产生的影响

Effect of plasma grating roughness on high-order harmonic generation

物理学报. 2017, 66(24): 244209 <https://doi.org/10.7498/aps.66.244209>

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>

基于正交偏振场的双光学控制方案获得孤立阿秒脉冲产生

Isolated attosecond pulse generation from a double optical gating scheme based on orthogonal polarization field

物理学报. 2019, 68(21): 214201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190847>

原子错位堆栈增强双层 MoS_2 高次谐波产率

Enhancing high harmonic generation in bilayer MoS_2 by interlayer atomic dislocation

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

利用脉宽10 fs偏振控制脉冲获得孤立阿秒脉冲

Isolated attosecond pulse generation from polarization gating pulse with 10 fs duration

物理学报. 2019, 68(18): 184201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190392>

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>

准直的 O₂ 分子高次谐波谱中的干涉效应*袁长全¹⁾ 郭迎春^{1)†} 王兵兵²⁾³⁾

1) (华东师范大学物理与电子科学学院, 上海 200241)

2) (中国科学院物理研究所光物理实验室, 凝聚态物理国家重点实验室, 北京 100190)

3) (中国科学院大学, 北京 100049)

(2021年3月6日收到; 2021年4月27日收到修改稿)

高次谐波是强场物理的重要现象, 不仅是潜在的深紫外光源, 而且已经成为分析原子分子动力学以及获取分子结构信息的重要工具. 本文采用 Lewenstein 理论, 考察了准直氧分子在激光场中的高次谐波谱对激光偏振方向与核轴所成的夹角的依赖关系. 通过计算电离电子在不同的原子中心复合的量子通道对高次谐波贡献之间的相位差, 分析了高次谐波随激光场偏振方向与核轴的夹角的变化, 并给出了谐波谱上最小值的形成机制. 另外, 通过分析高次谐波产生过程中不同量子通道的贡献, 发现当偏振方向与核轴成 0° 和 90° 时, 谐波谱强度都小, 但它们背后的物理图像是不同的: 0° 时, 产生谐波的每个量子通道的幅度都很小, 造成谐波谱的强度较低; 而 90° 时, 每个通道贡献的幅度都很高, 但是由于通道间的干涉相消, 造成谐波谱的强度接近于零.

关键词: 准直分子, 高次谐波, 干涉效应**PACS:** 42.65.Ky, 03.65.Nk, 33.80.-b**DOI:** 10.7498/aps.70.20210433

1 引言

高次谐波是原子分子与强场相互作用的重要现象, 是潜在的深紫外光源^[1-3], 也是用来分析原子分子动力学^[4] 以及获取分子结构信息^[5,6] 的重要工具. 所有这些都要求从理论上深刻地理解高次谐波的产生. 人们通常采用三步模型^[7,8] 来解释原子中的高次谐波的产生过程, 即电子电离、电子在激光电场中自由运动、电子运动回母核复合并发射谐波. 对于任意特定阶次的谐波, 都有长短两个路径的贡献, 谐波的强度是由长短两个路径贡献的叠加的结果^[8]. 长短路径效应的存在已在实验上被观察到^[9]. 对于分子, 自由度增加, 电离和复合的中心可以相同, 也可以不同, 从而产生了更多的量子通道.

分子的高次谐波谱具有比原子高次谐波谱更为复杂的叠加特性. 如 Lein 等^[10,11] 运用数值计算, 得出在 H₂⁺ 以及 H₂ 的高次谐波谱中存在极小值. 在实验上, 人们已在 CO₂ 的高次谐波谱中观察到了此极小值^[12]. 关于此极小值的起源, 数值计算表明它来自两个中心的贡献的叠加^[10,11]. Faria^[13] 针对光电场和核轴平行的情况, 分析了电离中心和复合中心不同的量子路径对极小值的贡献.

氧气容易获取, 使之成为研究双原子分子的高次谐波的理想对象. 理论^[14,15] 和实验^[16] 都表明 O₂ 的高次谐波在光电场与核轴成 45° 时强度最大. 本文采用 Lewenstein 的理论^[17], 计算了 O₂ 的高次谐波谱对激光电场与核轴夹角 θ 的依赖关系, 印证了 45° 时谐波强度最大, 同时得到谐波谱存在极小值点, 通过考察电离电子复合到不同的原子中心

* 国家自然科学基金 (批准号: 12074418, 11774411) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yeguo@phy.ecnu.edu.cn

为特征的量子路径对高次谐波贡献的相位差, 得到了极小值随 θ 的变化情况. 进而阐述了 0° 和 90° 时的谐波强度小这一现象背后的物理图像是不同的.

2 理论

本文采用 Lewenstein 理论^[17]对 O_2 的高次谐波进行计算, 根据该理论, 任一指定方向 \mathbf{n} 上的含时偶极矩为 (除特殊声明, 本文均采用原子单位):

$$X_n = i \int_0^t dt' \int d^3\mathbf{p} \mathbf{p} \cdot \mathbf{d}^*(\mathbf{p} - \mathbf{A}(t)) \times \mathbf{E}(t') \cdot \mathbf{d}(\mathbf{p} - \mathbf{A}(t')) e^{-iS(\mathbf{p}, t, t')} + \text{c.c.}, \quad (1)$$

其中, $\mathbf{d}(\mathbf{p}) = \langle \mathbf{p} | \mathbf{r} | \phi_0 \rangle$ 为跃迁矩, \mathbf{p} 为电子的正则动量, ϕ_0 为分子的基态波函数, $S(\mathbf{p}, t, \tau) = \int_{t-\tau}^t dt'' \left\{ \frac{[\mathbf{p} - \mathbf{A}(t'')]^2}{2} + I_p \right\}$ 为经典作用量. 激光场的偏振方向在 yz 平面, 且与核轴的夹角为 θ , 核轴在 z 轴上, 如图1(a)所示. 用 A_1, A_2 表示两个氧核的位置.

为求得激光偏振方向上的偶极矩, 将(1)式中的指定方向设为激光偏振的方向:

$$\mathbf{n} = \cos\theta \mathbf{e}_z + \sin\theta \mathbf{e}_y, \quad (2)$$

偏振激光场为

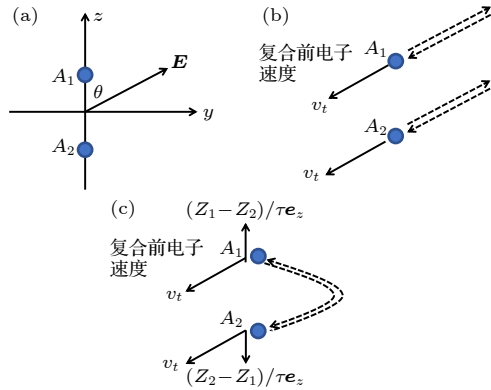


图1 (a) 准直的 O_2 分子与光电场示意图; (b) 第一类通道; (c) 第二类通道

Fig. 1. (a) Aligned O_2 molecule and the polarizing electric field of laser; (b) the first type of path; (c) the second type of path.

$$\mathbf{E} = E_0 \cos(\omega t) [\cos\theta \mathbf{e}_z + \sin\theta \mathbf{e}_y], \quad (3)$$

$$\mathbf{A} = -\frac{E_0}{\omega} \sin(\omega t) [\cos\theta \mathbf{e}_z + \sin\theta \mathbf{e}_y]. \quad (4)$$

(4)式中, \mathbf{A} 为矢势. 对(1)式做变量替换 $t' = t - \tau$, 联合(2)–(4)式, 得到激光偏振方向上的偶极矩为

$$X(t) = -i \int_0^\infty d\tau \int d^3\mathbf{p} E_0 \cos\omega(t - \tau) e^{-iS(\mathbf{p}, t, t-\tau)} \times [d_y^*(\mathbf{p} - \mathbf{A}(t)) d_y(\mathbf{p} - \mathbf{A}(t - \tau)) \sin^2\theta + d_y^*(\mathbf{p} - \mathbf{A}(t)) d_z(\mathbf{p} - \mathbf{A}(t - \tau)) \sin\theta \cos\theta + d_z^*(\mathbf{p} - \mathbf{A}(t)) d_y(\mathbf{p} - \mathbf{A}(t - \tau)) \sin\theta \cos\theta + d_z^*(\mathbf{p} - \mathbf{A}(t)) d_z(\mathbf{p} - \mathbf{A}(t - \tau)) \cos^2\theta] + \text{c.c.} \quad (5)$$

在跃迁矩中, 分子的波函数由 HF/STO-3G 得到 (用 Molpro 量化计算软件^[18]实现). 采用单电子近似, 用最高占据轨道作为分子的基态波函数:

$$\phi_0 = \sum_{i=1}^3 c_i [N_i y e^{-\alpha_i r_1^2} - N_i y e^{-\alpha_i r_2^2}], \quad (6)$$

其中, $r_{j=1,2}^2 = x^2 + y^2 + (z - z_{j=1,2})^2$, x, y, z 为电子坐标, z_1, z_2 给出了两个氧核的位置, c_i, α_i, N_i 为常数. 图2给出了(6)式所表达的波函数.

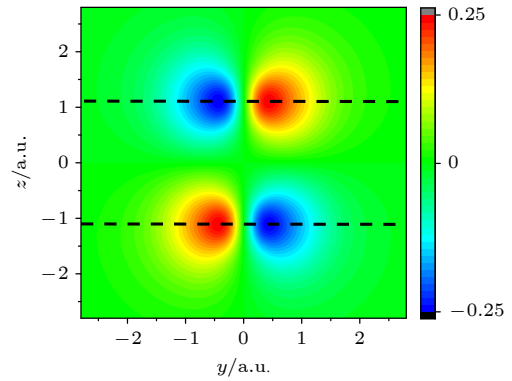


图2 O_2 分子基态波函数

Fig. 2. Wavefunction of ground state of O_2 .

为简化计算, 获取主要的物理图像, (6)式中波函数的三项求和采用一项来代替. 于是有:

$$X(t) = -i \int_0^\infty d\tau \int d^3\mathbf{p} E_0 \cos\omega(t - \tau) A^2 \alpha^{-5/2} e^{-iS(\mathbf{p}, t, t-\tau)} \times \{ e^{i[-A_z(t) + A_z(t-\tau)]z_1} I_1(\mathbf{p}, t, \tau, z_1) + e^{i[-A_z(t) + A_z(t-\tau)]z_2} I_2(\mathbf{p}, t, \tau, z_2) + e^{i[(p_z - A_z(t))z_2 - (p_z - A_z(t-\tau))z_1]} I_3(\mathbf{p}, t, \tau, z_1, z_2) + e^{i[(p_z - A_z(t))z_1 - (p_z - A_z(t-\tau))z_2]} I_4(\mathbf{p}, t, \tau, z_1, z_2) \} + \text{c.c.}, \quad (7)$$

其中, $I_1(\mathbf{p}, t, \tau, z_1)$, $I_2(\mathbf{p}, t, \tau, z_2)$, $I_3(\mathbf{p}, t, \tau, z_1, z_2)$ 和 $I_4(\mathbf{p}, t, \tau, z_1, z_2)$ 的表达式见附录. 显然, (7) 式是四项的和, 用下式来表示:

$$X(t) = X_1(t) + X_2(t) + X_3(t) + X_4(t) + \text{c.c.} \quad (8)$$

每一项都是对 τ 和 \mathbf{p} 的积分. 对 \mathbf{p} 的积分采用鞍点方法求解, 鞍点方法认为

$$\begin{aligned} & \int_{-\infty}^{\infty} f(x) e^{ig(x)} dx \\ & \approx f(x_0) \int_{-\infty}^{\infty} e^{ig(x_0) + i\frac{1}{2}g''(x_0)(x-x_0)^2} dx \\ & \approx f(x_0) e^{ig(x_0)} e^{i\frac{\pi}{4}} \left(\frac{2\pi}{|g''(x_0)|} \right)^{1/2}, \quad (9) \end{aligned}$$

式中, $f(x)$ 是 x 的缓变函数; $e^{ig(x)}$ 是 x 的快变函数, 且 $g'(x_0) = 0$, x_0 称为鞍点. (8) 式第一部分 $X_1(t)$ 中, $e^{-i\{S(\mathbf{p}, t, t-\tau) + [A_z(t) - A_z(t-\tau)]z_1\}}$ 看作是快变函数, 其余部分作为缓变函数. 由

$$\nabla_{\mathbf{p}}\{S(\mathbf{p}, t, t-\tau) + [A_z(t) - A_z(t-\tau)]z_1\} = 0 \quad (10)$$

得到

$$\mathbf{p}_{\text{st1}} = \frac{E_0}{\omega^2\tau} [\cos\omega t - \cos\omega(t-\tau)] (\sin\theta\mathbf{e}_y + \cos\theta\mathbf{e}_z). \quad (11)$$

(10) 式的左边是电子的复合时刻 t 时的位置减去电离时刻 $t-\tau$ 位置, 即

$$\begin{aligned} & \nabla_{\mathbf{p}}\{S(\mathbf{p}, t, t-\tau) + [A_z(t) - A_z(t-\tau)]z_1\} \\ & = \mathbf{r}(t) - \mathbf{r}(t-\tau), \quad (12) \end{aligned}$$

所以 (10) 式可以理解为, 电子从 A_1 电离, 在 A_1 复合, 如图 1(b) 中的虚线所示.

(8) 式第二部分 $X_2(t)$ 同第一部分, 可得鞍点

$$\mathbf{p}_{\text{st2}} = \mathbf{p}_{\text{st1}}, \quad (13)$$

$X_2(t)$ 可理解为电子从 A_2 电离, 在 A_2 复合的路径产生的偶极矩, 如图 1(b) 中的虚线所示.

对于 (8) 式第三部分 $X_3(t)$, 看作是快变函数 $e^{-i\{S(\mathbf{p}, t, t-\tau) - [(p_z - A_z(t))z_2 - (p_z - A_z(t-\tau))z_1]\}}$, 其余部分作为缓变函数. 由

$$\begin{aligned} & \nabla_{\mathbf{p}}\{S(\mathbf{p}, t, t-\tau) \\ & - [(p_z - A_z(t))z_2 - (p_z - A_z(t-\tau))z_1]\} = 0 \quad (14) \end{aligned}$$

得到

$$\begin{aligned} \mathbf{p}_{\text{st3}} & = \frac{E_0}{\omega^2\tau} [(\cos\omega t) - \cos[\omega(t-\tau)]] \\ & \times \left[\sin\theta\mathbf{e}_y + \left(\cos\theta + \frac{z_2 - z_1}{\tau} \right) \mathbf{e}_z \right]. \quad (15) \end{aligned}$$

由 (14) 式还可以得到

$$\begin{aligned} & \nabla_{\mathbf{p}}\{S(\mathbf{p}, t, t-\tau) - [(p_z - A_z(t))z_2 \\ & - (p_z - A_z(t-\tau))z_1]\} \\ & = \mathbf{r}(t) - \mathbf{r}(t-\tau) - (z_2 - z_1)\mathbf{e}_z = 0, \quad (16) \end{aligned}$$

说明 $X_3(t)$ 对应电子从 A_1 电离, 在 A_2 复合, 如图 1(c) 中的虚线所示. 与第三部分同理, (8) 式第四部分的鞍点为

$$\begin{aligned} \mathbf{p}_{\text{st4}} & = \frac{E_0}{\omega^2\tau} [\cos(\omega t) - \cos[\omega(t-\tau)]] \\ & \times \left[\sin\theta\mathbf{e}_y + \left(\cos\theta + \frac{z_1 - z_2}{\tau} \right) \mathbf{e}_z \right], \quad (17) \end{aligned}$$

同样分析, $X_4(t)$ 对应电子从 A_2 电离, 在 A_1 复合, 如图 1(c) 中的虚线所示.

接着对 $X(t)$ 进行傅里叶变换, 经过繁琐但初等的数学计算, 可以得到

$$X(q\omega) = X_1(q\omega) + X_2(q\omega) + X_3(q\omega) + X_4(q\omega) + \text{c.c.}, \quad (18)$$

其中 q 为谐波阶数. $X_1(q\omega)$, $X_2(q\omega)$, $X_3(q\omega)$ 和 $X_4(q\omega)$ 的表达式见附录, 它们都是三个贝塞尔函数的无穷求和的乘积, 可以由计算机程序实现计算. q 次谐波的强度正比于偶极 $X(q\omega)$ 的平方,

$$I_q \propto |X(q\omega)|^2. \quad (19)$$

3 O_2 分子的高次谐波谱

计算了 O_2 的高次谐波, 采用的连续的线偏振激光场波长为 800 nm, 强度为 $5.18 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. 垂直电离势为 $I_p = 12.72 \text{ eV}$. O_2 分子的核间距为 2.2 a.u. 计算结果如图 3 所示. 用偶极矩模方的对数来表达谐波的相对强度. 图 3 中的蓝色实线表达了激光场偏振方向与核轴成不同夹角 θ 时的高次谐波谱. 需要说明的是, 谐波谱仅有奇次谐波, 偶次谐波的强度为零. 由图 3 可知, 1) 谐波强度在角度为 45° 时最大, 这与实验结果 [16] 一致. 2) 谐波的截止频率不随角度变化. 也就是说, 不管光电场的偏振方向与核轴的夹角如何, 光传输方向上的谐波的截止频率都相同, 基本符合 $I_p + 3.17U_p = 71\omega$. 3) 每个角度的谐波谱上都有一个凹陷, 即一个极小值, 对应图中蓝色箭头所示. 此极小值的位置 (凹陷对应的谐波阶次) 是角度的函数, 随角度的增大而增大. 定性符合 Lein 等 [10] 由理论公式推导出的极小值条件 $R \cos\theta = \lambda$, 其中 $\lambda = 2\pi/k$ 为有效

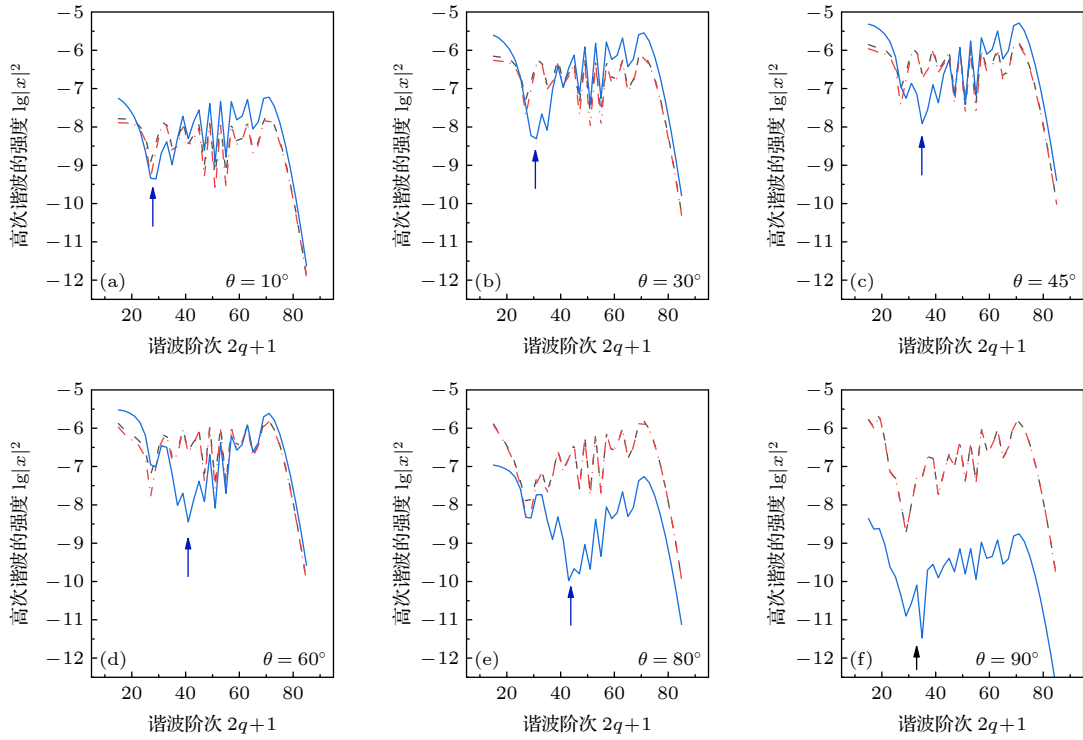


图 3 O_2 在激光偏振与核轴成不同夹角 θ 下的高次谐波谱, 每幅图中的黑色划线为第一类通道的贡献 $\log |X_1 + X_2|^2$; 红色点划线为第二类通道的贡献 $\log |X_3 + X_4|^2$; 蓝色实线为两类通道叠加的结果 $\log |X_1 + X_2 + X_3 + X_4|^2$

Fig. 3. The HHG spectrum of O_2 with different θ between the polarizing direction of laser electric field and the nuclear axis of O_2 : In each panel, black dash line is the contribution from the first path $\log |X_1 + X_2|^2$, red dot line represent that from the second path $\log |X_3 + X_4|^2$, and blue solid line represents the addition of the above two paths $\log |X_1 + X_2 + X_3 + X_4|^2$.

的电子德布罗意波长, $k^2/(2m) = q\omega$ 是辐射的高次谐波的光子的能量.

针对此极小值的物理图像, Faria^[13] 研究了在 $\theta = 0$ 情况下的同核双原子分子高次谐波的极小值, 提出了此极小值是由电子复合到不同的母核产生的谐波之间的干涉导致的, 我们将采用这样的观点, 分析极小值位置 (极小值对应的阶次) 随核轴与激光偏振方向的夹角的变化.

为分析极小值产生的根源, 分别计算 (18) 式中四项的贡献, 如前所述, 第一项 $X_1(q\omega)$ (第二项 $X_2(q\omega)$) 对应经典路径从 A_1 (或 A_2) 中心处电离, 并在相同的 A_1 (或 A_2) 中心处复合, 即电离和复合的中心是相同的. 计算了 $X_1(q\omega)$ ($X_2(q\omega)$) 单独存在时的高次谐波, 结果表明, 谐波既有奇次谐波, 又有偶次谐波. 偶次谐波的出现是由于 O_2 的波函数相对于单个的 A_1 (或 A_2) 中心来讲是不对称的. $X_1(q\omega)$ 和 $X_2(q\omega)$ 的奇次谐波的幅度和相位都是相同的, 而偶次谐波的幅度是相同的, 相位差是 π , 即

$$X_1((2q+1)\omega) = X_2((2q+1)\omega), \quad (20)$$

$$X_1((2q)\omega) = -X_2((2q)\omega). \quad (21)$$

这样 $X_1(q\omega)$ 和 $X_2(q\omega)$ 叠加的结果就表现为仅有奇次谐波, 且幅度是单独存在时的 2 倍. 偶次谐波因为相位相反, 彼此相消. 将 $X_1(q\omega)$ 和 $X_2(q\omega)$ 的叠加结果称为第一类通道的贡献, 即第一类通道如同原子的高次谐波一样, 电离和复合的中心是同一个中心. 第一类通道单独存在时的高次谐波正比于 $|X_1((2q+1)\omega) + X_2((2q+1)\omega)|^2 = |2X_1((2q+1)\omega)|^2$, 在偏振方向与核轴间夹角不同的情况下, 由图 3 中的黑色划线给出.

第三项 $X_3(q\omega)$ 和第四项 $X_4(q\omega)$ 分别对应经典路径从 A_1 (或 A_2) 处电离, 回到另一个中心 A_2 (或 A_1) 处复合, 即电离和复合的中心是不同的. 与 $X_1(q\omega)$ 和 $X_2(q\omega)$ 相似, 有

$$X_3((2q+1)\omega) = X_4((2q+1)\omega), \quad (22)$$

$$X_3((2q)\omega) = -X_4((2q)\omega). \quad (23)$$

$X_3(q\omega)$ 和 $X_4(q\omega)$ 的叠加对奇次谐波的贡献正比于 $|X_3((2q+1)\omega) + X_4((2q+1)\omega)|^2 = |2X_3((2q+1)\omega)|^2$, 称为第二类通道单独存在时的贡献, 由图 3 中的红色点划线给出.

由图 3 可见, 两类通道产生的高次谐波谱 (黑

色划线和红色点划线所示) 几乎重合, 即 $|2X_1[(2q+1)\omega]| = |2X_3[(2q+1)\omega]|$. 最终的高次谐波谱 (每幅图中的蓝色实线) 是两类通道贡献的叠加, 叠加的幅度取决于两类通道的相位差值, 即取决于 $2X_1[(2q+1)\omega]$ 与 $2X_3[(2q+1)\omega]$ 之间的相位差 $\delta\varphi$. 图 4 给出了不同 θ 情况下, 两类通道相位差的余弦值 $\cos(\delta\varphi)$ 随高次谐波阶次的变化, 该余弦值为 1, 对应相干相长; 为 -1, 对应相干相消. 如图 4(b) 中, θ 为 30° , 21 次谐波附近相干相长, 31 次谐波附近相干相消, 71 次谐波附近相干相长. 与图 3(b) 相对应, 在 21 次和 71 次附近, 总的高次谐波强度 (蓝色实线) 处在两类通道单独存在时的高次谐波强度 (红色点划线和黑色划线) 的上面, 在 31 次附近, 情况相反, 总的高次谐波 (蓝色实线) 处在两类通道单独存在时的强度 (红色点划线和黑色划线) 的下面, 对应相干相消产生的极小值. 由图 4 可见, 不同的 θ , 各阶次谐波的相干情况不同, 图 4 中不同 θ 下的最小值 (蓝色箭头所示的点) 对应高次谐波的阶次就是图 3 中的高次谐波谱 (蓝色实线) 中的极小值点 (图 3 中的蓝色箭头) 的位置.

两种通道为什么会产生相位差呢? 这是由于对于同一个阶次的谐波, 两类通道的电离和复合的

时间是不同的. 从而电离矩阵元和复合矩阵元对谐波的相位的贡献就会不同, 进而产生了相位差.

相同阶次的谐波对应的电离和复合时间不同, 换种说法就是, 相同的电离和复合时刻, 两种通道产生的高次谐波的阶次是不同的, 可以用经典图像来说明这一点. 经典情况下, 两种通道下, 如果电子的电离时刻都是 $t - \tau$, 那么, 电子将在相同的 t 时刻运动到复合的位置, 区别在于, 第一种通道下, 复合前电子的速度为 v_t , 如图 1(b) 所示, 第二种通道复合前的速度为 $v_t \pm (z_2 - z_1)/\tau e_z$, 如图 1(c) 所示. 从而两类通道下, 电子复合后发射的谐波的光子能量是不同的. 也就是说, 相同的电离时间, 电子通过这两种通道, 复合后辐射的高次谐波的阶次是不同的.

另外, 结合图 3 和图 4 可以看出, 接近 0° (以 10° 为例) 和接近 90° , 高次谐波的幅度都很低, 这两种情形下的机制是不同的. 10° 时, 谐波幅度低是因为每一类通道的幅度都很小 (如图 3(a) 中的划线和点划线所示), 这是由波函数在 10° 方向布居数少造成的. 这里需要强调的是, 每一类通道的幅度是由两个原子中心即两个氧核的位置 $(0, 0, 1.1)$ 和 $(0, 0, -1.1)$ 附近的电子布居决定的. 由图 2 可

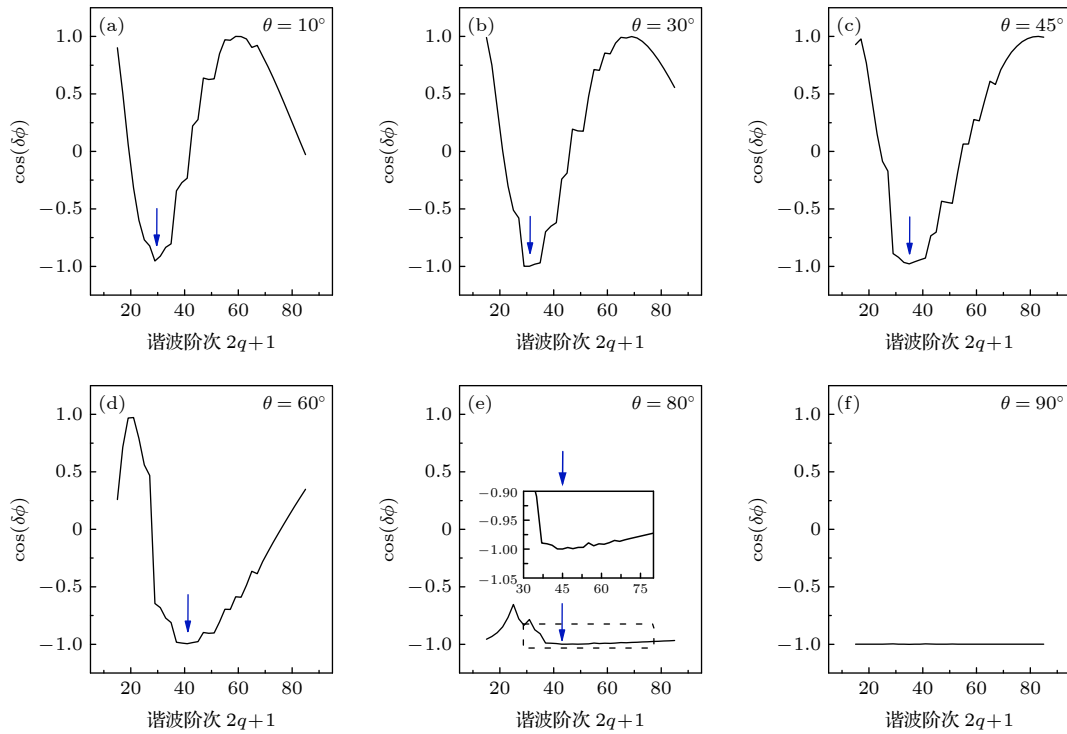


图 4 对应不同的核轴和偏振方向的夹角 θ , 两类通道产生的高次谐波的相位差的余弦值随阶次的变化

Fig. 4. $\cos(\delta\varphi)$ versus harmonic order for different angle θ made by nuclear axis and laser polarizing direction, $\delta\varphi$ is the phase difference between HHG from two channels.

见, 两个氧核附近的电子布居在 0° 附近方向布居少. 90° 方向, 如图 2 黑色虚线所示方向, 布居大. 从而产生了图 3 中的两类通道的幅度在 10° 时 (图 3(a) 中的划线和点划线所示), 明显小于其他方向的幅度. 可以预测, 对于 N_2 分子, 由于波函数在 0° 方向上布居最大, 两类通道的幅度在 0° 时最大, 最后 0° 时的高次谐波也会最强. 这与文献 [19] 的结果是一致的. 90° 时, 虽然每一通道的幅度并不低 (如图 3(f) 中的划线和点划线所示), 而谐波谱的各个阶次的幅度却几乎为零, 这是因为两类通道的贡献在 90° 情况下, 各个阶次都相干相消 (如图 4(f) 所示). 基于上面的讨论可以预测, 对于所有线性的中心对称分子, 在 90° 时, 各阶次高次谐波的幅度都会是零. 需要说明的是, 在图 3 的 90° 图中, 黑色箭头所示的最小值点是由第一类通道产生的, 文献 [20] 重点阐述了这个问题.

最后要说明一下, 本文中 O_2 的高次谐波谱中的极小值不是 Cooper Minimum (CM). CM 是原子波函数的径向有节点, 从而造成电离跃迁矩阵元几乎为零 [21,22]. 而电离是高次谐波产生过程的第一步, 此最小值结构在电离的电子复合过程中保存下来, 形成了原子高次谐波谱中的 CM 结构, 这已经在 Ar 和 Kr 原子的高次谐波谱中观察到 [23,24]. 波函数有径向节点是 CM 的必要条件, 如 CCl_4 中由于 Cl 原子的存在, 作为原子轨道线性组合的分子轨道, 包含了 Cl 的 3p 成分, 而在径向上有节点, 实验上已经观察到了 CCl_4 分子高次谐波谱中的 CM [25]. 但是, 对于 O_2 分子, 我们采用的是 HOMO 轨道作为基态函数, 由原子的 2p 轨道构成, 没有 3p 成分, 在径向上没有节点, 如图 2 所示. 所以我们得到的高次谐波谱中的最小值结构不是 CM.

这里的最小值结构是由电离电子复合到不同的原子中心之间的干涉产生的, 有和 CM 相像的地方, 就是二者都是由分子本身所决定, 与光强关系不大, 我们计算了核轴方向与激光电场方向成 30° 和 45° , 光强分别为 5.18×10^{14} 和 1.036×10^{15} W/cm^2 情况下的高次谐波谱, 对应图 5 中黑色实线和红色短划线. 发现最小值点的位置在不同的激光场强度下基本不变, 都是图 5 中箭头所指的位置.

与 CM 不同的是, 这里的最小值结构与核轴相对于激光偏振方向的取向密切相关, 核轴取向不同, 最小值点的位置不同, 如图 3 所示. 而分子中的 CM 与核轴取向无关, 所以在非准直分子中,

本文的最小值将很难测量, 而 CM 则不受分子准直的限制, 如 Wong 等 [25] 观察到了非准直分子 CS_2 高次谐波谱中的 CM 结构.

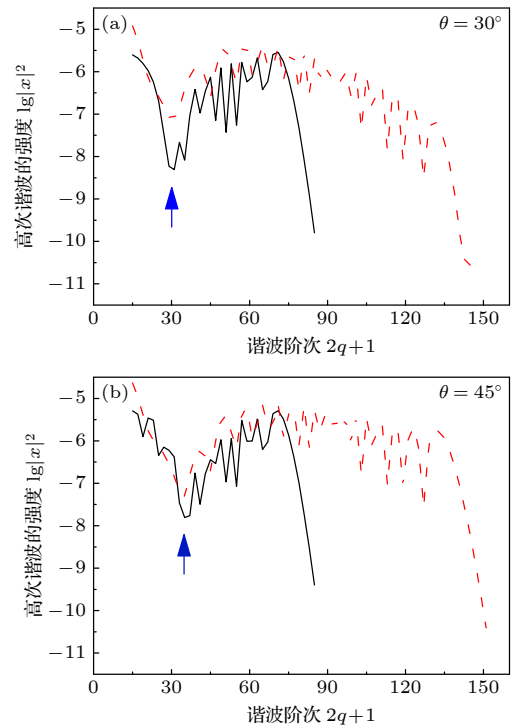


图 5 核轴和偏振方向的夹角 θ 分别为 30° (图 (a)) 和 45° (图 (b)) 时 O_2 的高次谐波谱, 黑色实线对应的激光强度为 5.18×10^{14} W/cm^2 , 红色虚线对应 1.036×10^{15} W/cm^2 .
Fig. 5. The HHG spectrum of O_2 with different θ between the polarizing direction of laser electric field and the nuclear axis of O_2 , in panel (a) θ is 30° and in (b) θ is 45° . In each panel, black solid line is for the laser intensity of 5.18×10^{14} W/cm^2 and short dash line is for the laser intensity of 1.036×10^{15} W/cm^2 .

4 结论

本文采用 Lewenstein 理论, 计算了准直的氧气分子在不同的激光偏振方向下的高次谐波谱, 给出了偏振方向与核轴成 45° 时, 谐波最强, 同时得到了谐波谱中的干涉相消现象. 分析表明, 电子从一个原子电离后, 复合到原来的原子与复合到另一个原子之间有相位差, 从而产生干涉. 采用此观点并结合单原子的高次谐波谱, 解释了 0° 和 90° 时的谐波强度小的现象. 可预测对于对称线性分子, 0° 方向的高次谐波的强度取决于 0° 方向的电子的相对布居. 90° 方向, 各阶次的高次谐波强度一定都为零. 最后强调本文中的最小值结构不是 Cooper 最小值结构.

附录

这里对 (7) 式和 (18) 式进行进一步的说明. (7) 式中的 I_1, I_2, I_3 和 I_4 的表达式如下:

$$\begin{aligned}
 I_1(\mathbf{p}, t, \tau, z_1) = & e^{-\frac{(\mathbf{p}-\mathbf{A}(t))^2}{4\alpha} - \frac{(\mathbf{p}-\mathbf{A}(t-\tau))^2}{4\alpha}} \times \left\{ \left[1 - \frac{(p_y - A_y(t))^2}{2\alpha} \right] \left[1 - \frac{(p_y - A_y(t-\tau))^2}{2\alpha} \right] \sin^2 \theta \right. \\
 & - \left[1 - \frac{(p_y - A_y(t))^2}{2\alpha} \right] [p_y - A_y(t-\tau)] \left[\frac{p_z - A_z(t-\tau)}{2\alpha} + iz_1 \right] \sin \theta \cos \theta \\
 & - [p_y - A_y(t)] \left[1 - \frac{(p_y - A_y(t-\tau))^2}{2\alpha} \right] \left[\frac{p_z - A_z(t)}{2\alpha} - iz_1 \right] \sin \theta \cos \theta \\
 & \left. + [p_y - A_y(t)][p_y - A_y(t-\tau)] \left[\frac{p_z - A_z(t)}{2\alpha} - iz_1 \right] \left[\frac{p_z - A_z(t-\tau)}{2\alpha} + iz_1 \right] \cos^2 \theta \right\}, \quad (A1)
 \end{aligned}$$

$$I_2(\mathbf{p}, t, \tau, z_2) = I_1(\mathbf{p}, t, \tau, z_2), \quad (A2)$$

$$\begin{aligned}
 I_3(\mathbf{p}, t, \tau, z_1, z_2) = & e^{-\frac{(\mathbf{p}-\mathbf{A}(t))^2}{4\alpha} - \frac{(\mathbf{p}-\mathbf{A}(t-\tau))^2}{4\alpha}} \times \left\{ - \left[1 - \frac{(p_y - A_y(t))^2}{2\alpha} \right] \left[1 - \frac{(p_y - A_y(t-\tau))^2}{2\alpha} \right] \sin^2 \theta \right. \\
 & + \left[1 - \frac{(p_y - A_y(t))^2}{2\alpha} \right] [p_y - A_y(t-\tau)] \left[\frac{p_z - A_z(t-\tau)}{2\alpha} + iz_2 \right] \sin \theta \cos \theta \\
 & + [p_y - A_y(t)] \left[1 - \frac{(p_y - A_y(t-\tau))^2}{2\alpha} \right] \left[\frac{p_z - A_z(t)}{2\alpha} - iz_1 \right] \sin \theta \cos \theta \\
 & \left. - [p_y - A_y(t)][p_y - A_y(t-\tau)] \left[\frac{p_z - A_z(t)}{2\alpha} - iz_1 \right] \left[\frac{p_z - A_z(t-\tau)}{2\alpha} + iz_2 \right] \cos^2 \theta \right\}, \quad (A3)
 \end{aligned}$$

$$I_4(\mathbf{p}, t, \tau, z_1, z_2) = I_3(\mathbf{p}, t, \tau, z_2, z_1). \quad (A4)$$

(18) 式中的 $X_1(q\omega)$, $X_2(q\omega)$, $X_3(q\omega)$ 和 $X_4(q\omega)$ 为

$$\begin{aligned}
 X_1(q\omega) = & C \times \int_0^\infty d\tau (1/\tau)^{3/2} e^{X_{I01}(\tau)} \sum_{m=-1,1} \sum_{n_3, n_4} X M_m J_{n_3}(X_{I3}(\tau)) J_{n_4}(X_{I4}(\tau)) \\
 & \times \sum_{l=-4}^4 \sum_{n_2} X L(l, \tau, z_1) J_{-q-m-l-n_2-2n_3-2n_4}(X_{I1}(\tau, z_1)) J_{n_2}(X_{I2}(\tau, z_1)) \times i^{-q-m-l-n_2-n_3-2n_4}, \quad (A5)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 X_2(q\omega) = & C \times \int_0^\infty d\tau (1 e^{X_{I01}(\tau)}) \sum_{m=-1,1} \sum_{n_3, n_4} X M_m J_{n_3}(X_{I3}(\tau)) J_{n_4}(X_{I4}(\tau)) \\
 & \times \sum_{l=-4}^4 \sum_{n_2} X L(l, \tau, z_2) J_{-q-m-l-n_2-2n_3-2n_4}(X_{I1}(\tau, z_2)) J_{n_2}(X_{I2}(\tau, z_2)) \times i^{-q-m-l-n_2-n_3-2n_4}, \quad (A6)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 X_3(q\omega) = & C \times \int_0^\infty d\tau (1 e^{X_{I03}(\tau)}) \sum_{m=-1,1} \sum_{n_3, n_4} X M_m J_{n_3}(X_{I3}(\tau)) J_{n_4}(X_{I4}(\tau)) \\
 & \times \sum_{l=-4}^4 \sum_{n_2} X L L(l, \tau, z_1, z_2) J_{-q-m-l-n_2-2n_3-2n_4}(X_{II1}(\tau, z_1, z_2)) J_{n_2}(X_{II2}(\tau, z_1, z_2)) \\
 & \times i^{-q-m-l-n_2-n_3-2n_4}, \quad (A7)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 X_4(q\omega) = & C \times \int_0^\infty d\tau (1 e^{X_{I03}(\tau)}) \sum_{m=-1,1} \sum_{n_3, n_4} X M_m J_{n_3}(X_{I3}(\tau)) J_{n_4}(X_{I4}(\tau)) \\
 & \times \sum_{l=-4}^4 \sum_{n_2} X L L(l, \tau, z_2, z_1) J_{-q-m-l-n_2-2n_3-2n_4}(X_{III1}(\tau, z_2, z_1)) J_{n_2}(X_{III2}(\tau, z_2, z_1)) \\
 & \times i^{-q-m-l-n_2-n_3-2n_4}, \quad (A8)
 \end{aligned}$$

其中, C 是一常数,

$$XM_m(\tau) = \frac{1}{2}e^{-im\omega\tau}, \quad (A9)$$

$$$$XII3(\tau) = \frac{i}{\alpha} \left\{ \frac{2U_p}{\omega^2\tau^2} \left[\frac{1}{2} - \cos(\omega\tau) + \frac{1}{2} \cos(2\omega\tau) \right] + \frac{U_p \sin(2\omega\tau)}{\omega\tau} - \frac{1}{2}U_p [1 + \cos(2\omega\tau)] \right\} \\ + \frac{2U_p}{\omega^2\tau} \left[\frac{1}{2} - \cos(\omega\tau) + \frac{1}{2} \cos(2\omega\tau) \right] + \frac{U_p}{2\omega} \sin(2\omega\tau), \quad (A12)$$$$

$$XII4(\tau) = \frac{i}{\alpha} \left\{ \frac{2U_p}{\omega^2\tau^2} \left[\frac{1}{2} \sin(2\omega\tau) - \sin(\omega\tau) \right] + \frac{U_p [1 - \cos(2\omega\tau)]}{\omega\tau} - \frac{1}{2}U_p \sin(2\omega\tau) \right\} \\ + \frac{2U_p}{\omega^2\tau} \left[\frac{1}{2} \sin(2\omega\tau) - \sin(\omega\tau) \right] + \frac{U_p}{2\omega} [1 - \cos(2\omega\tau)], \quad (A13)$$

$$XIII1(\tau, z_1, z_2) = \frac{i}{\alpha} \left\{ \frac{2\sqrt{U_p}(z_1 - z_2)}{\omega\tau^2} \cos \theta [1 - \cos(\omega\tau)] - \frac{\sqrt{U_p}(z_1 - z_2)}{\tau} \cos \theta \sin(\omega\tau) \right\} \\ + \frac{2\sqrt{U_p}(z_1 - z_2)}{\omega\tau} \cos \theta [1 - \cos(\omega\tau)] + 2\sqrt{U_p} \cos \theta \sin(\omega\tau)z_2, \quad (A14)$$

$$XIII2(\tau, z_1, z_2) = \frac{i}{\alpha} \left\{ \frac{\sqrt{U_p}(z_1 - z_2)}{\tau} \cos \theta [1 + \cos(\omega\tau)] - \frac{2\sqrt{U_p}(z_1 - z_2)}{\omega\tau^2} \cos \theta \sin(\omega\tau) \right\} \\ - \frac{2\sqrt{U_p}(z_1 - z_2)}{\omega\tau} \cos \theta \sin(\omega\tau) + 2\sqrt{U_p} \cos \theta [z_1 - \cos(\omega\tau)z_2]. \quad (A15)$$

参考文献

- [1] Skantzakis E, Chatziathanasiou S, Carpeggiani P A, Sansone G, Nayak A, Gray D, Tzallas P, Charalambidis D, Hertz E, Faucher O 2016 *Sci. Rep.* **6** 39295
- [2] Popmintchev T, Chen M C, Popmintchev D et al. 2012 *Science* **336** 1287
- [3] Song H, Lv X Y, Zhu R B, Chen G 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 184201 (in Chinese) [宋浩, 吕孝源, 朱若碧, 陈高 2019 *物理学报* **68** 184201]
- [4] Alexander M K, Marcin F, Maciej P, Stoyan K S, Kyle J M B, Bartosz A G 2006 *Science* **312** 420
- [5] Itatani J, Levesque J, Zeidler D, Niikura H, Pepin H, Kieffer J C, Corkum P B, Villeneuve D M 2004 *Nature* **432** 867
- [6] Torres R, Kajumba N, Underwood J G, Robinson J S, Baker S, Tisch J W G, Nalda R D, Bryan W A, Velotta R, Altucci C, Turcu I C E, Marangos J P 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 203007
- [7] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [8] Zair A, Siegel T, Sukiasyan S, Risoud F, Brugnera L, Hutchison C, Diveki Z, Auguste T, Tisch J W G, Salieres P, Ivanova M Y, Marangos J P 2013 *Chem. Phys.* **414** 184
- [9] Chatziathanasiou S, Lontos I, Skantzakis E, Kahaly S, Kahaly M U, Tsatrafyllis N, Faucher O, Witzel B, Papadakis N, Charalambidis D, Tzallas P 2019 *Phys. Rev. A* **100** 061404
- [10] Lein M, Hay N, Velotta R, Marangos J P, Knight P L 2002 *Phys. Rev. A* **66** 023805
- [11] Lein M, Hay N, Velotta R, Marangos J P, Knight P L 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 183903
- [12] Kanai T, Minemoto S, Sakai H 2005 *Nature* **435** 470
- [13] Faria C F D M 2007 *Phys. Rev. A* **76** 043407
- [14] Yuan Z, Guo Y C, Wang B B 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 114205 (in Chinese) [袁仲, 郭迎春, 王兵兵 2016 *物理学报* **65** 114205]
- [15] Zhou X X, Tong X M, Zhao Z X, Lin C D 2005 *Phys. Rev. A* **72** 033412
- [16] Itatani J, Zeidler D, Levesque J, Spanner M, Villeneuve D M, Corkum P B 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 123902
- [17] Lewenstein M, Balcu P, Ivanov M Y, Huillier A L, Corkum P B 1994 *Phys. Rev. A* **49** 2117
- [18] Molpro A Package of Ab Initio Programs, Werner H J, Knowles P J, Lindh R, Manby F R, Schutz M, Celani P, Korona T, Rauhut G, Amos R D, Bernhardsson A, Berning A, Cooper D L, Deegan M J O, Dobbyn A J, Eckert F, Hampel C, Hetzer G, Lloyd A W, McNicholas S J, Meyer W, Mura M E, Nicklass A, Palmieri P <http://www.molpro.net/> [2020-12-12]
- [19] Deng H Y, Zhou X X 2009 *J. At. Mol. Phys.* **26** 101 (in Chinese) [邓华依, 周效信 2009 *原子与分子物理学报* **26** 101]
- [20] Li Z Y, Guo Y C, Wang B B 2021 *Journal of East China Normal University (Natural Sciences)* **1** 103 (in Chinese) [李忠元, 郭迎春, 王兵兵 2021 *华东师范大学学报(自然科学版)* **1** 103]
- [21] Cooper J W 1962 *Phys. Rev.* **128** 681
- [22] Carlson T A, Krause M O, Grimm F A, Keller P, Taylor J W 1982 *J. Chem. Phys.* **77** 5340
- [23] Werner H J, Niikura H, Bertrand J B, Corkum P B, Villeneuve D M 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 103901
- [24] Shiner A D, Schmidt B E, Herrero C T, Corkum P B, Kieffer J C, Legare F, Villeneuve D M 2012 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **45** 074010
- [25] Wong M C H, Le A T, Alharbi A F, Boguslavskiy A E, Lucchese R R, Brichta J P, Lin C D, Bhardwaj V R 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 033006

Interference effect in high order harmonic generation by aligned O₂*

Yuan Chang-Quan¹⁾ Guo Ying-Chun^{1)†} Wang Bing-Bing²⁾³⁾

1) (*School of Physics and Electronic Science, East China Normal University, Shanghai 200241, China*)

2) (*Beijing National Laboratory of Condensed Matter Physics, Laboratory of Optical Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

3) (*University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

(Received 6 March 2021; revised manuscript received 27 April 2021)

Abstract

High order harmonic generation (HHG) is an important phenomenon when atoms or molecules interact with an intense laser field. It can be used to generate ultrashort laser source, and can also be used to investigate the atomic and molecular dynamics and obtain the electric structure information of molecules. All these require to understand in depth the mechanism of HHG. There are complicated interference effects in HHG spectra of molecules due to multiple re-collision atomic centers in the molecule. In this paper, spectra of aligned O₂ molecule in linearly polarized laser field is investigated by using the Lewenstein's model. The dependence of the spectrum on the angle θ between the nuclear axis of the molecule and the laser polarization direction is obtained. It is shown that the maximum yield of HHG occurs at θ of 45°, which is in consistence with the experimental result. In addition, it is found that there exists a minimum value in the HHG spectrum for any given value of θ . The harmonic order corresponding to the minimum increases with θ increasing. It is found that the minimum comes from the coherent superposition of contributions from two channels. One channel refers to that the ionized electron from one atomic center, subjected to the electric field of the laser, moves back to its parent atomic center and there it combines with the molecule and emits harmonics; while the other channel is that the ionized electron generated from one atomic center move back to the other atomic center to complete the combination and emission of harmonics. The angle θ -dependent phase difference between contributions from these two channels is calculated and the harmonic order corresponding to the minimum value is obtained. Finally, the reason why the yield of HHG is low for the case of the molecular axis parallel to the laser polarization direction is different from that for the case of the molecular axis perpendicular to the polarization direction. For the parallel case, the contributions to HHG from the two channels are both small so that the amplitude of their coherent superposition is small. While for the perpendicular case, the individual contribution from each channel is not small but their destructive interference leads to small yield in harmonics spectrum.

Keywords: aligned molecule, high order harmonic generation, interference effect

PACS: 42.65.Ky, 03.65.Nk, 33.80.-b

DOI: 10.7498/aps.70.20210433

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12074418, 11774411).

† Corresponding author. E-mail: ycguo@phy.ecnu.edu.cn