

doi:10.3788/gzxb20174602.0214003

H_2^+ 分子与共振相关的阈下谐波的取向效应

田轶群¹, 董福龙², 李卫艳^{2,3}, 杨世平², 陈彦军¹

(1 陕西师范大学 物理学与信息技术学院, 西安 710119)

(2 河北师范大学 物理学与信息工程学院, 石家庄 050024)

(3 河北地质大学 数理学院, 石家庄 050031)

摘要:通过数值模拟的方法研究了 H_2^+ 阈下谐波的取向效应. 数值模拟过程中, 主要关注波长为 760 nm 的阈下谐波, 通过逐次减去激发态贡献的方法, 研究共振相关谐波不同取向角下的变化规律. 结果表明: 阈下平行、垂直谐波展示的复杂取向依赖与共振效应密切相关, 该现象主要由与基态共振的各激发态的轴对称性导致. 另外, 用包含跃迁偶极子的简单模型对取向效应进行了概括描述, 并以 H_2^+ 第一激发态为演化初始态进行了验证. 本文结果可为阈下谐波取向效应的实验研究提供参考.

关键词: 阈下谐波; 取向效应; 数值模拟; 对称分子; 共振效应; 轴对称性

中图分类号: O562

文献标识码: A

文章编号: 1004-4213(2017)02-0214003-10

Orientation Effects for Resonance-related Below-threshold Harmonics from H_2^+ Molecules

TIAN Yi-qun¹, DONG Fu-long², LI Wei-yan^{2,3}, YANG Shi-ping², CHEN Yan-jun¹

(1 College of Physics and Information Technology, Shaan'xi Normal University, Xi'an 710119, China)

(2 College of Physics and Information Engineering, Hebei Normal University, Shijiazhuang 050024, China)

(3 School of Mathematics and Science, Hebei GEO University, Shijiazhuang 050031, China)

Abstract: The orientation effect for Below-Threshold Harmonics (BTHs) from H_2^+ was studied through the numerical simulations. With excluding the contributions of excited states successively, the orientation dependence of BTHs, obtained with the driving laser wavelength of 760 nm, was analyzed in detail. The research results show that the complex orientation dependence of BTHs parallel and perpendicular to the laser polarization is closely related to the resonance effect between the ground state and the neighboring excited states, where the axis symmetry of these excited states play an important role. A simple model which contains the transition dipole is used to explain these complex orientation-related phenomena. The main results are checked with using the first excited state as the initial evolution state. The results can give suggestions on relevant experimental studies of orientation dependence of BTHs.

Key words: Below-threshold harmonics; Orientation effect; Numerical simulation; Symmetric molecule; Resonance effect; Axis symmetry

OCIS Codes: 140.3430; 260.5210; 260.5740; 270.4180

0 引言

高次谐波辐射可用作阿秒脉冲光源, 是强场物理研究的热点和前沿方向之一^[1-3]. 通过对 N_2 等分子进行实验^[4] 和理论^[5] 方面的研究, 多轨道隧穿^[6-8] 和多光子效应^[9-10] 过程逐渐引起研究者的关注. 尤其是不对

基金项目: 国家自然科学基金(No. 11274090)、中央高校基础研究基金(No. GK201403002)和河北省自然科学基金(No. A2015205161)资助

第一作者: 田轶群(1992-), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为强场物理. Email: yqtiansx@163.com

导师(通讯作者): 陈彦军(1975-), 男, 教授, 博士, 主要研究方向为强场物理和阿秒光学. Email: chenyanjun@snnu.edu.cn

收稿日期: 2016-08-15; **录用日期:** 2016-11-01

<http://www.photon.ac.cn>

称分子^[11]和固体^[12]的高次谐波辐射机制更是关注的焦点.

高次谐波辐射的物理过程可由经典三步模型^[13]来描述,即:1)束缚电子在外场辅助下通过隧穿电离逃逸;2)逃逸的电子在激光场中传播;3)当外场方向改变时,逃逸的电子可以返回核附近,并与母核再结合,同时释放出高能光子.如果电子返回母核时具有动能,则光子的能量为系统电离能与动能之和.由于动能大于等于0,因此光子能量一定大于或者接近系统电离能.

然而,在实验和数值模拟中,光子能量可以低于电离能,此时产生的谐波被称作阈下谐波.近年来,研究人员研究了阈下隧穿动力学^[14-15]和阈下谐波的产生机制^[16-18]等阈下强场问题,并根据阈下谐波和入射场椭圆率关系^[19-21]、库伦效应^[22]以及相对论效应^[23]等,对阈下谐波辐射进行了广泛的研究.已有研究表明:与隧穿效应相关的量子轨道对阈下谐波影响显著,且长短量子轨道对阈下谐波辐射具有不同的贡献^[24-25];另外,激发态引起的多光子共振效应^[26]对较低阶阈下谐波也有显著影响.已有对阈下谐波的研究主要集中在原子方面,由于分子具有取向效应^[27-29],其阈下谐波的辐射机制更加复杂.当取向角(激光极化方向与分子轴之间的夹角)改变时,电子在基态和激发态之间的跃迁机制可能发生改变,进而影响阈下谐波的辐射机制.研究人员已对分子平台区域谐波辐射(光子能量大于电离能)的取向依赖进行了深入研究,然而对分子阈下谐波辐射的取向依赖的研究较少.

本文通过数值模拟的方法研究线极化激光场中不同分子取向下的 H_2^+ ^[30-31] 阈下谐波的产量,以及与共共振效应相关的平行激光极化(平行谐波)和垂直激光极化(垂直谐波)阈下谐波的辐射特性.通过选择不同的激光强度和波长、不同对称性的初始态,揭示阈下谐波辐射对分子取向的复杂依赖关系,分析初始态和相邻激发态之间的共振效应以及激发态的轴对称性对平行阈下谐波和垂直谐波产量的影响.在数值模拟的基础上,进一步建立模型,剖析阈下谐波辐射取向依赖的内在规律.

1 数值和解析方法

数值模拟假定分子沿着 x 轴,而激光场在 xy 平面内.除特殊说明外,本文中采用原子单位 $\hbar = m_e = e = 1$.在长度规范下,对称双原子分子离子 H_2^+ 的哈密顿为 $H(t) = p^2/2 + V(\mathbf{r}) + \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t)$.其中 $V(\mathbf{r}) = -Z/\sqrt{\xi + r_1^2} - Z/\sqrt{\xi + r_2^2}$, $\xi = 0.5$ 是软心势参量. $\mathbf{r}_1 = \mathbf{r} - \mathbf{R}_1$, $\mathbf{r}_2 = \mathbf{r} - \mathbf{R}_2$, \mathbf{R}_1 和 \mathbf{R}_2 分别是两个核的坐标($R/2, 0$)和($-R/2, 0$). $R = 2$ a. u. 为核间距.线极化激光场的电场分量是 $\mathbf{E}(t) = \mathbf{e}f(t)E\sin\omega_0 t$.其中 \mathbf{e} 是沿激光极化方向的单位矢量, E 和 ω_0 分别是激光场的峰值强度和频率, $f(t)$ 是包络函数.数值计算采用 10 个周期的激光脉冲,其中含有 3 个周期的上升沿,通过谱方法^[32]数值求解含时薛定谔方程 $i\partial\psi(t)/\partial t = H(t)\psi(t)$.二维数值模拟中, x 方向和 y 方向的空间长度取为 $L_x \times L_y = 409.6$ a. u. \times 409.6 a. u., 空间步长取为 0.4 a. u..

当初始态为系统基态 $|0\rangle$ 时,基态 $|0\rangle$ 具有 $1s\sigma_g$ 对称性($1s\sigma_g$ 对称性的二维等价形式),它的电离能为 $I_{p0} = |E_0| = 1.11$ a. u.;此时第一激发态 $|1\rangle$ 具有 $1s\sigma_u$ 对称性,其电离能为 $I_{p1} = |E_1| = 0.69$ a. u.;第二激发态 $|2\rangle$ 具有 $2p\pi_u$ 对称性,与之对应的电离能为 $I_{p2} = |E_2| = 0.55$ a. u., E_n 是无外场哈密顿, $H_0 = p^2/2 + V(r)$ 的本征态 $|n\rangle$ 的能量本征值.激光与靶分子相互作用过程中所产生的总的平行、垂直谐波产量为

$$F_{\parallel(\perp)}(\omega) = \int \langle \psi(t) | \mathbf{e}_{\parallel(\perp)} \cdot \nabla V | \psi(t) \rangle \exp(i\omega t) dt \quad (1)$$

式中, $\psi(t)$ 为与哈密顿 $H(t)$ 对应的含时波函数.根据强场近似^[33]理论,与基态再结合的电子对谐波辐射起主要贡献.因此电子从连续态跃迁回到基态产生的高次谐波为

$$F_{\parallel(\perp)}^0(\omega) = \int \langle 0 | \mathbf{e}_{\parallel(\perp)} \cdot \nabla V | \psi(t) \rangle a_0^* \exp(i\omega t) dt \quad (2)$$

式中 $a_0(t) = \langle 0 | \psi(t) \rangle$.第一激发态对谐波辐射的贡献为

$$F_{\parallel(\perp)}^{01}(\omega) = \int \langle 0 | \mathbf{e}_{\parallel(\perp)} \cdot \nabla V | \psi_1(t) \rangle a_0^* \exp(i\omega t) dt \quad (3)$$

式中, $\psi_1(t) = \psi(t) - a_1(t)|1\rangle$, $a_1(t) = \langle 1 | \psi(t) \rangle$.与式(2)相比,式(3)忽略了电子从第一激发态 $|1\rangle$ 跃迁到基态 $|0\rangle$ 时对谐波辐射的贡献.进一步排除电子从第二激发态 $|2\rangle$ 跃迁回基态 $|0\rangle$ 的贡献,即

$$F_{\parallel(\perp)}^{012}(\omega) = \int \langle 0 | \mathbf{e}_{\parallel(\perp)} \cdot \nabla V | \psi_2(t) \rangle a_0^* \exp(i\omega t) dt \quad (4)$$

式中, $\psi_2(t) = \psi(t) - a_1(t)|1\rangle - a_2(t)|2\rangle$ 且 $a_2(t) = \langle 2 | \psi(t) \rangle$.在式(4)中,谐波辐射的强度可以表示为 $S_{\parallel(\perp)}$

$$(\omega) = |F_{\parallel(\perp)}(\omega)|^2.$$

为了与阈下谐波辐射取向依赖比较, 研究了 H_2^+ 平台区域谐波辐射取向依赖. 已知平台区域谐波辐射与基态-连续态跃迁偶极子有紧密的关系^[26]. 平行(垂直)跃迁偶极子可用式(5)计算, 即

$$D_{\parallel(\perp)}(\omega, \theta) \propto G(\omega, \theta) \int d\mathbf{r} [\exp(-\kappa \mathbf{r}) \mathbf{e}_{\parallel(\perp)} \cdot \mathbf{r} \sin(\mathbf{p}_k \cdot \mathbf{r})] \quad (5)$$

式中, $a_1 = Z_1/B, a_2 = Z_2/B, B = (Z_1^2 + Z_2^2)^{1/2}, G(\omega, \theta) = a_1 \cos(p_k R_1 \cos \theta) + a_2 \cos(p_k R_2 \cos \theta), Z_1 = Z_2 = 1, R_1 = R_2 = R/2 = 1 \text{ a. u.}, \kappa = \sqrt{2I_{p0}}. \mathbf{p}_k$ 是连续态 $|p\rangle$ 考虑库伦效应^[2] 的有效动量, 其值为 $p_k = |\mathbf{p}_k| = [2(I_{p0} + E_p)]^{1/2}, E_p = \omega - I_{p0}$ 为连续态 $|p\rangle$ 的能量. 平台谐波强度与跃迁偶极子的关系为

$$S_{\parallel(\perp)}(\omega, \theta) \propto |a(\omega) D_{\parallel(\perp)}(\omega, \theta)|^2, \omega = (2n+1)\omega_0 \quad (6)$$

式中, $n=0, 1, 2, 3, \dots. a(\omega)$ 是连续态电子的谱振幅.

2 数值结果和讨论

2.1 初始态为基态数值结果

图 1 为不同取向角下平台区域高次谐波辐射谱与跃迁偶极子强度的比较, 选取了 3 个典型的取向角 $\theta = 30^\circ, 45^\circ, 60^\circ$. 选用的激光场强为 $I = 7 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 波长为 $\lambda = 760 \text{ nm}$. 图 1(a)、(b) 和图 1(c)、(d) 分别代表平行和垂直于激光极化方向的结果. 其中, 谐波辐射谱由式(2)计算而得, 相关跃迁偶极子由式(5)结合 $|D_{\parallel(\perp)}(\omega, \theta)|^2/\omega^4$ 计算得到. 通过比较图 1(a) 和图 1(b), 可见基态-连续态跃迁偶极子较好地预言了平台谐波的取向依赖. 例如, 在图 1(a) 中第一个虚箭头左侧, $\theta = 60^\circ$ 的平行谐波辐射谱产量最高, $\theta = 45^\circ$ 的产量次之, 而 $\theta = 30^\circ$ 的产量最弱. 在第一个虚箭头右侧, $\theta = 30^\circ$ 的辐射谱产量开始高于 $\theta = 45^\circ$ 的产量, 这与图 1(b) 中对应的跃迁偶极子曲线一致. 图 1(a) 中第二个虚箭头左右两侧不同取向角下谐波辐射谱产量的相对高低也与图 1(b) 中对应偶极子曲线一致.

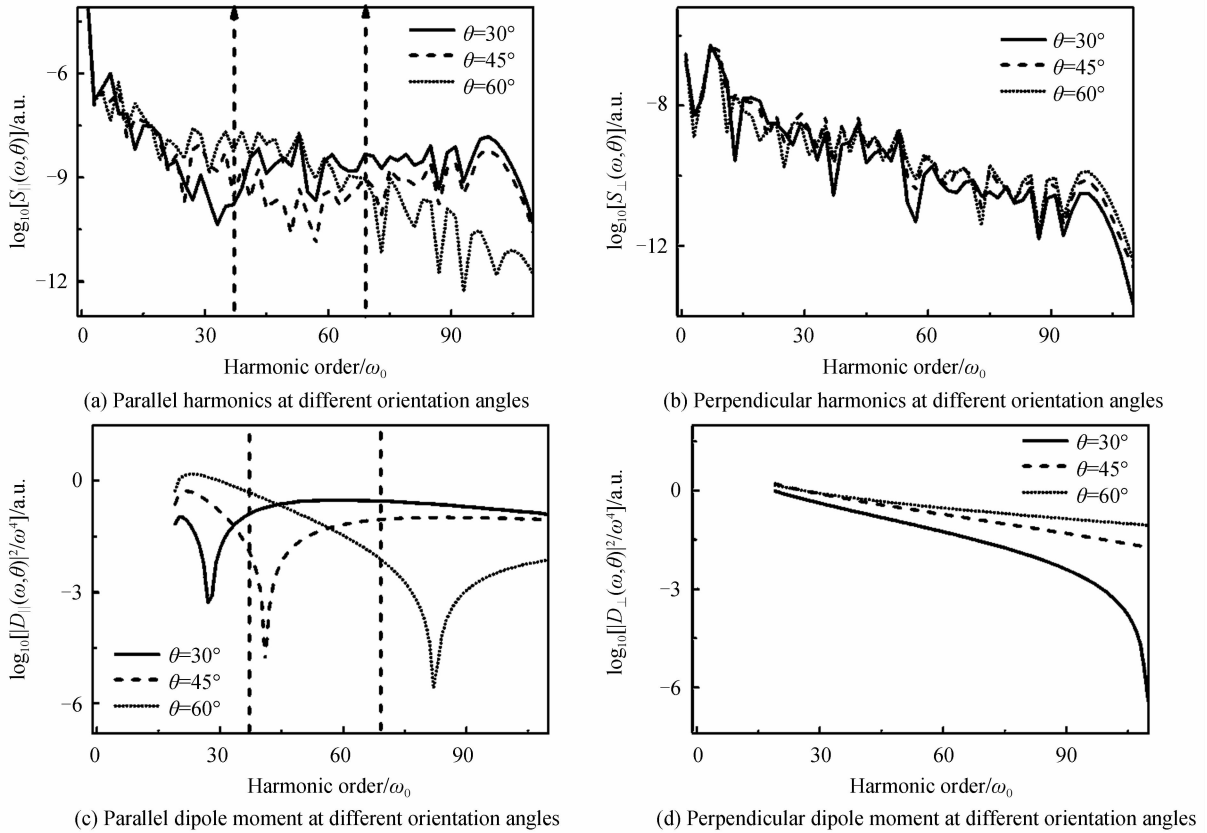


图 1 激光强度为 $I = 7 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 和波长为 $\lambda = 760 \text{ nm}$ 时, 平台区域平行和垂直高次谐波谱和跃迁偶极子强度随取向角 θ 变化

Fig. 1 Spectra of parallel and perpendicular harmonics in the plateau region and relevant dipoles at different angles θ for $I = 7 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ and $\lambda = 760 \text{ nm}$

对比图 1(c) 的垂直谐波辐射谱强度和图 1(d) 中的跃迁偶极子曲线, 可以得到相同的结论. 图 1(d) 中在谐波阶数较低(约 60 阶以前)时, $\theta=30^\circ$ 、 45° 和 60° 的偶极子曲线相近, 对应图 1(c) 中垂直谐波辐射谱强度也相似. 而当谐波阶数较高(约 60 阶以后)时, $\theta=30^\circ$ 的偶极子强度最弱, 相应的垂直谐波辐射谱强度也最低.

这些结果表明平台区域的高次谐波辐射与基态-连续态跃迁偶极子有紧密关系, 平台谐波取向依赖可由偶极子的取向依赖来预言. 因为跃迁偶极子包含了基态轨道波函数信息, 揭示了分子谐波辐射与其结构的内在联系. 然而该关系只适用于能量大于系统电离能的平台谐波, 对于能量低于系统电离能的阈下谐波不再适用. 已有研究表明^[34-35], 基态和相邻激发态之间的共振效应对分子较低阶阈下谐波辐射有重要影响. 接下来, 将重点分析与共振效应相关的较低阶阈下谐波辐射的取向效应.

图 2 为 $\lambda=400$ nm[(a)、(b)]和 $\lambda=760$ nm[(c)、(d)]时不同取向角下的平行[(a)、(c)]和垂直[(b)、(d)]谐波辐射谱强度. $\lambda=400$ nm 对应激光频率为 0.114 a. u., 该值满足电离能为 $I_{p0}=1.11$ a. u. 的 $1s\sigma_g$ 态与电离能为 $I_{p1}=0.69$ a. u. 的 $1s\sigma_u$ 态之间的三光子共振条件, 以及 $1s\sigma_g$ 态与电离能为 $I_{p2}=0.55$ a. u. 的 $2p\pi_u$ 态之间的五光子共振条件. $\lambda=760$ nm 对应激光频率为 0.06 a. u., 该值满足 $1s\sigma_g$ 与态之间的七光子共振条件, 以及 $1s\sigma_g$ 态与态之间的九光子共振条件.

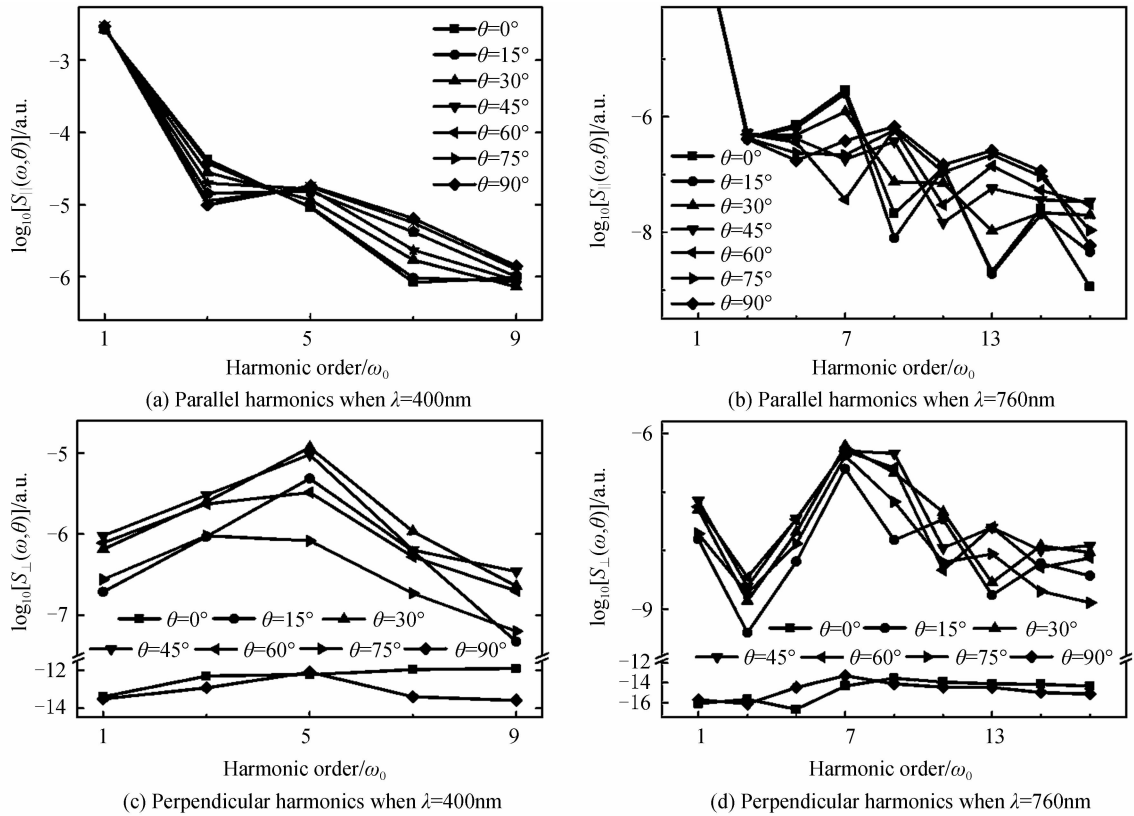


图 2 激光强度为 $I=7\times 10^{14}$ W/cm², 波长为 $\lambda=400$ nm 和 760 nm 时, 阈下平行和垂直谐波谱随取向角 θ 变化
Fig. 2 Spectra of parallel and perpendicular below-threshold harmonics at different angles θ for $I=7\times 10^{14}$ W/cm² with $\lambda=400$ nm and 760 nm

图 2(a) 中, 波长为 $\lambda=400$ nm 时, 与共振效应相关的第三阶平行谐波强度随着取向角的增大逐渐减小, 而与共振效应相关的第五阶平行谐波的情况相反. 图 2(b) 中, 当取向角为 $\theta=45^\circ$ 时, 垂直谐波产量最大, 且随取向角的增大或减小垂直谐波产量都将逐渐减小. 并且注意到取向角为 $\theta=0^\circ$ 和 $\theta=90^\circ$ 时, 垂直谐波辐射谱强度可忽略. 同样, 当 $\lambda=760$ nm[图 2(c)、(d)]时, 与共振效应相关的第七、九阶谐波展示了与 $\lambda=400$ nm 时的三、五阶谐波相似的取向性质. 为验证以上二维结果, 进行三维数值模拟, 结果与二维结果相似. 为了更好地理解图 2 中呈现的较低阶阈下谐波的取向效应, 将分别用数值和解析的方法对相关现象进行深入分析.

2.2 数值分析

图3选取波长为 $\lambda=760$ nm的结果进行讨论,展示了取向角 $\theta=15^\circ$ 时的(a)平行、(b)垂直阈下谐波强度以及 $\theta=75^\circ$ 时的(c)平行、(d)垂直阈下谐波强度.图3中方块实线是由式(1)精确计算得到的阈下谐波产量,圆圈虚线和三角点线分别是由式(3)和式(4)计算得到的阈下谐波产量.在式(3)中, $|1\rangle$ 至 $|0\rangle$ 跃迁被排除.在式(4)中,不仅 $|1\rangle$ 至 $|0\rangle$, $|2\rangle$ 至 $|0\rangle$ 的跃迁也被排除.由式(2)计算得到的仅考虑电子跃迁返回到基态的谐波与由式(1)精确计算得到的谐波相近,所以在图中没有显示.下面分析各个激发态在不同取向角对较低阶谐波的影响.

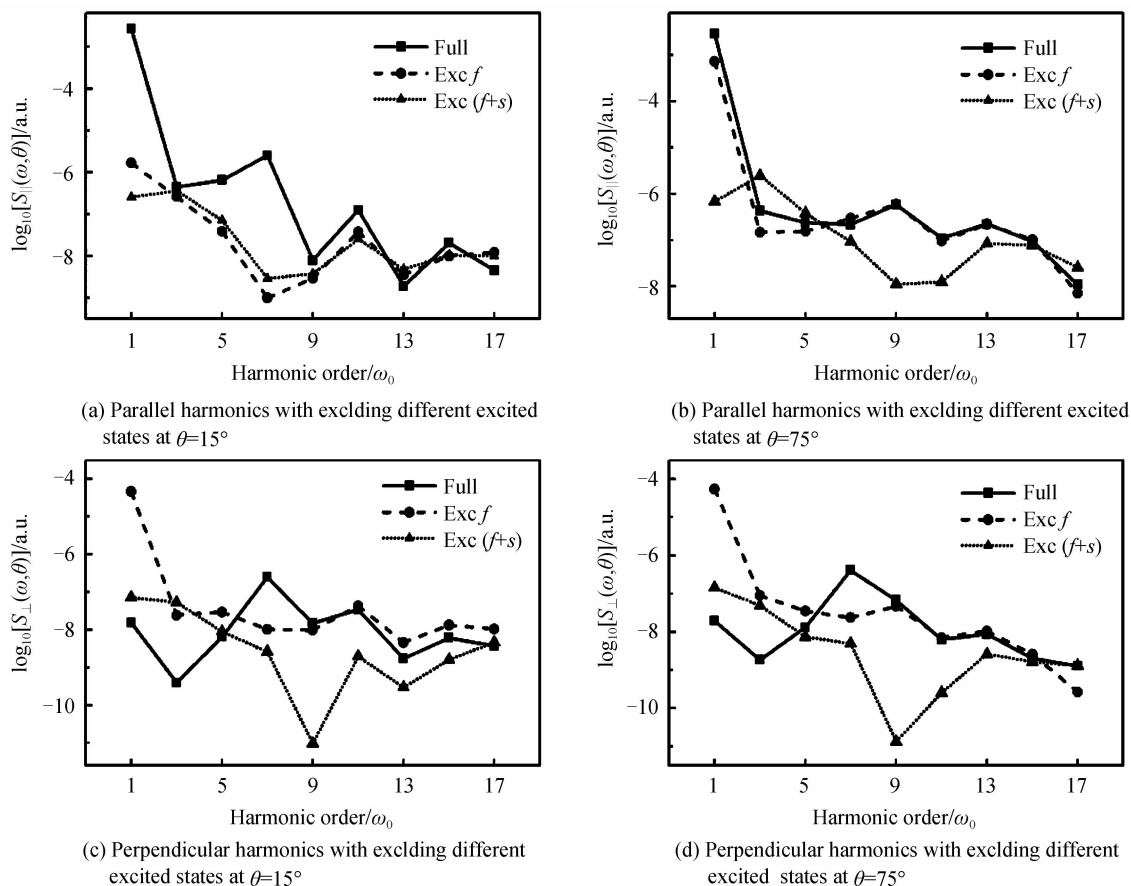


图3 激光强度为 $I=7\times 10^{14}$ W/cm²和波长 $\lambda=760$ nm,取向角为 $\theta=15^\circ$ 和 75° 时,平行和垂直阈下谐波谱排除不同激发态贡献后变化

Fig. 3 Spectra of parallel and perpendicular below-threshold harmonics with excluding contributions of different excited states at $\theta=15^\circ$ and 75° for $I=7\times 10^{14}$ W/cm² and $\lambda=760$ nm

在图3(a)中,对于第七阶谐波,由式(3)计算得到的谐波产量(圆圈描述)与由式(1)精确计算得到的谐波产量(方块描述)相比有大幅减弱,这说明由于七光子共振, $1s\sigma_u$ 态到 $1s\sigma_g$ 态的跃迁在较小取向角时对第七阶谐波产量有较大的贡献.而由式(3)计算的谐波产量(圆圈描述)与由式(4)计算的谐波产量(三角描述)在第七阶处区别不明显,说明 $2p\pi_u$ 态到 $1s\sigma_g$ 态的跃迁在取向角较小时对第七阶平行谐波的产量几乎没有贡献.基于相同的分析可知,对于图3(a)中的第九阶谐波,在较小取向角时 $1s\sigma_u$ 态到 $1s\sigma_g$ 态的跃迁对其仅有很小的贡献,而 $2p\pi_u$ 态到 $1s\sigma_g$ 态的跃迁则对其几乎没有贡献.

对于图3(c)中 $\theta=75^\circ$ 时的平行阈下谐波,由式(3)计算得到的第九阶谐波产量(圆圈描述)与由式(1)计算得到的谐波产量(方块描述)几乎重合,而由式(4)计算的谐波产量(三角描述)与之对比有很大的差别,说明 $1s\sigma_u$ 态对于产生第九阶平行谐波没有贡献,而 $2p\pi_u$ 态由于九光子共振对第九阶平行谐波产量有显著贡献.基于同样的分析可得, $1s\sigma_u$ 态在较大取向角时对产生第七阶平行谐波贡献很小,而 $2p\pi_u$ 态对此阶平行谐波贡献显著.对图3(b)和3(d)中第七和第九阶垂直谐波的分析可以用类似的方法,这里不再赘述.

以上分析说明激发态与基态之间的共振效应与分子取向密切相关,从而导致激发态对较低阶阈下谐波的贡献也与分子取向有紧密的关系.为了更好地理解 $1s\sigma_u$ 和 $2p\pi_u$ 激发态对较低阶阈下谐波贡献的取向性

质, 引入简单的模型进行分析.

2.3 解析研究

考虑到第七阶和第九阶谐波主要与激发态 $1s\sigma_u$ 和 $2p\pi_u$ 至基态 $1s\sigma_g$ 的跃迁有关, 这两阶谐波平行(垂直)成分的强度可近似描述为^[35]

$$F_{\parallel(\perp)}(\omega, \theta) \propto \langle 1 | \mathbf{e}_{\parallel} \cdot \mathbf{r} | 0 \rangle [a_1(\omega) \langle 0 | \mathbf{e}_{\parallel(\perp)} \cdot \mathbf{r} | 1 \rangle] + \langle 2 | \mathbf{e}_{\parallel} \cdot \mathbf{r} | 0 \rangle [a_2(\omega) \langle 0 | \mathbf{e}_{\parallel(\perp)} \cdot \mathbf{r} | 2 \rangle] \quad (7)$$

式中 $d_e = \langle n | \mathbf{e}_{\parallel} \cdot \mathbf{r} | 0 \rangle$ 和 $d_r = \langle 0 | \mathbf{e}_{\parallel} \cdot \mathbf{r} | n \rangle$, $n=1, 2$. 这两项分别表示电子的激发和再结合跃迁偶极子. $a_1(\omega)$ 和 $a_2(\omega)$ 是与谐波频率 ω 相关的 $1s\sigma_u$ 和 $2p\pi_u$ 态对应的谱振幅. 通常, 当 $1s\sigma_g$ 和 $1s\sigma_u$ ($2p\pi_u$) 之间发生共振时, $|a_1(\omega)|$ ($|a_2(\omega)|$) 的值将会出现极大. $\mathbf{e}_{\parallel(\perp)}$ 是平行(垂直)于激光场极化方向的单位矢量, 激光场极化方向和分子轴的夹角即为取向角 θ . 考虑到计算中涉及到的束缚态的对称性, 可以得到 $\langle 0 | x | 1 \rangle \neq 0$, $\langle 0 | y | 2 \rangle \neq 0$, $\langle 0 | y | 1 \rangle = 0$ 且 $\langle 0 | x | 2 \rangle = 0$. 利用这些关系, 式(7)可以进一步写为

$$\begin{cases} F_{\parallel}(\omega, \theta) \sim a_1(\omega) |d_1|^2 \cos^2 \theta + a_2(\omega) |d_2|^2 \sin^2 \theta \\ F_{\perp}(\omega, \theta) \sim [a_2(\omega) |d_2|^2 - a_1(\omega) |d_1|^2] \sin \theta \cos \theta \end{cases} \quad (8)$$

式中, $d_1 = \langle 0 | x | 1 \rangle$, $d_2 = \langle 0 | y | 2 \rangle$. 为了方便讨论, 利用公式

$$\begin{cases} d_{\parallel}^1 = a_1(\omega) |d_1|^2 \cos^2 \theta, d_{\parallel}^2 = a_2(\omega) |d_2|^2 \sin^2 \theta \\ d_{\perp}^1 = -a_1(\omega) |d_1|^2 \sin 2\theta, d_{\perp}^2 = a_2(\omega) |d_2|^2 \sin 2\theta \end{cases} \quad (9)$$

简化方程中各项. 通过式(8)和(9), 可以很好地理解与共振相关的较低阶阈下谐波的产生机制和取向依赖.

从式(8)可知, 当取向角 $\theta=0^\circ$ 或 90° 时, $\sin \theta \cos \theta=0$, 则 $F_{\perp}(\omega, \theta)=0$. 即取向角为 0° 或 90° 时不产生垂直谐波. 这一结果在图 2(b)中被直观地呈现出来.

当取向角 $\theta=15^\circ$ (此时 $\sin^2 \theta \leq \cos^2 \theta$) 时, 考虑 $1s\sigma_g$ 与 $1s\sigma_u$ 之间七光子共振, 能得到幅 $|a_1(\omega)| \gg |a_2(\omega)|$. 结合式(9)可得 $F_{\parallel} \sim d_{\parallel}^1$ 和 $F_{\perp} \sim d_{\perp}^1$. 即第七阶平行、垂直谐波都主要由 $1s\sigma_u$ 态贡献, $2p\pi_u$ 态对平行谐波几乎无贡献, 对垂直谐波贡献较少. 又由于 $d_{\parallel}^1 > d_{\perp}^1$, 则可以得到第七阶平行谐波的产量高于垂直谐波. 而当考虑 $1s\sigma_g$ 和 $2p\pi_u$ 之间九光子共振时, $|a_1(\omega)| \ll |a_2(\omega)|$, 此时 d_{\parallel}^1 和 d_{\perp}^1 对 F_{\parallel} 的贡献都很小, 所以第九阶平行谐波的产量较小; 而 $F_{\perp} \sim d_{\perp}^2$, 可得第九阶垂直谐波的产量主要由 $2p\pi_u$ 态贡献, 这符合图 3(b)中的情形. 当取向角为 $\theta=75^\circ$ 时, 可以用类似的方法对图 3(c)和 3(d)中相关平行和垂直谐波的产生机制进行分析.

对于图 3(c)中 $\theta=75^\circ$ ($\sin^2 \theta \gg \cos^2 \theta$) 时的平行阈下谐波, 当考虑 $1s\sigma_g$ 和 $2p\pi_u$ 之间的九光子共振时 $|a_1(\omega)| \ll |a_2(\omega)|$, 所以 $F_{\parallel} \sim d_{\parallel}^2$; 而考虑 $1s\sigma_g$ 和 $1s\sigma_u$ 之间七光子共振时 $|a_1(\omega)| \gg |a_2(\omega)|$, 则可得到 d_{\parallel}^1 和 d_{\perp}^1 对第七阶平行谐波的影响都不大, 即共振效应对该阶谐波影响较小, 因此该谐波产量较低. 此外, 通过分析还可得到对于第七阶谐波 ($|a_1(\omega)| \gg |a_2(\omega)|$), 当取向角较小时 (例如 $\theta=75^\circ$), $F_{\parallel}(\omega, \theta) \sim d_{\parallel}^1 = a_1(\omega) |d_1|^2 \cos^2 \theta$ 的值显然比取向角大时 (例如 $\theta=15^\circ$) 的值大. 因此第七阶谐波的产量随着取向角增大而减小. 同理, 对于第九阶谐波, $F_{\parallel}(\omega, \theta) \sim d_{\parallel}^2 = a_2(\omega) |d_2|^2 \sin^2 \theta$, 取向角较大时的值大于取向角较小时的值. 因此第九阶谐波产量随着取向角增大而增大. 这些结果与图 2(a)中 $\lambda=400$ nm 时第三、五阶谐波和图 2(c)中 $\lambda=760$ nm 时第七、九阶谐波的取向依赖相一致.

与图 3(a)和 3(c)中分析相似, 根据式(8)可知, 与共振相关的第七、九阶谐波的垂直成分 $F_{\perp}(\omega, \theta) \sim [a_2(\omega) |d_2|^2 - a_1(\omega) |d_1|^2] \sin \theta \cos \theta$ 在 $\theta=15^\circ$ 和 $\theta=75^\circ$ 时的产量相似. 这与图 3(b)和 3(d)中结果一致. 根据 F_{\perp} 的表达式, 还可知在 $\theta=45^\circ$ 时垂直谐波产量最大. 这与图 2(b)和 2(d)中结果一致.

因此式(8)对与共振相关的较低阶阈下谐波的取向效应给予了合理解释. 它表明较低阶阈下谐波的取向依赖与共振效应的取向性质和相关束缚态的轴对称性有紧密的关系.

2.4 初始态为第一激发态的数值结果和分析

为了更深入地理解分子的轴对称性对阈下谐波辐射的影响, 考虑以 $1s\sigma_u$ 态作为初态进行数值模拟的情况. 为了方便与前面的结果进行比较, 数值计算中调整有效电荷量以使 $1s\sigma_u$ 态 (这里还记为 $|0\rangle$ 态) 的电离能仍为 $I_{p0}=1.11$ a. u.. 此时能与之共振的较低的激发态有 $2p\sigma_g$ 态、 $2p\pi_g$ 态和 $3s\sigma_g$ 态. 为了与前面的公式对应, 仍然用第一激发态 $|1\rangle$ 、第二激发态 $|2\rangle$ 和第三激发态 $|3\rangle$ 表示此三个态, 对应电离能分别为 $I_{p1} =$

0.657 a.u.、 $I_{p2} = 0.527$ a.u. 和 $I_{p3} = 0.532$ a.u. . 由激发态对称性可得 $\langle 0|x|1\rangle \neq 0$, $\langle 0|y|2\rangle \neq 0$, $\langle 0|x|3\rangle \neq 0$; $\langle 0|y|1\rangle = 0$, $\langle 0|x|2\rangle = 0$ 且 $\langle 0|y|3\rangle = 0$. 注意到 $2p\pi_g$ 态和 $3s\sigma_g$ 态的电离能相似, 此处选取 $\lambda = 710$ nm 的激光波长进行数值模拟. 该波长满足 $1s\sigma_u$ 态与 $2p\sigma_g$ 态之间七光子共振条件, 同时满足 $1s\sigma_u$ 态与 $2p\pi_g$ 态以及 $3s\sigma_g$ 态之间九光子共振条件.

由于这时各个激发态的电离能比初态为 $1s\sigma_g$ 态时对应的激发态的电离能低, 为了减小 Stark 效应的影响, 采用较低的激光场强度 $I = 3 \times 10^{14}$ W/cm² 进行模拟. 注意到此时有三个激发态与初始态之间有共振效应, 为了更好地理解第三激发态对阈下谐波的贡献, 可以在式(4)的基础上进一步减去电子从第三激发态跃迁到基态对谐波的贡献, 即

$$F_{\parallel(\perp)}^{0123}(\omega) = \int \langle 0 | e_{\parallel(\perp)} \cdot \nabla V | \psi_3(t) \rangle a_0^* \exp(i\omega t) dt \quad (10)$$

此处 $\psi_3(t) = \psi(t) - a_1(t)|1\rangle - a_2(t)|2\rangle - a_3(t)|3\rangle$, $a_3(t) = \langle 3 | \psi(t) \rangle$. 图 4 中呈现了二维数值模拟得到的平行[(a)、(c)和(e)]和垂直[(b)、(d)和(f)]阈下谐波. 其中图(a)和(b)结果通过式(1)计算而得. 图(c)和(d)展示了取向角为 $\theta = 15^\circ$ 时的结果. 图(e)和(f)展示了 $\theta = 45^\circ$ 时的结果. 在(c)、(e)、(d)和(f)中方块实线

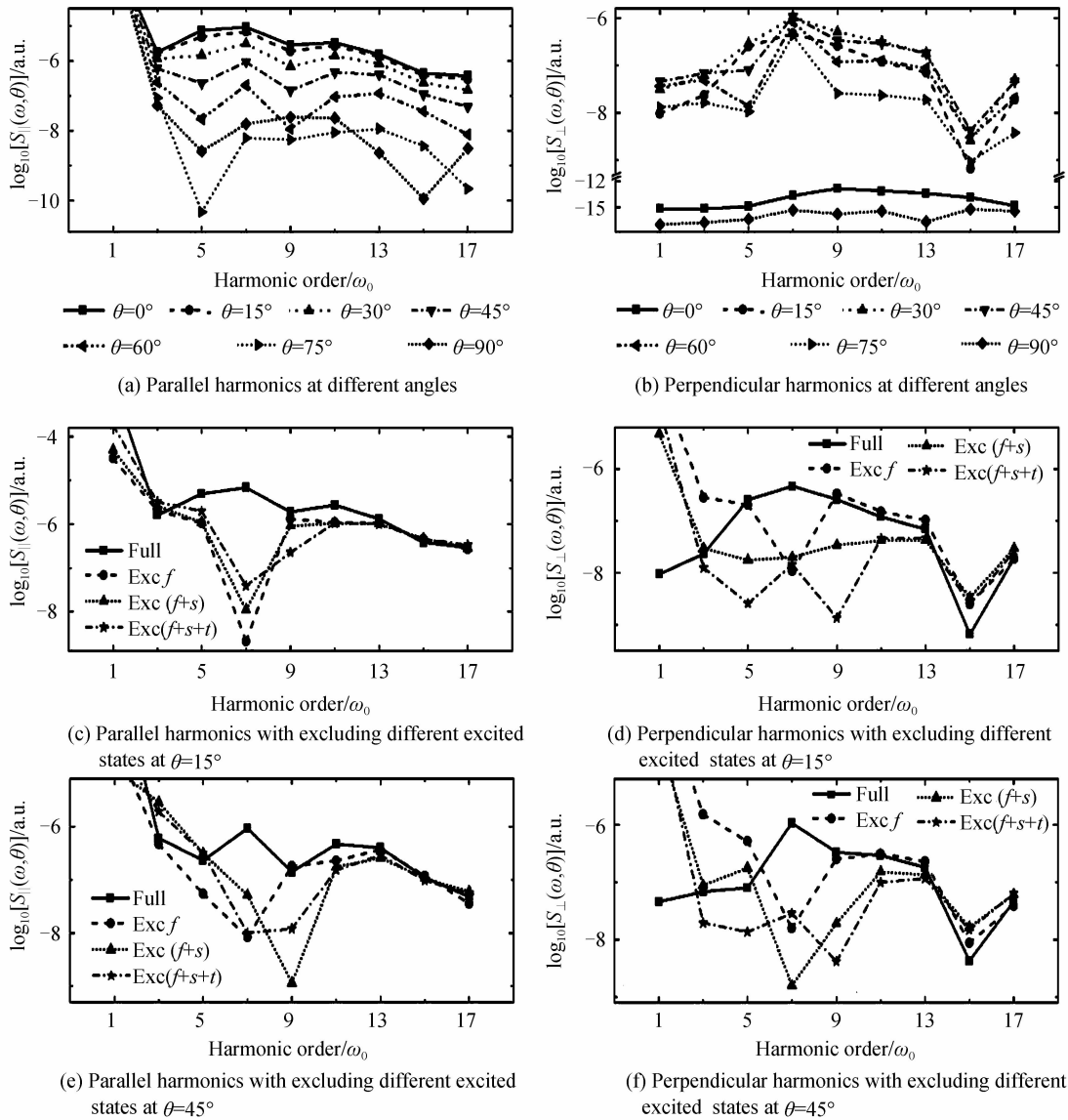


图 4 以 $1s\sigma_u$ 态为初态, 激光强度为 $I = 7 \times 10^{14}$ W/cm² 和波长为 $\lambda = 710$ nm 时, 平行和垂直阈下谐波谱排除不同激发态贡献后随取向角 θ 的变化

Fig. 4 With the $1s\sigma_u$ state as the initial state, spectra of parallel and perpendicular below-threshold harmonics with excluding contributions of different excited states at different orientation angles θ for $I = 7 \times 10^{14}$ W/cm² and $\lambda = 710$ nm

表示式(1)计算得到的精确结果, 圆圈虚线、三角点线和五角星线分别表示由式(3), 式(4)和式(10)计算得到的结果. 此三个方程在计算中, 依次排除了电子从各个激发态跃迁到基态时对谐波贡献.

图 4(a)结果显示, 当以 $1s\sigma_u$ 态为初态时, 平行阈下谐波产量随取向角的增大而减小. 而对于图 4(b)中的垂直阈下谐波, $\theta=0^\circ$ 和 $\theta=90^\circ$ 没有垂直谐波, 而 $\theta=45^\circ$ 时垂直谐波产量最高. 这一规律与图 2(b)和 2(d)中垂直谐波取向依赖规律相同.

由于此时有更多的激发态对阈下谐波辐射有贡献, 为解释图 4 中与共振效应相关的较低阶阈下谐波辐射规律, 考虑到第三激发态的贡献, 对式(7)进行修正. 有

$$F_{\parallel(\perp)}(\omega, \theta) \propto \langle 1 | \mathbf{e}_{\parallel} \cdot \mathbf{r} | 0 \rangle [a_1(\omega) \langle 0 | \mathbf{e}_{\parallel(\perp)} \cdot \mathbf{r} | 1 \rangle] + \langle 2 | \mathbf{e}_{\parallel} \cdot \mathbf{r} | 0 \rangle [a_2(\omega) \langle 0 | \mathbf{e}_{\parallel(\perp)} \cdot \mathbf{r} | 2 \rangle] + \langle 3 | \mathbf{e}_{\parallel} \cdot \mathbf{r} | 0 \rangle [a_3(\omega) \langle 0 | \mathbf{e}_{\parallel(\perp)} \cdot \mathbf{r} | 3 \rangle] \quad (11)$$

修正后的方程可以简化为

$$\begin{cases} F_{\parallel}(\omega, \theta) \sim a_1(\omega) |d_1|^2 \cos^2 \theta + a_2(\omega) |d_2|^2 \sin^2 \theta + a_3(\omega) |d_3|^2 \cos^2 \theta \\ F_{\perp}(\omega, \theta) \sim a_2(\omega) |d_2|^2 \sin \theta \cos \theta - a_1(\omega) |d_1|^2 \sin \theta \cos \theta - a_3(\omega) |d_3|^2 \sin \theta \cos \theta \end{cases} \quad (12)$$

式中 $d_3 = \langle 0 | x | 3 \rangle$. 和前面步骤相同, 式(12)可以简化为

$$\begin{cases} d_{\parallel}^1 = a_1(\omega) |d_1|^2 \cos^2 \theta, d_{\parallel}^2 = a_2(\omega) |d_2|^2 \sin^2 \theta \\ d_{\parallel}^3 = a_3(\omega) |d_3|^2 \cos^2 \theta, d_{\perp}^1 = -a_1(\omega) |d_1|^2 \sin(2\theta) \\ d_{\perp}^2 = a_2(\omega) |d_2|^2 \sin(2\theta), d_{\perp}^3 = -a_3(\omega) |d_3|^2 \sin(2\theta) \end{cases} \quad (13)$$

当 $1s\sigma_u$ 态与 $2p\sigma_g$ 态之间发生七光子共振时 ($a_1(\omega) \gg a_2(\omega) \approx a_3(\omega)$), 对于 $\theta=15^\circ$ (此时 $\sin^2 \theta \ll \cos^2 \theta$) 的较小取向角情况, 根据式(12), 图 4(c)中平行谐波满足关系 $F_{\parallel}(\omega, \theta) \sim d_{\parallel}^1 = a_1(\omega) |d_1|^2 \cos^2 \theta$, 表明 $2p\sigma_g$ 态对第七阶谐波贡献显著 (在第七阶处, 圆圈虚线比方块实线对应的值低几阶的量), 而 $2p\pi_g$ 态和 $3s\sigma_g$ 态的贡献则较少 (五角星线、三角点线与圆圈虚线在第七阶处对应的值可比). 而对于第九阶谐波 ($a_1(\omega) \ll a_2(\omega) \approx a_3(\omega)$), 根据式(12)可得 $F_{\parallel}(\omega, \theta) \sim d_{\parallel}^3 = a_3(\omega) |d_3|^2 \cos^2 \theta$. 该式表明第三激发态对这阶谐波贡献显著. 这与图 4(c)所示结果一致. 当平行谐波的取向角增大到 ($\sin^2 \theta = \cos^2 \theta$) 时, 图 4(e)显示平行第七阶谐波主要由 $2p\sigma_g$ 态贡献, 第九阶由 $2p\pi_g$ 态、 $3s\sigma_g$ 态共同贡献, 这一结果也与式(12)预测相同. 此外, 利用式(12)对与共振相关的较低阶平行谐波进行分析不难得出, 在取向角从 $\theta=0^\circ$ 逐渐增大到 90° 的过程中, 当取向角较小时, 第一、三激发态的 $\cos^2 \theta$ 项对谐波的产量起主导作用; 只有当取向角增大到 60° 左右时, 第二激发态的 $\sin^2 \theta$ 项的作用才开始显著, 且随取向角逐渐增大 $\cos^2 \theta$ 项的作用逐渐减小直至可忽略. 这就导致了较低阶平行谐波强度随取向角的增大而减小, 而这一趋势在 75° 取向角附近出现逆转.

对于与共振相关的较低阶垂直谐波, 在取向角较小时 (例如 $\theta=15^\circ$), 图 4(d)显示第七阶谐波主要由第一激发态贡献, 第九阶谐波由第二、三激发态共同贡献, 这些结果也与式(12)的预测相符. 对图 4(f)中 $\theta=45^\circ$ 时结果的分析与上面讨论类似, 此处不再赘述. 此外, 根据式(12)对垂直谐波的描述, 可以预测当取向角为 0° 或 90° 时垂直谐波消失, 而当取向角为 45° 时垂直谐波产量达到最大, 这也与图 4(b)中的数值模拟结果一致.

值得注意的是本文中主要讨论的阈下谐波取向依赖, 因其与共振相关, 故其对激光参量 (激光强度和波长) 很灵敏. 该性质与阈上谐波不同. 阈上谐波源于隧穿电离, 其取向依赖主要与分子结构有关, 受到分子内部两中心干涉效应的影响, 对激光参量不灵敏.

3 结论

本文采用数值模拟的方法对 H_2^+ 在线极化激光场下与共振效应相关的阈下谐波的取向依赖进行了详细的研究. 主要研究了波长为 $\lambda=760$ nm 时与共振相关的第七、九阶平行、垂直谐波的取向依赖. 数值模拟的结果可以用解析模型进行直观、简单的描述. 分析结果表明: 共振相关谐波的取向依赖主要由基态和与基态共振的较低激发态的轴对称性引起. 用 H_2^+ 的第一激发态作为演化初始态验证了提出的解析模型, 研究结果为相关实验研究提供了有益的参考.

参考文献

- [1] HUIILLIER L A, SCHAFER K J, KULANDER K C. Theoretical aspects of intense field harmonic generation[J]. *Journal of Physics B*, 1991, **24**(15): 3315-3341.

- [2] ITATANI J, LEVESQUE J, ZEIDLER D, *et al.* Tomographic imaging of molecular orbitals[J]. *Nature*, 2004, **432**: 867-871.
- [3] KRAUSZ F, IVANOV M. Attosecond physics[J]. *Review of Modern Physics*, 2009, **81**(1): 163-234.
- [4] MCFARLAND B K, FARRELL J P, BUCKSBAUM P H, *et al.* High harmonic generation from multiple orbitals in[J]. *Science*, 2008, **322**(5905): 1232-1235.
- [5] LE A T, LUCCHESI R R, LIN C D. Uncovering multiple orbitals influence in high harmonic generation[J]. *Journal of Physics B*, 2009, **42**(21): 211001.
- [6] MAIRESSE Y, HIGUET J, DUDOVICH N, *et al.* High harmonic spectroscopy of multichannel dynamics in strong-field ionization[J]. *Physics Review Letters*, 2010, **104**(21): 213601.
- [7] CHEN Yan-jun, LI Y, YANG Shi-ping, *et al.* High-order harmonic generation and molecular orbital tomography: characteristics of molecular recollision electronic wave packets[J]. *Physics Review A*, 2008, **77**(21): 031402(R).
- [8] SMIRNOVA O, MAIRESSE Y, PATCHKOVSKII S, *et al.* High harmonic interferometry of multi-electron dynamics in molecules[J]. *Nature*, 2009, **460**: 972-977.
- [9] BOUTU W, HAESSLER S, MERDJI H, *et al.* Coherent control of attosecond emission from aligned molecules[J]. *Nature Physics*, 2008, **4**: 545-549.
- [10] YU Shu-juan, ZHANG Bing, LI Yan-peng, *et al.* Ellipticity of odd-even harmonics from oriented asymmetric molecules in strong linearly polarized laser fields[J]. *Physics Review A*, 2014, **90**(5): 053844
- [11] ZHANG Bing, YU Shu-juan, CHEN Yan-jun, *et al.* Time-resolved dynamics of odd and even harmonic emission from oriented asymmetric molecules[J]. *Physics Review A*, 2015, **92**(5): 053833
- [12] LUU T T, GARG M, KRUCHININ S Y, *et al.* Extreme ultraviolet high-harmonic spectroscopy of solids[J]. *Nature*, 2015, **521**: 498-502.
- [13] CORKUM P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization[J]. *Physics Review Letters*, 1993, **71**(13): 1994-1997.
- [14] SEREBRYANNIKOV E E, ZHELTIKOV A M. Strong-field photoionization as excited-state tunneling[J]. *Physics Review Letters*, 2016, **116**(12): 123901.
- [15] TEENY N, YAKABOYLU E, BAUKE H, *et al.* Ionization time and exit momentum in strong-field tunnel ionization [J]. *Physics Review Letters*, 2016, **116**(6): 063003.
- [16] KLAIBER M, HATSAGORTSYAN K Z, KEITEL C H. Tunneling dynamics in multiphoton ionization and attoclock calibration[J]. *Physics Review Letters*, 2015, **114**(8): 083001.
- [17] AVANAKI K N, TELNOV D A, CHU S I. Above- and below-threshold high-order-harmonic generation of H_2^+ in intense elliptically polarized laser fields[J]. *Physics Review A*, 2014, **90**(3): 033425.
- [18] LI Lu-ning, WANG Jun-ping, HE Feng. Roles of Coulomb potentials in below-and above-threshold harmonic generation for a hydrogen atom in strong laser fields[J]. *Journal of The Optical Society of America B*, 2016, **33**(7): 1558-1563.
- [19] BURNETT N H, KAN C, CORKUM P B. Ellipticity and polarization effects in harmonic generation in ionizing neon [J]. *Physics Review A*, 1995, **51**(5): R3418-R3421.
- [20] MIYAZAKI K, TAKADA H. High-order harmonic generation in the tunneling regime[J]. *Physics Review A*, 1995, **52**(4): 3007-3021.
- [21] KAKEHATA M, TAKADA H, YUMOTO H, *et al.* Anomalous ellipticity dependence of high-order harmonic generation[J]. *Physics Review A*, 1997, **55**(2): R861-R864.
- [22] IVANOV M Y, BRABEC T, BURNETT N. Coulomb corrections and polarization effects in high-intensity high-harmonic emission[J]. *Physics Review A*, 1996, **54**(1): 742-745.
- [23] LIU Ji-cai, KOHLER M C, KEITEL C H, *et al.* Coherent x-ray generation from below-threshold harmonics[J]. *Physics Review A*, 2011, **84**(6): 063817.
- [24] HENKEL J, WITTING T, FABRIS D, *et al.* Prediction of attosecond light pulses in the VUV range in a high-order-harmonic-generation regime[J]. *Physics Review A*, 2013, **87**(4): 043818.
- [25] SOIFER H, BOTHERON P, SHAFIR D, *et al.* Near-threshold high-order harmonic spectroscopy with aligned molecules[J]. *Physics Review Letters*, 2010, **105**(14): 143904.
- [26] YOST D C, SCHIBLI T R, YE J, *et al.* Vacuum-ultraviolet frequency combs from below-threshold harmonics[J]. *Nature Physics*, 2009, **5**: 815-820.
- [27] VELOTTA R, HAY N, MASON M B, *et al.* High-order harmonic generation in aligned molecules[J]. *Physics Review Letters*, 2001, **87**(18): 183901.
- [28] LITVINIUK I V, LEE K F, DOOLEY P W, *et al.* Alignment-dependent strong field ionization of molecules[J]. *Physics Review Letters*, 2003, **90**(23): 233003.
- [29] VANNE Y V, SAENZ A. Alignment-dependent ionization of molecular hydrogen in intense laser fields[J]. *Physics Review A*, 2010, **82**(1): 011403(R).

-
- [30] CHEN Yan-jun, LIU Jie, HU B. Intensity dependence of intramolecular interference from a full quantum analysis of high-order harmonic generation[J]. *Physics Review A*, 2009, **79**(3): 033405.
- [31] HAN Yong-chang, MADSEN L B. Minimum in the high-order harmonic generation spectrum from molecules: role of excited states[J]. *Journal of Physics B*, 2010, **43**(22): 225601.
- [32] FEIT M D, FLECK J A J R, STEIGER A. Solution of the Schrödinger equation by a spectral method[J]. *Journal Computation Physics*, 1982, **47**(3): 412-433.
- [33] LEWENSTEIN M, KULANDER K C, SCHAFER K J, *et al.* Rings in above-threshold ionization: a quasiclassical analysis[J]. *Physics Review A*, 1995, **51**(2): 1495-1507.
- [34] CHEN Yan-jun, ZHANG Bing. Tracing the structure of asymmetric molecules from high-order harmonic generation [J]. *Physics Review A*, 2011, **84**(5): 053402.
- [35] DONG Fu-long, TIAN Yi-qun, YU Shu-juan, *et al.* Polarization properties of below-threshold harmonics from aligned molecules in linearly polarized laser fields[J]. *Optics Express*, 2015, **23**(14): 18106-18116.

Foundation item: The National Natural Science Foundation of China(No. 11274090), the Fundamental Research Funds for the Central Universities (No. GK201403002) and the Natural Science Foundation of Hebei Province(No. A2015205161)