

利用双色激光场下阈上电离谱鉴别 H_3^+ 两种不同分子构型*

周旭聪¹⁾²⁾ 石尚²⁾³⁾ 李飞²⁾³⁾ 孟庆田¹⁾ 王兵兵^{2)3)†}

1) (山东师范大学物理与电子科学学院, 济南 250358)

2) (中国科学院物理研究所, 光物理实验室, 北京 100190)

3) (中国科学院大学, 北京 100049)

(2020年1月3日收到; 2020年2月11日收到修改稿)

我们最近证明, 利用红外和深紫外双色激光场, SF_6 分子的结构信息可以通过其电离谱上的相干条纹获得 [*arXiv*,1912.08499(2019)]. 在本文中, 我们利用该方法考察了两种不同几何结构的分子离子 H_3^+ 在激光场中的直接阈上电离 (ATI) 过程. 通过与单色激光场中电离谱的比较发现, 双色激光场的电离谱可以分辨分子的不同几何结构. 由相干条件导出的公式可以很好地解释直接 ATI 动能谱和动量谱中的干涉条纹. 此外, 还发现通过改变分子核间距或改变激光强度可以改变电离谱的形状. 由此可以推断, 双色激光场诱导的 ATI 谱具有鉴别分子不同构型的能力, 对复杂分子的几何结构成像具有一定的参考意义.

关键词: H_3^+ 分子, 直接阈上电离 (ATI), 不同分子构型

PACS: 32.80.Fb, 33.20.-t

DOI: 10.7498/aps.69.20200013

1 引言

因为成像分子的几何结构能够帮助我们更直观的去理解微观世界, 从而促进了物理化学、材料科学和生物科学的发展, 对于科学家而言探测分子的内部结构一直以来是比较重要的研究课题. 然而, 与原子相比, 分子内部结构相对来说更为复杂, 通过普通的实验方法来获取它的结构信息是困难的. 随着激光技术的发展, 尤其是超强超快激光的出现, 为研究相关的超快动力学过程提供了一种前所未有的探测工具. 在最近几十年, 利用飞秒超快激光激发分子产生许多强场高阶非线性超快现象, 比如阈上电离 (ATI)^[1,2], 高阶阈上电离 (HATI)^[3-6], 高次谐波 (HHG)^[7,8] 和非序列双电离 (NSDI)^[9,10]

等等. 因为在这些过程中被激发的分子能够发射出与他们的内部结构相关的光谱或电子谱, 故通过提取这些光谱或电子谱我们能够对分子结构进行成像.

最近, Meckel 等^[11] 测量了在线偏振激光场下 N_2 和 O_2 分子的隧穿电子和弹性散射电子的三维动量谱, 并且获取了有关分子电子轨道和核位置的相关信息. Huismans 等^[12] 通过利用直接电离和散射电子波包之间的干涉提出对分子外部轨道全息成像的方案. H_3^+ 作为最简单的三原子分子离子, 无论是在理论上还是实验上, 它的外场动力学已经被广泛地研究. Lötstedt 等^[13] 通过改变激光脉冲的载波包络相位来选择 H_3^+ 解离之后最终与电子结合的质子. 元凯军等^[14] 利用双色圆偏振阿秒 UV 激光脉冲对 H_3^+ 分子的多中心光电离过程进行

* 国家自然科学基金 (批准号: 11474348, 11674198, 11425414, 11774411) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: wbb@aphy.iphy.ac.cn

研究,发现在分子框架下的光电子动量分布的干涉图案能够反映电场的螺旋和对称性.

上述大多数研究都是基于时域理论,它所需要的计算时间比较长.最近,我们基于频域理论考察了双色激光场下利用 ATI 谱对复杂的 SF₆ 分子进行成像,并得到该分子的键长信息^[15].频域理论是基于非微扰量子电动力学的方法,首次被郭东升等^[16]提出,随后被成功运用到 HHG^[17]、HATI^[18–19]及 NSDI^[20]过程中.尤其, Fu 等^[21]利用高次谐波产生过程证明了在强场物理中时域和频域理论之间的对应关系.这里,我们将利用该方法来探索在强激光场下对 H₃²⁺两种不同的几何结构进行成像.

在本文中,我们主要关注直接 ATI 过程^[22,23].首先,给出 H₃²⁺的两种几何构型,见图 1,其中图 1(a)表示的是线形构型,图 1(b)表示的三角形构型.然后,得到在单色激光场下 H₃²⁺分子的直接 ATI 角分辨能谱,并分析了两种构型下的能谱特点.之后,我们在单色激光的基础上增加一束线偏振激光,研究 H₃²⁺分子在双色激光场下的直接 ATI 谱,发现不同分子构型存在不同的干涉条纹,并详细给出了干涉条纹的原因.此外,我们通过改变激光场的强度和核间距比较了 H₃²⁺分子的三角形构型和线形构型的角分辨光电子能谱的不同.最后,我们给出了结论.在双色激光场下的直接 ATI 能谱拥有鉴别 H₃²⁺不同分子构型的能力,这将对复杂分子的结构成像具有一定的参考意义.

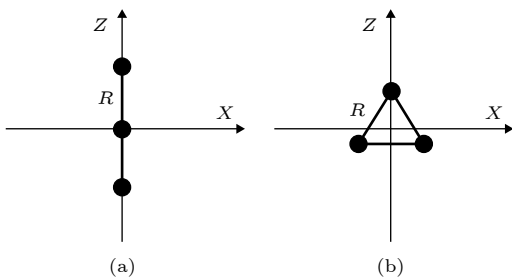


图 1 H₃²⁺分子的几何构型 (a) 线形构型; (b) 三角形构型.核间距为 $r_0 = 2.0$ a.u.

Fig. 1. Geometrical configuration of H₃²⁺ at internuclear distance $r_0 = 2.0$ a.u.: (a) Linear molecule; (b) triangular molecule.

2 理论方法

我们考虑 H₃²⁺分子在线偏振激光场下的电离过程中,其中激光场的偏振方向是沿着 Z 轴.这里

我们使用的是原子单位且分子-光子体系是独立和能量守恒的,三原子分子与激光体系的哈密顿量可以写为

$$H = H_0 + U + V, \quad (1)$$

其中, $H_0 = \frac{(-i\nabla)^2}{2} + \omega N_a$ 表示的是电子-光子能量算符, N_a 表示的频率为 ω 的激光场的光子数算符 $N_a = \frac{1}{2}(a^+a + aa^+)$, 这里的 a 和 a^+ 表示的是光场的湮灭和产生算符. U 代表了分子的库仑势, 电子和光子的相互作用势 V 可以表示为

$$V = -\frac{1}{2}[(-i\nabla) \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}) + \mathbf{A}(\mathbf{r}) \cdot (-i\nabla)] + \frac{\mathbf{A}(\mathbf{r})^2}{2}, \quad (2)$$

其中, $\mathbf{A}(\mathbf{r})$ 为激光场矢势, 表示为 $\mathbf{A}(\mathbf{r}) = g(\hat{\epsilon}e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} a + \text{c.c.})$, $g = (2\omega V_\gamma)^{-1/2}$, V_γ 为光场的归一化体积. 光场的偏振矢量定义为 $\hat{\epsilon} = \hat{\epsilon}_x \cos(\xi/2) + i\hat{\epsilon}_y \sin(\xi/2)$, 其中 ξ 表示激光场的偏振度, 比如 $\xi = \pi/2$ 对应的是圆偏振, $\xi = 0$ 对应的是线偏振^[24].

体系的初态可以表示为 $|\psi_i\rangle = \Phi_i(\mathbf{r}) \otimes |n_i\rangle$, 对应于哈密顿量 $H_0 + U$ 的本征态, 其本征能量为 $E_i = -E_B + (n_i + 1/2)\omega$, 其中 $\Phi_i(\mathbf{r})$ 表示的是具有结合能 E_B 的分子电子的基态波函数, $|n_i\rangle$ 表示的是光场的 Fock 态. 体系的末态可以表示为 $|\psi_f\rangle = |\psi_{\mathbf{p}_f, n_f}\rangle$, 用量子化的 Volkov 态来表示, 它可以表示为^[25]

$$|\psi_{\mathbf{p}_f, n_f}\rangle = V_e^{-1/2} \sum_{j=-n_f}^{\infty} e^{i[\mathbf{p}_f + (u_p - j)\mathbf{k}] \cdot \mathbf{r}} \times J_j(\zeta_f, \eta, \phi_\xi)^* e^{-ij(\phi_\xi + \frac{\pi}{2})} |n_f + j\rangle, \quad (3)$$

其中: V_e 表示的是归一化体积; \mathbf{p}_f 为电离电子的末态动量; $u_p = U_p/\omega$, 其中 U_p 表示在激光场中电子的有质动力势能; \mathbf{k} 为激光场的光子动量. 末态的总能量为 $E_{\mathbf{p}_f, n_f} = \mathbf{p}_f^2/2 + (n_f + 1/2)\omega + u_p\omega$, 其中 n_f 表示激光场的光子数. 广义贝塞尔函数 $J_j(\zeta_f, \eta, \phi_\xi)$ 可以表示为

$$J_j(\zeta_f, \eta, \phi_\xi) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} J_{-j-2m}(\zeta_f) J_m(\eta) e^{2im\phi_\xi}, \quad (4)$$

其中,

$$\zeta_f = 2\sqrt{\frac{u_p}{\omega_1}} |\mathbf{p}_f \cdot \hat{\epsilon}|, \quad \eta = \frac{1}{2}u_p \cos \xi,$$

$$\phi_\xi = \tan^{-1}[(P_z/P_x) \tan(\xi/2)],$$

$P_z(P_x)$ 表示动量在 $Z(X)$ 轴上的分量. 因此, 在单色激光场下的直接 ATI 的跃迁矩阵元能够被写成

$$T_d = \langle \psi_f | V | \psi_i \rangle = V_e^{-1/2} [(u_p - j)\omega] J_j(\zeta_f, \eta, \phi_\xi) \Phi_i(\mathbf{P}_f), \quad (5)$$

其中 $j = n_i - n_f$ 表示的是从激光场中吸收的光子数.

上述公式都是基于单色激光场的情况. 当激光场变为双色激光场时, 哈密顿量仍然可以用 $H = H_0 + U + V$ 表示, 但在双色激光场条件下电子-光子能量算符变为

$$H_0 = \frac{(-i\nabla)^2}{2} + \omega_1 N_{a_1} + \omega_2 N_{a_2},$$

电子和激光的相互作用势变为

$$V = -\frac{1}{2} \{ (-i\nabla) \cdot [\mathbf{A}_1(\mathbf{r}) + \mathbf{A}_2(\mathbf{r})] + [\mathbf{A}_1(\mathbf{r}) + \mathbf{A}_2(\mathbf{r})] \times (-i\nabla) \} + \frac{1}{2} [\mathbf{A}_1(\mathbf{r})^2 + \mathbf{A}_2(\mathbf{r})^2]. \quad (6)$$

体系的初态变为 $|\psi_i\rangle = \Phi_i(\mathbf{r}) \otimes |l_1\rangle \otimes |l_2\rangle$, 末态变为

$$\begin{aligned} & |\psi_{\mathbf{P}_f, m_1, m_2}\rangle \\ & = V_e^{-1/2} \exp[i(\mathbf{P}_f + u_{p_1} \mathbf{k}_1 + u_{p_2} \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r}] \\ & \times \sum_{\substack{q_1 = -m_1, \\ q_2 = -m_2}}^{\infty} \mathfrak{S}_{q_1, q_2}(\zeta)^* \exp\{-i[q_1(\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r} + \phi_1) \\ & + q_2(\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r} + \phi_2)]\} |m_1 + q_1, m_2 + q_2\rangle. \quad (7) \end{aligned}$$

最终, 在双色激光场条件下直接 ATI 跃迁矩阵元可以表示为^[26]

$$T_d = \langle \psi_f | V | \psi_i \rangle = V_e^{-1/2} [(u_{p_1} - q_1)\omega_1 + (u_{p_2} - q_2)\omega_2] \mathfrak{S}_{q_1, q_2}(\zeta_f) \Phi_i(\mathbf{P}_f), \quad (8)$$

其中 q_1 (q_2) 表示从 IR(XUV) 激光场中吸收的光子数. 此时广义贝塞尔函数表示为

$$\begin{aligned} \mathfrak{S}_{q_1, q_2}(\zeta) & = \sum_{q_3 q_4 q_5 q_6} J_{-q_1 + 2q_3 + q_5 + q_6} \\ & \times (\zeta_1) J_{-q_2 + 2q_4 + q_5 - q_6}(\zeta_2) J_{-q_3}(\zeta_3) \\ & \times J_{-q_4}(\zeta_4) J_{-q_5}(\zeta_5) J_{-q_6}(\zeta_6), \quad (9) \end{aligned}$$

其中函数宗量为 $\zeta \equiv (\zeta_1, \zeta_2, \zeta_3, \zeta_4, \zeta_5, \zeta_6)$,

$$\begin{aligned} \zeta_1 & = 2\sqrt{\frac{u_{p_1}}{\omega_1}} |\mathbf{p}_f \cdot \hat{\mathbf{e}}_1|, \quad \zeta_2 = 2\sqrt{\frac{u_{p_2}}{\omega_2}} |\mathbf{p}_f \cdot \hat{\mathbf{e}}_2|, \\ \zeta_3 & = \frac{1}{2} u_{p_1} \cos \xi_1, \quad \zeta_4 = \frac{1}{2} u_{p_2} \cos \xi_2, \\ \zeta_5 & = 2\sqrt{\frac{u_{p_1} u_{p_2} \omega_1 \omega_2}{\omega_1 + \omega_2}}, \quad \zeta_6 = 2\sqrt{\frac{u_{p_1} u_{p_2} \omega_1 \omega_2}{\omega_1 - \omega_2}}. \quad (10) \end{aligned}$$

我们假设激光场的初始相位都为 0° , 分子波函数是由氢原子 1s 轨道的线性组合而成. 因此, 对于线形构型的分子而言, 在动量空间下的基态波函

数表示为

$$\Phi_{\text{linear}}(\mathbf{P}) = (\pi\alpha)^{-3/4} C_1 e^{-(\mathbf{P}^2/2\alpha)} [1 + 2\cos(\mathbf{P}_z \cdot r_0)], \quad (11)$$

其中, $\alpha = 2E_B$. 而对于三角形构型的 H_3^{2+} , 动量空间的波函数为

$$\begin{aligned} \Phi_{\text{triangular}}(\mathbf{P}) & = (\pi\alpha)^{-3/4} C_2 e^{-(\mathbf{P}^2/2\alpha)} \\ & \times e^{\frac{\sqrt{3}}{6} i \mathbf{P}_z r_0} \left[\frac{1}{e^2} + 2\cos(\mathbf{P}_x \cdot r_0) \right], \quad (12) \end{aligned}$$

其中, $\alpha = 2E_B$, C_1 和 C_2 分别为线形构型和三角形构型分子的原子轨道组合系数.

3 结果与讨论

图 1 表示 H_3^{2+} 分子两种不同的几何构型. 对于线形构型而言, 3 个原子都是沿着 Z 轴, 中间的原子位于坐标轴的原点. 而三角形构型是位于 XZ 平面, 其中一个原子位于 Z 轴, 剩余的两个原子之间的连线平行于 X 轴, 三角形分子的中心位于坐标原点. 这里, 我们假设在任意两个原子之间的核间距是保持不变的, 即 $r_0 = 2.0$ a.u..

首先计算单色线偏振激光场下 H_3^{2+} 分子的光电子角分辨的直接 ATI 能谱. 如图 2 所示, 横轴表示的是电离电子的出射方向与 Z 轴之间的夹角 θ_f , 纵轴表示的是电离电子的动能. 分子的电离势为 $E_B = 29.376$ eV, 激光场的频率为 $\omega = 1.55$ eV, 场强为 $I = 1.0 \times 10^{13}$ W/cm².

从图 2 中可以看出, 光谱是关于角度 $\pi/2$ 对称的, 而且随着角度越靠近 $\pi/2$ 处, 出射电子的能量变得越低. 仔细观察 H_3^{2+} 分子两种不同构型下的 ATI 光谱没有发现形状上的不同. 这很容易理解, 因为 ATI 过程是多光子电离过程, 其中分子能够吸收多于它自身电离所需要的光子数. 在直接 ATI 过程中电子能够被直接电离而不发生回碰过程. 因此, 可以得出结论, 在单色线性偏振激光场下角分辨直接 ATI 能谱对分子的几何结构是不敏感的. 接下来, 将进一步研究在双色激光场下角分辨 ATI 能谱. 双色激光场的频率为 $\omega_1 = 1.55$ eV, $\omega_2 = 50\omega_1$, 场强为 $I_1 = I_2 = 1.0 \times 10^{13}$ W/cm².

图 3 表示的是在双色线性激光场下两种不同几何构型的 H_3^{2+} 分子的角分辨直接 ATI 能谱. 首先, 我们发现两种不同构型下的 ATI 光谱都呈现出两个关于 $\pi/2$ 对称的平台结构, 其中, 第一个平台的电离几率要远大于第二个平台的电离几率. 每

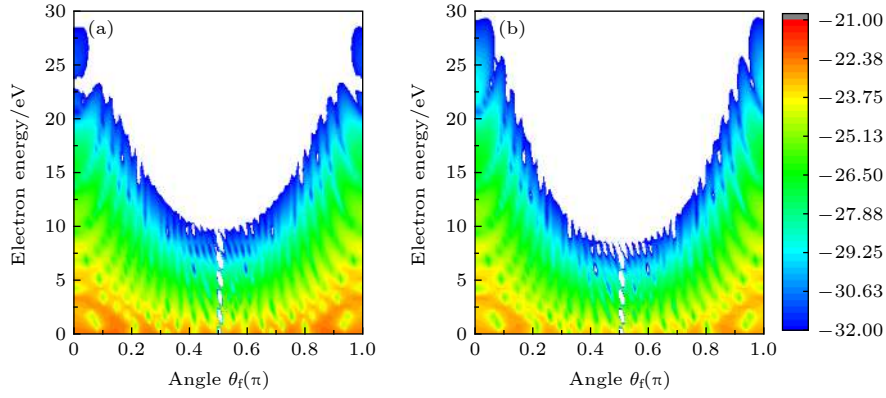


图 2 在单色线性偏振激光场下两种不同几何构型的 H_3^{2+} 分子角分辨直接 ATI 能谱 (a) 线形; (b) 三角形. 核间距为 $r_0 = 2.0$ a.u.
 Fig. 2. Angle-resolved direct ATI spectra of H_3^{2+} molecular ions at internuclear distance $r_0 = 2.0$ a.u. by monochromatic linearly polarized laser fields: (a) Linear; (b) triangular.

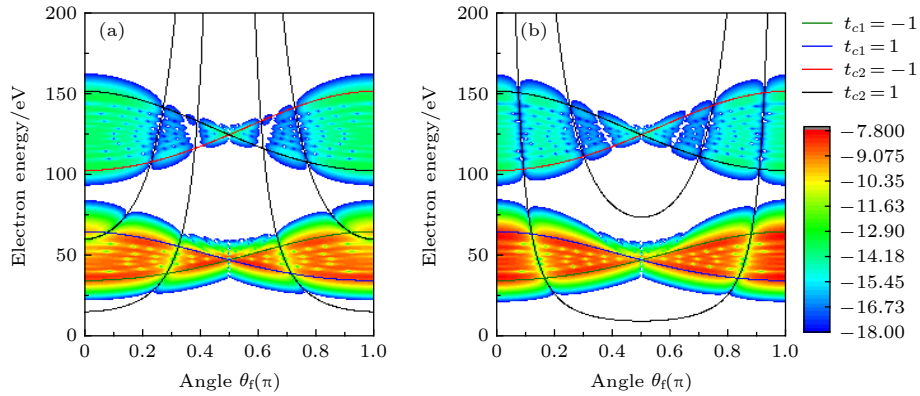


图 3 在双色线性偏振激光场下两种不同几何构型的 H_3^{2+} 分子角分辨直接 ATI 能谱 (a) 线形; (b) 三角形. 核间距为 $r_0 = 2.0$ a.u., $t_{c2} = \omega_1 t_0 (q_2 = 1, 2)$
 Fig. 3. Angle-resolved direct ATI spectra of H_3^{2+} molecular ions at internuclear distance $r_0 = 2.0$ a.u. by bichromatic linearly polarized laser fields: (a) Linear; (b) triangular. Here, $t_{c2} = \omega_1 t_0 (q_2 = 1, 2)$.

一个平台都有一定的宽度分布, 它是由贝塞尔函数 $J_{-q_1}(\zeta_1, \zeta_3)$ 决定的, 可以表示为

$$J_{-q_1}(\zeta_1, \zeta_3) = \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} dt \exp\{i[\zeta_1 \sin(\omega_1 t) + \zeta_3 \sin(2\omega_1 t) + q_1 \omega_1 t]\}, \quad (13)$$

其中, $T = 2\pi/\omega_1$. q_1 表示的是吸收的 IR 光子数. 另一方面, IR 激光场可以看作是经典激光场, $\mathbf{A}_{cl}(t) = \hat{\varepsilon}_1 E_1/\omega_1 \cos(\omega_1 t)$ 表示的是激光的矢势, E_1 表示的是 IR 激光场的振幅, $\hat{\varepsilon}_1$ 表示的是激光偏振的方向. 因此, 电子在 IR 激光场的经典行为可以表示为

$$\begin{aligned} S_{cl}(\mathbf{p}_f, t) &= \frac{1}{2} \int_0^t dt' [\mathbf{p} + \mathbf{A}_{cl}(t')]^2 \\ &= \left(\frac{1}{2} \mathbf{p}_f^2 + U_{p1}\right) t + 2\sqrt{\frac{u_{p1}}{\omega_1}} \sin(\omega_1 t) \mathbf{p}_f \\ &\quad \times \hat{\varepsilon}_1 + \frac{1}{2} u_{p1} \sin(2\omega_1 t), \end{aligned} \quad (14)$$

其中 $U_{p1} = E_1^2/(4\omega_1^2)$ 表示的是电子在 IR 激光场的有质动力势. (13) 式变为

$$J_{-q_1}(\zeta_1, \zeta_3) = \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} dt \exp\{if(t)\}, \quad (15)$$

其中 $f(t) = S_{cl}(\mathbf{p}_f, t) - (q_2 \omega_2 - I_p)t$. 利用鞍点近似, 鞍点 t_0 满足 $f'(t) = 0$, 由此得到能量守恒关系

$$\frac{1}{2} [\mathbf{p}_f + \mathbf{A}_{cl}(t_0)]^2 = q_2 \omega_2 - I_p, \quad (16)$$

其中, q_2 表示吸收的 XUV 光子数. 最终, 我们能够得到电离电子的最终能量为

$$\begin{aligned} E_f &= \left[\sqrt{2U_{p1} \cos^2(\omega_1 t_0) (\cos \theta_f)^2 + q_2 \omega_2 - I_p - 2U_{p1}} \right. \\ &\quad \left. - \sqrt{2U_{p1}} \cos(\omega_1 t_0) (\cos \theta_f) \right]^2. \end{aligned} \quad (17)$$

(17) 式给出了不同的 q_2 值的直接 ATI 能谱的开始曲线和截断曲线, 如图 3 中的实线所示. 另一方面, 对于 H_3^{2+} 分子两种不同构型下的 ATI 能谱中存在

不同的干涉条纹,如图 3 所示. 通过仔细分析 (8) 式中的直接 ATI 跃迁矩阵元,我们发现造成这些干涉条纹的主要原因是由于 $\Phi_1(\mathbf{P}_i)$ 项的作用.

接下来,我们重点关注由 (11) 式和 (12) 式表示的不同构型的分子波函数. 对于线形构型的 H_3^{2+} 而言,在 ATI 能谱中的干涉条纹满足相消干涉条件, $1 + 2 \cos(\mathbf{P}_z \cdot \mathbf{r}_0) = 0$, 也就是

$$\mathbf{P}_z \cdot \mathbf{r}_0 = \frac{2\pi}{3} + 2n\pi, \text{ 或 } \frac{4\pi}{3} + 2n\pi, \\ (n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots). \quad (18)$$

因此,电离电子的能量可以表示为

$$E = \frac{\mathbf{P}^2}{2} = \frac{\left(\frac{2\pi}{3} + 2n\pi\right)^2}{2\cos^2\theta r_0^2}, \text{ 或 } \frac{\left(\frac{4\pi}{3} + 2n\pi\right)^2}{2\cos^2\theta r_0^2}, \\ (n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots). \quad (19)$$

与线形分子类似,当分子构型为三角形构型时,干涉条纹曲线满足条件为

$$\frac{1}{e^2} + 2 \cos(\mathbf{P}_x \cdot \mathbf{r}_0) = 0, \quad (20)$$

电子的最终能量可以表示为

$$E = \frac{\mathbf{P}^2}{2} = \frac{\left[\arccos\left(-\frac{1}{2e^2}\right) + 2n\pi\right]^2}{2\sin^2\theta r_0^2} \\ \times (n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots). \quad (21)$$

我们发现相消公式 (17) 式 (如图 3(a) 中的黑色虚线所示) 和 (19) 式 (如图 3(b) 中的黑色虚线所示) 得到的相干条纹与数值计算的 ATI 谱中的干涉条纹相符合.

我们进一步计算在双色线性偏振激光场下两

种不同几何构型的 H_3^{2+} 分子在 XZ 平面的动量谱. 我们发现 XZ 平面的动量谱呈现两个半环状结构,而且关于 $\mathbf{P}_z = 0$ 对称. 其中,内部的半环状结构的电离几率要大于外部半环状结构的电离几率. 除此之外,对于不同的几何构型,动量谱呈现出不同的干涉条纹形状. 为了解释其中的原因,我们详细分析了不同的构型下的分子波函数.

对于线形分子而言, (18) 式满足干涉条件,通过进一步推导,我们能够给出电子动量在 Z 方向分量的干涉曲线公式 $\mathbf{P}_z = \frac{\pi}{3} + n\pi, \frac{2\pi}{3} + n\pi (n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots)$ (如图 4(a) 中的黑色虚线所示),它和干涉条纹符合得很好. 当 H_3^{2+} 分子为三角形构型时,通过推导 (20) 式可以得到 $\mathbf{P}_x = \frac{\arccos(-1/(2e^2))}{2}$ (如图 4(b) 中的黑色虚线所示),可见干涉曲线与动量谱中的干涉条纹也是符合的. 另外,当 $\mathbf{P}_x = 2.8$ a.u. 时,图 4(a) 和图 4(b) 中的动量谱也存在干涉条纹,这里的干涉条纹是来自原子本身,与我们本文中所讨论的分子结构无关. 因此,综上所述,我们能够给出在直接 ATI 动量谱中的干涉条纹的预测公式.

在前文中,我们已经推导出不同情况的干涉条纹公式,现在我们改变分子的核间距和激光场的强度来观察 ATI 谱的变化. 如图 5 所示,随着分子核间距的增大,干涉曲线向下移动,根据前文所得到的 (18) 式和 (20) 式很容易理解,当核间距 r_0 增大时,为了满足干涉条件, \mathbf{P}_z 的值将变得更小. 另外,根据 (19) 式和 (21) 式得到的干涉曲线公式去模拟不同核间距下 ATI 谱中的干涉条纹,发现它们符合得很好. 图 6 表示的是在不同的激光强度条件下

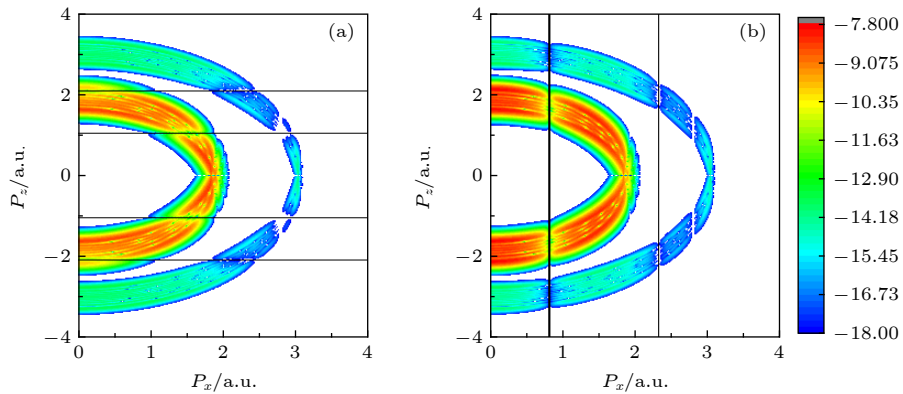


图 4 在双色线性偏振激光场下两种不同几何构型的 H_3^{2+} 分子在 XZ 平面的动量谱 (a) 线形; (b) 三角形. 核间距为 $r_0 = 2.0$ a.u.

Fig. 4. The direct ATI momentum spectra of H_3^{2+} molecular ions at internuclear distance $r_0 = 2.0$ a.u. by bichromatic linearly polarized laser fields: (a) Linear; (b) triangular.

H_3^+ 分子两种不同的分子构型的角分辨直接 ATI 能谱. 研究发现, 随着激光强度的不断提高, 相干条纹的位置保持不变, 但是出射电子的能量因为 XUV 激光场的作用而变得更大. 正如我们所知

道的, 在双色激光场的作用下, IR 激光能够拓宽直接 ATI 谱的宽度, 而 XUV 激光能够提高分子的电离几率^[24]. 通过以上的讨论, 我们发现根据满足干涉条件推导出的相消干涉公式能够描述 ATI 谱中

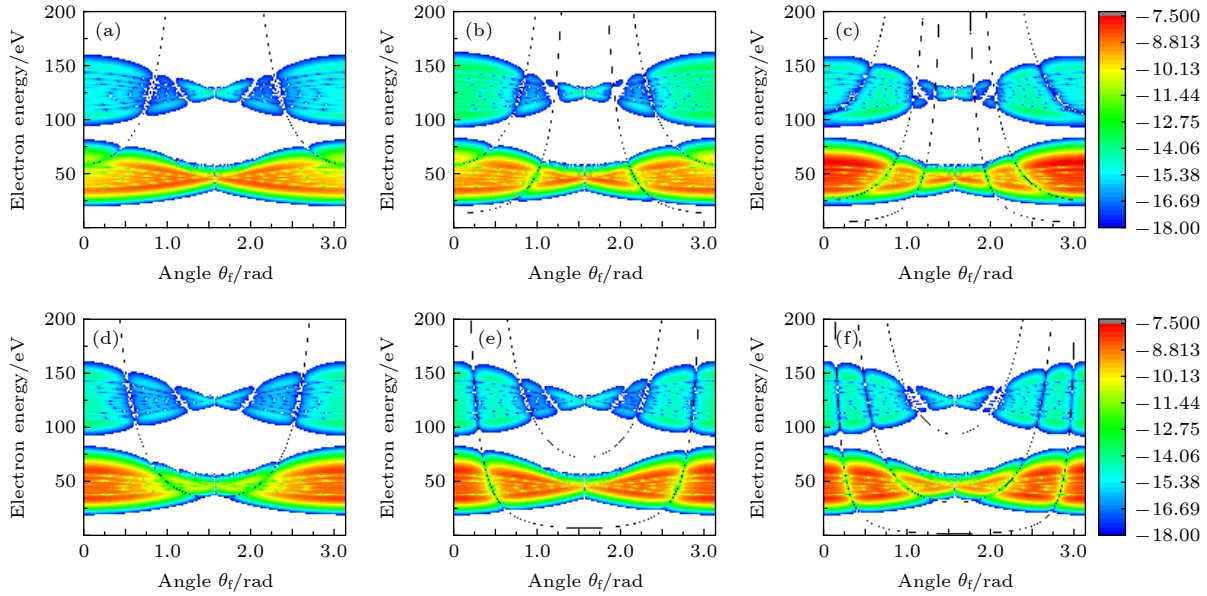


图 5 在双色线性偏振激光场下两种几何构型的 H_3^+ 分子不同的核间距条件下角分辨直接 ATI 能谱 (a)–(c) 线形; (b)–(f) 三角形. (a), (d) 核间距为 $r_0 = 1.0$ a.u., (b), (e) 核间距为 $r_0 = 2.0$ a.u., (c), (f) 核间距为 $r_0 = 3.0$ a.u.

Fig. 5. Angle-resolved direct ATI spectra for linear (a)–(c) and triangular (b)–(f) H_3^+ molecular ions by bichromatic linearly polarized laser field with $r_0 = 1.0$ a.u. (a), (d), $r_0 = 2.0$ a.u. (b), (e), $r_0 = 3.0$ a.u. (c), (f).

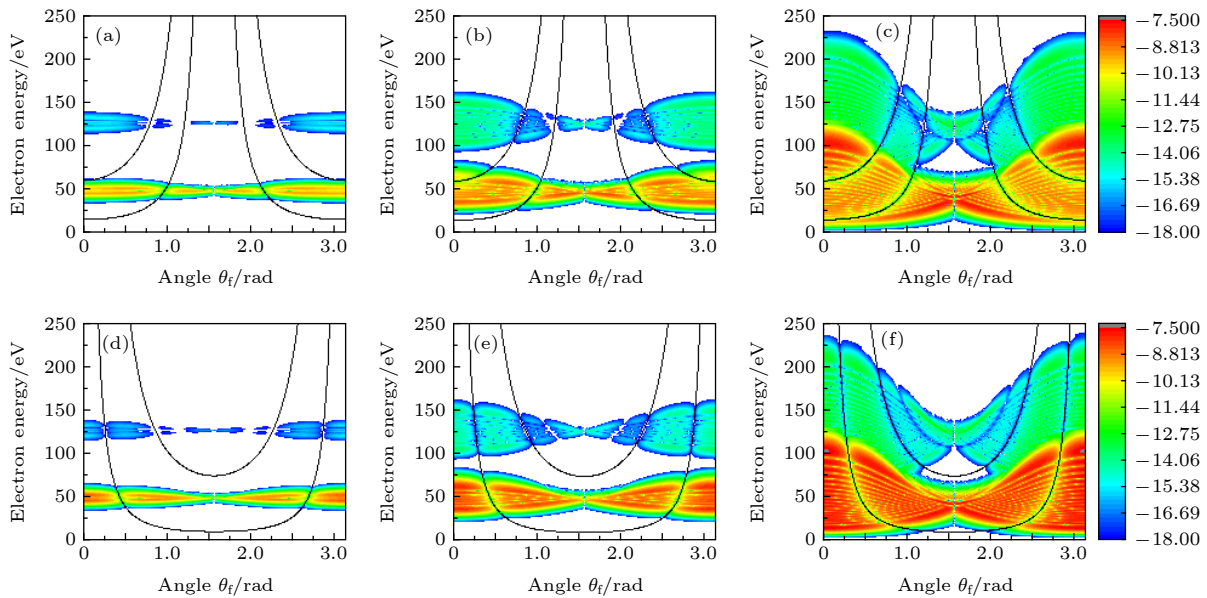


图 6 在双色线性偏振激光场下两种几何构型的 H_3^+ 分子不同激光强度条件下角分辨直接 ATI 能谱 (a)–(c) 线形; (b)–(f) 三角形. 核间距为 $r_0 = 2.0$ a.u., (a), (d) 激光强度为 $I_1 = I_2 = 1.0 \times 10^{12}$ W/cm², (b), (e) $I_1 = I_2 = 1.0 \times 10^{13}$ W/cm², (c), (f) $I_1 = I_2 = 1.0 \times 10^{14}$ W/cm²

Fig. 6. Angle-resolved direct ATI spectra for linear (a)–(c) and triangular (b)–(f) H_3^+ molecular ions with $r_0 = 2.0$ a.u. by bichromatic linearly polarized laser fields. The intensity of laser fields are $I_1 = I_2 = 1.0 \times 10^{12}$ W/cm² (a), (d), $I_1 = I_2 = 1.0 \times 10^{13}$ W/cm² (b), (e), $I_1 = I_2 = 1.0 \times 10^{14}$ W/cm² (c), (f), respectively.

的干涉条纹. 而且, 对于双色激光场下的角分辨直接 ATI 能谱, 它对分子的构型、分子之间的核间距以及激光场的强度都是很敏感的. 因此, 利用双色 ATI 能谱我们能够鉴别区分 H_3^+ 分子的两种不同几何构型.

4 结 论

本文中, 我们从理论上分别研究了 H_3^+ 分子两种不同几何构型在单色激光场和双色激光场下的角分辨直接 ATI 能谱, 针对不同的情况我们给出了详细的分析. 结果表明在双色线性偏振激光场下的直接 ATI 能谱相对于单色激光场下的直接 ATI 能谱对分子的几何结构更加敏感. 并且, 在双色激光场条件下, 直接 ATI 能谱针对不同的几何结构呈现出不同的干涉条纹. 我们利用鞍点近似给出了能谱中的每个平台的开始和截止曲线. 此外, 对于双色线偏振激光场, 我们推导出不同几何结构的角分辨直接 ATI 能谱的相干曲线公式, 并且相干公式携带了相关的分子结构的信息. 因此, 在双色激光场下的角分辨直接 ATI 能谱能够区分同一分子的不同几何结构, 这为将来成像大的复杂分子提供了一种新颖的工具.

参考文献

- [1] Agostini P, Fabre F, Mainfray G, Petite G, Rahman N K 1979 *Phys. Rev. Lett.* **42** 1127
- [2] Becker W, Liu X, Ho P J, Eberly J H 2012 *Rev. Mod. Phys.* **84** 1011
- [3] Schafer K J, Yang B, DiMauro L F, Kulander K C 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 1599
- [4] Paulus G G, Nicklich W, Xu H, Lambropoulos P, Walther H 1994 *Phys. Rev. Lett.* **72** 2851
- [5] Walker B, Sheehy B, Kulander K C, DiMauro L F 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 5031
- [6] Okunishi M, et al. 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 143001
- [7] Li X F, LHuillier A, Ferry M, Lompre L A, Mainfray G 1989 *Phys. Rev. A.* **39** 5751
- [8] LHuillier A, Lompre L A, Mainfray G, Manus C 1992 *Adv. At. Mol. Opt. Phys. Suppl.* **1** 139
- [9] Walker B, Sheehy B, DiMauro L F, Agostini P, Schafer K J, Kulander K C 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 1227
- [10] Becker A, Faisal F H 1999 *Phys. Rev. A.* **59** R1742
- [11] Meckel M, Comtois D, Zeidler D, et al. 2008 *Science* **320** 5882
- [12] Huismans Y, Rouzee A, Gijbbersen A, et al. 2011 *Science* **331** 6013
- [13] Lötstedt E, Midorikawa K 2014 *J. Phys. B.* **47** 204018
- [14] Yuan K, Lu H, Bandrauk A D 2017 *J. Phys. B.* **50** 124004
- [15] Zhou X, Shi S, Li F, Guo Y, Yang Y, Meng Q, Chen J, Liu X and Wang B 2019 *arXiv*, 1912.08499
- [16] Guo D S, Aberg T 1988 *J. Phys. A: Math. Gen.* **21** 4577
- [17] Guo D S, Aberg T, and Crasemann B 1989 *Phys. Rev. A.* **40** 4997
- [18] Gao L, Li X, Fu P, Freeman R R, Guo D S 2000 *Phys. Rev. A.* **61** 063407
- [19] Wang B, Gao L, Li X, Guo D S, Fu P 2007 *Phys. Rev. A.* **75** 063419
- [20] Kang H, et al. 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 203001
- [21] Wang B, Guo Y, Chen J, Yan Z C, Fu P 2012 *Phys. Rev. A.* **85** 023402
- [22] Fu P, Wang B, Li X, Gao L 2001 *Phys. Rev. A.* **64** 063401
- [23] Becker W, Grasbon F, Kopold R, Milosevic D B, Paulus G G, Walther H 2002 *Adv. Atom. Mol. Opt. Phys.* **48** 35
- [24] Shi S, Jin F, Wang B 2019 *Chin. Phys. B* **28** 023202
- [25] Guo D-S, G W F Drake 1992 *J. Phys. A: Math. Gen.* **25** 5377
- [26] Zhang K, Chen J, Hao X L, Fu P, Yan Z C, Wang B 2013 *Phys. Rev. A.* **88** 043435

Identifying two different configurations of the H_3^+ by the direct above-threshold ionization spectrum in two-color laser field*

Zhou Xu-Cong¹⁾²⁾ Shi Shang²⁾³⁾ Li Fei²⁾³⁾

Meng Qing-Tian¹⁾ Wang Bing-Bing^{2)3)†}

1) (*School of Physics and Electronics, Shandong Normal University, Jinan 250358, China*)

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

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

(Received 3 January 2020; revised manuscript received 11 February 2020)

Abstract

Since imaging the geometrical structure of molecules can help to understand the microscopic world intuitively, and thereby to promote the development of physics, chemistry, material science and biological science, it has long been an important subject for scientists to probe the molecular internal structure. Generally, however, because of the relative complexity of the molecular internal structure, it is difficult to obtain the relevant information by ordinary experimental means. With the development of laser technology, especially the advent of intense ultrafast laser field, ultrafast laser pulse provides an unprecedented detection tool to investigate the related ultrafast dynamics. In recent years, strong field high-order nonlinear ultrafast processes, such as above-threshold ionization(ATI), high-order above-threshold ionization(HATI), high harmonic generation(HHG), and non-sequential double ionization (NSDI), were produced by using femtosecond ultrafast laser to excite molecules. Since the molecules excited in these processes emit the photon and electron signals pertinent to their internal structures, it is natural that one can obtain the imaging of molecular structure by extracting the signals. Recently, we have demonstrated that the structural information of SF_6 molecules can be obtained by the interference fringes on the ATI spectrum using the infrared and ultraviolet bichromatic laser fields[*arXiv*, 1912.08499 (2019)]. In this paper, we use frequency-domain method, which is based on non-perturbed quantum electrodynamics, to investigate the direct above-threshold ionization (ATI) process of triatomic molecular ion H_3^+ with two different geometrical structures by monochromatic and bichromatic laser fields, and given the detailed analysis of the spectra for each case. Compared with the monochromatic laser field, it is found that the ATI spectrum by the bichromatic laser field is more sensitive to the geometrical configuration of molecular ion, thereby it can be applied to identify the different geometrical structure of molecules. In the case of bichromatic laser fields, the direct ATI spectrum show different interference fringes with different molecular configurations. We give the beginning and cutoff curves of each platform by employing the saddle-point approximation. Furthermore, we derive the destructive curves formulas for different molecular configurations in angle-resolved direct ATI energy spectra and momentum spectra, respectively, which carries the information about the molecular structure. In addition, it is found that the shape of the spectra can be modified by changing the molecular internuclear distance or varying the laser intensity. Thereby, it can be inferred that the ATI spectrum induced by bichromatic laser field has the ability to identify different configurations of the same molecules, which is instructive to image geometrical structure of complex molecules.

Keywords: H_3^+ molecular ion, direct above threshold ionization (ATI), different molecular configurations

PACS: 32.80.Fb, 33.20.-t

DOI: 10.7498/aps.69.20200013

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11474348, 11674198, 11425414, 11774411).

† Corresponding author. E-mail: wbb@aphy.iphy.ac.cn