

不同核轴取向的 O<sub>2</sub> 的高次谐波

袁仲 郭迎春 王兵兵

High-order harmonic generation of O<sub>2</sub> molecules with different nuclear axis orientations

Yuan Zhong Guo Ying-Chun Wang Bing-Bing

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 114205 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.114205

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.114205>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I11>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

掺铒光纤中方波信号高次谐波的快慢光特性

Superluminal and slow light of high-order harmonic for rectangle signal in erbium-doped fiber

物理学报.2015, 64(24): 244205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.244205>

离轴涡旋光束弱走离条件下的倍频效应

Frequency doubling effect of off-axial vortex beam in the case of weak walk-off

物理学报.2015, 64(24): 244204 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.244204>

高次谐波的 Guo-Åberg-Crasemann 理论及其截断定律

Guo-Åberg-Crasemann theory for high harmonic generation and its cutoff law

物理学报.2015, 64(12): 124207 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.124207>

KTP 倍频器件温度适应性扩展研究

Study on temperature adaptability extension of KTP frequency-doubling device

物理学报.2015, 64(9): 094205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.094205>

空气中等离子光栅诱导探测光丝三次谐波辐射放大的实验研究

Efficient generation of third harmonic radiation of air filament induced by plasma grating

物理学报.2014, 63(18): 184206 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.184206>

不同核轴取向的O<sub>2</sub>的高次谐波\*袁仲<sup>1)</sup> 郭迎春<sup>1)†</sup> 王兵兵<sup>2)</sup>

1)(华东师范大学物理与材料科学学院, 上海 200241)

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

(2016年2月6日收到; 2016年3月21日收到修改稿)

分子的高次谐波是强场超快物理的重要研究课题. 采用建立在形式散射理论基础上的频域方法计算了O<sub>2</sub>在线偏振激光场下的高次谐波, 探讨了核轴被准直在与激光传输方向垂直的平面内时, 高次谐波随核轴与光电场偏振方向所成夹角 $\theta_0$ 的依赖关系. 结果表明: 各次谐波都是在 $\theta_0$ 约为45°时强度最大, 并有较宽的峰值宽度; 当偏离此角度, 高次谐波的强度变小; 到达平行或垂直取向时, 降到最低. 分析表明, 这是由于高次谐波的强度取决于分子基态的电子在动量空间中的电场方向的布居. 针对核轴被准直在激光传输方向与电场偏振方向所确定的平面内的情况, 计算了高次谐波随 $\theta_0$ 的依赖关系, 结果与前一种情况基本相同. 分析发现, 当核轴被准直固定后, 分子绕核轴旋转的角度 $\varphi$ 没有固定, 所以最后的高次谐波强度需要对不同的 $\varphi$ 时的高次谐波的贡献求和平均. 平均后相当于波函数相对于核轴旋转对称, 从而导致O<sub>2</sub>的高次谐波仅与 $\theta_0$ 有关, 而与核轴被准直在哪个面上无关.

关键词: 分子高次谐波, 频域散射理论, 核轴取向

PACS: 42.65.Ky, 03.65.Nk, 06.60.Vz

DOI: 10.7498/aps.65.114205

## 1 引言

处于强激光场中的原子分子会产生频率为入射激光场频率整数倍的高次谐波, 最初的谐波强度随谐波阶次的增加而迅速下降, 接着出现随阶次增加强度不变的平台区域, 最后在某一阶次处急剧下降为零. 高次谐波产生的高能量光子使得它成为潜在的深紫外光源<sup>[1,2]</sup>. 随着强场技术的发展, 高次谐波产生的阿秒脉冲成为探测原子分子反应过程<sup>[3-6]</sup>的有效工具, 它也是研究原子分子结构的有效手段<sup>[7-10]</sup>. 所有这一切都要求深刻理解分子结构和高次谐波之间的关系.

对于大气含量最多的分子之一的O<sub>2</sub>, 人们从理论和实验上都做了大量的工作. 如, Itatani等<sup>[11]</sup>从实验上给出了O<sub>2</sub>的最强高次谐波发生在核轴与光电场方向所成的夹角 $\theta_0$ 为45°, 并且运用

最高占据轨道的特点, 形象地分析了 $\theta_0$ 为0°时高次谐波很弱的原因是诱导偶极矩振荡的方向在垂直于光电场方向. Zhou等<sup>[12]</sup>采用Lewenstein的方法以及Madsen和Madsen<sup>[13]</sup>采用的基于三步模型的量子散射理论方法对O<sub>2</sub>的高次谐波的准直依赖进行了理论计算, 得到和Itatani等<sup>[11]</sup>的实验基本一致的结果. 但是, 实验上还存在着一些争议, 如Mairesse等<sup>[14]</sup>的实验表明, O<sub>2</sub>的高次谐波谱对 $\theta_0$ 的变化不敏感, 并且在 $\theta_0$ 为0°时测得较宽的峰值分布. 这些争议亟需进一步的理论和实验研究.

理论上大多数分析都建立在分子被三维准直的基础上, 但实际实验中分子的准直仅仅确定核轴的取向 $\theta_0$ , 而垂直于核轴的自由度是没有被准直确定的(该自由度取决于图2中的 $\varphi_0$ ). 由于O<sub>2</sub>分子的最高占据轨道并不是绕核轴旋转对称的, 因此对于垂直于核轴的自由度对高次谐波的影响需要深入考察和研究. 目前对这方面的研究还很少报道.

\* 国家自然科学基金(批准号: 61275128)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: [yeguo@phy.ecnu.edu.cn](mailto:yeguo@phy.ecnu.edu.cn)

相对于原子, 分子多了核间距和核轴取向两个自由度, 变得更为复杂. 理想的理论处理就是数值求解强场下的薛定谔方程, 但是由于多电子效应以及分子的多个自由度使得这种方法局限在原子<sup>[15]</sup>或简单的分子 $H_2$ 上<sup>[16,17]</sup>. 对于其他较复杂的分子如 $O_2$ ,  $N_2$ ,  $H_2O$ ,  $CO_2$ 等, 需要采用近似模型处理, 如Lewenstein理论<sup>[12,18]</sup>, 散射理论等<sup>[19-21]</sup>.

本文利用建立在形式散射理论基础上的频域方法<sup>[19]</sup>研究 $O_2$ 的高次谐波. 我们对两种情况进行了探讨, 一是实验<sup>[11]</sup>所采用的核轴被准直在垂直于激光传输方向的偏振面内, 二是核轴被准直在激光传输方向与光电场方向所形成的平面内, 计算了高次谐波对准直角度的依赖关系.

本文安排如下: 第2部分简要介绍原理, 将计算原子的频域理论推广到分子上; 第3部分对 $O_2$ 的高次谐波进行了计算, 给出结果和分析; 第4部分进行了总结.

## 2 原理

### 2.1 频域散射理论

利用基于形式散射理论的频域非微扰的量子电动力学方法, Gao等<sup>[19]</sup>成功地对原子的高次谐波进行了计算. 这里我们将把这种方法推广到分子上. 由于推导过程与文献<sup>[19]</sup>中针对原子的推导过程相似, 所以这里只简述理论方法. 对于分子、激光场和高次谐波所形成系统, 哈密顿量为 (本文通篇采用原子单位, 特殊说明除外):

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

$$H_0 = \frac{\nabla^2}{2} + \omega Na + \omega' Na', \quad (2)$$

$$V_T = V + V', V = -A(r) \cdot (-i\nabla) + \frac{A^2(r)}{2}, \\ V' = -A'(r) \cdot (-i\nabla) + A(r)A'(r), \quad (3)$$

其中,  $H_0$ 是哈密顿量中的非相互作用项;  $U(r)$ 是分子束缚势;  $V_T$ 是电子和光场的相互作用项;  $Na(Na')$ 是激光场(谐波场)的光子数算符;  $A(r)(A'(r))$ 是激光场(谐波场)的矢势;  $\omega$ 和 $\omega'$ 是激光场(谐波场)的角频率.

基于形式散射理论, 并且假定束缚势能 $U(r)$ 对自由态的电子没有作用, 则从初态到末态的跃迁矩阵元为

$$T_{fi} = i\pi \sum_{P,n,n'} \langle \psi_f | V_T | \psi_{P,n,n'} \rangle \langle \psi_{P,n,n'} | V_T | \psi_i \rangle \\ \times \delta(E_i - E_{P,n,n'}), \quad (4)$$

上式可理解为由于电子和激光场的相互作用, 从基态跃迁到Volkov态, 然后, 由于电子谐波场与电子的相互作用, 再回到基态. 其中系统的初态 $|\psi_i\rangle = |\phi_g(r)\rangle \otimes |n\rangle \otimes |0'\rangle$ 和末态 $|\psi_f\rangle = |\phi_g(r)\rangle \otimes |m\rangle \otimes |1'\rangle$ 是 $H_0 + U(r)$ 的本征态, 本征值分别为 $E_i = -E_b + (n + 0.5)\omega + 0.5\omega'$ 和 $E_f = -E_b + (m + 0.5)\omega + 1.5\omega'$ .  $|\phi_g(r)\rangle$ 是分子基态的波函数;  $E_b$ 是基态的电离势,  $|n\rangle$ 和 $|m\rangle$ 分别是光子数为 $n$ 和 $m$ 的激光场的Fock态;  $|0'\rangle$ 和 $|1'\rangle$ 是谐波场对应的光子数为0和1的Fock态;  $|\psi_{P,n,n'}\rangle$ 是 $H_0 + V_T$ 的本征态, 本征值为

$$E_{P,n,n'} = \frac{P^2}{2} + \left(n + \frac{1}{2} + u_p\right)\omega + \left(n' + \frac{1}{2}\right)\omega',$$

$u_p$ 是以激光场光子能量为单位的有质动力势. 此本征函数可以近似地取为量化的Volkov态 $|\psi_{P,n}\rangle$ Fock态 $|n'\rangle$ 的乘积, 即

$$|\psi_{P,n,n'}\rangle = \psi_{P,n} |n'\rangle \\ = V_\gamma^{-\frac{1}{2}} \sum_{j=-n}^{\infty} \exp\{i[\mathbf{P} + (u_p - j)\mathbf{k}] \cdot \mathbf{r}\} \mathfrak{S}_j(\zeta, \eta, \phi_\xi)^* \\ \times \exp(-ij\phi_\xi) |n + j\rangle |n'\rangle. \quad (5)$$

对于线偏振激光场, 有:

$$\zeta = \frac{E_0}{\omega} |\mathbf{P} \cdot \boldsymbol{\varepsilon}|, \quad \eta = \frac{1}{2} u_p,$$

$\phi_\xi = 0$ , 其中 $\boldsymbol{\varepsilon}$ 是入射激光场的电场偏振方向,  $V_\gamma$ 是光场模式的归一化体积,  $E_0$ 是入射激光场电场振幅,

$$\mathfrak{S}_j(\zeta, \eta, \phi_\xi) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} J_{-j-2m}(\zeta) J_m(\eta) (-1)^j \\ \times \exp(2im\phi_\xi)$$

是推广的贝塞尔函数.

我们计算与入射激光场传输方向相同的谐波. 将方程(5)代入方程(4), 在动量空间对 $\mathbf{P}$ 进行积分, 得到第 $q$ 阶谐波的跃迁矩阵元为

$$T_{fi}^q = \sum_j^l i\pi g' \boldsymbol{\varepsilon}^* \omega^2 m (u_p - j') \left(j' - u_p + \frac{E_b}{\omega}\right)^{\frac{1}{2}} \\ \times \iint \sin(\theta) d\theta d\varphi |\varphi_i(P_j')| 2 \exp(iq\phi_\xi) \\ \times \left\{ \left(j' - u_p + \frac{E_b}{\omega}\right) \right\}$$

$$\begin{aligned} & \times \frac{1}{2} \mathbf{e}_p \left( -\mathfrak{S}'_j \mathfrak{S}^*_{j'-q} + \mathfrak{S}'^*_j \mathfrak{S}_{j'+q} \right) \\ & + (2u_p)^{\frac{1}{2}} \varepsilon \left( -\mathfrak{S}'_j \mathfrak{S}^*_{j'-q+1} + \mathfrak{S}'^*_j \mathfrak{S}_{j'+q-1} \right) \\ & + (2u_p)^{\frac{1}{2}} \varepsilon^* \left( -\mathfrak{S}'_j \mathfrak{S}^*_{j'-q-1} + \mathfrak{S}'^*_j \mathfrak{S}_{j'+q+1} \right) \Big\}, \end{aligned} \quad (6)$$

谐波的微分辐射率为

$$\frac{dW}{d\Omega} = \frac{V'_\gamma}{(2\pi)^2} \omega'^2 |T_{fi}|^2, \quad (7)$$

其中,  $W$  为谐波场的辐射功率,  $\Omega$  为立体角. 由方程(6)可见, 计算分子的高次谐波与计算原子的高次谐波在形式上是相同的, 不同在于式子中的波函数为动量空间的分子波函数.

## 2.2 O<sub>2</sub> 的波函数

为了计算 O<sub>2</sub> 的高次谐波, 需要给出方程(6)所需要的 O<sub>2</sub> 的基态的波函数. 我们采用 Molpro 量化

计算软件和高斯基组计算了 O<sub>2</sub> 的基态的波函数. 用单电子近似将最高占据轨道作为基态的波函数. 其在空间坐标系中表示如下:

$$\phi_g(x', y', z') = \sum_{i,k=1,2} c_i x' \exp(-\alpha_i r_k'^2), \quad (8)$$

其中,  $(x', y', z')$  是电子在分子坐标系下的坐标;  $r_k' = x'^2 + y'^2 + (z' - z'_k)^2$  是电子分别到两个核的距离, 其中  $k = 1, 2$ ;  $z'_1 = -R/2, z'_2 = R/2$  是两个核的坐标;  $c_i, \alpha_i$  是常数. 经过傅里叶变换, 得到动量空间的波函数为

$$\begin{aligned} & \phi_g(P'_x, P'_y, P'_z) \\ & = \sum_i c'_i P'_x \exp\left(-\frac{P^2}{4\alpha_i^2}\right) \sin\left(P'_z \cdot \frac{R}{2}\right). \end{aligned} \quad (9)$$

图1给出了分子坐标系中的坐标空间和动量空间的电子布居  $|\phi_g|^2$ .

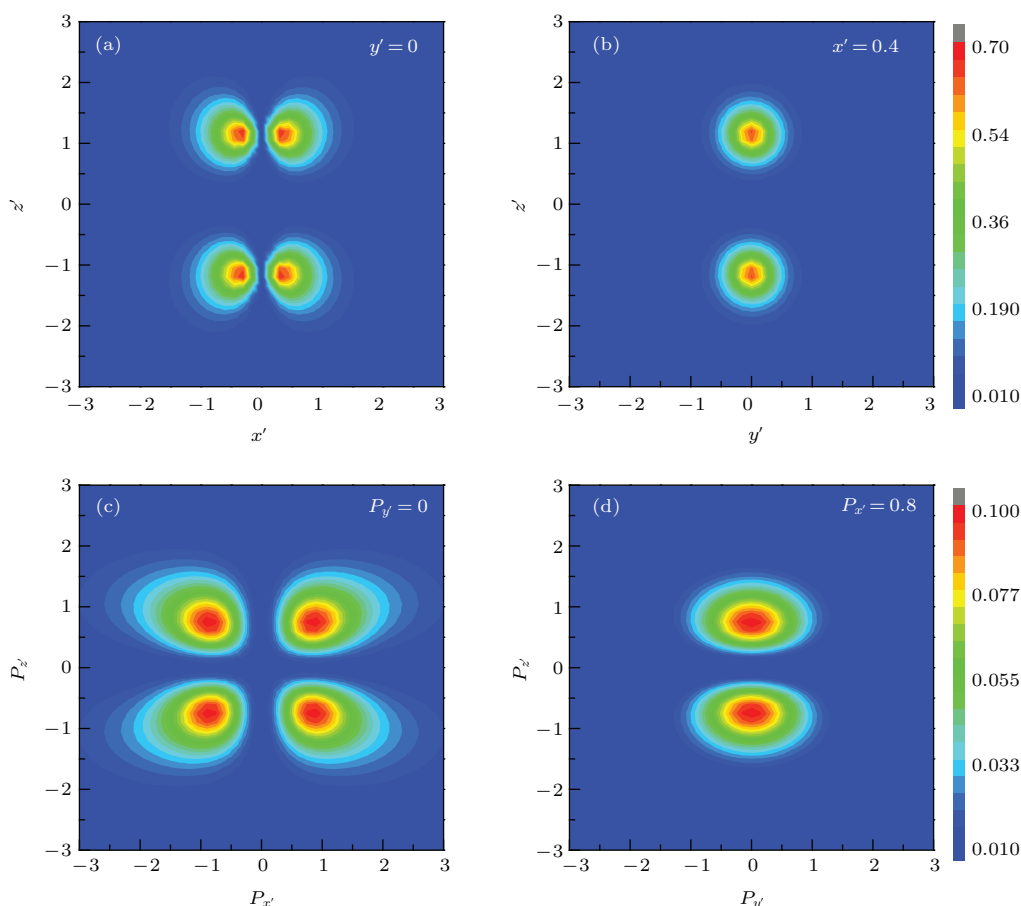


图1 (网刊彩色) O<sub>2</sub> 分子最高占据轨道在分子坐标系下电子的布居 (a) 和 (b) 对应坐标空间中的  $y' = 0$  面和  $x' = 0.4$  面的情况; (c) 和 (d) 对应动量空间中的  $P_{y'} = 0$  面和  $P_{x'} = 0.8$  面的情况

Fig. 1. (color online) Electron distribution of highest occupied molecular orbital (HOMO) of O<sub>2</sub> in molecular reference frame: (a) and (b) are those in the planes  $y' = 0$  and  $x' = 0.4$  of coordinate space; (c) and (d) are those in the planes  $P_{y'} = 0$  and  $P_{x'} = 0.8$  of momentum space.

### 3 O<sub>2</sub>的高次谐波的计算

我们计算了两种情况下的O<sub>2</sub>的高次谐波. 第一种情况是核轴被准直在垂直于激光传输方向的偏振面内, 如图2(a)所示.  $xyz$ 代表实验室坐标系. 光电场的偏振方向为 $x$ 方向, 激光场与谐波场都沿着 $z$ 方向传输;  $x'y'z'$ 代表分子坐标系, 核轴( $z'$ 轴)在偏振面 $xyz$ 面内, 与光电场的方向之间的夹角为 $\theta$ ,  $x'$ 与 $z$ 轴的夹角为 $\varphi_0$ . 第二种情况是核轴被准直在光电场方向与激光传输方向所形成的平面内, 即核轴在 $xz$ 平面内, 如图2(b)所示. 核轴 $z'$ 轴与电场方向 $x$ 轴的夹角还用 $\theta_0$ 来表示,  $x'$ 与 $y$ 轴的夹角为 $\varphi_0$ .

考虑到分子被准直仅能保证确定 $z'$ 的方向, 不能确定 $x'$ 的方向,  $\varphi_0$ 的取值是随机的, 所以计算高次谐波时, 我们对不同的 $\varphi_0$ 的情况的高次谐波贡献进行求和后取平均. 计算中, 所采用的激光场的强度为 $5.18 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , 波长是800 nm, O<sub>2</sub>的

电离能为12.08 eV. 计算中需要将分子坐标系中的波函数转换到实验室坐标系中, 两个坐标系的变换关系如图2所示.

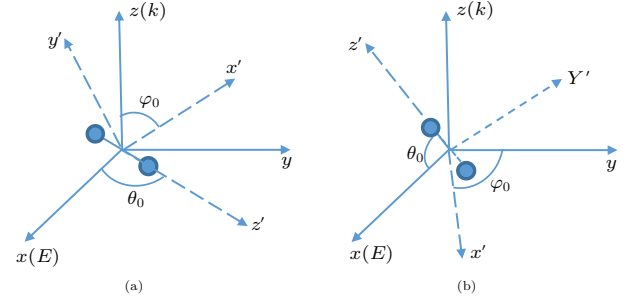


图2 分子核轴在激光场中的不同取向 (a) 分子核轴 $z'$ 在垂直于激光场传输方向的偏振面 $xy$ 面内; (b) 分子核轴 $z'$ 在激光场的传输方向与激光的光电场偏振方向所形成的 $xz$ 面内

Fig. 2. Different orientations of molecular nuclear axis  $z'$  in laser field: (a)  $z'$  is in the plane ( $xy$  plane) perpendicular to laser propagation; (b)  $z'$  is in the plane ( $xz$  plane) made by laser propagation direction and laser electric field.

对于图2(a)所示的情况, 有

$$\begin{pmatrix} e_x \\ e_y \\ e_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\sin(\theta_0) \sin(\varphi_0) & \cos(\theta_0) \sin(\varphi_0) & \cos(\varphi_0) \\ \sin(\theta_0) \cos(\varphi_0) & -\cos(\theta_0) \cos(\varphi_0) & \sin(\varphi_0) \\ \cos(\theta_0) & \sin(\theta_0) & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e_{x'} \\ e_{y'} \\ e_{z'} \end{pmatrix}; \quad (10)$$

对于图2(b)所示的情况, 有

$$\begin{pmatrix} e_x \\ e_y \\ e_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sin(\theta_0) \sin(\varphi_0) & \cos(\varphi_0) - \cos(\theta_0) \sin(\varphi_0) \\ -\sin(\theta_0) \cos(\varphi_0) & \sin(\varphi_0) \cos(\theta_0) \cos(\varphi_0) \\ \cos(\theta_0) & 0 & \sin(\theta_0) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e_{x'} \\ e_{y'} \\ e_{z'} \end{pmatrix}. \quad (11)$$

其中,  $e_x, e_y, e_z$  ( $e_{x'}, e_{y'}, e_{z'}$ )是实验室坐标系(分子坐标系)的单位坐标向量.

#### 3.1 核轴被准直到垂直于激光传输方向的偏振面内的高次谐波

对于图2(a)所示的情况, 得到的高次谐波谱如图3(a)所示, 横轴为核轴和光电场所成的角度 $\theta_0$ , 纵轴为高次谐波的阶次, 颜色代表谐波强度(计算中取了对数). 可见当核轴与光电场成角度 $\theta_0$ 为 $40^\circ$ — $60^\circ$ 的范围时, 各阶次谐波最强, 有很大的峰值宽度; 当角度越偏离此角度范围, 高次谐波的强度越弱; 当 $\theta_0$ 为 $0^\circ$ 或 $90^\circ$ , 即核轴与光电场平行或垂直时, 各阶谐波的强度降到最低. 这与文

献[12, 13]的结果是一致的.

为解释O<sub>2</sub>高次谐波对准直取向有上面的依赖关系, 我们给出了不同的 $\varphi_0$ 时的高次谐波谱, 如图4所示. 从图4中可见, 不同的 $\varphi_0$ 高次谐波对 $\theta_0$ 的依赖是不同的, 对高次谐波的强度的贡献是 $\varphi_0$ 为 $90^\circ$ 时的贡献最大. 下面将对图4进行分析解释.

由(6)式可见, 式中的广义贝塞尔函数的自变量包含 $\mathbf{P} \cdot \mathbf{E} = PE \cos \theta_0$ , 当 $\theta_0$ 是 $90^\circ$ 时, 广义贝塞尔函数的取值最小为0,  $\theta_0$ 越接近 $90^\circ$ , 广义贝塞尔函数的自变量越小, 其值越接近0. 实际计算的 $P$ 和 $E$ 的取值范围决定了贝塞尔函数仅在当 $\theta_0$ 是0度附近的一个有限的范围, 广义贝塞尔函数明显不为0. 从而高次谐波的强度取决于动量处于电场

方向(对应 $\theta_0$ 等于0)为中心的局域立体角内的电子布居.

图4(c)对应 $\varphi_0$ 为 $90^\circ$ ,由图2(a)可见, $x'z'$ 面就是 $xy$ 面,光电场方向在 $x'z'$ 面内,也在 $P_x'P_z'$ 面内. $\theta_0$ 为 $x'z'$ 面内光电场和 $z'$ 轴的夹角,也是 $P_x'P_z'$ 面内与 $P_z'$ 轴的夹角.由图1(c)可见,电子布居在 $\theta_0$ 为 $45^\circ$ 附近时最大,所以导致 $\varphi_0$ 为 $90^\circ$ 时的高次谐波在45度左右强度最大.当 $\theta_0$ 偏离 $45^\circ$ 时,电子布居变小,导致相应角度的高次谐波的强度变小,如图4(c)所示.

图4(a)对应 $\varphi_0$ 为 $0^\circ$ , $y'z'$ 面是 $xy$ 面,光电场方向在 $y'z'$ 面内, $\theta_0$ 为光电场和 $z'$ 轴的夹角,也是

与 $P_z'$ 轴的夹角.而从图1(d)可见,此时在 $\theta_0$ 为 $0^\circ$ 方向的局域立体角内电子布居不为0,所以导致 $\varphi_0$ 为 $0^\circ$ 时的高次谐波在 $\theta_0$ 为 $0^\circ$ 附近有较弱的高次谐波,而 $\theta_0$ 越大,特别是达到 $90^\circ$ 时,电场方向为中心的局域立体角内几乎没有电子布居,所以 $\theta_0$ 越大,高次谐波强度越弱, $\theta_0$ 为 $90^\circ$ 时,谐波强度为0,如图4(a)所示.

图3(a)是这些不同的 $\varphi_0$ 谱求和之后取平均值的的结果.由图4还可以看出,对于任意给定的 $\theta_0$ , $\varphi_0$ 为 $90^\circ$ 时对高次谐波的贡献最大,起决定作用,导致了最后的高次谐波谱图3(a)的最大谐波强度发生在 $\theta_0$ 为 $45^\circ$ 附近.

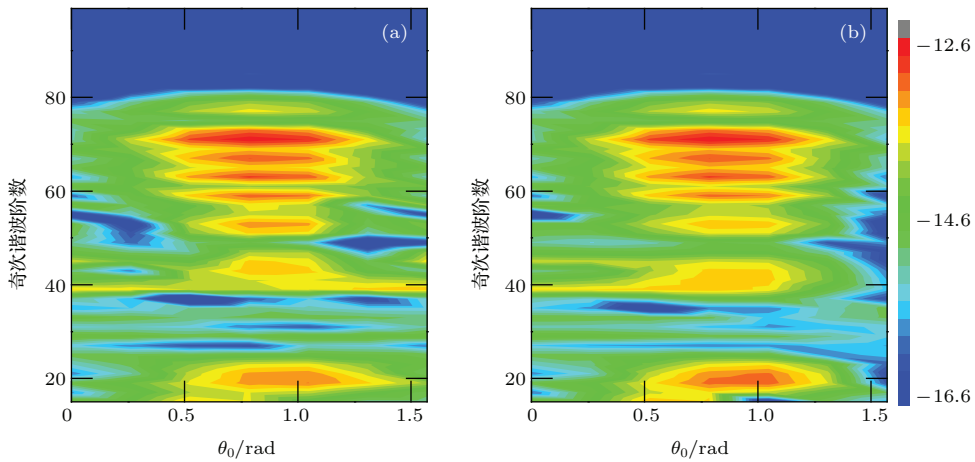


图3 (网刊彩色)  $O_2$ 的高次谐波谱随 $\theta_0$ 的分布 (a)对应核轴在垂直于光传输方向的 $xy$ 面内的情况;(b)核轴在光电场与光传输方向所成的 $xz$ 面内的情况

Fig. 3. (color online)  $\theta_0$  dependence of high order harmonic generation (HHG) of  $O_2$ : (a) Is that when nuclear axis is in the  $xy$  plane perpendicular to the laser propagation; (b) is that when nuclear axis is in the  $xz$  plane made by the laser propagation direction and laser electric field.

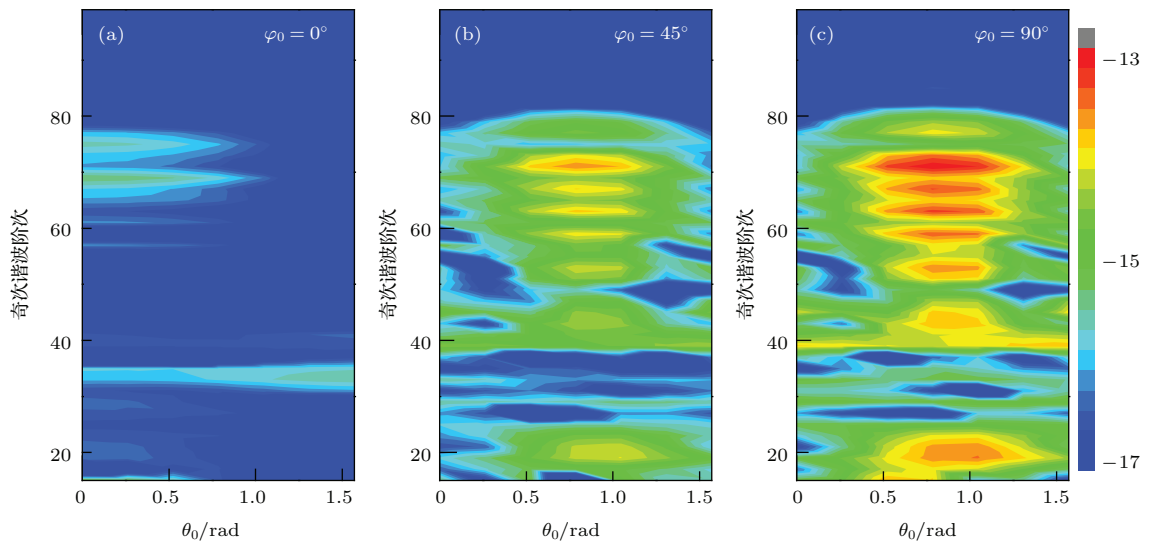


图4 (网刊彩色) 当核轴在 $xy$ 面内 $\varphi_0$ 固定为不同值情况下 $O_2$ 的高次谐波谱随 $\theta_0$ 角的分布

Fig. 4. (color online)  $\theta_0$  dependence of HHG of  $O_2$  for different fixed  $\varphi_0$  when nuclear axis is in  $xy$  plane.

### 3.2 核轴被准直到光电场方向和光传输方向所形成的面内的高次谐波

对于图 2 (b) 的情况,  $O_2$  的高次谐波如图 3 (b) 所示, 可见, 核轴在  $xy$  平面与核轴在  $xz$  面两种情况下的结果基本相同.

图 5 给出了图 2 (b) 情况下不同的  $\varphi_0$  的高次谐波谱. 在  $\varphi_0$  为  $90^\circ$  时, 光电场方向在  $x'z'$  面内,  $\theta_0$  为在  $x'z'$  面内光电场和  $z'$  轴的夹角, 即  $P_{x'}P_{z'}$  内与  $P'_z$  轴的夹角. 这和图 2 (a) 中  $\varphi_0$  为  $90^\circ$  时的情况是相同的, 所以  $\varphi_0$  为  $90^\circ$  时的高次谐波谱在  $\theta_0$  约为  $45^\circ$  时最大, 如图 5 (c) 所示, 与图 4 (c) 是相同的. 由图 5 还可见, 核轴在  $xz$  面内时的高次谐波 (如图 3 (b) 所示) 主要取决于  $\varphi_0$  为  $90^\circ$  时的贡献,

图 4 告诉我们, 核轴在  $xy$  面内时的高次谐波 (如图 3 (a) 所示) 也主要取决于  $\varphi_0$  为  $90^\circ$  时的贡献, 当对不同的  $\varphi_0$  的贡献求和取平均后, 得到了两种情况下的结果基本相同, 如图 3 (a) 和图 3 (b) 所示.

另外, 图 5 (a) 与图 4 (a) 分别与图 5 (b) 与图 4 (b) 相比, 可见除  $\varphi_0$  为  $90^\circ$  外, 不同  $\varphi_0$  的贡献在两种情况下稍有不同, 但求和取平均后能够相同. 可以这样来理解, 对  $\varphi_0$  求和取平均等效于波函数相对于核轴旋转对称, 这和双原子分子属于  $D_{\infty h}$  群相一致. 从经典的角度而言, 电子布居应该绕核轴旋转对称, 外电场引起的偶极矩的变化仅与外电场与核轴的夹角有关, 与核轴被准直在哪个面上没有关系.

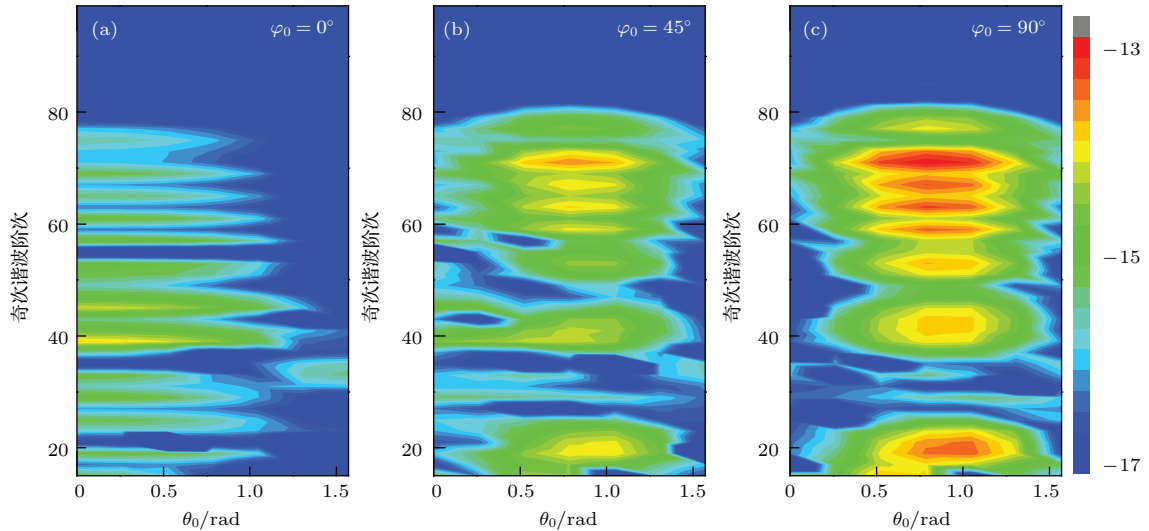


图 5 (网刊彩色) 当核轴在  $xz$  面内  $\varphi_0$  固定为不同值情况下  $O_2$  的高次谐波谱随  $\theta_0$  角的分布

Fig. 5. (color online)  $\theta_0$  dependence of HHG of  $O_2$  for different fixed  $\varphi_0$  when nuclear axis is in  $xz$  plane.

## 4 结 论

本文采用以形式散射理论为基础的频域非微扰量子电动力学方法对  $O_2$  的高次谐波进行了计算. 考虑了两种情况: 一种是分子核轴被准直在垂直于光传输方向的平面内, 另一种是分子核轴被准直在光电场方向和激光传输方向所形成的面内. 两种情况下, 高次谐波对核轴与光电场所成角度  $\theta_0$  的依赖基本相同, 都是在  $\theta_0$  为  $45^\circ$  区域谐波强度最大, 并有很大的峰值宽度, 偏离此角度, 谐波强度变低, 到平行或垂直时, 谐波强度降到最低. 分析表明, 此分布是由于谐波的强度取决于分子

在动量空间中光电场方向为中心的局域立体角内电子布居.

## 参考文献

- [1] Takahashi E J, Kanai T, Ishikawa K L, Nabekawa Y, Midorikawa K 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 253901
- [2] Phpmintchev T, Chen M C, Popmintchev D, Arpin P, Brown S, Alisauskas S, Andriukaitis G, Balciunas T, Mucke O D, Pugzlys A, Baltuska A, Shim B, Schrauth S I, Gaeta A, Hernandez-Garcia C, Plaja L, Becker A J, Becker A J, Murnane M M, Kapteyn H C 2012 *Science* **336** 1287
- [3] Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, Yakovlev V S, Gagnon J, Uiberacker M, Aquila A L, Gullikson E M,

- Attwood D T, Kienberger R, Krausz F, Kleineberg U 2008 *Science* **320** 1614
- [4] Yu C, He H X, Wang Y H 2014 *J. Phys. B* **47** 055601
- [5] Pan Y, Zhao S F, Zhou X X 2013 *Phys. Rev. A* **87** 035805
- [6] Mohebbi M 2015 *Phys. Rev. A* **91** 023835
- [7] Haessler S, Caillat J, Salieres P 2011 *J. Phys. B* **44** 203001
- [8] Lein M 2007 *J. Phys. B* **40** R135
- [9] Bian X B, Bandrauk A D 2014 *Phys. Rev. Letts.* **113** 193901
- [10] Itatani J, Levesque J, Zeidler D, Niikura H, Pepin H, Kieffer J C, Corkum P B, Villeneuve D M 2004 *Nature* **432** 867
- [11] Itatani J, Zeidler D, Levesque J, Spanner M, Villeneuve D M, Corkum P B 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 123902
- [12] Zhou X X, Tong X M, Zhao Z X, Lin C D 2005 *Phys. Rev. A* **72** 033412
- [13] Madsen C B, Madsen L B 2006 *Phys. Rev. A* **74** 023403
- [14] Mairesse Y, Levesque J, Dudovich N, Corkum P B, Villeneuve D M 2008 *J. Mod. Opt.* **55** 2591
- [15] Liu Y, Jia C, Guo F M, Yang Y J 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 033201 (in Chinese) [刘艳, 贾成, 郭福明, 杨玉军 2016 物理学报 **65** 033201]
- [16] Kamta G L, Bandrauk A D 2005 *Phys. Rev. A* **71** 053407
- [17] Telnov D A, Chu S I 2007 *Phys. Rev. A* **76** 043412
- [18] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, Huillier A L, Corkum P B 1994 *Phys. Rev. A* **49** 2118
- [19] Gao L H, Li X F, Fu P M 2000 *Phys. Rev. A* **61** 063407
- [20] Kopold R, Becker W, Kleber M 1998 *Phys. Rev. A* **58** 4022
- [21] Le A T, Lucchese R R, Tonzani S, Morishita T, Lin C D 2009 *Phys. Rev. A* **80** 013401



# High-order harmonic generation of O<sub>2</sub> molecules with different nuclear axis orientations\*

Yuan Zhong<sup>1)</sup> Guo Ying-Chun<sup>1)†</sup> Wang Bing-Bing<sup>2)</sup>

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

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

( Received 6 February 2016; revised manuscript received 21 March 2016 )

## Abstract

High-order harmonic generation (HHG) is one of the hottest topics in strong field atomic and molecular physics. In this paper, frequency domain theory which is based on formal scattering theory is extended to study the HHG of O<sub>2</sub> molecules under a linearly polarized single mode laser field. The dependence of HHG on the angle  $\theta_0$  between the laser polarization direction and nuclear axis is investigated. In our calculation, we only consider the contribution of highest occupied molecular orbital (HOMO) and use the single electron approximation. The HOMO is obtained from quantum chemical software Molpro. The intensity of the laser is  $5.18 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> and the wavelength is 800 nm. On the one hand, in the case that the nuclear axis lies in the plane perpendicular to the laser propagation direction, we find that the yields of all order harmonics increase with  $\theta_0$  increasing until the yields reach the maximum values when  $\theta_0$  is equal to about 45°. Then the yields decrease with  $\theta_0$  increasing and have the minimum values when  $\theta_0$  is equal to about 90°. The analysis shows that the yield of HHG is dominated by the density of electrons in HOMO along the laser polarizing direction in momentum space. On the other hand, in the case that the nuclear axis lies in the plane parallel to laser propagation direction, the dependence of HHG on  $\theta_0$  is the same as that when the nuclear axis is in the plane perpendicular to laser propagation direction. The reasons for the same results for the two cases lie in the following fact. The HOMO of O<sub>2</sub> molecule has  $\pi_g$  symmetry which is not rotationally symmetric around nuclear axis. So HHG yield relies on the  $\pi_g$  extension orientation. Since the  $\pi_g$  extension orientation cannot be fixed, the HHG of O<sub>2</sub> should be averaged over the contributions to HHG at all possible  $\pi_g$  extension orientations. This average is equivalent to that the electron density is rotationally symmetric around the nuclear axis and hence leads to the fact that the HHG yield of O<sub>2</sub> depends on  $\theta_0$  rather than the plane that the nuclear axis lies in.

**Keywords:** high order harmonic generation of molecules, frequency domain scattering theory, molecular orientation

**PACS:** 42.65.Ky, 03.65.Nk, 06.60.Vz

**DOI:** 10.7498/aps.65.114205

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 61275128).

† Corresponding author. E-mail: [ycguo@phy.ecnu.edu.cn](mailto:ycguo@phy.ecnu.edu.cn)