

不同取向角下 CO<sub>2</sub> 分子波长依赖的垂直谐波效率

李雁鹏 于术娟 陈彦军

Wavelength-dependent perpendicular-harmonics efficiency from oriented CO<sub>2</sub> molecule

Li Yan-Peng Yu Shu-Juan Chen Yan-Jun

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 183102 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.183102

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.183102>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I18>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

硅功能化石墨烯负极材料的粗粒模型

Coarse-grain model of silicon functionalized graphene as anode material for lithium ion batteries

物理学报.2015, 64(14): 143101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.143101>

H+Li<sub>2</sub>: 一个典型的释能反应体系及其含时动力学研究

H + Li<sub>2</sub>: a typical exothermic reactive system and its time-dependent dynamics investigation

物理学报.2015, 64(6): 063101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.063101>

U<sub>1-x</sub>Pu<sub>x</sub>O<sub>2</sub> 热膨胀性质分子动力学模拟研究

Molecular dynamic study on thermal expansion of U<sub>1-x</sub>Pu<sub>x</sub>O<sub>2</sub>

物理学报.2014, 63(8): 083103 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.083103>

Al<sub>n</sub>(n=13--32) 团簇熔化行为的分子动力学模拟研究

Molecular dynamical simulations of the melting properties of Al<sub>n</sub>(n=13--32) clusters

物理学报.2013, 62(19): 193104 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.193104>

UO<sub>2</sub> 晶体中低密勒指数晶面表面能的分子动力学模拟

Molecular dynamics simulation of surface energy of low miller index surfaces in UO<sub>2</sub>

物理学报.2013, 62(10): 103104 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.103104>

不同取向角下CO<sub>2</sub>分子波长依赖的垂直谐波效率\*李雁鹏<sup>1)</sup> 于术娟<sup>2)†</sup> 陈彦军<sup>1)‡</sup>

1)(陕西师范大学物理学与信息技术学院, 西安 710119)

2)(河北师范大学物理科学与信息工程学院, 石家庄 050024)

(2015年3月26日收到; 2015年5月20日收到修改稿)

通过数值计算, 研究了强激光场中CO<sub>2</sub>分子在不同波长和取向角下产生的高次谐波辐射的效率. 发现CO<sub>2</sub>分子的垂直谐波效率在较小的和中间的取向角时倾向于与平行谐波效率可比或更高, 而在较大的取向角时, 垂直谐波效率远低于平行谐波效率. 进一步的分析表明, CO<sub>2</sub>分子的结构对其垂直谐波效率有重要的影响, 且该影响与波长有关. 建议对于较复杂的分子, 应该在分子的轨道成像实验中考虑垂直谐波的贡献.

关键词: 高次谐波, 垂直谐波, 谐波效率, 偶极子

PACS: 31.15.xv, 33.80.-b, 33.90.+h, 34.90.+q

DOI: 10.7498/aps.64.183102

## 1 引言

由于可以用作阿秒脉冲光源, 近年来高次谐波辐射吸引了人们的极大兴趣. 高次谐波产生的物理过程可由三步模型<sup>[1]</sup>来描述, 即电子的隧穿电离、电子在激光场中传播以及电子与母核再结合并释放光子三个过程. 电子与母核再结合时释放出的最大光子能量(谐波的截止能量)为 $I_p + 3.17U_p$ . 其中,  $U_p = E^2/(4\omega_0^2)$ 是有质动能,  $I_p$ 是原子的电离能,  $E$ 和 $\omega_0$ 分别是激光的振幅和频率. 为得到更短的阿秒脉冲<sup>[2-8]</sup>, 人们希望获得更高的谐波截止能量. 依据三步模型所给出的谐波截止能量公式, 这可以通过增大激光强度或者减小激光频率来实现. 然而由于基态衰减<sup>[9]</sup>和相位失谐<sup>[10]</sup>, 激光强度不能任意增加, 人们因此希望通过降低激光频率 $\omega_0$  (增大激光波长)来提高谐波的截止能量. 关于谐波效率与激光波长之间关系的研究, 已经在理论<sup>[11-23]</sup>和实验<sup>[24,25]</sup>中得到了广泛的关注. 另一方面, 为得到更短的阿秒脉冲, 人们还提出了不同的理论方案. 目前的研究表明, 通过借助双色

光<sup>[3,26]</sup>、控制经典轨道<sup>[27]</sup>、借助两电子动力学<sup>[28]</sup>、或者通过选择合适的量子路径<sup>[29,30]</sup>等, 可以有效拓展谐波平台, 增大谐波截止能量. 然而将这些方案推广到实验当中以得到更短更强的阿秒脉冲, 也需要在理论上详细研究谐波产量与驱动场激光波长之间的关系.

相比于原子, 分子由于具有更多的自由度, 其在强激光场中的动力学更加复杂, 呈现了许多新的效应. 人们对H<sub>2</sub><sup>+</sup>对强激光中谐波辐射的研究, 发现其谐波谱往往会出现显著凹陷的区域, 并且凹陷区域的位置与分子轴和激光场的夹角(取向角)有关. 进一步的研究表明该凹槽由两中心干涉效应<sup>[31-33]</sup>引起. 对分子取向依赖的谐波辐射的研究, 还促使人们提出了一套利用谐波辐射实现分子轨道成像<sup>[34-38]</sup>的方案. 利用该方案, 人们成功重构了N<sub>2</sub>分子的最外层轨道. 在该方案中得到更高的轨道分辨率, 原则上需要更宽的谐波平台和更强的谐波产量, 因此需要研究分子谐波效率与波长的关系. 另一方面, 对于简单分子而言, 其在垂直于激光极化方向的谐波产量较低<sup>[31,32]</sup>, 因此一般只需关注平行于激光极化方向的谐波辐射. 但对于复

\* 国家自然科学基金(批准号: 11274090)和中央高校基本科研业务费专项基金(批准号: GK201403002)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yushujuan1129@163.com

‡ 通信作者. E-mail: chenyanjun@snnu.edu.cn

杂分子而言, 由于其轨道结构的空问特性, 在强激光场作用下可能会产生较强的垂直谐波辐射. 本文选取结构较复杂的  $\text{CO}_2$  [39] 分子作为研究对象, 研究不同波长和取向下的垂直谐波辐射的效率.

## 2 理论方法

### 2.1 数值方法

原子单位下, 二维模型  $\text{CO}_2$  分子的哈密顿为  $H(t) = p^2/2 + V(r) + r \cdot E(t)$ . 其中

$$V(r) = - \sum_{j=1,2,3} \left\{ \frac{[Z_j \exp(-r_j^2/\rho) + Z_{oj}]}{\sqrt{\varepsilon + r_j^2}} \right\},$$

$r_{1,2}^2 = (x \pm R/2 \cos \theta)^2 + (y \pm R/2 \sin \theta)^2$ ,  $r_3^2 = x^2 + y^2$ ; 核间距  $R = 4.38$  a.u.; 有效电荷  $Z_1 = Z_2 = 5.667$ ,  $Z_3 = 3.667$ ; 长程势参数  $Z_{oj} = 0.333$  ( $j = 1, 2, 3$ ), 短程势参数  $\rho = 0.625$ ; 为避免库仑奇异, 软心势参数  $\varepsilon = 0.5$ . 激光的电场分量  $E(t) = e_x f(t) E \sin \omega_0 t$ ,  $f(t)$  为包络函数,  $E$  和  $\omega_0$  分别为激光场的振幅和频率,  $e_x$  是激光电场方向的单位向量.  $\text{CO}_2$  分子的电离能  $I_p = 0.506$  a.u.. 计算中采用 10 个周期的激光脉冲, 带有三个周期的上升沿和三个周期的下降沿, 激光强度  $I = 1 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. 我们采用谱方法求解含时薛定谔方程, 计算中空间格子的大小为  $L_x \times L_y = 1638.4$  a.u.  $\times 102.4$  a.u., 空间步长为 0.4 a.u.. 为消除边界处对波包的反射作用, 计算中从边界到  $x_0 = L_x/8$  处采用滤波函数  $W(x) = \cos^{1/8}[\pi(|x| - x_0)/(L_x - 2x_0)]$  对波函数进行滤波. 对  $y$  轴的处理与对  $x$  轴的处理相似.

$\text{CO}_2$  分子轴与  $x$  轴取不同夹角  $\theta$  时, 电子从连续态返回到母核附近所产生的总谐波  $F_{||(\perp)}(\omega, \theta)$  由下式 [31] 计算得到:

$$F_{||(\perp)}(\omega, \theta) = \int \langle \psi(t, \theta) | e_{||(\perp)} \cdot \nabla V | \psi(t, \theta) \rangle e^{i\omega t} dt, \quad (1)$$

$\psi(t, \theta)$  为与哈密顿  $H(t)$  对应的含时波函数 (在空间转动了角度  $\theta$ ),  $\omega$  为释放谐波的频率. 如果只考虑电子从连续态跃迁到基态时产生的高次谐波  $F_{||(\perp)}^0(\omega, \theta)$ , 则有 [31]

$$F_{||(\perp)}^0(\omega, \theta) = \int \langle \psi_0(\theta) | e_{||(\perp)} \cdot \nabla V | \psi(t, \theta) \rangle \times a_0^*(t, \theta) e^{i\omega t} dt, \quad (2)$$

其中,  $a_0(t, \theta) = \langle \psi_0(\theta) | \psi(t, \theta) \rangle$ ,  $|\psi_0(\theta)\rangle$  为无外场哈密顿  $H_0(t) = p^2/2 + V(r)$  对应的初始基态波函

数. 对应不同激光波长  $\lambda$  (频率  $\omega_0$ ) 的平均谐波效率  $Y_{||(\perp)}(\lambda, \theta)$  可由功率谱的积分得到, 即

$$Y_{||(\perp)}(\lambda, \theta) \propto \frac{1}{\Omega_2 - \Omega_1} \int_{\Omega_1}^{\Omega_2} S_{||(\perp)}(\omega, \theta) d\omega, \quad (3)$$

其中功率谱的计算为  $S_{||(\perp)}(\omega, \theta) = |F_{||(\perp)}^0(\omega, \theta)|^2$ ; 积分范围  $[\Omega_1, \Omega_2]$ , 即对应于谐波谱的平台范围  $[I_p, I_p + 3.17U_p]$ .

### 2.2 解析方法

基于强场近似, 高次谐波辐射与分子结构的关系为 [40]

$$S_{||(\perp)}(\omega, \theta) \sim |a(\omega) e_{||(\perp)} \cdot D(\omega, \theta)|^2, \quad (4)$$

其中,  $a(\omega)$  是电子连续态的谱振幅, 且不依赖于分子取向角的变化;  $D(\omega, \theta) = \langle \psi_0(r, \theta) | r | p(\omega) \rangle$  是连续态  $|p(\omega)\rangle$  和基态  $|\psi_0(r, \theta)\rangle$  之间的偶极子矩阵元, 连续态由平面波函数  $|e^{ip(\omega)x}\rangle$  近似得到, 动量  $p(\omega) = \sqrt{2\omega}$  [41]. 对于  $\text{CO}_2$  分子, 沿着激光极化方向的偶极子矩阵元可以由下式 [39] 计算:

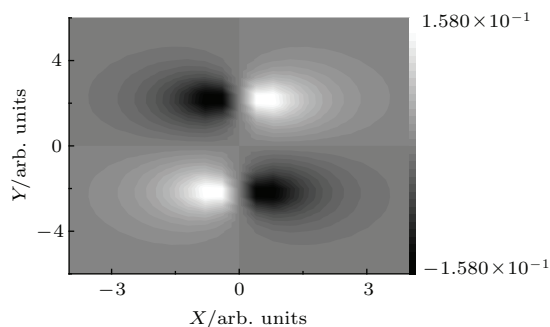
$$D_{||}(\omega, \theta) \propto G(\omega, \theta) D_a, \quad (5)$$

其中,  $G(\omega, \theta) = \sin[p(\omega)R/2 \cos \theta] \sin \theta$ ,  $D_a = \int dr [e^{-\kappa r} e_{||} \cdot r \sin(p \cdot r)]$  为原子的偶极子矩阵元.

本文中由于采用了单活电子近似, 并且模型  $\text{CO}_2$  分子的核间距较大, 其激发态还可能对谐波辐射产生影响. 为避免单活电子近似带来的影响, 更清楚地阐述分子结构与其谐波辐射的关系, 在本文中, 我们讨论采用 (2) 式计算得到的结果. 在长波长情况下, 由于激光频率较低, 基态和激发态之间的耦合较弱, (1) 式与 (2) 式的计算结果相似.

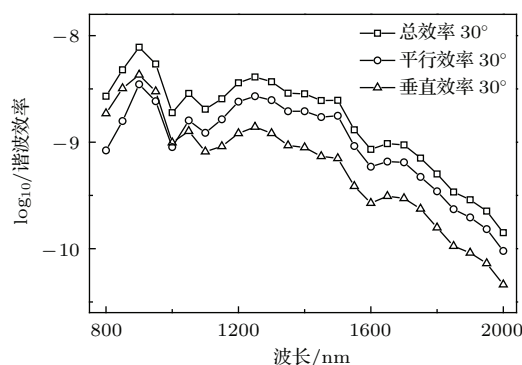
## 3 计算结果与讨论

为研究  $\text{CO}_2$  分子取向对波长依赖的谐波效率的影响, 在以下讨论中, 我们主要关注几个典型的角度  $\theta = 30^\circ, 45^\circ, 60^\circ$ . 图 1 给出了  $\text{CO}_2$  分子基态 ( $2p\pi_g$  态) 的轨道波函数. 从图 1 可以看出  $\text{CO}_2$  分子  $2p\pi_g$  态具有复杂的四瓣对称结构, 沿着  $x$  轴和  $y$  轴有两个显著的极轴. 可以想象在不同取向下的, 该结构将对  $\text{CO}_2$  分子垂直激光极化方向的谐波辐射产生重要的影响.

图1 CO<sub>2</sub>分子2p<sub>πg</sub>态的轨道分布Fig. 1. Orbit distribution of the 2p<sub>πg</sub> state in CO<sub>2</sub> molecule.

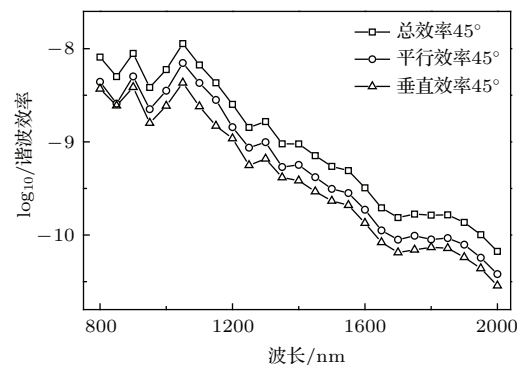
### 3.1 平行与垂直谐波效率

为比较平行谐波与垂直谐波对总效率的贡献,图2给出了激光场与分子轴夹角 $\theta = 30^\circ$ 时,平行谐波效率、垂直谐波效率和总谐波效率的曲线.如图2所示,平行方向、垂直方向以及总的谐波效率均随着波长的增加而衰减,波长在800—1000 nm范围内,垂直谐波效率比平行谐波效率要高,尤其波长在850 nm处,垂直谐波效率最高为平行谐波效率的2.2倍;而在1050—2000 nm的波长范围内,平行谐波效率均明显高于垂直谐波效率,波长在1500 nm处,平行谐波可达到垂直谐波效率的2.5倍.由此可知,在 $\theta = 30^\circ$ 情况下,较小的波长范围内垂直谐波对总效率的贡献是主要的,而在较长波长范围内平行谐波对总效率的贡献起主导作用.

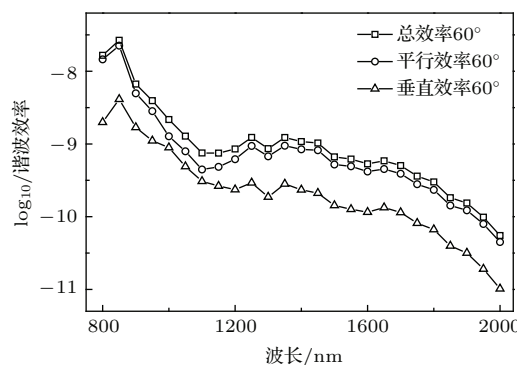
图2 CO<sub>2</sub>分子取向角为 $30^\circ$ 时波长依赖的高次谐波效率Fig. 2. Wavelength dependence of HHG efficiency at the orientation angle  $\theta = 30^\circ$ .

为观测角度对谐波效率的影响,与图2类似,图3给出了激光场与分子轴夹角 $\theta = 45^\circ$ 的效率曲线.如图3所示,在所研究的整个波长范围内,平行、垂直及总的谐波效率均随着波长增加而减小,且平行谐波效率比垂直谐波效率略高.在1500

nm处,平行谐波效率是垂直谐波效率的1.3倍.与图2相比,平行谐波效率与垂直谐波效率没有出现交叉现象,垂直谐波与平行谐波对总效率的贡献均比较稳定,且垂直谐波与平行谐波对总效率的贡献可比.

图3 取向角为 $45^\circ$ 时波长依赖的高次谐波效率Fig. 3. Wavelength dependence of HHG efficiency at the orientation angle is  $45^\circ$ .

为使研究更全面,与图3类似,图4给出了激光场与分子轴夹角 $\theta = 60^\circ$ 时谐波效率随波长的变化关系.如图4所示,在所研究的整个波长范围(800—2000 nm)内,平行谐波效率与总谐波效率相近;对于垂直谐波效率,除波长在1000—1150 nm范围内其与平行谐波效率可比外(例如在1000 nm处平行谐波效率是垂直谐波效率的1.4倍),在其他波长上,垂直谐波效率明显低于平行谐波效率(例如在1500 nm处,平行谐波效率是垂直谐波效率的2.3倍).可见在取向角 $\theta = 60^\circ$ 时,平行谐波对总效率的贡献是主要的,而与分别对应取向角 $\theta = 30^\circ, 45^\circ$ 的图2和图3相比,垂直谐波效率与平行谐波效率的相对比例在逐渐降低,尤其在短波长800—1050 nm范围内.对于垂直谐波效率与平行

图4 取向角为 $60^\circ$ 时波长依赖的高次谐波效率Fig. 4. Wavelength dependence of HHG efficiency at the orientation angle is  $60^\circ$ .

谐波效率相对比例随着取向角的增大而逐渐降低的原因,下面将给出积分前的谐波来加以论证.

### 3.2 谐波与偶极子

由(3)式可以看出,研究 $\text{CO}_2$ 谐波效率需追溯至其积分因子即谐波谱.图5(a)给出了对应于图2波长 $\lambda = 900 \text{ nm}$ 时的平行谐波与垂直谐波谱.如短实线所示区域,由于对称分子受两中心干涉

的作用,平行谐波谱显示出较长一段相对低的凹槽,使两曲线交点左侧较大能量区域内垂直谐波明显高于平行谐波,交点右侧小段能量区域内垂直谐波低于平行谐波.如水平实线所示,在谐波平台两端点(0.6 a.u. 到 1.51 a.u.)之间谐波强度基本相同,凹槽所处能量区域已经分别占平行与垂直方向谐波的主要部分,因此由积分(3)式可知垂直谐波高于平行谐波对总效率的贡献,与图2波长为 $\lambda = 900 \text{ nm}$ 时的结果相符.

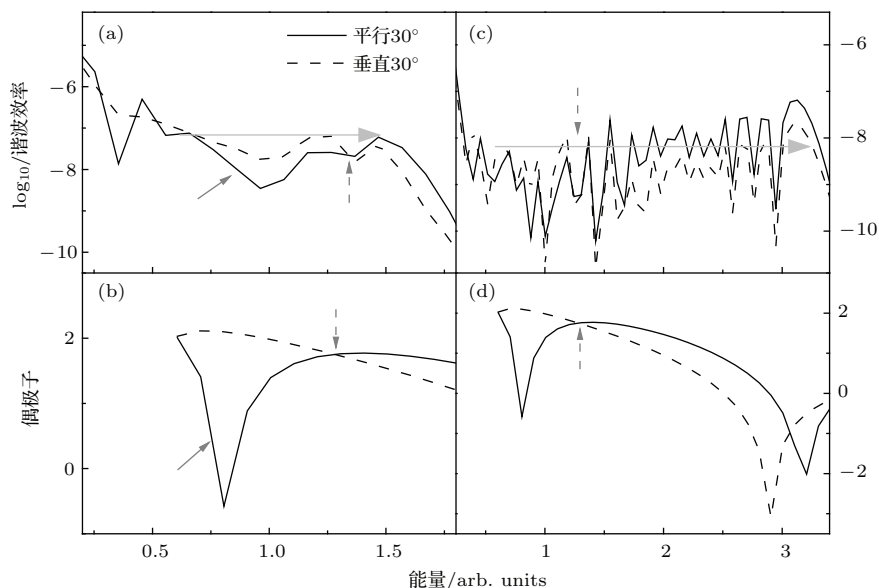


图5  $\text{CO}_2$  分子  $\theta = 30^\circ$  时谐波与偶极子比较 (a), (b)  $\lambda = 900 \text{ nm}$ ; (c), (d)  $\lambda = 1500 \text{ nm}$

Fig. 5. Comparison between harmonic spectra and the corresponding dipoles at  $\theta = 30^\circ$  for  $\text{CO}_2$  molecule: (a) and (b) for  $\lambda = 900 \text{ nm}$ , (c) and (d) for  $\lambda = 1500 \text{ nm}$ .

图5(b)给出了对应于图5(a)的平行与垂直偶极子曲线,该偶极子曲线可由(5)式计算得到.两偶极子曲线交点左侧平行方向偶极子显示出较大的两中心干涉凹槽,而垂直方向偶极子下降趋势较平缓,垂直方向偶极子明显高于平行方向偶极子,交点右侧平行方向偶极子高于垂直方向偶极子;在谐波平台上,除短虚线所示交点处有一点能量移动外,图5(b)与图5(a)曲线高低趋势符合较好.可知在较小的取向角的情况下,平行谐波由于受到两中心干涉作用被显著压低,而使得垂直谐波产量明显高于平行谐波,表明与 $\text{CO}_2$ 分子轨道结构相关的干涉效应主导了垂直谐波对总效率的贡献.

对应于图2较长波长的区域,图5(c)给出波长 $\lambda = 1500 \text{ nm}$ 时平行谐波与垂直谐波曲线.如短虚线所示为谐波交点,交点左侧低能区域平行谐波出现明显的凹槽,垂直谐波强度较平,比平行谐波强度略高;交点右侧平行谐波谱却明显高于垂直谐波

谱;如水平线所示,在谐波平台上只有交点右侧的中高能区域(1.5—3.2 a.u.)谐波对效率的贡献是主要的(以下简称为“主能区”),因此垂直谐波远低于平行谐波对总效率的贡献.这些分析对图2中长波区域的效率现象做出了解释.

图5(d)给出对应图5(c)的平行与垂直偶极子曲线,与平行偶极子第二个干涉凹槽相比,垂直偶极子的干涉凹槽更靠近于谐波平台的中心部分,从而使得该干涉槽对更大范围的谐波平台有抑制作用,这一现象与图5(c)曲线趋势相符,表明谐波谱与偶极子符合(5)式的定性关系,同时展现出干涉凹槽在谐波平台上所处的位置对垂直谐波效率影响较大.

与图5左列 $\lambda = 900 \text{ nm}$ 短波长情况相比可知,由于对谐波效率起贡献的主能区不同,且在不同主能区中两中心干涉效应对平行与垂直谐波的影响不同,进而导致在小取向角 $\theta = 30^\circ$ 下,长波长与短

波长范围内的平行与垂直谐波效率也不同. 回顾图2, 与长波长的谐波效率相比, 较短波长的垂直谐波效率较高, 表明短波长的垂直谐波可能更具有应用价值.

综上所述, 在较小角度, 例如  $\theta = 30^\circ$  时, 短波长情况下  $\text{CO}_2$  分子垂直谐波效率较高的原因为: 波长较短时, 谐波平台较短; 此时平行谐波在平台区域受到两中心干涉的抑制作用, 垂直谐波在平台区域不抑制, 而使垂直谐波产量在平台区域整体高于平行谐波产量 [见图5(a)], 进而垂直谐波在平台区域的产量积分 (谐波效率) 高于平行谐波. 在波长较长时, 根据再散射三步模型, 谐波平台较长; 此时两中心干涉效应对  $\text{CO}_2$  分子平台“低能”部分的平行谐波产生抑制, 对平台“中高能”部分的垂直谐波产生抑制, 进而使得平行谐波产量在“中高能”区域整体高于垂直谐波产量. 又因为此时“中高能”区域谐波产量远高于平台“低能”区域谐波产量 [见图5(c)], 进而使得平行谐波在平台区域的产量积分 (谐波效率) 高于垂直谐波.

下面, 我们讨论其他取向角的情况. 图6除分子取向角  $\theta = 45^\circ$  之外, 其他参数均与图5相

同. 从图6依然可以看出, 短波  $\lambda = 900 \text{ nm}$  和长波  $\lambda = 1500 \text{ nm}$  时谐波曲线的交点及高低趋势均与对应的偶极子曲线符合得很好, 展现出了谐波与偶极子的密切关系. 图6(a)中谐波谱的主能区为谐波高于水平线的能量区域 (1.46—1.68 a.u.), 图6(c)中谐波谱的主能区为谐波沿着水平线的能量区域 (1.46—2.6 a.u.), 且在该能量区域内垂直谐波略低于平行谐波谱, 因此由积分(3)式可知垂直谐波效率略低于平行谐波效率, 解释了图3中的效率现象.

进一步的比较可知, 图6(b)中偶极子交点右侧两曲线均较平, 对应图6(a)能量截止位置谐波略高于低能区域; 图5(b)中偶极子交点右侧有受干涉作用压制而向下的趋势, 对应于图5(a)中能量截止位置谐波与低能区域相平. 这些特征使得图5(a)与图6(a)谐波谱的主能区不同. 不同主能区中由于受干涉作用影响不同, 平行谐波与垂直谐波强度比亦不同, 最终导致小取向角  $\theta = 30^\circ$  与中间角  $\theta = 45^\circ$  在较短波长范围内的谐波效率现象亦不同, 如图2和图3所示. 这些分析表明在短波范围内谐波效率对分子结构较敏感.

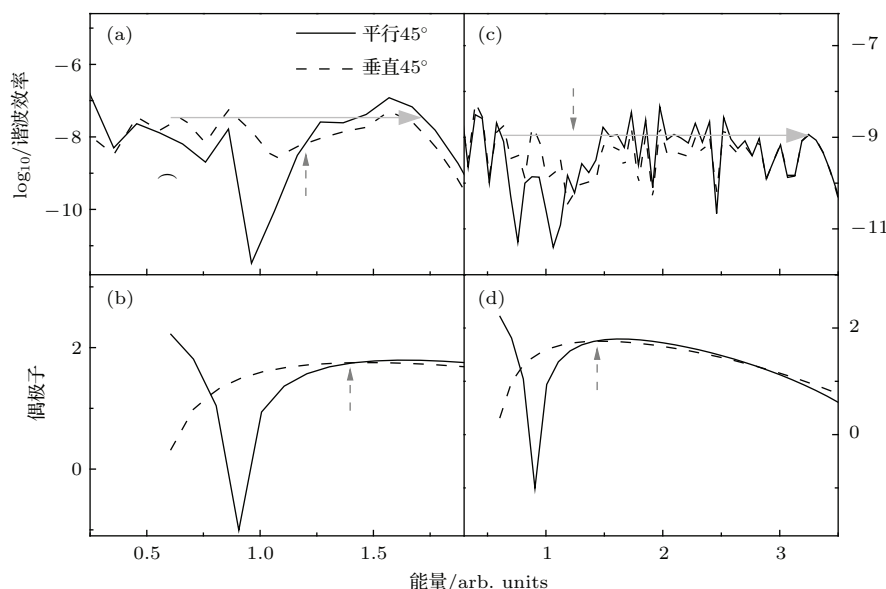


图6  $\text{CO}_2$  分子  $\theta = 45^\circ$  时谐波与偶极子比较 (a), (b)  $\lambda = 900 \text{ nm}$ ; (c), (d)  $\lambda = 1500 \text{ nm}$

Fig. 6. Comparison between harmonic spectra and the corresponding dipoles at  $\theta = 45^\circ$  for  $\text{CO}_2$  molecule: (a) and (b) for  $\lambda = 900 \text{ nm}$ ; (c) and (d) for  $\lambda = 1500 \text{ nm}$ .

图6(c)与图5(c)相比, 两图中谐波谱的主能区的区间相近, 然而在图5(d)中主能区内垂直偶极子出现了较深的干涉槽致使垂直谐波明显低于平行谐波, 而造成在长波长  $\lambda = 1500 \text{ nm}$  且较小取向角  $\theta = 30^\circ$  下, 垂直谐波对总效率的贡献明显低

于中间角  $\theta = 45^\circ$  时的情况.

为进行较全面的论证, 图7(a)给出了激光场与分子轴夹角  $\theta = 60^\circ$ , 波长  $\lambda = 1500 \text{ nm}$  的平行与垂直谐波谱. 如短实线所示, 平行与垂直谐波在较低能部分均出现两中心干涉所压低的凹槽, 在

谐波平台上平行谐波干涉槽位于能量较低的部分, 而垂直谐波干涉槽却向平台更中间位置移动一些, 这一点可以从图 7(b) 更清楚地看到. 因此在整个平台范围上, 两中心干涉槽对垂直谐波显示出更普遍的抑制作用, 从而导致垂直谐波普遍低于平行谐波; 并且此处谐波效率是由高于图示水平线的谐波部分 (0.93—2.7 a.u.) 主要贡献, 因此从  $I_p$  到  $3.17U_p + I_p$  积分得到的垂直谐波效率低于平行谐波效率.

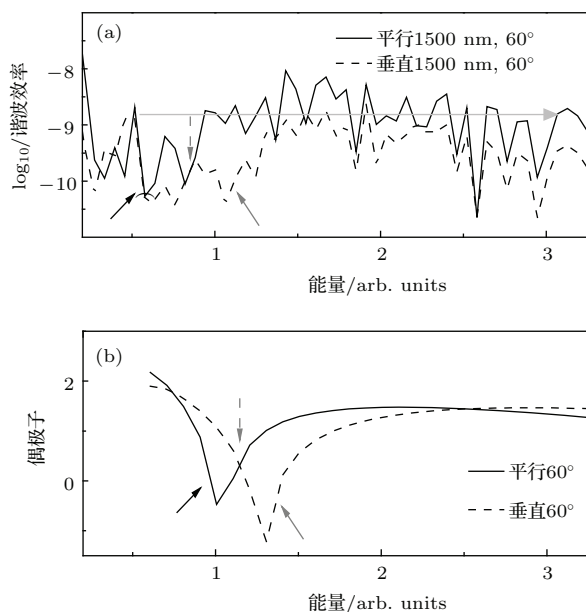


图 7  $\text{CO}_2$  分子  $\theta = 60^\circ$ ,  $\lambda = 1500 \text{ nm}$  时谐波与偶极子比较

Fig. 7. Comparison between harmonic spectra and the corresponding dipoles at  $\theta = 60^\circ$ ,  $\lambda = 1500 \text{ nm}$  for  $\text{CO}_2$  molecule.

图 7(b) 同样给出了对应的偶极子曲线, 偶极子交点右端直到能量为 2.5 a.u. 处平行方向均高于垂直方向偶极子, 与图 7(a) 谐波谱符合较好, 可见 (4) 式较适用. 同时反映出在取向角  $\theta = 60^\circ$  时, 分子结构引起的两中心干涉凹槽对垂直谐波的抑制较强, 使得垂直谐波普遍低于平行谐波. 这些分析解释了图 4 所示的效率现象.

需要强调的是, 在上述讨论中, 我们没有考虑多光子效应. 对于波长较短的情况, 由于激光频率较高, 核间距较大分子的基态和激发态之间的耦合可能会对谐波辐射产生重要的影响. 此时只考虑基态贡献的强场近似模型不适用, 需要在通常的强场近似模型中引入激发态贡献<sup>[42]</sup>. 针对本文所研究的模型  $\text{CO}_2$  分子, 波长为 900 nm 以上时, 激发态贡献很小; 800 nm 左右时, 激发态贡献开始显著, 然而此时基态对谐波的贡献仍然占主导地位,

即使考虑激发态贡献, 取向角较小时的垂直谐波产量依然高于平行谐波产量. 对于更短的波长, 例如 400 nm, 此时基态和激发态强耦合, 其贡献可比. 关于高频场时复杂分子谐波效率的取向依赖, 将在未来的工作中做进一步的详细研究.

## 4 总 结

本文通过数值模拟研究了在强激光场作用下  $\text{CO}_2$  分子的谐波辐射效率与分子取向以及激光波长的关系. 在研究中, 我们采用谐波谱与偶极子比对, 不同波长之间和不同取向角之间比对的方法分析计算结果. 计算结果表明, 在短波长和较小取向角下, 垂直谐波远大于平行谐波对总效率的贡献; 在中间取向角下, 垂直谐波与平行谐波对总谐波效率的贡献可比; 在较大取向角下, 垂直谐波远小于平行谐波对总谐波效率的贡献. 通过谐波与偶极子的比对分析, 印证了  $\text{CO}_2$  分子谐波辐射与其偶极子的密切关系, 揭示了分子的平行与垂直谐波效率的高低取决于主能区 (谐波平台上强度相对高于其他区域、从而对积分谐波产量起主要贡献的能量区域) 的位置以及主能区中平行与垂直谐波产量的高低. 这一现象与两中心干涉效应密切相关, 因此分子的结构对谐波效率有重要的影响. 在应用方面, 因为在某些激光参数下复杂分子垂直谐波效率与平行谐波效率可比, 在利用谐波辐射实现分子轨道成像的实验中需要考虑垂直谐波的贡献.

## 参考文献

- [1] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [2] Antoine P, L'Huillier A, Lewenstein M 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 1234
- [3] Zou P, Li R X, Zeng Z N, Xiong H, Liu P, Leng Y X, Fan P Z, Xu Z Z 2010 *Chin. Phys. B* **19** 019501
- [4] Zheng J, Sheng Z M, Zhang J 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 2638 (in Chinese) [郑君, 盛政明, 张杰 2005 物理学报 **54** 2638]
- [5] Paul P M, Toma E S, Breger P 2001 *Science* **292** 1689
- [6] Hentschel M, Kienberger R 2001 *Nature* **414** 509
- [7] Chen J G, Yang Y J, Zeng S L, Liang H Q 2011 *Phys. Rev. A* **83** 023401
- [8] Zeng T T, Li P C, Zhou X X 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 203201 (in Chinese) [曾婷婷, 李鹏程, 周效信 2014 物理学报 **63** 203201]
- [9] Christov I P, Zhou J, Peatross J, Rundquist A, Murnane M M, Kapteyn H C 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 1743
- [10] Ditmire T, Kulander K, Crane J, Nguyen H, Perry M 1996 *J. Opt. Soc. Am. B* **13** 406

- [11] Tate J, Auguste T, Muller H G, Salières P, Agostini P, DiMauro L F 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 013901
- [12] Schiessl K, Ishikawa K L, Persson E, Burgdörfer J 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 253903
- [13] Frolov M V, Manakov N L, Starace A F 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 173001
- [14] Yakovlev V, Ivanov M, Krausz F 2007 *Opt. Express* **15** 15351
- [15] Lan P F, Eiji J T, Katsumi M 2010 *Phys. Rev. A* **81** 061802
- [16] Liu C D, Zeng Z N, Wei P F, Liu P, Li R X, Xu Z Z 2010 *Phys. Rev. A* **81** 033426
- [17] Falcao-Filho E L, Gkortsas V M, Gordon A, Katner F X 2009 *Opt. Express* **17** 11217
- [18] Pérez-Hernández J A, Roso L, Plaja L 2009 *Opt. Express* **17** 9891
- [19] Jin C, Le A T, Lin C D 2011 *Phys. Rev. A* **83** 023411
- [20] Austin D R, Biegert J 2012 *Phys. Rev. A* **86** 023813
- [21] Auguste T, Catoire F, Agostini P, DiMauro L F, Chirila C C, Yakovlev V S, Salières P 2012 *New J. Phys.* **14** 103014
- [22] Le A T, Wei H, Jin C, Tuoc V N, Morishita T, Lin C D 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 033001
- [23] Cui X, Li S Y, Guo F M, Tian Y Y, Chen J G, Zeng S L, Yang Y J 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 043201 (in Chinese)  
[崔鑫, 李苏宇, 郭福明, 田原野, 陈基根, 曾思良, 杨玉军 2015 物理学报 **64** 043201]
- [24] Shan B, Chang Z 2001 *Phys. Rev. A* **65** 011804
- [25] Yu S J, Zhang B, Li Y P, Yang S P, Chen Y J 2014 *Phys. Rev. A* **90** 053844
- [26] Zeng Z, Cheng Y, Song X, Li R, Xu Z 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 203901
- [27] Zhao D, Li F L 2013 *Chin. Phys. B* **22** 064215
- [28] Feng L Q, Liu H 2015 *Chin. Phys. B* **24** 034206
- [29] Diao H H, Zheng Y H, Zhong Y, Zeng Z N, Ge X C, Li C, Li R X, Xu Z Z 2014 *Chin. Phys. B* **23** 104210
- [30] Ge X L, Du H, Wang Q, Guo J, Liu X S 2015 *Chin. Phys. B* **24** 023201
- [31] Shiner A D, Trallero-Herrero C, Kajumba N, Bandulet H C, Comtois D, Légaré F, Giguère M, Kieffer J C, Corkum P B, Villeneuve D M 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 073902
- [32] Chen Y J, Zhang B 2011 *Phys. Rev. A* **84** 053402
- [33] Zhang B, Chen Y J, Jiang X Q, Sun X D 2013 *Phys. Rev. A* **88** 053428
- [34] Itatani J, Zeidler D, Levesque J, Spanner M, Villeneuve D M, Corkum P B 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 123902
- [35] Levesque J, Zeidler D, Marangos J P, Corkum P B, Villeneuve D M 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 183903
- [36] Patchkovskii S, Zhao Z, Brabec T, Villeneuve D M 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 123003
- [37] Torres R, Kajumba N, Underwood J G, Robinson J S, Baker S, Tisch J W G, de Nalda R, Bryan W A, Velotta R, Altucci C, Turcu I C E, Marangos J P 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 203007
- [38] Le V H, Le A T, Xie R H, Lin C D 2007 *Phys. Rev. A* **76** 013414
- [39] Chen Y J, Hu B 2009 *J. Chem. Phys.* **131** 244109
- [40] Itatani J, Levesque J, Zeidler D, Hiromichi N, Pepin H, Kieffer J C, Corkum P B, Villeneuve D M 2004 *Nature* **432** 867
- [41] Chen Y J, Liu J 2008 *Phys. Rev. A* **77** 013410
- [42] Chen Y J, Chen J, Liu J 2006 *Phys. Rev. A* **74** 063405

# Wavelength-dependent perpendicular-harmonics efficiency from oriented CO<sub>2</sub> molecule\*

Li Yan-Peng<sup>1)</sup> Yu Shu-Juan<sup>2)†</sup> Chen Yan-Jun<sup>1)‡</sup>

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

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

( Received 26 March 2015; revised manuscript received 20 May 2015 )

## Abstract

In this paper, we numerically study the efficiencies of high-order harmonic generation (HHG) from CO<sub>2</sub> molecule exposed to strong laser fields with different laser wavelengths and different orientation angles. Through calculating the HHG spectra in the directions parallel and perpendicular to the laser polarization, we show that the efficiency of perpendicular harmonics can be higher than or comparable to the parallel ones at the relatively small and intermediate orientation angles in some wavelength cases. At larger angles, the efficiency of perpendicular harmonics is generally lower than the parallel one. Further analyses show that the structure of the CO<sub>2</sub> molecule plays an important role in the HHG efficiency and this role is also related to the laser wavelength.

Specifically, we show that the relative yields of perpendicular harmonic versus parallel harmonic are closely associated with the parallel and perpendicular dipoles of the molecule. Due to the effect of two-center interference, the parallel or perpendicular dipoles of the molecule show some deep hollows in some energy regions, which depend on the molecular orientation, and so do the corresponding parallel and perpendicular harmonics. As the parallel harmonics are suppressed due to the interference effect strongly in some energy regions, the yields of the perpendicular harmonics, which are not subjected to the interference effect in the corresponding energy regions, can be higher than the parallel one. As a result, the integrated harmonic yield (i.e., the harmonic efficiency) in the perpendicular case can be higher than the parallel one, especially for the cases with short laser wavelengths and small orientation angles. In these cases, the interference effect induces the suppression of parallel harmonics in the whole HHG plateau. We therefore expect that the interference effect plays an important role in the HHG efficiency in these cases. For the case of long laser wavelength, the HHG plateau extends to high energy region and the main contributions to the integrated HHG yield can come from harmonics out of the interference-effect-dominating region. As a result, the interference effect plays a smaller role in determining the HHG efficiencies of parallel and perpendicular harmonics, in comparison with the case of short laser wavelength. For large orientation angles, the value of the perpendicular dipole is smaller than the parallel one in a wide energy region, and accordingly, the perpendicular harmonics are weaker than the parallel ones on the whole. As a rule, the parallel efficiency is usually higher than the perpendicular one.

As the perpendicular harmonic can contribute importantly to the harmonic emission in some cases, our results suggest that for the complicated molecule, the perpendicular harmonics should be considered in the molecular orbital tomography experiments.

**Keywords:** high-order harmonic generation, perpendicular harmonics, harmonic efficiency, dipole

**PACS:** 31.15.xv, 33.80.-b, 33.90.+h, 34.90.+q

**DOI:** 10.7498/aps.64.183102

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11274090) and the Fundamental Research Funds for the Central Universities, China (Grant No. GK201403002).

† Corresponding author. E-mail: [yushujuan1129@163.com](mailto:yushujuan1129@163.com)

‡ Corresponding author. E-mail: [chenyanjun@snnu.edu.cn](mailto:chenyanjun@snnu.edu.cn)