

对称分子 H_2^+ 在强短波激光场中高次谐波 椭圆率性质的研究*

于术娟 刘竹琴 李雁鹏†

(延安大学物理与电子信息学院, 延安 716000)

(2022年10月12日收到; 2022年11月12日收到修改稿)

通过数值计算, 研究了强短波 (400—600 nm) 激光场中 H_2^+ 分子高次谐波辐射的椭圆率性质. 研究表明, H_2^+ 分子在不同激光强度、不同激光波长、不同核间距及不同取向角下高次谐波的椭圆率性质是不同的; 特别是在两中心干涉区, 激发态在高次谐波产生中起着重要作用, 但在不同取向角下, 激发态对谐波椭圆率的影响不同; 分析表明, 这些不同的影响源于沿平行和垂直于激光偏振方向辐射的高次谐波的相对产量, 以及激发态对平行和垂直谐波产量的影响; 此外, 椭圆率的测量检验了强场近似和平面波近似在强短波激光场中是成立的, 并对强短波激光场中分子动力学做了更充分的研究.

关键词: 高次谐波, 高频激光场, 谐波椭圆率, 偶极子

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

DOI: 10.7498/aps.72.20221946

1 引言

当原子或分子暴露于强激光场中时, 库仑势被电场严重扭曲. 因此, 电子可通过隧穿从原子核中脱离, 脱离的电子在激光场中进行加速运动, 当激光场改变方向时, 电子再次返回原子核, 进而被原子核俘获, 并伴随着高能光子的释放, 这个过程称为高次谐波产生. 由于高次谐波可用作阿秒脉冲光源, 近年来, 学者们越来越关注高次谐波辐射的研究^[1-3], 并提供了一种独特的方式来探测物质在超快时间尺度上的结构^[4,5]和电子动力学^[6,7].

高次谐波产生的物理过程可通过三步模型^[8]和列文斯坦模型^[9]来理解, 模型中有两个重要的假设, 即强场近似. 首先, 只有基态对系统的演化起重要作用; 第二, 当电子脱离原子核时, 忽略库伦势的影响. 这些假设适用于具有 Keldysh^[10] 参数

$\gamma = \sqrt{I_p/(2U_p)} \ll 1$ 强的低频激光场, 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 ω_0 分别是激光的振幅和频率, 因此, 在低频激光场中隧穿图像和平面波近似都是成立的.

以往学者们主要关注沿激光偏振方向辐射的高次谐波功率谱, 最近, 准直对称分子在低频激光场中谐波的椭圆率问题成为学者们关注的焦点, 例如 H_2^+ ^[11,12] 和 N_2 ^[13-15]; 根据实验和理论研究结果, 在线偏振激光场作用下, 准直分子可以产生谐波的椭圆偏振态, 而谐波椭圆率的起源是多电子效应^[13]、库伦效应^[15]、两中心干涉效应^[11]以及电子运动的量子不确定性^[16]. 随后研究了不对称分子谐波的偏振性质^[17-22], 理论研究表明, 由于最高占据分子轨道的不对称性, 在 CO 的高次谐波产生中可观察到大的椭圆率^[20,21]; 由于不同高次谐波产生路径间的相互作用, 在 HeH^{2+} 的谐波产生中也可观察到大的椭圆率^[22]; 同时圆^[23]、椭圆^[24]和正交^[25,26]

* 国家自然科学基金青年科学基金 (批准号: 11904310) 和延安市专项基金 (批准号: 2019-03) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: liyanpeng1107@163.com

偏振激光脉冲驱动高次谐波产生的椭圆率一直也是实验和理论上的研究热点. 以前主要研究强的低频激光场中谐波的椭圆率问题, 但在强的高频激光场中 (Keldysh 参数 γ 接近或略大于 1), 谐波的椭圆率未被研究过, 由于高次谐波的椭圆率不仅与平行谐波及垂直于激光偏振方向发射的谐波 (即垂直谐波) 密切相关, 还与高次谐波的相位密切相关, 为研究高频激光场中分子高次谐波的产生提供了深入的见解; 另外, 高频激光场中电子的动力学非常复杂, 激发态效应非常强 [27], 激发态对谐波发射的影响已被研究过 [28–30]; 且激发态在平衡核间距及大核间距附近对低频激光场中高次谐波谱上干涉最小的影响也被研究过 [31]; 目前的研究表明, 当 Keldysh 参数 $\gamma \approx 1$ 时, 隧穿图像仍然适用 [11], 但在 Keldysh 参数 $\gamma > 1$ 的情况下, 隧穿图像是否成立, 平面波近似是否成立, 激发态对谐波椭圆率有什么影响? 为了回答上述问题, 研究高频场中谐波的椭圆率问题成为必然.

通过数值求解二维含时 Schrödinger 方程, 研究了高频激光场中对称分子 H_2^+ 高次谐波的偏振特性; 结果表明: H_2^+ 分子谐波的偏振特性与激光强度、激光波长、核间距及取向角有关; 利用数值方案, 确定了在两中心干涉区, 激发态在对称分子辐射的平行谐波谱中起重要作用, 对于不同角度的垂直谐波, 激发态的影响非常小, 激发态对平行谐波和垂直谐波的不同影响导致精确垂直和精确平行谐波谱的强度比与仅跃迁回基态的垂直和平行谐波谱的强度比不同, 且精确谐波谱与仅跃迁回基态的谐波谱的相位差不同, 进而导致激发态对谐波椭圆率的影响具有强烈的角依赖性. 此外, 偏振的目的是对高频激光场中强场近似的检验, 尤其是对平面波近似的检验.

2 理论方法

2.1 数值方法

原子单位下, 二维模型 H_2^+ 分子的哈密顿为 $H(t) = \mathbf{p}^2/2 + V(\mathbf{r}) + \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t)$. 式中 $V(\mathbf{r}) = -Z/\sqrt{\xi + \mathbf{r}_1^2} - Z/\sqrt{\xi + \mathbf{r}_2^2}$ 为软心势, $\mathbf{r}_1 = \mathbf{r} - \mathbf{R}_1$, $\mathbf{r}_2 = \mathbf{r} - \mathbf{R}_2$, 其中 \mathbf{R}_1 和 \mathbf{R}_2 分别是两个核的坐标 $(R/2, 0)$ 和 $(-R/2, 0)$. Z 是有效电荷, 为避免库仑奇异, 软心势参数 $\xi = 0.5$. 激光的电场分量 $\mathbf{E}(t) = \mathbf{e}f(t)E \sin \omega_0 t$,

$f(t)$ 为包络函数, E 和 ω_0 分别为激光场的振幅和频率, \mathbf{e} 是激光电场方向的单位向量. H_2^+ 分子的电离能 $I_p = 1.11$ a.u.. 数值计算中, 采用 10 个周期的激光脉冲, 其中前三个周期线性上升, 后三个周期线性下降, 剩下四个周期的激光强度是常数. 含时薛定谔方程采用谱方法求解 [32], 空间格子的大小 $L_x \times L_y = 204.8$ a.u. \times 204.8 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, 采用滤波函数 $F(x) = \cos^{1/8}[\pi(|x| - x_0)/(L_x - 2x_0)]$ 对波函数从边界至 $x_0 = L_x/8$ 处进行滤波, 对 y 轴的处理与 x 轴相似.

靶分子被激光照射时产生的精确平行谐波和精确垂直谐波产量 [33] 的计算式为

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

其中 $\psi(t)$ 为与哈密顿 $H(t)$ 对应的含时波函数. 基于强场近似理论, 与基态再结合的电子对谐波辐射起主要贡献. 因此有

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

(2) 式表示电子从连续态返回至基态辐射的高次谐波, 其中 $a_0(t) = \langle 0 | \psi(t) \rangle$, 式中未考虑激发态对高次谐波产生的贡献. 此外, 垂直谐波和平行谐波的振幅率及相位差决定了谐波的椭圆率 [12]:

$$\varepsilon = \sqrt{\frac{1 + \mu^2 - \sqrt{1 + 2\mu^2 \cos(2\delta) + \mu^4}}{1 + \mu^2 + \sqrt{1 + 2\mu^2 \cos(2\delta) + \mu^4}}}, \quad (3)$$

式中, $\mu = S_{\perp}/S_{\parallel}$ 为垂直与平行谐波的强度比, $\delta = \phi_{\perp} - \phi_{\parallel}$ 是相位差, 其中 $S_{\parallel(\perp)} = |F_{\parallel(\perp)}(\omega)|^2$, $\phi_{\parallel(\perp)}(\omega) = \arg[F_{\parallel(\perp)}(\omega)]$, $|\delta| = k\pi + \delta_1$, 这里 $k = 0, 1$ 及 $|\delta_1| \in [0, \pi]$, 椭圆率范围为 $0 \leq \varepsilon \leq 1$, 线偏振、椭圆偏振及圆偏振分别对应于 $\varepsilon = 0$, $0 < \varepsilon < 1$ 及 $\varepsilon = 1$. 由 (3) 式可知, 当平行和垂直高次谐波的相位差 δ_1 为 $\pi/2$, 且垂直谐波强度接近平行谐波强度时, 显示高的椭圆率 [12].

2.2 解析方法

基于强场近似, 对于原子和对称分子, 由于势的对称性, 只辐射奇次谐波, 其产生路径可简单地表示为 $\langle \mathbf{p} | \mathbf{e}_x \cdot \mathbf{r} | 0 \rangle_i \langle 0 | \mathbf{e} \cdot \mathbf{r} | \mathbf{p} \rangle_r$, 意味着电子从相同的初始态 $|0\rangle$ 电离并与之复合, 其中初始态 $|0\rangle$ 具有确定的宇称; 在高次谐波产生中, 偶极子矩阵元 $\langle \mathbf{p} | \mathbf{e}_x \cdot \mathbf{r} | 0 \rangle_i$ 为与电子沿激光极化方向 \mathbf{e}_x 的电离有

关, $\langle 0 | \mathbf{e} \cdot \mathbf{r} | \mathbf{p} \rangle_r$ 与电子沿 e 方向的复合有关; 此外, 在电离过程中, 激光场导致库仑势明显畸变; 因此, 电离过程与分子结构无关, 对于谐波的产生, 只有返回过程与分子结构紧密相关的。

对于对称分子 H_2^+ , $D_{//}(\omega, \theta) = \langle 0 | \mathbf{e}_x \cdot \mathbf{r} | \mathbf{p} \rangle_r$ 是连续态 $|\mathbf{p}\rangle$ 和基态 $|0\rangle$ 之间的偶极矩阵元, 假设对称分子 H_2^+ 的基态波函数为 $\psi_0(\mathbf{r}, \theta) = \langle \mathbf{r} | 0 \rangle = N_f (e^{-\kappa r_a} + e^{-\kappa r_b})$, $r_a = |\mathbf{r} - \mathbf{R}_1|$, $r_b = |\mathbf{r} - \mathbf{R}_2|$ 及 $\kappa = \sqrt{2I_p}$, N_f 是归一化系数且 I_p 是基态 $|0\rangle$ 的电离能. 连续态 $|\mathbf{p}\rangle$ 由平面波函数 $[e^{i\mathbf{p}_k \cdot \mathbf{r}}]$ 近似得到, 动量 p_k 为连续态 $|\mathbf{p}\rangle$ 的有效动量, 其中 $p_k = |\mathbf{p}_k| = [2(I_p + E_p)]^{1/2}$ 考虑了库仑效应^[34], $E_p = \omega - I_p$ 为连续态 $|\mathbf{p}\rangle$ 的能量, 对于 H_2^+ 分子, 沿激光极化方向的偶极矩阵元计算公式为^[35]

$$D_{//}(\omega, \theta) \propto G(\omega, \theta) D_a, \quad (4)$$

式中 $G(\omega, \theta) = 2\cos[p_k R/2 \cos \theta]$, $D_a = \int d\mathbf{r} [e^{-\kappa r} e_{//} \cdot \mathbf{r} \sin(\mathbf{p}_k \cdot \mathbf{r})]$ 为原子的偶极矩阵元。

基于强场近似, 谐波辐射谱由分子结构决定^[2]:

$$S_{//}(\omega, \theta) \sim |a(\omega) D_{//}(\omega, \theta)|^2, \quad (5)$$

式中, $a(\omega)$ 是连续态电子隧穿时的谱振幅, 不随分子取向角而变化, 且不依赖于连续态 $|\mathbf{p}\rangle$ 的能量, 因此可得沿激光偏振方向的高次谐波谱 $S_{//}(\omega, \theta)$ 与对应偶极矩 $D_{//}(\omega, \theta)$ 之间的定性关系, 进而可知隧

穿图像成立。

3 计算结果和讨论

为研究高频激光场中 H_2^+ 分子高次谐波偏振特性受核间距及激光参数的影响, 在以下讨论中, 主要关注三种核间距情况 $R = 1.7$ a.u., $R = 2$ a.u. 和 $R = 2.3$ a.u., 为便于比较, 不同核间距的 H_2^+ 分子具有相同的电离能 $I_p = 1.1$ a.u., 另外, 为研究 H_2^+ 分子谐波椭圆率对取向的依赖性, 以下讨论主要关注三个典型角度 $\theta = 10^\circ, 30^\circ, 50^\circ$ 。

3.1 干涉效应

图 1(a)、图 1(b) 和图 1(c) 分别表示由 (3) 式计算的 H_2^+ 分子在核间距 $R = 1.7$ a.u., $R = 2$ a.u. 和 $R = 2.3$ a.u. 及不同取向角下的谐波椭圆率曲线, 随着核间距的变化, 谐波最大椭圆率所处的谐波阶的位置会改变; 图 1 中第二、三行图是与谐波椭圆率曲线对应的角依赖的谐波谱和偶极子曲线, 其与谐波椭圆率曲线趋势相反, 在不同取向角下, 图 1(d)、图 1(e) 及图 1(f) 中谐波相对产量与图 1(g)、图 1(h) 及图 1(i) 中相应偶极子曲线符合的很好, 如 (5) 式所述, (5) 式是基于隧穿图像得到的, 该现象表示隧穿图像在高频激光场中成立, 同时 (5) 式中偶极

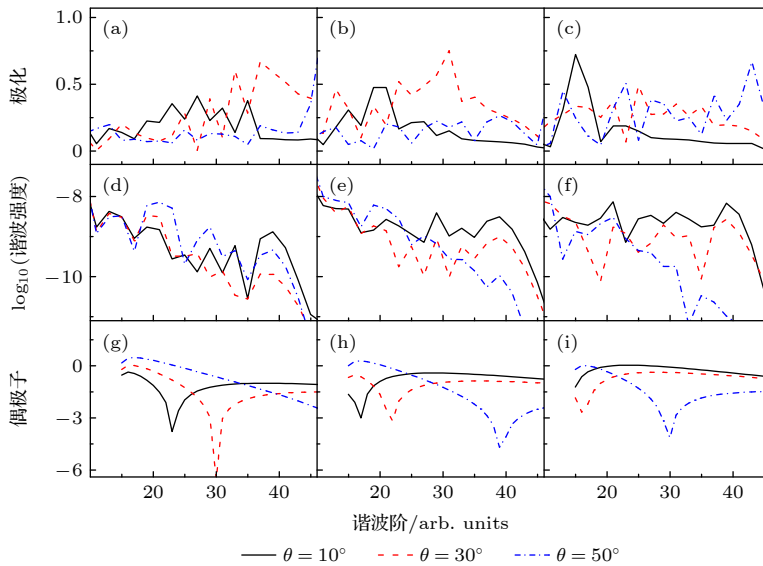


图 1 H_2^+ 分子在激光强度 $I = 4 \times 10^{14}$ W/cm² 及波长 $\lambda = 600$ nm 时谐波的椭圆率、谐波谱及偶极子的比较 (a), (d), (g) 核间距为 $R = 1.7$ a.u.; (b), (e), (h) 核间距为 $R = 2$ a.u.; (c), (f), (i) 核间距为 $R = 2.3$ a.u.

Fig. 1. Comparison of the harmonic ellipticity, harmonic spectra and corresponding dipole for H_2^+ molecules at the laser intensity $I = 4 \times 10^{14}$ W/cm² and wavelength $\lambda = 600$ nm: (a), (d), (g) $R = 1.7$ a.u.; (b), (e), (h) $R = 2$ a.u.; (c), (f), (i) $R = 2.3$ a.u..

子的连续态 $|\mathbf{p}\rangle$ 由平面波函数 $|e^{i\mathbf{p}\cdot\mathbf{r}}\rangle$ 近似得到, 进而可得在高频激光场中平面波近似也成立. 但是谐波谱和偶极子曲线之间存在显著的差异, 图 1(g)、图 1(h) 及图 1(i) 中的偶极子曲线展示了一个清晰的最小值, 这个最小值起源于两中心干涉效应, 但在图 1(d)、图 1(e) 及图 1(f) 中对应的谐波谱曲线上未观察到该最小值, 文献 [27] 中详细讨论了高频激光场中对称分子谐波谱上由两中心干涉效应而导致的最小值消失的原因, 即在短波长 (高频激光场) 的情况下, 由于激发态对分子高次谐波的重要贡献, 导致干涉引起的凹槽在高次谐波谱中消失. 通过对谐波椭圆偏率曲线及相应偶极子曲线的深入比较发现偶极子曲线上的最小值对应最大椭圆偏率所处的谐波阶位置, 暗示了通过谐波椭圆偏率测量来探测高频激光场中对称分子偶极子上的最小值是可行的, 因此在高频激光场中, 两中心干涉效应是谐波椭圆偏率的起源. 因为在 $\theta = 50^\circ$ 下偶极子曲线上未出现最小值, 因此谐波在 $\theta = 50^\circ$ 基本不极化, 即使在某些区域有极化, 也是因为两中心干涉效应, 谐波在 $\theta = 50^\circ$ 不极化这一现象说明在没有干涉效应的情况下 (5) 式依然是成立的, 即在两中心干涉效应的情况下, 隧穿图像和平面波近似在高频激光场中都成立.

与图 1 类似, 图 2 和图 3 给出了激光强度 $I = 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 、波长 λ 分别为 400 和 500 nm 的谐波椭圆偏率曲线、谐波谱曲线和偶极子曲线. 随着

激光参数的变化, 由 (4) 式计算的偶极子曲线上的最小值移向其他谐波阶, 如图 2 和图 3 第三行所示. 同时图 2 和图 3 中的谐波相对产量与相应偶极子曲线依旧一一对应, 如 (5) 式所述, 上述现象说明随着激光参数的改变, 隧穿图像和平面波近似在高频激光场中成立, 另外, 由于图 2(d)、图 2(e)、图 2(f) 和图 3(d)、图 3(e) 和图 3(f) 中谐波谱曲线上的最小值未出现, 谐波的最大椭圆偏率仍旧对应偶极子曲线最小值所在的谐波阶, 因此, 两中心干涉效应为谐波最大椭圆偏率的起源. 最重要的是随着激光参数和核间距的改变, 谐波在 $\theta = 50^\circ$ 基本不极化, 即使在某些区域有极化, 也是因为两中心干涉效应, 如图 2 和图 3 所示. 因此谐波在 $\theta = 50^\circ$ 不极化这一现象说明在没有干涉效应的情况下 (5) 式依然是成立的, 因此椭圆偏率测量至少在本文计算的 Keldysh 参数范围内 ($1.028 \leq \gamma \leq 1.377$) 给出了 (5) 式的适用性.

3.2 激发态效应

由于激发态对分子高次谐波的重要贡献, 导致干涉效应引起的凹槽在高次谐波谱中消失, 那么激发态是如何影响谐波椭圆偏率的? 因此在图 4 中, 研究了激发态对谐波椭圆偏率特性的影响, 将 (1) 式计算的结果 (实线) 与 (2) 式计算的结果 (短虚线) 进行比较, 其中 (1) 式包含所有束缚态对高次谐波的贡献 (精确谐波), (2) 式只考虑电子返回到基态对

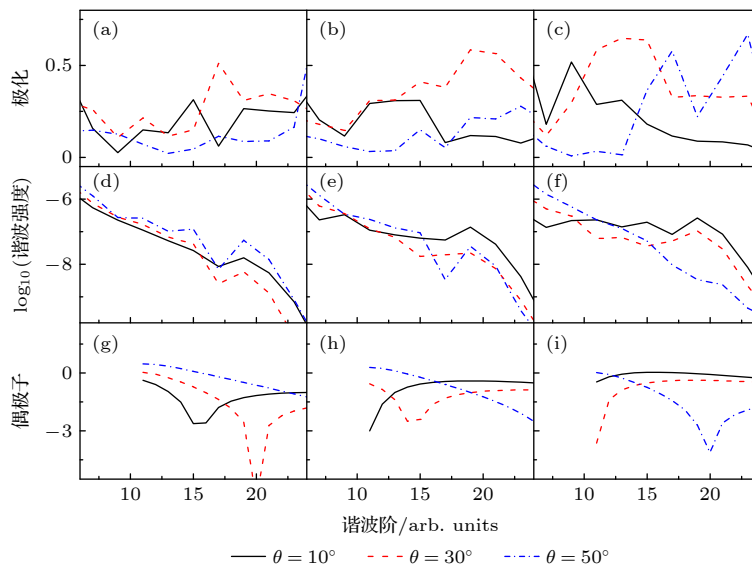


图 2 与图 1 相同, 但激光强度 $I = 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 和波长 $\lambda = 400 \text{ nm}$

Fig. 2. Same as Fig.1, but the laser intensity $I = 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ and wavelength $\lambda = 400 \text{ nm}$.

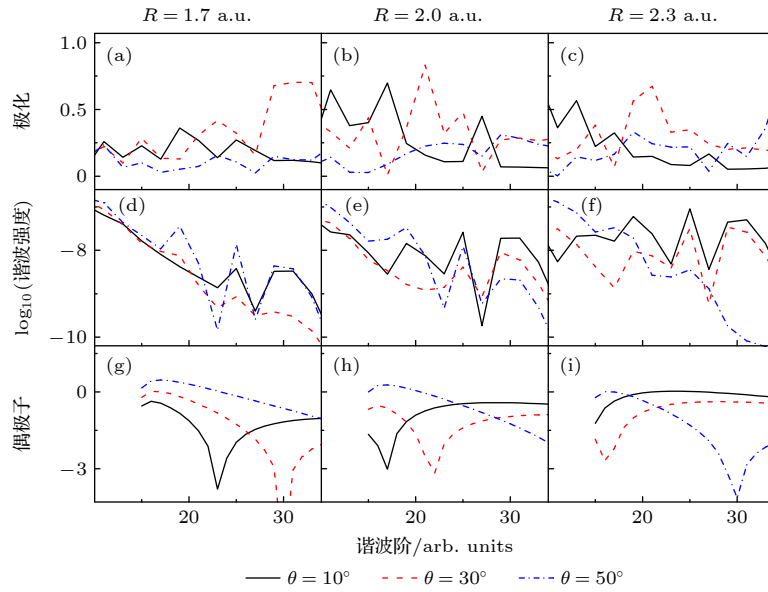


图 3 与图 1 相同, 但激光强度 $I = 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 和波长 $\lambda = 500 \text{ nm}$
 Fig. 3. Same as Fig.1, but the laser intensity $I = 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ and wavelength $\lambda = 500 \text{ nm}$.

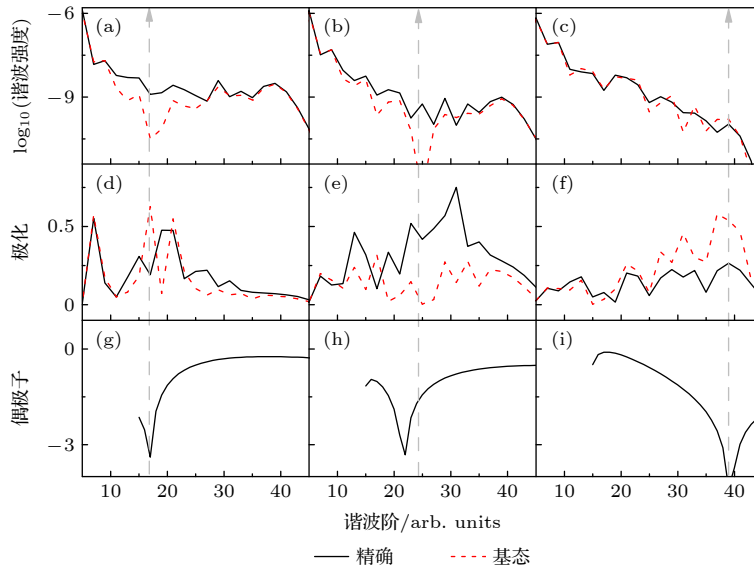


图 4 H_2^+ 分子 $I = 4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $\lambda = 600 \text{ nm}$ 及 $R=2 \text{ a.u.}$ 时谐波谱、偶极子和谐波椭圆率的比较 (a), (d), (g) $\theta = 10^\circ$; (b), (e), (h) $\theta = 30^\circ$; (c), (f), (i) $\theta = 50^\circ$
 Fig. 4. Comparison of the harmonic ellipticity, harmonic spectra and corresponding dipole for H_2^+ molecules with $R=2 \text{ a.u.}$ at the laser intensity $I = 4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ and wavelength $\lambda = 600 \text{ nm}$: (a), (d), (g) $\theta = 10^\circ$; (b), (e), (h) $\theta = 30^\circ$; (c), (f), (i) $\theta = 50^\circ$.

高次谐波的贡献 (基态谐波); 对于图 4(a) 中 $\theta = 10^\circ$ 的小角及图 4(b) 中 $\theta = 30^\circ$ 的中间角情况, 只跃迁至基态的谐波谱显示一个大的抑制区域, 其在精确谐波谱中消失. 另外, 图 4(a) 和图 4(b) 中基态谐波 (短虚线) 上的抑制区域对应于图 4(g) 和图 4(h) 中偶极子曲线上的凹槽, 如虚线箭头所示, 该偶极子曲线由 (4) 式计算得到; 结果表明, 激发态在干涉诱导凹槽区影响高次谐波的产生; 然而,

在不同取向角下, 激发态对谐波椭圆率的影响是不同的, 如图 4(d)–(f) 所示; 例如, 对于图 4(d) 中 $\theta = 10^\circ$ 的情况, 基态谐波的椭圆率 (短虚线) 显示了一个尖锐的峰值, 该曲线由 (2) 式代入 (3) 式计算得到, 而精确谐波椭圆率 (实曲线) 峰值显示了更广泛的分布, 该实曲线由 (1) 式代入 (3) 式计算得到; 图 4(e) 中 $\theta = 30^\circ$ 的中间角情况则相反, 由 (2) 式计算的跃迁回基态的谐波谱在此角度上的椭圆

偏率很小(短虚线), 而由(1)式计算的精确谐波(实曲线)具有显著的椭圆偏率. 对于 $\theta = 50^\circ$ 的大角情况, 在两中心干涉区, 由(2)式计算的基态谐波谱略偏离由(1)式计算的精确谐波谱, 如图4(c)所示; 然而, 当图4(f)中的实曲线显示小的椭圆偏率时, 图4(f)中的短虚线则显示大的椭圆偏率.

下面, 探讨了激发态对谐波椭圆偏率影响的起源. 对于图5中 $\theta = 10^\circ$ 的情况, 其具有与图4相同的激光和分子参数; 在图5(a)中, 在由(2)式计算的基态谐波谱(短虚线)上可观察到大的抑制区域, 该区域在由(1)式计算的精确谐波谱(实曲线)中消失; 然而对于图5(c)中垂直谐波情况, 由(2)式计算的基态谐波谱(短虚线)与由(1)式计算的精确谐波谱(实曲线)非常相似; 上述现象表明, 激发态对平行和垂直谐波的影响不同, 导致精确谐波的相位差较大, 如图5(e)所示. 然而, 当分别比较图5(b)中由(1)式计算的平行和垂直谐波谱和图5(d)中由(2)式计算的平行和垂直谐波谱时, 发现在图5(b)的整个谐波平台区域, 精确垂直谐波的相对产量低于精确平行谐波的; 在此情况下, 在两中心干涉区, 由于消除了激发态对高次谐波的贡献, 由(2)式计算的基态垂直谐波的相对产量与基态平行谐波的相当, 如图5(d)所示; 因此, 在两中心干涉区, 由

(1)式计算的精确垂直谐波和精确平行谐波之间小的强度比归因于激发态对谐波的贡献, 该影响导致图5(f)中精确谐波谱显示小的椭圆偏率. 换言之, 即使精确谐波的相位差大于基态谐波的相位差, 但由(1)式获得的垂直和平行谐波之间的强度比非常小, 导致图5(f)中精确谐波频谱显示出小的椭圆偏率, 在这种情况下, 激发态抑制了谐波的椭圆偏率.

对于图6中 $\theta = 30^\circ$ 的中间角, 在平台区域, 激发态对平行和垂直高次谐波的影响与图5类似, 即激发态对平行和垂直谐波的贡献不同, 导致精确谐波产生较大的相位差. 此外, 在图6(b)的两中心干涉区, 由(1)式计算的精确垂直谐波强度与精确平行谐波强度相当, 由于图5(b)中精确垂直谐波与精确平行谐波的强度比小, 因此 $\theta = 10^\circ$ 时图5(f)中精确谐波的椭圆偏率低于 $\theta = 30^\circ$ 时图6(f)中精确谐波的椭圆偏率, 这些数值分析揭示了为什么图1(a)中 $\theta = 10^\circ$ 的谐波椭圆偏率峰值低于图1(a)中 $\theta = 30^\circ$ 的谐波椭圆偏率峰值. 且由于激发态的缺失, 由(2)式计算的图6(a)中基态谐波谱(短虚线)出现了一个较宽的抑制区域, 进而使得该区域基态平行谐波的相对产量偏离基态垂直谐波的相对产量, 如图6(d)所示. 这些影响表明, 由(1)式计算的精确垂直谐波和精确平行谐波之间大的强度比归因于激发态

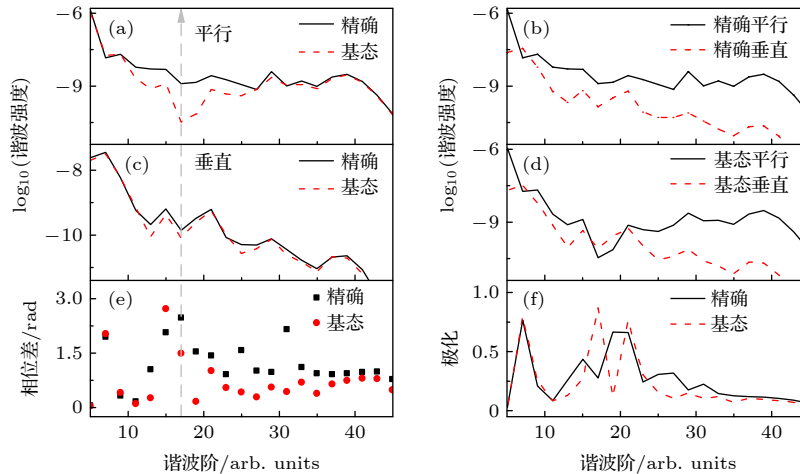


图5 H_2^+ 分子 $I = 4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $\lambda = 600 \text{ nm}$, $R=2 \text{ a.u.}$ 及 $\theta = 10^\circ$ 时谐波谱、相位差和谐波椭圆偏率的比较 (a) 精确平行与跃迁回基态的平行谐波谱(基态平行谐波)比较; (b) 精确平行与精确垂直谐波谱的比较; (c) 精确与基态垂直谐波谱的比较; (d) 基态平行与基态垂直谐波谱的比较; (e) 精确与基态谐波相位差比较; (f) 精确与基态谐波椭圆偏率比较

Fig. 5. The comparison of the harmonic spectra, the phase differences δ_1 (d) and the ellipticity of harmonic for H_2^+ molecules with $R=2 \text{ a.u.}$ and $\theta = 10^\circ$ at the laser intensity $I = 4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ and wavelength $\lambda = 600 \text{ nm}$: (a) The comparison of accurate parallel harmonic and the parallel harmonic that transition back to ground state (ground-state parallel harmonic); (b) the comparison of accurate parallel and perpendicular harmonic; (c) comparison between accurate and ground state perpendicular harmonic spectrum; (d) comparison between ground-state parallel and ground-state perpendicular harmonic; (e) the comparison of the phase difference of accurate and ground-state harmonic; (f) comparison between accurate and ground-state harmonic ellipticity.

对谐波的贡献, 因此由 (1) 式计算的精确谐波谱显示高的椭偏率, 如图 6(f) 所示; 激发态增强了谐波的椭偏率.

应当指出, 对于图 7 中 $\theta = 50^\circ$ 的情况, 激发态在两中心干涉区对平行谐波具有较小的影响, 如图 7(a) 所示; 在整个平台区域, 激发态不影响垂直谐波, 见图 7(c), 该结果导致在两中心干涉区, 由 (2) 式计算的图 7(d) 中垂直和平行谐波之间的强度比大于由 (1) 式计算的图 7(b) 中垂直和平行谐波的强度比, 且使得精确谱的相位差 $\delta_1 \sim 0.16\pi$; 相应的在两中心干涉区, 由 (1) 式计算的谐波谱具有低椭偏率, 因此, 激发态抑制了谐波的椭偏率.

为使研究更全面, 在不同取向角及其他激光参数下, 例如取向角 $\theta = 20^\circ$, $\theta = 40^\circ$, $\theta = 60^\circ$, 激光强度 $I = 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 及波长 $\lambda = 400 \text{ nm}$, $\lambda =$

500 nm, 检验了谐波椭偏率的行为, 上述观察到的现象基本不变, 即在两中心干涉区, 激发态对平行谐波有重要影响, 但垂直谐波不受激发态影响, 进而导致精确谐波和基态谐波相位差不同; 且在不同取向角, 激发态对谐波椭偏率的影响是不同的. 总的来说, 虽然由 (1) 式计算的精确垂直谐波的相对产量低于 (高于) 精确平行谐波的, 但在两中心干涉区, 由于激发态的缺失, 由 (2) 式计算的基态垂直谐波的强度更接近 (远离) 基态平行谐波的强度. 相应的, 由 (1) 式计算的精确垂直谐波和精确平行谐波之间小 (大) 的强度比归因于激发态对谐波的贡献. 因此, 可得出结论, 而由 (1) 式代入 (3) 式计算的精确谐波椭偏率具有低 (高) 的椭偏率, 激发态抑制 (增强) 了谐波的椭偏率, 大角度谐波椭偏率的起源与图 7(f) 中的曲线相似.

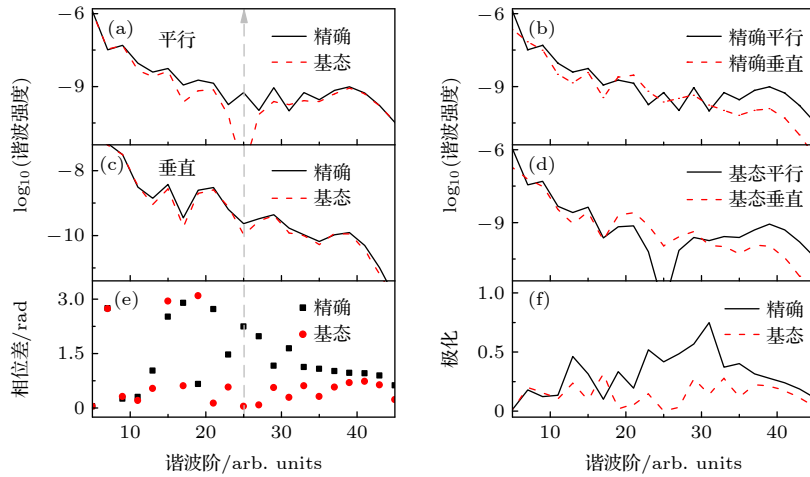


图 6 与图 5 相同, 但 $\theta = 30^\circ$.
Fig. 6. Same as Fig. 5, but $\theta = 30^\circ$.

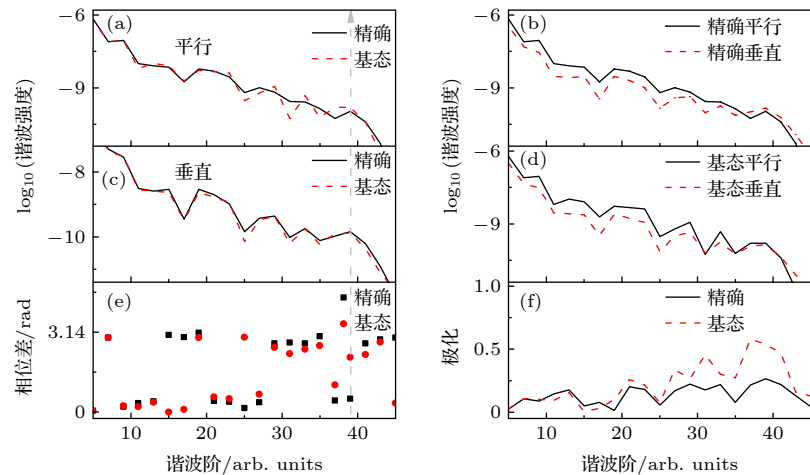


图 7 与图 5 相同, 但 $\theta = 50^\circ$.
Fig. 7. Same as Fig.5, but $\theta = 50^\circ$.

需要强调的是在上述讨论中, 我们没有考虑较大核间距的情况. 对于高频激光场的情况, 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^[36] 例如 $R = 4$ a.u., 此时基态和激发态强耦合, 其贡献可比. 关于高频场中核间距大的分子谐波椭圆率的研究, 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高频强激光场作用下对称分子 H_2^+ 高次谐波的椭圆率特性. 在研究中, 利用谐波椭圆率与相应谐波谱和偶极子进行对比, 并在不同激光强度之间、不同激光波长之间、不同核间距之间及不同取向角之间进行对比、分析计算结果, 结果表明: 激光强度、激光波长、核间距及取向角对谐波椭圆率的影响不同, 特别是在分子两中心干涉区, 谐波椭圆率通常较强, 在该区域, 激发态对谐波有重要影响, 但激发态对谐波椭圆率的影响在不同角度是不同的; 并分析了其原因, 即当精确垂直谐波的相对产量低于 (高于) 精确平行谐波的相对产量, 但在两中心干涉区, 由于激发态的缺失, 跃迁回基态的垂直谐波的强度更接近 (远离) 基态平行谐波的强度; 相应地, 精确垂直谐波和精确平行谐波之间小 (大) 的强度比归因于激发态对谐波的贡献; 因此, 精确谐波具有低 (高) 的椭圆率, 激发态抑制 (增强) 了谐波的椭圆率. 此外, 在高次谐波平台区, 谐波的相对产量可通过相应偶极子很好地预测, 说明隧穿图像和平面波近似在高频激光场中的适用性. 由于对称势的两中心特性, 高次谐波在干涉区出现高的椭圆率, 结果表明, 椭圆率测量也可用于探测对称分子的结构及追踪其激发态的动力学.

参考文献

[1] L'Huillier A, Schafer K J, Kulander K C 1991 *J. Phys. B* **24** 3315
 [2] Itatani J, Levesque J, Zeidler Hiromichi Niikura D, Pepin H, Kieffer J C, Corkum P B, Villeneuve D M 2004 *Nature* **432**

867
 [3] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
 [4] Le V H, Le A T, Xie R H, Lin C D 2007 *Phys. Rev. A* **76** 013414
 [5] Vozzi C, Negro M, Calegari F, Sansone G, Nisoli M, Silvestri S De, Stagira S 2011 *Nat. Phys.* **7** 822
 [6] Smirnova O, Mairesse Y, Patchkovskii S, Dudovich N, Villeneuve D, Corkum P, Ivanov M Yu 2009 *Nature* **460** 972
 [7] Shafir D, Soifer H, Bruner B D, Dagan M, Mairesse Y, Patchkovskii S, Ivanov M Yu, Smirnova O, Dudovich N 2012 *Nature* **485** 343
 [8] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
 [9] Lewenstein M, Balcou Ph, Ivanov M Yu, L'Huillier Anne, Corkum P B 1994 *Phys. Rev. A* **49** 2117
 [10] Keldysh L V 1965 *Sov. Phys. JETP* **20** 1307
 [11] Kim V V, Ganeev R A, Boltaev G S, Alnaser A S 2020 *J. Phys. B* **53** 155405
 [12] Dong F L, Tian Y Q, Yu S J, Wang S, Yang S P, Chen Y J 2015 *Opt. Express* **23** 18106
 [13] Zhou X, Lock R, Wagner N, Li W, Kapteyn H C, Murnane M M 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 073902
 [14] Levesque J, Mairesse Y, Dudovich N, epin H P, Kieffer J C, Corkum P B, Villeneuve D M 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 243001
 [15] Ramakrishna S, Sherratt P A J, Dutoi A D, Seideman T 2010 *Phys. Rev. A* **81** 021802(R)
 [16] Strelkov V V, Gonoskov A A, Gonoskov I A, Ryabikin M Yu 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 043902
 [17] Akagi H, Otobe T, Staudte A, Shiner A, Turner F, Dörner R, Villeneuve D M, Corkum P B 2009 *Science* **325** 1364
 [18] Bian X B, Bandrauk A D 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 093903
 [19] Chen Y J, Zhang B 2011 *Phys. Rev. A* **84** 053402
 [20] Qin M, Zhu X, Zhang Q, Hong W, Lu P 2011 *Opt. Express* **19** 25084
 [21] Du H, Luo L, Wang X, Hu B 2012 *Phys. Rev. A* **86** 013846
 [22] Yu S J, Zhang B, Li Y P, Yang S P, Chen Y J 2014 *Phys. Rev. A* **90** 053844
 [23] Barreau L, Veyrinas K, Gruson V, Weber S J, Auguste T, Hergott J F, Lepetit F, Carré B, Houver J -C, Dowek D, Salières P 2018 *Nat. Commun.* **9** 4727
 [24] Sun F J, Chen C, Li W Y, Liu X, Li W, Chen Y J 2021 *Phys. Rev. A* **103** 053108
 [25] Habibović D, Milošević D B 2020 *Photonics* **7** 110
 [26] Huo X X, Xing Y H, Qi T, Sun Y, Li Bo, Zhang J, Liu X S 2021 *Phys. Rev. A* **103** 053116
 [27] Chen Y J 2011 *Phys. Rev. A* **84** 043423
 [28] Chen Y J, Zhang B 2012 *Phys. Rev. A* **86** 023415
 [29] Bian X B, Bandrauk A D 2012 *Phys. Rev. A* **86** 053417
 [30] Miao X Y, Zhang C P 2014 *Phys. Rev. A* **89** 033410
 [31] Han Y C 2013 *Phys. Rev. A* **87** 043404
 [32] Feit M D, Jr Fleck J A, Steiger A 1982 *J. Comput. Phys.* **47** 412
 [33] 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
 [34] Yu S J, Li W Y, Li Y P, Chen Y J 2017 *Phys. Rev. A* **96** 013432
 [35] Chen Y J, Hu B 2009 *J. Chem. Phys.* **131** 244109
 [36] Chen Y J, Chen J, Liu J 2006 *Phys. Rev. A* **74** 063405

Ellipticity properties of symmetric molecules H_2^+ in strong and short-wavelength laser fields*

Yu Shu-Juan Liu Zhu-Qin Li Yan-Peng[†]*(College of Physics and Electronic Information, Yan'an University, Yan'an 716000, China)*

(Received 12 October 2022; revised manuscript received 12 November 2022)

Abstract

Ellipticity properties of high-order harmonic generation (HHG) from symmetric molecules H_2^+ in strong and short wavelength (less than 800nm) laser fields are numerically investigated. In this study, the ellipticity of harmonic is compared with the corresponding harmonic spectrum and dipole, and the calculation results are analyzed and the results obtained at different laser intensities, different laser wavelengths, different internuclear distances and different orientation angles are compared with each other. Our numerical simulations show that the influences of laser intensity, laser wavelength, internuclear distance and orientation angle on the ellipticity of harmonic are different. Especially in a two-center interference region, the excited state plays an important role in the HHG, but the effects of the excited state on the ellipticity of harmonic are different at different orientation angles. Further analysis shows that these different effects are due to the influence of the excited state on the harmonic yield. Using the numerical scheme, it is determined that in the two-center interference region, the excited state plays an important role in the parallel harmonic spectrum, while the effects of the excited state on the perpendicular harmonics at different angles are all very small, which results in different phase differences between the accurate harmonic spectrum and the harmonic spectrum only returning to the ground state. Overall, the relative yields of the accurate perpendicular harmonics are lower (higher) than those of the accurate parallel harmonics, but the intensities of the perpendicular harmonics, which only return to the ground state, are comparable to (or farther away from) those of the parallel harmonics which are only to return to ground state in the two-center interference regions. Therefore, the small (large) intensity ratio between the accurate perpendicular harmonic and accurate parallel harmonic can be attributed to the contributions of the excited state to harmonics. Then we can conclude that the harmonic spectra that only go back to the ground state show high (small) ellipticity, whereas the accurate harmonic spectra show small (high) ellipticity, resulting in a strong angle dependence of the influence of the excited state on the ellipticity of harmonic. In addition, in the high-order harmonic plateau region, the relative yields of harmonics can be well predicted by the corresponding dipoles, indicating the applicability of tunneling pictures and plane wave approximation in the strong and short-wave laser fields. When the ellipticity of harmonic occurs in the interference region due to the two-center characteristics of the symmetric potential, the results show that the polarization measurement can also be used to detect the structures of symmetric molecules and track the dynamic behaviors of excited states.

Keywords: high-order harmonic generation, strong and short wave laser field, the polarization properties of harmonics, dipole

PACS: 31.15.xv, 33.80.-b, 33.90.+h, 34.90.+q**DOI:** 10.7498/aps.72.20221946

* Project supported by the Young Scientists Fund of National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11904310), and the Special Foundation of Yan'an City, China (Grant No. 2019-03).

[†] Corresponding author. E-mail: liyanpeng1107@163.com

物理学报 Acta Physica Sinica



Chinese Physical Society



Institute of Physics, CAS