

外加静电场下 CO 高次谐波谱*

蓝湾¹⁾ 迟晨阳¹⁾ 郭迎春^{1)†} 杨玉军²⁾ 王兵兵³⁾⁴⁾

1) (华东师范大学物理与电子科学学院, 上海 200241)

2) (吉林大学, 原子分子物理研究所, 长春 130012)

3) (中国科学院物理研究所, 北京凝聚态物理国家研究中心, 光物理重点实验室, 北京 100190)

4) (中国科学院大学, 北京 100049)

(2023 年 4 月 8 日收到; 2023 年 5 月 5 日收到修改稿)

利用分子在强激光中产生的高次谐波谱可以实现对分子结构及分子中电子迁移动力学过程的探测和研究. 本文采用 Lewenstein 模型, 计算了确定取向的 CO 分子在线偏振光与静电场组合作用下产生的高次谐波谱. 结果表明, 针对外加静电场相对分子朝向的两种不同指向, 高次谐波谱分别展现了双平台结构和拉长的单平台结构. 理论分析表明这些谐波谱的结构特点主要来自于不同跃迁通道贡献的相干叠加. 本文为极性分子在非对称场下的高次谐波的形成提供了一个清晰的物理图像, 对调控极性分子的高次谐波, 进而产生可控阿秒脉冲具有科学意义.

关键词: CO 高次谐波, 外加静电场, 分子取向, 双平台结构**PACS:** 42.65.Ky, 33.80.-b, 31.15.B-**DOI:** 10.7498/aps.72.20230560

1 引言

原子和分子在强激光场的作用下, 产生高次谐波, 是强场物理的重要物理现象. CO 是典型的非对称分子, 在强激光场的作用下会展现出丰富且复杂的电子动力学现象. 例如: 偶次谐波的产生^[1,2], 高次谐波谱的芯极化效应^[3,4], 阿秒脉冲的获得^[5,6], 分子轨道的成像^[7], 双心的干涉^[8], 高次谐波产生过程中的电子相关效应^[9], 以及 C 端电离和 O 端电离对高次谐波具有不同的贡献^[10]等.

前期研究表明, 在驱动激光场的基础上外加静电场是研究高次谐波的重要手段. 通过加外电场, 产生的激光相邻半周期内的电场具有非对称性, 从而产生了偶次谐波^[11]. 人们运用偶次谐波在一定范围内与外加静电场成正比的特性, 再现了太赫兹

脉冲的波形^[12]. 同时, 外加静电场可以对相邻半周期产生的最大的谐波光子能量进行不同的调制, 因此通过控制外加静电场可以控制量子路径, 从而选取合适的谐波波段实现短阿秒脉冲的合成^[12-16]. Serrat 和 Biegert^[17]还证明了在空间增加周期静电场, 可以提高高次谐波的转化效率.

场的不对称造成的一个重要现象是谐波谱中双平台结构的产生. 短脉冲下载波相位的变化, 会造成不对称的激光场, 使得原子产生的高次谐波谱中出现双平台结构^[18-20]. 极性分子由于本身的不对称性, 其产生的谐波双平台结构比原子的双平台结构要复杂, 与分子取向相关, 文献^[21]基于此来实现分子取向度的测量. 到目前为止, 研究极性分子的谐波谱双平台效应都是采用数值计算方法来实现的, 物理图像的获取是不直接的.

本文研究非对称场下 CO 高次谐波谱的双平

* 国家自然科学基金 (批准号: 12074418, 11774411, 92250303) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yeguo@phy.ecnu.edu.cn

台特征. 非对称场采用线偏振激光场结合外加静电场来实现. 采用 Lewenstein 理论^[22], 将 CO 的谐波谱分解成 C 端电离和 O 端电离为特征的通道贡献的相干叠加, 并借助经典模型分析不对称场对这些通道产生谐波谱的影响, 进而给出一个清晰的物理图像.

2 原理

基于 Lewenstein 理论, 忽略激发态的影响, 分子的波函数是无外场时的基态波函数和连续态的线性叠加, 分子在激光场中任一 \mathbf{n} 方向 t 时刻的偶极矩可表示为 (除特殊说明, 通篇采用原子单位 (a.u.)):

$$\mathbf{x}_n(t) = i \int_0^\infty d\tau \int d^3\mathbf{p} \mathbf{E}(t-\tau) \cdot \mathbf{d}[\mathbf{p} - \mathbf{A}(t-\tau)] \times \mathbf{d}^*[\mathbf{p} - \mathbf{A}(t)] \cdot \mathbf{n} e^{-iS(p,t,\tau)} + \text{c.c.} \quad (1)$$

其中, \mathbf{p} 为电子的正则动量; \mathbf{E} 为线偏振的激光场与外加静电场之和, 将研究取向固定在 z 轴上的 CO 分子, 线偏振激光场的偏振方向和外加静电场的方向都在 z 轴上, 所以总电场为

$$\mathbf{E} = E_0 [\cos(\omega t) + \beta] \mathbf{e}_z. \quad (2)$$

其中, E_0 为激光场幅值, ω 为激光角频率, \mathbf{e}_z 是 z 方向的单位矢量, \mathbf{A} 为矢势, 且

$$\mathbf{A} = -\frac{E_0}{\omega} [\sin(\omega t) + \omega\beta t] \mathbf{e}_z, \quad (3)$$

矢势与电场的关系为 $\mathbf{E} = -\partial\mathbf{A}/\partial t$. 其中 β 的大小为静电场与驱动激光场的幅值比, β 的正负对应静电场的方向与 z 轴的正方向相同和相反. $|\psi_0\rangle$ 表示无外场时分子的基态波函数, (1) 式中的跃迁偶极矩 \mathbf{d} 和经典作用量 S 分别为

$$\mathbf{d}(\mathbf{p}) = \langle \mathbf{p} | r | \psi_0 \rangle,$$

$$S(\mathbf{p}, t, \tau) = \int_{t-\tau}^t \left\{ [\mathbf{p} - \mathbf{A}(t'')]^2 / 2 + I_p \right\} dt''.$$

其中 I_p 为分子的电离势能. 将 $\mathbf{n} = \mathbf{e}_z$ 代入 (2) 式, 产生 z 方向的偶极矩为

$$\begin{aligned} x(t) = & i \int_0^\infty d\tau \int d^3\mathbf{p} \mathbf{E}(t-\tau) d_z [\mathbf{p} - \mathbf{A}(t-\tau)] \\ & \times \mathbf{d}_z^* [\mathbf{p} - \mathbf{A}(t)] e^{-iS(p,t,\tau)} + \text{c.c.} \end{aligned} \quad (4)$$

(4) 式中偶极跃迁矩的计算需要 CO 的基态波函数. 由 Molpro 量化计算软件获得 CO 的最高占据轨道, 将其作为基态波函数. CO 的最高占据轨道是 C 和 O 的原子轨道的线性组合, 原子轨道由高斯函数组合而成. 为简化计算, 在保留轨道不对称性的前提下, 采用 2 个原子的 p_z 轨道组合来近似基态的波函数. 具体表示为

$$\Psi = \sum_{j=1,2} c_j N_j (z - z_j) e^{-\alpha_j (r - z_j \mathbf{e}_z)^2}, \quad (5)$$

式中, z 和 r 是电子坐标, c_j 和 α_j 是参数. 高斯函数的归一化系数为 $N_j = 2^{7/4} \alpha_j^{5/4} / \pi^{3/4}$; $j = 1, 2$ 分别代表 C 核及 O 核, z_1 和 z_2 为两核的坐标. 坐标原点在 CO 分子的质心上. (5) 式中的参数具体为

$$\begin{aligned} z_1 &= -1.2364 \text{ a.u.}, \quad z_2 = 0.9282 \text{ a.u.}, \\ c_1 &= -0.574717, \quad c_2 = 0.444580, \\ \alpha_1 &= 0.683483 \text{ a.u.}, \quad \alpha_2 = 1.169596 \text{ a.u.} \end{aligned}$$

由波函数计算出跃迁偶极矩, 并代入 (4) 式, 得到 Z 方向的偶极矩为

$$x(t) = \sum_{m,n=1}^2 x_{mn}(t), \quad (6)$$

其中,

$$\begin{aligned} x_{mn}(t) = & i \int_0^\infty d\tau \int d^3\mathbf{p} E_0 [\cos(t-\tau) + \beta] \cdot \frac{c_m c_n}{\alpha_m^{5/4} \alpha_n^{5/4}} \left\{ 1 - \frac{[\mathbf{p} - \mathbf{A}(t-\tau)]^2}{2\alpha_m} - i[\mathbf{p} - \mathbf{A}(t-\tau)] z_m \right\} \\ & \times \left\{ 1 - \frac{[\mathbf{p} - \mathbf{A}(t)]^2}{2\alpha_n} + i[\mathbf{p} - \mathbf{A}(t)] z_n \right\} \cdot e^{-\frac{[\mathbf{p} - \mathbf{A}(t-\tau)]^2}{4\alpha_m}} e^{-\frac{[\mathbf{p} - \mathbf{A}(t)]^2}{4\alpha_n}} \\ & \times e^{-i[p_z - A_z(t-\tau)]z_m + i[p_z - A_z(t)]z_n - iS(p,t,\tau)} + \text{c.c.} \end{aligned} \quad (7)$$

对于 x_{mn} 是电子从 m 核附近电离, n 核附近复合, 同时发射谐波, 称之为一条通道. 对于 CO 分子, 高次谐波的产生有 4 条通道, 即从 C 端电离的通道 C—C 和 C—O 通道以及从 O 端电离的 O—C

和 O—O 通道. 最后的高次谐波是这 4 条通道的线性叠加.

现在采用鞍点方法实现 (7) 式中对动量的积分. 鞍点方法为

$$\int_{-\infty}^{+\infty} g(x)e^{if(x)} dx \simeq g(x_{st})e^{if(x_{st})} e^{i\frac{\pi}{4}} \sqrt{\frac{2\pi}{f''(x_{st})}}, \quad (8)$$

其中鞍点 x_{st} 满足: $f'(x_{st}) = 0$, $g(x)$ 相对 $e^{if(x)}$ 是缓变函数. 将 (7) 式中等式右边的 e 指数作为快变函数, 由

$$\nabla_p \{-[p_z - A_z(t - \tau)] z_m + [p_z - A_z(t)] z_n - S(\mathbf{p}, t, \tau)\} = 0. \quad (9)$$

从而得到 (7) 式的鞍点为

$$\begin{aligned} x_{mn}(t) = & i \int_0^\infty d\tau E_0 [\cos(t - \tau) + \beta] \cdot \frac{c_m c_n}{\alpha_m^{5/4} \alpha_n^{5/4}} \left\{ 1 - \frac{[p_{st,mn} - \mathbf{A}(t - \tau)]^2}{2\alpha_m} - i [p_{st,mn} - \mathbf{A}(t - \tau)] z_m \right\} \\ & \times \left\{ 1 - \frac{[p_{st,mn} - \mathbf{A}(t)]^2}{2\alpha_n} + i [p_{st,mn} - \mathbf{A}(t)] z_n \right\} \cdot e^{-\frac{[p_{st,mn} - \mathbf{A}(t - \tau)]^2}{4\alpha_m}} e^{-\frac{[p_{st,mn} - \mathbf{A}(t)]^2}{4\alpha_n}} \\ & \times e^{-i[p_{zst,mn} - A_z(t - \tau)] z_m + i[p_{zst,mn} - A_z(t)] z_n - iS(p_{zst,mn}, t, \tau)} \cdot \left(e^{i\frac{\pi}{4}} \sqrt{\frac{2\pi}{\tau}} \right)^3 + \text{c.c.} \end{aligned} \quad (11)$$

最后, 对偶极矩进行傅里叶变换:

$$x(q\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} x(t) e^{iq\omega t} dt, \quad (12)$$

相应的高次谐波强度为

$$I(q\omega) \propto |x(q\omega)|^2. \quad (13)$$

3 结果与分析

采用第 2 节理论方法, 计算 CO 的高次谐波谱如图 1 所示. 所采用的线偏振激光场的电场强度幅值 $E_0 = 0.1214$ a.u., 对应的光强为 5.14×10^{14} W/cm², 波长为 800 nm. 图 1(a), (c) 和 (e) 给出了不同外加静电场情况下的高次谐波谱. 图 1(b), (d) 和 (f) 给出了相应的各个通道对高次谐波的贡献.

图 1(a) 中, 没有外加静电场, 产生的谐波既有奇次谐波, 又有偶次谐波. 谐波的截止阶次 q_0 满足经典预言, 即 $q_0 = (3.17U_p + I_p)/\omega = 73$, 其中电离势能 $I_p = 0.51449$ a.u., 有质动力势能和驱动激光场角频率分别为 $U_p = E_0^2/(4\omega^2) = 1.14$ a.u., $\omega = 0.057$ a.u.. 如第 2 节所述, 谐波谱是由 4 个通道的相干叠加产生的. 图 1(b) 给出了各个通道的贡献, 可见各个通道都既含有偶次谐波, 又含有奇次谐波; 并且 C 端电离的通道 C—C 和 C—O 的贡献占主导地位. 为什么 C—C 和 C—O 通道对谐波的贡献占主导地

$$\begin{aligned} p_{zst,mn} = & \frac{E_0}{\omega^2 \tau} \{ \cos(\omega t) - \cos[\omega(t - \tau)] \} \\ & - \frac{E_0 \beta \tau}{2} (2t - \tau) - \frac{z_m - z_n}{\tau}, \\ p_{xst} = & p_{yst} = 0. \end{aligned} \quad (10)$$

由 (10) 式可见, 对于不同的通道, 鞍点是不同的. 对于 C—C 通道和 O—O 通道, 对应电子电离到复合时刻的位移是 0. 对于 C—O 通道和 O—C 通道, 电子从一个核附近电离, 与另一个核复合.

由此各个通道的偶极矩为

位呢? 这是因为 CO 波函数是不对称的, 波函数中 C 原子的波函数的成分较大, 即 C 端电子的密度较大, 因此电子从 C 端电离的概率比 O 端高 [23], 从而使得电子从 C 端电离后, 产生的高次谐波率就高. 这个结果与文献 [10] 的结论相一致. 这些结果不同于同核分子, 即在同核双原子分子中, 两端通道的贡献将大小相同, 对于偶次谐波, 不同端电离通道的贡献相消干涉为零 [24].

图 1(c) 表明, 当外加静电场的方向从 O 指向 C 时, 高次谐波的平台被拉长, 即谐波的截止阶次变大. 这里取外加静电场参数 $\beta = 0.1$, 获得的最大截止阶次为 $q_2 = 95$. 平台拉长的原因可通过分析 4 个通道的贡献得到. 如图 1(d) 所示, 通道 C—C 和 C—O 通道的谐波平台被拉长, 而且其对总的谐波贡献占主导, 这导致最后的谐波谱平台被拉长. O—O 通道和 O—C 通道都产生了双平台现象. 但是, 由于这 2 个通道的贡献比 C—C 和 C—O 通道的贡献小 1 个数量级以上, 因此被淹没在 C—C 和 C—O 通道的谐波谱中, 总的谐波谱几乎看不到这两个通道的影响.

图 1(e) 表明, 当外加静电场的方向从 C 指向 O 时, 高次谐波谱呈现双平台结构. 第 1 个平台的谐波截止阶次为 $q_1 = 54$; 第 2 个平台的截止阶次为 $q_2 = 95$, 与前面的截止频率 (如图 1(c) 所示) 相

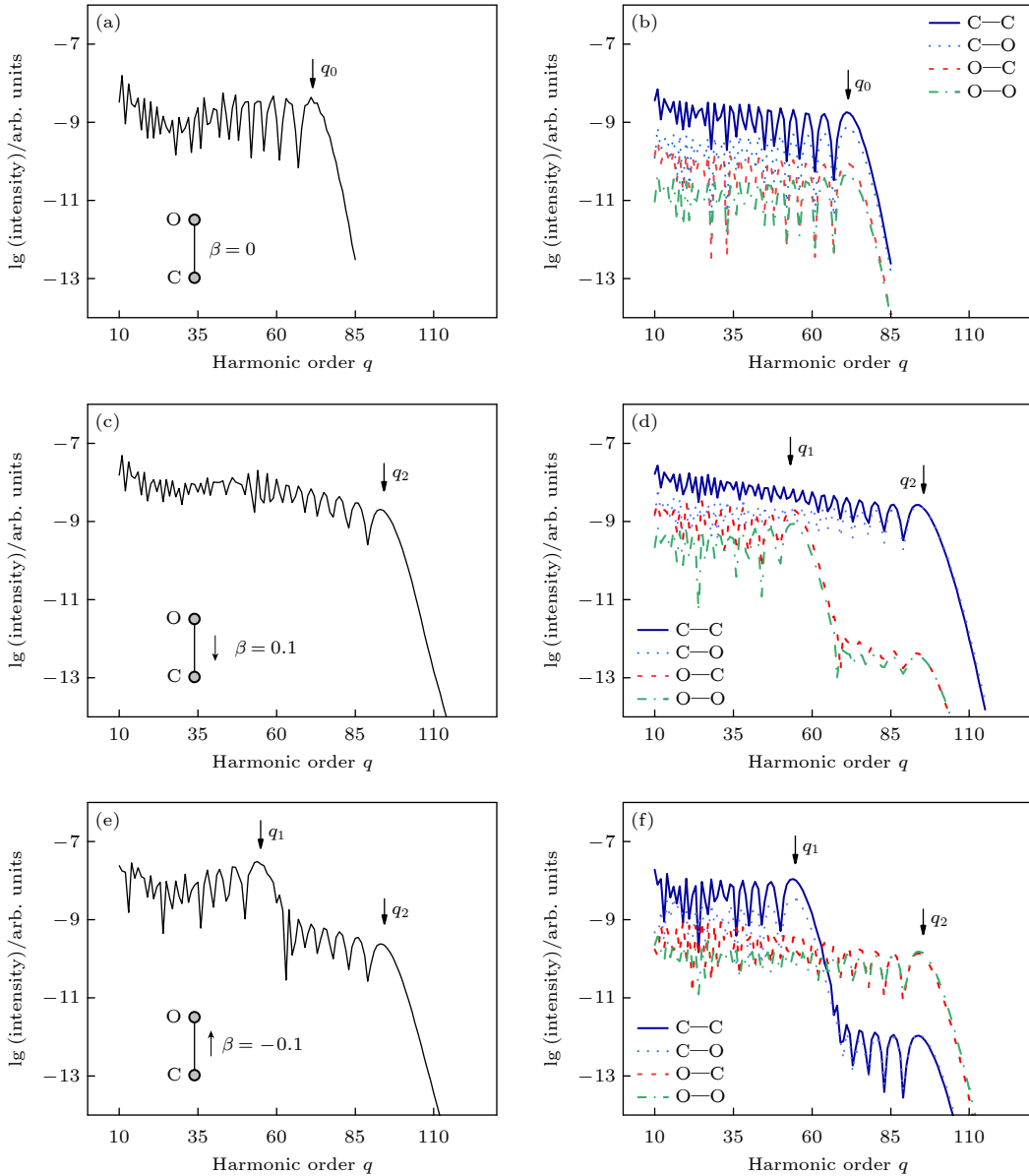


图 1 不同外加静电场情况下的 CO 高次谐波谱 (a) 不外加静电场; (c) 外加静电场的方向从 O 指向 C, 且 $\beta = 0.1$; (e) 外加静电场的方向从 C 指向 O, 且 $\beta = -0.1$; (b), (d), (f) 3 种情况对应各个通道的谐波谱

Fig. 1. High order harmonic spectra of CO with different external static electric field: (a) Without external static electric field; (c) static field pointed from O to C and $\beta = 0.1$; (e) static field pointed from C to O and $\beta = -0.1$; (b), (d), (f) harmonic spectra of each channel for the former three cases.

同. 此双平台现象很容易从图 1(f) 的 4 个通道的贡献来理解, 即外加静电场造成了 C—C 和 C—O 通道的双平台和 O—O 和 O—C 通道的平台被拉长; 最后 4 个通道叠加合成了总的谐波谱的双平台结构. 可以看到, 总的谐波谱第 1 个平台, 来自 C—C 通道和 C—O 通道的贡献; 第 2 个平台来自 O—C 和 O—O 通道的贡献.

为什么外电场方向从 O(C) 指向 C(O) 时, 即 $\beta = 0.1$ ($\beta = -0.1$) 时, O—O 和 O—C (C—C 和 C—O) 通道有 (没有) 双平台, 而 C—C 和 C—O (O—

O 和 O—C) 通道没有 (有) 双平台? 通过分析, 发现是由两点原因综合作用导致: 其一, O 端电离的 O—O 和 O—C 通道和 C 端电离的 C—O 和 C—C 通道对高次谐波的贡献分别对应驱动场相邻的不同半周期与分子的作用; 其二, 外加静电场对相邻半周期内产生的高次谐波最高阶次有不同的调制作用^[11,15].

下面通过比较谐波脉冲的发射时间与经典图像下谐波发射时间, 来考察第 1 个原因. 通过计算每个通道所有高次谐波的叠加, 获得该通道单独存

在时所有谐波形成的脉冲为

$$I_{mn}(t) = \left| \sum_{q \geq 10} x_{mn}(q\omega) e^{-iq\omega t} \right|^2, \quad (14)$$

由脉冲的发射时间得到每个通道的谐波的发射时间段, 如图 2(a)—(l) 所示. 采用经典的三步模型,

可以计算不同外加静电场下复合电子的动能. 在外电场 (2) 式的作用下, 电子的加速度为

$$a = E_0 [\cos(\omega t) + \beta], \quad (15)$$

得到 t 时刻电子的速度为

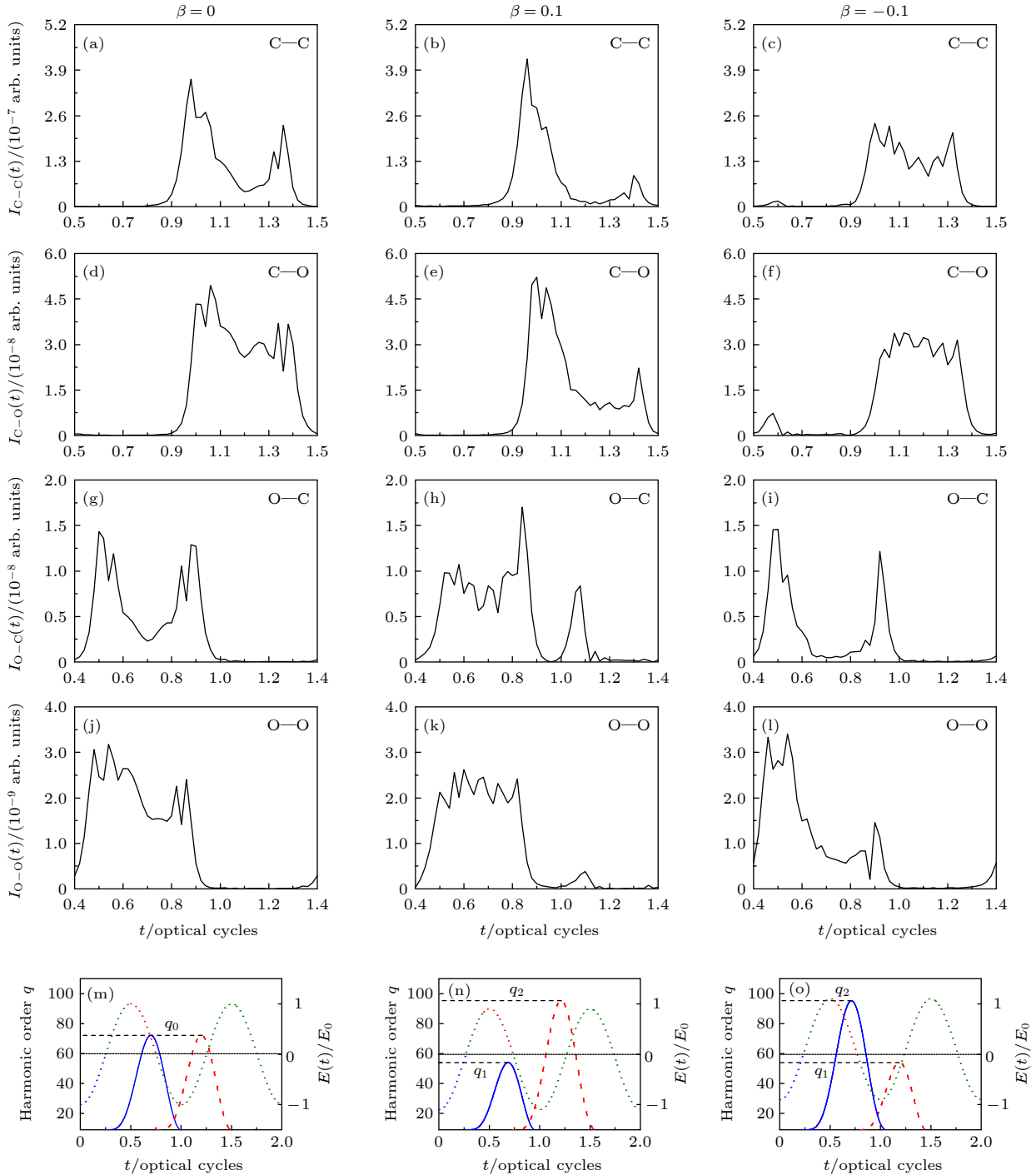


图 2 不同外加静电场下 (a)—(l) 各通道在一个周期内发射的谐波合成的脉冲; (m)—(o) 经典情况发射的谐波阶次 q 和发射时间的关系 (蓝色实线和红色短划线) 以及总电场强度 E 随时间的关系 (点线)

Fig. 2. Under different external static electric fields: (a)—(l) Pulses from all harmonics emitted in each channel within an optical period; (m)—(o) harmonic order q versus harmonic emission time for classical situation (blue solid lines and red dash lines), and also present total electric field E versus time (dot lines).

$$v = \frac{E_0}{\omega} [\sin(\omega t) - \sin(\omega t_0)] + E_0 \beta (t - t_0). \quad (16)$$

电子的初速度为 0. 在位移为零的约束条件下,

$$\Delta x = \frac{E_0}{\omega^2} [\cos(\omega t) - \cos(\omega t_0)] + \frac{E_0}{\omega} (t - t_0) + \frac{1}{2} E_0 \beta (t - t_0)^2 = 0. \quad (17)$$

电子在复合时, 其动能和电离势的和等于高次谐波的能量, 由此得到谐波的阶次为

$$q = \left(\frac{1}{2} m_0 v^2 + I_p \right) / \omega, \quad (18)$$

其中, m_0 是电子的质量.

图 2(m)—(o) 给出了经典情况下, 对应不同外加静电场, 谐波阶次和发射时间的关系曲线. 图中也给出了激光电场的波形, 在波形中用相同的颜色给出了产生谐波的电子电离的时间, 即 3 个图中的蓝色实线和红色短划线表示一个光学周期内的两拨谐波发射. 第 1 拨对应电子的电离时间为图中光场负半周期的贡献; 第 2 拨对应光场正半周期的贡献.

首先, 分析不加外电场时的情况, 即图 2(a), (d), (g), (j) 和 (m). 由图 2(a), (d) 可见, C 端电离的 C—C 和 C—O 通道发射谐波的时间段是 0.8—1.5 T (T 表示 1 个光学周期 (optical cycle)), 对应图 2(m) 中的红色短划线所表达的第 2 拨脉冲时间段, 即对应于激光场的正半周期和分子的相互作用结果. 而由图 2(g), (j) 可见, O 端电离的 O—C 和 O—O 通道发射谐波的时间段是 0.4—1.0 T, 对应图 2(m) 中蓝色实线所表达的第 1 拨脉冲时间段, 对应激光场负半周期的谐波发射. 由图 2(m) 可见, 这 4 个通道具有相同的截止频率 $q_0 = 73$, 如图 1(b) 所示.

其次, 对于外加电场 $\beta = 0.1$ 时, 考察图 2(b), (e), (h), (k) 和 (n), 与上面的分析方法相同, 由图 2(b), (e) 中 C—C 和 C—O 通道发射谐波的时间段为是 0.8—1.5 T 确定, 这 2 个通道对应激光场正半周期的谐波贡献, 即对应着图 2(n) 中红色短划线代表的谐波发射. 由图 2(n) 还可发现, 外加静电场使得正半周期所发射的谐波范围变大, 谐波阶次从不加外场时的 q_0 增长为 $q_2 = 95$. q_2 的值取决于参数激光电场幅值、外加静电场相对强度以及激光波长^[20]. 所以这 2 个通道的高次谐波谱表现为图 1(d) 中的平台拉长. 对于 O—C 和 O—O 这 2 个通道, 谐波

发射的时间段主要在 0.4—1.0 T 内, 对应激光场正半周期发射的谐波 (如图 2(n) 中的蓝色实线所示), 谐波的截止频率变小, 为 $q_1 = 54$. 从而产生了这 2 个通道的第 1 个平台; 另外还可以发现, O—C 和 O—O 通道有少量谐波发射的时间段在 1.0—1.2 T, 对应激光场正半周期起作用时所发射的谐波 (如图 2(n) 中的红色短划线所示), 产生了截止频率到 $q_2 = 95$ 的第 2 个平台.

最后, 对于外加电场 $\beta = -0.1$ 的情况, 由谐波发射时间的对应可以确定, C—C 和 C—O 通道发射谐波对应激光驱动场为正半周期时的贡献, 发射的谐波阶次范围对应第 2 拨脉冲, 而外加电场对激光场正负半周期所发射谐波的截止频率的调制和 $\beta = 0.1$ 情况相反, 激光场正半周期产生的谐波的截止频率变小为 q_1 . 这造成了主要是正半周期对谐波有贡献的 C—C 和 C—O 通道谐波谱产生了第 1 个平台, 同时外加电场的作用也使得 C—C 和 C—O 通道对负半周期的谐波也有少量贡献, 由此造成了谐波强度较低的第 2 个平台. 在此静电场影响下, 激光场负半周期产生的谐波的截止频率变大为 q_2 , 造成了负半周期对谐波有贡献的 O—O 和 O—C 通道谐波谱的平台被拉长. 由此分析可知, 总的谐波谱由于这 4 个通道的贡献呈现出双平台结构.

4 结 论

采用 Lewenstein 理论, 针对取向确定的 CO 分子, 计算了其在偏振激光场结合外加静电场作用下的高次谐波谱. 发现当外加静电场的方向从 C 指向 O 时, 高次谐波谱呈现双平台结构; 当外加静电场方向改变时, 高次谐波谱双平台结构消失, 仅仅是平台的截止频率变大, 与双平台谱的第 2 个平台有相同的截止频率. 分析表明, C 端电离的通道的贡献大于 O 端电离的通道的贡献, 两类通道分别在相邻的激光半周期内发射谐波. 外加静电场的作用使得激光场在相邻的半周期内, 发射谐波的截止频率一个变大, 一个变小. 当外场从 C 端指向 O 端时, C 端电离的通道的谐波的截止频率变小, 从而产生谐波谱强度较高的第 1 个平台; O 端的电离的通道的截止频率变大, 从而 O 端电离的通道贡献了较低的第 2 个平台. 当外加静电场反向时, C 端电离的通道的谐波的截止频率变大, 从而相对

于没有外加静电场的情况, 平台被拉长. O 端的电离的通道的截止频率变小. 但并没有产生第 1 个平台, 原因是 O 端电离的通道的贡献被淹没在 C 端电离的通道的贡献中. 本文为极性分子在非对称场下的高次谐波的形成提供了一个清晰的物理图像.

参考文献

- [1] Phan N L, Le C T, Hoang V H, Le V H 2019 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **21** 24177
- [2] Hu H T, Li N, Liu P, Li R X, Xu Z Z 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 173201
- [3] Le C T, Hoang V H, Tran L P, Le V H 2018 *Phys. Rev. A* **97** 043405
- [4] Zhang B, Yuan J M, Zhao Z X 2014 *Phys. Rev. A* **90** 035402
- [5] Koushki A M, Bonabi R S, Nia M M, Irani E 2018 *Laser Phys.* **28** 075404
- [6] Pan Y, Zhao S F, Zhou X X 2013 *Phys. Rev. A* **87** 035805
- [7] Chen Y J, Fu L B, Liu J 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 073902
- [8] Zhu X S, Zhang Q B, Hong W Y, Lan P F, Lu P X 2011 *Opt. Express* **19** 436
- [9] Augstein B B, Faria C F M 2011 *J. Mod. Optic.* **58** 1173
- [10] Yang Y, Zhang B, Ren Z X, Bai G R, Liu L, Zhao Z X 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 234204 (in Chinese) [杨艳, 张斌, 任仲雪, 白光如, 刘璐, 赵增秀 2022 物理学报 **71** 234204]
- [11] Wang B B, Li X F, Fu P M 1998 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **31** 1961
- [12] Silaev A A, Romanov A A, Vvedenskii N V 2022 *J. Phys.: Conf. Ser.* **2249** 012004
- [13] Odžak S, Milošević D B 2006 *Phys. Lett. A* **355** 368
- [14] Hong W Y, Lu P X, Cao W, Lan P F, Wang X L 2007 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **40** 2321
- [15] Yuan K J, Bandrauk A D 2011 *Phys. Rev. A* **83** 063422
- [16] Miao X Y, Liu S S 2015 *Chin. Phys. Lett.* **32** 013301
- [17] Serrat C, Biegert J 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 073901
- [18] Chen J G, Chen G, Zeng S L, Yang Y J, Zhu Q R 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 4104 (in Chinese) [陈基根, 陈高, 曾思良, 杨玉军, 朱硕人 2008 物理学报 **57** 4104]
- [19] Odžak S, Milošević D B 2005 *Phys. Rev. A* **72** 033407
- [20] Zhao G J, Guo X L, Shao T J, Xue K 2011 *New J. Phys.* **13** 093035
- [21] Shi Y Z, Zhang B, Li B Y, Yu S J, Chen Y J 2017 *Phys. Rev. A* **95** 033406
- [22] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, Huillier A L, Corkum P B 1994 *Phys. Rev. A* **49** 2117
- [23] Majety V P, Scrinzi A 2015 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **48** 245603
- [24] Yuan C Q, Guo Y C, Wang B B 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 204206 (in Chinese) [袁长全, 郭迎春, 王兵兵 2021 物理学报 **70** 204206]

High order harmonic spectra of CO under external electrostatic field*

Lan Wan¹⁾ Chi Chen-Yang¹⁾ Guo Ying-Chun^{1)†}
 Yang Yu-Jun²⁾ Wang Bing-Bing³⁾⁴⁾

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

2) (*Institute of Atomic and Molecular Physics, Jilin University, Changchun 130012, China*)

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

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

(Received 8 April 2023; revised manuscript received 5 May 2023)

Abstract

In this work, we use Lewenstein's theory to calculate the high order harmonic spectra of CO molecule in a linearly polarized laser field combined with an external electrostatic field. The results show that the characteristics of the high order harmonic spectra of CO molecule depend strongly on the direction of the external static electric field relative to the orientation of CO. Especially, when the direction of the external static electric field points from O to C, the plateau of the harmonic spectrum becomes wider and the cutoff frequency reaches a larger value than the scenario without external static electric field. When the direction of the external static electric field points from C to O, the harmonic spectrum shows a double-plateau structure. Using Lewenstein theory, these phenomena can be understood from the viewpoint that the harmonic generation comes from a coherent superposition of the contributions of two kinds of channels characterized by C-end ionization and O-end ionization. The C(O)-end ionization channel means that the electron is ionized from C(O) end, then accelerated by the driving electric field, finally recombines with its parent molecular ion at either C or O end, emitting the harmonics. For the same harmonic order, the contribution of the C-end ionization channel is greater than that of the O-end ionization channel. The two kinds of channels emit harmonics in adjacent half period of laser, where the external static electric field causes the cutoff frequency of the harmonic spectrum to increase and decrease in the adjacent half period of the laser field. Especially, when the direction of external static electric field is from the C to O, the cutoff frequency of the harmonic spectrum of the C-end ionization channel decreases, resulting in a higher first plateau in the spectrum. While, the increase of cut-off frequency of the O-end ionization channel will result in a lower second plateau. When the direction of external static electric field is reversed, the cutoff frequency of the harmonics of the C-end channel increases, leading the plateau of CO harmonic spectrum to become wider than that without the external static electric field. The cut-off frequency of the O-end ionization channel decreases. Because the contribution of the O-end ionization channel can be ignored compared with that of C-end ionization channel, the C-end channel dominates the contribution to harmonic generation and hence there is only one plateau in the harmonic spectrum. This work provides a clear physical picture for the formation of a double-plateau structure of CO harmonic spectra under the action of an external static electric field.

Keywords: high order harmonic spectra of CO, external static electric field, molecular orientation, double plateau structure

PACS: 42.65.Ky, 33.80.-b, 31.15.B-

DOI: 10.7498/aps.72.20230560

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12074418, 11774411, 92250303).

† Corresponding author. E-mail: ycguo@phy.ecnu.edu.cn



外加静电场下CO高次谐波谱

蓝湾 迟晨阳 郭迎春 杨玉军 王兵兵

High order harmonic spectra of CO under external electrostatic field

Lan Wan Chi Chen-Yang Guo Ying-Chun Yang Yu-Jun Wang Bing-Bing

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 134202 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20230560

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230560>

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

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

极性分子CO高次谐波产生过程中的不对称性

Asymmetry in high-order harmonic generation of polar molecule CO

物理学报. 2022, 71(23): 234204 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221714>

准直的O₂分子高次谐波谱中的干涉效应

Interference effect in high order harmonic generation by aligned O₂

物理学报. 2021, 70(20): 204206 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210433>

高次谐波发射的亚原子尺度研究

Subatomic scale study of atom-generated higher-order harmonic

物理学报. 2019, 68(17): 173202 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190790>

基于密度泛函理论的外电场下盐交联聚乙烯分子的结构及其特性

Molecular structure and properties of salt cross-linked polyethylene under external electric field based on density functional theory

物理学报. 2018, 67(18): 183101 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180808>

外电场作用下MoS₂的分子结构和电子光谱

Molecular structure and electronic spectrum of MoS₂ under external electric field

物理学报. 2019, 68(17): 173101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190781>

基于高次谐波产生的极紫外偏振涡旋光

Extreme ultraviolet polarization vortex beam based on high harmonic generation

物理学报. 2020, 69(4): 044203 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20190834>