

专题: 阿秒物理

极性分子 CO 高次谐波产生过程中的不对称性*

杨艳¹⁾ 张斌¹⁾ 任仲雪¹⁾ 白光如¹⁾ 刘璐²⁾ 赵增秀^{1)†}

1) (国防科技大学物理系, 长沙 410073)

2) (华北电力大学数理学院, 北京 100096)

(2022 年 8 月 30 日收到; 2022 年 10 月 1 日收到修改稿)

极性分子由于其本身的不对称性, 在强激光场的作用下展现出丰富且复杂的电子动力学现象. 本文利用三维含时 Hartree-Fock 方法研究了极性分子 CO 的高次谐波产生过程. 通过高次谐波谱和时频分析结果可知, 当激光偏振沿分子轴方向时, 来自 C 和 O 两侧的电子对高次谐波的产生具有不同的贡献. 对于平台区较低阶的谐波, 仅 C 侧电离的电子参与谐波的产生. 而对于较高阶的谐波, C 和 O 两侧的电子共同参与谐波的辐射. 并且, 随着激光偏振与分子轴的夹角 θ 逐渐增大, C 和 O 两侧电子对谐波强度贡献的差异越来越小. 在高次谐波谱中能量 28 eV 附近发现了明显的形状共振峰, 随后通过强场近似理论解析了其不对称性. 本文的工作有助于推动高次谐波谱在追踪电子超快动力学和研究极性分子结构方面的应用.

关键词: 高次谐波, 极性分子, 含时 Hartree-Fock, 形状共振**PACS:** 42.65.Ky, 33.80.-b, 31.15.A-**DOI:** 10.7498/aps.71.20221714

1 引言

20 世纪 80 年代, 人们在实验中观测到了最早的高次谐波谱^[1,2]. 随后, 高次谐波的产生 (HHG) 过程就成为强场物理领域的研究热点之一^[3-6]. 该过程由激光与物质相互作用时产生的极端非线性效应导致, 其物理机制可用半经典的“三步模型”^[7,8]直观地描述, 即电离过程、加速过程和复合过程. 谐波谱中最大的能量通常被称为截止能量, 可以简单地用截止公式 $1.32I_p + 3.17U_p$ ^[9] 进行估算, 其中 I_p 和 U_p 分别表示电离能和有质动力势. 虽然关于高次谐波的研究已经从原子分子^[7,10,11]拓展到了固体^[12-15]和液体^[16,17]等体系, 但是原子分子强场下的超快电子动力学研究依然十分重要, 许多超快

物理现象还没有得到充分理解, 其对分子结构和分子势场的依赖仍有待深入研究. 其中相对于非极性分子, 极性分子因其在轴向上电子分布的不均匀性 (例如图 1(a)), 展现出了更加丰富的超快物理现象, 如空间两侧辐射不对称的极性分子阿秒脉冲产生^[18]以及各向异性的极性分子轨道层析成像^[19]. 特别是极性分子形状共振 (shape resonance) 的不对称性对于光电离时间延迟有着重要的影响^[20]. 因此, 对于极性分子 HHG 的研究, 有着十分重要的物理意义.

本文研究了极性分子 CO 在线偏振激光场作用下 HHG 过程. 第 2 节简单介绍理论方法和计算细节; 第 3 节主要从 C 和 O 两侧高次谐波辐射的强度、频率范围以及形状共振三个角度, 分析了极性分子 HHG 过程中的不对称性. 最后, 总结全文的研究内容.

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2019YFA0307703)、国家自然科学基金重大研究计划 (批准号: 91850201) 和国家自然科学基金 (批准号: 11904341) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhaozengxiu@nudt.edu.cn

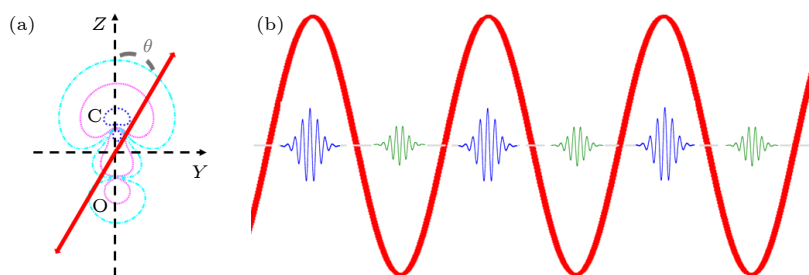


图 1 (a) 激光场与极性分子 CO 的几何关系示意图, 其中激光偏振 (红色双箭头) 与分子轴 (沿 Z 轴) 的夹角为 θ ; (b) 当激光偏振沿分子轴方向 (即 $\theta = 0^\circ$) 时, 在单色场 (红色粗实线) 的作用下, CO 分子每半个激光周期产生的阿秒脉冲 (蓝色和绿色细实线)

Fig. 1. (a) The geometric relation of the laser field and polar molecule CO, where θ is the angle between the molecular (Z) axis and the driving laser polarization (red double arrow); (b) attosecond bursts (blue and green thin solid lines) generated every half cycle of a monochromatic field (red thick line) from polar molecule CO when $\theta = 0^\circ$.

2 理论方法

本文使用三维含时 Hartree-Fock (3D-TDHF) 方法来研究 CO 分子的高次谐波谱. 依托 DMTDHF 程序包 [21] 对上述问题展开研究, 该程序包基于 Born-Oppenheimer 近似下的定核近似, 已经被成功应用于双原子的多电子动力学研究 [22–24]. 此外, 鉴于该程序包的开源性, 可以根据自己的个性化需求, 对其加以修改和完善, 进而开发出新功能. 选取 CO 分子的基态作为含时演化的初始态. 此时分子的总能量为 -112.7909 a.u. ($1 \text{ a.u.} = 27.2114 \text{ eV}$), 与文献 [25] 符合较好. 分子的核间距 R 取实验测量的平均值 2.14 a.u. ($1 \text{ a.u.} = 0.0529 \text{ nm}$), 令分子轴沿 Z 轴, 且 C 核和 O 核分别位于 Z 轴的 $\pm R/2$ 处 (如图 1(a) 所示). 所使用的激光场可表示为

$$E(t) = f(t)E_0 \sin(\omega_0 t), \quad (1)$$

其中激光的角频率 $\omega_0 = 0.05695$ a.u. (1.55 eV), 对应的波长为 800 nm ; $E_0 = 0.0755$ a.u. 为电场的峰值强度, 对应的光强为 $I_0 = 2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. 此外, 脉冲包络 $f(t)$ 为 Ramped 包络, 其中上升区和下降区分别为 2 个光学周期 (T), 中间的平台区占 4 个光学周期.

根据高次谐波产生的三步模型 [7,8] 可知, 对于平台区的谐波, 除截止位置外, 其他谐波均有两条路径 (长路径和短路径) 的电子波包参与高次谐波的辐射. 虽然两条路径下电子波包间的相互干涉对高次谐波有着十分重要的影响, 但短路径的电子波包对实验上测量的谐波数据起主要贡献 [26,27]. 因此, 接下来主要关注短路径电子波包贡献的高次谐波谱. 目前有两种常见的方法可用来过滤掉长路径的电子波包, 即空间过滤法和时间过滤法. 对于复

杂的多电子分子, 在时域上区分长路径和短路径是非常困难的. 此外, 若所选择的计算空间越小, 则进行 3D-TDHF 方法所需的计算量越小. 基于以上因素, 本文选择空间过滤法筛选出 CO 分子短路径电子波包贡献的谐波谱.

在每一步的含时演化结束后, 分子波函数均乘以如下形式的吸收函数,

$$M(r) = \begin{cases} 1, & r \leq r_{\text{mask}}, \\ \cos^{\frac{1}{8}} \left(\frac{\pi(r - r_{\text{mask}})}{2(r_{\text{max}} - r_{\text{mask}})} \right), & r_{\text{mask}} < r \leq r_{\text{max}}. \end{cases} \quad (2)$$

通过电子轨迹的经典分析, 可以得到短路径电子能够到达的最远距离为 $L = 26.6$ a.u. 在 L 附近调节吸收参数 r_{mask} 和 r_{max} , 直至长路径电子波包的贡献被完全吸收. 最后, 通过对加速度形式下的含时偶极矩做傅里叶变换, 然后取其模的平方得到高次谐波谱 [10,28], 其中含时偶极矩为包含了所有电子与外场相互作用下的总偶极矩.

3 结果与讨论

3.1 不同取向角下的高次谐波谱

研究了 CO 分子在线偏振激光场下产生的高次谐波谱. 当激光偏振沿分子轴方向时, 即 $\theta = 0^\circ$, CO 分子产生的谐波谱及其对应的时频分析谱如图 2 所示. 仔细观察图 2(a), 发现整个谐波谱同时包含奇次和偶次谐波. 由于在沿 CO 分子轴方向上, 一个光学周期中相邻半周期产生的阿秒脉冲是不对称的 (如图 1(b) 所示), 这一对称性的破缺导致偶次谐波的产生. 谐波谱的截止位置在 H36 阶附近, 与截止公式估算的数值基本一致. 由于分子

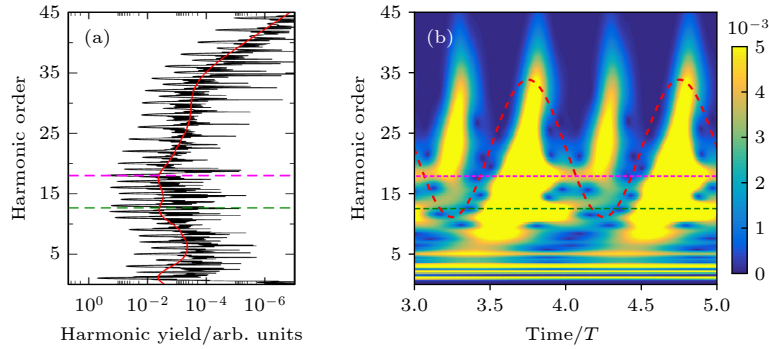


图 2 当激光偏振沿分子轴方向时, CO 分子产生的高次谐波谱 (a) 及其对应的时频分析 (b)

Fig. 2. High harmonic spectrum (a) and the corresponding time-frequency analysis (b) of CO molecules, when the laser polarization is along the molecular axis.

的电离能约等于最高占据轨道 (HOMO) 电子的束缚能, 故此处取 $I_p \approx E_{5\sigma} = 0.5549$ a.u. (15.10 eV). 图 2(a) 中的红色实线为谐波的均线, 结果显示在 H12.6 阶 (19.5 eV) 和 H18 阶 (27.9 eV) 谐波附近有两个明显的峰值. 其中 H12.6 阶谐波 (绿色虚线) 峰值能量正好等于 $I_p + E \cdot R$, 代表着从一个核附近电离出去电子返回到距离较远的另一个核附近; H18 阶谐波附近的峰值 (玫红色虚线) 反映的是 CO 分子的形状共振^[29,30]. 形状共振是一种出现在分子中的常见现象——在光电离过程, 电离的电子在吸引势与排斥势组合作用下暂时被捕获而形成准束缚态的现象^[31]. 通常, 形状共振所对应的能级寿命在百阿秒量级.

显然, 通过整个谐波谱很难获得极性分子在激光相邻半周期产生的阿秒脉冲的辐射差异. 为了获取极性分子 HHG 过程中的时域信息, 利用 Morlet 小波变化^[32]得到了 CO 分子的时频分析谱 (图 2(b)). 通过时频分析谱可以清晰地观察到长路径电子波包的吸收效果. 当吸收参数取值为 $r_{\text{mask}} = 17$ a.u. 和 $r_{\text{max}} = 40$ a.u. 时, 长路径电子波包对高次谐波的贡献基本被完全吸收. 可以看到相邻半周期的阿秒脉冲辐射也存在着明显的差异, 例如, (3.5 T, 4.0 T) 周期和 (4.0 T, 4.5 T) 周期. 通常情况下, 对于复杂的多电子体系, 多电子效应对体系的电子动力学将产生重要的影响^[11,19,23,33]. 显然, 由于相邻半个周期的阿秒脉冲均受到内壳层电子的影响, 因此, 通过多电子理论来分析相邻半周期的辐射差异十分困难. 为简化问题, 以隧穿电离时刻出射电子的方向来对电子进行区分. 当电场由 C 指向 O 时, 电离电子的出射方向为由 O 指向 C, 此时我们标记这个电子为 C 侧电离的电子. 通常, 从 C 侧电离

出去的电子也会从 C 侧返回到母离子附近, 与母离子复合并释放出高次谐波. 同理, 当电场反向的时候, 标记电子为从 O 侧出射的电子.

将上述对电离电子的分类方法同所用的激光场 (图 2(b) 中红色虚线所示) 相结合, 可以得到不同时刻辐射的阿秒脉冲是由哪侧电离的电子贡献而来. 换句话说, 我们可获得从不同方向返回的电子所辐射的阿秒脉冲在时域上的分布情况. 例如, (3.5 T, 4.0 T) 半周期内, 电场 $E(t)$ 为正值, 电场的方向由 O 指向 C, 此时由 C 侧电离出去电子在电场的作用下被拉回母离子附近, 与母离子复合并释放出阿秒脉冲, 故此时间段内辐射的阿秒脉冲主要由 C 侧出射的电子贡献而来. 同理, (4.0 T, 4.5 T) 半周期内所辐射的阿秒脉冲主要来自于 O 侧电离电子的贡献. 显然 C 和 O 两侧辐射的阿秒脉冲存在明显的差异. 一方面, 在 (3.5 T, 4.0 T) 半周期内, 由 C 侧电子贡献的阿秒脉冲强度明显要高于 (4.0 T, 4.5 T) 半周期由 O 侧电子贡献的结果. 这是由于 C 和 O 两侧的电离率存在的巨大差异导致^[22]. 另一方面, 来自 C 侧的谐波辐射的频率范围也要明显宽于 O 侧的结果. 此处, 对于平台区的高次谐波, H7 阶到 H17 阶的谐波主要由 C 侧电离的电子贡献产生, 其余的谐波 (即从 H18 阶到 H36 阶) 则是由 C 和 O 两端的电子共同参与的结果. 两端电离的电子对不同阶谐波的贡献差异体现了多电子动力学的复杂性. 最后, 对于图 2(a) 谐波谱中出现的两个峰值, 在时频分析结果中也有明显的体现. 对于 H12.6 阶谐波所在的峰值, 此时可以明确是由 C 侧电离的电子复合到了较远的原子核 O 附近形成的; 而 H18 阶的谐波峰值则是由 C 和 O 两侧的能量相近的形状共振所导致.

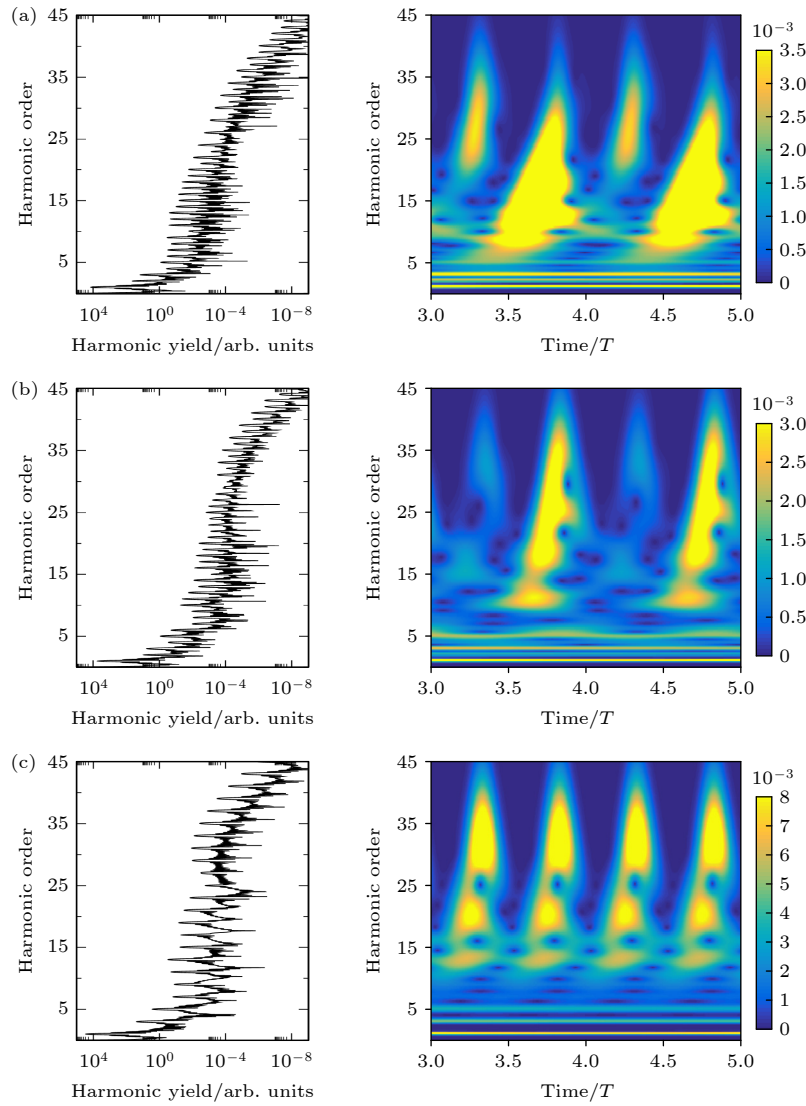


图 3 不同取向角 θ 下, CO 分子产生的高次谐波谱及其对应的时频分析 (a) $\theta = 30^\circ$; (b) $\theta = 60^\circ$; (c) $\theta = 90^\circ$. 除 θ 外, 其他计算参数同图 2 保持一致, 其中 θ 为分子轴与激光偏振的夹角, 如图 1(a) 所示

Fig. 3. High harmonic spectra and corresponding time-frequency analyses at (a) $\theta = 30^\circ$, (b) $\theta = 60^\circ$ and (c) $\theta = 90^\circ$. Note all parameters remain the same with Fig. 2; except for θ , where θ is the angle between the molecular axis and the driving laser polarization as shown in Fig. 1(a).

为了进一步明确 C 和 O 两侧出射电子对谐波辐射强度的贡献差异, 我们研究了不同取向角 θ 下 CO 分子产生的高次谐波谱及其对应的时频分析谱, 如图 3 所示. 其中, 左栏为高次谐波谱, 右栏为对应的时频分析结果. 注: 除 θ 外, 其余的计算参数同图 2 一致. 当 $\theta \neq 0^\circ$ 时, 谐波辐射并不是线偏振的. 本文重点关注谐波辐射的主要分量, 即谐波沿激光偏振方向的分量. 已知电子的超快动力学受到分子取向的强烈调制, 故对于平台区的谐波而言, 来自两端的阿秒辐射同样受到 θ 的重要影响. 连同图 2(b) 一起观察, 可以发现当改变 θ 时, 来自两端的谐波强度和辐射贡献范围, 均发生了明显的变化.

当 $\theta = 0^\circ$ 时, 相邻半周期的差异达到最大; 随着取向角 θ 的增加, 差异越来越小; 直至 $\theta = 90^\circ$ 时, 两端差异完全消失. 通过时频分析结果可知, 相邻半周期的阿秒脉冲完全一样, 与谐波谱中仅包含奇次谐波相互验证, 如图 3(c) 所示. 这一结果反映出沿激光偏振方向的轨道波函数完全对称导致来自两端的辐射差异完全消失.

3.2 HHG 不对称性的数值分析

为了验证 3.1 节的结论, 下面通过谐波强度对极性分子的不对称性进行数值分析. 已知分子总的谐波谱是由 C 和 O 两侧辐射的阿秒脉冲相互干涉

而来的,为获取 C 和 O 两侧的辐射强度差异,应分别得到两侧的谐波辐射强度.首先,根据谐波的时频分析谱,可以获取任意一端谐波辐射的时间范围.然后,利用这个时间信息,调整合适的时间窗^[34],再同含时偶极矩相结合便可以滤出仅来自一端的谐波谱.用 I_C (或 I_O) 来标记仅来自 C 端(或 O 端)电离出去电子返回母离子后辐射的谐波强度,其中对谐波的积分范围为从 H7 阶到 H50 阶.最终,计算来自 C 和 O 两端的谐波强度比值 I_C/I_O ,结果如图 4 所示.整体来看, I_C/I_O 随着取向角的增加,越来越小,表示极性分子的极化特性随着取向角的增加越来越不明显.在 $\theta = 0^\circ$ 附近,分子的极性最大.当 $\theta = 90^\circ$ 时,该比值为 1,分子的极性消失.这与之前的预测一致.

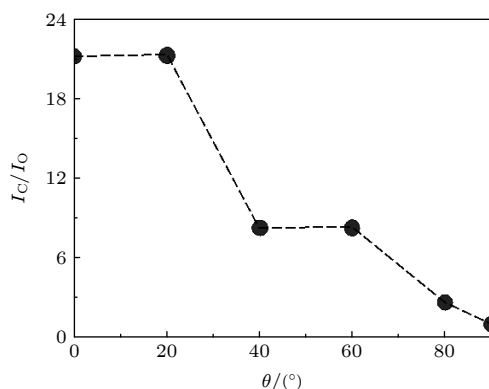


图 4 I_C/I_O 随着取向角 θ 的变化关系,其中 I_C (或 I_O) 代表从 C 侧(或 O 侧)电离电子所辐射的谐波强度.谐波强度的积分范围为 H7 阶到 H50 阶

Fig. 4. I_C/I_O as a function of the θ . I_C (or I_O) denotes the harmonic intensity emitted by the electrons ionized from C (or O) side with an integration range from H7th to H50th.

上面关于极性分子差异的理论分析,在实验上并不能实现.如何在实验上获取分子的极性信息呢?在沿激光偏振的方向上,如果轨道波函数是对称的,那么谐波谱中仅包含奇次谐波.当对称性被破坏时,偶次谐波就出现了,因此奇偶次谐波的相对强度在一定程度上可以反映出分子体系的对称性.因此,下面研究平台区偶次和奇次谐波的强度比 I_{2n}/I_{2n+1} 随着取向角 θ 的变化关系,如图 5 所示.结果显示,当 $\theta = 0^\circ$ 时, I_{2n}/I_{2n+1} 达到最大值;当 $\theta = 90^\circ$ 时, I_{2n}/I_{2n+1} 达到最小值.整体来看,平台区的偶次和奇次谐波的强度比 I_{2n}/I_{2n+1} 随着取向角 θ 的增加呈递减的趋势.图 4 和图 5 均表明,CO 分子的极性差异随着激光偏振与分子轴的夹角的变化存在一定的角分布结构.

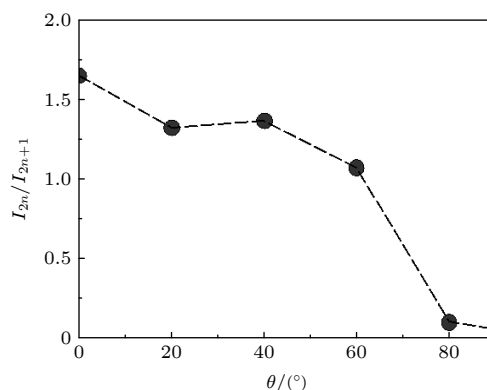


图 5 平台区的偶次和奇次谐波的强度比 I_{2n}/I_{2n+1} 随着取向角 θ 的变化关系,其中 I_{2n} (或 I_{2n+1}) 表示对 H7 到 H50 阶谐波中偶(或奇)次谐波的强度积分结果

Fig. 5. The intensity ratio of even and odd order harmonics I_{2n}/I_{2n+1} versus the alignment angle θ , where I_{2n} (or I_{2n+1}) represents the integrated intensity of even (or odd) order harmonics with a frequency range from H7th to H50th.

3.3 形状共振不对称性的分析

3.1 节对于图 2 的描述中提到,谐波谱第 H18 阶附近有个明显的峰值,表示形状共振的位置.从时频分析结果中明显看到沿 C 和 O 不同方向上的形状共振强度存在明显差异.下面通过强场近似(SFA)理论来分析形状共振的不对称性.

在 SFA^[9,35,36] 下,高次谐波的强度可以写为

$$S(\omega) \propto N\omega^4 |a[k(\omega)]d(\omega)|^2, \quad (3)$$

其中, N 为电离速率; $a[k(\omega)]$ 表示返回电子波包的振幅; $d(\omega) = \langle \Psi_0 | r | k(\omega) \rangle$ 表示基态 Ψ_0 到连续态 $k(\omega) = \sqrt{2\omega}$ 的跃迁矩阵元.光电离截面表示使原子分子中占据电子的壳层产生空穴的概率.光电离截面 $\sigma(\omega)$ 与跃迁矩阵元 $d(\omega)$ 满足如下关系式:

$$\sigma(\omega) \propto d^2(\omega). \quad (4)$$

对于,任意一侧(C或O)的谐波辐射均满足(3)式,故有

$$S_{CO}(\omega) \propto N_{CO}\omega^4 |a[k(\omega)]d_{CO}(\omega)|^2. \quad (5)$$

根据上述表达式,可以得到来自 C 侧辐射的谐波强度与来自 O 侧的比值:

$$\frac{S_C(\omega)}{S_O(\omega)} = \frac{N_C \sigma_C(\omega)}{N_O \sigma_O(\omega)}. \quad (6)$$

因此,如果已知 C 和 O 两侧的谐波强度比和电离比,就可以得到光电离截面的比值 $\frac{\sigma_C(\omega)}{\sigma_O(\omega)}$.下面通过 3 种不同的处理方法来计算截面比值,并进行对比.方法一,我们在仅考虑 HOMO 轨道的前提下,使用

ePloyScat 程序 [37,38] 计算所得的 CO 分子的光电离截面, 结果如图 6 所示. 位于 27.5 eV 附近的形状共振所对应的光电离截面比值为 $\frac{\sigma_C(\omega)}{\sigma_O(\omega)} = 3.02$. 方法二, 利用前面提到的通过选取恰当的时间窗函数可挑选出 C 侧或 O 侧单独贡献的谐波谱. 当 $\theta = 0^\circ$ 时, 计算得到 H18 阶 C 和 O 两侧的谐波辐射强度比为 $\frac{S_C(\omega)}{S_O(\omega)} = 15.92$. 此外, 电离速率随着时间的变化关系如图 7 所示. 图 7 中黑色实线为归一化的电子占据数, 通过求解电子占据数对时间的导数可得分子的电离速率 (绿色实线). 蓝色箭头所示区域为激光的平台区所对应的电离速率区间. 在同一个光

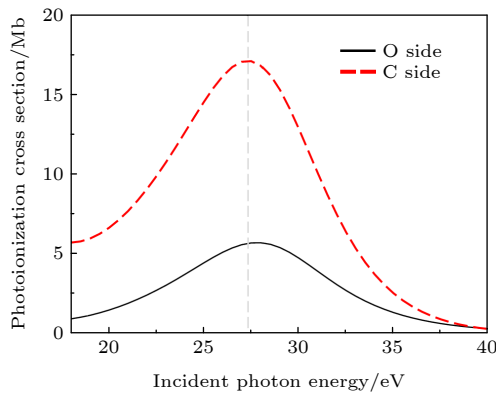


图 6 沿 O(黑色实线)和 C(红色虚线)两侧的最外层轨道的光电离截面, 该结果由 ePloyScat 程序计算所得

Fig. 6. Photoionization cross sections of the HOMO from O side (black solid line) and C side (red dotted line), which are simulated by ePloyScat.

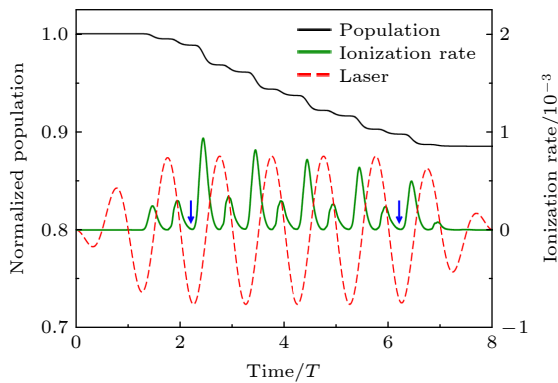


图 7 归一化的电子占据数 (黑色实线) 和电离速率 (绿色实线) 随着时间的变化关系. 红色虚线为激光场, 蓝色箭头所示的区域为激光脉冲的平台区

Fig. 7. Time profile of normalized population (black solid line) and ionization rates (green solid line) of electrons. The red dotted line denotes the used laser field. The time range marked by blue arrows is the plateau region of the used laser field.

学周期内, 电离速率的幅值较大的半周期对应为 C 侧电离的时间区间, 反之则为 O 侧电离的区间. 然后分别对处于平台区的 C 和 O 两侧的电离率求均值, 可得两侧电离率的比值为 $\frac{N_C}{N_O} = 2.71$. 利用 (6) 式, 最终可得 $\frac{\sigma_C(\omega)}{\sigma_O(\omega)} = 5.87$. 方法三, 由于直接在实验上分离出 C 或 O 侧的谐波贡献十分困难, 因此亟需另辟蹊径重新得到两侧的谐波强度比.

已知, C 和 O 两侧辐射的谐波强度同总的谐波强度之间满足如下关系:

$$\frac{|\sqrt{S_C} + \sqrt{S_O}|^2}{|\sqrt{S_C} - \sqrt{S_O}|^2} = \frac{2S(2n\omega_0)}{S[(2n-1)\omega_0] + S[(2n+1)\omega_0]} = \lambda^2, \quad (7)$$

其中对于总谐波谱的某阶谐波强度, 在实验上是可以获取的, 故 (7) 式中 λ 就会变成已知量. 对于 H18 阶处的形状共振位置的分析, 利用 $\frac{2S(\text{H18})}{S[\text{H17}] + S[\text{H19}]}$, 可得 $\lambda = 1.73$. 那么, 通过 $\frac{|\sqrt{S_C} + \sqrt{S_O}|^2}{|\sqrt{S_C} - \sqrt{S_O}|^2} = \lambda^2$, 可得 $\frac{S_C}{S_O} = \left(\frac{1+\lambda}{\lambda-1}\right)^2 = 14.59$. 再结合方法二中得到的两侧电离率的比值 $\frac{N_C}{N_O}$, 最终可得 $\frac{\sigma_C(\omega)}{\sigma_O(\omega)} = 5.38$.

上面通过两种方法 (方法二和方法三) 对 TDHF 结果进行了分析, 所得的截面比值十分接近, 但与基于单轨道假设的 ePloyScat 的计算结果存在较大差异. 这反映出内壳层电子的影响增大了极性分子谐波辐射的不对称性, 因此多电子效应对于极性分子的高次谐波辐射有着十分重要的影响.

4 总结与展望

本文使用三维含时 Hartree-Fock 方法研究了极性分子 CO 在强激光场的作用下产生高次谐波的过程. 当激光偏振沿分子轴方向时, CO 分子的谐波辐射在相邻半周期间存在明显的不对称性. 对于平台区的低阶谐波, 主要是 C 侧的贡献, 而对于高阶谐波, 则是由 C 和 O 两侧共同参与而来. 并且, C 侧与 O 侧的谐波辐射强度比值随着分子取向角 θ 的增加逐渐变小. 此外, C 和 O 两侧的形状共振也存在明显的差异, 通过强场近似理论得到 C 和 O 两侧的光电离截面比值在 5.5 附近, 大于只考虑 HOMO 轨道下应用 ePloyScat 程序计算所得

的比值 3. 由此可见多电子效应增强了极性分子的不对称性. 本文的研究工作探索了高次谐波在超快电子动力学方面的应用, 加深了对极性分子的高次谐波辐射过程中不对称性的理解, 为后续探究复杂体系的多电子动力学问题提供了有益的启示.

参考文献

- [1] McPherson A, Gibson G, Jara H, Johann U, Luk T S, McIntyre I A, Boyer K, Rhodes C K 1987 *J. Opt. Soc. Am. B: Opt. Phys.* **4** 595
- [2] Ferray M, L'Huillier A, Li X F, Lompre L A, Mainfray G, Manus C 1988 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **21** L31
- [3] Brabec T, Krausz F 2000 *Rev. Mod. Phys.* **72** 545
- [4] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [5] Pazourek R, Nagele S, Burgdörfer J 2015 *Rev. Mod. Phys.* **87** 765
- [6] Mourou G 2019 *Rev. Mod. Phys.* **91** 030501
- [7] Krause J L, Schafer K J, Kulander K C 1992 *Phys. Rev. Lett.* **68** 3535
- [8] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [9] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, L'Huillier A, Corkum P B 1994 *Phys. Lett. A* **49** 2117
- [10] Yang Y, Liu L, Zhao J, Tu Y, Liu J, Zhao Z 2021 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **54** 144009
- [11] Huang Y, Zhao J, Shu Z, Zhu Y, Liu J, Dong W, Wang X, Lü Z, Zhang D, Yuan J, Chen J, Zhao Z 2021 *Ultrafast Science* **2021** 9837107
- [12] Li L, Zhang Y, Lan P, Huang T, Zhu X, Zhai C, Yang K, He L, Zhang Q, Cao W, Lu P 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 187401
- [13] Ghimire S, Reis D A 2019 *Nat. Phys.* **15** 10
- [14] Liu L, Zhao J, Dong W, Liu J, Huang Y, Zhao Z 2017 *Phys. Lett. A* **96** 053403
- [15] Liu L, Zhao J, Yuan J M, Zhao Z X 2019 *Chin. Phys. B* **28** 114205
- [16] Luu T T, Yin Z, Jain A, Gaumnitz T, Pertot Y, Ma J, Wörner H J 2018 *Nat. Commun.* **9** 3723
- [17] Zeng A W, Bian X B 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 203901
- [18] Hu H, Li N, Liu P, Li R, Xu Z 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 173201
- [19] Ren Z, Yang Y, Zhu Y, Zan X, Zhao J, Zhao Z 2021 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **54** 185601
- [20] Vos J, Cattaneo L, Patchkovskii S, Zimmermann T, Cirelli C, Lucchini M, Kheifets A, Landsman A S, Keller U 2018 *Science* **360** 1326
- [21] Zhang B, Yuan J, Zhao Z 2015 *Comput. Phys. Commun.* **194** 84
- [22] Zhang B, Yuan J, Zhao Z 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 163001
- [23] Zhang B, Yuan J, Zhao Z 2014 *Phys. Rev. A* **90** 035402
- [24] Zhang B, Zhao J, Zhao Z 2018 *Chin. Phys. Lett.* **35** 043201
- [25] Kobus J 1993 *Chem. Phys. Lett.* **202** 7
- [26] Dong W, Hu H, Zhao Z 2020 *Opt. Express* **28** 22490
- [27] Zhang B, Lein M 2019 *Phys. Rev. A* **100** 043401
- [28] Le C T, Vu D D, Ngo C, Le V H 2019 *Phys. Rev. A* **100** 053418
- [29] Kraus P M, Baykusheva D, Wörner H J 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 023001
- [30] Frumker E, Kajumba N, Bertrand J B, Wörner H J, Hebeisen C T, Hockett P, Spanner M, Patchkovskii S, Paulus G G, Villeneuve D M, Naumov A, Corkum P B 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 233904
- [31] Xu K Z 2012 *Advanced Atomic and Molecular Physics* (3rd Ed.) (Hefei: University of Science and Technology of China Press) pp51—52 (in Chinese) [徐克尊 2012 高等原子分子物理学 第3版 (合肥: 中国科学技术大学出版社) 第51—52页]
- [32] Antoine P, Piraux B, Maquet A 1995 *Phys. Lett. A* **51** R1750
- [33] Shu Z, Liang H, Wang Y, Hu S, Chen S, Xu H, Ma R, Ding D, Chen J 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 183202
- [34] Liu L, Zhao J, Yuan J M, Zhao Z X 2017 *Sci Sin-Phys. Mech. Astron.* **047** 033006 (in Chinese) [刘璐, 赵晶, 袁建民, 赵增秀 2017 中国科学: 物理学 力学 天文学 **047** 033006]
- [35] Chen Y J, Fu L B, Liu J 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 073902
- [36] Huang Y, Meng C, Wang X, Lü Z, Zhang D, Chen W, Zhao J, Yuan J, Zhao Z 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 123002
- [37] Gianturco F A, Lucchese R R, Sanna N 1994 *J. Chem. Phys.* **100** 6464
- [38] Natalense A P P, Lucchese R R 1999 *J. Chem. Phys.* **111** 5344

SPECIAL TOPIC—Attosecond physics

Asymmetry in high-order harmonic generation of polar molecule CO*

Yang Yan¹⁾ Zhang Bin¹⁾ Ren Zhong-Xue¹⁾ Bai Guang-Ru¹⁾
 Liu Lu²⁾ Zhao Zeng-Xiu^{1)†}

1) (*Department of Physics, National University of Defense Technology, Changsha 410073, China*)

2) (*School of Mathematics and Physics, North China Electric Power University, Beijing 100096, China*)

(Received 30 August 2022; revised manuscript received 1 October 2022)

Abstract

Compared with nonpolar molecules, owing to the inherent asymmetry, polar molecules exhibit rich and very complex electronic dynamics under the interaction with strong laser fields. In this work, high-order harmonic generation (HHG) of polar molecules CO is investigated by using the three-dimensional time-dependent Hartree-Fock (3D-TDHF) theory, with all electrons active. Through the high harmonic spectra and time-frequency analyses, it is found that when the laser field polarizes along the molecular axis, the ionized electrons from the two sides (C side and O side) contribute differently to the harmonic radiation. On the one hand, the harmonic intensity from the C side is greater than that from the O side, which is caused by the ionization rate. On the other hand, for the lower-order (7th–17th order) harmonics of plateau region, only the electrons from the C side participate in the HHG. However, for its higher part (18th–36th order), the electrons from both C side and O side contribute to high harmonics simultaneously. Moreover, the difference between contributions from two sides is related to the alignment angle θ between the laser polarization and the molecular axis, and it reaches a maximum value around $\theta = 0^\circ$ and a minimum value around $\theta = 90^\circ$. There are two strong resonances around harmonic order H12.6 (19.5 eV) and H18 (27.9 eV) in the harmonic spectra when $\theta = 0^\circ$. The first resonance around H12.6 reveals that part of electrons ionized from the C side recombine to the vicinity of the further O nucleus. Near the second resonance around H18, there appears a shape resonance. Nevertheless, the shape resonances from the C and O sides are disparate. Based on the strong-field approximation theory, the ratio between photoionization cross sections from C and O sides around the shape resonance is calculated. The ratio is about 5.5 from 3D-TDHF, which is greater than the result of 3 simulated by ePloyScat, where only HOMO is considered. This discrepancy reveals that multi-electron effects enhance the asymmetry of polar molecules. This work provides an in-depth insight into the asymmetry in HHG of polar molecules, which benefits the generation of isolated attosecond pulse. It also promotes the application of high harmonic spectra in tracking the ultrafast dynamics of electrons.

Keywords: high-order harmonic generation, polar molecule, time-dependent Hartree-Fock, shape resonance

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

DOI: 10.7498/aps.71.20221714

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2019YFA0307703), the Major Research Plan of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 91850201), and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11904341).

† Corresponding author. E-mail: zhaozengxiu@nudt.edu.cn

极性分子CO高次谐波产生过程中的不对称性

杨艳 张斌 任仲雪 白光如 刘璐 赵增秀

Asymmetry in high-order harmonic generation of polar molecule CO

Yang Yan Zhang Bin Ren Zhong-Xue Bai Guang-Ru Liu Lu Zhao Zeng-Xiu

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 234204 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20221714

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221714>

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

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>

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>

基于多组态含时Hartree-Fock方法研究电子关联对于H₂分子强场电离的影响

Multiconfiguration time-dependent Hartree-Fock treatment of electron correlation in strong-field ionization of H₂ molecules

物理学报. 2018, 67(10): 103301 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172701>

原子错位堆栈增强双层MoS₂高次谐波产率

Enhancing high harmonic generation in bilayer MoS₂ by interlayer atomic dislocation

物理学报. 2021, 70(13): 134207 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210731>

相对论圆偏振激光与固体靶作用产生高次谐波

High order harmonics generation by relativistically circularly polarized laser-solid interaction

物理学报. 2018, 67(21): 214205 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181574>

强激光等离子体相互作用驱动高次谐波与阿秒辐射研究进展

Research progress of high-order harmonics and attosecond radiation driven by interaction between intense lasers and plasma

物理学报. 2021, 70(8): 084206 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210339>