高次谐波类共振增强的玻姆力学诠释

赖炫扬, 黄祎祎, 余少刚, 柳晓军*

中国科学院精密测量科学与技术创新研究院, 波谱与原子分子物理国家重点实验室, 武汉 430071

* 联系人: xjliu@wipm.ac.cn

2020-05-09 收稿, 2020-08-04 修回, 2020-08-05 接受, 2020-08-06 网络版发表

国家重点研发计划(2019YFA0307702)、国家自然科学基金(11922413, 11834015, 11874392, 11527807)、中国科学院战略性先导科技专项(XDB21010400)和中国博士后科学基金(2019M662752)资助

摘要 实验研究发现, 高次谐波强度会随驱动光强度增大先急剧增强、而后减弱, 这种对激光强度高度敏感的现象被称为高次谐波类共振增强。然而, 人们对该现象的产生机制尚存在争议, 其原因是现有物理解释所依赖的理论方法存在一些不足。玻姆力学是量子力学的一个版本, 具有物理图像清晰、计算准确等特点, 可以部分克服现有理论方法不足。本文利用玻姆力学研究高次谐波类共振增强, 发现仅用一条玻姆轨道即可很好地重现高次谐波谱中的类共振增强结构。对该玻姆轨道的动力学分析表明, 此增强结构来源于量子势引起的电子轨道奇异振荡行为。进一步结合电子波函数分析发现, 此行为与强激光场中原子共振激发紧密相关。本研究深化了对高次谐波类共振增强现象的理解, 有助于利用类共振增强提升谐波转化效率, 获得高强度的阿秒光脉冲。

关键词 高次谐波, 类共振增强, 玻姆力学, 玻姆轨道, 量子势

高次谐波是飞秒强激光与原子分子相互作用引起的一种重要物理现象^[1~3], 它可产生从可见光到真空紫外, 甚至软X射线的超宽带相干辐射。利用高次谐波, 人们可以合成阿秒($1\text{ as}=10^{-18}\text{ s}$)脉冲光源, 这是目前产生阿秒脉冲光源的主要途径^[4~6], 为阿秒物理奠定了研究基础。同时, 利用高次谐波产生过程, 人们还可以实现分子轨道和核运动的实时分辨与探测^[7~9], 并用于实时跟踪化学反应过程^[10]等。高次谐波的产生机制可以定性地采用“三步模型”来解释^[11,12]: 在强激光场作用下, 原子分子库仑势被压低形成势垒, 外层束缚态电子以隧穿方式通过势垒发生电离, 然后电离电子在激光场的驱动下加速运动获得能量; 当激光电场反向时, 部分电离电子返回到原子核, 并被原子核重新俘获, 能量以光子形式释放, 辐射出高次谐波。基于这种直观的物理图像, 人们发展了相应的理论方法^[13], 成功地解释了高次谐波谱的结构特征, 包括谐波谱的平台结构和截止能

量, 其中截止能量对应于电离电子最大释放能量^[11,12]。

随着高次谐波研究的深入开展, 人们取得了越来越多有意义的研究成果。比如, 通过分析分子轴取向依赖的高次谐波谱, 实现了氮气分子轨道层析成像^[7,14,15]; 通过分析高次谐波谱的结构特征, 揭示了原子分子中多电子阿秒超快动力学^[16~18]。与此同时, 人们也陆续发现了更多有意思的实验现象。比如, 随着驱动光强度的增大, 某些阶次的谐波强度会急剧增强再减弱, 这种对激光强度高度敏感的现象被称为高次谐波类共振增强^[19]。利用该类共振增强现象, 人们可望获得高强度的谐波, 产生高强度的阿秒光脉冲^[4]。目前, 对该现象有两种完全不同的解释: 通道闭合机制^[20,21]和多光子共振增强机制^[22,23]。这两种解释的主要区别在于谐波类共振增强是否依赖原子共振激发。尽管人们围绕该问题开展了较长时间研究, 然而, 关于其产生机制仍存在争议, 原因是这两种解释所依赖的理论方法均存在一些

引用格式: 赖炫扬, 黄祎祎, 余少刚, 等. 高次谐波类共振增强的玻姆力学诠释. 科学通报, 2021, 66: 940~948

Lai X Y, Huang Y Y, Yu S G, et al. Interpretation of resonance-like enhancement in high-order harmonic generation with Bohmian mechanics (in Chinese). Chin Sci Bull, 2021, 66: 940~948, doi: 10.1360/TB-2020-0561

不足:多光子共振增强机制基于数值求解含时薛定谔方程(time-dependent Schrödinger equation, TDSE)方法,它是一种从头计算方法,可以准确重现实验现象,但是这种方法物理图像不够清晰,不能描述谐波类共振增强结构的产生过程,因此无法直接判别原子激发是否导致谐波类共振增强;相反,通道闭合机制基于强场量子轨道理论方法^[20,21],它利用轨道方式描述电子运动,能提供比较直观、清晰的物理图像,有助于理解类共振增强结构的产生过程,但是这种模型方法忽略原子实库仑势以及激发态效应,对真实原子体系的描述不够完整.由于以上理论方法各自存在的缺陷,导致对高次谐波类共振增强产生机制尚未形成共识.

玻姆力学^[24,25],又称为德布罗意-玻姆理论,是量子力学的一个版本,它来源于薛定谔方程,通过对其做等价的数学变形,获得类似经典牛顿方程的粒子动力学方程,因此玻姆力学也被称为玻姆轨道理论.由于数学形式上与薛定谔方程等价,玻姆力学是一个不包含任何近似的从头计算方法,可以准确重现实验现象.更重要的是,与经典力学相似,它提供了一个直观的粒子轨道概念,通过对玻姆轨道的分析可获得清晰的物理图像.借助玻姆力学,人们成功诠释了许多量子力学基本现象,比如杨氏双缝干涉^[26]和量子隧穿^[27]等.近些年,人们又把玻姆力学引入到强场原子分子物理领域^[28],研究原子分子单电离^[29-32]、双电离^[33,34]和高次谐波产生^[35-39]等.

本文将利用玻姆力学研究高次谐波类共振增强,通过求解玻姆动力学方程获得电子轨道,然后对其偶极加速度进行傅里叶变换获得包含类共振增强结构的高次谐波谱,通过分析相应的电子轨道动力学和与电子波函数相关的量子势,揭示谐波类共振增强与激光场中原子共振激发之间的关联,从而给出高次谐波类共振增强的玻姆力学诠释.

1 理论方法

玻姆力学的数学形式来源于对薛定谔方程的等价变形^[24,25].原子分子与激光场相互作用的薛定谔方程为(本文采用原子单位制: a.u.)

$$i\frac{\partial\psi(x,t)}{\partial t} = \left[-\frac{1}{2}\nabla^2 + V(x) - xE(t)\right]\psi(x,t), \quad (1)$$

其中, $\psi(x,t)$ 和 $V(x)$ 分别代表电子波函数和原子分子库仑势, $E(t)$ 代表激光电场强度.对电子波函数做数学变

换: $\psi(x,t)=R(x,t)e^{iS(x,t)}$, 其中 $R(x,t)$ 和 $S(x,t)$ 均为实数,并且 $R(x,t)\geq 0$,然后将变换后的波函数重新代入方程(1),并按照实部和虚部分开,可以得到下面两个方程:

$$\begin{cases} \frac{\partial R^2}{\partial t} + \nabla \cdot [R^2 \nabla S] = 0, \\ \frac{\partial S}{\partial t} + \frac{(\nabla S)^2}{2} + V(x) - xE(t) + Q(x,t) = 0. \end{cases} \quad (2)$$

与经典力学相类比,方程(2)的第一个方程称为连续性方程,第二个方程称为量子哈密顿-雅可比方程,它比经典哈密顿-雅可比方程多了一项势能项

$$Q(x,t) = -\frac{1}{2} \frac{\nabla^2 R(x,t)}{R(x,t)}, \quad (3)$$

被称为量子势.目前人们发展了多种方法计算量子势,如求解TDSE方法,把获得的电子波函数代入方程(3),计算得到量子势^[29,36,37];又如任意拉格朗日-欧拉方法^[40,41],求解包含量子势的流体微分方程,获得任意时刻的流体密度($\rho=R(x,t)^2$),从而根据方程(3)计算得到量子势.本文选用求解TDSE方法获得量子势.进一步,根据方程(2),人们得到描述电子运动的玻姆-牛顿方程^[24,25]:

$$\frac{d^2x}{dt^2} = -\nabla [V(x) - xE(t) + Q(x,t)], \quad (4)$$

并通过求解该方程得到玻姆电子轨道 $x(t)$.在玻姆力学中,电子初始位置 x_0 分布服从概率分布 $|\psi(x_0,0)|^2$,相应的电子初始速度 $v_0(x_0) = \nabla S(x_0,0)$.根据初始概率分布进行撒点,计算大量玻姆电子轨道 $x_i(t)$ ($i=1, \dots, N$),得到平均偶极加速度

$$\bar{a}(t) = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \left(-\frac{dV[x_i(t)]}{dx} + E(t) \right), \quad (5)$$

对其做傅里叶变换获得相应的高次谐波谱^[36,37].

为了简化计算,本文原子体系的库仑势选用一维软核势^[42]: $V(x) = -1/\sqrt{x^2+c}$, 当 $c=1.41$ 时^[43], 原子基态能量 $\epsilon_0 = -0.5799$ a.u.在 $t=0$ 的初始时刻,电子处于该原子体系的基态 $\phi_0(x)$.激光电场 $E(t)=f(t)E_0\cos(\omega t)$, 其中 $f(t)$ 代表梯形激光电场包络(2个上升沿、16个平台和2个下降沿), E_0 是激光电场峰值强度, ω 是激光频率.

2 结果与讨论

2.1 玻姆力学模拟结果

首先采用从头计算的TDSE方法寻找出现高次谐

波类共振增强的激光强度. 图1中黑线展示了3种不同激光强度下TDSE模拟得到的高次谐波谱. 由于这3种激光强度十分接近, 因此相应的3个高次谐波谱主要特征看起来基本相同. 然而, 通过仔细观察, 我们发现在激光强度 $I=1.12\times 10^{14}$ W/cm²时, 阶次 $n=17$ 及其附近的谐波强度出现显著增强(图1(b)), 这种强度依赖的现象被称为高次谐波类共振增强^[20~23], 并已在实验上观测到^[19]. 为了揭示高次谐波类共振增强的产生机制, 接下来将利用玻姆力学模拟相应3种激光强度下的高次谐波谱.

图1中红线是利用玻姆力学模拟得到的高次谐波谱, 其中图1(a)~(c)展示了只由一条初始位置 $x_0=0$ 的玻姆轨道形成的高次谐波谱, 其定性上与TDSE模拟的谐波谱一致. 该结果也与前人研究相符^[36,37], 但与前人研究不同且更有意思的是, 我们发现仅用单条玻姆轨道便可重现高次谐波谱的类共振增强结构. 为了便于描述, 将该初始位置 $x_0=0$ 的玻姆轨道称为中心玻姆轨道. 随着玻姆轨道数的增加(如图1(d)~(f)), 轨道数目

$N=345$), 得到的高次谐波谱更接近TDSE的模拟结果, 但其主要特征(包括类共振增强结构)并未发生明显变化. 因此, 可以通过选择单条中心玻姆轨道细致研究其动力学演化行为及对应的量子势特性, 帮助理解类共振增强的产生过程. 这将在很大程度上简化计算和降低分析难度.

2.2 中心玻姆轨道分析

图2(a)~(c)的插图展示了3种激光强度下的中心玻姆轨道. 这3条轨道特征大致相同, 均在中心附近周期振荡. 为了获得更多细节, 我们对轨道局部进行放大, 比如时间从500到700 a.u.(插图中红色长方形标记的区域). 图2(a)~(c)显示, 与相邻两种激光强度相比, 在 $I=1.12\times 10^{14}$ W/cm²时, 玻姆轨道在空间 $x=0$ 附近存在许多十分显著的连续振荡. 为了寻找这种轨道振荡与高次谐波类共振增强之间的关联, 我们对该轨道诱导的电偶极做小波变换获得时间-频率分析图^[36], 如图2(d)~(f)所示. 图中最引人注目的特征是, 在 $I=1.12\times 10^{14}$ W/cm²

图1 分别采用求解TDSE和玻姆力学模拟3种不同激光强度下的高次谐波谱. 第一列、第二列和第三列对应的激光光强分别为 $I=1.02\times 10^{14}$ 、 1.12×10^{14} 和 1.22×10^{14} W/cm², 激光频率 $\omega=0.0577$ a.u. (a)~(c) 仅用一条($N=1$)初始位置 $x_0=0$ 的玻姆轨道; (d)~(f) 玻姆轨道数目增大至 $N=345$, 其初始位置分布服从概率分布 $|\psi(x_0, 0)|^2$

Figure 1 High-order harmonic generation (HHG) spectra simulated with TDSE and Bohmian mechanics at three different laser intensities: $I=1.02\times 10^{14}$ W/cm² (first column), $I=1.12\times 10^{14}$ W/cm² (second column), and $I=1.22\times 10^{14}$ W/cm² (third column), respectively. The frequency of the laser pulse is $\omega=0.0577$ a.u. (a)~(c) Only one Bohmian trajectory ($N=1$) with the initial position $x_0=0$ is used in the calculation. (d)~(f) The number of Bohmian trajectories is increased to $N=345$ with the initial position distribution according to the function of $|\psi(x_0, 0)|^2$

的激光强度下(图2(e)), 阶次 $n=17$ 及其附近的谐波强度出现显著增强, 这个增强区域与图1(b)中高次谐波谱的类共振增强区域完全一致. 因此, 我们的计算结果表明, 高次谐波类共振增强来源于玻姆轨道在中心区域的显著振荡.

进一步, 将分析在 $I=1.12 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 的激光强度下中心玻姆轨道出现显著振荡的原因. 根据方程(4), 玻姆轨道由玻姆-牛顿方程描述, 其中势能项包含经典势 $V(x) - xE(t)$ 和量子势 $Q(x, t)$. 由于经典势中激光电场随时间变化的周期 $T=2\pi/\omega \sim 109 \text{ a.u.}$, 因此在短时间范围内(比如 $t=610 \sim 640 \text{ a.u.}$, 约30 a.u.)所观测到的玻姆轨道显著振荡可能主要来自量子势. 图3(a)~(c)给出了3种激光强度下量子势空间分布随时间的变化, 它们呈现出一系列的振荡结构. 为了更直接地展示量子势振荡与玻姆轨道振荡之间的关联, 将图2(a)~(c)中的中心玻姆轨道放入图3(a)~(c)中. 可以看到, 玻姆轨道的振荡与量子势的振荡相吻合, 表明在 $I=1.12 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时中心玻姆轨道的显著振荡来源于量子势的变化. 因此, 可以通过分析量子势深入理解高次谐波类共振增强的物理原因.

通过仔细分析图3(a)~(c)中的量子势, 我们发现在光强 $I=1.12 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时量子势随时间变化呈现显著不同的特征. 一方面, 在 $610 \sim 640 \text{ a.u.}$ 的时间范围内, $I=1.12 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时的量子势振荡频率明显小于相邻两个光强下的结果(图3(a)~(c)中标记的振荡峰位置), 即量子势振荡周期变大. 另一方面, $I=1.12 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时量子势振荡峰之间的时间间隔随时间增大出现显著的非线性变化, 其中峰2和3之间的时间间隔最大, 但是在相邻两个光强下, 量子势振荡峰之间的时间间隔随时间单调缓慢增大. 由于在 $I=1.12 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时量子势振荡峰之间的时间间隔增大, 对量子势在 x 方向求导得到量子力(图3(d)~(f)), 它随时间振荡的时间间隔也增大, 因此电子受到量子力和经典力共同作用而加速或减速时间变长, 引起电子运动振幅增大, 相应的轨道振荡更显著, 最终导致辐射强度增强.

2.3 量子势振荡与原子共振激发

接下来, 我们将结合对激光场中电子波函数特性的分析, 揭示在 $I=1.12 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时量子势不同寻常的振荡行为与原子共振激发效应之间的紧密联系. 为了

图2 3种激光强度下中心玻姆轨道和时间-频率分析图. (a)~(c) 时间500~700 a.u.的中心玻姆轨道. 插图: 时间0~2000 a.u.的中心玻姆轨道; (d)~(f) 中心玻姆轨道的时间-频率分析图

Figure 2 Central Bohmian trajectories with $x_0=0$ and the time-frequency map at three different laser intensities. (a)~(c) Central Bohmian trajectories from $t=500$ to 700 a.u. Inset: Central Bohmian trajectory from $t=0$ to 2000 a.u. (d)~(f) Time-frequency map of the corresponding central Bohmian trajectories

图3 3种激光强度下,量子势和量子力的空间分布随时间的变化。(a)~(c)量子势($Q(x,t)$)。图中实线对应图2(a)~(c)中的中心玻姆轨道。(d)~(f)对量子势在 x 方向求导得到量子力。(g)~(i)红色曲线给出 $x=0$ 处量子势大小随时间的变化;黑色曲线是理论拟合得到的量子势变化。其中量子势振荡行为与TDSE模拟结果相一致

Figure 3 The change of the spatial distributions of quantum potential and quantum force with time at three different laser intensities. (a)~(c) Quantum potential $Q(x,t)$. The solid curves correspond to the central Bohmian trajectories shown in Figure 2(a)~(c). (d)~(f) Quantum force obtained by the derivative of the quantum potential in the x direction. (g)~(i) Red curve: The value of the quantum potential at $x=0$ as a function of time; black curve: The simulated quantum potential. The oscillation behavior of the simulated quantum potential is consistent with the TDSE result

便于分析,同时更清晰地展示量子势振荡行为,图3(g)~(i)中的红线给出了 $x=0$ 处量子势大小随时间的变化。在玻姆力学中,量子势与电子波函数紧密相关(方程(3)),为了理解中心区域量子势的振荡行为,分析了相应区域的电子波函数。在强激光场作用下,处于基态的电子波函数以隧穿方式到达连续态^[13],然后在激光场驱动下运动,其中部分波包会返回中心区域^[11,12],因此中心区域电子波函数可以近似表达为基态 $\phi_0(x)$ 和返回动量大小为 p 的连续态的相干叠加态: $\psi(x,t) \sim \phi_0(x)e^{-i\epsilon_d t} + ce^{ipx}e^{-iEt}$,其中 $E=p^2/2$ 代表返回能量, c 是展开系数,这里把系数和能量引起的相位因子($e^{-i\epsilon_d t}, e^{-iEt}$)在波函数

中分开,可以更容易地比较不同激光强度下系数的大小。由于我们关注短时间范围内中心区域量子势的变化,为了简化分析,假设返回动量 p 在短时间内近似不变,即能量 E 大小不变。接着,把电子波函数代入方程(3)拟合 $x=0$ 处量子势振荡行为随时间的变化,得到待定参数 c 和 E 。如图3(g)和(i)中的黑线所示,在 $I=1.02 \times 10^{14}$ 和 1.22×10^{14} W/cm²时,中心区域量子势的振荡行为可以定性上较好地分别用 $c=0.0028+0.045i$ 和 $E=0.737$ a.u.与 $c=0.088-0.0274i$ 和 $E=0.879$ a.u.来拟合,其中返回能量 E 随激光强度增大而增大,这与半经典计算结果相一致^[11,12]。然而,分析发现,在 $I=1.12 \times 10^{14}$ W/cm²时的量子势振荡行为,即峰之间的时间间隔随时间的非线性

变化无法用上面的简单波函数来拟合, 可能原因是在激光与原子相互作用过程中, 部分电子波函数同时明显地处于某些束缚激发态 $\phi_n(x)$ ($n=1, 2, 3, 4, \dots$). 为此, 我们在电子波函数中加入束缚激发态, 并按照激发态本征能量从低到高的顺序将中心区域电子波函数近似表达为 $\psi(x, t) \sim b_0\phi_0(x)e^{-i\varepsilon_0 t} + b_1\phi_1(x)e^{-i\varepsilon_1 t} + b_2\phi_2(x)e^{-i\varepsilon_2 t} + b_3\phi_3(x)e^{-i\varepsilon_3 t} + b_4\phi_4(x)e^{-i\varepsilon_4 t} + ce^{ipx}e^{-iEt}$, 其中 b_n 和 ε_n ($n=0, 1, 2, 3, 4$)分别代表各个束缚态的系数和本征能量. 把这个波函数重新代入方程(3), 并借助群鸟算法^[44,45]拟合 $x=0$ 处量子势振荡行为随时间的变化. 由于量子势只与波函数相对大小有关, 令 $b_0=1$. 如图3(h)中的黑线所示, 理论拟合得到的量子势振荡行为定性上与从头计算结果相一致, 相应的拟合系数见表1. 通过仔细分析表1, 我们发现第三激发态的系数 $|b_3|$ 远大于系数 $|b_1|$ 、 $|b_2|$ 和 $|b_4|$, 表明第三激发态具有明显的分布, 存在基态与第三激发态之间的共振过程, 这与人利用弗洛凯方法(Floquet)分析共振能级结果相一致^[43]. 需要说明的是, 即便在前述待定的总电子波函数中加入更多高激发态, 拟合结果几乎不变, 表明高激发态对量子势振荡行为影响不大. 因此, 我们的模拟结果表明, 在光强 $I=1.12\times 10^{14}$ W/cm²时, 受原子共振激发影响, 电子波函数分布发生变化, 导致量子势不同寻常的振荡行为.

值得一提的是, 在对量子势振荡行为的拟合结果中, 我们还发现, 当光强为 $I=1.12\times 10^{14}$ W/cm²时连续态能量 $E=0.486$ a.u.(表1), 它明显小于相邻两个光强下的连续态能量(分别为 $E=0.737$ 和 0.879 a.u.). 为了进一步

表 1 通过拟合 $I=1.12\times 10^{14}$ W/cm²时 $x=0$ 处量子势的振荡行为, 获得电子波函数中各个态的系数($b_0\sim b_4$, c)和连续态的能量 E . $\varepsilon_0\sim\varepsilon_4$ 分别代表原子体系中最低5个束缚态的本征值

Table 1 The coefficients ($b_0\sim b_4$, c) of each state and the energy E of the continuum state are obtained by fitting the oscillation behavior of quantum potential at $x=0$ with the laser intensity $I=1.12\times 10^{14}$ W/cm². $\varepsilon_0\sim\varepsilon_4$ represent the eigenvalues of the lowest-lying five bound states in atom, respectively

	能量	系数	绝对值
ε_0	-0.5799	$b_0=1$	$ b_0 =1$
ε_1	-0.2539	$b_1=0.107+0.0898i$	$ b_1 =0.139$
ε_2	-0.1427	$b_2=-0.001+0.013i$	$ b_2 =0.013$
ε_3	-0.0888	$b_3=0.147+0.442i$	$ b_3 =0.465$
ε_4	-0.0612	$b_4=0.057-0.014i$	$ b_4 =0.059$
E	0.486	$c=-0.0475-0.031i$	$ c =0.0567$

理解这种差别, 采用数值求解TDSE方法计算中心区域的电子波函数在连续态上的能量分布^[42](图4(a)~(c)). 可以看到, 在 $I=1.12\times 10^{14}$ W/cm²时, 连续态主要分布区域的能量小于相邻两个光强下的计算结果, 因此, 我们前面的拟合结果与求解TDSE方法的结果定性一致.

分析认为, 光强为 $I=1.12\times 10^{14}$ W/cm²时连续态分布在能量较小的区域同样起源于原子共振激发. 通常情况下, 在强激光场中基态电子波函数以隧穿方式到达连续态^[13], 然后电子波包在激光场中运动, 部分电子波包在激光场驱动下返回中心区域. 借助包含隧穿出口的半经典模型^[46,47], 我们计算了电子波包的返回能量随时间的变化(图4中虚点白线), 其中隧穿出口和初

图 4 3种激光强度下, 通过求解TDSE获得中心区域电子波函数在连续态上的能量分布以及相应半经典理论计算得到的电子返回能量. (a)~(c) 虚点白线: 基于隧穿电离模型的半经典理论计算结果; (b) 实黑线: 基于垒越电离模型的半经典理论计算结果

Figure 4 Energy distributions of the continuum states of the central electron wave function solved from TDSE and the return energy of the electron calculated from semiclassical simulations at three different laser intensities. (a)~(c) Dashed-dotted white curve: The result calculated from semiclassical model with tunneling ionization mechanism. (b) Solid black curve: The result simulated from semiclassical model with over-barrier ionization mechanism

始速度借助强场量子轨道理论计算获得. 我们发现, 在 $I=1.02\times 10^{14}$ 和 1.22×10^{14} W/cm² 时, 返回能量随时间变化的趋势与求解TDSE方法的结果相一致, 但是在 $I=1.12\times 10^{14}$ W/cm² 时, 二者存在显著差别. 其原因是根据前面分析, 在 $I=1.12\times 10^{14}$ W/cm² 时, 电子波函数在第三激发态存在明显的分布. 考虑到第三激发态的能量高于激光电场与库仑场形成的势垒, 电子波函数主要采用越垒方式到达连续态^[48], 相应电子波包所携带的初始能量等于激发态能量与势垒的高度差^[43]. 我们基于越垒模型模拟电子波包的动力学, 并考虑电子可能多次返回原子核, 计算得到电子波包返回能量随时间的变化, 如图4(b)中的实黑线所示, 它与求解TDSE方法的结果相一致. 因此, 我们的模拟结果表明, 原子共振激发同样影响电子波函数在连续态的分布, 从而影响量子势的变化及相应中心玻姆轨道的动力学.

3 总结

玻姆力学方法具有计算准确、图像清晰等特点, 可以克服现有强场物理理论方法的一些不足, 为理解强场阿秒物理现象提供了新的研究手段. 本文采用玻姆力学对高次谐波类共振增强现象进行了深入研究. 研究发现, 仅用一条中心玻姆轨道即可重现高次谐波谱中出现的类共振增强结构, 这为分析并理解该结构背后的物理机制带来了极大便利; 对中心玻姆轨道动力学行为和量子势的分析表明, 谐波信号的增强与强场原子共振激发紧密相关, 由于原子共振激发改变了与电子波函数密切相关的量子势随时间的变化, 并导致玻姆轨道出现显著振荡, 从而引起谐波信号增强. 本文结合玻姆轨道图像, 深化了对高次谐波类共振增强现象的理解, 为利用类共振增强提升谐波转化效率、获得高强度的阿秒光脉冲提供了重要指导.

参考文献

- 1 Ferray M, L'Huillier A, Li X F, et al. Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases. *J Phys B*, 1988, 21: L31–L35
- 2 Krause J L, Schafer K J, Kulander K C. High-order harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime. *Phys Rev Lett*, 1992, 68: 3535–3538
- 3 Agostini P, DiMauro L F. The physics of attosecond light pulses. *Rep Prog Phys*, 2004, 67: 813–855
- 4 Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics. *Rev Mod Phys*, 2009, 81: 163–234
- 5 Li J, Ren X, Yin Y, et al. 53-attosecond X-ray pulses reach the carbon K-edge. *Nat Commun*, 2017, 8: 186
- 6 Wang X, Wang L, Xiao F, et al. Generation of 88 as isolated attosecond pulses with double optical gating. *Chin Phys Lett*, 2020, 37: 023201
- 7 Itatani J, Levesque J, Zeidler D, et al. Tomographic imaging of molecular orbitals. *Nature*, 2004, 432: 867–871
- 8 Lan P, Ruhmann M, He L, et al. Attosecond probing of nuclear dynamics with trajectory-resolved high-harmonic spectroscopy. *Phys Rev Lett*, 2017, 119: 033201
- 9 Baker S, Robinson J S, Haworth C A, et al. Probing proton dynamics in molecules on an attosecond time scale. *Science*, 2006, 312: 424–427
- 10 Li W, Zhou X, Lock R, et al. Time-resolved dynamics in N₂O₄ probed using high harmonic generation. *Science*, 2008, 322: 1207–1211
- 11 Schafer K J, Yang B, DiMauro L F, et al. Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff. *Phys Rev Lett*, 1993, 70: 1599–1602
- 12 Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Phys Rev Lett*, 1993, 71: 1994–1997
- 13 Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, et al. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Phys Rev A*, 1994, 49: 2117–2132
- 14 Haessler S, Caillat J, Boutu W, et al. Attosecond imaging of molecular electronic wavepackets. *Nat Phys*, 2010, 6: 200–206
- 15 Vozzi C, Negro M, Calegari F, et al. Generalized molecular orbital tomography. *Nat Phys*, 2011, 7: 822–826
- 16 Smirnova O, Mairesse Y, Patchkovskii S, et al. High harmonic interferometry of multi-electron dynamics in molecules. *Nature*, 2009, 460: 972–977
- 17 McFarland B K, Farrell J P, Bucksbaum P H, et al. High harmonic generation from multiple orbitals in N₂. *Science*, 2008, 322: 1232–1235
- 18 Shiner A D, Schmidt B E, Trallero-Herrero C, et al. Probing collective multi-electron dynamics in xenon with high-harmonic spectroscopy. *Nat Phys*, 2011, 7: 464–467
- 19 Toma E S, Antoine P, de Bohan A, et al. Resonance-enhanced high-harmonic generation. *J Phys B*, 1999, 32: 5843–5852
- 20 Milošević D B, Becker W. Role of long quantum orbits in high-order harmonic generation. *Phys Rev A*, 2002, 66: 063417
- 21 Figueira de Morisson Faria C, Kopold R, Becker W, et al. Resonant enhancements of high-order harmonic generation. *Phys Rev A*, 2002, 65: 023404
- 22 Taïeb R, Vénier V, Wassaf J, et al. Roles of resonances and recollisions in strong-field atomic phenomena. II. High-order harmonic generation. *Phys Rev A*, 2003, 68: 033403
- 23 Ivanov I A, Kheifets A S. Resonant enhancement of generation of harmonics. *Phys Rev A*, 2008, 78: 053406
- 24 Bohm D. A suggested interpretation of the quantum theory in terms of “hidden” variables. I. *Phys Rev*, 1952, 85: 166–179

- 25 Holland P R. The Quantum Theory of Motion. Cambridge: Cambridge University Press, 1993
- 26 Philippidis C, Dewdney C, Hiley B J. Quantum interference and the quantum potential. *Nuov Cim B*, 1979, 52: 15–28
- 27 Hirschfelder J O, Christoph A C, Palke W E. Quantum mechanical streamlines. I. Square potential barrier. *J Chem Phys*, 1974, 61: 5435–5455
- 28 Lai X Y, Liu X J. Bohmian trajectory perspective on strong field atomic processes. *Chin Phys B*, 2020, 29: 013205
- 29 Lai X Y, Cai Q Y, Zhan M S. Above-threshold ionization photoelectron spectrum from quantum trajectory. *Eur Phys J D*, 2009, 53: 393–396
- 30 Lai X Y, Cai Q Y, Zhan M S. From a quantum to a classical description of intense laser–atom physics with Bohmian trajectories. *New J Phys*, 2009, 11: 113035
- 31 Wei S S, Li S Y, Guo F M, et al. Dynamic stabilization of ionization for an atom irradiated by high-frequency laser pulses studied with the Bohmian-trajectory scheme. *Phys Rev A*, 2013, 87: 063418
- 32 Jooya H Z, Telnov D A, Li P C, et al. Exploration of the subcycle multiphoton ionization dynamics and transient electron density structures with Bohmian trajectories. *Phys Rev A*, 2015, 91: 063412
- 33 Sawada R, Sato T, Ishikawa K L. Analysis of strong-field enhanced ionization of molecules using bohmian trajectories. *Phys Rev A*, 2014, 90: 023404
- 34 Christov I P. Phase-locking mechanism in non-sequential double ionization. *Appl Phys B*, 2019, 125: 209
- 35 Lai X Y, Cai Q Y, Zhan M S. Bohmian mechanics to high-order harmonic generation. *Chin Phys B*, 2010, 19: 020302
- 36 Wu J, Augstein B B, Figueira de Morisson Faria C. Local dynamics in high-order-harmonic generation using Bohmian trajectories. *Phys Rev A*, 2013, 88: 023415
- 37 Song Y, Guo F M, Li S Y, et al. Investigation of the generation of high-order harmonics through Bohmian trajectories. *Phys Rev A*, 2012, 86: 033424
- 38 Huang Y Y, Lai X Y, Liu X J. High-order harmonic generation in a two-color strong laser field with Bohmian trajectory theory. *Chin Phys B*, 2018, 27: 073204
- 39 Jooya H Z, Telnov D A, Li P C, et al. Investigation of the characteristic properties of high-order harmonic spectrum in atoms using Bohmian trajectories. *J Phys B*, 2015, 48: 195401
- 40 Wyatt R E. Quantum Dynamics with Trajectories: Introduction to Quantum Hydrodynamics. Springer, 2005
- 41 Botheron P, Pons B. Self-consistent Bohmian description of strong field-driven electron dynamics. *Phys Rev A*, 2010, 82: 021404(R)
- 42 Javanainen J, Eberly J H, Su Q. Numerical simulations of multiphoton ionization and above-threshold electron spectra. *Phys Rev A*, 1988, 38: 3430–3446
- 43 Wassaf J, Vénier V, Taïeb R, et al. Roles of resonances and recollisions in strong-field atomic phenomena: Above-threshold ionization. *Phys Rev A*, 2003, 67: 053405
- 44 Kennedy J, Eberhart R. Particle swarm optimization. In: Proceedings of IEEE International Conference on Neural Networks. IV, 1995: 1942–1948
- 45 Villeneuve D M, Hockett P, Vrakking M J J, et al. Coherent imaging of an attosecond electron wave packet. *Science*, 2017, 356: 1150–1153
- 46 Kopold R, Becker W, Kleber M. Quantum path analysis of high-order above-threshold ionization. *Opt Commun*, 2000, 179: 39–50
- 47 Lai X Y, Quan W, Liu X. Tunneling-induced shift of the cutoff law for high-order above-threshold ionization. *Phys Rev A*, 2011, 84: 025401
- 48 Keldysh L V. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Sov Phys JETP*, 1965, 20: 1307–1314

Summary for “高次谐波类共振增强的玻姆力学诠释”

Interpretation of resonance-like enhancement in high-order harmonic generation with Bohmian mechanics

Xuanyang Lai, Yiyi Huang, Shaogang Yu & Xiaojun Liu*

*State Key Laboratory of Magnetic Resonance and Atomic and Molecular Physics, Innovation Academy for Precision Measurement Science and Technology, Chinese Academy of Sciences, Wuhan 430071, China** Corresponding author, E-mail: xjliu@wipm.ac.cn

High-order harmonic generation (HHG) via interaction of intense laser field with an atom or a molecule has attracted a lot of attention since the first observations. The harmonic radiation has been taken as a source of the tabletop coherent extreme ultraviolet or soft X-ray light and has been used to generate the attosecond laser pulse. Moreover, the high-harmonic spectroscopy provides a unique insight into the electronic structure and the ultrafast dynamics of atoms and molecules, which can be used for, e.g., the molecular orbital tomography and the tracing of chemical reactions in real time. Despite the great progress in the study of the HHG, many puzzles still exist. For example, it was experimentally found that with the small increase of the laser intensity, the yield of the HHG increases dramatically first and then decreases. This intensity-dependent enhancement is called the resonance-like enhancement in HHG, for which two different kinds of theoretical explanations have been proposed: One is channel closings and the other is multiphoton resonance of the ground state. However, due to the drawbacks of the theoretical methods employed, the physical origin of the enhancement is still under debate. As one version of quantum theory, Bohmian mechanics, also known as the de Broglie–Bohm theory, is an *ab initio* method and has the advantage of providing a clear physical picture for the quantum phenomena, partly overcoming the drawbacks of the current theoretical methods.

In this work, we study the resonance-like enhancement in HHG by using Bohmian mechanics. Interestingly, we find that the noticeable enhancement of the HHG spectrum can be qualitatively well reproduced with Bohmian mechanics by considering only one central Bohmian trajectory with the initial position $x_0=0$. With the increase of the number of Bohmian trajectories with different initial positions, the HHG spectra from Bohmian mechanics are getting closer to the time-dependent Schrödinger equation result. But the main features of the spectra from Bohmian mechanics are unchanged. Thus, in the context of Bohmian mechanics, the analysis of just one central Bohmian trajectory facilitates to a great extent the understanding of the harmonic enhancement. A careful analysis of the central Bohmian trajectory reveals that the remarkable enhancement of the harmonic yields can be ascribed to a pronounced oscillation of Bohmian trajectory near the core induced by a quantum potential with large oscillation period. Since the quantum potential is determined by the electronic wavefunction according to Bohmian mechanics, further analysis of the electronic wavefunction uncovers a close connection of the pronounced oscillation of Bohmian trajectory near the core with the atomic excitation in intense laser field. Our result shows that due to the atomic excitation, the excited state has a significant population, which leads to the generation of the quantum potential with large oscillation period and hence, the pronounced oscillation of Bohmian trajectory near the core. Our work is beneficial to the understanding of the resonance-like enhancement of HHG, which may be used to increase the HHG conversion efficiency and to realize the high intensity attosecond pulse.

high-order harmonic generation, resonance-like enhancement, Bohmian mechanics, Bohmian trajectory, quantum potential

doi: [10.1360/TB-2020-0561](https://doi.org/10.1360/TB-2020-0561)