

H_2^+ 核间距对单阶谐波增强的影响

徐翠艳, 冯立强

(辽宁工业大学理学院, 锦州 121001)

摘要: 本文理论研究了在特定激光波形下 H_2^+ 核间距对单阶谐波增强的影响. 研究结果表明, 当特定激光波形驱动原子时, 谐波光谱可以呈现单阶谐波强度增强; 但是, 当用相同激光波形驱动 H_2^+ 时, 单阶谐波强度增强的现象与 H_2^+ 核间距离有关. 具体来说, 当 H_2^+ 在平衡位置时, H_2^+ 谐波光谱呈现单阶谐波增强现象; 当 H_2^+ 核间距在 3~7 a. u. 变化时, 单阶谐波增强现象消失; 当 H_2^+ 核间距大于 8 a. u. 时, 单阶谐波增强会再次出现. 理论分析表明, 多通道谐波干涉是导致 H_2^+ 单阶谐波强度变化的原因.

关键词: 高次谐波; 核间距; 单阶谐波强度; 多通道谐波干涉

中图分类号: O562.4 **文献标识码:** A **DOI:** 10.19907/j.0490-6756.2022.034004

Internuclear distance effect of H_2^+ on the single-order harmonic enhancement

XU Cui-Yan, FENG Li-Qiang

(College of Science, Liaoning University of Technology, Jinzhou 121001, China)

Abstract: The effect of internuclear distance of H_2^+ on the single-order harmonic enhancement driven by the specific laser waveform has been studied theoretically. The results show that when the atom is driven by the specific laser waveform, the single-order harmonic enhancement can be found on the harmonic spectrum. However, when H_2^+ is driven by the same waveform, the single-order harmonic enhancement is related to the internuclear distance of H_2^+ . Particularly, when H_2^+ is at its equilibrium position, the single-order harmonic enhancement can be found on the harmonic spectrum. When the internuclear distance of H_2^+ changes from 3 a. u. to 7 a. u., the single-order harmonic enhancement disappears. When the internuclear distance of H_2^+ is greater than 8 a. u., the single-order harmonic enhancement will reappear. Theoretical analyses show that the multichannel harmonic interference is responsible for the change of the single-order harmonic intensity.

Keywords: High-order harmonic generation; Internuclear distance; Single-order harmonic intensity; Multichannel harmonic interference

1 引言

当原子、分子与强激光相互作用后, 被电离的电子可以在激光场中加速, 并在激光反向时与原子核发生再碰撞, 进而辐射出能量为激光场倍数的

的高能量光子, 这一现象被称为高次谐波^[1]. 目前, 高次谐波发射过程可以简单理解为“电离-加速-回碰”三个过程, 即称为“三步模型”^[2].

高次谐波的应用主要有三个方面: 第一, 可以用于探测原子和分子的内部结构^[3]; 第二, 可以用

收稿日期: 2021-09-25

基金项目: 辽宁省自然科学基金面上项目(2019-MS-167); 辽宁省教育厅青年项目(LJKQZ2021138)

作者简介: 徐翠艳(1975-), 女, 辽宁锦州人, 硕士, 副教授, 主要从事强激光场与物质相互作用的研究.

通讯作者: 冯立强. E-mail: lqfeng1101@126.com

于产生孤立阿秒脉冲^[4];第三,可以用于获得能量为基频场数倍的高能光源^[5]. 其中,利用高次谐波获得阿秒量级光源以及高频光源(即应用二和应用三)更是开启了阿秒科学的大门. 高次谐波获得阿秒光源主要是通过叠加谐波光谱平台区. 因此,研究人员提出多种方法获得超宽连续平台区. 例如:组合场方法^[6],啁啾场方法^[7],极化门方法^[8],非均匀场方法^[9]. 高次谐波获得高频光源主要是通过增强某单阶谐波强度来获得. 例如: Liu 等^[10]通过调控啁啾场脉宽获得了波长可调的单阶谐波,其强度可增强 15 倍.

对于获得单阶谐波光源的研究,目前只集中在原子体系. 众所周知,分子谐波光谱与原子相比具有更为复杂的结构. 例如:电荷共振增强电离现象^[11]. 因此,研究分子谐波光谱中单阶谐波增强的现象具有很重要的意义. 鉴于此,本文以 H_2^+ 为模型,研究了 H_2^+ 核间距对单阶谐波强度的影响,并通过谐波辐射时频分析给出了 H_2^+ 谐波光谱中单阶谐波强度随核间距变化的原因.

2 计算方法

本文双色激光场 $E(t)$ 形式为,

$$E(t) = E_1 \exp\left[-4\ln(2)\left(\frac{t}{\tau_1}\right)^2\right] \cos(\omega_1 t + c_1 t^2) + E_2 \exp\left[-4\ln(2)\left(\frac{t}{\tau_2}\right)^2\right] \cos(\omega_2 t + c_2 t^2) \quad (1)$$

其中, $E_{1,2}$ 为激光振幅, $\omega_1 = 0.028$ a. u. (1600 nm) 为基频场频率, $\omega_2 = 0.058$ a. u. (800 nm) 为其倍频场; $\tau_1 = 20$ fs, $\tau_2 = 10$ fs 为双色场半高全宽; $c_1 = -6 \times 10^{-4}$, $c_2 = -1 \times 10^{-4}$ 为本文选取啁啾参数;激光强度都为 2.0×10^{14} W/cm².

H_2^+ 发射高次谐波可由求解外场下含时薛定谔方程来研究,

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

其中, $V(x) = \frac{1}{R} - \frac{1}{\sqrt{1+(x+R/2)^2}} - \frac{1}{\sqrt{1+(x-R/2)^2}}$ 为 H_2^+ 势能, R 为核间距离, x 为电子坐标.

通过傅里叶变化可得高次谐波谱图 $S(\omega)$ 为,

$$S(\omega) = \left| \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int a(t) \exp(-i\omega t) dt \right|^2 \quad (3)$$

其中 $a(t) = -\langle \psi(x,t) | \frac{\partial V(x)}{\partial x} + E(t) | \psi(x,t) \rangle$.

3 结果与讨论

首先,基于前期研究基础^[10]可知,在本文选取激光波形下, He 原子谐波光谱可以呈现 620 次谐波的单阶谐波强度的增强,如图 1 所示. 通过分析谐波辐射过程,图 2 给出了 620 次谐波强度增强的原因. 结合三步模型和激光波形图可知,当电子在 A 时刻电离后(见图 2a),其可在后续激光作用下加速,并在 1 时刻附近与原子核再次碰撞,进而发射谐波能量峰 A_1 (见图 2b). 但是,由于 C 时刻激光振幅很弱(见图 2a),电子可以快速通过 C 时刻在后续负向激光波形中获得第二次加速,并且在 2 时刻附近与原子核再次碰撞,进而发射谐波能量峰 A_2 (见图 2b). 同理, D 时刻激光振幅依然很弱(见图 2a),电子可以通过 D 时刻并在后续激光作用下获得第三次加速,进而发射谐波能量峰 A_3 (见图 2b). 这里,由于 C 和 D 时刻正向波包的存在,电子在其附近会呈现先减速再加速的情况,因此导致谐波辐射能量峰上呈现折叠区域. 对于 C 时刻,其对应能量峰光子能量较低,这里不进行讨论. 对于 D 时刻,其折叠区域大致在 620 次谐波附近. 通过观察谐波光谱贡献可知,当谐波能量大于 450 阶谐波时,光谱区域由能量峰 A_2 和 A_3 贡献产生. 并且,当光子能量在 450 次谐波到 620 谐波区间时,谐波光谱由 A_2 贡献产生;当光子能量在 620 谐波以上时,谐波光谱由 A_3 贡献产生. 只有在 620 次谐波时,光谱是由 A_2 、 A_3 和折叠区域产生,因此,620 次谐波强度要大于其周边谐波的强度. 这就是 620 次谐波强度增强的原因. 深入分析一下,电子除了在 A 时刻附近电离外,还可以在 B 时刻附近电离(见图 2a),同样由于 C 和 D 时刻较弱的激光振幅,电子可以在 1、2、3 时刻与原子核发生碰撞,进而发生谐波能量峰 $B_{1\sim 3}$ (见图 2b). 但是,能量峰 $B_{1\sim 3}$ 的强度与 $A_{1\sim 3}$ 的强度弱很多,其在谐波光谱上贡献微乎其微,因此,在原子谐波辐射过程中没有进行讨论. 但是,在分子谐波辐射过程中路径 B 将起到很重要的作用(将在下面进行分析).

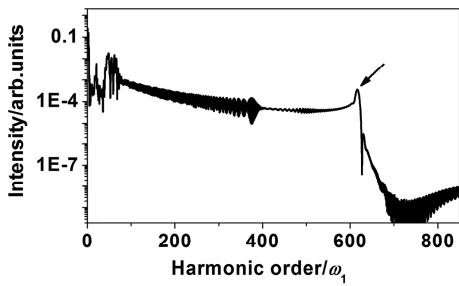


图 1 双色啁啾场下 He 原子谐波光谱
Fig. 1 Harmonic spectra of He atom driven by two-color chirped pulse

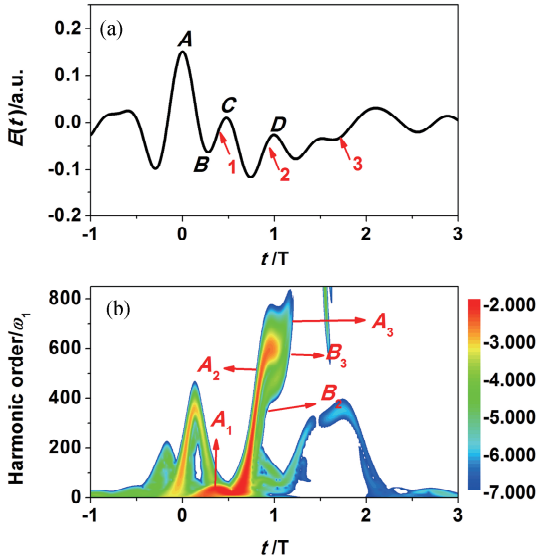


图 2 (a) 双色啁啾场激光波形; (b) He 原子谐波辐射时频分析
Fig. 2 (a) Laser profiles of two-color chirped pulse;
(b) the time-frequency analyses of harmonic emission from He atom

图 3 给出了在相同激光参数下, H_2^+ 不同核间距对谐波光谱的影响. 由图 3 可知, 当 H_2^+ 在平衡位置时 ($R=2$ a. u.), H_2^+ 谐波光谱截止区域可呈现单阶谐波增强现象. 当 H_2^+ 核间距在 $3\sim 7$ a. u. 变化时 (例如: $R=4$ a. u. 和 $R=6$ a. u.), 单阶谐波增强现象消失. 当 H_2^+ 核间距大于 $R=8$ a. u. 时, 谐波截止区域的单阶谐波增强会再次出现.

为了说明 H_2^+ 核间距对单阶谐波强度的影响, 图 4 给出了在相同激光波形驱动下 H_2^+ 核间距为 2, 4 和 8 a. u. 时的谐波辐射分析图. 因为激光波形没变 (见图 2a 和图 4a), 因此, He 原子核 H_2^+ 都在相同的时刻发生电离-加速和回碰, 进而可以形成谐波辐射能量峰 $A_{1\sim 3}$ 和 $B_{2,3}$ (这里, 由于能量峰 B_1 辐射光子能量太低, 因此不予讨论). 分析 $R=2$ a. u. 情况, 能量峰 $B_{2,3}$ 强度比能量峰 $A_{1\sim 3}$ 强度低 2 个数量级左右. 因此, 谐波光谱主要由能量峰

$A_{1\sim 3}$ 贡献产生, 如图 4b 所示. 也就是说, 在 $R=2$ a. u. 时 H_2^+ 谐波辐射过程与 He 原子类似, 因此

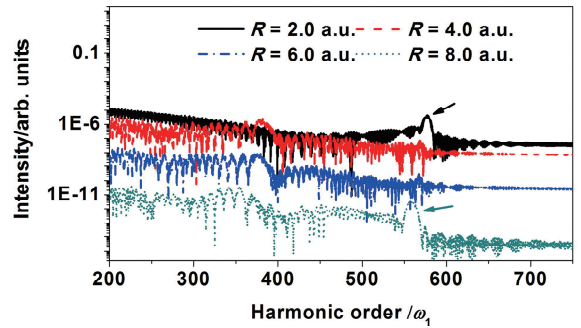


图 3 双色啁啾场下 H_2^+ 不同核间距下谐波光谱
Fig. 3 Harmonic spectra of H_2^+ with different internuclear distances driven by two-color chirped pulse

A_2 和 A_3 之间的能量折叠区域会在谐波光谱上产生单阶谐波增强的现象. 分析 $R=4$ a. u. 情况, 谐波辐射能量峰 $A_{1\sim 3}$ 和 $B_{2,3}$ 强度明显增强, 并且 $B_{2,3}$ 强度与 $A_{1\sim 3}$ 强度差不到一个数量级, 如图 4c 所示. 但是, 由于能量峰 $A_{1\sim 3}$ 和 $B_{2,3}$ 不在同一时间发生, 即电离-加速-回碰路径不同. 因此, 包含折叠区能量范围内的谐波其强度取决于能量峰 $A_{1\sim 3}$ 和 $B_{2,3}$ 的干涉结果. 这里, 由于不同的谐波辐射路径, 在谐波辐射过程中会产生干涉减小现象, 因此导致谐波光谱截止区域单阶谐波增强现象的消失. 进一步分析 H_2^+ 电离过程可知, 导致 H_2^+ 谐波能量峰在 $R=4$ a. u. 时增强的原因在于: 在此核间距下, H_2^+ 会发生电荷共振增强电离, 进而增大电离几率^[11], 这是谐波能量峰增强的原因. 分析 $R=8$ a. u. 情况, 谐波辐射能量峰 $A_{1\sim 3}$ 和 $B_{2,3}$ 强度与 $R=2$ a. u. 情况相比有所增强, 但是与 $R=4$ a. u. 情况相比又有所减弱, 如图 4d 所示. 尤其对于能量峰 $B_{2,3}$, 其强度与能量峰 $A_{1\sim 3}$ 相比有近一个数量级的差距. 因此, 在谐波光谱贡献中, 尤其是 $A_{1\sim 3}$ 的折叠区域, 能量峰 $A_{1\sim 3}$ 再一次起到主要作用. 分析 H_2^+ 电离过程可知, 在 $R=8$ a. u. 时, H_2^+ 依然会发生电荷共振增强电离现象. 因此, 增大的电离几率依然会对谐波能量峰起到增强作用. 但是, 谐波强度不仅取决于电离过程, 其还与回碰过程有关. 但是当 H_2^+ 核间距增大到一定距离时 (例如 $R > 8$ a. u.), 电子与 H 核碰撞的几率会减小, 因此导致谐波能量峰强度的下降. 这是导致图中能量峰强度大于 $R=2$ a. u. 情况并小于 $R=4$ a. u. 情况的原因.

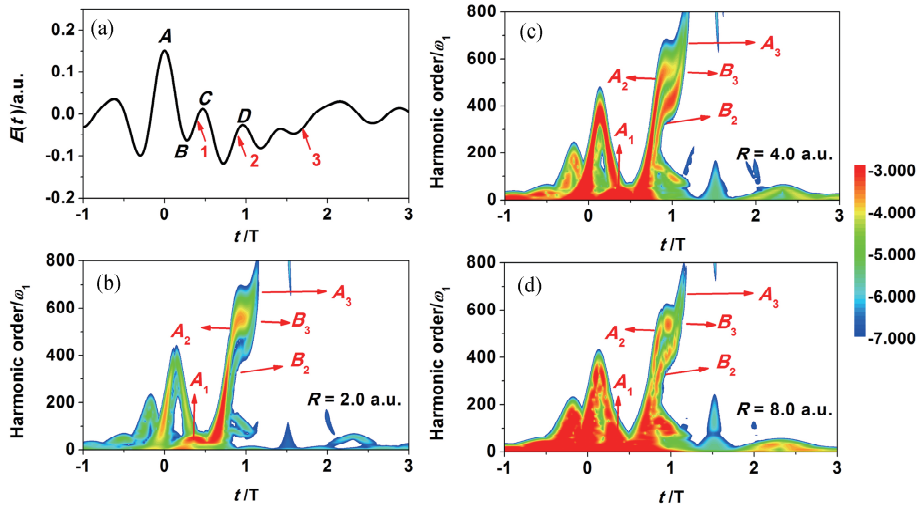


图 4 (a) 双色啁啾场激光波形. H_2^+ 谐波辐射时频分析; (b) $R=2$ a. u.; (c) $R=4$ a. u.; (d) $R=8$ a. u.
Fig. 4 (a) Laser profiles of two-color chirped pulse. The time-frequency analyses of harmonic emission from H_2^+ with inter-nuclear distances; (b) $R=2$ a. u.; (c) $R=4$ a. u.; (d) $R=8$ a. u.

4 结 论

本文采用 H_2^+ 为模型, 研究了 H_2^+ 核间距对单阶谐波强度的影响. 结果表明, 当 H_2^+ 核间距为 2 a. u. 时, H_2^+ 谐波光谱截止区域单阶谐波强度被增强. 当 H_2^+ 核间距在 3~7 a. u. 变化时, H_2^+ 谐波光谱截止区域无单阶谐波增强的现象. 当 H_2^+ 核间距大于 8 a. u. 时, H_2^+ 谐波光谱截止区域单阶谐波强度会再次被增强. 谐波时频分析过程指出, H_2^+ 单阶谐波强度随核间距变化是多通道谐波辐射能量峰干涉所引起的.

参考文献:

[1] Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics [J]. Rev Mod Phys, 2009, 81: 163.
[2] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization [J]. Phys Rev Lett, 1993, 71: 1994.
[3] 冯立强, 刘航, 李义. 利用啁啾激光调制分子谐波信号[J]. 原子与分子物理学报, 2019, 36: 268.
[4] 王志斌, 焦志宏, 周效信. 三色圆偏振激光组合脉冲驱动氦原子产生椭圆偏振的阿秒脉冲[J]. 原子与分子物理学报, 2020, 37: 95.

[5] Li Y, Feng L Q, Qiao Y. Selective enhancement of single-order and two-order harmonics from He atom via two-color and three-color laser fields [J]. Chem Phys, 2019, 527: 110497.
[6] 冯立强. 非均匀组合场驱动 He 原子获得高强度 keV 阿秒脉冲[J]. 四川大学学报: 自然科学版, 2020, 57: 130.
[7] Feng L Q, Chu T S. Generation of an isolated sub-40-as pulse using two-color laser pulses: combined chirp effects [J]. Phys Rev A, 2011, 84: 053853.
[8] 冯立强, 刘航. 利用蝴蝶型纳米结构下的极化门方案输出单个阿秒脉冲[J]. 原子与分子物理学报, 2019, 36: 82.
[9] Feng L Q. Molecular harmonic extension and enhancement from H_2^+ ions in the presence of spatially inhomogeneous fields [J]. Phys Rev A, 2015, 92: 053832.
[10] 刘辉, 冯立强. 激光波形优化产生水窗区单阶谐波[J]. 四川大学学报: 自然科学版, 2021, 58: 044002.
[11] Liu H, Li W L, Feng L Q. Chirp control of multiphoton resonance ionization and charge-resonance enhanced ionization on molecular harmonic generation [J]. Chem Phys Lett, 2017, 676: 118.

引用本文格式:

中文: 徐翠艳, 冯立强. H_2^+ 核间距对单阶谐波增强的影响[J]. 四川大学学报: 自然科学版, 2022, 59: 034004.
英文: Xu C Y, Feng L Q. Internuclear distance effect of H_2^+ on the single-order harmonic enhancement [J]. J Sichuan Univ: Nat Sci Ed, 2022, 59: 034004.