

doi: 10.3969/j.issn.0490-6756.2019.01.017

# 振动态对 $H_2^+$ 谐波辐射频移的影响

刘航<sup>1,2</sup>, 李义<sup>3</sup>, 敬晓丹<sup>3</sup>, 冯立强<sup>2,3</sup>

- (1. 辽宁工业大学化学与环境工程学院, 锦州 121001;  
2. 中国科学院大连化学物理研究所分子反应动力学国家重点实验室, 大连 116023;  
3. 辽宁工业大学理学院, 锦州 121001)

**摘要:** 理论研究了  $H_2^+$  在不同振动态下辐射高次谐波的特点. 结果表明, 在低振动态下, 谐波辐射呈现红移现象. 随着振动态增大, 谐波红移现象逐渐减弱甚至消失. 通过分析谐波辐射时频分析图以及双 H 核辐射谐波的特点, 给出了振动态对  $H_2^+$  谐波辐射频移的原因.

**关键词:** 高次谐波;  $H_2^+$ ; 振动态; 谐波频移

**中图分类号:** O562.4 **文献标识码:** A **文章编号:** 0490-6756(2019)01-0091-04

## Vibrational state effect on frequency modulation of harmonic emission from $H_2^+$

LIU Hang<sup>1,2</sup>, LI Yi<sup>3</sup>, JING Xiao-Dan<sup>3</sup>, FENG Li-Qiang<sup>2,3</sup>

- (1. School of Chemical and Environmental Engineering, Liaoning University of Technology, Jinzhou 121001, China;  
2. State Key Laboratory of Molecular Reaction Dynamics, Dalian Institute of Chemical Physics Chinese Academy of Sciences, Dalian 116023, China; 3. College of Science, Liaoning University of Technology, Jinzhou 121001, China)

**Abstract:** High-order harmonic generation from  $H_2^+$  with different vibrational states has been theoretically investigated. The results show that the red-shifts of the harmonics can be found in the lower vibrational states. As the vibrational state increases, the red-shifts of the harmonics are decreased even disappeared. Through studying the time-frequency analyses of the harmonics and the contributions of the harmonics from the two-H nuclei, the reason behind the frequency modulation of harmonics are given.

**Keywords:** High-order harmonic generation;  $H_2^+$ ; Vibrational states; Frequency modulation of harmonics

## 1 引言

分子相比于原子具有更为复杂的结构, 因此当其与强激光场相互作用后, 会产生一些分子特有的现象. 例如: 多光子电离<sup>[1]</sup>、电荷共振增强电离<sup>[2]</sup>、分子谐波辐射<sup>[3]</sup>等. 其中, 高次谐波作为一种非常有效的探测原子、分子动力学的方法被广泛研究<sup>[4-9]</sup>.

原子、分子发射谐波的过程可以由 Corkum 提

出的半经典模型<sup>[10]</sup>来描述: 首先, 电子通过隧道电离进入连续态(过程 I: 电离过程); 随后, 电子在激光场中加速并远离核子(过程 II: 加速过程); 最后, 在激光场反向时部分电子反向加速返回核子并与核子发生碰撞进而辐射出高能光子(过程 III: 发射谐波过程).

但是不同于原子辐射谐波, 分子辐射谐波由于其多出的核自由度, 其由核运动所引起的谐波辐射特点主要可以分为两部分: (i) 谐波频移<sup>[11-14]</sup>; (ii)

收稿日期: 2017-05-18

基金项目: 国家自然科学基金(11504151); 辽宁省博士启动基金(201501123)

作者简介: 刘航(1985-), 女, 辽宁沈阳人, 博士, 讲师, 主要从事分子反应动力学研究.

通讯作者: 冯立强. E-mails: lqfeng1101@126.com; lqfeng@dicp.ac.cn

谐波振幅强度的变化<sup>[15]</sup>. 具体来说, Bian 等<sup>[11-12]</sup>研究表明在核运动的影响下  $\text{H}_2^+$  谐波辐射会呈现明显红移现象. Kan 等<sup>[13]</sup>和 Watson 等<sup>[14]</sup>研究表明在多周期较强激光场下  $\text{H}_2^+$  谐波辐射呈现蓝移现象. Feng 等<sup>[15]</sup>发现较轻的核辐射谐波强度要高于较重的核. 虽然, 近年来对分子谐波辐射过程的研究取得了很大进展<sup>[11-15]</sup>, 但是分子振动态一般都选择为基态, 对于振动激发态对谐波频移的影响却少有报道. 鉴于上述原因, 本文理论研究了振动态对  $\text{H}_2^+$  谐波辐射频移的影响. 并给出了谐波频移变化的原因.

## 2 计算方法

非玻恩奥本海默近似含时薛定谔方程为<sup>[16-17]</sup>:

$$i \frac{\partial \psi(z, R, t)}{\partial t} = \left[ -\frac{1}{m_p} \frac{\partial^2}{\partial R^2} - \frac{2m_p + 1}{4m_p} \frac{\partial^2}{\partial z^2} + V(z, R) + \left(1 + \frac{1}{(2m_p + 1)}\right) z E(t) \right] \cdot \psi(z, R, t), \quad (1)$$

$$V(z, R) = 1/R - 1/\sqrt{(z - R/2)^2 + 1} - 1/\sqrt{(z + R/2)^2 + 1}, \quad (2)$$

$$E(t) = E \exp[-4 \ln(2) t^2 / \tau^2] \cos(\omega_1 t), \quad (3)$$

其中,  $m_p$ 、 $R$ 、 $z$  分别为 H 核质量、核与电子坐标.  $\omega_1$ 、 $E$ 、和  $\tau$  分别为激光场的频率、振幅和脉宽.

高次谐波谱图可表示为:

$$S(\omega) = \left| \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int a(t) e^{-i\omega t} dt \right|^2, \quad (4)$$

其中,  $a(t) = -\langle \psi(z, R, t) | \frac{\partial V(z, R)}{\partial z} + E(t) | \psi(z, R, t) \rangle$  为偶极加速度<sup>[18]</sup>.

## 3 结果与讨论

图 1 给出  $\text{H}_2^+$  不同振动态在 5 fs-400 nm,  $I = 3.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  ( $I$  表示激光场光强) 的激光场下辐射谐波的特点. 由图可知, 在振动基态时 ( $v=1$ ), 谐波截止能量附近呈现明显红移现象(虚线框所示). 随着振动态增大, 谐波截止能量附近红移逐渐减弱. 甚至在  $v=3$  时, 谐波红移现象已经消失.

由三步模型可知, 在激光场的上升区间 ( $dI(t)/dt > 0$ ), 由于激光强度的持续增强, 后电离的电子会获得更多的能量, 进而导致谐波光谱的蓝移; 相反在激光场的下降区间 ( $dI(t)/dt < 0$ ), 由于激光强度的持续减小, 后电离的电子将获得较低的

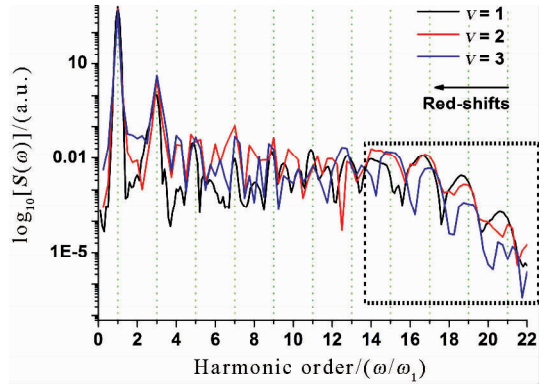


图 1  $\text{H}_2^+$  不同振动态下谐波辐射谱

Fig. 1 Harmonic spectra from  $\text{H}_2^+$  with different vibrational states

能量, 进而导致谐波光谱的红移. 分析谐波辐射的时频分析图<sup>[19]</sup>, 如图 2 所示可知, 在本文所用激光场下, 可以呈现许多个谐波辐射过程, 标记为  $P_i$ . 但是对谐波截止能量有贡献作用的主要集中在  $P_{1-3}$ . 对于振动基态 ( $v=1$ ),  $P_3$  的强度要高于  $P_1$  的强度, 即, 谐波辐射强度主要来源于激光下降区间, 如图 2(a) 所示, 因此导致谐波光谱的红移. 随着振动态增大,  $\text{H}_2^+$  在激光上升区间的谐波辐射强度增强, 如图 2(b) 和 2(c) 所示, 因此导致谐波光谱红移减弱甚至消失.

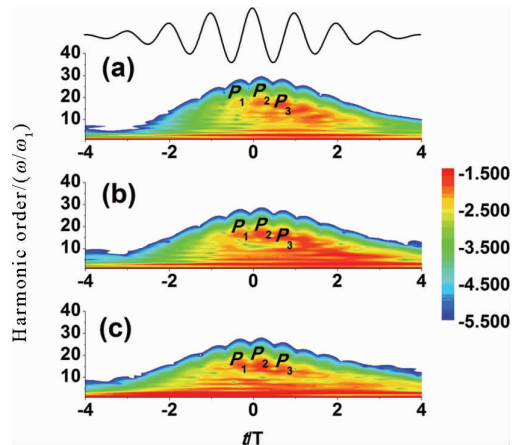


图 2  $\text{H}_2^+$  在不同振动态下辐射谐波的时频分析 (a)  $v=1$ ; (b)  $v=2$ ; (c)  $v=3$

Fig. 2 Time-frequency analyses of the harmonics from  $\text{H}_2^+$  with (a)  $v=1$ ; (b)  $v=2$ ; (c)  $v=3$

图 3(a) 给出  $\text{H}_2^+$  双 H 核在  $v=1$  时谐波辐射的贡献<sup>[20]</sup>. 由图可知, 由于双 H 核谐波辐射的干涉相消以及干涉增强现象, 偶次谐波几乎观测不到, 而奇次谐波则被增强, 并且双 H 核谐波辐射在截止能量处都呈现红移现象. 图 3(b) 和 (c) 给出双 H 核谐波辐射的时频分析图. 从图中可看出, 在振

动基态下, 左  $[S_-(\omega)]$  右  $[S_+(\omega)]$  H 核谐波辐射的主要贡献都来自于激光场的下降区间, 因此导致双 H 核谐波辐射都呈现红移特点.

也从另外一个方面解释了谐波频移随着振动态增大而减小的原因. 图 4(b) 和 4(c) 给出双 H 核谐波辐射的时频分析图. 由图可知, 随着振动态增大, 左 H 核谐波辐射的主要贡献依然来自于激光场的下降区间 (即  $P_3 > P_1$ ), 因此导致左 H 核谐波辐射呈现红移. 但对于右 H 核,  $P_1$  的谐波辐射强度要高于  $P_3$ , 即, 谐波辐射强度主要来源于激光上升区间, 因此导致右 H 核谐波辐射呈现蓝移.

### 4 结 论

综上所述, 理论研究了  $H_2^+$  在不同振动态下辐射高次谐波的特点. 结果表明, 在低振动态下, 谐波辐射呈现红移现象. 随着振动态增大, 谐波红移现象逐渐减弱甚至消失. 同时, 在低振动态下,  $H_2^+$  双 H 核谐波辐射都呈现红移; 但在高振动态下, 左右 H 核谐波辐射分别呈现红移和蓝移的现象. 谐波辐射时频分析表明, 谐波辐射在激光场上升以及下降区间的贡献是导致谐波频移的原因.

### 参考文献:

- [1] Liu H, Li W L, Feng L Q. Chirp control of multi-photon resonance ionization and charge resonance enhanced ionization on molecular harmonic generation [J]. Chem Phys Lett, 2017, 676: 118.
- [2] Zuo T, Chelkowski S, Bandrauk A D. Harmonic-generation by the  $H_2^+$  molecular ion in intense laser fields [J]. Phys Rev A, 1993, 48: 3837.
- [3] 刘航, 冯立强. 电荷共振增强电离和离解电离在  $H_2^+$  谐波辐射中的贡献 [J]. 原子与分子物理学报, 2018, 35: 461.
- [4] Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics [J]. Rev Mod Phys, 2009, 81: 163.
- [5] 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.
- [6] 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.
- [7] 葛鑫磊, 王群. 少周期非均匀场下原子空间位置对高次谐波发射的影响 [J]. 原子与分子物理学报, 2017, 34: 108.
- [8] 李娜娜, 葛鑫磊, 刘学深. 圆偏振激光附加太赫兹场作用下的高次谐波发射和孤立阿秒脉冲的产生 [J]. 原子与分子物理学报, 2016, 33: 105.
- [9] 何文娜, 王国利, 周效信. 极化门控制下中红外激

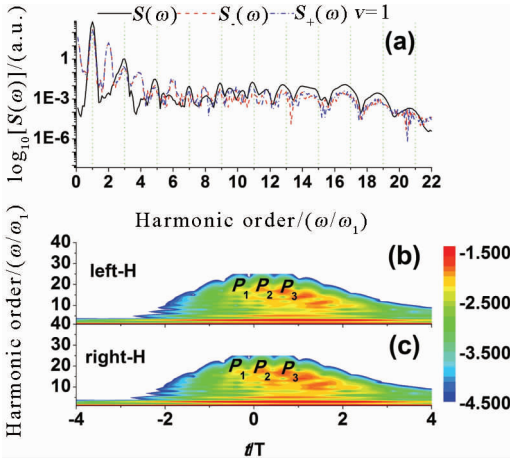


图 3 (a)  $H_2^+$  在  $v=1$  时双 H 核谐波辐射谱图. 谐波辐射时频分析图 (b) 左 H 核; (c) 右 H 核.  $T$  是 400 nm 激光场光学周期  
Fig. 3 (a) Harmonic spectra from two-H nuclei of  $H_2^+$  with  $v=1$ . Time-frequency analyses of the harmonics from (b) left-H and (c) right-H.  $T$  is the optical cycle of 400 nm pulse

图 4(a) 给出  $H_2^+$  双 H 核在  $v=3$  时谐波辐射的贡献. 从图中可知, 随着振动态增大, 左 H 核  $[S_-(\omega)]$  谐波截止能量附近依然呈现红移现象; 但右 H 核  $[S_+(\omega)]$  谐波截止能量附近呈现蓝移. 这

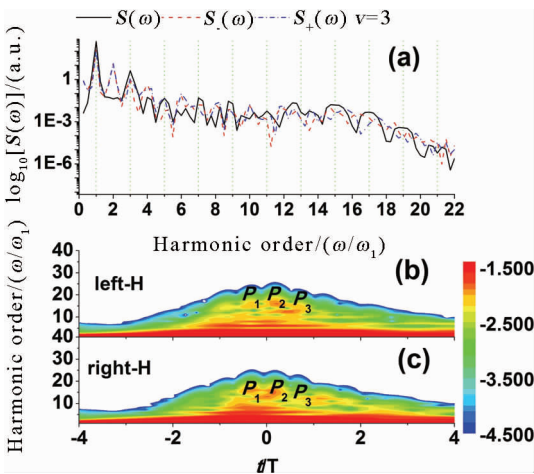


图 4 (a)  $H_2^+$  在  $v=3$  时双 H 核谐波辐射谱图. 谐波辐射时频分析图; (b) 左 H 核; (c) 右 H 核  
Fig. 4 (a) Harmonic spectra from two-H nuclei of  $H_2^+$  with  $v=3$ . Time-frequency analyses of the harmonics from; (b) left-H and; (c) right-H

- 光场驱动 He 原子产生的单个阿秒脉冲 [J]. 原子与分子物理学报, 2015, 32: 437.
- [10] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization [J]. Phys Rev Lett, 1993, 71: 1994.
- [11] Bian X B, Bandrauk A D. Multichannel molecular high-order harmonic generation from asymmetric diatomic molecules [J]. Phys Rev Lett, 2010, 105: 093903.
- [12] Bian X B, Bandrauk A D. Nonadiabatic molecular high-order harmonic generation from polar molecules: spectral redshift [J]. Phys Rev A, 2011, 83: 041403.
- [13] Kan C, Capjack C E, Rankin R, *et al.* Spectral and temporal structure in high harmonic emission from ionizing atomic gases [J]. Phys Rev A, 1995, 52: R4336.
- [14] Watson J B, Sanpera A, Burnett K. Pulse-shape effects and blueshifting in the single-atom harmonic generation from neutral species and ions [J]. Phys Rev A, 1995, 51: 1458.
- [15] Feng L Q, Chu T S. Nuclear signatures on the molecular harmonic emission and the attosecond pulse generation [J]. J Chem Phys, 2012, 136: 054102.
- [16] Lu R F, Zhang P Y, Han K L. Attosecond-resolution quantum dynamics calculations for atoms and molecules in strong laser fields [J]. Phys Rev E, 2008, 77: 066701.
- [17] Hu J, Han K L, He G Z. Correlation quantum dynamics between an electron and  $D_2^+$  molecule with attosecond resolution [J]. Phys Rev Lett, 2005, 95: 123001.
- [18] Burnett K, Reed V C, Cooper J, *et al.* Calculation of the background emitted during high-harmonic generation [J]. Phys Rev A, 1992, 45: 3347.
- [19] Antoine P, Piraux B, Maquet A. Time profile of harmonics generated by a single atom in a strong electromagnetic field [J]. Phys Rev A, 1995, 51: R1750.
- [20] 冯立强.  $H_2^+$  分子双 H 核对高次谐波辐射的贡献 [J]. 原子与分子物理学报, 2018, 35: 267.

**引用本文格式:**

中文: 刘航, 李义, 敬晓丹, 等. 振动态对  $H_2^+$  谐波辐射频移的影响 [J]. 四川大学学报: 自然科学版, 2019, 56: 91.

英文: Liu H, Li Y, Jing X D, *et al.* Vibrational state effect on frequency modulation of harmonic emission from  $H_2^+$  [J]. J Sichuan Univ; Nat Sci Ed, 2019, 56: 91.