

doi: 10.3969/j.issn.0490-6756.2019.02.018

分子取向对 H_2^+ 谐波分布的影响

冯立强^{1,2}, 刘航³, 刘辉¹

(1. 辽宁工业大学理学院, 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. 辽宁工业大学化学与环境工程学院, 锦州 121001)

摘要: 理论研究了 H_2^+ 分子取向对谐波空间分布的影响. 结果表明: 当激光偏振方向与分子轴方向一致、谐波辐射满足激光场正向时, 负向 H 核谐波辐射强度大于正向 H 核; 激光场反向时, 正向 H 核谐波辐射强度大于负向 H 核. 随着分子取向角增大, 谐波辐射强度减弱, 尤其正向 H 核对谐波辐射的贡献明显减小, 因此导致正负向 H 核的谐波辐射强度差逐渐增大. 最后, 通过研究谐波辐射的时频分析以及电子波包随时间的演化给出了电子在双 H 核之间运动以及谐波空间分布的原因.

关键词: 高次谐波; H_2^+ 分子离子; 谐波空间分布; 分子取向角

中图分类号: O562.4 **文献标识码:** A **文章编号:** 0490-6756(2019)02-0290-05

Alignment angle dependence of H_2^+ on spatial distribution of harmonic emission

FENG Li-Qiang^{1,2}, LIU Hang³, LIU Hui¹

(1. College of Science, 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. School of Chemical and Environmental Engineering, Liaoning University of Technology, Jinzhou 121001, China)

Abstract: The alignment angle dependence of H_2^+ on the spatial distribution of the molecular high-order harmonic generation (MHHG) has been theoretically investigated. The result shows that when the laser polarization direction coincides with the molecular axis, the harmonic emission follows the rules. When the laser field is larger than zero, the MHHG from the negative-H is higher than that from the positive-H; while when the laser field is smaller than zero, the MHHG from the positive-H is higher than that from the negative-H. As the alignment angle of H_2^+ increases, the intensities of the harmonic spectra decreases. Especially for the case of the harmonic emission from the positive-H, a faster decrease of the harmonics can be found, thus leading to the enhanced intensity difference of the harmonics from the two-H nuclei. Finally, through studying the time-frequency analyses of the MHHG and the time-dependent electronic wave functions, the reasons behind the electron motion and the spatial distribution of the MH-HG from the two-H nuclei are shown and discussed.

Keywords: High-order harmonic generation; H_2^+ molecular ions; Spatial distribution of harmonic emission; Alignment angle of H_2^+

1 引言

强激光场与物质相互作用会产生许多非线性光学现象. 高次谐波(High-order harmonic generation, HHG)作为其中一种非常重要的现象在物理、化学、材料以及生物方面有重要的应用^[1-3].

目前, 强激光场驱动原子、分子辐射高次谐波的辐射过程可以通过半经典的三步模型^[4]来描述. 具体来说, 电子首先通过隧道电离或者多光子电离进入连续态(过程 1: 电离过程); 随后, 自由电子以经典运动模式在激光场驱动下进行加速(过程 2: 加速过程); 最后, 当激光场经过半个周期达到反向时, 加速电子有几率与母核进行回碰并最终辐射出高能光子, 即高次谐波(过程 3: 回碰过程). 由于高次谐波是实验上获得超短孤立阿秒脉冲的有效方法, 因此近二十年来, 研究人员提出了许多高效的方法来延伸谐波截止能量或者增强谐波辐射强度. 例如: 少周期激光场方案^[5]; 双色或者三色组合场方案^[6,7]; 极化门方案^[8,9]; 非均匀激光场方案^[10-12]等.

近十年, 分子辐射高次谐波的特点得到了人们的广泛关注. 这是因为当分子与激光场相互作用时, 由于多出的核自由度/核运动, 分子谐波光谱可以呈现出比原子谐波光谱更有趣和更复杂的现象. 例如: Zuo 等^[13]理论研究了电荷共振增强电离在分子谐波辐射中的作用; Zhang 等^[14]研究了 H_2^+ 分子谐波辐射过程中的多重电子回碰过程; Bian 等^[15]理论研究了 H_2^+ 分子谐波辐射过程中由于非绝热现象所导致的谐波频移现象; Vafaei 等^[16]发现非奇次谐波可以在激光下降区间产生; Zhang 等^[17]和 Feng 等^[18]研究了 H_2^+ 分子谐波辐射的空间分布并对其进行了调控.

虽然 H_2^+ 谐波辐射的空间分布已经被研究, 但是上述研究中激光偏振方向与分子轴处在平行的状态, 即分子取向固定在激光偏振方向. 但在实际过程中, 当激光与 H_2^+ 相互作用时, 其分子取向可以是任意角度. 因此, 本文通过求解二维薛定谔方程研究了 H_2^+ 分子取向对双 H 核谐波辐射强度的影响. 随后, 结合谐波辐射时频分析以及含时电子波包演化给出了 H_2^+ 分子谐波空间分布的原因. 若无特殊说明, 本文采用原子单位(atomic units (a. u.)).

2 计算方法

H_2^+ 与激光场作用的二维含时薛定谔方程可

表示为^[19,20],

$$i \frac{\partial \varphi(x, y, t)}{\partial t} = \left[-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial y^2} + V(x, y) + xE_x(t) + yE_y(t) \right] \varphi(x, y, t), \quad (1)$$

$$V(x, y) = -1/\sqrt{(x+R/2)^2 + y^2 + 0.61} - 1/\sqrt{(x-R/2)^2 + y^2 + 0.61}, \quad (2)$$

$$E(t) = Ee^{-4\ln(2)(t/\tau)^2} \sin(\omega_1 t) = (E_x(t), E_y(t)) = (E(t) \cos\theta, E(t) \sin\theta). \quad (3)$$

其中, x, y 为电子坐标; $R=7.0$ a. u. 为核间距离; ω_1, E 和 τ 分别为激光场的频率、振幅和脉宽; θ 为激光偏振方向与分子轴夹角.

偶极加速度可以表示为:

$$d_{x\text{-positive-H}}(x>0, t) = \int_0^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \left[\frac{\partial V(x, y)}{\partial x} + E_x(t) \right] \psi^*(x, y, t) \psi(x, y, t) dy dx, \quad (4)$$

$$d_{x\text{-negative-H}}(x<0, t) = \int_{-\infty}^0 \int_{-\infty}^{\infty} \left[\frac{\partial V(x, y)}{\partial x} + E_x(t) \right] \psi^*(x, y, t) \psi(x, y, t) dy dx. \quad (5)$$

正(positive-H)负(negative-H)向 H 核辐射高次谐波谱图可表示为:

$$S_{\text{positive-H}}(x>0, \omega) = \left| \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^{T_{\text{total}}} d_{x\text{-positive-H}}(x>0, t) e^{-i\omega t} dt \right|^2, \quad (6)$$

$$S_{\text{negative-H}}(x<0, \omega) = \left| \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^{T_{\text{total}}} d_{x\text{-negative-H}}(x<0, t) e^{-i\omega t} dt \right|^2. \quad (7)$$

双 H 核谐波辐射强度差比率为:

$$\alpha = (S_{\text{negative-H}}(\omega) - S_{\text{positive-H}}(\omega)) / (S_{\text{negative-H}}(\omega) + S_{\text{positive-H}}(\omega)). \quad (8)$$

3 结果与分析

图 1(a)给出 H_2^+ 在 5 fs/800 nm 激光场下双 H 核谐波辐射强度随分子取向角的变化. 激光强度为 $I=3.0 \times 10^{14}$ W/cm². 由图可知, 当 $\theta=0.0\pi$ 时, 负向 H 核对谐波辐射贡献略大于正向 H 核. 分子轴与激光偏振轴夹角从 0.0π 增加到 0.4π , 由于激光在分子轴投影强度减弱, 所以沿该方向辐射的谐波强度降低, 并且正向 H 核对谐波的贡献下降更快. 图 1(b)给出了双 H 核谐波辐射强度差比率随分子取向角的变化. 由图可知, 随着分子取向角增大, 由于正向 H 核对谐波的贡献下降更快, 因此导致正负向 H 核谐波辐射强度差随着分子取向角增大而增大.

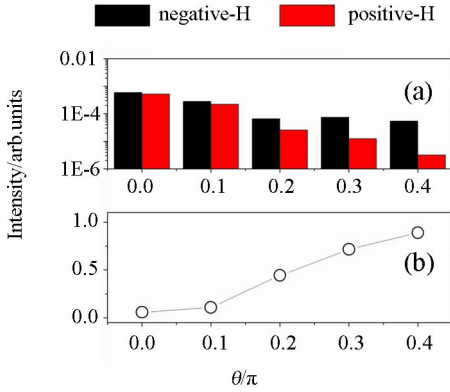


图 1 (a) H_2^+ 取向角对双 H 核谐波辐射强度的影响; (b) 双 H 核谐波辐射强度差取向角的变化. 激光场为 5 fs/800 nm, $I = 3.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$

Fig. 1 (a) The alignment angle dependence of H_2^+ on the intensity distribution of harmonics from the two-H nuclei; (b) intensity differences of the harmonics from the two-H nuclei. The laser field is 5 fs/800 nm pulse with $I = 3.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$

图 2 给出了 5 fs/800 nm 激光场在 $\theta = 0.0\pi$; $\theta = 0.2\pi$ 以及 $\theta = 0.4\pi$ 时的激光包络图以及双 H 核在上述激光场下谐波辐射的时频分析图^[21]. 这里只给出分子轴方向, 即 x 轴方向的激光包络图. 首先由三步模型可知, 电子电离主要发生在激光包络的振幅附近. 但是由于少周期激光场上升和下降区间强度较弱, 导致其电离较弱, 因此本文不予考虑. 分析激光包络图可知(图 2(a), 2(d), 2(g)), 在本文激光场作用下, 电子电离主要发生

在 $i_{1\sim 4}$ 附近. 随后 2/3 周期, 电子在激光场中加速, 当激光场反向时, 电子在 $r_{1\sim 4}$ 处与 H 核发生回碰并辐射高次谐波. 因此, 在谐波辐射时频分析图中可以清楚的观测到 4 个谐波辐射过程, 记为: $P_{1\sim 4}$. 对于 $\theta = 0.0\pi$ 的情况(图 2(b)和 2(c)), 当激光振幅小于零时($E_x(t) < 0$), 正向 H 核谐波辐射强度大于负向 H 核; 当激光振幅大于零时($E_x(t) > 0$), 负向 H 核谐波辐射强度大于正向 H 核. 具体来说, 谐波截止能量主要由 P_2 和 P_3 贡献产生. 但是由上述分析可知, 正负向 H 核分别对 P_2 和 P_3 辐射起主要贡献作用, 因此导致正负向 H 核对谐波辐射的贡献难以区分. 但是由于 i_2 电离时刻激光强度较弱, 因此 H_2^+ 电离几率较小, 进而导致谐波辐射能量峰 P_2 的强度小于 P_3 . 也就是说, P_3 在谐波辐射中起主要作用, 这就是负向 H 核谐波辐射强度略大于正向 H 核的原因. 随着分子取向角增大(图 2(e)和 2(f)表示 $\theta = 0.2\pi$; 图 2(h)和 2(i)表示 $\theta = 0.4\pi$), 激光场在分子轴分量的强度逐渐减小, 因此导致谐波辐射强度减小. 但不同于 $\theta = 0.0\pi$ 的情况, 随着分子取向角增大, 当激光振幅小于零时($E_x(t) < 0$), 正向 H 核对 P_2 的贡献逐渐减小. 当激光振幅大于零时($E_x(t) > 0$), 负向 H 核对 P_3 的贡献仍然大于正向 H 核对其贡献, 这是导致正负向 H 核谐波辐射强度差随分子取向角增大而变大的原因.

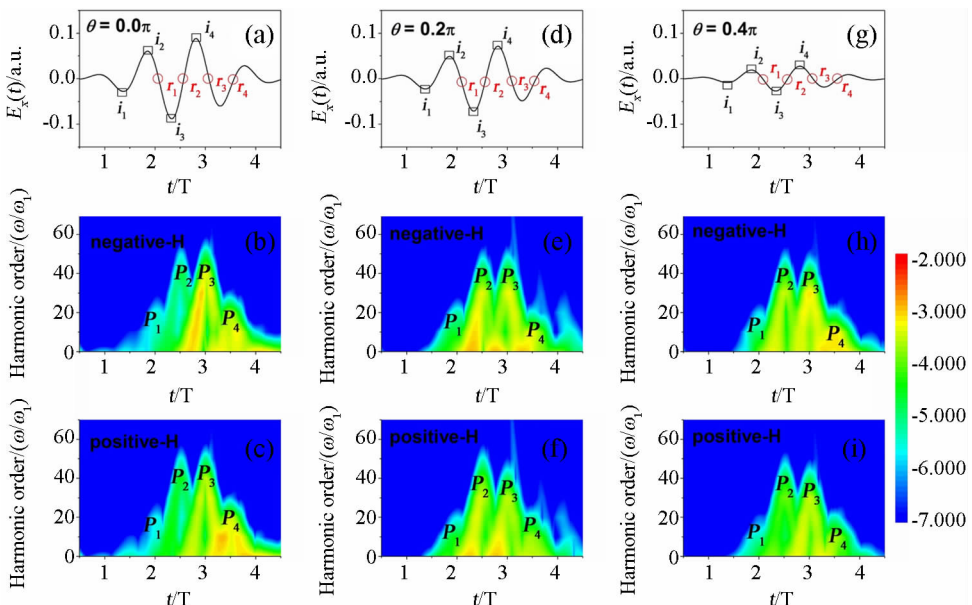


图 2 激光包络图以及双 H 核在该激光驱动下辐射谐波的时频分析图

(a)~(c) $\theta = 0.0\pi$; (d)~(f) $\theta = 0.2\pi$; (g)~(i) $\theta = 0.4\pi$

Fig. 2 Laser profiles and the time-frequency analyses of the harmonics from the two-H nuclei for the cases of (a)~(c) $\theta = 0.0\pi$; (d)~(f) $\theta = 0.2\pi$; (g)~(i) $\theta = 0.4\pi$

为了更好地理解电子运动以及双 H 核辐射谐波的过程, 图 3 给出了 H_2^+ 在 $\theta=0, 0\pi$ 时电子波包演化图. 由图可知, 当激光偏振方向和分子轴平行时, 电子运动集中在 x 轴方向. 并且电子在 t_2 时刻电离后, 其沿负向 H 核方向 ($x < 0$) 运动 (图 3(a)). 随后, 激光场反向时, 电子在 t_2 时刻返回核子 (图 3(b)), 并且其与正向 H 核回碰的几率要大于负向 H 核, 这就是谐波时频分析图中正向 H 核对 P_2 的贡献要大于负向 H 核的原因. 相反, 当电子在 t_3 时刻电离后, 其沿正向 H 核方向 ($x > 0$) 运动 (图 3(c)). 随后, 激光场反向时, 电子在 t_3 时刻返回核子 (图 3(d)), 并且其与负向 H 核回碰的几率要大于正向 H 核, 因此导致谐波时频分析图中负向 H 核对 P_3 的贡献要大于正向 H 核.

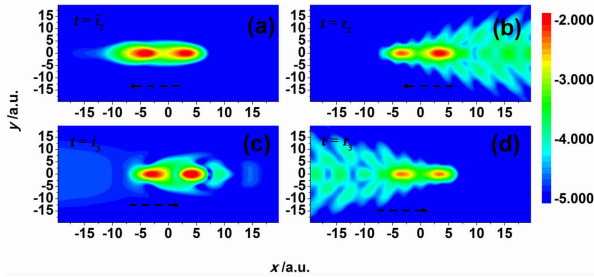


图 3 H_2^+ 在 $\theta = 0, 0\pi$ 时电子波包演化图 (a) $t = t_2$; (b) $t = r_2$; (c) $t = t_3$; (d) $t = r_3$

Fig. 3 Time-dependent electronic wave functions of H_2^+ for the cases of $\theta = 0, 0\pi$ with (a) $t = t_2$; (b) $t = r_2$; (c) $t = t_3$; (d) $t = r_3$

图 4 和图 5 分别给出了 H_2^+ 在 $\theta=0, 2\pi$ 和 $0, 4\pi$ 时电子波包演化图. 由图可知, 随着分子取向角增大, 电子运动逐渐向 y 方向偏移 (黑色虚线箭头所示). 因此, 当电子在 t_2 , 其沿第三象限方向运动 (图 4(a) 对应 $\theta=0, 2\pi$; 图 5(a) 对应 $\theta=0, 4\pi$). 随后, 在激光反向时, 其在 t_2 时刻沿第三象限方向返回核子 (图 4(b) 对应 $\theta=0, 2\pi$; 图 5(b) 对应 $\theta=0, 4\pi$). 但是不同于 $\theta=0, 0\pi$ 的情况, 由于电子运动与分子轴存在夹角, 因此当电子在 t_2 时刻回碰核子时, 其与负向 H 核的回碰几率会增大, 与正向 H 核的回碰几率减小. 这是导致图 2 谐波时频分析中正向 H 核对 P_2 贡献减小的原因. 相反, 当电子在 t_3 时刻电离后, 其沿第一象限方向运动 (图 4(c) 对应 $\theta=0, 2\pi$; 图 5(c) 对应 $\theta=0, 4\pi$). 随后, 在激光反向时, 其在 t_3 时刻沿第一象限方向返回核子 (图 4(d) 对应 $\theta=0, 2\pi$; 图 5(d) 对应 $\theta=0, 4\pi$). 同样, 当电子在 t_3 时刻回碰核子时, 其与

正向 H 核的回碰几率会有所增大, 但是多数电子仍然趋于与负向 H 核回碰, 这是导致图 2 谐波时频分析中负向 H 核对 P_3 的贡献依然大于正向 H 核的贡献.

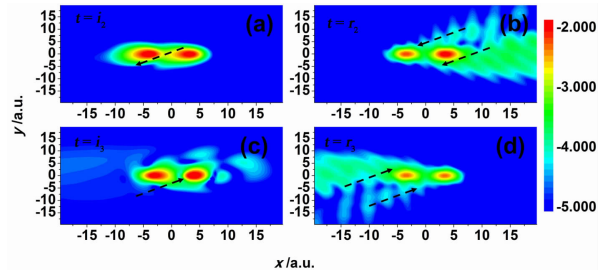


图 4 H_2^+ 在 $\theta = 0, 2\pi$ 时电子波包演化图 (a) $t = t_2$; (b) $t = r_2$; (c) $t = t_3$; (d) $t = r_3$

Fig. 4 Time-dependent electronic wave functions of H_2^+ for the cases of $\theta = 0, 2\pi$ with (a) $t = t_2$; (b) $t = r_2$; (c) $t = t_3$; (d) $t = r_3$

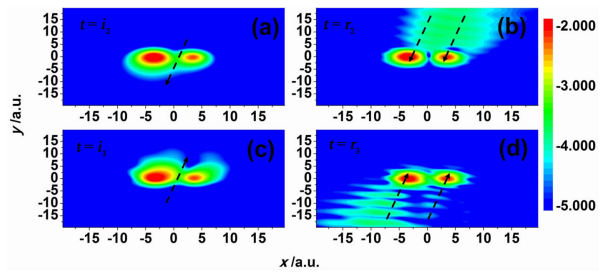


图 5 H_2^+ 在 $\theta = 0, 4\pi$ 时电子波包演化图 (a) $t = t_2$; (b) $t = r_2$; (c) $t = t_3$; (d) $t = r_3$

Fig. 5 Time-dependent electronic wave functions of H_2^+ for the cases of $\theta = 0, 4\pi$ with (a) $t = t_2$; (b) $t = r_2$; (c) $t = t_3$; (d) $t = r_3$

4 结 论

综上所述, 本文理论研究了 H_2^+ 分子取向对谐波空间分布的影响. 结果表明: 当激光偏振方向与分子轴方向平行时, 双 H 核谐波辐射满足当 $E(t) > 0$ 或 $E(t) < 0$ 时, 负向 H 核或正向 H 核在谐波辐射过程中起主要作用. 随着分子轴与激光偏振轴夹角从 $0, 0\pi$ 增加到 $0, 4\pi$, 由于激光在分子轴投影强度减弱, 导致该方向谐波辐射强度降低, 并且右侧核对谐波贡献下降更快. 随着夹角增大, 电子与负向 H 核复合并辐射出谐波的量逐渐高于正向 H 核, 且差异越来越大.

参考文献:

- [1] Ge X L. Influences of circularly polarized laser pulse combined with a terahertz field on the high order harmonic generation [J]. J At Mol Phys (原子与分

- 子物理学报), 2018, 35; 993.
- [2] Ge X L, Wang Q. The effect of space position of atom on high-order harmonics in few-cycle spatially inhomogeneous laser fields [J]. J At Mol Phys(原子与分子物理学报), 2017, 34; 108.
- [3] Feng L Q. Spatial distribution of molecular harmonic generation from HeH^{2+} [J]. J At Mol Phys (原子与分子物理学报), 2017, 34; 1103.
- [4] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization [J]. Phys Rev Lett, 1993, 71; 1994.
- [5] Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, *et al.* Single-cycle nonlinear optics [J]. Science, 2008, 320; 1614.
- [6] Zeng Z, Cheng Y, Song X, *et al.* Generation of an extreme ultraviolet supercontinuum in a two-color laser field [J]. Phys Rev Lett, 2007, 98; 203901.
- [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] Liu H, Feng L Q. Contributions of charge-resonance-enhanced-ionization and dissociative ionization to high-order harmonic generation from H_2^+ [J]. J At Mol Phys (原子与分子物理学报), 2018, 35; 461.
- [9] Song D D, Zuo Q, Wu H, Yang Z H, Wang Y H. High-order harmonic generation with single mid-infrared laser field by a phase-chirping [J]. J At Mol Phys (原子与分子物理学报), 2018, 35; 466.
- [10] Kim S, Jin J, Kim Y J, *et al.* High-harmonic generation by resonant plasmon field enhancement [J]. Nature, 2008, 453; 757.
- [11] Cao X, Jiang S C, Yu C, *et al.* Generation of isolated sub-10-attosecond pulses in spatially inhomogeneous two-color fields [J]. Opt Express, 2014, 22; 26153.
- [12] Feng L Q. Molecular harmonic extension and enhancement from H_2^+ ions in the presence of spatially nonhomogeneous fields [J]. Phys Rev A, 2015, 92; 053832.
- [13] 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.
- [14] Zhang C P, Xia C L, Jia X F, *et al.* Multiple rescattering processes in high-order harmonic generation from molecular system [J]. Opt Express, 2016, 24; 20297.
- [15] Bian X B, Bandrauk A D. Probing nuclear motion by frequency modulation of molecular high-order harmonic generation [J]. Phys Rev Lett, 2014, 113; 193901.
- [16] Vafaei M, Ahmadi H, Maghari A. Identifying spatially asymmetric high-order harmonic emission in the falling edge of an intense laser pulse [J]. J Phys B; At Mol Opt Phys, 2017, 50; 025601.
- [17] Zhang J, Ge X L, Wang T, *et al.* Spatial distribution on high-order-harmonic generation of an H_2^+ molecule in intense laser fields [J]. Phys Rev A, 2015, 92; 013418.
- [18] Feng L Q, Li W L. Nuclear signature effect on spatial distribution of molecular harmonic in the presence of spatial inhomogeneous field [J]. Laser Phys, 2017, 27; 016002.
- [19] 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.
- [20] 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.
- [21] 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.

引用本文格式:

中文: 冯立强, 刘航, 刘辉. 分子取向对 H_2^+ 谐波分布的影响[J]. 四川大学学报: 自然科学版, 2019, 56: 290.

英文: Feng L Q, Liu H, Liu H. Alignment angle dependence of H_2^+ on spatial distribution of harmonic emission [J]. J Sichuan Univ; Nat Sci Ed, 2018, 55; 2019, 56: 290.