

核运动对 H_2^+ 和 D_2^+ 谐波截止区域强度的影响

冯立强

(辽宁工业大学理学院, 锦州 121001)

摘要: 理论研究了不同激光条件下 H_2^+ 和 D_2^+ 谐波截止附近区域强度的变化. 结果显示, 在低激光强度下, 当采用短脉宽激光场时, H_2^+ 谐波强度大于 D_2^+ 谐波强度. 随着脉宽增大, D_2^+ 谐波强度增强并且大于 H_2^+ 谐波强度. 在高激光强度下, 当采用短脉宽激光场时, 虽然 H_2^+ 谐波强度依然大于 D_2^+ 谐波强度, 但其强度差比低激光强度时有所减小. 当采用长脉宽激光场时, D_2^+ 谐波强度大于 H_2^+ 谐波强度. 理论分析表明, 不同尺度的核运动是导致 H_2^+ 和 D_2^+ 谐波辐射强度不同的原因.

关键词: 高次谐波; 谐波强度; 核运动; 同位素效应

中图分类号: O562.4 **文献标识码:** A **DOI:** 10.19907/j.0490-6756.2021.024002

Effect of nuclear motion on harmonic cutoff intensity of H_2^+ and D_2^+

FENG Li-Qiang

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

Abstract: The intensity of harmonic cutoff region of H_2^+ and D_2^+ driven by different laser conditions has been studied theoretically. The results show that for the lower laser intensity case, the harmonic yield of H_2^+ is higher than that of D_2^+ when the shorter pulse duration is used. As the pulse duration increases, the harmonic yield of D_2^+ will be enhanced and higher than that of H_2^+ . For the higher laser intensity case, when the shorter pulse duration is used, the intensity difference of harmonic yield is decreased, though the harmonic yield of H_2^+ is still higher than that of D_2^+ . When the longer pulse duration is used, the harmonic yield of D_2^+ is much higher than that of H_2^+ . Theoretical analyses show that the different harmonic yields of H_2^+ and D_2^+ is attributed to different time scales of nuclear motion.

Keywords: High-order harmonic generation; Harmonic yield; Nuclear motion; Isotope effect

1 引言

由强激光场与原子、分子相互作用产生的高次谐波因其产生孤立阿秒脉冲及探测超快电子动力学方面的能力而受到广泛关注^[1-3].

激光驱动原子辐射高次谐波可由半经典的三步模型^[4]来解释. 首先, 电子隧道电离通过由库仑势和激光场形成的势垒; 其次, 被电离的电子远离母核并在激光驱动下获得能量; 最后, 当激光场在

半个周期之后反向驱动时, 电子会重新与母核结合, 并发射能量为基频场倍数的高阶谐波. 但是, 对于激光驱动分子辐射高次谐波, 由于分子体系较多的自由度, 分子谐波与原子谐波相比会产生一些新的现象. 例如: 对于最简单的同核双原子分子 H_2^+ 及其同位素, Zuo 等^[5]发现了电荷共振增强电离现象对 H_2^+ 谐波辐射的影响. Feng 等^[6]利用电荷共振增强电离提出了一种双色场方案来增强 H_2^+ 及其同位素的谐波辐射强度. Liu 等^[7]理论研

收稿日期: 2019-10-19

基金项目: 国家自然科学基金(11504151); 辽宁省自然科学基金面上项目(2019-MS-167)

作者简介: 冯立强 (1985—), 男, 辽宁沈阳人, 博士, 副教授, 主要从事激光场研究. E-mail: lqfeng1101@126.com

究发现 H_2^+ 谐波辐射过程中包含 3 个电离区域, 即:核间距较小时的直接电离过程;核间距在 4.0~12.0 a. u. 时的电荷共振增强电离区域;核间距较大时的离解态电离区域. 当然,由于核运动的影响,人们还发现了 H_2^+ 及同位素谐波辐射的频调制^[8]和振幅调制现象^[9]. 随后,利用分子谐波的不同频移现象,He 等^[10]提出了一种分辨同位素的方法.

虽然,在一些给定激光条件下 H_2^+ 谐波振幅调制现象已经被研究,但是,对于激光条件变化情况下, H_2^+ 及其同位素的谐波振幅调制现象却少有报道. 因此,本文理论研究了不同激光条件下 H_2^+ 和 D_2^+ 谐波截止能量区域的强度变化,并且通过理论分析给出了不同尺度的核运动是导致 H_2^+ 和 D_2^+ 谐波辐射强度不同的原因.

2 计算方法

激光场和 H_2^+ (或 D_2^+) 相互作用可以通过求解含时薛定谔方程来描述^[11-14]:

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

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

其中, m_p 为 H 或 D 核质量; R 和 z 为核与电子坐标. $E(t) = E \exp[-4 \ln(2) t^2 / \tau^2] \cos(\omega_1 t)$ 为激光场, E , ω_1 和 τ 分别为激光振幅、频率和半高全宽. 本文中激光波长都为 800 nm ($\omega_1 = 0.056$ a. u.).

高次谐波谱图可表示为:

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

其中 $a(t) = -\langle \psi(z, R, t) \left| \frac{\partial V(z, R)}{\partial z} + E(t) \right| \psi(z, R, t) \rangle$ 为偶极加速度.

谐波截止附近强度选择为谐波截止附近 20 阶谐波强度的平均值.

3 结果与讨论

图 1 给出 H_2^+ 和 D_2^+ 在 500 TW (低激光强度) 和 700 TW (高激光强度) 激光强度下谐波截止附近强度随激光脉宽的变化. 由图 1(a) 可知, 在低激光强度下, 当采用 10 fs 短脉宽激光场时, H_2^+ 谐波

强度大于 D_2^+ 谐波强度. 当采用 20 fs 长脉宽激光场时, D_2^+ 谐波强度增强并大于 H_2^+ 谐波强度. 在高激光强度下, 见图 1(b), 当采用 10 fs 短脉宽激光场时, 虽然 H_2^+ 谐波强度依然大于 D_2^+ 谐波强度, 但它们之间强度差比低激光强度时有所减小. 当采用 20 fs 长脉宽激光场时, D_2^+ 谐波强度大于 H_2^+ 谐波强度.

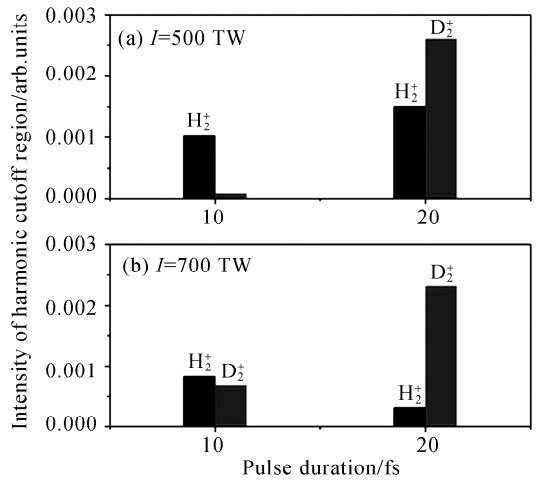


图 1 H_2^+ 和 D_2^+ 谐波强度在不同脉宽下的变化
Fig. 1 Harmonic yields of H_2^+ and D_2^+ from different pulse durations

为了解 H_2^+ 和 D_2^+ 谐波辐射强度的变化, 图 2 和图 3 中给出了驱动场激光包络图、 H_2^+ 和 D_2^+ 电离几率、核间距随时间变化图以及谐波时频分析图^[15]. 首先, 对于低激光强度情况(500 TW), 当采用 10 fs 驱动场时(图 2(a)~2(c)所示), 根据三步模型描述, 激光驱动分子时会产生许多谐波辐射能量峰(如图 2(b)和 2(c)所示), 并且激光下降区域谐波辐射强度大于激光上升区域谐波辐射强度. 但是, 谐波截止附近区域的强度主要由谐波能量峰 1~3 贡献产生, 如图 2(b)和 2(c)所示. H_2^+ 所产生能量峰 1~3 的强度比 D_2^+ 所产生的能量峰强度高, 因此导致 H_2^+ 谐波强度高于 D_2^+ . 具体是什么原因导致 H_2^+ 和 D_2^+ 谐波能量峰强度不同呢? 分析电离几率和核间距随时间的变化可知, 在能量峰 1~3 所辐射的区域, 质量较轻的 H_2^+ 原子核运动的更快(比较图 2(b)和 2(c)核间距离), 因此其核间距得到延伸, 并处于电荷共振增强电离区域, 导致 H_2^+ 具有更大的电离几率. 这是导致 H_2^+ 具有较大谐波辐射强度的原因. 当采用 20 fs 驱动场时(图 2(d)~2(f)所示), 谐波截止附近强度主要由谐波能

量峰 1~4 贡献产生,如图 2(e)和 2(f)所示. 对于能量峰 1 和 2, H_2^+ 和 D_2^+ 没有明显强度差别. 但是,对于能量峰 3 和 4, D_2^+ 所产生的能量峰 3 和 4 强度要大于 H_2^+ 所产生的强度,因此导致在长脉宽激光驱动下 D_2^+ 谐波强度大于 H_2^+ 谐波强度. 分析电离几率和核间距随时间的变化可知,在长脉宽激光驱动下 H_2^+ 和 D_2^+ 都能进入电荷共振增强电离区域,因此电离几率都有所增大,如图 2(d)所示. 对于能量峰 1 和 2 区域, H_2^+ 和 D_2^+ 电离几率增长趋势几乎一致,这导致 H_2^+ 和 D_2^+ 的能量峰 1 和 2 具有相似的强度. 对于能量峰 3 和 4 区域, H_2^+ 电离增长趋势明显缓慢,而 D_2^+ 却仍然具有较大的电离增长趋势,导致 D_2^+ 所产生的能量峰 3 和 4 强度要大于 H_2^+ 所产生的强度. 这是导致在长脉宽激光场下 D_2^+ 谐波强度大于 H_2^+ 谐波强度的根本原因.

对于高激光强度的情况(700 TW),当采用 10 fs 驱动场时(图 3(a)~3(c)所示),虽然谐波截止附近区域强度依然由能量峰 1~3 贡献产生,但是, H_2^+ 和 D_2^+ 对于能量峰 1~3 的强度差却有所减小,如图 3(b)和 3(c)所示,这导致 H_2^+ 和 D_2^+ 谐波辐射强度差减小. 分析电离几率和核间距随时间的变化可知,在高强度激光驱动下 H_2^+ 和 D_2^+ 都能进入电荷共振增强电离区域,因此在能量峰 1~3 所辐射的区域, H_2^+ 和 D_2^+ 的电离几率差比低激光强度时有所减小. 这是导致 H_2^+ 和 D_2^+ 谐波辐射强度差减小的原因. 当采用 20 fs 驱动场时(图 3(d)~3(f)所示), H_2^+ 谐波截止附近强度主要由能量峰 -2, -1 和 1 贡献产生,如图 3(e)所示. 而 D_2^+ 谐波截止附近强度主要由能量峰 -2, -1 和 1~4 贡献产生,如图 3(f)所示. 由图可见, D_2^+ 能量峰 -2, -1 和 1~4 的强度要明显大于 H_2^+ 能量峰 -2, -1 和 1 的强度,因此导致 D_2^+ 谐波辐射强度明显高于 H_2^+ 谐波辐射强度. 分析电离几率和核间距随时间的变化可知,在长脉宽驱动下, H_2^+ 和 D_2^+ 都可以延伸到电荷共振增强电离区域,因此都具有较大的电离几率. 但是,对于 H_2^+ 而言,较快的核运动导致其电离几率在能量峰 -2, -1 和 1 区域具有很大的增长趋势(见图 3(d)),因此能量峰 -2, -1 和 1 与其他能量峰相比具有较强的强度,如图 3(e)所示. 对于 D_2^+ 而言,较慢的核运动导致其电离增长趋势从能量峰 -2 一直延伸到能量峰 4,因此对于 D_2^+ 体系,其能量峰 -2 到能量峰 4 的区域都具有较强的强度,如图 3(f)所示. 这是导致 D_2^+ 谐波强度明显高于 H_2^+ 谐波强度的根本原因.

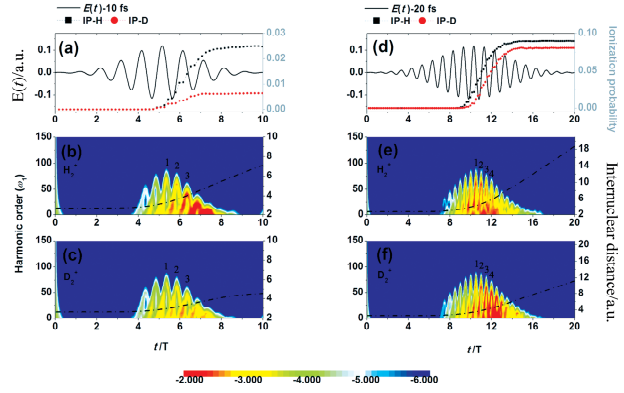


图 2 激光包络图, H_2^+ 和 D_2^+ 电离几率,核间距随时间变化图以及谐波时频分析图:(a)~(c) 10 fs 激光场;(d)~(f) 20 fs 激光场;激光强度为 500 TW
Fig. 2 The laser profiles, ionization probabilities (IPs), time-dependent internuclear distances and time-frequency analyses of harmonics for H_2^+ and D_2^+ : (a)~(c) 10 fs pulse; (d)~(f) 20 fs pulse; the laser intensity is 500 TW

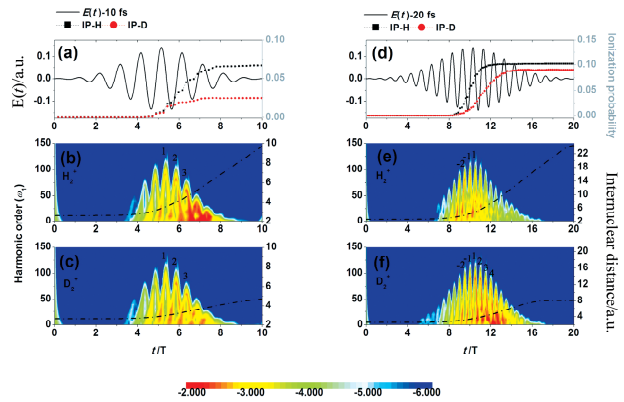


图 3 激光包络图, H_2^+ 和 D_2^+ 电离几率,核间距随时间变化图以及谐波时频分析图:(a)~(c) 10 fs 激光场;(d)~(f) 20 fs 激光场;激光强度为 700 TW
Fig. 3 The laser profiles, ionization probabilities (IPs), time-dependent internuclear distances and time-frequency analyses of harmonics for H_2^+ and D_2^+ : (a)~(c) 10 fs pulse; (d)~(f) 20 fs pulse; the laser intensity is 700 TW

4 结 论

综上所述,本文理论研究了不同激光条件下 H_2^+ 和 D_2^+ 谐波截止附近区域强度的变化. 研究表明,在低激光强度下,质量较轻的 H_2^+ 具有较大的谐波强度. 但随着脉宽增大,质量较重的 D_2^+ 谐波强度逐渐大于 H_2^+ 谐波强度. 在高激光强度下, H_2^+ 和 D_2^+ 谐波强度差逐渐减小. 但随着脉宽增大, H_2^+ 和 D_2^+ 谐波强度差又逐渐增大. 理论分析给出不同尺度的核运动是导致 H_2^+ 和 D_2^+ 谐波辐射强度变化的原因.

参考文献:

- [1] Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics [J]. *Rev Mod Phys*, 2009, 81: 163.
- [2] 刘航, 冯立强. 交叉型纳米结构下气体位置对阿秒脉冲的影响[J]. *原子与分子物理学报*, 2019, 36: 459.
- [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] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization [J]. *Phys Rev Lett*, 1993, 71: 1994.
- [5] 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.
- [6] Feng L Q, Li Y, Feng A Y. Nano-plasmonic-pump-probe effect on the intensity enhancement of attosecond pulse from hydrogen molecular ion [J]. *Laser Phys Lett*, 2018, 15: 115301.
- [7] 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.
- [8] 冯立强, 刘航, 刘辉. 空间均匀和非均匀场下 H_2^+ 辐射谐波的空间分布[J]. *激光技术*, 2017, 41: 467.
- [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] He L X, Zhang Q B, Lan P F, *et al.* Monitoring ultrafast vibrational dynamics of isotopic molecules with frequency modulation of high-order harmonics [J]. *Nat Commun*, 2018, 9: 1108.
- [11] 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.
- [12] 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.
- [13] 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.
- [14] 冯立强. 核运动对 H_2^+ 谐波辐射的影响[J]. *辽宁工业大学学报:自然科学版*, 2017, 37: 355.
- [15] 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. 核运动对 H_2^+ 和 D_2^+ 谐波截止区域强度的影响[J]. *四川大学学报:自然科学版*, 2021, 58: 024002.
- 英文: Feng L Q. Effect of nuclear motion on harmonic cutoff intensity of H_2^+ and D_2^+ [J]. *J Sichuan Univ: Nat Sci Ed*, 2021, 58: 024002.