

doi: 10.3969/j.issn.0490-6756.2019.04.021

理论分析振动态 H_2^+ 偶次谐波的辐射机制

刘航^{1,2}, 李义³

(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: 理论研究和认证了振动态 H_2^+ 偶次谐波的辐射机制。结果表明, 偶次谐波是由于谐波辐射在激光上升和下降区间的不对称效应所产生的。具体来说, 在低振动态下, 偶次谐波主要来源于激光下降区间。随着振动态增大, 来源于激光下降区间的偶次谐波强度减弱; 但是, 一些来源于激光上升区间的偶次谐波逐渐增强。

关键词: 高次谐波; 偶次谐波; 振动态 H_2^+ ; 激光上升区间; 激光下降区间

中图分类号: O562.4 **文献标识码:** A **文章编号:** 0490-6756(2019)04-0713-04

Theoretical investigation of the even-order harmonics from vibrating H_2^+

LIU Hang^{1,2}, LI Yi³

(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: The generations of the even-order harmonics from vibrating H_2^+ have been theoretically investigated and identified. The results showed that due to asymmetric harmonic emission (asymmetric half-wave profile) on the rising and the falling parts of the laser field, the even-order harmonics can be generated. In detail, for the case of the lower initial vibrational state, the even-order harmonics mainly come from the falling part of the laser field; while as the initial vibrational state increases, the identified even-order harmonics on the falling part of the laser field decreases; while some other even-order harmonics coming from the rising part of the laser field are gradually enhanced.

Keywords: High-order harmonic generation; Even-order harmonics; Vibrating H_2^+ ; Rising part of the laser field; Falling part of the laser field

1 引言

当强激光场与原子、分子、固体相互作用时会发生许多非线性光学现象。其中, 激光驱动分子辐射高次谐波作为探测分子结构以及分子中电子超快动力学现象被广泛研究近 20 年^[1-3]。

目前, 原子辐射高次谐波的过程可由 1993 年 Corkum 提出的半经典的三步模型^[4]来解释。他认

为电子首先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)。1994 年, Lewenstein 等^[5]提出了改进的量子理论, 并考虑了量子干涉效应。但是对于激光驱动分子的情况, 由于其多出的核自由度, 分子谐波辐射具有独有

收稿日期: 2018-03-21

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, 副教授。E-mail: lqfeng1101@126.com

的一些特点. 例如: Zuo 等^[6]研究发现了 H_2^+ 离子在较大核间距离处会发生电荷共振增强电离现象, 并且其对谐波辐射强度有明显影响. Liu 等^[7]研究了 H_2^+ 离子的直接电离和多光子电离在谐波辐射中的作用. Feng 等^[8]研究了 H_2^+ 离子振动态以及同位素效应对谐波辐射的影响.

基于三步模型和偶极跃迁理论, 谐波光谱只应该呈现奇次谐波. 但是由于激光波形在激光上升和下降区间呈不对称特点, 谐波光谱会呈现一些非绝热效应. 例如: 谐波频移以及偶次谐波的产生. 具体来说: (1) Bian 等^[9]研究表明在核运动的影响下 H_2^+ 谐波辐射会呈现明显红移现象; 谐波 Kan 等^[10]和 Watson 等^[11]研究表明在多周期较强激光场下 H_2^+ 谐波辐射呈现蓝移现象; Feng^[12]研

究表明谐波频移与振动态有关. (2) Corso 等^[13]研究表明, 由于电子在激光上升和下降区间的不对称布局导致了 H_2^+ 偶次谐波的产生; Vafaee 等^[14]研究表明 H_2^+ 偶次谐波主要贡献来自于激光下降区间.

虽然有关 H_2^+ 偶次谐波的研究已经被 Corso 等^[13]和 Vafaee 等^[14]报道, 但是上述报道中 H_2^+ 振动态都选择为基态, 对于 H_2^+ 振动激发态下偶次谐波的产生却少有报道. 鉴于上述原因, 本文理论研究了振动态 H_2^+ 下偶次谐波辐射的机制.

2 计算方法

H_2^+ 核与电子耦合的薛定谔方程为^[15-16]:

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

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

$$E(t) = E f(t) \cos(\omega_1 t) \quad (3)$$

其中, m_p 、 R 、 z 分别为 H 核质量、核与电子坐标; ω_1 、 E 、和 τ 分别为激光场的频率、振幅和脉宽; 脉冲包络 $f(t)$ 是 7 个光学周期的梯形形状, 包含 2 个周期的激光上升和下降区间以及 3 个周期的激光振幅区间(标记为 2-3-2 laser). 激光波长和强度分别为 $\lambda = 800 \text{ nm}$ 和 $I = 3.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

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

3 结果与讨论

图 1 给出 H_2^+ 不同振动态在上述 2-3-2 激光驱动下辐射谐波的特点. 为了能够清晰观测奇偶次谐波, 图中只给出谐波范围在 $11\omega_1 \sim 31\omega_1$ 的谐波光谱. 由图可知, 在振动基态时($v = 0$), 谐波光谱可以呈现近似完美的奇次谐波. 但是在 $26\omega_1$ 和 $28\omega_1$ 处会呈现 2 个偶次谐波. 随着振动态增大, $26\omega_1$ 和 $28\omega_1$ 处偶次谐波强度减小, 但是其它的一些其它的偶次谐波逐渐增强(例如: $16\omega_1$ 、 $18\omega_1$ 和 $22\omega_1$).

由 Corso^[13]报道可知, 谐波光谱呈现偶次谐波是由于电子在激光上升和下降区间的不对称布局所导致的不对称谐波辐射引起的. 因此, 为了

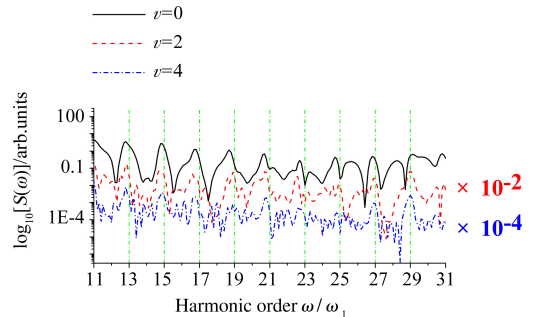


图 1 不同振动态下 H_2^+ 谐波辐射谱
Fig. 1 Harmonic spectra from H_2^+ with different vibrational states

解并认证振动态 H_2^+ 离子辐射偶次谐波的来源, 图 2 给出了谐波辐射的时频分析图^[17]、核间距的含时演化图以及谐波辐射随核间距变化的演化图^[18]. 为便于分析, 定义 $S_r(\omega)$ 、 $S_a(\omega)$ 、 $S_f(\omega)$ 分别为激光上升、振幅、下降区间谐波辐射的分量. 对于 $v=0$ 的情况[图 2(a)和 2(b)], 由图可见, 当 $t < 5T$, 即, 激光上升和振幅区间, 核间距可以运动到 $R = 4.0 \text{ a.u.}$ 附近, 但是谐波辐射强度不是很强, 并且在谐波随核间距演化图中只有奇次谐波对谐波光谱有贡献作用. 当 $t > 5T$, 即, 在激光下降区间, 谐波辐射强度逐渐增强, 并且同时有奇偶次谐波对谐波光谱有贡献, 如图 2(b)所示. 正如之前所讨论的, 由于谐波辐射在激光上升和下降区间的不对称辐射效应导致了偶次谐波的产生^[13]. 对于低振动态, 由于谐波贡献主要来源于

激光下降区间, 因此偶次谐波(例如: 图 1 中的 $26\omega_1$ 和 $28\omega_1$ 次谐波)主要来源于激光下降区间. 对于 $v=4$ 的情况[图 2(c)和 2(d)], 核运动明显要快于 $v=0$ 的情况, 并且谐波辐射在激光上升区间的强度要明显增强. 具体来说, 当 $t < 2T$, 即, 激光上升区间, 核间距离可延伸到 $R = 3.5$ a. u. 附近. 并且, 谐波辐射强度比 $v = 0$ 情况有所增强, 这导致奇次和偶次谐波都对谐波光谱有贡献作用, 如图 2(d)所示. 这是导致图 1 谐波光谱在 $v=4$ 时 $16\omega_1$ 、 $18\omega_1$ 和 $22\omega_1$ 阶偶次谐波增强的原因. 当 $2T < t < 5T$ 时, 即激光振幅区间, 由于激光场(半波形

对称)以及谐波辐射对称性, 只有奇次谐波对谐波光谱有贡献作用, 如图 2(d)所示. 当 $t > 5T$ 时, 即, 激光下降区间, 核间距离可以延伸到 $R=5.5$ a. u. 附近, 同时奇次和偶次谐波也都对谐波光谱有贡献作用[见图 2(d)]. 但是, 在高振动态下, H_2^+ 电离几率会减小, 因此导致谐波辐射向激光上升区间偏移, 即, 谐波辐射强度在激光上升区间增强, 同时其在激光下降区间减弱. 这是导致 $26\omega_1$ 和 $28\omega_1$ 阶偶次谐波(由激光下降区间所引起)强度下降的原因.

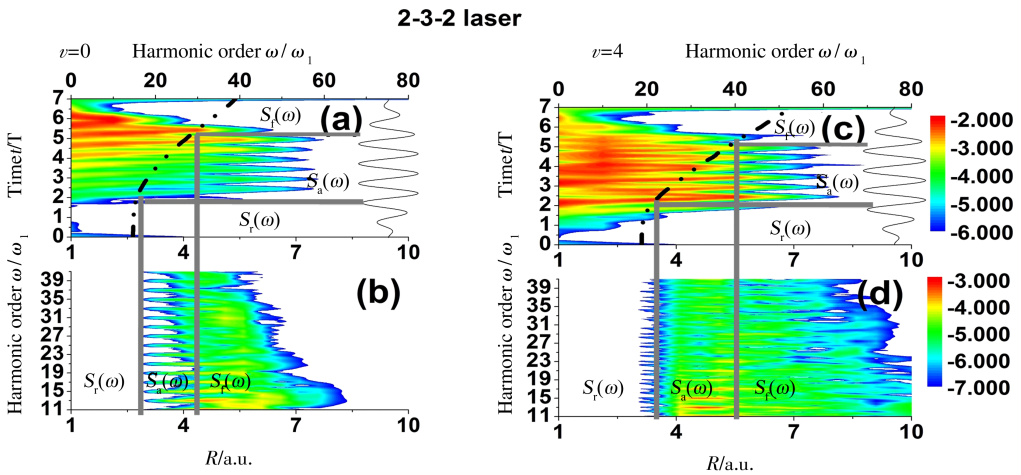


图 2 谐波辐射时频分析图、核间距离含时演化图以及谐波辐射随核间距离变化的演化图: (a)~(b) $v=0$; (c)~(d) $v=4$

Fig. 2 The time-frequency analyses of the harmonics, the time-dependent expected values for the internuclear distances (black dash dot line in these figures) and the R dependences of the harmonics: (a)~(b) $v=0$; (c)~(d) $v=4$

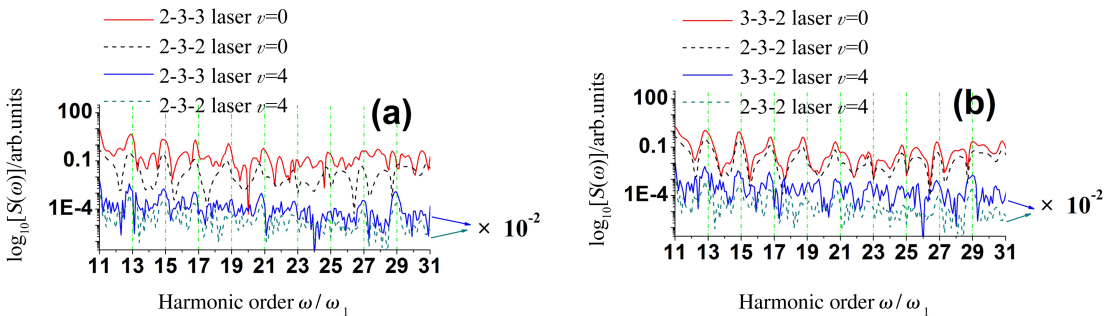


图 3 激光驱动 H_2^+ 在 $v = 0$ 和 $v = 4$ 时谐波辐射光谱: (a) 2-3-3 激光; (b) 3-3-2 激光

Fig. 3 Harmonic spectra from H_2^+ with $v = 0$ and $v = 4$ driven by the (a) 2-3-3 laser; (b) 3-3-2 laser

由上述分析可知, 在低振动态下, 偶次谐波主要来源于激光下降区间. 随着振动态增大, 来源于激光下降区间的偶次谐波强度减弱, 但是, 一些来源于激光上升区间的偶次谐波逐渐增强. 为了证明上述结论, 图 3 给出了 H_2^+ 不同振动态在 2-3-3 激光和 3-3-2 激光驱动下辐射谐波的特

点. 这里, 2-3-3 激光(3-3-2 激光)分别指 2 周期(3 周期)激光上升区间, 3 周期激光振幅区间, 以及 3 周期(2 周期)激光下降区间. 由图 3(a)可知, 对于 2-3-3 激光(包含更长的激光下降区间), 低振动态(例如: $v = 0$) H_2^+ 辐射偶次谐波明显增强, 而高振动态(例如: $v = 4$) H_2^+ 偶次谐波辐射几乎与 2-

3-2 激光一致. 由图 3(b)可知, 对于 3-3-2 激光(包含更长的激光上升区间), 低振动态(例如: $v = 0$) H_2^+ 偶次谐波辐射几乎与 2-3-2 激光一致, 而高振动态(例如: $v = 4$) H_2^+ 辐射偶次谐波明显增强. 由此可见, 图 3 的计算结果与之前分析结果一致, 即, 高、低振动态 H_2^+ 偶次谐波分别来源于激光上升和下降区间.

4 结 论

理论研究了 H_2^+ 在不同振动态下偶次谐波的辐射来源. 结果表明, 在低振动态下, 偶次谐波主要来源于激光下降区间; 在高振动态下, 偶次谐波主要来源于激光上升区间. 谐波辐射时频分析以及谐波辐射随核间距演化图表明, 谐波辐射在激光场上升以及下降区间的不对称贡献是导致偶次谐波产生的原因.

参考文献:

- [1] Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics [J]. *Rev Mod Phys*, 2009, 81: 163.
- [2] 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.
- [3] 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.
- [4] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization [J]. *Phys Rev Lett*, 1993, 71: 1994.
- [5] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, *et al.* Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields [J]. *Phys Rev A*, 1994, 49: 2117.
- [6] 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.
- [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] 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.
- [9] Bian X B, Bandrauk A D. Multichannel molecular high-order harmonic generation from asymmetric diatomic molecules [J]. *Phys Rev Lett*, 2010, 105: 093903.
- [10] 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.
- [11] 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.
- [12] 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.
- [13] Corso P P, Fiordilino E, Orlando G, *et al.* Even harmonics from laser driven homonuclear molecules [J]. *J Mod Opt*, 2007, 54: 1387.
- [14] Vafae 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.
- [15] 刘航, 李义, 姚震, 等. 利用啁啾场与单极场的组合场驱动 He^+ 发射高次谐波 [J]. *四川大学学报: 自然科学版*, 2018, 55: 118.
- [16] 刘航, 冯立强. 利用 He^+ 离子链模型增强谐波辐射强度 [J]. *四川大学学报: 自然科学版*, 2018, 55: 349.
- [17] 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.
- [18] 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.

引用本文格式:

- 中文: 刘航, 李义. 理论分析振动态 H_2^+ 偶次谐波的辐射机制 [J]. *四川大学学报: 自然科学版*, 2019, 56: 713.
 英文: Liu H, Li Y. Theoretical investigation of the even-order harmonics from vibrating H_2^+ [J]. *J Sichuan Univ: Nat Sci Ed*, 2019, 56: 713.