

文章编号: 1001-3806(2018)02-0145-06

红外激光与远紫外激光场驱动 H_2^+ 辐射谐波

刘 航¹, 李 义², 冯立强^{1,2}

(1. 辽宁工业大学 化学与环境工程学院, 锦州 121001; 2. 辽宁工业大学 理学院, 锦州 121001)

摘要: 为了了解 H_2^+ 谐波辐射的过程, 采用数值求解非玻恩-奥本海默近似薛定谔方程的方法, 理论研究了 H_2^+ 在 10fs/800nm 红外激光与 6fs/30nm 远紫外激光驱动下谐波辐射的特点。结果表明, 谐波辐射的贡献主要来源于拉比振荡、多光子共振电离、电荷共振增强电离以及离解态电离; 随着远紫外光的加入, 谐波光谱呈现能量间隔为远紫外光子能量的多重谐波截止结构; 当远紫外光与红外激光的延迟时间大于零或小于零时, 谐波光谱呈现红移和蓝移的现象。该研究对理解分子谐波辐射过程是有帮助的。

关键词: 激光光学; 薛定谔方程; 高次谐波; 多重谐波截止能量; 谐波调频

中图分类号: O562.4 **文献标志码:** A **doi:** 10.7510/jgjs.issn.1001-3806.2018.02.001

H_2^+ radiation harmonics driven by infrared and extreme ultraviolet field

LIU Hang¹, LI Yi², FENG Liqiang^{1,2}

(1. School of Chemical and Environmental Engineering, Liaoning University of Technology, Jinzhou 121001, China; 2. College of Science, Liaoning University of Technology, Jinzhou 121001, China)

Abstract: In order to understand H_2^+ harmonic emission process, by using numerical solution of non-Bohn-Oppenheimer time-dependent Schrödinger equation, high-order harmonic generation (HHG) from H_2^+ driven by 10fs/800nm infrared (IR) field and 6fs/30nm extreme ultraviolet (XUV) pulse was theoretically investigated. The results show that, the contributions of HHG are mainly from Rabi-type oscillation, multi-photon resonance ionization, charge-resonance-enhanced ionization and dissociative ionization. With the introduction of XUV pulse, multi-harmonic cutoff extension separated by XUV photon energy can be found on HHG spectra. When the delay time between IR field and XUV pulse is larger than zero or smaller than zero, the red-shift and blue-shift of harmonics spectra can be obtained. The investigation is helpful to understand the molecular high-order harmonic generation.

Key words: laser optics; Schrödinger equation; high-order harmonic generation; multi-harmonic cutoff energy; frequency modulation of harmonics

引 言

强激光场与原子、分子相互作用可以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探测原子、分子内电子运动以及产生孤立阿秒脉冲中起到非常重要的作用并被广泛研究^[1-3]。

目前, 高次谐波的辐射过程可由半经典的三步模

型^[4]来描述。例如: 束缚电子首先由隧道电离进入连续态 (第1步: 电离过程); 随后电子在激光场的作用下加速并远离核子 (第2步: 加速过程); 最后电子在激光场驱动下反向加速与核子发生碰撞并辐射高次谐波 (第3步: 回碰过程)。对于原子体系来说, 三步模型可以很好地解释谐波辐射过程。但对于分子体系, 由于体系多出的核自由度, 分子中电子的电离以及回碰与原子相比有很大的不同, 进而导致一些分子谐波特有的现象。例如: 多光子电离^[5]、电荷共振增强电离^[6]、离解态电离^[7]在谐波辐射中的贡献; 多通道谐波辐射^[8]; 谐波红移^[9]; 谐波蓝移^[10]; 谐波辐射的空间分布^[11]等。

最近, 随着远紫外 (extreme ultraviolet, XUV) 光源的发展, 利用 XUV 光源调控谐波过程得到了很多关

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

作者简介: 刘 航 (1985-), 女, 博士, 讲师, 主要从事强激光与原子分子相互作用等方面的研究。

E-mail: attophys_lngy@126.com

收稿日期: 2017-04-28; 收到修改稿日期: 2017-06-01

注。例如:作者^[12]利用超短 XUV 光源驱动 He 原子增强谐波强度,并获得 1 个脉宽为 43as 的孤立阿秒脉冲。ZHANG 等人^[13]利用 XUV 光源与双色激光场的组合场驱动 He⁺ 离子获得了一个 47as 脉冲。随后,这种利用超短 XUV 光源增强谐波辐射强度的方案被 TAKAHASHI 等人^[14]实验证实。但是上述方法中都是用 XUV 光源驱动原子体系,并且都是用于控制三步模型中的电离过程,即利用 XUV 光源增大电离几率,进而增强谐波辐射强度。

因此,鉴于上述原因,本文中研究了 H₂⁺ 在红外激光与远紫外激光场驱动下谐波辐射的过程,并且通过经典与量子的分析给出了由于远紫外光源的加入所导致的多重谐波截止能量以及谐波频移的原因。若无说明,本文中采用原子单位(atomic units, a. u.)。

1 计算方法

非玻恩-奥本海默近似含时薛定谔方程为^[15-20]:

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

式中, m_p , R , z 分别为核质量、核间距与电子坐标; t 是时间; $V(z, R) = 1/R - 1/\sqrt{(z-R/2)^2 + 1} - 1/\sqrt{(z+R/2)^2 + 1}$ 为 H₂⁺ 势能; $\psi(z, R, t)$ 为电子波函数。激光场形式为:

$$E(t) = E_1 \exp[-4 \ln(2) (t/\tau_1)^2] \cos(\omega_1 t) + E_{XUV} \exp\{-4 \ln(2) [(t-t_d)/\tau_{XUV}]^4\} \times \cos[\omega_{XUV} (t-t_d)] \quad (2)$$

式中, E_1 , ω_1 , τ_1 为红外(infrared, IR)场振幅、频率和半峰全宽; E_{XUV} , ω_{XUV} , τ_{XUV} 为 XUV 光源的振幅、频率和半峰全宽; t_d 为两束激光场的延迟时间。

高次谐波频谱图可表示为:

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

式中, $a(t) = -\langle \psi(z, R, t) | \frac{\partial V(z, R)}{\partial z} + E(t) | \psi(z, R, t) \rangle$ 为偶极加速度^[21], ω 为谐波频次。由于谐波辐射能 $E = h\omega$, h 为普朗克常量。因此在本文中,通过分析谐波阶次 ω/ω_1 来讨论截止能量。

2 结果与分析

图 1 中给出 H₂⁺ 在单色 10fs/800nm IR 场以及该 IR 场与 6fs/30nm XUV 光源的组合场分别驱动下谐波

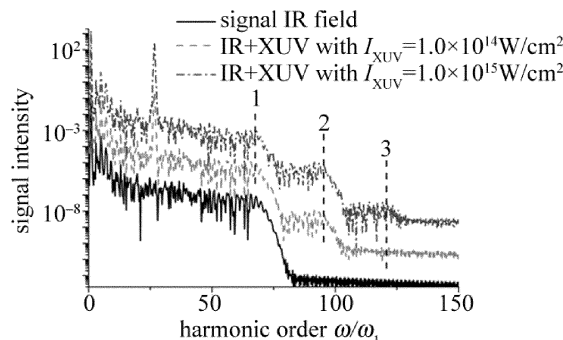


Fig. 1 Harmonic spectra from H₂⁺ driven by single IR field and the combined field (IR + XUV)

辐射的特点。IR 场场强为 $I_1 = 4.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, XUV 光源的场强为 $I_{XUV} = 1.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 以及 $I_{XUV} = 1.0 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ 。两束激光场延迟时间均为零。由图可知,在单色 IR 场驱动下,谐波光谱呈现经典的截止能量,即 $I_p + 3.17U_p$ (标记为“1”),其中 I_p 是 H₂⁺ 的电离势, $U_p = I/4\omega_1^2$ 为自由电子的有质动力势。当 XUV 光源的加入后,谐波光谱呈现 2 个明显特点:(1)第 26 阶谐波(H26)的强度被明显增强;(2)谐波截止能量明显延伸,形成能量间隔为 XUV 光子能量(ω_{XUV})的多重谐波截止能量。并且随着 XUV 光源强度增大,可以获得更多的截止能量,但是其强度会逐渐减小。例如:当 $I_{XUV} = 1.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$,谐波截止能量只延伸 1 个 ω_{XUV} ,标记为“2”;当 $I_{XUV} = 1.0 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$,谐波截止能量可以延伸 2 个 ω_{XUV} ,标记为“3”。对于 H26 的增强现象很好理解,这是由于选用的 XUV 光源能量与 H26 能量相近形成了共振增强电离现象。对于多重谐波截止能量的延伸,作者认为是由于电子在回碰过程中吸收额外的 XUV 光子所形成的。但是由三步模型可知,谐波截止能量的延伸可以发生在电离-加速-回碰中的任何一步,因此,为了证明上述观点,本文中做了如下分析。

图 2a ~ 图 2c 中给出 H₂⁺ 在单色 IR 场以及上述组合场下的电离几率。 T 表示 800nm 激光场光学周期。由图可知,XUV 光源的加入对 H₂⁺ 电离影响很小。因此,多重谐波截止能量延伸不可能发生在电离过程。图 3a ~ 图 3c 是电子波包随时间的演化图。从图中可知,在单色 IR 场下(见图 3a),电子加速最远可以运动到 35a. u.,这与经典结果 $x_{\max} = E_1/\omega_1^2$ 是一致的。随着 XUV 光源的加入可见(见图 3b 和图 3c),电子加速的最远距离几乎保持不变,这说明多重谐波截止能量的延伸不是在加速过程中产生的。由此可见,多重谐波截止能量的延伸只能产生于回碰过程。

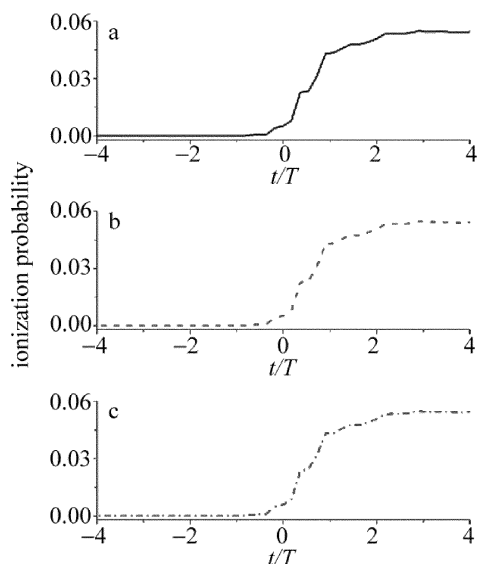


Fig. 2 Ionization probabilities of H_2^+

a—single IR field b—the combined field (IR + XUV) with $I_{XUV} = 1.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ c—the combined field (IR + XUV) with $I_{XUV} = 1.0 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$

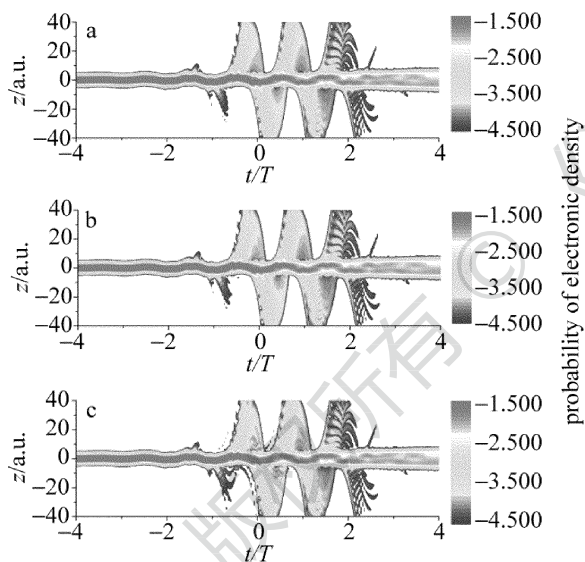


Fig. 3 Time-dependent electronic wave functions

a—single IR field b—the combined field (IR + XUV) with $I_{XUV} = 1.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ c—the combined field (IR + XUV) with $I_{XUV} = 1.0 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$

为了进一步证明此观点以及理解分子谐波辐射过程,图 4 中给出了上述激光场的波形。 H_2^+ 在激光场驱动下辐射谐波的时频分析图^[22],谐波光谱随核间距 R 的变化关系以及核间距 R 随时间的演化图。在单色 IR 场下 (见图 4a ~ 图 4d),由三步模型可知,电子电离可以发生在激光场振幅附近,即第 1 个 ~ 第 7 个电离时刻 $i_{1 \sim 7}$ 附近;随后电子在激光场中加速,并在激光场反向时与母核发生回碰辐射谐波,即第 1 个 ~ 第 7 个回碰时刻 $r_{1 \sim 7}$ 附近 (见图 4a)。因此在谐波辐射时频

分析图中可以观测到 7 个主要的谐波辐射过程,即第 1 个 ~ 第 7 个辐射能量峰 $P_{1 \sim 7}$ (见图 4b)。为了更好地说明谐波辐射过程,基于牛顿方程的经典电子回碰能 $K(t) = \frac{1}{2} [\int E(t) dt]^2$ 也在图 4b 中给出。可见,经典结果与量子结果符合得很好。分析图 4c 和图 4d 可知,谐波辐射主要发生在 $R = 2.0 \text{ a.u.}$ 到 $R = 15.0 \text{ a.u.}$ 区间。具体来说:(1) 当 $t < -2.25T$ 时 (T 表示 800nm 激光场周期),由于激光强度较弱, H_2^+ 不能被充分电离,因此导致在较小核间距下的 $1s\sigma_g$ 态和 $2p\sigma_u$ 态之间的拉比共振^[23],这也是当 $R < 3.0 \text{ a.u.}$ 时只有低阶谐波产生的原因;(2) 随着激光在 $-2.25T < t < 0.75T$ 时达到峰值,电离几率以及核运动逐渐增大,进而多光子共振电离在 $4.0 \text{ a.u.} < R < 6.0 \text{ a.u.}$ 区间起主要作用,这是导致高阶谐波在 $4.0 \text{ a.u.} < R < 6.0 \text{ a.u.}$ 产生的原因;(3) 当 $0.75T < t < 2.25T$ 时,虽然激光强度逐渐减小,但是由于随着 R 的增大, H_2^+ 的电离能逐渐减小,因此导致 $6.0 \text{ a.u.} < R < 10.0 \text{ a.u.}$ 区间的电荷共振增强电离以及谐波辐射过程;(4) 随着激光继续与 H_2^+ 作用,虽然核间距可以延伸到更远的距离,例如: $R > 10.0 \text{ a.u.}$,即离解态电离区间,但是由于激光强度迅速减小,因此只导致低阶谐波在此区间产生。对于组合场的情况 (见图 4e ~ 图 4h 和图 4i ~ 图 4l),分析图 4e 和图 4i 可知,第 2 个 ~ 第 6 个电离时刻 $i_{2 \sim 6}$ 与回碰时刻 $r_{2 \sim 6}$ 被 XUV 光源覆盖,因此当加速电子返回母核回碰的过程中,由于 XUV 光源的作用,电子有几率在回碰过程中再吸收 XUV 光子,进而增大了回碰能,同时导致辐射出更高能量的谐波。为了证明上述分析过程,图 4f 和图 4j 中分别给出 XUV 光源强度为 $I_{XUV} = 1.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 和 $I_{XUV} = 1.0 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ 时,组合场驱动 H_2^+ 辐射谐波的时频分析图以及解经典牛顿方程得出的经典回碰能,其中,图 4f 中两条曲线由上到下分别表示回碰能为 $K(t)$ 以及 $K(t) + \omega_{XUV}$;图 4j 中 3 条曲线由上到下分别表示回碰能为 $K(t)$, $K(t) + \omega_{XUV}$ 以及 $K(t) + 2\omega_{XUV}$ 。由图可知,当 XUV 光强较弱时 (见图 4f),电子在 $r_{2 \sim 6}$ 时刻回碰时会吸收 1 个 XUV 光子,导致 $P_{2 \sim 6}$ 的谐波截止能量以 ω_{XUV} 的间隔延伸了 1 个 XUV 光子的能量。随着 XUV 光源强度增强 (见图 4j),电子在 r_2 和 r_6 时刻回碰时吸收 XUV 光子的几率增大,但依然只能吸收 1 个 XUV 光子,因此导致 P_2 和 P_6 的谐波截止能量只以 ω_{XUV} 的间隔延伸了 1 个 XUV 光子的能量。但当电子在 $r_{3 \sim 5}$ 时刻回碰时,由于电离几率的增大以及较强的 XUV 光强,电子会吸收

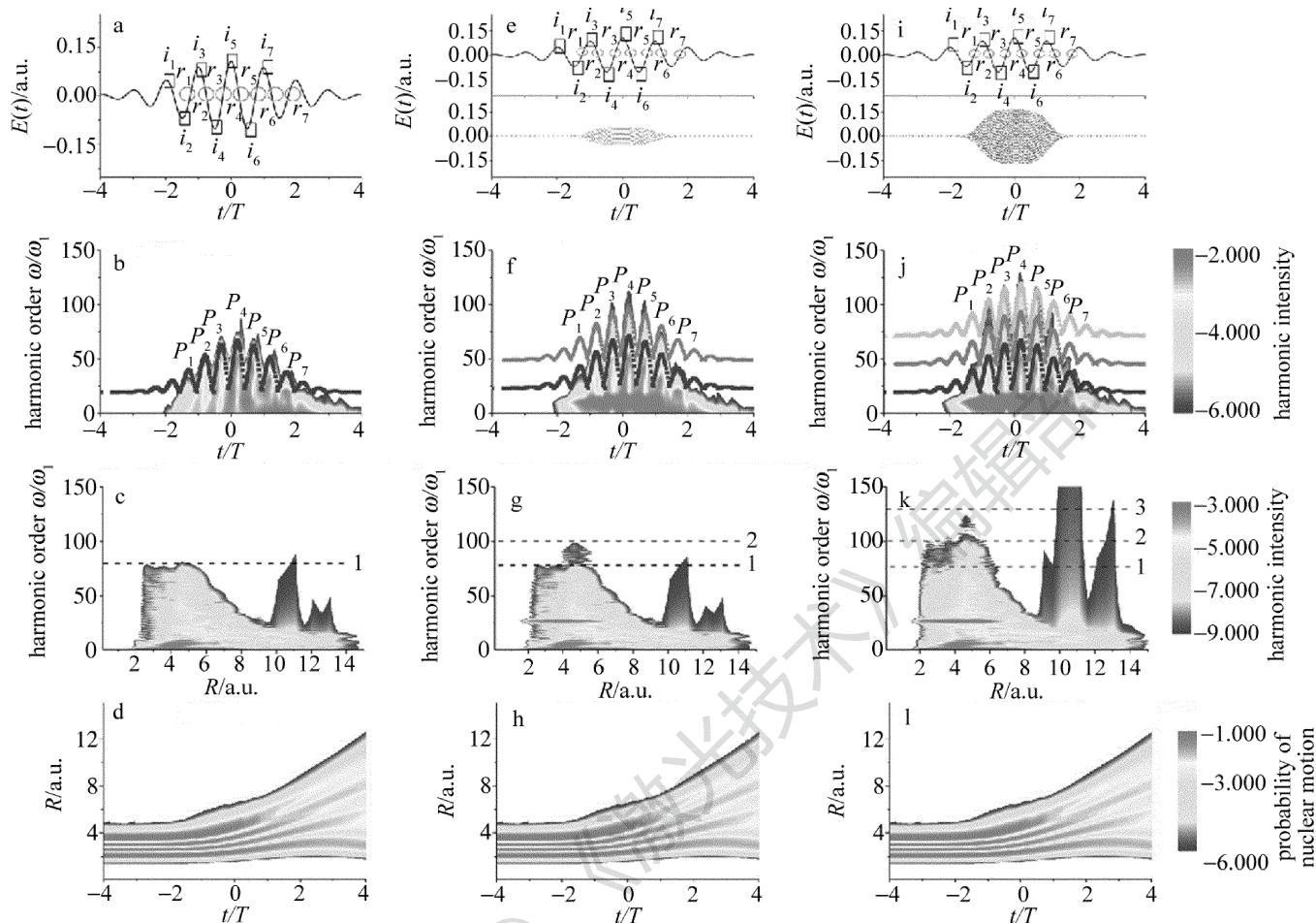


Fig. 4 Time-dependent laser profile (a,e,i), harmonic order (b,f,j), R -dependent harmonic order (c,g,k) and time-dependent nuclear motion a~d—single IR field e~h—the combined field (IR + XUV) with $I_{\text{XUV}} = 1.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ i~l—the combined field (IR + XUV) with $I_{\text{XUV}} = 1.0 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$

2 个 XUV 光子,因此导致 P_{3-5} 的谐波截止能量光谱呈现出 $I_p + 3.17U_p + 2\omega_{\text{XUV}}$ 的多重谐波截止能量延伸。但是由于每多吸收一个 XUV 光子的几率都会下降,因此导致多重谐波截止能量的强度呈阶梯形状的下降趋势。分析图 4g、图 4h 和图 4k、图 4l 可知,谐波辐射的贡献依然来自 4 个部分,即,Rabi 振荡 ($R < 3.0 \text{ a.u.}$)、多光子共振电离 ($4.0 \text{ a.u.} < R < 6.0 \text{ a.u.}$)、电荷共振增强电离 ($6.0 \text{ a.u.} < R < 10.0 \text{ a.u.}$) 以及离解态电离 ($R > 10.0 \text{ a.u.}$),并且多重谐波截止能量主要出现在多光子共振电离区间。

图 5a 中给出了改变 XUV 光源延迟时间后对多重谐波截止能量的影响。其中 XUV 光强为 $I_{\text{XUV}} = 1.0 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ 。计算结果表明,当延迟时间在 $-0.5T \leq t_d \leq 0.5T$ 时,谐波光谱可以呈现出多重谐波截止能量。但当 $|t_d| > 0.5T$ 时,谐波光谱的多重截止能量会逐渐消失。这里只给出 $t_d = \pm 0.5T$ 和 $t_d = \pm 1.0T$ 时的谐波谱图。图 5b 中给出了 XUV 光源延迟时间对谐波频移的影响。由图可知,当 $t_d < 0$ 或 $t_d > 0$ 时,谐波光谱

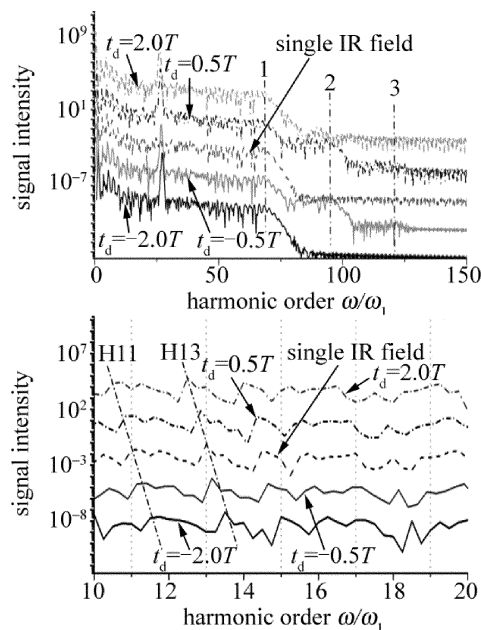


Fig. 5 The effect of delay time

a—on multi-harmonic cutoff extension b—on frequency modulation of harmonics

呈现蓝移或者红移的现象(例如 H11 和 H13)。

为了解释上述现象,图 6 是上述激光场的波形图以及谐波辐射的时频分析图。由图可知,当延迟时间在 $t_d = -0.5T$ (见图 6c 和图 6d)或 $t_d = 0.5T$ 时(见图 6e 和图 6f),电子回碰的 r_{1-5} 时刻或 r_{2-7} 时刻依然可以被 XUV 光源的主体覆盖,因此电子在回碰时依然可以吸收 XUV 光子,进而导致多重谐波截止能量的延伸。但当延迟时间在 $t_d = -1.0T$ (见图 6a 和图 6b)或 $t_d = 1.0T$ (见图 6g 和图 6h)时,XUV 光源的主体只覆盖激光包络的上升区间(r_1, r_2)或下降区间(r_{5-7}),因此电子在回碰过程 r_1, r_2 或 r_{5-7} 时可以吸收 XUV 光子,进而导致谐波辐射过程 P_1, P_2 或 P_{5-7} 的能量延伸。但

是由于其延伸能量小于或只略大于经典的谐波截止能量($I_p + 3.17U_p$),因此在谐波光谱中多重谐波截止能量的现象消失了。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能量,进而导致谐波光谱的红移^[9-10]。分析谐波辐射的时频分析图可知,当 $t_d < 0$ 时,激光上升区间的谐波辐射强度增强,因此导致谐波光谱的蓝移;当 $t_d > 0$ 时,激光下降区间的谐波辐射强度增强,因此导致谐波光谱的红移。

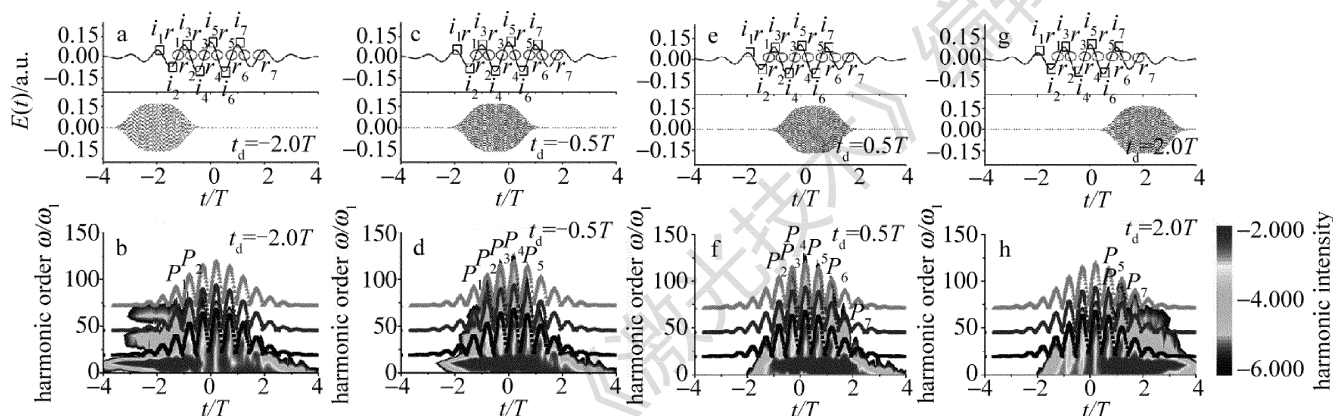


Fig. 6 a,c,e,g—laser profiles of single IR field and XUV pulses under different delay time b,d,f,h—time-frequency analyses of different harmonics

3 结 论

理论研究了 H_2^+ 在红外激光与远紫外激光场驱动下谐波辐射的特点。结果表明,谐波辐射的贡献分别来源于拉比振荡、多光子共振电离、电荷共振增强电离以及离解态电离。随着远紫外光的加入,谐波光谱呈现能量间隔为远紫外光子能量的多重谐波截止结构。适当调节远紫外光与红外激光场的延迟时间,谐波光谱呈现蓝移和红移的现象。

非常感谢中国科学院大连化学物理研究所韩克利研究员所提供的计算资源。

参 考 文 献

- [1] WANG Ch, LIU H L, TIAN J Sh, *et al.* Analysis of intrinsic atomic phase in process of extreme ultraviolet attosecond pulse generation [J]. *Laser Technology*, 2012, 36(3): 342-345 (in Chinese).
- [2] LIU H, FENG L Q. Mid-infrared field phase measurement and attosecond pulse generation [J]. *Laser Technology*, 2017, 41(2): 151-158 (in Chinese).
- [3] GOULIELMAKIS E, SCHULTZE M, HOFSTETTER M, *et al.* Single-cycle nonlinear optics [J]. *Science*, 2008, 320(5883): 1614-1617.

- [4] CORKUM P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization [J]. *Physical Review Letters*, 1993, 71(13): 1994-1997.
- [5] STAUDTE A, COCKE C L, PRIOR M H, *et al.* Observation of a nearly isotropic high-energy Coulomb explosion group in the fragmentation of D_2 by short laser pulses [J]. *Physical Review*, 2002, A65(2): 020703.
- [6] ZUO T, CHELKOWSKI S, BANDRAUK A D. Harmonic generation by the H_2^+ molecular ion in intense laser fields [J]. *Physical Review*, 1993, A48(5): 3837-3844.
- [7] CHELKOWSKI S, FOISY C, BANDRAUK A D. Electron-nuclear dynamics of multiphoton H_2^+ dissociative ionization in intense laser fields [J]. *Physical Review*, 1998, A57(2): 1176-1185.
- [8] BIAN X B, BANDRAUK A D. Multichannel molecular high-order harmonic generation from asymmetric diatomic molecules [J]. *Physical Review Letters*, 2010, 105(9): 093903.
- [9] BIAN X B, BANDRAUK A D. Probing nuclear motion by frequency modulation of molecular high-order harmonic generation [J]. *Physical Review Letters*, 2014, 113(19): 193901.
- [10] LI M Z, JIA G R, BIAN X B. Alignment dependent ultrafast electron-nuclear dynamics in molecular high-order harmonic generation [J]. *The Journal of Chemical Physics*, 2017, 146(8): 084305.
- [11] ZHANG J, GE X L, WANG T, *et al.* Spatial distribution on high-order-harmonic generation of an molecule in intense laser fields [J]. *Physical Review*, 2015, A92(1): 013418.
- [12] FENG L Q, LIU H. Ultrashort ultraviolet source assisted enhancement of the attosecond pulse intensity [J]. *Journal of Atomic and*

- Molecular Physics, 2015, 32(4): 616-620 (in Chinese).
- [13] ZHANG G T, LIU X S. Generation of an extreme ultraviolet super-continuum and isolated sub-50as pulse in a two-colour laser field [J]. Journal of Physics, 2009, B42(12): 125603.
- [14] TAKAHASHI E J, KANAI T, ISHIKAWA K L, *et al.* Dramatic enhancement of high-order harmonic generation [J]. Physical Review Letters, 2007, 99(5): 053904.
- [15] LU R F, ZHANG P Y, HAN K L. Attosecond-resolution quantum dynamics calculations for atoms and molecules in strong laser fields [J]. Physical Review, 2008, E77(6): 066701.
- [16] HU J, HAN K L, HE G Z. Correlation quantum dynamics between an electron and D_2^+ molecule with attosecond resolution [J]. Physical Review Letters, 2005, 95(12): 123001.
- [17] FENG L Q, CHU T S. Generation of an isolated sub-40as pulse using two-color laser pulses: Combined chirp effects [J]. Physical Review, 2011, A84(5): 053853.
- [18] FENG L Q. Molecular harmonic extension and enhancement from H_2^+ ions in the presence of spatially inhomogeneous fields [J]. Physical Review, 2015, A92(5): 053832.
- [19] LIU Sh Sh, MIAO X Y. Enhancement of high-order harmonic emission by using a coherent superposition in a two-color laser field [J]. Journal of Atomic and Molecular Physics, 2012, 29(5): 881-885 (in Chinese).
- [20] DU H N, MIAO X Y. Theoretical exploration of intensity effects on high-order harmonic generation from H_2^+ molecules [J]. Journal of Atomic and Molecular Physics, 2013, 30(1): 115-120 (in Chinese).
- [21] BURNETT K, REED V C, COOPER J, *et al.* Calculation of the background emitted during high-harmonic generation [J]. Physical Review, 1992, A45(5): 3347-3349.
- [22] ANTOINE P, PIRAUX B, MAQUET A. Time profile of harmonics generated by a single atom in a strong electromagnetic field [J]. Physical Review, 1995, A51(3): R1750-R1753.
- [23] SILVA R E F, CATOIRE F, RIVIERE P, *et al.* Correlated electron and nuclear dynamics in strong field photoionization of H_2^+ [J]. Physical Review Letters, 2013, 110(11): 113001.