

超强激光场中 H_2^+ 的隧道离解和波包演化

胡素兴 韩申生 徐至展 张雪慧

(中国科学院上海光机所 上海 201800)

提要 利用超强激光脉冲中分子与场相互作用的多电子态模型,数值模拟了分子波包在高低频超强激光场中的演化过程。结果发现,高频场中分子波包的扩展是渐进的,直到脉冲作用结束,分子才完全离解;而在低频场中,分子波包迅速隧穿到离解态,仅在脉冲的前几个周期,波包便溢出相互作用区。另外还比较了高低频场作用下分子的离解几率和离解碎片的动量分布。

关键词 隧道离解,分子波包,超强激光场

1 引 言

众所周知,强激光与物质的相互作用已成为物理研究中一个极为活跃的领域^[1]。在激光场强接近原子单位场强时,出现了许多非线性的物理现象^[2],如气体原子与强激光相互作用中产生的高次谐波^[3]、阈上电离(ATI)^[4]以及原子的稳定化^[5]等现象。原子与强激光场相互作用的非微扰研究已开展了十多年,取得了极为重要的进展。近几年来,分子与强激光场的相互作用研究也极为活跃^[6],研究的主要目的在于探索激光强度在控制化学反应动力学方面的作用以及利用强激光场离解分子来研究分子激发态波包结构^[7]。与原子情形相似,强激光场中的分子行为也表现出一系列的非线性效应,如阈上离解^[8]、库仑爆炸^[9]和分子稳定化^[10]等。

研究强激光场中分子动力学行为的方法包括不含时的解析方法和含时的数值积分方法。时间独立的解析方法通过建立全量子力学的分子场波包来分析相互作用的可观察量^[11]。但由于其对超短脉冲束手无策而被放弃。时间依赖的数值积分方法通过二阶差分表达式代替 Schrödinger 方程中的二阶微分^[12,13]或重复使用短时传播算子^[14]。它们都在时间上离散化分子场相互作用波函数,从而求得分子波包的演化过程,从中即可提取感兴趣的可观察量信息。本文仍将采用标准的二阶劈裂传播算符方法来数值求解氢分子离子在强激光场中的离解行为。

到目前为止,几乎所有研究 H_2^+ 的方法都采用两电子态模型,对于中等激光强度($10^{13} \sim 10^{14} \text{ W/cm}^2$)而言,两电子态模型给出了与实验基本相符的结果,然而当激光强度超过 10^{14} W/cm^2 时, H_2^+ 的多个电子态将被激发,因而对于超强分子与场相互作用,采用多电子态模型是必要的^[15],但由于对复杂分子的电子态知识了解很少,所以大部分的计算均选择只有一个电子的最简单分子 H_2^+ 进行。在该文中我们采用联合的 Rochester 势^[16]来描述 H_2^+ 中的电子势,并利用标准的二阶传播子和劈裂波函数算法来求解分子波包在超强激光场中的演化。

2 H₂⁺ 离解的多电子态模型

当激光强度较高时($\geq 10^{14}$ W/cm²), 分子的多个电子态将被激发, 分子波函数在激光场中的演化用相互作用 Schrödinger 方程来描述。为方便起见, 取原子单位 ($m = e = \hbar = 1$)。一维的分子场相互作用 Schrödinger 方程为

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi_{\text{mol}}(x, R, t) = H_{\text{mol}}(x, R, t) \Psi_{\text{mol}}(x, R, t) \quad (1)$$

在偶极近似下, 分子场相互作用哈密顿量为

$$H_{\text{mol}}(x, R, t) = -\frac{1}{2\mu} \frac{\partial^2}{\partial R^2} + H_{\text{el}}(x, R) + V_r(R) + \vec{d}(x) \cdot E_0 f(t) \cos \omega t \quad (2)$$

这里 x 是电子坐标, R 是核间距, μ 是两个氢核的折合质量, 偶极算符 $\vec{d}(x) = ex \cdot V_r(R)$ 是核之间的相互排斥势, (2) 式的最后一项是分子与场的偶极相互作用项。其中 E_0 表示激光脉冲的峰值场强, $f(t)$ 是脉冲包络函数。而电子的哈密顿量 $H_{\text{el}}(x, R)$ 为

$$H_{\text{el}}(x, R) = -\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{Q}{\sqrt{a_0^2 + [x + (R/2)]^2}} - \frac{Q}{\sqrt{a_0^2 + [x - (R/2)]^2}} \quad (3)$$

通过调节参数 Q 和 a_0 可模拟出真正的电子势。分子的电子态可以通过求解本征态方程得到, 即

$$[H_{\text{el}}(x, R) - E_m(R)] \Phi_m(x, R) = 0 \quad (4)$$

对于强度在 $10^{15} \sim 2 \times 10^{16}$ W/cm² 范围内, 我们的计算表明核和电子运动的耦合对结果的修正是很小的。因而在此强度范围内 Born-Oppenheimer 近似仍适用, 即在计算中假设核和电子的运动是不耦合的^[17]。因而可以用核和电子波函数的组合来描述分子波函数:

$$\Psi_{\text{mol}}(x, R, t) = \sum_m F_m(R, t) \Phi_m(x, R) \quad (5)$$

m 的取值可根据激光强度而定, 它决定了计算中包含的电子态数目。从物理意义上讲, $F_m(R, t)$ 描写了 t 时刻分子被激发到 Φ_m 电子态表面上的几率。它的演化可以从分子与场相互作用 Schrödinger 方程求出。将(2), (3), (5)式代入方程(1)中, 右乘 $\Phi_m(x, R)$ 并对 x 积分即可得到 $F_m(R, t)$ 演化的矩阵形式

$$i \frac{\partial}{\partial t} \mathcal{F}(R, t) = \left[-\frac{1}{2\mu} I \frac{\partial^2}{\partial R^2} + v(R, t) \right] \mathcal{F}(R, t) \quad (6)$$

其中 $\mathcal{F}(R, t)$ 是一个列矢量, 其元素为 $F_1(R, t), F_2(R, t), \dots, F_m(R, t)$ 。 I 是单位矩阵, $v(R, t)$ 是相互作用矩阵, 其矩阵元为

$$V_{mm}(R) = \int \Phi_m H_{\text{el}}(x, R) \Phi_m(x, R) dx \quad (7)$$

$$V_{mn}(R, t) = u_{mn}(R) \cdot E_0 f(t) \cos \omega t [V_{nn}(R) - V_{mm}(R)] / \omega \quad (8)$$

其中分子的电偶极矩 $u_{mn}(R)$ 等于

$$u_{mn}(R) = \int \Phi_m(x, R) \vec{d}(x) \Phi_n(x, R) dx \quad (9)$$

假设分子核态处于稳定的 $V_{11}(R)$ 势表面, 则可以通过求解以下本征值方程来选择分子的初始振动态:

$$\left[\frac{1}{2\mu} \frac{\partial^2}{\partial R^2} + V_{11}(R) + V_r(R) - E_v \right] \Phi_v(R) = 0 \quad (10)$$

其中 E_ν 是分子处于振动态 ν 的本征能量, 调节电子势中的势深参数 Q , 可以使 E_ν 接近真正的 H_2^+ 离解能。从而分子在强激光场中演化的初始状态可以选择为 $F_0(R, t = 0) = \Phi_0(R)$, $F_{m>0}(R, t = 0) = 0$ 。

利用标准的二阶劈裂算子方法可以求出方程(6) 的解为

$$\mathcal{F}(R, t_n) = \exp\left[\frac{i\Delta t}{4\mu} I \frac{\partial^2}{\partial R^2}\right] \exp[-i\Delta t v(R, t)] \exp\left[\frac{i\Delta t}{4\mu} I \frac{\partial^2}{\partial R^2}\right] \mathcal{F}(R, t_{n-1}) \quad (11)$$

通过快速傅里叶变换(FFT), 可将核波函数变换到动量表象中, 这样指数运动能作用在波函数上就变成了相乘的关系。然后再经过逆 FFT, 将波函数变换回坐标空间中。指数相互作用势矩阵经过对角化后, 其本征态矩阵构成了一个变换矩阵, 经其作用, 波函数被变换到相互作用势表象, 从而指数势矩阵本征值可直接与波函数相乘, 整个指数算符运算过程已在[15, 18] 中详细描述过。

在方程(11) 中指数运动能算符是在半时间步长 $\Delta t/2$ 上运算的, 可以将第 $n-1$ 步的后半个指数运动能算符与第 n 步的前半个指数运动能算符联合起来便形成了一个全时间步长 Δt 上的运动能算符, 这缩短了运算时间, 该算法的误差在 $(\Delta t)^3$ 量级。

另外, 可以选定一定范围的相互作用区, 当分子波函数扩展到相互作用区边界时, 将波函数劈裂成相互作用区 $F_{mI}(R, t)$ 和渐近区 $F_{mA}(R, t)$ 。在渐近区分子不再与激光场相互作用, 这样溢出边界的部分 $F_{mA}(R, t)$ 当作自由粒子传播, 直到激光脉冲结束, 于是得到了描述离解碎片的渐近波函数 $F_{mA}(R, t_f)$, t_f 即为相互作用结束时刻。可观察信息即可从波函数的演化中得出。

3 H_2^+ 的隧道离解和波包演化过程

利用方程(6) 的传播解, 可以立即计算出 H_2^+ 波包随时间的演化 $P_{\text{dis}}(t)$:

$$P_{\text{dis}}(t) = 1 - \sum_m \int_0^{R_c} F_{mI}^*(R, t) F_{mI}(R, t) dR \quad (12)$$

求和是对电子态数目 m 进行的。

分子离解后的碎片行为可以从渐近波函数中获得。即将渐近波函数 $F_{mA}(R_n, t_f)$ 经 FFT 变换到动量表象中 $F_{mA}(p_j, t_f)$, 于是离解碎片 H^+ 的动量分布可表示为

$$P(p_j) = \sum_m |F_{mA}(p_j, t_f)|^2 \quad (13)$$

求和是对描述 H^+ 碎片的波函数进行的。 H_2^+ 波包随时间的演化过程可如下求得

$$WP(R, t) = \sum_m F_{mI}^*(R, t) \times F_{mI}(R, t) \quad (14)$$

我们的数值模拟在两个频率处进行, $\lambda_1 = 248 \text{ nm}$ (即文中所指的“高频”)和 $\lambda_2 = 814 \text{ nm}$ (即文中所指的“低频”)。激光脉冲均选择 20 个周期的类高斯型(即正弦平方 \sin^2 包络)。(1) 脉冲强度 $I_1 = 8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, H_2^+ 波包的演化如图 1 所示, 图 1(a), (b) 分别相对于高低频场的情况。可以发现, 对于高频场, 波包的扩展是渐进的, 直到脉冲作用结束, 分子波包仍未完全溢出相互作用区; 而低频场的情况则相反, 分子波包在激光脉冲的前几个周期就迅速扩展, 到第 8 个周期时波包已完全溢出了相互作用区。(2) $I_2 = 1.2744 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$ 的情况如图 2 所示, 在如此高的场强下, 高频场作用下的 H_2^+ 波包也并没有迅速扩展而溢出相互作用区, 尽管它比图 1(a) 中的扩展速度更快; 但对低频场, 分子波包的扩展更是迅速, 在第 4 个周期时, 波包已几乎全部跑出了相互作用区域。从而我们得出结论: 分子波包在强激光场中的演化过程主要决定于场频率而与场强关系并不明显。对于高频场, 分子波包经多光子吸收后逐步向外运

动;而在低频场中分子波包随场振动到势垒处时有足够的时间隧穿到离解态,因而波包在脉冲的前几个周期便隧穿到相互作用区外。

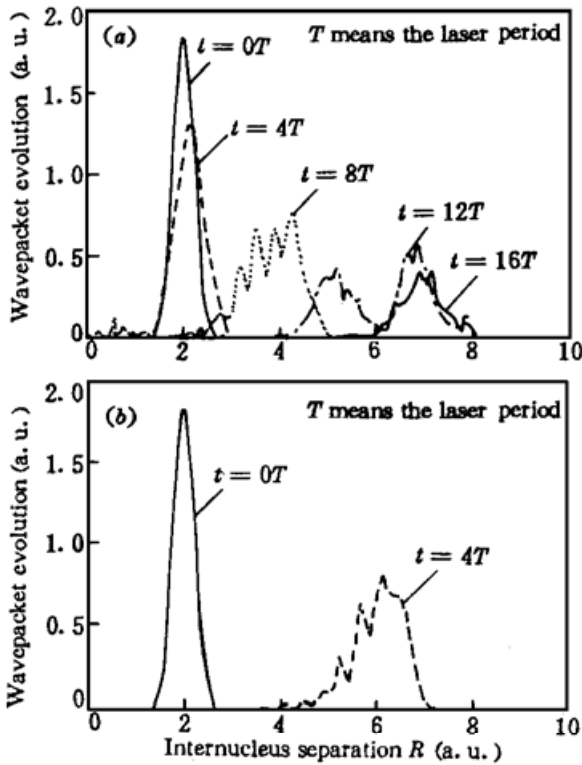


图 1 波包随相互作用时间的演化过程。激光强度 $I = 8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, (a), (b) 分别对应 $\lambda_1 = 248 \text{ nm}$, $\lambda_2 = 814 \text{ nm}$ 的情况

Fig. 1 The wavepacket evolution as a function of interaction time t and internucleus separation R . The laser intensity $I = 8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, (a), (b) are respectively for $\lambda_1 = 248 \text{ nm}$, $\lambda_2 = 814 \text{ nm}$

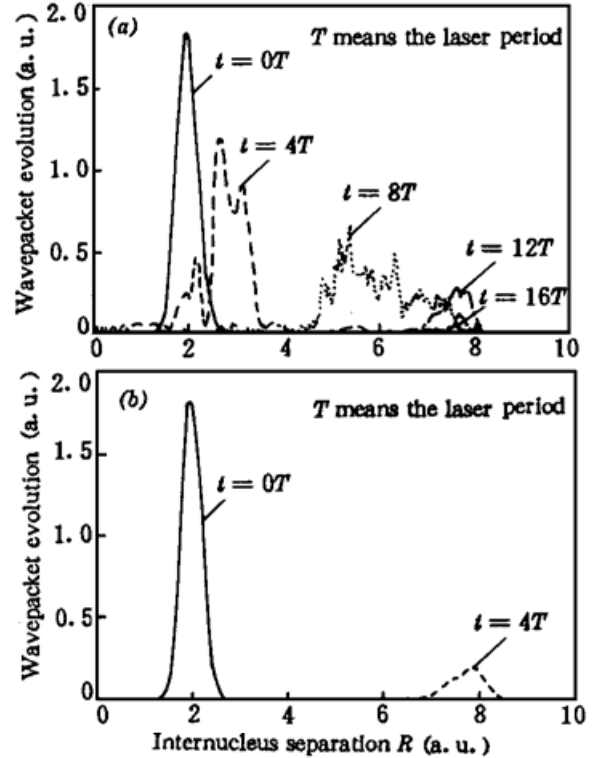


图 2 与图 1 相同,但激光强度 $I = 1.2744 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$

Fig. 2 Same as that of Fig. 1, but the laser intensity $I = 1.2744 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$

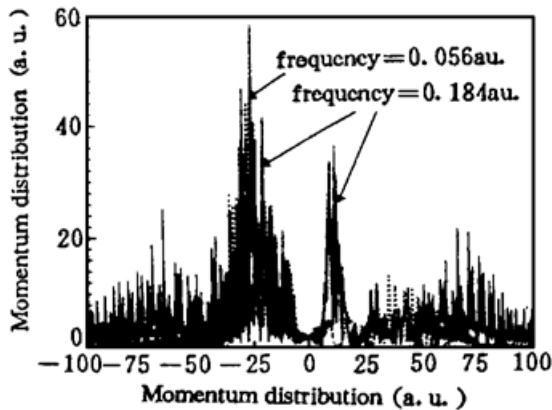


图 3 离解碎片 H^+ 的动量分布

Fig. 3 Momentum distribution of the dissociative fragment H^+

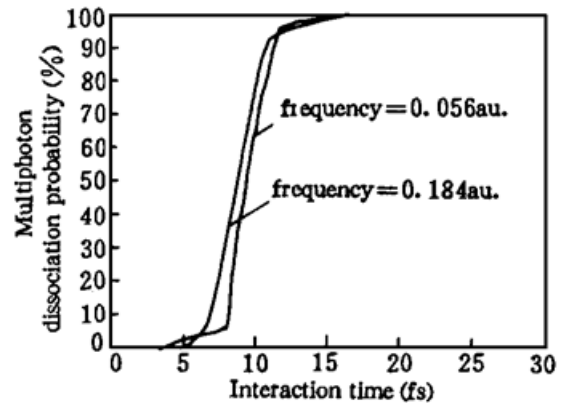


图 4 离解几率与作用时间的关系曲线

Fig. 4 The dissociation probability versus the interaction time

图 3 比较了两种频率场对 H_2^+ 离解碎片 H^+ 动量分布的影响, 可以看出高频场时离解是一个多光子过程, 离解碎片是对称分布的, 且具有较大的运动能(图中实线表示); 而低频场时隧道离解的碎片是反对称的(图中虚线所示)。图 4 是两种频率场对 H_2^+ 离解几率的比较, 从中可见对两种频率场, 分子均在 10 fs 附近离解掉。但可以看到低频场的离解速率更陡, 更具有隧道离解的特征。

4 结束语

本文利用多电子态模型计算了 H_2^+ 波包在超强激光场中的演化过程。结果发现, 波包的演化过程主要取决于激光脉冲的频率。高频场时, 分子波包逐步向相互作用区外扩展, 直到脉冲作用结束, 这是一个多光子过程, 其碎片 H^+ 的动量分布是对称的, 具有较大的运动能; 而对于低频场, 分子波包则在脉冲的前几个周期迅速隧穿到相互作用区外, 隧道离解过程导致了离解碎片的动量分布是反对称的。但在超强激光场中, 无论高低频场 H_2^+ 的离解总是在 10 fs 左右完成。但在低频场时, 离解速率更陡, 具有明显的隧道离解特征。

参 考 文 献

- 1 C. J. Joshi, P. B. Corkum. Interaction of ultra-intense laser light with matter. *Physics Today*, 1995, **1**: 36
- 2 K. C. Kulander, K. J. Schafer, J. L. Krause. in super intense laser-atom physics. edited by B. Piraux *et al.*. NATO ASI, Ser. B, Vol. 316, New York: Plenum Press, 1993, 95
- 3 S. G. Preston, A. Sampera, M. Zepf *et al.*. High order harmonics of 248.6 nm KrF laser from helium and neon ions. *Phys. Rev.*, 1996, **A53**: R31
- 4 J. Javanainen, J. H. Eberly, Qichang Su. Numerical simulation of multiphoton ionization and above threshold electron spectrum. *Phys. Rev.*, 1988, **A38**: 3430
- 5 Q. Su, J. H. Eberly. Suppression of ionization and atomic electron localization by short intense laser pulse. *Phys. Rev. Lett.*, 1990, **64**: 862
- 6 A. Giusti-suzor, F. H. Mies, L. F. Dimauro *et al.*. Dynamics of H_2^+ in intense laser field. *J. Phys.*, 1995, **B28**: 309
- 7 H. Stapelteldt, E. Constant, P. B. Corkum. Wave packet structure and dynamics measured by Coulomb explosion. *Phys. Rev. Lett.*, 1995, **74**: 3780
- 8 A. Giusti-suzor, X. He, O. Atabek *et al.*. Above-threshold dissociation of H_2^+ in intense laser fields. *Phys. Rev. Lett.*, 1990, **64**: 515
- 9 A. Zavriyev, P. H. Bucksbaum, J. Squier *et al.*. Light-induced vibrational structure in H_2^+ and D_2^+ in intense laser fields. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, **70**: 1077
- 10 E. E. Aubanel, J. M. Gauthier, A. D. Bandrauk. Molecular stabilization and angular distribution in photodissociation of H_2^+ in intense laser fields. *Phys. Rev.*, 1993, **A48**: 2145
- 11 S.-H. Chu, J. Cooper. Threshold shift and above-threshold multiphoton ionization of atomic hydrogen in intense laser fields. *Phys. Rev.*, 1985, **A32**: 2769
- 12 J. L. Krause, K. J. Shafer, K. C. Kulander. Calculation of photoemission from atoms subject to intense laser field. *Phys. Rev.*, 1992, **A45**: 4998
- 13 K. C. Kulander. Multiphoton ionization of hydrogen: a time-dependent theory. *Phys. Rev.*, 1987, **A35**: 445
- 14 R. W. Heather. An asymptotic wavefunction splitting procedure for propagation spatially extended wavefunction: application to intense laser field photodissociation of H_2^+ . *Comput. Phys. Commun.*, 1991, **63**: 446
- 15 Suxing Hu, Shensheng Han, Zhizha Xu. Multielectronic states calculation of molecular behavior in su-

- perstrong laser field. submit to *Phys. Rev.*
- 16 T. Seideman, M. Yu. Ivanov, P. B. Corkum. Role of electron localization in intense field molecular ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 1995, **75** : 2819
 - 17 A. Carrington, I. R. McNab, C. A. Montgomerie. Spectroscopy of the hydrogen molecular ion. *J. Phys.*, 1989, **B22** : 2551
 - 18 Suxing Hu, ZhiZhan Xu. Wavepacket propagation algorithm with wavefunction splitting: Application to calculate harmonic emission of atom in intense laser pulse. *Journal of Chinese Lasers*, 1997, **B6** : 147

Tunneling Dissociation and Wavepacket Evolution of H_2^+ in Superstrong Laser Fields

Hu Suxing Han Shensheng Xu Zhizhan Zhang Xuehui

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800)

Abstract With the multielectronic states model for investigation of molecular behavior in superstrong laser fields, we simulate numerically the evolution procedure of a molecular wavepacket in the superstrong laser field. It results that for high-frequency field the wavepacket evolves gradually, the molecule doesn't fully dissociate until the end of the interaction. However, the molecular wavepacket tunnels quickly into the dissociative states. The wavepacket overflows the interaction region only in the first several periods of the laser pulse. In addition, we have also compared the dissociation probability and the momentum distribution of fragments in the high-frequency field with those in the low-frequency field.

Key words tunneling dissociation, molecular wavepacket, superstrong laser field