

# 强激光场中 $H_2^+$ 离解行为的研究

胡素兴 徐至展 张雪慧 张文琦

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

**摘 要** 在多电子态模型下, 利用二阶劈裂传播子算法计算了  $H_2^+$  在强激光场中的离解行为。结果发现在高频场时分子的多光子离解碎片是近对称的。而对于低频场, 在所考虑的激光强度下  $H_2^+$  是被隧道离解的, 因而其离解碎片  $H^+$  分布是反对称的。另外, 文中还探讨了三种脉冲形状对分子离解几率、离解碎片动力学行为的影响。

**关键词** 分子离解, 多电子态模型, 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激光物理研究中一个极为活跃的领域<sup>[1]</sup>。在激光场强已接近原子单位场强时, 出现了许多非线性的物理现象, 如气体原子与强激光相互作用中产生的高次谐波<sup>[2]</sup>, 阈上电离(ATI)<sup>[3]</sup>以及原子的稳定化<sup>[4]</sup>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, 取得了相当重要的进展。近几年来, 分子与强激光场的相互作用研究也较为活跃<sup>[5]</sup>, 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<sup>[6]</sup>。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<sup>[7]</sup>和分子稳定化<sup>[8]</sup>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<sup>[9]</sup>。时间依赖的数值积分方法通过二阶差分表达式代替薛定谔方程中的二阶微分<sup>[10, 11]</sup>或重复使用短时传播算子<sup>[12]</sup>。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时间演化过程, 从中可提取感兴趣的可观察量信息。本文将采用标准的二阶劈裂传播算符方法数值求解氢分子离子在强激光场中的离解行为。

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<sup>[13]</sup>, 然而当激光强度超过  $10^{14} \text{ W/cm}^2$  时,  $H_2^+$  的多个电子态将被激发, 因而对于分子与超强场相互作用, 采用多电子态模型是必要的。但是由于对复杂分子的电子态知识了解甚少, 所以大部分的计算都选择只有一个电子的最简单分子  $H_2^+$  进行。本文采用联合的 Rochester 势<sup>[4]</sup>来描述  $H_2^+$  中的电子势。

## 2 H<sub>2</sub><sup>+</sup> 离解的多电子态模型

当激光强度大于  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> 时, 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薛定谔方程来描述。为方便起见, 本文取原子单位 ( $m = e = h = 1$ )。一维的分子场相互作用薛定谔方程如下所示

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

在偶极近似下, 分子场相互作用哈密顿量为

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

式中  $x$  为电子坐标,  $R$  为核间距,  $\mu$  为两个氢核的折合质量。  $V_r(R)$  为核之间的相互排斥势, (2) 式的最后一项是分子场的偶极相互作用项。而电子的哈密顿量  $H_{\text{el}}(x, R)$  为

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

式中  $Q$  为电子势中势深参数。分子的电子态可以通过求解本征态方程得到, 即

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

在 Born-Openheimer 近似下, 核和电子的运动是不耦合的<sup>[14]</sup>。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  $\Phi_m$  电子态上的几率。它的演化可以从分子场相互作用薛定谔方程求出。将(2)、(3)、(5)式代入(1)式, 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,

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

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

$$\left. \begin{aligned} V_{mn}(R) &= \int \Phi_m^* H_{\text{el}}(x, R) \Phi_n(x, R) dx \\ V_{mn}(R, t) &= u_{mn}(R) E_0 f(t) \cos \omega t [V_{nn}(R) - V_{mm}(R)] / \omega \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

其中分子的电偶极矩  $u_{mn}(R)$  等于

$$u_{mn}(R) = \int \Phi_m^*(x, R) d(x, R) \Phi_n(x, R) dx \quad (8)$$

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。

$$\left[ \frac{1}{2\mu} \frac{\partial^2}{\partial R^2} + V_{11}(R) + V_r(R) - E_v \right] \Phi_v(R) = 0 \quad (9)$$

其中  $E_v$  是分子处于振动态  $v$  的本征能量, 调节电子势中的势深参数  $Q$ , 可以使  $E_v$  接近真正的 H<sub>2</sub><sup>+</sup> 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

$$\begin{aligned} F_0(R, t = 0) &= \Phi_0(R), \\ F_{m>0}(R, t = 0) &= 0. \end{aligned}$$

利用标准的二阶劈裂算子方法可以求出(6)式的解为:

$$\mathcal{A}(R, t_n) = \exp\left(\frac{i\Delta t}{4\mu} \mathcal{J} \frac{\partial^2}{\partial R^2}\right) \exp[-i\Delta t \mathcal{V}(R, t)] \exp\left(\frac{i\Delta t}{4\mu} \mathcal{J} \frac{\partial^2}{\partial R^2}\right) \mathcal{A}(R, t_{n-1}) \quad (10)$$

通过快速傅里叶变换, 可将核波函数变换到动量表象中, 这样指数运动能算符相互作用在波函数上就变成了相乘的关系。然后再经过逆快速傅里叶变换, 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, 此算法已被广泛用于求解含时薛定谔方程<sup>[12, 15]</sup>。

(10) 式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  $\Delta t$  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, 例如时间步长  $(\Delta t)^3 = 0.1 \text{ au}$  (原子单位), 则该算法误差为  $10^{-3} \text{ au}$ 。

另外, 可以选取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部分  $F_{ml}(R, t)$  和渐近区部分  $F_{mA}(R, t)$ 。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, 直到激光脉冲作用结束, 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。对于  $\text{H}_2^+$ , 按通常定义可以选取  $10.5 \text{ au}$  作为相互作用区范围, 即当  $\text{H}_2^+$  的两个核间距大于  $10.5 \text{ au}$  时, 可认为  $\text{H}_2^+$  已被离解。

### 3 $\text{H}_2^+$ 的离解行为

利用上节所述的计算方法, 可以求出分子波函数在强激光场中的演化, 从而可按下式计算  $\text{H}_2^+$  的离解几率  $P_{\text{dis}}(t)$ 。

$$P_{\text{dis}}(t) = 1 - \sum_m \int_0^{R_c} F_{ml}^*(R, t) F_{ml}(R, t) dR \quad (11)$$

式中  $R_c$  为相互作用区的边界, 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  $F_{mA}(R_n, t_f)$  经快速傅里叶变换变换到动量表象中  $F_{mA}(p_j, t_f)$ , 于是离解碎片  $\text{H}^+$  的动量分布可表示为

$$P(p_j) = \sum_m |F_{mA}(p_j, t_f)|^2 \quad (12)$$

求和是对描述  $\text{H}^+$  碎片的波函数进行的。

本文选择两个激光波长进行数值计算, 即  $\lambda_1 = 248 \text{ nm}$  和  $\lambda_2 = 814 \text{ nm}$ 。脉宽均包含 20 个周期, 脉冲强度都等于  $8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 。使用了三种脉冲形状, 即正弦平方上升下降和平台型(图中用 “Squa” 表示)、类高期型(即正弦平方型, 图中用 “Sin2” 表示)和高斯型脉冲(图中用 “Gaus” 表示)。对应 “Squa” 脉冲形状, 计算出了  $\text{H}_2^+$  离解碎片  $\text{H}^+$  的动量分布, 图 1(a)、(b) 分别显示了  $\lambda_1 = 248 \text{ nm}$  时的多光子离解行为和  $\lambda_2 = 814 \text{ nm}$  时的隧道离解行为。

从该图中可见, 高频场作用下  $\text{H}_2^+$  的离解碎片  $\text{H}^+$  几乎是对称分布的, 它表现出了多光子离解特征, 即离解碎片的动量分布被光子动量等间隔分开。高斯型脉冲离解  $\text{H}_2^+$  的结果更明显地显示了这一特征, 如图 2 所示。在低频场时,  $\text{H}_2^+$  被隧道离解, 其离解碎片  $\text{H}^+$  是反对称分布的, 如图 1(b) 所示, 可见经激光场准直后的  $\text{H}_2^+$  没有经过多光子吸收过程,  $\text{H}^+$  就直接隧穿到离解态。

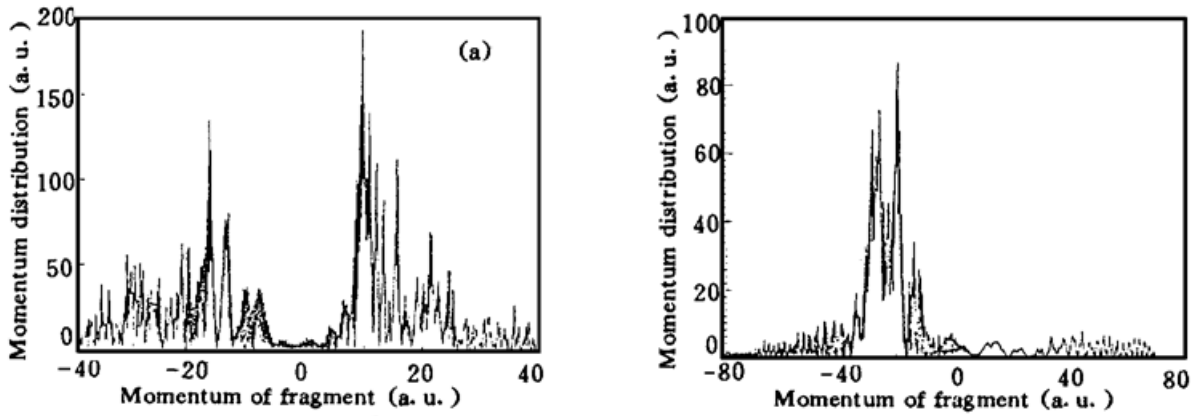


Fig. 1 The momentum distribution of the dissociative fragment  $H^+$ . (a), (b) are respectively for  $\lambda_1 = 248 \text{ nm}$ ,  $\lambda_2 = 814 \text{ nm}$ . The laser intensity is  $8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  and its duration includes 20 periods. The pulse shape consist of 5 periods turn-on, 5 periods turn-off and 10 periods with constant amplitude

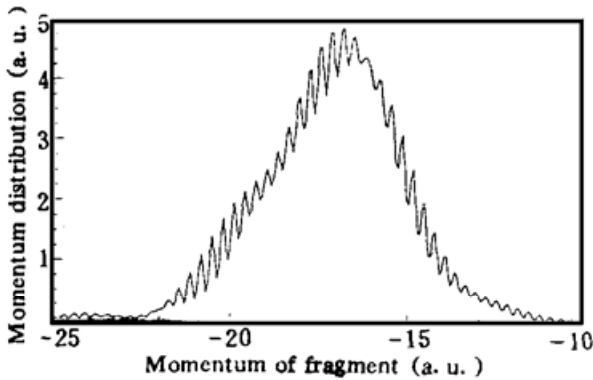


Fig. 2 The multiphoton dissociation characteristics of  $H_2^+$  in Gaussian laser pulse

$H_2^+$ , 并达到较高的离解几率, 类高斯型脉冲情况次之, 高斯型脉冲最弱。尤其是对应高斯型脉冲还出现了阶梯离解特征, 如图 4(a) 所示。而在低频场时, 隧道离解集中在脉冲的前几个周期, 脉冲形状对离解的影响并不大, 只是稍微推迟了离解。

图 3 表明了脉冲形状对离解碎片动量分布的影响。对三种脉冲形状无论高、低频, 最可几离解碎片的动量范围基本不变。但对应高频场时, 离解碎片的信号更强, 这可从图 3(a)、(b) 比较中看出。三种脉冲形状对  $H_2^+$  离解几率的影响如图 4(a)、(b) 所示, 它再次表明了, 在低频场时,  $H_2^+$  被迅速隧穿离解, 离解过程基本集中在脉冲的前几个周期。而高频场时,  $H_2^+$  的多光子离解需要一定时间, 因而离解是在脉冲的后半部分完成的。在高频场时 “Squa” 型脉冲总是快速离解

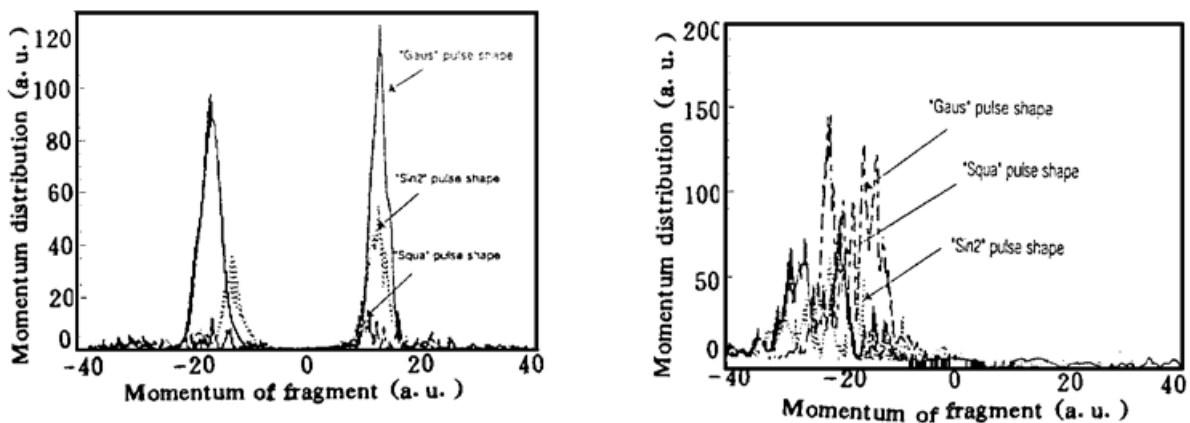


Fig. 3 The momentum distribution is compared in three kinds of laser pulse shape for (a).  $\lambda_1 = 248 \text{ nm}$ , and (b).  $\lambda_2 = 814 \text{ nm}$ . The else parameters of pulses are the same as those of Fig. 1

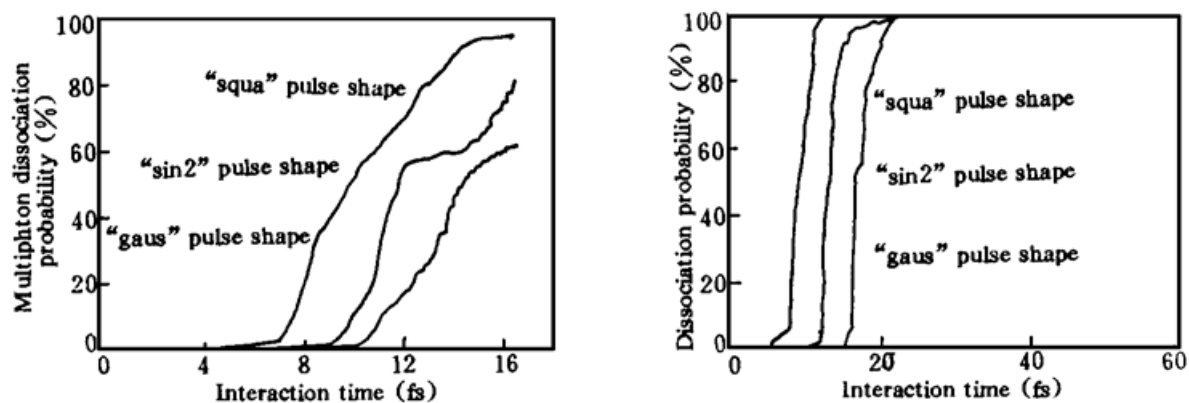


Fig. 4 The dissociation probability as a function of interaction time. The parameters of laser pulses here are the same as those of Fig. 1. (a) and (b) are respectively for  $\lambda_1 = 248 \text{ nm}$ ,  $\lambda_2 = 814 \text{ nm}$

**结束语** 本文利用多电子态模型研究了  $H_2^+$  在强激光场中的离解行为与激光频率的关系。结果表明, 在激光强度  $I = 8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  时, 对应高频场,  $H_2^+$  是被多光子离解的, 离解在整个脉冲持续内完成, 离解碎片  $H^+$  是对称分布的; 低频场时,  $H_2^+$  在脉冲的前几个周期内以隧道方式离解, 离解碎片  $H^+$  呈反对称分布。另外, 还讨论了三种脉冲形状对  $H_2^+$  离解行为的影响。

作者真诚感谢陈丽珊打印全文。

### 参 考 文 献

- [1] C. J. Joshi, P. B. Corkum, Interaction of ultra-intense laser light with matter. *Phys. Today*, 1995, **1**: 36~ 43
- [2] 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. (A)*, 1996, **53**(1): R31~ 34
- [3] J. Javanainen, J. H. Eberly, Qichang Su, Numerical stimulation of multiphoton ionization and above threshold electron spectrum. *Phys. Rev. (A)*, 1988, **38**(4): 3430~ 3435
- [4] Q. Su, J. H. Eberly, Suppression of ionization and atomic electron localization by short intense laser pulse. *Phys. Rev. Lett.*, 1990, **64**(4): 862~ 865
- [5] A. Giusti-suzor, F. H. Mies, L. F. Dimauro *et al.*, Dynamics of  $H_2^+$  in intense laser field. *J. Phys. (B)*, 1995, **28**(2): 309~ 316
- [6] H. Stapelteldt, E. Constant, P. B. Corkum, Wave packet structure and dynamics measured by Coulomb explosion. *Phys. Rev. Lett.*, 1995, **74**(12): 3780~ 3783
- [7] 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**(8): 1077~ 1080
- [8] 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. (A)*, 1993, **48**(2): 2145~ 2150
- [9] S-I Chu, J. Cooper, Threshold shift and wave-threshold multiphoton ionization of atomic hydrogen in intense laser fields. *Phys. Rev. (A)*, 1985, **32**(2): 2769~ 2772
- [10] J. L. Krause, K. J. Shafer, K. C. Kulander, Calculation of photoemission from atoms subject to intense laser field. *Phys. Rev. (A)*, 1992, **45**(4): 4998~ 5005
- [11] K. C. Kulander, Multiphoton ionization of hydrogen: A time-dependent theory. *Phys. Rev. (A)*, 1987, **35**(1): 445~ 451
- [12] 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**(2) : 446~ 454

- [13] H. Rottke, J. Ludwig, W. Sandner, H<sub>2</sub> and D<sub>2</sub> in intense sub-picosecond laser pulses: photoelectron spectroscopy at 1053 and 527 nm. *Phys. Rev. (A)*, 1996, **54**(2) : 2224~ 2235
- [14] A. Carrington, I. R. McNab, C. A. Montgomerie, Spectroscopy of the hydrogen molecular ion H<sub>2</sub><sup>+</sup>. *J. Phys. (B)*, 1989, **22**(12) : 2551~ 3614
- [15] Suxing Hu, ZhiZhan Xu, Wavepacket propagation algorithm with wavefunction splitting: Application to calculate harmonic emission of atom in intense laser pulse. *J. Chinese Lasers (B)*, 1997, **6** : 147~ 152

## H<sub>2</sub><sup>+</sup> Photodissociation Behavior in Intense Laser Field

Hu Suxing      Xu Zhizhan      Zhang Xuehui      Zhang Wenqi

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

(Received 26 June 1996; revised 10 October 1996)

**Abstract** In the multielectronic states model, the dissociative behavior of H<sub>2</sub><sup>+</sup> in intense laser field is calculated with the two-order split-propagator algorithm. It shows that for high-frequency laser pulse H<sub>2</sub><sup>+</sup> is multiphoton dissociated under the considered laser intensity and the momentum distribution of dissociative fragment is nearly symmetric. But for lower-frequency laser pulse the molecule-field interaction is dominated by tunneling dissociation and the momentum distribution of fragment H<sup>+</sup> is asymmetric. In addition, the effects of the laser pulse shape on the dissociation probability and the dissociation dynamics of H<sub>2</sub><sup>+</sup> are discussed.

**Key words** molecular dissociation, multielectronic states model, intense laser-field.