

超短强激光脉冲与 H_2^+ 相互作用研究: 经典与量子计算的比较

胡素兴 屈卫星 徐至展

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

摘 要 用经典动力学和量子力学方法分别研究了 H_2^+ 在超短强激光场中的电离、离解和残存行为, 得到了相似的结果: 即在超短强激光脉冲作用下, H_2^+ 的电离占优, 但有限的量子计算低估了 H_2^+ 的离解几率; 而经典处理则没有显示 H_2^+ 在超强场中的稳定化。另外, 经典计算表明当核间距 R 伸展到一定范围时, H_2^+ 的电离率最大。这符合量子计算中发现的电荷谐振增强电离(CREI)现象。

关键词 强激光, 量子计算, 电离。

1 引 言

强激光与物质的相互作用研究已成为现代物理学中的一个重要领域。众所周知, 当激光场强达到原子单位场强时, 强激光与物质的相互作用将导致许多非线性现象。最近, 分子在强激光场中的动力学行为引起了研究者的极大兴趣^[1]。许多非线性物理现象如阈上离解^[2], 键软化^[3], “库仑爆炸”^[4]以及电荷谐振增强电离(CREI)^[5]等均在强激光与分子的相互作用实验中观察到。理论处理主要借助缀饰态方法^[6]和数值求解含时薛定谔(Schrödinger)方程^[7-10]。然而, 由于分子系统复杂的自由度, 即便最简单的分子 H_2^+ 的三维数值求解几乎是不可能的。因而采用一些简化模型是必要的。最近, Kulander 等人提出了一个共线模型用于 H_2^+ 与线偏振强激光作用的研究^[11]。该共线模型假设: 1) 两核的运动被准直在激光场的极化轴方向; 2) 电子的运动也是一维的, 即在光场方向。分子准直的假设已被一些实验所证实^[12]。第二个假设已广泛应用于线偏振强激光场中原子行为的研究^[13]。这样, 该共线模型将 H_2^+ 简化为“双一维”系统: 即核间距坐标 R 和电子到两核质心的距离 z 。

由于量子计算的复杂性, 人们自然会想到用经典动力学方法来处理分子与强激光脉冲的相互作用^[14]。本文对两种处理的结果进行了比较。

2 经典动力学方法

在任意参考系中, 设 \mathbf{r}_e 和 $\mathbf{R}_i (i = 1, 2)$ 分别为电子和核的位置矢量。 m 和 $M_i (i = 1, 2)$ 分别是电子和核的质量。根据牛顿经典理论可得到在强激光场 $E(t)$ 中电子和核运动的动力学

方程。

$$\begin{cases} m \frac{d^2 \mathbf{r}_e}{dt^2} = \frac{\mathbf{R}_1 - \mathbf{r}_e}{|\mathbf{R}_1 - \mathbf{r}_e|^3} + \frac{\mathbf{R}_2 - \mathbf{r}_e}{|\mathbf{R}_2 - \mathbf{r}_e|^3} - e\mathbf{E}(t) \\ M_1 \frac{d^2 \mathbf{R}_1}{dt^2} = \frac{\mathbf{r}_e - \mathbf{R}_1}{|\mathbf{R}_1 - \mathbf{r}_e|^3} + \frac{\mathbf{R}_1 - \mathbf{R}_2}{|\mathbf{R}_1 - \mathbf{R}_2|^3} + e\mathbf{E}(t) \\ M_2 \frac{d^2 \mathbf{R}_2}{dt^2} = \frac{\mathbf{r}_e - \mathbf{R}_2}{|\mathbf{R}_2 - \mathbf{r}_e|^3} + \frac{\mathbf{R}_2 - \mathbf{R}_1}{|\mathbf{R}_1 - \mathbf{R}_2|^3} + e\mathbf{E}(t) \end{cases} \quad (1)$$

令 $\mathbf{R}_c = \frac{m\mathbf{r}_e + M_1\mathbf{R}_1 + M_2\mathbf{R}_2}{m + M_1 + M_2}$, $\mathbf{r}_c = \frac{M_1\mathbf{R}_1 + M_2\mathbf{R}_2}{M_1 + M_2}$, $\mathbf{R} = \mathbf{R}_2 - \mathbf{R}_1$ 分别为系统质心的位置矢量, 两核质心的位置矢量, 以及两核间距矢量, 并设 $\mathbf{z} = \mathbf{r}_e - \mathbf{r}_c$ 为电子与两核质心的间距矢量。选取新坐标系 $(\mathbf{R}_c, \mathbf{R}, \mathbf{z})$, 将上述方程(1)化为下列形式

$$\begin{cases} (m + M_1 + M_2) \frac{d^2 \mathbf{R}_c}{dt^2} = e\mathbf{E}(t) \\ \mu \frac{d^2 \mathbf{R}}{dt^2} = -\beta_2 \frac{\mathbf{z} + \beta_2 \mathbf{R}}{|\mathbf{z} + \beta_2 \mathbf{R}|^3} + \beta_1 \frac{\mathbf{z} - \beta_1 \mathbf{R}}{|\mathbf{z} - \beta_1 \mathbf{R}|^3} + \frac{\mathbf{R}}{|\mathbf{R}|^3} + \frac{M_1 e - M_2 e}{M_1 + M_2} \mathbf{R}(t) \\ \mu_e \frac{d^2 \mathbf{z}}{dt^2} = -\frac{\mathbf{z} + \beta_2 \mathbf{R}}{|\mathbf{z} + \beta_2 \mathbf{R}|^3} - \frac{\mathbf{z} - \beta_1 \mathbf{R}}{|\mathbf{z} - \beta_1 \mathbf{R}|^3} - \frac{(M_1 + M_2)e + 2me}{m + M_1 + M_2} \mathbf{E}(t) \end{cases} \quad (2)$$

式中 $\beta_i = M_i/(M_1 + M_2)$ ($i = 1, 2$), 折合质量 $\mu = M_1 M_2 / (M_1 + M_2)$, $\mu_e = m(M_1 + M_2) / (m + M_1 + M_2)$ 。该方程组中第一个方程描述的是系统的整体运动, 与氢分子离子内部的激发, 电离和离解过程无关, 因而可以略去。选取原子单位 ($m = \hbar = e = 1$), 且对氢分子离子 $M_1 = M_2 = M$ 则 $\mu = M/2$, $\mu_e = \frac{2M}{1 + 2M}$, $\beta_1 = \beta_2 = 0.5$ 。这样将(2)式简化为:

$$\begin{cases} \mu \frac{d^2 \mathbf{R}}{dt^2} = \frac{\mathbf{R}}{|\mathbf{R}|^3} + \frac{1}{2} \left[\frac{\mathbf{z} - 0.5\mathbf{R}}{|\mathbf{z} - 0.5\mathbf{R}|^3} - \frac{\mathbf{z} + 0.5\mathbf{R}}{|\mathbf{z} + 0.5\mathbf{R}|^3} \right] \\ \mu_e \frac{d^2 \mathbf{z}}{dt^2} = -\frac{\mathbf{z} - 0.5\mathbf{R}}{|\mathbf{z} - 0.5\mathbf{R}|^3} - \frac{\mathbf{z} + 0.5\mathbf{R}}{|\mathbf{z} + 0.5\mathbf{R}|^3} - \frac{2 + 2M}{1 + 2M} \mathbf{E}(t) \end{cases} \quad (3)$$

为了数值计算, 将(3)式一维标量化为:

$$\begin{cases} \mu \frac{d^2 R}{dt^2} = \frac{1}{\alpha_n + R^2} + \frac{1}{2} \left[\frac{z - 0.5R}{[(z - 0.5R)^2 + \alpha]^{\frac{3}{2}}} - \frac{z + 0.5R}{[(z + 0.5R)^2 + \alpha]^{\frac{3}{2}}} \right] \\ \mu_e \frac{d^2 z}{dt^2} = -\frac{z - 0.5R}{[(z - 0.5R)^2 + \alpha]^{\frac{3}{2}}} - \frac{z + 0.5R}{[(z + 0.5R)^2 + \alpha]^{\frac{3}{2}}} - \left(1 + \frac{\mu_e}{4\mu}\right) E(t) \end{cases} \quad (4)$$

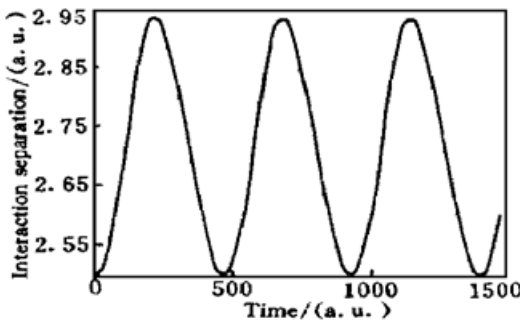


Fig. 1 The internuclear separation R of H_2^+ as a function of time in field-free

式中参数 $\alpha = 1$ 和 $\alpha_n = 0.02$ 为模型势软化参数, 它消除了当 $R = 0$ 或 $z = \pm 0.5R$ 时势的奇异性。

在无外场时, 选择电子转折点 $(z_0, 0, R_0, 0)$ 为初始点, 用变步长 Runge-Kutta 法积分(4)式得到初始态系综 $[z(t), P_z(t), R(t), P_R(t)]$, 在该系综中核间距 R 随时间的变化关系如图 1 所示。可见 R 是周期振荡的, 其平衡于 $R_0 = 2.7$ Bohr。这表明如此选择的初始态系综是一微正则系综。当激光场 $E(t)$ 开始与 H_2^+ 作用时, 选择该初始系综中的任一初态开始随时间演化, 在四维

相空间 (z, P_z, R, P_R) 中得到一条轨道。计算中使用的强激光场 $E(t)$ 表达为:

$$E(t) = \begin{cases} E_0 \sin^2(\pi t/2T_{on}) \cos \omega t & 0 \leq t < T_{on} \\ E_0 \cos \omega t & T_{on} \leq t \leq T_{on} + T_c \\ E_0 \cos^2[\pi(t - T_{on} - T_c)/2T_{off}] \cos \omega t & T_{on} + T_c < t \leq T_{on} + T_c + T_{off} \end{cases} \quad (5)$$

式中 E_0 和 ω 分别为激光场的峰值幅度和频率。上升沿 $T_{on} = 2.5$ 周期, 下降沿 $T_{off} = 2.5$ 周期以及平台 $T_c = 7.5$ 周期。在强激光场作用下, 计算多条轨道即可统计出 H_2^+ 的演化行为。为判断 H_2^+ 的演化通道, 定义电子的补偿能量为^[15]

$$E_c(t) = - \frac{1}{\sqrt{(z - 0.5R)^2 + \alpha_e}} - \frac{1}{\sqrt{(z + 0.5R)^2 + \alpha_e}} + \frac{1}{2} \left[\mu_e P_z(t) - \int_0^t E(t') dt' \right]^2 \quad (6)$$

补偿能量即是电子总能量减去其随场振荡的平均能。当 $E_c(t)$ 大于 0, 电子即被电离。按通常定义当核间距 $R(t) > 9$ Bohr 且 $E_c(t)$ 小于 0 时即认为 H_2^+ 沿离解通道演化。作者计算 1000 条轨道统计出 H_2^+ 在强激光场作用下沿电离、离解和残存通道演化的几率。

3 量子计算方法

对含时薛定谔方程进行数值求解是研究 H_2^+ 在强激光场中行为的另一种理论处理方法。按引言所述的共线模型, 将薛定谔方程写为(取原子单位)

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(z, R, t) = \left[- \frac{1}{2\mu} \frac{\partial^2}{\partial R^2} - \frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial z^2} + V(z, R) + z \cdot E(t) \right] \Psi(z, R, t) \quad (7)$$

其中 μ 为两核折合质量, H_2^+ 的共线模型势 $V(z, R)$ 表示为:

$$V(z, R) = \frac{1}{\sqrt{R^2 + \alpha_n}} - \frac{1}{\sqrt{(z - R/2)^2 + \alpha_e}} - \frac{1}{\sqrt{(z + R/2)^2 + \alpha_e}} \quad (8)$$

参数如前定义, 在无外场时解本征值方程得到系统的初态 $\Psi(z, R, t=0) = \Phi_0(z, R)$ 。当激光场注入后, 系统从初态开始演化。用劈裂算子算法^[8], 按下式递推求解(7)式:

$$\Psi(z, R, t_{n+1}) = \exp \left[\frac{i\Delta t}{4} \left[\frac{\partial^2}{\partial z^2} + \frac{1}{\mu} \frac{\partial^2}{\partial R^2} \right] \right] \exp \{ -i\Delta t [V(z, R) + zE(t)] \} \times \exp \left[\frac{i\Delta t}{4} \left[\frac{\partial^2}{\partial z^2} + \frac{1}{\mu} \frac{\partial^2}{\partial R^2} \right] \right] \Psi(z, R, t_n) \quad (9)$$

式中 Δt 是时间步长。计算在如图 2 所示的两维网格上进行。网格由六条粗实线划分为四个区域 A, B, C, D。其中细实线 $z = \pm R/2$ 是两核离解的路径。 $z = z_0 + R/2$ 和 $z = -z_0 - R/2$ 限定了束缚电子的活动区域。按通常定义 $Z_0 = 32$ Bohr^[9, 10]。A、B 两区域即电子电离区域; $R_d = 9$ Bohr, D 区域为离解区域; 而 C 区域则为残存区域。作者计算范围是 $|z| \leq 102.4$ Bohr, $0.1 \leq R \leq 25.6$ Bohr。计算过程已在文献[7, 8]中详细描述。激光脉冲选择与上节相同。这样, 在激光脉冲与 H_2^+ 作用的任一时刻, 均可计算 H_2^+ 沿电离、离解和残存通道演化的量子几率, 即

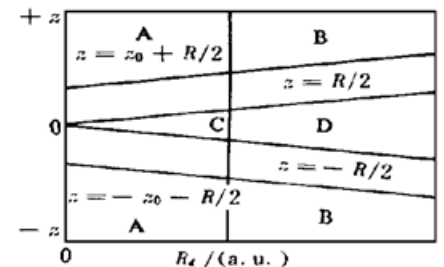


Fig. 2 Schematic diagram of the grid used in quantum calculations

1) 电离几率 ($H_2^+ + nh\nu \rightarrow H^+ + H^+$)

$$P_{ion}(t) = \int \int_{A+B} |\Psi(z, R, t)|^2 dz dR + FLUX_{AB} \quad (10)$$

2) 离解几率 ($H_2^+ + kh\nu \rightarrow H + H^+$)

$$P_{\text{dis}}(t) = \iint_b |\Psi(z, R, t)|^2 dz dR + FLUXD \quad (11)$$

3) 残存几率 ($H_2^+ + jh\nu \rightarrow H_2^+$)

$$P_{\text{suv}}(t) = \iint_c |\Psi(z, R, t)|^2 dz dR \quad (12)$$

括号中 $jh\nu$ 表示吸收的光子, 符号 $FLUX_{AB}$ 和 $FLUXD$ 分别代表波函数在 A, B 边界和 D 边界被吸收的几率, 其意味着这部分波包已经溢出了相互作用区, 相当于实验可探测到的电离和离解几率。

4 结果与讨论

两种计算的结果如图 3 所示。 P_1, P_2, P_3 分别表示 H_2^+ 在超短强激光脉冲作用下的电离、离解和残存几率。其中虚线是量子计算的结果, 实线是经典动力学处理的结果。图 3 (a)、图 3(b) 和图 3(c) 分别对应激光强度为 $4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 、 $7 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 和 10^{15} W/cm^2 , 但激光波长均为 $\lambda = 532 \text{ nm}$ 。从图 3 可见, 两种处理方法得到的电离行为和残存几率演化是相似的。但量子处理却低估了 H_2^+ 的离解几率。即量子处理的结果是: 离解几率随光强增强而减少。这是由于计算空间没有足够大的原故。即当光强增强时, 电子随场大幅振荡。当电子坐标 $|z| > z_0 + R/2$ 时, 在量子处理中这部分波函数将被边界吸收; 而经典处理则不在乎电子的位置 z , 只用其补偿能量 $E_c(t)$ 是否大于零来判断电子是否被电离, 因而

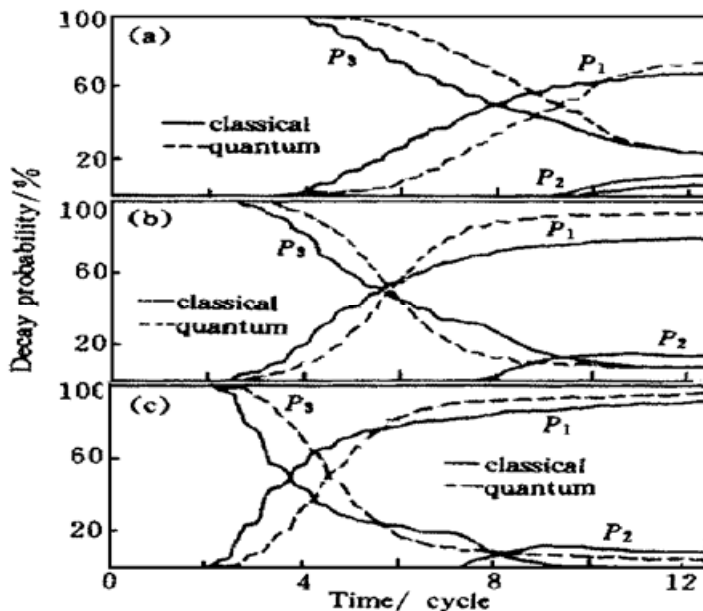


Fig. 3 Comparison of decay probability of H_2^+ along different tunnels versus the interaction time. P_1, P_2 and P_3 indicate the ionization, dissociation and survival probability respectively

强场中大幅振荡的电子仍能回到核附近, 从而使 H_2^+ 沿离解通道演化。本文的量子计算在 32 M 内存, 166 MHz 微机上进行, 耗时 20 h。但是, 只要有足够内存和速度的计算机, 作者相信量子处理会得到满意的结果。

另外, 从图 3(c) 可以看到在光强为 10^{15} W/cm^2 时, 量子处理的结果显示在作用结束仍有 6% 的 H_2^+ 残存几率。这是分子在超强场中稳定化的初步显示, 而经典处理则显示 H_2^+ 在更早时刻已全部电离或离解掉了。这也是两种处理的一个差别, 当光强更强时, 这种差别更明显。因为分子在超强场中的稳定化是一个量子行为。在图 4 中画出了经典处理的两核平均间距 $\langle R \rangle$ 随时间变化的关系。曲线 1、曲线 2 和曲线 3 分别对应 $4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 、 $7 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 和 10^{15} W/cm^2 的光强。可以看出随着场强增加, 两核分开的速度越大。将该图与图 3 对应, 发现当核间距 $\langle R \rangle$ 伸展到 3~

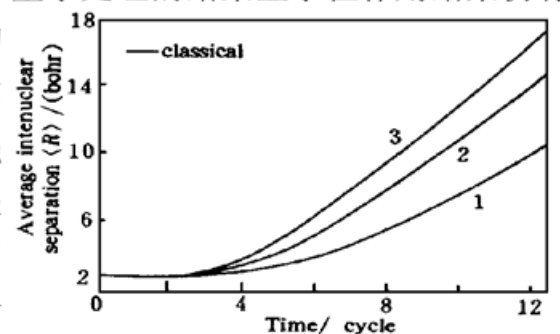


Fig. 4 The average internuclear separation $\langle R \rangle$ as a function of interaction time (from the classical dynamics calculations)

8 Bohr 时, H_2^+ 的电离率出现最大值(即电离几率陡峭上升)。这与电荷谐振增强电离效应的预测一致^[5]。

至此, 本文已描述了处理强激光场中 H_2^+ 行为的经典动力学方法和量子力学计算方法, 计算结果显示两种处理基本一致。但有限的计算空间使量子处理低估了 H_2^+ 的离解几率。而经典处理则没有看到在超强场下 H_2^+ 的稳定化。

真诚感谢 Kathy Chen 打印全文。

参 考 文 献

- [1] A. D. Bandrauk (ed), *Molecules in Laser Fields*, New York, Marcel Dekker, 1994: 156~ 217
- [2] P. H. Bucksbaum, A. Zavriyev, H. G. Muller *et al.*, Softening of the H_2^+ molecular bond in intense laser fields. *Phys. Rev. Lett.*, 1990, **64**(12): 1883~ 1886
- [3] A. Giusti-Suzor, X. He, O. Atabek *et al.*, Above-threshold dissociation of H_2^+ in intense laser fields. *Phys. Rev. Lett.*, 1990, **64**(5): 515~ 518
- [4] H. Stapelfeldt, E. Constant, P. B. Corkum, Wave packet structure and dynamics measured by Coulomb explosion. *Phys. Rev. Lett.*, 1995, **74**(19): 3780~ 3783
- [5] T. Zuo, A. D. Bandrauk, Charge-resonance-enhanced ionization of diatomic molecular ions by intense lasers. *Phys. Rev. (A)*, 1995, **52**(4): R2511~ R2514
- [6] E. E. Aubanel, A. Conjusteau, A. D. Bandrauk, Effect of rotations on stabilization in high-intensity photodissociation of H_2^+ . *Phys. Rev. (A)*, 1993, **48**(6): R4011~ R4014
- [7] Suxing Hu, Zhizhan Xu, Wavepacket evolution of H_2^+ in superstrong laser fields. *Chin. Sci. Bull.*, 1997, **42**(1): 33~ 36
- [8] R. W. Heather, F. H. Mies, Intense-field photodissociation of H_2^+ : comparison of time-dependent and time-independent calculations. *Phys. Rev. (A)*, 1991, **44**(11): 7560~ 7572
- [9] S. Chelkowski, A. Conjusteau, T. Zuo *et al.*, Dissociation ionization of H_2^+ in an intense laser field: charge resonance-enhanced ionization, Coulomb explosion, and harmonic generation at 600 nm. *Phys. Rev. (A)*, 1996, **54**(4): 3235~ 3244
- [10] S. Chelkowski, T. Zuo, O. Atabek *et al.*, Dissociation, ionization, and coulomb explosion of H_2^+ in an intense laser field by numerical integration of the time-dependent schrödinger equation. *Phys. Rev. (A)*, 1995, **52**(4): 2977~ 2983
- [11] K. C. Kulander, F. H. Mies, K. J. Schafer, Model for studies of laser-induced nonlinear process in molecules. *Phys. Rev. (A)*, 1996, **53**(4): 2562~ 2570
- [12] D. Normand, L. A. Lompre, C. Cornuggia, Laser-induced molecular alignment probed by a double-pulse experimenta. *J. Phys. (B)*, 1992, **25**(20): L497~ L503
- [13] J. H. Eberly, Q. Su, J. Javanainen, Nonlinear light scattering accompanying multiphoton ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 1989, **62**(8): 881~ 884
- [14] D. M. Villeneuve, M. Y. Ivanov, P. B. Corkum, Enhanced ionization of diatomic molecules in strong laser fields: A classical model. *Phys. Rev. (A)*, 1996, **54**(1): 736~ 741
- [15] J. G. Leopold, I. C. Perival, Ionisation of highly excited atoms by electric fields: III Microwave ionisation and excitation. *J. Phys. (B)*, 1979, **12**(5): 709~ 721

Investigation of Ultrashort Intense Laser Pulses Interactions with H_2^+ : Comparison of Classical and Quantum Calculations

Hu Suxing Qu Weixing Xu Zhizhan

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

(Received 6 November 1997)

Abstract We have investigated the ionization and dissociation behavior of H_2^+ in ultrashort intense laser pulses with classical dynamics and quantum mechanics methods respectively. The similar results are obtained, that is, the ionization dominates the decay mechanism of H_2^+ under the irradiation of ultrashort intense laser pulses. However, the limited quantum calculations underestimate the dissociation probability; The classical results do not demonstrate the stabilization effect of H_2^+ in superstrong laser pulses. In addition, the classical calculations indicate that the ionization rate attains a maximum when the internuclear separation R extends to a critical range. This agrees well with the charge-resonance enhanced ionization effect which is found by quantum calculations.

Key words intense laser, quantum calculation, ionization.