

HD⁺分子的强场光解离动力学及其量子调控的理论研究*

姚洪斌 蒋相站 曹长虹 李文亮†

(新疆工程学院, 新能源材料研究重点实验室, 乌鲁木齐 830091)

(2019年3月21日收到; 2019年6月3日收到修改稿)

利用精确求解原子核与电子耦合运动的三维含时量子波包法, 理论研究了HD⁺分子在强激光场中的光解离动力学, 并给出了量子调控HD⁺分子光解离通道的理论方案. 通过分析HD⁺分子在不同的初始振动态和激光场强度下的光解离动力学过程及其解离核动能谱, 得出了HD⁺分子的光解离机理及其随激光场强度的变化规律. 研究表明, 利用激光场的强度可以实现HD⁺分子光解离通道的量子调控. 当激光场强度 $I_1 = 4.0 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 时, HD⁺分子的光解离主要是通过净单光子吸收解离和净双光子吸收解离; 当激光场强度增大到 $I_2 = 2.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时, 直接双光子吸收解离取代了净单光子吸收解离, 净双光子吸收解离的比重也下降了.

关键词: 解离, 量子调控, 含时波包法, 核动能谱

PACS: 82.50.Nd, 33.20.Xx, 42.50.Hz

DOI: 10.7498/aps.68.20190400

1 引言

随着激光脉冲技术的飞速发展, 利用超快强激光脉冲场探索分子的超快动力学特性^[1-5], 并对其实施高效量子调控已是当前强场动力学领域的重点研究课题之一^[6-8]. 在众多的分子体系中, 氢及其同位素分子离子(H₂⁺, D₂⁺和HD⁺)通常是研究分子强场光解离动力学特性的范例, 这不仅是因为它具有便于理论研究的简单构型——两个原子核和一个电子, 更重要的是它在强激光场的作用下会呈现出许多重要的非线性光学现象. 譬如, 键软化解离^[9]、键硬化解离^[10]、阈上解离^[11]、阈下解离^[12]、电荷共振增强电离^[13]等. 这些非线性光学现象所蕴含的动力学机理在物理化学、量子光学、量子信

息、光化学等诸多领域都有着巨大的应用前景.

同核双原子分子H₂⁺和D₂⁺与强激光场的相互作用, 由于受到对称性的限制, 在两个电子态(1sσ和2pσ态)之间的跃迁过程中所吸收或放出的光子能量必须为奇数个光子能量^[14]. 异核双原子分子HD⁺由于存在固有跃迁偶极矩, 其光吸收过程将不再受到对称性的限制, 在两个电子态(1sσ和2pσ态)之间的跃迁过程中可以吸收或放出奇数和偶数个光子^[15]. 譬如, 处在1sσ态上的H₂⁺分子跃迁到2pσ态的过程中只能吸收一个光子, 而HD⁺分子在跃迁过程中不仅可以吸收一个光子和三个光子的能量, 还可以吸收两个光子的能量.

然而, 早期的相关研究对固有跃迁偶极矩是否对HD⁺分子的光解离动力学产生影响, 以及HD⁺

* 新疆维吾尔自治区高等学校科研计划项目(批准号: XJEDU2016I051, XJEDU2017M042, XJEDU2018I020)、国家自然科学基金(批准号: 11764041, 51462034)、新疆维吾尔自治区天山青年计划(批准号: 2017Q033, 2017Q034)和新疆维吾尔自治区自然科学基金(批准号: 2019D01A32)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: wenliangli@vip.126.com

分子在光解离过程中是否存在双光子吸收都存在着较大的争议^[16-19]. 譬如, Kiess 等^[16]首次利用波长 790 nm 的激光脉冲场研究了 HD⁺分子的光解离动力学, 并在 HD⁺分子的光解离碎片中探测到双光子吸收解离峰. McKenna 等^[17]利用三维动量高分辨成像技术研究了 HD⁺分子在波长 790 nm 的激光脉冲场作用下的光解离动力学, 其在激光场强度为 2.0×10^{14} W/cm² 时并没有观测到双光子吸收解离所对应的光解离碎片. 他们认为 Kiess 等^[16]所探测的直接双光子吸收解离峰有可能是 HD⁺分子在高振动态 ($\nu > 6$) 上的单光子吸收而引发的键软化解离. 随后, McKenna 等^[18]实验研究了 HD⁺分子在波长 395 nm 和 790 nm 的激光脉冲场中的光解离和电离动力学, 其认为 HD⁺分子在波长 790 nm、强度为 3.0×10^{13} W/cm² 的激光脉冲场中有可能发生净单光子吸收解离 (分子在 $1s\sigma$ 态上先吸收两个光子跃迁到 $2p\sigma$ 态上, 随后再释放一个光子并发生解离).

本文拟选取 HD⁺分子为研究对象, 利用精确求解原子核与电子耦合的三维含时量子波包法理论研究 HD⁺分子在强激光场中的光解离动力学. 通过深入分析分子在不同的初始振动态和激光场强度下的解离核动能谱, 得出 HD⁺分子的光解离机理及其随激光场强度的变化规律. 在此基础上, 进一步提出利用激光场强度量子调控 HD⁺分子光解离通道的理论方案.

2 理论方法

HD⁺分子在强激光场作用下的含时薛定谔方程可以写成 (原子单位制)

$$i\frac{\partial}{\partial t}\psi(\mathbf{R}, \mathbf{r}, t) = [H_0 + W(t)]\psi(\mathbf{R}, \mathbf{r}, t), \quad (1)$$

其中 H_0 是分子在无外场时的哈密顿量, $W(t)$ 是分子与强激光场的相互作用项, \mathbf{R} 是核间距矢量, \mathbf{r} 是电子相对于原子核质心的位置矢量. 当激光场的偏振方向平行于分子轴时, HD⁺分子的原子核在偏振方向上做一维运动, 电子的运动在柱坐标系下可以简化为二维运动. 在柱坐标系下, HD⁺分子在强激光场中的运动可以用三维的空间坐标描述: (R, ρ, z) ^[20,21]. 其中, R 是分子的核间距, (ρ, z) 是电子的坐标位置.

HD⁺分子在无外场时的三维哈密顿量可以

写成:

$$H_0 = H_n + H_e, \quad (2)$$

$$H_n = T_n + V_{nn} = -\frac{1}{2\mu_n} \frac{\partial^2}{\partial R^2} + \frac{1}{R}, \quad (3)$$

$$\begin{aligned} H_e &= T_e + V_{en} \\ &= -\frac{1}{2\mu_e} \left(\frac{\partial^2}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) \\ &\quad - \frac{1}{\sqrt{\rho^2 + (z - z_p)^2}} - \frac{1}{\sqrt{\rho^2 + (z + z_d)^2}}, \end{aligned} \quad (4)$$

其中 $\mu_n = \frac{m_p m_d}{m_p + m_d}$ 和 $\mu_e = \frac{m_p + m_d}{m_p + m_d + 1}$ 是原子核和电子的折合质量, $z_p = \frac{m_d}{m_p + m_d} R$ 和 $z_d = \frac{m_p}{m_p + m_d} R$ 是质子和氘核的相对位置. m_p 和 m_d 分别是质子和氘核的质量.

HD⁺分子与强激光场的相互作用项 $W(t)$ 可以写成 (长度规范下)

$$W(t) = -E(t) \left(\frac{m_p + m_d + 2}{m_p + m_d + 1} z - \frac{m_d - m_p}{m_p + m_d} R \right), \quad (5)$$

其中 $E(t) = E_0 f(t) \cos(\omega t)$. E_0 是激光场的峰值场强, ω 是激光场的角频率, $f(t)$ 是激光场的脉冲包络, 本文采用高斯型的脉冲形式:

$$f(t) = \exp \left[-\left(\frac{t}{\tau} \right)^2 \right], \quad (6)$$

其中 τ 是激光场的脉冲宽度.

为了求解上述含时薛定谔方程, 我们在 ρ 方向上使用 Crank-Nicholson (CN) 方法, 在 R 和 z 方向上使用以 sine-DVR 为基的二阶分裂算符方法^[22,23]. 为了提高计算效率, 我们根据原子核与电子运动的时间尺度差, 优化了时间传播算符, 其表示形式为

$$e^{-iH\Delta t} \approx e^{-iT_R\Delta t/2} \{U_e^{\text{SPO}}(\Delta t/N)\}^N e^{-iT_R\Delta t/2}, \quad (7)$$

其中,

$$U_e^{\text{SPO}}(\Delta t) = e^{-iT_z\Delta t/2} e^{-iV\Delta t} e^{-iT_z\Delta t/2} \quad (8)$$

是电子的时间传播算符, T_R 和 T_z 是 R 和 z 方向上的动能传播算符, V 是系统的势能, N 是原子核与电子的时间步长的比值.

本文利用虚时传播的方法获取 HD⁺分子的初始波函数, 并结合流算符和虚拟探测的方法^[24]计算 HD⁺分子的解离核动能谱. 在数值计算中, R 的取值范围 0—25 a.u., z 的取值范围 -40—40 a.u., ρ 的取值范围 0—15 a.u.. R , z 和 ρ 的空间格点数

目分别取 250, 400 和 30, 时间步长分别取 1.00, 0.05 和 0.05 a.u..

3 结果与讨论

由于固有跃迁偶极矩的存在, HD⁺分子的光吸收过程不再受对称性的限制, 其在 1sσ 和 2pσ 电子态之间的跃迁过程中可以吸收或放出奇数和偶数个光子. 图 1 给出了 HD⁺分子在 1sσ 和 2pσ 光子缀饰态势能曲线上的解离示意图.

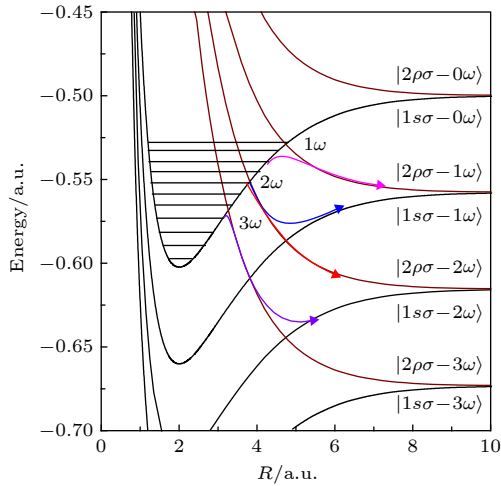


图 1 HD⁺分子在 1sσ 和 2pσ 光子缀饰态势能曲线上的解离示意图 [15,25]
 Fig. 1. The schematic diagram for the dissociation of HD⁺ molecule at the dressed potentials of electronic 1sσ and 2pσ states.

在图 1 中, $|1s\sigma - 0\omega\rangle$, $|1s\sigma - 1\omega\rangle$, $|1s\sigma - 2\omega\rangle$, $|1s\sigma - 3\omega\rangle$ 态是 1sσ 电子态在零光子、单光子、双光子、三光子缀饰下的光子缀饰态; $|2p\sigma - 0\omega\rangle$, $|2p\sigma - 1\omega\rangle$, $|2p\sigma - 2\omega\rangle$, $|2p\sigma - 3\omega\rangle$ 态是 2pσ 电子态在零光子、单光子、双光子、三光子缀饰下的光子缀饰态. $|1s\sigma - 0\omega\rangle$ 态与 $|2p\sigma - 1\omega\rangle$, $|2p\sigma - 2\omega\rangle$, $|2p\sigma - 3\omega\rangle$ 态在 HD⁺ 分子的初始振动态 $\nu = 9$, $\nu = 6$, $\nu = 3$ 附近发生了交叉. 在强激光场的作用下, HD⁺ 分子易在交叉区域附近吸收一个光子、两个光子、三个光子的能量. 若 HD⁺ 分子吸收一个光子能量后直接解离, 此过程称之为直接单光子吸收解离; 若 HD⁺ 分子吸收两个光子能量后直接解离, 此过程称之为直接双光子吸收解离; 若 HD⁺ 分子先吸收两个光子能量, 再释放一个光子后发生解离, 此过程称之为净单光子吸收解离; 若 HD⁺ 分子先吸收三个光子能量, 再释放一个光子后发生解离, 此

过程称之为净双光子吸收解离.

如图 1 所示, HD⁺ 分子的光解离过程主要由以下四个解离通道组成: 初始振动态 $\nu = 9$ 附近的分子在核间距 $R = 4.7$ a.u. 附近吸收一个光子跃迁到 $|2p\sigma - 1\omega\rangle$ 态, 在 $|2p\sigma - 1\omega\rangle$ 态上的分子运动到较大的核间距后通过直接单光子吸收解离, 解离后的能量约为 0.1 eV; 初始振动态 $\nu = 3$ 附近的分子在核间距 $R = 3.2$ a.u. 附近吸收三个光子跃迁到 $|2p\sigma - 3\omega\rangle$ 态, 当 $|2p\sigma - 3\omega\rangle$ 态上的分子运动到较大的核间距 $R = 4.7$ a.u. 附近后又释放出一个光子, 进而回到 $|1s\sigma - 2\omega\rangle$ 态并通过净双光子吸收解离, 解离后的能量约为 1.1 eV; 初始振动态 $\nu = 6$ 附近的分子在核间距 $R = 3.8$ a.u. 附近吸收两个光子跃迁到 $|2p\sigma - 2\omega\rangle$ 态上, 运动到较大的核间距区域后通过直接双光子吸收解离, 解离后的能量约为 1.6 eV; 此外, 处于 $|2p\sigma - 2\omega\rangle$ 态上的分子还有可能运动到核间距 $R = 4.7$ a.u. 附近后又释放出一个光子, 进而回到 $|1s\sigma - 1\omega\rangle$ 态并通过净单光子吸收解离, 解离后的能量约为 0.3 eV. 简而言之, 在初始振动态 $\nu = 3$ 附近的 HD⁺ 分子主要是通过净双光子吸收解离, 在初始振动态 $\nu = 9$ 附近的 HD⁺ 分子主要是通过直接单光子吸收解离, 而在初始振动态 $\nu = 6$ 附近的 HD⁺ 分子有两种解离通道, 其不仅可以通过直接双光子吸收解离, 还可以通过净单光子吸收解离.

对于 HD⁺ 分子, 在光解离过程中是否存在直接双光子吸收解离和净单光子吸收解离, 以及两种解离通道的竞争关系一直是早期实验研究 [16-18] 争论的焦点, 本文重点讨论 HD⁺ 分子的直接双光子吸收解离和净单光子吸收解离, 以及其解离概率随激光场强度的变化规律. 对于初始振动态 $\nu = 9$ 附近的 HD⁺ 分子, 其光解离主要是通过直接单光子吸收解离, 对应的解离机理是键软化解离. 根据我们早期的理论研究 [26], 可以得出直接单光子吸收解离过程受激光场强度的影响很小, 本文不做详细讨论. 对于初始振动态 $\nu = 3$ 和 $\nu = 6$ 附近的 HD⁺ 分子, 其光解离动力学过程与激光场强度密切相关. 接下来进一步深入探讨 HD⁺ 分子在初始振动态 $\nu = 3$ 和 $\nu = 6$ 上的光解离动力学及其随激光场强度的变化规律.

为了进一步研究 HD⁺ 分子在初始振动态 $\nu = 3$ 和 $\nu = 6$ 上的光解离过程及其动力学机理, 我们计算了 HD⁺ 分子的光解离核动能谱. 图 2 给出了

激光场强度 $I_1 = 4.0 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 时, HD⁺分子在初始振动态 $\nu = 3$ 和 $\nu = 6$ 上的光解离核动能谱 (KER). 根据图 2(a) 所示, HD⁺分子在初始振动态 $\nu = 3$ 上的光解离核动能谱有两个峰: 主峰的能量约为 1.1 eV, 对应的解离通道为净双光子吸收解离^[27]; 次峰的能量约为 1.6 eV, 对应的解离通道为直接双光子吸收解离. 净双光子吸收解离和直接双光子吸收解离过程的解离机理为阈上解离, 其解离概率随着激光场强度的增强而增大^[26]. 根据图 2(b) 所示, HD⁺分子在初始振动态 $\nu = 6$ 上的光解离核动能谱只有一个明显的解离峰, 其能量约为 0.3 eV, 对应的解离通道为净单光子吸收解离.

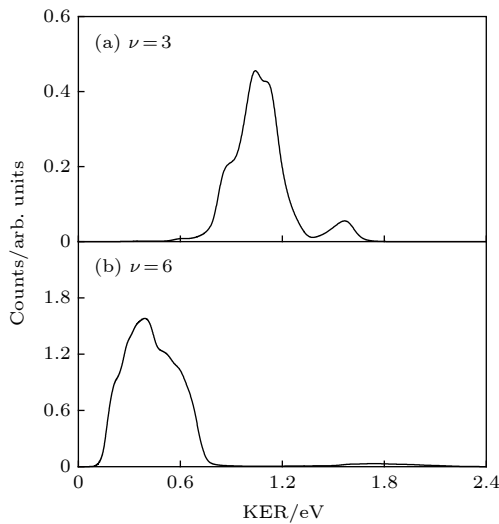


图 2 激光场强度 $I_1 = 4.0 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 时, HD⁺分子在初始振动态 $\nu = 3$ (a) 和 $\nu = 6$ (b) 上的光解离核动能谱 (激光场的波长 $\lambda = 790 \text{ nm}$, 脉冲宽度 $\tau = 40 \text{ fs}$)
 Fig. 2. At the laser intensity of $I_1 = 4.0 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, the kinetic energy resolved distributions of dissociation for the vibrational states $\nu = 3$ (a) and $\nu = 6$ (b) of HD⁺ molecule. The laser wavelength is 790 nm and the pulse duration is 40 fs, respectively.

图 3 给出了激光场强度增大到 $I_2 = 2.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时, HD⁺分子在初始振动态 $\nu = 3$ 和 $\nu = 6$ 上的光解离核动能谱. 根据图 3(a) 所示, HD⁺分子在初始振动态 $\nu = 3$ 上的光解离核动能谱与激光场强度 $I_1 = 4.0 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 时相比, 能量为 1.1 eV 的主峰和 1.6 eV 的次峰的高度虽然都升高了, 但是主峰和次峰的相对高度却发生了显著的变化. 因此, 我们可以得出 HD⁺分子在光解离过程中, 两种解离通道的比重发生了明显的改变, 主要表现在: HD⁺分子的净双光子吸收解离减弱了, 而直接双光子吸收解离明显增强了. 这主要是

因为随着激光场强度的增加, HD⁺分子的净双光子吸收解离和直接双光子吸收解离的概率虽然都增大了, 但是当激光场强度 $I_2 = 2.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时, 处于净双光子吸收解离通道内的分子易发生电荷共振增强电离^[26], 从而减弱了净双光子吸收解离的比重, 使得分子更有利于通过直接双光子吸收解离. 根据图 3(b) 所示, HD⁺分子在初始振动态 $\nu = 6$ 上的光解离核动能谱与激光场强度 $I_1 = 4.0 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 时的相比, 其解离峰的位置发生了显著的变化. 主要表现在: 净单光子吸收解离峰 (能量约为 0.3 eV) 几乎消失了, 光解离通道转变为直接双光子吸收解离, 对应的解离能约为 1.6 eV. 这主要是因为直接双光子吸收解离引发的阈上解离概率随激光场强度的增强而增大.

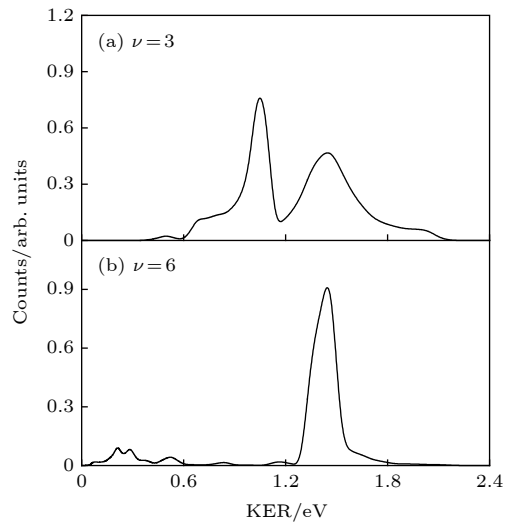


图 3 激光场强度 $I_2 = 2.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时, HD⁺分子在初始振动态 $\nu = 3$ (a) 和 $\nu = 6$ (b) 上的光解离核动能谱 (激光场的波长 $\lambda = 790 \text{ nm}$, 脉冲宽度 $\tau = 40 \text{ fs}$)
 Fig. 3. At the laser intensity of $I_2 = 2.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, the kinetic energy resolved distributions of dissociation for the vibrational states $\nu = 3$ (a) and $\nu = 6$ (b) of HD⁺ molecule. The laser wavelength is 790 nm and the pulse duration is 40 fs, respectively.

综上所述, HD⁺分子的光解离通道与激光场强度息息相关. 当激光场强度 $I_1 = 4.0 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 时, HD⁺分子在初始振动态 $\nu = 6$ 上的光解离主要是通过净单光子吸收解离, 如图 4 所示 (蓝线); 当激光场强度增加到 $I_2 = 2.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时, 其光解离主要是通过直接双光子吸收解离, 如图 4 所示 (红线). 因此, 我们可以得出: 调节激光场强度可以量子调控 HD⁺分子的光解离通道. 当选用较弱的激光场强度时, 净单光子吸收解离是 HD⁺分

子的主要光解离通道; 当选取较强的激光场强度时, 净单光子吸收解离消失了, 直接双光子吸收解离成为 HD⁺ 分子的主要光解离通道. 此外, 改变激光场强度还可以调控 HD⁺ 分子的净双光子吸收解离和直接双光子吸收解离通道的分支比. 当选取较弱的激光场强度时, HD⁺ 分子的净双光子吸收解离起主导作用; 当选取较强的激光场强度时, HD⁺ 分子的直接双光子吸收解离将起主导作用.

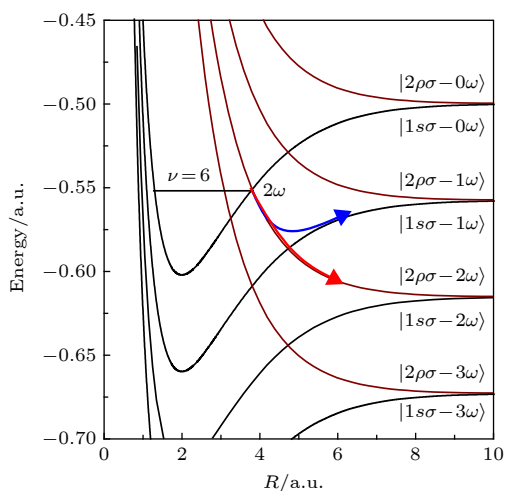


图 4 当激光场强度 $I_1 = 4.0 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ (蓝线) 和 $I_2 = 2.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (红线) 时, HD⁺ 分子在初始振动态 $\nu = 6$ 上光解离通道 (激光场的波长 $\lambda = 790 \text{ nm}$, 脉冲宽度 $\tau = 40 \text{ fs}$)

Fig. 4. The related pathways of dissociation for the vibrational state $\nu = 6$ of HD⁺ molecule at the laser intensities of $4.0 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ (blue line) and $2.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (red line). The laser wavelength is 790 nm, the pulse duration is 40 fs.

4 结论与展望

本文利用精确求解原子核与电子耦合运动的三维含时量子波包法, 系统地研究了 HD⁺ 分子在强激光场中的解离动力学及其量子调控的理论方案. HD⁺ 分子的光解离动力学过程与分子的初始振动态分布和激光场强度息息相关. 当激光场强度 $I_1 = 4.0 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 时, HD⁺ 分子在初始振动态 $\nu = 3$ 上的光解离主要是通过净双光子吸收解离, 在初始振动态 $\nu = 6$ 上的光解离主要是通过净单光子吸收解离. 当激光场强度增加到 $I_2 = 2.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时, HD⁺ 分子在初始振动态 $\nu = 3$ 上的光解离除了通过净双光子吸收解离外, 还可以通过直接双光子吸收解离. 初始振动态 $\nu = 6$ 上的光

解离却从净单光子吸收解离转变为直接双光子吸收解离.

调节激光场强度不仅可以控制分子的净单光子吸收解离和直接双光子吸收解离, 还可以调节分子的净双光子吸收解离和直接双光子吸收解离的分支比. 这种量子调控方案在操控复杂分子的反应动力学方面有着巨大的应用前景, 譬如: 利用强激光场调控化学反应体系的光子缀饰态势能面, 使其沿着某个给定的反应通道进行化学反应, 进而实现了对产物通道的高效操控. 在后续的研究中, 我们将叠加两束超快强激光脉冲场 (基准脉冲场及其二次谐波), 通过改变两束激光脉冲场的延迟时间和相对强度等参数量子调控分子的光解离动力学.

参考文献

- [1] Qin C C, Huang Y, Peng Y F 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 193301 (in Chinese) [秦朝朝, 黄燕, 彭玉峰 2017 *物理学报* **66** 193301]
- [2] Kling M F, Siedschlag C, Verhoef A J, Khan J I, Schultze M, Uphues T, Ni Y, Uiberacker M, Drescher M, Krausz F, Vrakking M J J 2006 *Science* **312** 246
- [3] Sun Z P, Yao H B, Wang C Y, Zhao, W K, Yang C L 2019 *Laser Phys. Lett.* **16** 016001
- [4] Chang Z C, Li C M, Guo W, Yao H B 2018 *Chin. Phys. B* **27** 053301
- [5] Yao H B, Guo W, Hoffmann M R, Han K L 2014 *Phys. Rev. A* **90** 063418
- [6] Liu C D, Jia Z M, Zheng Y H, Ge X C, Zeng Z N, Li R X 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 223206 (in Chinese) [刘灿东, 贾正茂, 郑颖辉, 葛晓春, 曾志男, 李儒新 2016 *物理学报* **65** 223206]
- [7] Yao H B, Li W L, Zhang J, Peng M 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 178201 (in Chinese) [姚洪斌, 李文亮, 张季, 彭敏 2014 *物理学报* **63** 178201]
- [8] Yao H B, Zhen Y J 2011 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **13** 8900
- [9] Bucksbaum P H, Zavriyev A, Muller H G, Schumacher D W 1990 *Phys. Rev. Lett.* **64** 1883
- [10] Frasinski L J, Posthumus J H, Plumridge J, Codling K, Taday P F, Langley A J 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 3625
- [11] Jolicard G, Atabek O 1992 *Phys. Rev. A* **46** 5845
- [12] Frasinski L J, Plumridge J, Posthumus J H, Codling K, Taday P F, Divall E J, Langley A J 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 2541
- [13] Seideman T, Ivanov M Y, Corkum P B 1995 *Phys. Rev. Lett.* **75** 2819
- [14] Posthumus J H 2004 *Rep. Prog. Phys.* **67** 623
- [15] Orr P A, Williams I D, Greenwood J B, Turcu I C E, Bryan W A, Pedregosa-Gutierrez J, Walter C W 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 163001
- [16] Kiess A, Pavičić D, Hänsch T W, Figger H 2008 *Phys. Rev. A* **77** 053401
- [17] McKenna J, Sayler A M, Gaire B, Johnson N G, Zohrabi M, Carnes K D, Esry B D, Ben-Itzhak I 2009 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **42** 121003
- [18] McKenna J, Sayler A M, Gaire B, Johnson N G, Parke E, Carnes K D, Esry B D, Ben-Itzhak I 2009 *Phys. Rev. A* **80** 023421

- [19] Liu Z T, Yuan K J, Shu C C, Hu W H, Cong S L 2010 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **43** 055601
- [20] He H X, Lu R F, Zhang P Y, Guo Y H, Han K L, He G Z 2011 *Phys. Rev. A* **84** 033418
- [21] He H X, Lu R F, Zhang P Y, Han K L, He G Z 2012 *J. Chem. Phys.* **136** 024311
- [22] Lu R F, Zhang P Y, Han K L 2008 *Phys. Rev. E* **77** 066701
- [23] Hu J, Han K L, He G Z 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 123001
- [24] Feuerstein B, Thumm U 2003 *Phys. Rev. A* **67** 043405
- [25] Yao H B, Zhang J, Peng M, Li W L 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 198202 (in Chinese) [姚洪斌, 张季, 彭敏, 李文亮 2014 物理学报 **63** 198202]
- [26] Yao H B, Zhao G J 2014 *J. Phys. Chem. A* **118** 9173
- [27] McKenna J, Sayler A M, Anis F, Gaire B, Johnson N G, Parke E, Hua J J, Mashiko H, Nakamura C M, Moon E, Chang Z, Carnes K D, Esry B D, Ben-Itzhak I 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 133001

Theoretical study of dissociation dynamics of HD⁺ and its quantum control with an intense laser field*

Yao Hong-Bin Jiang Xiang-Zhan Cao Chang-Hong Li Wen-Liang[†]*(Laboratory of New Energy and Materials, Xinjiang Institute of Engineering, Urumqi 830091, China)*

(Received 21 March 2019; revised manuscript received 3 June 2019)

Abstract

The dissociation dynamics of HD⁺ molecule in an intense field is investigated by using an accurate three-dimensional time-dependent wave packet approach. When the 790-nm laser pulse interacts with HD⁺ molecule, the lowest electronic 1σ and 2pσ states are coupled. Due to the existence of the permanent electric dipole moment, the transitions in HD⁺ molecule involve the direct absorption of an odd and even number of photons, thereby opening different pathways for dissociation. The model of the photon-dressed states is presented to analyze the possible dissociation pathways of HD⁺ molecule. The laser-induced dissociation of HD⁺ molecule is mainly composed of the four pathways: the direct one-photon absorption, the net two-photon absorption, the direct two-photon absorption, and the direct two-photon absorption. To reveal the dissociation mechanism of HD⁺ molecule, the kinetic energy resolved spectra are calculated at the given laser intensities. It is found that the dissociation pathways are strongly dependent on laser intensity, especially for the net one-photon absorption dissociation and direct two-photon absorption dissociation. With further research, the dissociation pathways of HD⁺ are controlled by regulating the intensity of laser pulse. At a laser intensity of 4.0×10^{13} W/cm², the kinetic energy resolved spectrum for the vibrational state $\nu = 3$ includes the contributions from the net two-photon absorption dissociation and the direct two-photon absorption dissociation. For the vibrational state $\nu = 6$, HD⁺ molecule is preferentially dissociated via the net one-photon absorption. However, the dissociation mechanism of HD⁺ molecule at the vibrational states $\nu = 3$ and $\nu = 6$ have significant changes as the laser intensity increases to 2.0×10^{14} W/cm². For the vibrational state $\nu = 3$, the branching ratio between the dissociation pathway of the net two-photon absorption and that of the direct two-photon absorption has a dramatic change with the increase of laser intensity. Compared with the kinetic energy resolved spectra at laser energy of 4.0×10^{13} W/cm², the height of the dissociation peak from the net two-photon absorption decreases, and that of the direct two-photon absorption increases at laser intensity of 2.0×10^{14} W/cm². For the vibrational state $\nu = 6$, the dissociation process of the net one-photon absorption almost disappears at laser intensity of 2.0×10^{14} W/cm², and it is replaced by the dissociation pathway of the direct two-photon absorption.

Keywords: dissociation, quantum control, time-dependent wave packet method, kinetic energy resolved spectra

PACS: 82.50.Nd, 33.20.Xx, 42.50.Hz

DOI: 10.7498/aps.68.20190400

* Project supported by the Scientific Research Program of the Higher Education Institution of Xinjiang, China (Grant Nos. XJEDU2016I051, XJEDU2017M042, XJEDU2018I020), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11764041, 51462034), the Tianshan Youth Program of Xinjiang, China (Grant Nos. 2017Q033, 2017Q034), and the Natural Science Foundation of Xinjiang, China (Grant No. 2019D01A32).

[†] Corresponding author. E-mail: wenliangli@vip.126.com