

一维 H_2^+ 与超短强激光脉冲相互作用的经典理论

屈卫星 胡素兴 徐至展

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

(1997 年 6 月 9 日收到; 1997 年 8 月 11 日收到修改稿)

采用全经典理论研究了一维氢分子离子 H_2^+ 与超短强激光脉冲相互作用的动力学过程。利用经典统计方法, 对激发、离解、电离和离解电离概率的时间演化进行了数值计算, 并对计算结果进行了分析。

PACC: 3380; 4250

1 引 言

由于超短强激光脉冲(光强 I 大于 10^{14} W/cm^2 , 脉冲长度 T_D 小于 50 fs)的出现, 使人们有可能从实验上观测到原子或分子在强激光场下的瞬态响应^[1], 因此对原子和分子与超短强激光脉冲相互作用的动力学过程的理论研究便成为当今极为活跃的研究领域之一^[2-5]。研究原子在强激光场下的动力学过程通常所采用的方法是数值求解在库仑场与激光场共同作用下电子的含时薛定谔方程^[2,5]。但是对于多原子的分子系统, 即使采用目前计算能力最强的计算机, 对含时薛定谔方程进行数值求解也是不可能的^[3]。因此人们又重新采用经典理论来描述强场中原子和分子的动力学过程, 如高频强场中原子的稳定化^[6,7], 增强性电离^[3], 分子的库仑爆炸^[4]以及原子的高次谐波的产生^[8-10]等, 并得到了令人满意的结果。

本文采用经典理论研究了最简单的分子离子系统——一维氢分子离子 H_2^+ 与超短强激光脉冲的相互作用, 着重分析了激发、离解、电离和离解电离这四种基本动力学过程, 并利用相空间统计平均法, 计算了上述四种过程的概率在脉冲作用过程中的时间演化过程, 其结果与在相同的一维近似模型下数值求解薛定谔方程所得到的结果基本上是一致的。

2 理论描述

设 $\mathbf{r}_e$ 和 $\mathbf{r}_i$ ($i=1, 2$) 分别为 H_2^+ 的电子以及两个核的坐标矢量, 在线性极化的激光场 $\mathbf{E}(t) \equiv E_0 f(t) \cos(\Omega t) \hat{\mathbf{e}}_z$ 作用下, H_2^+ 的动力学方程组为(采用原子单位)

$$\frac{d\mathbf{r}_e}{dt} = \mathbf{p}_e, \quad (1a)$$

$$\frac{d\mathbf{p}_e}{dt} = \frac{\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_e}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_e|^3} + \frac{\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_e}{|\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_e|^3} - \mathbf{E}(t), \quad (1b)$$

$$\frac{d\mathbf{r}_1}{dt} = \mathbf{p}_1/M, \quad (1c)$$

$$\frac{d\mathbf{p}_1}{dt} = \frac{\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_1}{|\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_1|^3} + \frac{\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|^3} + \mathbf{E}(t), \quad (1d)$$

$$\frac{d\mathbf{r}_2}{dt} = \mathbf{p}_2/M, \quad (1e)$$

$$\frac{d\mathbf{p}_2}{dt} = \frac{\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_2}{|\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_2|^3} + \frac{\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1}{|\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1|^3} + \mathbf{E}(t). \quad (1f)$$

选用 H_2^+ 质心坐标系, 并令 $\mathbf{R} = \mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1$, $\mathbf{P} = (\mathbf{p}_2 - \mathbf{p}_1)/2$, 可将上述方程组(1a)—(1f)约化为下列方程组:

$$\frac{d\mathbf{r}_e}{dt} = \mathbf{p}_e, \quad (2a)$$

$$\frac{d\mathbf{p}_e}{dt} = -\frac{(1+0.5\beta)\mathbf{r}_e - 0.5\mathbf{R}}{|(1+0.5\beta)\mathbf{r}_e - 0.5\mathbf{R}|^3} - \frac{(1+0.5\beta)\mathbf{r}_e + 0.5\mathbf{R}}{|(1+0.5\beta)\mathbf{r}_e + 0.5\mathbf{R}|^3} - \mathbf{E}(t), \quad (2b)$$

$$\frac{d\mathbf{R}}{dt} = \frac{\mathbf{P}}{M/2}, \quad (2c)$$

$$\frac{d\mathbf{P}}{dt} = \frac{\mathbf{R}}{|\mathbf{R}|^3} + \frac{1}{2} \left\{ \frac{(1+0.5\beta)\mathbf{r}_e - 0.5\mathbf{R}}{|(1+0.5\beta)\mathbf{r}_e - 0.5\mathbf{R}|^3} - \frac{(1+0.5\beta)\mathbf{r}_e + 0.5\mathbf{R}}{|(1+0.5\beta)\mathbf{r}_e + 0.5\mathbf{R}|^3} \right\}, \quad (2d)$$

其中 $\beta = 1/M$ 等于电子质量与质子质量之比. 对于一维情况, 利用相应矢量在一维方向上的分量 ($z = \mathbf{r}_e \cdot \hat{\mathbf{z}}$, $R = \mathbf{R} \cdot \hat{\mathbf{z}}$, $p = \mathbf{p}_e \cdot \hat{\mathbf{z}}$, $P = \mathbf{P} \cdot \hat{\mathbf{z}}$, $E(t) = \mathbf{E}(t) \cdot \hat{\mathbf{z}}$), 将矢量方程组转化为标量方程

$$\frac{dz}{dt} = p_e, \quad (3a)$$

$$\begin{aligned} \frac{dp_e}{dt} = & -\frac{(1+0.5\beta)z - 0.5R}{[(1+0.5\beta)z - 0.5R]^2 + \alpha} - \frac{(1+0.5\beta)z + 0.5R}{[(1+0.5\beta)z + 0.5R]^2 + \alpha} - E(t), \end{aligned} \quad (3b)$$

$$\frac{dR}{dt} = \frac{P}{M/2}, \quad (3c)$$

$$\begin{aligned} \frac{dP}{dt} = & \frac{1}{R^2} + \frac{1}{2} \left\{ \frac{(1+0.5\beta)z - 0.5R}{[(1+0.5\beta)z - 0.5R]^2 + \alpha} - \frac{(1+0.5\beta)z + 0.5R}{[(1+0.5\beta)z + 0.5R]^2 + \alpha} \right\}, \end{aligned} \quad (3d)$$

其中 α 为一维库仑势的软化参数, 在本文的计算中取 $\alpha = 1$.

任给定一个初态 ($z(0)$, $p(0)$, $R(0)$, $P(0)$), 对方程组(3a)—(3d)进行数值求解, 可得到与该初态相应的电子坐标 $z(t)$ 和核间距 $R(t)$ 随时间的演化. 采用文献[11]的方法定义电子的补偿能量

$$E_c(t) = E_p + \frac{1}{2} \left(\dot{z}(t) - \int_0^t E(t') dt' \right)^2, \quad (4)$$

其中 E_p 等于电子的库仑势能, $E(t)$ 为激光场的场强. 在系统演化过程中当电子的补偿能量 $E_c(t) > 0$ 时认为电子被电离. 另外, 当两核间距 $R(t) > R_D = 9.0 \text{ bohr}$ 时, 认为两核被离解. 根据这两个判据, 系统(一维 H_2^+)与脉冲相互作用可能产生下列四种结果:

$$\begin{aligned} \text{H}_2^+ + [I] &\rightarrow \text{H}_2^+ (E_c(t) \leq 0, R(t) \leq R_D), \\ \text{H}_2^+ + [I] &\rightarrow \text{H} + \text{H}^+ (E_c(t) \leq 0, R(t) > R_D), \\ \text{H}_2^+ + [I] &\rightarrow \text{H}_2^{2+} + e (E_c(t) > 0, R(t) \leq R_D), \\ \text{H}_2^+ + [I] &\rightarrow 2\text{H}^+ + e (E_c(t) > 0, R(t) > R_D), \end{aligned} \quad (5)$$

其中 $[I]$ 代表激光脉冲的作用. 我们将系统在演化过程中出现的上述四种结果分别定义为激发、离解、电离和离解性电离.

给定一组(譬如 N 个)初态就可以得到相应(N 个系统的)系综的演化, 若这些初态的能量均相同, 得到的就是一个微正则系综的演化. 微正则的初态系综可采用类似于文献[11]的方法得到: 给定初始能量 E_0 和初始核间距 R_0 (E_0 和 R_0 分别为一维 H_2^+ 位于基态时的能量和核间距离), 并令 $P(0) = p(0) = 0$, 定出电子的初始位置(即电子转向点的坐标 z_0), 在无外场的情况下让系统从这单一初态($z_0, 0, R_0, 0$)演化相当长一段时间, 得到相空间的一条曲线 $S: (z(t), p(t), R(t), P(t))$, 该曲线上的点便构成一个微正则系综(因为无外场时系统在演化的过程中能量是守恒的). 然后随机地从曲线 S 上取 N 个点作为激光脉冲与系统开始作用时的初态, 就可得到一个微正则系综的演化.

根据方程组(3a)–(3d)我们计算了 $N = 1000$ 个微正则初态(初始能量 $E_0 = -0.78 \text{ a.u.}$)的上述四种概率(各个分别在 1000 条演化轨道中所占的比例)随时间的变化. 其它的有关参量分别为: 激光波长 $\lambda = 532 \text{ nm}$, 脉冲长度 $T_D = 10 T$ (T 等于激光周期), 光强 I 分别为 $4.0, 6.0$ 和 $9.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 脉冲包络函数

$$f(t) = \begin{cases} \sin^2 \frac{\pi t}{6T} & 0 \leq t < 3T; \\ 1 & 3T \leq t < 7T; \\ \cos^2 \frac{\pi(t-7T)}{6T} & 7T \leq t < 10T. \end{cases} \quad (6)$$

另外, 由于 $E_c(t)$ (见(4)式)只有在电子远离核(即 $E_p \approx 0$)时才近似为常量, 而在距核较近时 $E_c(t)$ 以两倍于激光场的频率随时间快速振荡, 为了消除这种振荡, 我们采用 $E_c(t)$ 的中心移动平均

$$\overline{E}_c(t) = \frac{1}{T} \int_{t-0.5T}^{t+0.5T} E_c(t') dt',$$

并由 $\overline{E}_c(t) > 0$ (当 $t \geq t_i$ 时)来判断电离是否发生以及发生的时间.

3 计算结果分析

从数值计算结果(见图 1)不难看出: 光强越强激发通道 $P_1(t)$ 关闭得越早, 而离解

$P_2(t)$ 、电离 $P_3(t)$ 和离解电离 $P_4(t)$ 三个通道打开得也就越早, 其中电离通道打开得最早, 而离解通道则最晚. 这是因为质量很轻的电子在距核很近时可以很快地从脉冲中获取能量而被迅速电离, 较重的核尚未被分开, 因而形成二价氢分子离子 H_2^{2+} , 电离概率

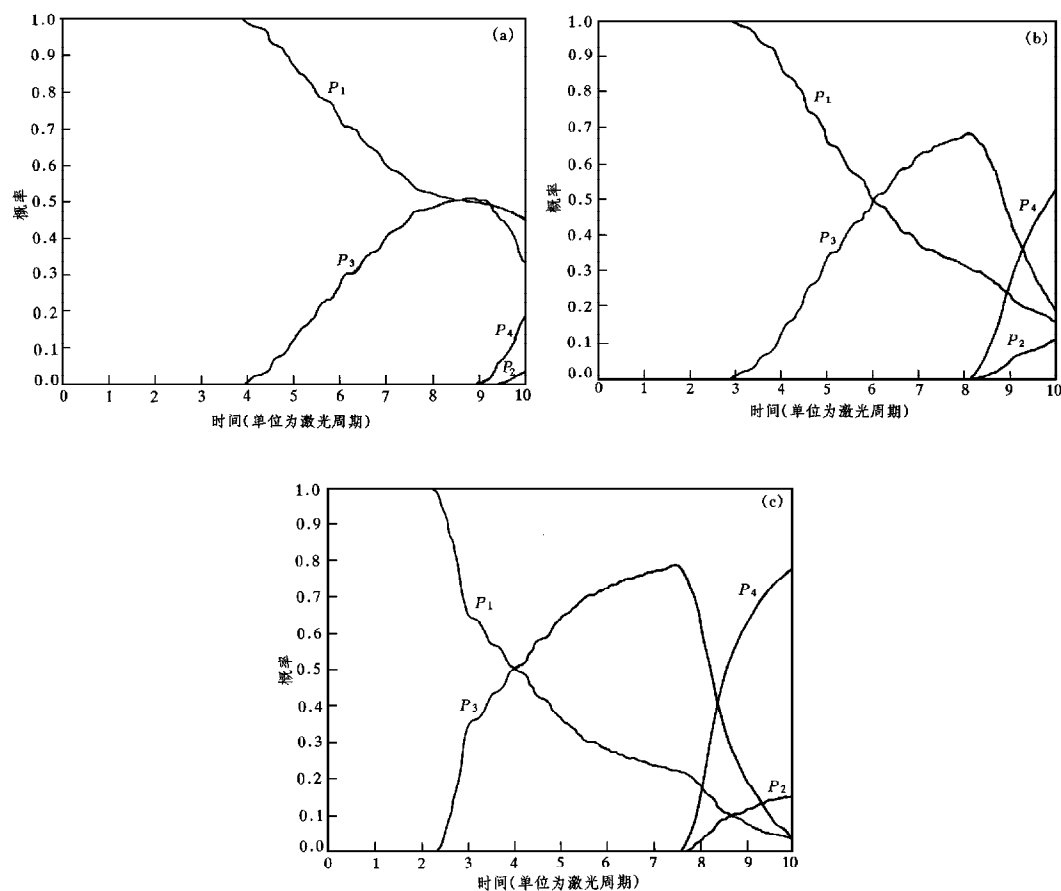
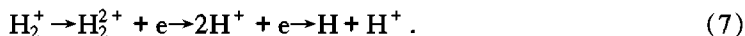


图 1 激发概率 P_1 、离解概率 P_2 、电离概率 P_3 以及离解性电离概率 P_4 在不同强度的激光脉冲作用过程下的时间演化 (a), (b) 和 (c) 对应的脉冲强度分别为 4.0×10^{14} , 6.0×10^{14} 和 $9.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$

$P_3(t)$ 随时间增加. 随后 H_2^{2+} 的两核在库仑斥力的作用下快速分离, 因此离解电离概率 $P_4(t)$ 会以极快的速度上升, 出现库仑爆炸^[2]. 至于离解概率 $P_2(t)$, 由于在如此快速上升又如此短的强激光脉冲作用下电子瞬间就可以被电离, 而质量很大的核还来不及响应, 脉冲就已结束, 所以很少会出现两核在脉冲作用下被拉开而电子却仍束缚在其中的一个核上的情况, 因此在整个脉冲作用期间 $P_2(t) \approx 0$. 在脉冲快结束时 $P_2(t)$ 的上升可能来自下列复合机制的贡献: 在离解电离通道被打开 ($R(t) > R_D$) 以后, 若两核继续分离, 由于核与电子均在一维上运动必有一核又会靠近电子, 所以在脉冲快要结束时, 这个不断靠近电子的核有可能重新与电子复合成氢原子 H , 导致 $P_2(t)$ 的增加, 这与在弱长激光脉冲作用下直接将 H_2^+ 离解成 $H + H^+$ 的机制是不同的. 在与脉冲作用的过程中, 离解、电离和

离解电离三个过程产生的时间顺序依次为



通过观察电子的轨迹我们还发现,当 H_2^+ 未被电离时,电子随机地在两核周围运动直至被电离.电离前两核间距 $R(t)$ 缓慢地增加,一旦电离发生 $R(t)$ 会迅速增加,因此两核的平均距离 $R_{av}(t)$ 随时间单调上升.图 2 和图 3 分别给出了在不同光强的情况下, $R_{av}(t)$ 随时间的变化以及电离概率 P_3 随 R_{av} 的变化.由此可看出,在 R_{av} 的某一范围电离概率 P_3 达到最大,对光强分别等于 4.0×10^{14} , 6.0×10^{14} 和 $9.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时,电离概率 P_3 的极大值约分别出现在 R_{av} 等于 5.8, 6.6 和 7.4 bohr 附近,这与一维近似模型 F 量子理论所预计的结果^[5]基本上是一致的.

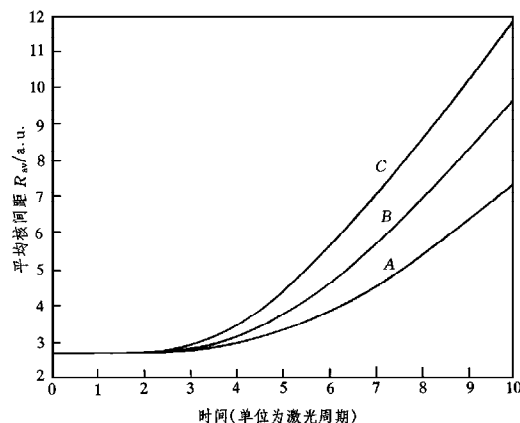


图 2 不同强度的激光脉冲作用下的平均核间距 R_{av} 随时间的变化. 曲线 A, B 和 C 对应的脉冲强度分别为 4.0×10^{14} , 6.0×10^{14} 和 $9.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$

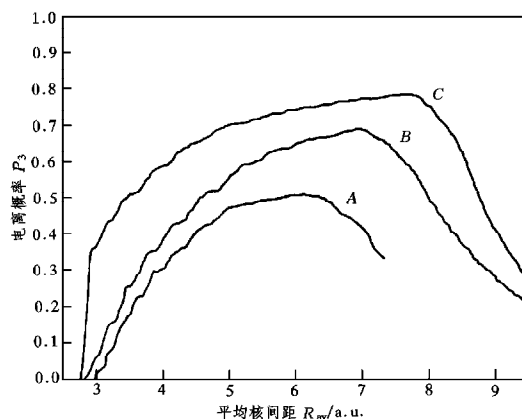


图 3 不同强度的激光脉冲作用下的电离概率 P_3 随平均核间距 R_{av} 的变化. 曲线 A, B 和 C 对应的脉冲强度分别为 4.0×10^{14} , 6.0×10^{14} 和 $9.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$

由以上的分析可以得出以下结论:在超短强激光脉冲作用下,一维 H_2^+ 的电离、离解以及离解电离的通道被打开的时间各不相同,电离通道打开得最早,其次是离解电离通道,最后才是离解通道.光强增强这三个通道打开的时间均会相应地提前.电离通道打开意味着高价(二价)氢分子离子 H_2^{2+} 的产生,而该通道关闭则意味着 H_2^{2+} 的消失,若以电离概率 $P_3(t)$ 的半高宽度定义为强场中 H_2^{2+} 的有效寿命,则对于光强为 4.0×10^{14} , 6.0×10^{14} 和 $9.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时, H_2^{2+} 的有效寿命分别为 1.8 T, 2.5 T 和 5.0 T. 因此要有效地获得高价氢分子离子 H_2^{2+} , 采用超短强激光脉冲更为有利.

- [1] A. Stingl, C. Spielmann, F. Krausz and R. Szpöcs, *Opt. Lett.*, **19**(1994), 204.
- [2] S. Chelkowski, A. Conjustean, T. Zuo and A. D. Bandrauk, *Phys. Rev.*, **A54**(1996), 3235.
- [3] D. M. Villeneuve, M. Yu. Ivanov and P. B. Corkum, *Phys. Rev.*, **A54**(1996), 736.
- [4] J. H. Posthumus, A. J. Giles, M. R. Thompson and K. Codling, *J. Phys.*, **B29**(1996), 5811.
- [5] H. Yu, T. Zuo and A. D. Bandrauk, *Phys. Rev.*, **A54**(1996), 3290.
- [6] K. Rzaewski, M. Lewenstein and P. Salières, *Phys. Rev.*, **A49**(1994), 1196.

- [7] R. Grobe and C. K. Law, *Phys. Rev.*, **A44**(1991), R4114.
- [8] Ph. Balcou, A. L' Huillier and D. Escande, *Phys. Rev.*, **A53**(1996), 3456.
- [9] G. Bandarage, A. Maquet and J. Cooper, *Phys. Rev.*, **A41**(1990), 1744.
- [10] S. Cocks and L. E. Reichl, *Phys. Rev.*, **A53**(1996), 1746.
- [11] J. G. Leopold and I. C. Percival, *J. Phys.*, **B12**(1979), 709.

THE CLASSICAL THEORY FOR INTERACTION OF THE 1D H_2^+ WITH ULTRA-SHORT INTENSE LASER PULSE

QU WEI-XING HU SU-XING XU ZHI-ZHAN

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Shanghai 201800)

(Received 9 June 1997; revised manuscript received 11 August 1997)

ABSTRACT

The dynamical process of interaction of the 1D H_2^+ with an ultra-short intense laser pulse is studied with a pure classical theory. Using the classical statistical method, we investigate numerically the evolutions of the probabilities for excitation, dissociation, ionization and dissociative ionization, and analyse the calculated results.

PACC: 3380; 4250