

## Ar原子序列双光双电离产生光电子角分布的理论计算

马堃 顾录有 董晨钟

Theoretical calculations on photoelectron angular distribution of sequential two-photon double ionization for Ar atom

Ma Kun Xie Lu-You Dong Chen-Zhong

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 053201 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20191814

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191814>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

---

### 您可能感兴趣的其他文章

#### Articles you may be interested in

类钠离子光电子角分布的非偶极效应

Non-dipole effects in the angular distributions of photoelectrons on sodium-like ions

物理学报. 2017, 66(4): 043201 <https://doi.org/10.7498/aps.66.043201>

对甲氧基苯甲腈的单色共振双光子电离光谱

One color resonance two-photon ionization spectra of p-methoxybenzonitrile

物理学报. 2017, 66(9): 093301 <https://doi.org/10.7498/aps.66.093301>

高频激光脉宽对原子光电子发射谱的影响

Pulse duration effect on photoelectron spectrum of atom irradiated by strong high frequency laser

物理学报. 2018, 67(7): 073202 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172440>

给体位置和数目对四苯基乙烯衍生物双光子吸收性质的影响

Effects of donor position and number on two-photon absorption properties of tetraphenylethylene derivatives

物理学报. 2019, 68(18): 183101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190471>

强场非次序双电离中再碰撞动力学的强度依赖

Intensity-dependent recollision dynamics in strong-field nonsequential double ionization

物理学报. 2019, 68(3): 033201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181811>

# Ar 原子序列双光双电离产生光电子角分布的理论计算\*

马 堃<sup>1)3)†</sup> 颌录有<sup>2)</sup> 董晨钟<sup>2)</sup>

1) (黄山学院信息工程学院, 黄山 245041)

2) (西北师范大学物理与电子工程学院, 兰州 730070)

3) (智能微系统安徽省工程技术研究中心, 黄山 245041)

(2019 年 11 月 29 日收到; 2020 年 1 月 2 日收到修改稿)

基于多组态 Dirac-Fock 方法和密度矩阵理论, 给出了原子序列双光双电离光电子角分布的计算表达式, 发展了相应的计算程序. 利用该程序对 Ar 原子 3p 壳层序列双光双电离过程进行了理论研究, 给出了光电离的总截面、磁截面、剩余离子取向以及光电子角分布的各向异性参数与入射光子能量的函数关系. 结果显示在光电离截面的 Cooper 极小位置附近取向参数出现极大值, 而光电子角分布的各向异性参数在该位置附近出现极小值. 进一步给出了 33.94 和 55.34 eV 光子能量下序列双光双电离过程中第一步的 Ar 原子和第二步的 Ar<sup>+</sup>离子 3p 壳层光电子角分布, 分析了序列双光双电离光电子角分布与单光电离光电子角分布的差异. 将计算结果与文献已有的数据进行了比较, 具有很好的一致性. 本文的研究结果对揭示光与物质相互作用的非线性动力学机制具有重要的参考价值.

**关键词:** 序列双光双电离, 光电子角分布, 氩原子

**PACS:** 32.80.Fb, 32.80.Rm, 32.80.Wr

**DOI:** 10.7498/aps.69.20191814

## 1 引言

原子双光双电离过程是指原子吸收两个光子同时将原子中两个束缚态电子电离的一种非线性原子过程. 根据电子被电离的次序, 又可以将其分为直接双光双电离和序列双光双电离. 前者是指原子吸收光子后, 两个束缚态电子被同时电离, 多余能量按照能量守恒定律连续地分配给两个电子; 后者是指两个束缚态电子被两个光子相继电离, 产生的两个连续态电子具有确定的能量. 一般来说, 当单个光子能量大于单价离子电离阈值时, 以序列双光双电离过程为主, 当单个光子能量小于单价离子

的电离阈值, 而两个光子能量大于原子和单价离子电离阈值之和时, 以直接双光双电离为主<sup>[1,2]</sup>. 双光双电离过程是重要的原子过程之一, 它广泛地存在星际介质<sup>[3]</sup>和太阳系行星电离层外部介质<sup>[4]</sup>中, 对其研究为揭示光与物质相互作用的非线性物理机制, 建立非线性原子碰撞理论模型具有重要的物理意义<sup>[5]</sup>. 由于受到光源和探测技术的限制, 双光双电离过程的探测率很低, 实验和理论方面都进展的非常缓慢.

近年, 高强激光技术, 如超紫外 (XUV)、同步辐射等, 尤其是自由电子激光技术的进步<sup>[6-8]</sup>, 为在实验室中开展多电子电离过程的研究提供了高强度的激光光源, 促进了该领域的实验和理论研究

\* 国家自然科学基金 (批准号:11804112)、国家重点研发计划 (批准号: 2017YFA0402300)、安徽省自然科学基金 (批准号: 1808085QA22) 和安徽省高校自然科学基金项目 (批准号: KJ2019A0610) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: makun0602@163.com

工作的开展. 2007 年, Braune 等<sup>[9]</sup>首次利用自由电子激光器观察惰性气体原子在 XUV 波段的序列双光双电离过程. Kurka 等<sup>[10]</sup>利用脉冲为 25 fs, 强度为  $5 \times 10^{13} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ , 光子能量为 44 eV 的自由电子激光诱导 Ne 原子发生双光双电离过程. 研究表明, 在实验的光子能量下, 序列双光双电离过程是主要的双电离方式. 文章进一步分析了态选择的光电子角分布参数, 并对两个光电子间的关联函数进行了分析, 提取了序列双光电离光电子的各向异性参数, 结果表明序列双光双电离光电子的各向异性参数与单光电离的各项异性参数不同. 2016 年, Braune 等<sup>[11]</sup>在德国汉堡的自由电子激光 (FLASH) 平台上, 利用时间飞行谱仪技术测量了光子能量在 38—91 eV 范围内惰性气体 Ne, Ar 和 Kr 原子的序列双光双电离光电子角分布. 通过对实验数据的分析, 给出光电子角分布的各项异性参数. Augustin 等<sup>[12]</sup>利用自由电子激光测量了 Ar 原子双光双电离的两个光电子的角分布, 理论上分析了入射光的极化性质和中间态离子的取向对两个光电子关联性质的影响, 指出共振激发态对序列双光双电离过程具有重要的影响. 2018 年, Ilchen 等<sup>[13]</sup>同样利用自由电子激光, 测量了 Ar 原子序列双光双电离的角分布, 实验发现在 Cooper 极小位置附近光电子角分布出现了前向/后向的散射行为, 理论上分析了这种行为的产生原因. 结果表明, 光电离过程的非偶极效应导致了 Cooper 极小位置处光电子的前向/后向不对称分布. 2019 年, Carpeggiani 等<sup>[14]</sup>首次利用自由电子激光测量了紫外波段的 Ne 原子序列双光双电离产生的光电子角分布和剩余离子的完备信息. 通过控制入射光子的极化行为, 讨论了入射光的极化对序列双光双电离动力学过程的影响, 并在电偶极近似下对实验结果进行了理论验证. 理论方面, Fritzsche 等<sup>[15]</sup>借助密度矩阵理论给出了序列双光双电离光电子角分布的一般性表达式, 并利用多组态 Hartree-Fock 方法和多组态 Dirac-Fock 方法对 Ne 和 Ar 原子的序列双光双电离的第二个光电子角分布和两光电子角关联函数进行了具体计算. 计算结果与自由电子激光 FLASH 的实验结果进行了比较, 与实验结果符合得很好. Gryzlova 等<sup>[16]</sup>在电偶极近似下, 对圆极化光的序列双光双电离过程中第二个光电子的角分布以及两个光电子的关联函数进行了计算研究, 结果表明入射光的极化性质对光电离通道

有着较大的影响, 尤其是在 Cooper 极小位置处影响最大. Grum-Grzhimailo 等<sup>[17,18]</sup>利用密度矩阵理论, 给出了包含所有电多极和磁多极辐射场的两色双光子序列双光双电离的光电子角分布表达式, 并在二阶微扰论下, 对 Ne 原子的 1s 电子双光电离进行了具体计算. 他们指出在包括一级非偶极效应下, 光电子角分布呈现前向和后向不对称分布, 并于 2016 年将这一理论进一步推广到序列三光三电离过程, 给出了光电子角分布和光电子之间的关联函数. 通过与实验的结果比较分析, 指出当激光脉冲小于 10 fs 时, 需要考虑含时的方程来研究多光子电离过程. 2015 年, Gryzlova 等<sup>[19]</sup>分析了序列双光双电离产生的两个光电子角分布的特点, 指出闭壳层原子的序列双光双电离先、后产生的两个光电子具有类似的角分布形状, 并展示了序列双光双电离中的第一个光电子角分布与单光电子产生的光电子角分布不同.

本文将在多组态 Dirac-Fock 理论框架下, 基于密度矩阵理论, 分别给出原子序列双光双电离第一个和第二个光电子角分布的计算表达式, 并在此基础上开发相应的计算程序. 针对 Ar 原子 3p 壳层序列双光双电离过程中的总截面、磁截面、剩余离子取向和光电子角分布等参数进行系统地理论计算, 给出了总截面、磁截面、剩余离子取向和光电子角分布参数随着光子能量变化的规律, 展示了 Cooper 极小位置的特殊性, 分析序列双光双电离光电子角分布与单光电离光电子角分布的差异.

## 2 理论方法

### 2.1 单光单电离

原子的单光单电离过程是指原子吸收一个光子后, 原子中的一个束缚态电子被电离到连续态的原子过程. 该原子过程广泛地存在于天体物理和实验室等离子体中, 对其研究主要集中在光电离截面<sup>[20]</sup>、光电子角分布<sup>[21]</sup>、内壳层光电离后退激辐射光的极化和角分布<sup>[22,23]</sup>等方面. 单光单电离的物理过程可以用 (1) 式表示:

$$\gamma_1 + A(\alpha_0 J_0) \rightarrow A^+(\alpha_d J_d) + e_1. \quad (1)$$

若入射光为线性极化, 取极化方向为 Z 轴方向, 根据密度矩阵理论<sup>[24,25]</sup>, 在 XZ 平面内进行测量时, 剩余离子和光电子的状态信息可以用如下的密度算符表示:

$$\begin{aligned} & \rho_{k_d q_d}(\alpha_d J_d, \alpha'_d J'_d; \theta_1, 0) \\ &= \pi \alpha \omega (2J_0 + 1)^{-1} \sum_{k_1 k_{\gamma_1}} B(k_1, k_d, k_{\gamma_1}) \rho_{k_{\gamma_1}, 0}^{\gamma} \langle k_d q_d, k_1 - q_1 | k_{\gamma_1} 0 \rangle \sqrt{\frac{4\pi}{2k_1 + 1}} (-1)^{q_d} Y_{k_d q_d}(\theta_1, 0), \end{aligned} \quad (2)$$

式中,  $B(k_1, k_d, k_{\gamma_1})$  参数包含了光电离的动力学信息, 其具体形式可以展开为如下的表达式:

$$\begin{aligned} B(k_1, k_d, k_{\gamma_1}) &= \hat{k}_d \hat{k}_1 \sum_{\ell_1 \ell'_1 j_1 j'_1 J J'} (-1)^{J+J_0+k_{\gamma_1}+j'_1-1/2} \hat{\ell}_1 \hat{\ell}'_1 \hat{j}_1 \hat{j}'_1 \hat{J} \hat{J}' \langle \ell_1 0, \ell'_1 0 | k_1 0 \rangle \\ &\times \left\{ \begin{matrix} j_1 & \ell_1 & 1/2 \\ \ell'_1 & j'_1 & k_1 \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} 1 & J & J_0 \\ J' & 1 & k_{\gamma_1} \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} J_d & j_1 & J \\ J'_d & j'_1 & J' \\ k_d & k_1 & k_{\gamma_1} \end{matrix} \right\} \mathbf{M}_{J_d \ell_1 j_1 J} \mathbf{M}_{J_d \ell'_1 j'_1 J'}^*, \end{aligned} \quad (3)$$

其中  $\mathbf{M}_{J_d \ell_1 j_1 J} = \langle (\alpha_d J_d, \ell_1 j_1) J || D || (\alpha_0 J_0) \rangle$  为光电离过程的电偶极跃迁约化矩阵元,  $\rho_{k_{\gamma_1}, 0}^{\gamma}$  是入射光子的密度算符. 电偶极近似下的光电子角分布可以写为如下常见的形式, 即

$$W(\theta_1) = \frac{W_0}{4\pi} [1 + \beta^{(1)} P_2(\cos \theta_1)], \quad (4)$$

式中,  $\beta^{(1)}$  为光电子角分布的电偶极各向异性系数, 与 (3) 式比较, 可知

$$\beta^{(1)} = -\sqrt{2} \frac{B(2, 0, 2)}{B(0, 0, 0)}. \quad (5)$$

如果只关注剩余离子的状态, 而不测量光电子的信息, 则理论上只需要对密度算符 (2) 式中的角向部分进行积分便可提取剩余离子的状态信息, 即

$$\begin{aligned} & \rho_{k_d q_d}(\alpha_d J_d, \alpha'_d J'_d) \\ &= 4\pi^2 \alpha \omega (2J_0 + 1)^{-1} B(k_0, k_d, k_d) \rho_{k_d, 0}^{\gamma}. \end{aligned} \quad (6)$$

对于孤立的中间态, 常采用取向参数来描述其剩余离子态的取向行为, 其定义为

$$A_{20}(\alpha_d J_d) = \frac{\rho_{20}(\alpha_d J_d)}{\rho_{00}(\alpha_d J_d)} = -\sqrt{2} \frac{B(0, 2, 2)}{B(0, 0, 0)}, \quad (7)$$

与密度算符相比, 取向参数与归一化条件无关, 使用更加方便.

## 2.2 序列双光双电离

随着自由电子激光器技术的进步, 双光双电离过程的实验测量已成为现实. 序列双光双电离的物理过程可以用下式表示:

$$\gamma_1 + A(\alpha_0 J_0) \rightarrow A^+(\alpha_d J_d) + \mathbf{e}_1, \quad (8a)$$

$$\gamma_2 + A^+(\alpha_d J_d) \rightarrow A^{++}(\alpha_f J_f) + \mathbf{e}_2. \quad (8b)$$

实验上, 同时对两个光电子进行测量, 则可以得到两个光电子的角向关联函数, 即

$$\begin{aligned} & W(\theta_1, 0, \theta_2, \varphi_2) \\ &= \pi \alpha \omega \sum_{k_d k_2 k_{\gamma_2} q_d} \bar{B}(k_d, k_2, k_{\gamma_2}) \rho_{k_d q_d}(\alpha_d J_d; \theta_1, 0) \rho_{k_{\gamma_2} 0}^{\gamma} \\ &\times \langle k_d q_d k_{\gamma_2} 0 | k_2 q_2 \rangle \sqrt{\frac{4\pi}{2k_2 + 1}} Y_{k_2 q_2}(\theta_2, \varphi_2), \end{aligned} \quad (9)$$

式中,  $\bar{B}(k_d, k_2, k_{\gamma_2})$  是与第二次光电离过程相关的动力学系数, 可以展开为如下的表达式:

$$\begin{aligned} \bar{B}(k_d, k_2, k_{\gamma_2}) &= \hat{k}_d \hat{k}_{\gamma_2} \sum_{\ell_2 \ell'_2 j_2 j'_2 \bar{J} \bar{J}'} (-1)^{\bar{J}+J_f+k_2-1/2} \hat{\ell}_2 \hat{\ell}'_2 \hat{j}_2 \hat{j}'_2 \hat{\bar{J}} \hat{\bar{J}}' \langle \ell_2 0, \ell'_2 0 | k_2 0 \rangle \\ &\times \left\{ \begin{matrix} \bar{J} & j_2 & J_f \\ j'_2 & \bar{J}' & k_2 \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} \ell_2 & j_2 & 1/2 \\ j'_2 & \ell'_2 & k_2 \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} J_d & 1 & \bar{J} \\ J'_d & 1 & \bar{J}' \\ k_d & k_{\gamma_2} & k_2 \end{matrix} \right\} \mathbf{M}_{J_f \ell_2 j_2 \bar{J}} \mathbf{M}_{J_f \ell'_2 j'_2 \bar{J}'}^*. \end{aligned} \quad (10)$$

角向关联函数 (9) 式包含了两个光电子角向分布的完整信息, 若对第一个电子角向部分进行积分, 则可得到第二个光电子角分布表达式, 具体如 (11) 式所示:

$$W(\theta_2) = \frac{\bar{W}_0}{4\pi} [1 + \bar{\beta}_2 P_2 \cos(\theta_2) + \bar{\beta}_4 P_4 \cos(\theta_2)]. \quad (11)$$

考虑孤立的中间态, 即  $\alpha_d = \alpha'_d$ ,  $J_d = J'_d$ , (11) 式中的 2 阶和 4 阶角分布各向异性参数可以分布写成如下形式:

$$\bar{\beta}_2 = \frac{\bar{\beta}^{(2)} + A_{20}(\alpha_d J_d) \bar{a}_2}{1 + A_{20}(\alpha_d J_d) \bar{a}_0}, \quad (12)$$



$$\bar{\beta}_4 = \frac{A_{20}(\alpha_d J_d) \bar{a}_4}{1 + A_{20}(\alpha_d J_d) \bar{a}_0}, \quad (13)$$

式中, 各参数可以进一步用 (3) 式和 (10) 式的动力学参数表示为

$$\bar{\beta}^{(2)} = -\sqrt{2} \frac{\bar{B}(0, 2, 2)}{\bar{B}(0, 0, 0)}, \quad \bar{a}_0 = -\sqrt{\frac{2}{5}} \frac{\bar{B}(2, 0, 2)}{\bar{B}(0, 0, 0)},$$

$$\bar{a}_2 = \frac{\bar{B}(2, 2, 0)}{\bar{B}(0, 0, 0)} + \frac{2}{\sqrt{7}} \frac{\bar{B}(2, 2, 2)}{\bar{B}(0, 0, 0)},$$

$$\bar{a}_4 = -\frac{6}{\sqrt{35}} \frac{\bar{B}(2, 4, 2)}{\bar{B}(0, 0, 0)}.$$

可以看出, 如果第一步光电离后剩余离子态各向同性, 即  $A_{20}(\alpha_d J_d) = 0$ , 则双光电离的第二个光电子角分布与单光单电离的光电子角分布一样. 类似地, 如果对 (9) 式中第二个电子的角向部分进行积分, 则可得到第一个光电子角分布表达式, 具体形式如下表示:

$$W(\theta_1) = \frac{W_0}{4\pi} [1 + \beta_2 P_2(\cos \theta_1) + \beta_4 P_4(\cos \theta_1)], \quad (14)$$

其中  $\beta_2$  和  $\beta_4$  分别表示序列双光双电离中第一个光电子角分布的 2 阶和 4 阶各向异性参数, 其具体可以写成为

$$\beta_2 = \frac{\beta^{(1)} + \bar{A}_{20}(\alpha_f J_f) a_2}{1 + \bar{A}_{20}(\alpha_f J_f) a_0}, \quad (15)$$

$$\beta_4 = \frac{\bar{A}_{20}(\alpha_f J_f) a_4}{1 + \bar{A}_{20}(\alpha_f J_f) a_0}, \quad (16)$$

式中,

$$\bar{A}_{20}(\alpha_f J_f) = -\sqrt{2} \frac{\bar{B}(2, 0, 2)}{\bar{B}(0, 0, 0)}, \quad a_0 = -\sqrt{\frac{2}{5}} \frac{B(0, 2, 2)}{B(0, 0, 0)},$$

$$a_2 = \frac{1}{5} \frac{B(2, 2, 0)}{B(0, 0, 0)} + \frac{2}{\sqrt{35}} \frac{B(2, 2, 2)}{B(0, 0, 0)},$$

$$a_4 = -\frac{2}{\sqrt{35}} \frac{B(4, 2, 2)}{B(0, 0, 0)}.$$

从 (15) 式和 (16) 式可知, 仅当  $\bar{A}_{20}(\alpha_f J_f) = 0$  时, 序列双光双电离的第一个光电子角分布与单光电离的光电子角分布相同. 这表明当剩余离子具有取向分布时, 双光电离中第一个光电子的角分布与单光光电离过程不同, 即第一个光电子能够感受到第二次光电离过程影响, 并且其角分布会受到第二次光电离过程影响. 文献 [15] 对这一现象给予了较为详细的解释, 在这里仅作简单说明. 在对双光双电离过程一致性实验中, 其测量的总截面并不能简单地表示为第一次光电离的截面和第二次光电离截面

的直接乘积. 实际上光电离之后剩余离子会出现一定的取向, 该取向会影响光电子的空间分布. 在对序列双光双电离的实际测量和数据分析时, 需要将第一步光电离和第二步光电离产生的剩余离子的取向行为考虑进来, 才能对测量结果进行正确地解释.

### 3 计算和讨论

下面将以 Ar 原子为例, 研究外壳层 3p 电子序列双光双电离的总截面、磁截面和光电子角分布. 原子靶态采用基于多组态 Dirac-Fock 理论方法开发的 GRASP2 K 程序 [26] 计算, 序列双光双电离的动力学过程采用我们近期在 RATIP 程序 [27] 基础上开发的程序进行计算.

#### 3.1 光电离截面

Ar 原子基态 3p 壳层序列双光双电离的物理过程可以用下式表示:

$$\gamma + \text{Ar}(3p^6 : ^1S_0) \rightarrow \text{Ar}^+(3p^5 : ^2P_{3/2,1/2}) + e_1, \quad (17a)$$

$$\gamma + \text{Ar}^+(3p^5 : ^2P_{3/2}) \rightarrow \text{Ar}^{++}(3p^4 : ^3P_{2,1,0}, ^1D_2, ^1S_0) + e_2. \quad (17b)$$

Ar 原子 3p 壳层有两个光电离通道, 对应于  $\text{Ar}^+$  离子的末态分别为  $^2P_{3/2}$  和  $^2P_{1/2}$  态. 由于  $^2P_{1/2}$  无取向, 因此仅研究  $\text{Ar}^+$  离子  $^2P_{3/2}$  态的第二次光电离过程. 在电偶极近似下,  $\text{Ar}^+$  离子  $^2P_{3/2}$  态的 3p 壳层再次光电离后有  $^3P_{2,1,0}$ ,  $^1D_2$  和  $^1S_0$  5 个末态. 图 1 分别给出了 Ar 原子和  $\text{Ar}^+$  离子 3p 壳层的光电离截面与光电子能量关系曲线. 可以看出 Ar 原子和

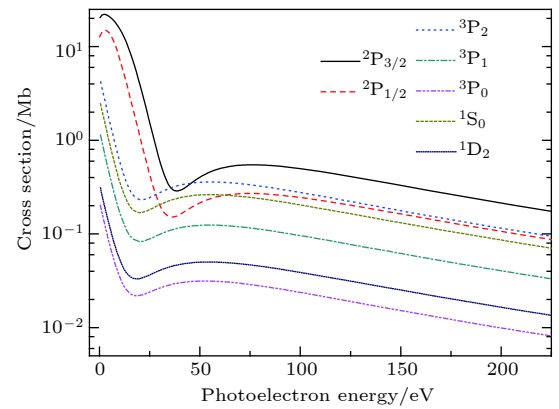


图 1 Ar 原子序列双光双电离截面

Fig. 1. The cross section of the sequential two-photon double ionization in argon atom.

Ar<sup>+</sup>离子的光电离截面都存在一个 Cooper 极小位置, 两者对应的光电子能量分别为 38 eV 和 18 eV. 这说明与 Ar 原子相比, Ar<sup>+</sup>离子 Cooper 极小位置更靠近电离阈.

### 3.2 光电离磁截面和剩余离子取向

取向是指具有相同总角动量不同磁量子数的能级粒子数布局不同, 在光电离过程中表现为磁截面不同. 离子的取向将进一步影响到第二次光电离和退激辐射 X 射线或者非辐射 Auger 电子的性质. 为了研究第一次光电离之后剩余离子的取向, 图 2 给出了 Ar 原子 3p<sub>3/2</sub> 壳层光电离的磁截面随着光电子能量的变化关系.  $\sigma_{3/2}(\sigma_{1/2})$  表示磁量子数  $M_J = 3/2(M_J = 1/2)$  的光电离截面. 从图 2 中可以看出, 对于同一个总角动量  $J$ , 不同  $M_J$  的光电离截面不同. 图 2(b) 给出了  $\sigma_{3/2}/\sigma_{1/2}$  比值随光电子能量的变化关系. 可以看出,  $\sigma_{3/2}$  和  $\sigma_{1/2}$  不满足统计平均的分布规律, 随着光电子能量的增加,  $\sigma_{3/2}/\sigma_{1/2}$  的数值从阈值附近的 1 开始先增加后减小, 最后趋于一个定值 1.2, 最大值出现在光电离截面的 Cooper 位置处, 其比值约为 3.

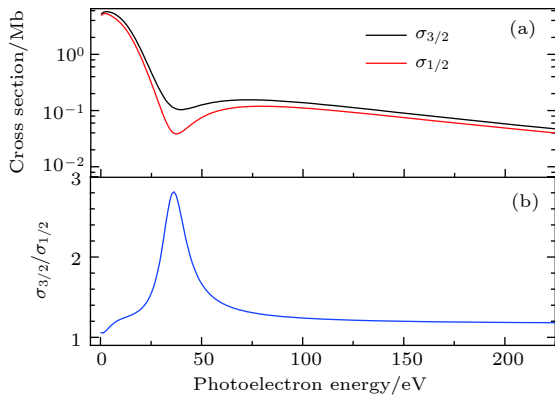


图 2 Ar 原子 3p<sub>3/2</sub> 光电离磁截面

Fig. 2. The magnetic cross section of the 3p<sub>3/2</sub> photoionization in argon atom.

图 3 给出了 Ar 原子 3p<sub>3/2</sub> 光电离剩余离子取向参数, 其中 B/C 分别表示 B/C 规范下的结果, 两种规范下的结果具有较好的一致性, 尤其是在高能部分一致性更好. 这是因为在低能部分, 光电子能量较低, 与靶离子中束缚态电子之间具有较强的相互作用. 高能部分, 光电子快速逃离靶离子, 接近自由电子状态, 与靶态相互作用较弱. 作为比较, 图 3 中还给出了文献 [15] 的计算结果 (文献没有说

明是哪种规范下的结果). 可以看出, 本文计算的结果与文献的结果整体上符合得很好. 取向参数随着光电子能量的变化关系与磁截面具有类似的性质. 从电离域附近开始随着光电子能量的增加其数值先增加到 1, 再逐渐减小, 最后趋于 0.18 稳定.

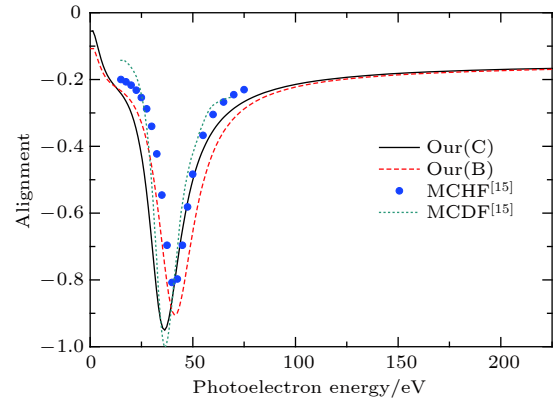


图 3 Ar 原子 3p<sub>3/2</sub> 光电离后剩余离子取向参数

Fig. 3. The alignment of the residual ions of 3p<sub>3/2</sub> photoionization in argon atom.

### 3.3 光电子各向异性参数

由光电子角分布的表达式 (11) 式和 (14) 式可知, 角各向异性参数决定了光电子角分布的形状. 为了验证本文所开发的计算代码, 图 4 分别给出了 Ar 原子 3p 壳层 Ar<sup>+</sup>离子 3p 壳层光电离后末态为 <sup>3</sup>P 态的光电子角各向异性参数. 作为比较, 图 4 同时给出了文献 [13,28] 的实验和计算结果. 可以看出, 计算结果与文献的结果符合得很好, 这说明本文的计算方法和计算代码是可靠的.

图 5 进一步给出了 Ar 原子 3p<sub>3/2</sub> 壳层光电离和 Ar<sup>+</sup>离子 3p 壳层光电离光电子角各向异性参数. Ar<sup>+</sup>离子 3p 壳层有 5 个光电离末态, 分别是 <sup>3</sup>P<sub>2,1,0</sub>, <sup>1</sup>D<sub>2</sub> 和 <sup>1</sup>S<sub>0</sub>. 由 (14) 式和 (15) 式可知, 在序列双光双电离过程中, 第一个和第二个光电子角各向异性参数均有 5 种情况, 分别对应 Ar<sup>+</sup>离子 3p 的 5 个光电离末态. 图 5(a) 和图 5(b) 是 Ar 原子 3p<sub>3/2</sub> 壳层光电子的角各项异性参数, 其中  $\beta^{(1)}$  是单光单电离光电子各向异性参数, 其数值与 2 阶各项异性参数  $\beta_2$  差别不大.  $\beta_4$  是序列双光双电离过程中 Ar 原子 3p<sub>3/2</sub> 壳层光电子的 4 阶各向异性参数.  $\beta_2(\beta_4)$  不仅与第一次光电离有关, 还与第二次光电离有关, 即  $\beta_2(\beta_4)$  的 5 条曲线分别对应第二次光电离的 5 个电离末态.  $\beta^{(1)}$  和 5 个末态对应的  $\beta_2$  区别不大, 且随着光子能量增加变化规律一致,

即先增加后减小, 最后再增加. 与  $\beta_2$  不同, 5 个末态对应的  $\beta_4$  参数随着光子能量的变化趋势是不同的. 如  $^3P_0$  和  $^1S_0$ , 随着光子能量的增加, 先增加, 再减小, 在 Cooper 极小位置附近达到极小值, 然后再增加, 最后趋于一个定值;  $^3P_1$  和  $^1D_2$  末态对应的  $\beta_4$  参数的值相对于其他电离末态而言可以忽略不计. 图 5(c) 和图 5(d) 给出的是序列双光双电离的第二个光电子各向异性参数  $\bar{\beta}_2$  和  $\bar{\beta}_4$  随着光子能量的变化关系. 可以看出, 随着光子能量的增加  $\bar{\beta}_2$  和  $\bar{\beta}_4$  的

变化与第一个光电子的规律类似, 该结论与文献 [19] 给出的结论一致. 从 (12) 式和 (13) 式中可以看出, 这两个参数不仅与  $\text{Ar}^+$  离子光电离过程有关, 而且与  $\text{Ar}$  原子第一次光电离后剩余离子的取向有关. 此外, 我们发现无论是第一个光电子还是第二个光电子, 角各向异性参数在 Cooper 极小位置附近的数值均接近于零. 这说明在电偶极近似下, Cooper 极小位置附近的光电子角分布呈现各项同性的特点.

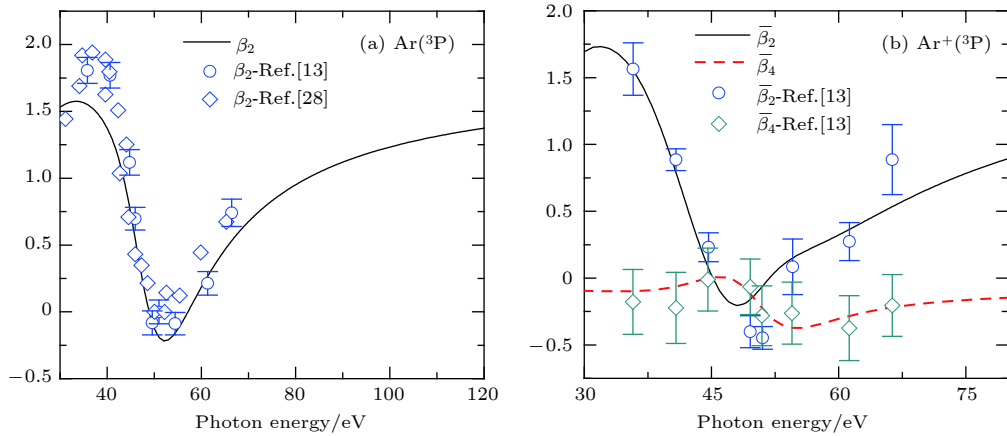


图 4  $\text{Ar}$  原子 3p 壳层序列双光双电离中第一个 (a) 和第二个 (b) 光电子的角各向异性参数

Fig. 4. The asymmetry parameter of the first (a) and second (b) photoelectron angular distribution in sequential two-photon double ionization of the  $\text{Ar}$  3p shell.

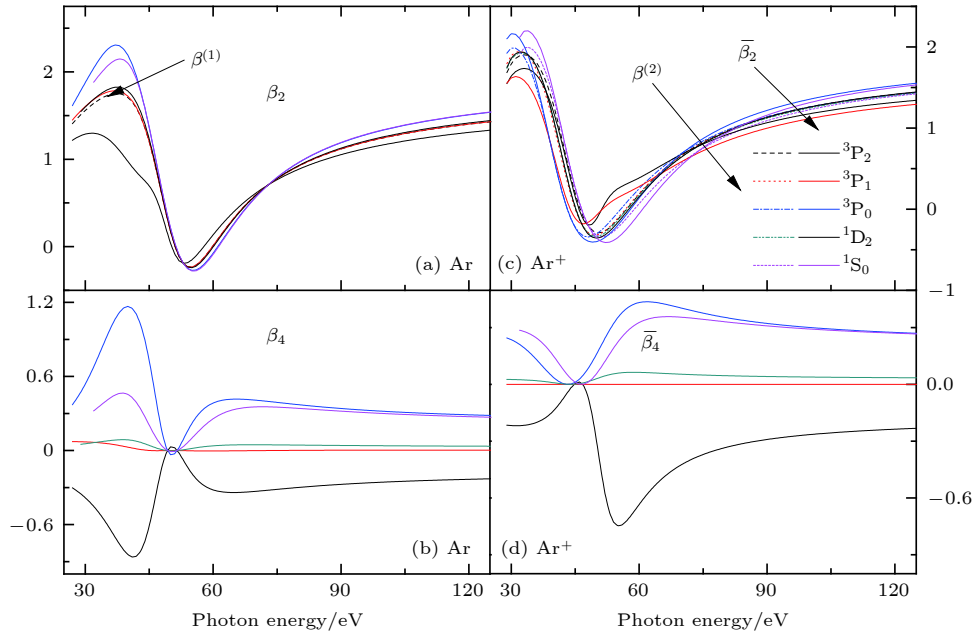


图 5  $\text{Ar}$  原子 3p 壳层序列双光双电离第一个 (a), (b) 和第二个 (c), (d) 光电子角各向异性参数

Fig. 5. The asymmetry parameter of the angular distribution of the first (a), (b) and second (c), (d) photoelectrons emitted in sequential two-photon double ionization of the  $\text{Ar}$  3p shell.

### 3.4 光电子角分布

为了更加清晰的展示序列双光双电离中两个的光电子角分布情况, 图 6 分别给出了 Ar 原子和 Ar<sup>+</sup>离子序列双光双电离光电子的角分布. 其中图 6(a) 和图 6(c) 是 Ar 原子 3p<sub>3/2</sub> 壳层光电离产生光电子的角分布, 图 6(b) 和图 6(d) 是 Ar<sup>+</sup>离子 3p 壳层光电离产生光电子的角分布. 0°表示入射光极化方向, 90°表示入射光方向. 从图 5 中光电子的角各向异性参数的变化情况可以看出, 在 33.94 和 55.34 eV 这两个光子能量点处序列双光双电离与单次光电离的光电子角分布区别较为明显. 因此,

重点关注这两个能量点处的光电子角分布. 从图 6 中可以看出, 在电偶极近似下, 光电子角分布关于入射光极化方向和入射光方向呈现对称分布. 对于单光单电离过程, Ar 原子 3p<sub>3/2</sub> 壳层的光电子只有一种角分布情况. 但序列双光双电离不同, 如图 6(a) 和图 6(b) 中 Ar 原子 3p<sub>3/2</sub> 壳层光电离的光电子有 5 种角分布情况, 分别对应 Ar<sup>+</sup>离子 3p 壳层的 5 个光电离末态, 且不同末态对应的光电子角分布情况具有较大的差异, 这表明在序列双光双电离中第二步的光电离过程对第一步的光电子角分布影响是不可忽略的.

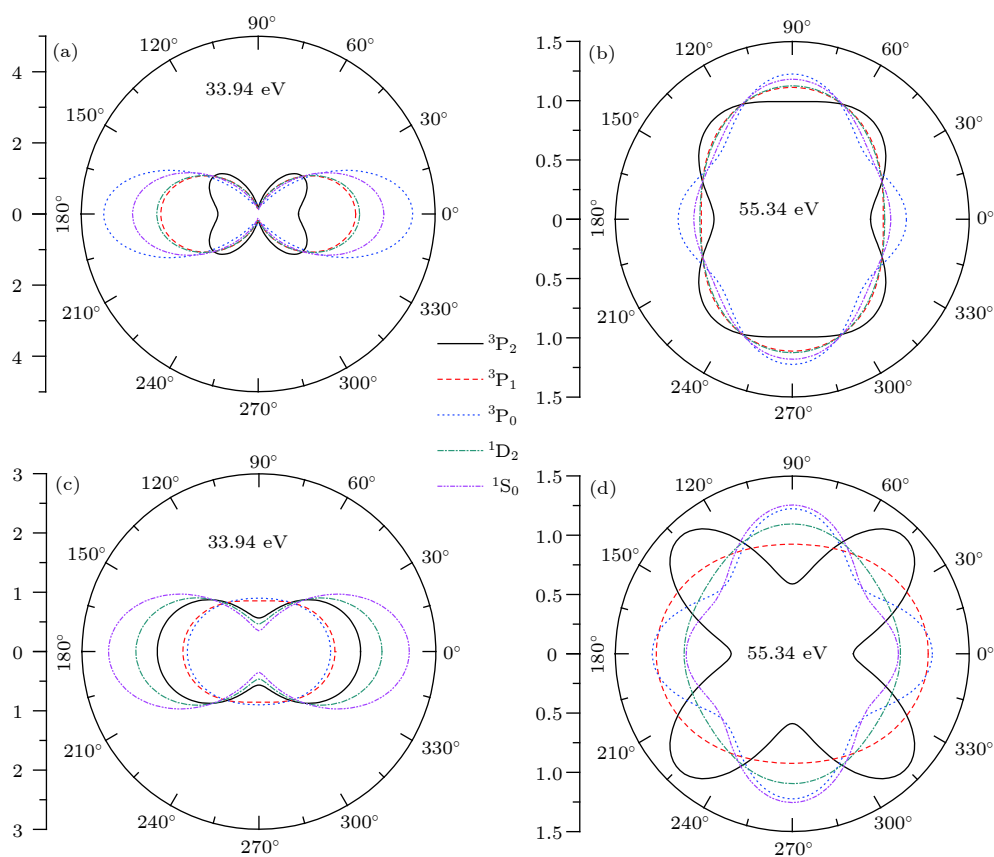


图 6 Ar 原子 3p 壳层序列双光双电离光电离角分布

Fig. 6. Photoelectron angular distributions for the sequential two-photon double ionization of Ar 3p shell.

## 4 总 结

序列双光双电离过程是最简单的非线性原子过程, 对其研究为揭示光与物理相互作用的非线性机制具有重要的意义. 本文基于多组态 Dirac-Fock 方法和密度矩阵理论, 并利用角动量耦合理论, 给出了原子序列双光双电离光电子角分布的计算表

达式, 基于该表达式开发了相应的计算程序. 对 Ar 原子 3p 壳层的序列双光双电离过程开展了系统研究, 重点讨论了序列双光双电离的总截面、磁截面、剩余离子取向和光电子角各向异性参数等随入射光子能量的变化关系. 研究表明, 由于第一次光电离之后剩余离子具有一定的取向行为, 该取向将进一步影响第二次光电离产生的光电子角分布. 同时, 由于取向导致测量的第一次光电子角



分布也有别于单次光电离光电子的角分布情况. 此外, 还发现序列双光双电离产生的光电子角分布截面存在一个 Cooper 极小位置, 在该位置附近处取向参数存在极大值, 而光电子角分布的电偶极参数存在极小值. 目前仅给出了电偶极近似下的结果, 可以看出在 Cooper 极小位置处光电子角分布各向异性参数出现极小值, 其值接近零. 这表明在电偶极近似下, Cooper 极小位置的角分布应进一步考虑非偶极效应, 相关工作将在后续报道.

## 参考文献

- [1] Bachau H, Lambropoulos P 1991 *Phys. Rev. A* **44** R9(R)
- [2] Laulan S, Bachau H 2003 *Phys. Rev. A* **68** 013409
- [3] Böhme D K 2011 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **13** 18253
- [4] Thissen R, Witasse O, Dutuit O, Wedlund C S, Gronoff G, Liliensten J 2011 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **13** 18264
- [5] Gillaspay J D, Pomeroy J M, Perrella A C, Grube H 2007 *J. Phys. Conf. Ser.* **58** 451
- [6] McNeil B W J, Thompson N R 2010 *Nat. Photon.* **4** 814
- [7] Wabnitz H, Bittner L, de Castro A R B, et al. 2002 *Nature* **420** 482
- [8] Young L, Kanter E P, Krässig B, et al. 2010 *Nature* **466** 56
- [9] Braune M, Reinköster A, Viefhaus J, et al. 2007 XXV *Int. Conf. on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC)*, Freiburg, Germany, July 25–31, 2007 p34
- [10] Kurka M, Rudenko A, Foucar, et al. 2009 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **42** 141002
- [11] Braune M, Hartmann G, Ilchen M, et al. 2016 *J. Mod. Opt.* **63** 324
- [12] Augustin S, Schulz M, Schmid G, et al. 2018 *Phys. Rev. A* **98** 033408
- [13] Ilchen M, Hartmann G, Gryzlova E V, et al. 2018 *Nat. Commun.* **9** 4659
- [14] Carpegiani P A, Gryzlova E V, Reduzzi M, et al. 2019 *Nat. Phys.* **15** 170
- [15] Fritzsche S, Grum-Grzhimailo A N, Gryzlova E V, Kabachnik N M 2008 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **41** 165601
- [16] Gryzlova E V, Grum-Grzhimailo A N, Kuzmina E I, Strakhova S I 2014 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **47** 195601
- [17] Grum-Grzhimailo A N, Gryzlova E V 2014 *Phys. Rev. A* **89** 043424
- [18] Grum-Grzhimailo A N, Gryzlova E V, Fritzsche S, Kabachnik N M 2016 *J. Mod. Opt.* **63** 334
- [19] Gryzlova E V, Grum-Grzhimailo A N, Staroselskaya E I, Strakhova S I 2015 *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **204** 277
- [20] Ma K, Xie L Y, Zhang D H, Dong C Z 2015 *Chin. Phys. B* **24** 073402
- [21] Ma K, Chen Z B, Xie L Y, Dong C Z 2018 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **51** 045203
- [22] Ma K, Chen Z B, Xie L Y, Dong C Z, Qu Y Z 2017 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **50** 225202
- [23] Ma K, Chen Z B, Xie L Y, Ding X B, Zhang D H, Dong C Z 2018 *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **228** 1
- [24] Blum K 1996 *Density Matrix Theory and Applications* (2nd Ed.) (New York: Plenum) pp35–60
- [25] Balashov V V, Grum-Grzhimailo A N, Kabachnik N M 2000 *Polarization and Correlation Phenomena in Atomic Collisions* (New York: Kluwer Academic/Plenum) pp76–97
- [26] Jönsson P, Gaigalas G, Bieroń J, Fischer C F, Grant I P 2013 *Comput. Phys. Commun.* **184** 2197
- [27] Fritzsche S 2012 *Comput. Phys. Commun.* **183** 1525
- [28] Langer B 1992 *Zur Energieabhängigkeit von Photoelektronensatelliten* (Studies of Vacuum Ultraviolet and X-ray Processes (Vol. 2) (New York: AMS Press) p145

# Theoretical calculations on photoelectron angular distribution of sequential two-photon double ionization for Ar atom<sup>\*</sup>

Ma Kun<sup>1)3)†</sup> Xie Lu-You<sup>2)</sup> Dong Chen-Zhong<sup>2)</sup>

1) (*School of Information Engineering, Huangshan University, Huangshan 245041, China*)

2) (*College of Physics and Electronic Engineering, Northwest Normal University, Lanzhou 730070, China*)

3) (*Engineering Technology Research Center of Intelligent Microsystems Anhui Province, Huangshan University, Huangshan 245041, China*)

( Received 29 November 2019; revised manuscript received 2 January 2020 )

## Abstract

With the development of the intense light source, such as free electron lasers, the experiments on the nonlinear process in atomic photo absorption in the XUV and X-ray region became more and more feasible. As one of the simplest possible nonlinear processes, the sequential two-photon double ionization, in which the first photon produces an ion which is subsequently ionized by the second photon, attracts increasing attention of theorists and experimentalists. Study on the angular distributions and angular correlations of the photoelectrons in the sequential two-photon double ionization process are especially attractive, which provides valuable information about the electronic structure of atom or molecule systems and allows the obtaining of additional information about mechanism and pathway of the two-photon double ionization. In this paper, the expression for the photoelectron angular distribution in a sequential two-photon process is given based on the multi-configuration Dirac-Fock method and the density matrix theory. And then, the relativistic calculation program for photoelectron angular distribution is further developed with the help of the program packages GRASP2K and RATIP which are based on the multi-configuration Dirac-Fock method. By using this code, the sequential two-photon double ionization of the 3p shell in atomic argon is studied theoretically. The cross section, magnetic cross section, alignment of residual ions and the asymmetry parameter of the photoelectron angular distribution, each as a function of photon energy, for the first and the second step of sequential two-photon double ionization of argon are presented. The calculations predict that the alignment has a maximum value and the asymmetry parameter has a minimum value in the region of the Cooper minimum. The angular distribution of the first step ionization for Ar atom and the second step ionization for Ar<sup>+</sup> ion are given at 33.94 eV and 55.34 eV photon energy, respectively. In addition, the difference in property between the angular distributions of the first photoelectron in sequential two-photon double ionization and in conventional one-photon single ionization is discussed. The present calculated results are compared with other available results, showing that they are in good agreement with each other. The results of this paper will be helpful in studying nonlinear processes in the XUV range.

**Keywords:** sequential two-photon double ionization, angular distribution of photoelectron, argon atom

**PACS:** 32.80.Fb, 32.80.Rm, 32.80.Wr

**DOI:** 10.7498/aps.69.20191814

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11804112), the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2017YFA0402300), the Natural Science Foundation of Anhui Province of China (Grant No. 1808085QA22), and the Natural Science Foundation of the Higher Education Institutions of Anhui Province of China (Grant No. KJ2019A0610).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [makun0602@163.com](mailto:makun0602@163.com)