

二阶离化过程对双光子自电离光电子能谱的影响

屈卫星 徐至展 张文琦

中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海, 201800

1990 年 8 月 10 日收到

本文研究包含二阶离化过程的双光子自电离; 计算光电子能谱, 并着重分析二阶离化对光电子能谱及其随光强变化关系的影响。

PACC: 3280D; 3280K

一、引 言

我们知道, 在通常光源照射下的原子是不大可能发生多光子电离的, 只有在光强远远高于普通光源的激光辐照下, 原子才可能吸收多个光子而被电离。然而实验结果表明^[1-3]: 原子的自电离态在降低多光子电离所需的激光强度方面起着重要的作用, 这是由于当原子存在着自电离态时可以增强束缚态向自电离态的跃迁, 原子一旦被激发到自电离态, 便可以很容易地通过结构相互作用 (configuration interaction) 自发地电离到连续态。在现有的多光子自电离理论中^[4-8], 大都忽略了高阶离化过程, 即自电离态的光电离和连续态向高能连续态跃迁的两种离化过程, 这种二阶离化过程在强光场下尤为重要。

本文在 Young 和 Lambropoulos 等人^[8]提出的双光子自电离理论的基础上, 同时考虑了上述的两种二阶离化过程, 并通过对自电离能谱和高阶光电子能谱的计算, 展示了二阶离化过程对光电子能谱及其与光强关系的影响。

二、物理模型与运动方程

图 1 为本文所讨论的原子简化模型, 其中 $|g\rangle_A$, $|a\rangle_A$, $|c_1\rangle_A$ 和 $|c_2\rangle_A$ 分别为原子的基态、自电离态和连续态, 其能量分别为 ϵ_g , ϵ_a , $\epsilon_{c_1} \approx \epsilon_a$ 和 $\epsilon_{c_2} \approx \epsilon_a + \omega\hbar$, ω 为激光场的频率, \hbar 为普朗克常数。在基态 $|g\rangle_A$ 和自电离态 $|a\rangle_A$ 之间有一组具有适当对称性的中间态, 以确保在其与基态、自电离态和连续态 $|c_1\rangle_A$ 之间具有非零的偶极跃迁。这组中间态可以是主量子数不同的束缚态, 也可能是同一主量子数不同角量子数的分立态, 为了便于讨论, 假设这组中间态是同一主量子数的分立态, 在远离共振并假设中间态之间的能级间隔很小的情况下, 可以认为各中间态的能量都近似等于 ϵ_b 。

本文所讨论的原子模型与通常的非共振双光子自电离理论的主要区别在于计入向高能连续态 $|c_2\rangle_A$ 的进一步跃迁的二阶离化过程, 也可以说是最低级的阈上离化过程, 这种过程包含自电离态的光离化和连续态向连续态跃迁两部分, 在通常情况下特别是光场很强的情况下这种过程是不能忽略的。

原子加激光场系统的哈密顿量为

$$H = H_0 + V + D, \quad (1)$$

式中 $H_0 = H_a + H_f$ 为无耦合系统的哈密顿量, H_a 和 H_f 分别为裸原子和激光场的哈密顿量, V 和 D 分别为结构相互作用(与光强无关)和原子与激光场的偶极相互作用(与激光场强成正比)。设 $t = 0$ 时, 系统位于基态 $|g\rangle = |g\rangle_A |n\rangle$, $t > 0$ 时, 系统的态为

$$|\psi(t)\rangle = u(t)|g\rangle, \quad (2)$$

式中

$$u(t) = -\frac{1}{2\pi i} \lim_{y \rightarrow 0} \int_{-\infty+iy}^{\infty+iy} G(z) e^{-izt} dz \quad (3)$$

为系统的演化算符, $G(z) = (z - H)^{-1}$ 为预解算子^[9]从薛定谔方程出发, 利用系统基本态的正交归一性, 不难得到系统的运动方程

$$\begin{aligned} zG_g - \sum_b D_{gb}G_b &= 1, \\ -D_{bg}G_g + (z - \Delta_b)G_b - D_{ba}G_a - \int D_{bc_1}G_{c_1}d\Delta_{c_1} &= 0, \\ -\sum_b D_{ab}G_b + (z - \Delta_a)G_a - \int V_{ac_1}G_{c_1}d\Delta_{c_1} - \int D_{ac_2}G_{c_2}d\Delta_{c_2} &= 0, \\ -\sum D_{c_1b}G_b - V_{c_1a}G_a + (z - \Delta_{c_1})G_{c_1} - \int D_{c_1c_2}G_{c_2}d\Delta_{c_2} &= 0, \\ -D_{c_2a}G_a - \int D_{c_2c_1}G_{c_1}d\Delta_{c_1} + (z - \Delta_{c_2})G_{c_2} &= 0, \end{aligned} \quad (4)$$

式中 D_{gb} , D_{bc_1} 和 V_{ac_1} 等为相互作用矩阵元, $\Delta_b = \varepsilon_b - \varepsilon_g - \omega\hbar$, $\Delta_a = \varepsilon_a - \varepsilon_g - 2\omega\hbar$, $\Delta_{c_1} = \varepsilon_{c_1} - \varepsilon_g - 2\omega\hbar$, $\Delta_{c_2} = \varepsilon_{c_2} - \varepsilon_g - 3\omega\hbar$ 。

三、光电子能谱的解析解

由运动方程(4), 不难解出^[10]

$$G_{c_1}(z) = \frac{D_{c_1g}^{(2)}(z - \Delta_a - S_a - F'_a + i\gamma_a/2 + i\Gamma'_a/2) + \tilde{V}_{c_1a}D_{bg}^{(2)}(1 - i/q)}{(z - \Delta_{c_1})(1 + k)S(z)}, \quad (5a)$$

$$G_{c_2}(z) = \frac{\tilde{D}_{c_2g}(z - \Delta_a - S_a - F'_a + i\gamma_a/2 + i\Gamma'_a/2) + \tilde{D}_{c_2a}D_{bg}^{(2)}(1 + k)(1 - i/q)}{(z - \Delta_{c_2})(1 + k)S(z)}, \quad (5b)$$

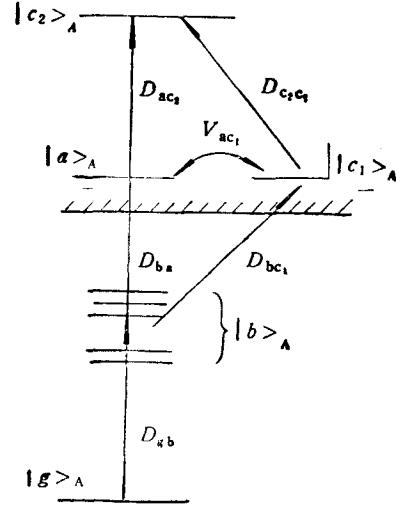


图1 原子能级示意图

$$S(z) = (z - S'_g + i\gamma'_g/2)(z - \Delta_s - S_s - F_s + i\gamma_s/2 + i\Gamma'_s/2) - /D_{Eg}^{(2)}/2(1 - i/q)^2, \quad (5c)$$

式中

$$\begin{aligned} \tilde{V}_{c_1a} &= V_{c_1a} - \sum_b \frac{D_{c_1b}D_{ba}}{\Delta_b} - \int \frac{D_{c_1c_2}D_{c_2a}}{\Delta_{c_2}} d\Delta_{c_2}, \quad D_{c_1g}^{(2)} = - \sum_b \frac{D_{c_1b}D_{bg}}{\Delta_b}, \\ \tilde{D}_{c_2a} &= D_{c_2a} - \frac{1}{1+k} \int \frac{D_{c_2c_1}\tilde{V}_{c_1a}}{\Delta_{c_1}} d\Delta_{c_1}, \quad \tilde{D}_{c_2g} = - \int \frac{D_{c_2c_1}D_{c_1g}^{(2)}}{\Delta_{c_1}} d\Delta_{c_1}, \\ D_{Eg}^{(2)} &= - \sum_b \frac{D_{ab}D_{bg}}{\Delta_b} + \text{Re} \left\{ \frac{1}{1+k} \int \frac{\tilde{V}_{ac_1}D_{c_1g}^{(2)}}{(-\Delta_{c_1})} d\Delta_{c_1} \right\} \end{aligned} \quad (6)$$

分别为相互作用的有效矩阵元;

$$\begin{aligned} S'_g &= \frac{1}{1+k} P \int \frac{|D_{gc_1}^{(2)}|^2}{(-\Delta_{c_1})} d\Delta_{c_1}, \quad \gamma'_g/2 = \frac{\pi |D_{gc_1}^{(2)}|^2_{\Delta_{c_1}=0}}{1+k}, \\ S'_s &= \frac{1}{1+k} P \int \frac{|D_{c_2a}|^2}{(-\Delta_{c_2})} d\Delta_{c_2}, \quad \gamma_s/2 = \pi |D_{c_2a}|^2_{\Delta_{c_2}=0} = 0, \\ F_s &= \frac{1}{1+k} P \int \frac{|\tilde{V}_{c_1a}|}{(-\Delta_{c_1})} d\Delta_{c_1}, \quad \Gamma'_s/2 = \frac{\pi |\tilde{V}_{ac_1}|^2_{\Delta_{c_2}=0}}{1+k} \end{aligned} \quad (7)$$

分别为相应基本态的能移和宽度. P 代表主值积分;

$$k = i\pi \int \frac{D_{c_1c_2}D_{c_2c_1}}{(-\Delta_{c_2})} d\Delta_{c_2}, \quad q = -D_{Eg}^{(2)}/\text{Im} \left\{ \frac{1}{1+k} \int \frac{\tilde{V}_{ac_1}D_{c_1g}^{(2)}}{(-\Delta_{c_1})} d\Delta_{c_1} \right\} \quad (8)$$

分别为 $c-c$ (喇曼) 耦合矩阵元和有效不对称参量.

为了便于讨论, 忽略有效相互作用矩阵元中对连续态积分的主值部分, 这样, 一些包含对连续态积分的有效矩阵元和参量 q 可简化成下列形式:

$$\begin{aligned} \tilde{V}_{c_1a} &= V_{c_1a}(1 + \lambda - i\nu q_c), \quad \tilde{D}_{c_2a} = D_{c_2a} \left[1 - \frac{\nu}{1+k} - i \frac{(1+\lambda)/q_c}{1+k} \right], \\ \tilde{D}_{c_2g} &= -i\pi D_{c_2c_1}D_{c_1g}^{(2)}_{\Delta_{c_1}=0}, \quad D_{Eg}^{(2)} = D_{Eg}^{(2)} \left(1 - \frac{\nu q_c/q_g}{1+k} \right), \\ k &= \pi^2 D_{c_1c_2}D_{c_2c_1}_{\Delta_{c_2}=0}, \quad q = \frac{(1+k)q_g - \nu q_c}{1+\lambda}, \end{aligned} \quad (9)$$

式中

$$\begin{aligned} q_g &= \frac{D_{Eg}^{(2)}}{\pi V_{ac_1}D_{c_1g}^{(2)}_{\Delta_{c_1}=0}}, \quad q_c = \frac{D_{c_2a}}{\pi D_{c_2c_1}V_{c_1a}_{\Delta_{c_1}=0}}, \\ \lambda &= \sum_b \frac{D_{c_1b}D_{ba}}{(-\Delta_b)V_{c_1a}}, \quad \nu = \pi^2 D_{c_2c_1}^2_{\Delta_{c_1}=0}. \end{aligned} \quad (10)$$

将(9)式代入(5)式, 并以自电离速率 $\nu_0 = \pi V_{ac_1}^2$ 为能量定标, 可得到稳态光电子能谱

$$\begin{aligned} P_1(\epsilon_1) &= \pi \nu_0 |u_{c_1}(\infty)|^2 = I^2 \left| \epsilon_1 + (1+\lambda) \left(q_g - \frac{2\nu q_c}{1+k} \right) \right. \\ &\quad \left. + i \left[\beta - \nu q_c \left(q_g - \frac{2\nu q_c}{1+k} \right) \right] \right|^2 / |(1+k)\Lambda(\epsilon_1)|^2, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 P_2(\varepsilon_2) &= \pi \nu_0 |u_{c_2}(\infty)|^2 = \beta I^2 (1+k-\nu) q_g - \left(1 - \frac{2\nu}{1+k}\right) \nu q_c + \beta/q_c \\
 &\quad + i \left[\varepsilon_2 + (1+\lambda) \left(q_g + q_c - \frac{2\nu q_c}{1+k} \right) \right] / |q_c|^2 / (1+k) \Lambda(\varepsilon_2)^2, \\
 \Lambda(x) &= x^2 + \left[\Delta + i \left(\beta + \frac{I^2 + (1+\lambda)^2 + \nu^2 q_c^2}{1+k} \right) \right] x + \left(i\Delta - \frac{I^2}{1+k} \right) \\
 &\quad \cdot \left[\beta - \frac{(1+\lambda)^2 + \nu^2 q_c^2}{1+k} \right] - I^2 \left(q_g - \frac{\nu q_c}{1+k} - i \frac{1+\lambda}{1+k} \right)^2. \quad (11)
 \end{aligned}$$

在上式中 $I = |D_{c_1 c_2}^{(2)}| / |V_{a c_1}|$ 为无量纲光强, $\Delta = [(\varepsilon_a + S_a + F_a - \varepsilon_g - S_g) - 2\omega\hbar] / \nu_0$ 为双光子无量纲失谐量, $\beta = D_{c_2 a}^2 / V_{c_1 a}^2$ 为自电离态的半离化宽度, $\varepsilon_1 = (\varepsilon_{c_1} - \varepsilon_a - S_a - F_a') / \nu_0$ 和 $\varepsilon_2 = (\varepsilon_{c_2} - \varepsilon_a - S_a - F_a' - \omega\hbar) / \nu_0$ 分别为连续态 $|c_1\rangle$ 和 $|c_2\rangle$ 附近的光电子能量。

由(11)式不难看出: 由于在双光子自电离中计入二阶离化过程, 除了原有的自电离谱 $P_1(\varepsilon_1)$ 外, 在连续态 $|c_2\rangle$ 附近还出现能量更高的光电子, 其能量与自电离光电子的能量大约相差一个光子的能量; 二阶离化过程导致自电离能谱的 Fano^[11] 零点消失; 无论高能光电子能谱还是自电离光电子能谱都具有相类似的双峰结构, 双峰的位置和宽度对应于系统的两个缀饰态的能量和宽度。由于两个缀饰态的准能量 ($\Lambda(x) = 0$ 的两个根) 通常是不相同的, 所以双峰的高度和宽度也是不一样的。

四、计算结果与讨论

在光电子能谱的计算中取 $\Delta = 0$, 并假设 $\nu = k$ 。由于参量 β , ν 和 λ 均与光强成正比, 所以令 $\beta = \beta_A I$, $\nu = \nu_A I$, $\lambda = \lambda_A I$, 并且 β_A 和 ν_A 是大于等于零的数。 β_A , ν_A 和 λ_A 都只是与原子有关的参数。

图 2 为完全忽略二阶离化 ($\beta_A = 0$, $\nu_A = 0$) 的情况下根据(11)式计算的双光子自

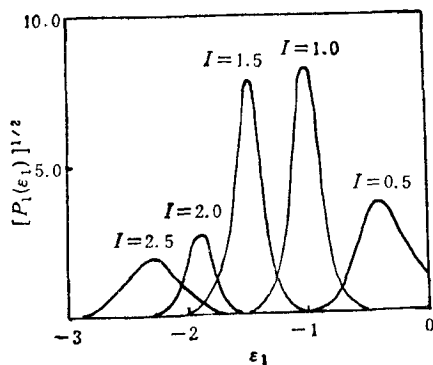


图 2 忽略二阶离化 ($\beta_A = 0$, $\nu_A = 0$) 时的自电离光电子能谱 参数: $(q_g, \beta_A, \nu_A, \lambda_A) = (1, 0, 0, 0.2)$

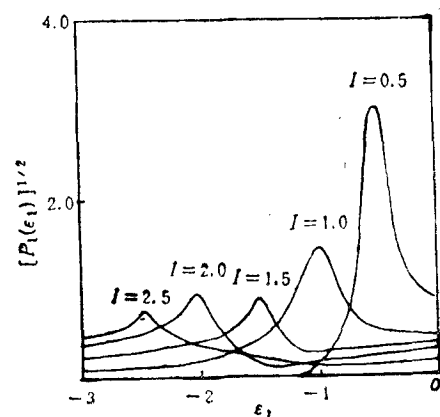


图 3 忽略部分二阶离化 ($\nu_A = 0$) 时的自电离光电子能谱 参数: $(q_g, q_c, \beta_A, \nu_A, \lambda_A) = (1, \infty, 0.1, 0, 0.2)$

电离能谱 $P_1(\epsilon_1)$ 。由于在所取参数下计算出的两个峰的高度和宽度都相差较大,故图 2 只绘出宽度较窄的峰(在图 3—图 6 中也是如此)。从图 2 可以看出:随着光强的增加,自电离能谱的峰向低能方向移动,并且宽度也是先由大变小再由小变大,这是由于当光强增加时,宽度较窄的缀饰态的能量随之降低,而缀饰态的宽度先是随光强减小,直到最低点,然后再随光强的增加而增大。正是由于上述原因,光电子能谱的峰高才会先随光强增加而减小,再随光强增加而增大。另外,由于忽略了二阶离化,自电离光电能谱中存在着

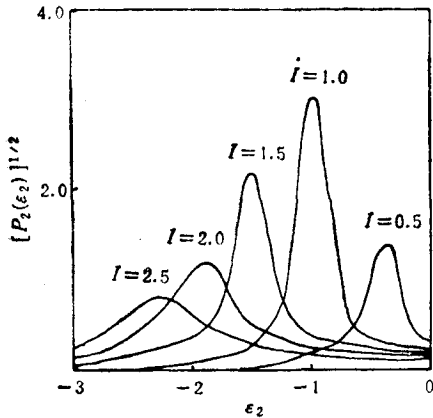


图 4 忽略部分离化 ($\nu_A = 0$) 时的高能光电子能谱
参数: $(q_2, q_c, \beta_A, \nu_A, \lambda_A) = (1, \infty, 0.1, 0, 0.2)$

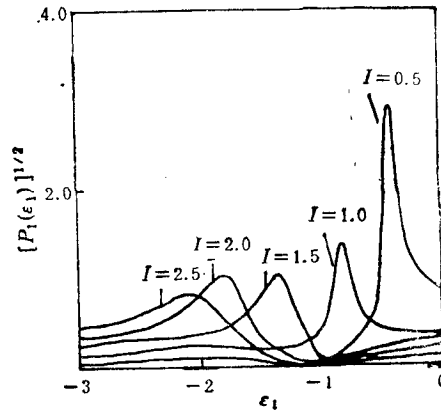


图 5 计入全部二阶离化 ($\beta_A \neq 0, \nu_A \neq 0$) 时的自电离光
电子能谱 参数: $(q_2, q_c, \beta_A, \nu_A, \lambda_A) = (1, 2, 0.1,$
 $0.025, 0.2)$

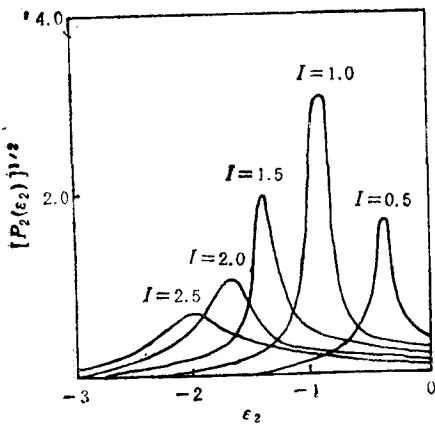


图 6 计入全部二阶离化 ($\beta_A \neq 0, \nu_A \neq 0$) 时的高能
光电子能谱 参数: $(q_2, q_c, \beta_A, \nu_A, \lambda_A) = (1, 2,$
 $0.1, 0.025, 0.2)$

Fano 零点,出现在 $\epsilon_1 = -(1 + \lambda)q_g$ 处。

图 3 和图 4 为只考虑部分二阶离化 ($\beta_A \neq 0, \nu_A = 0$) 的情况下得到的相应结果。由于考虑了 $|a\rangle_A - |c_2\rangle_A$ 耦合,出现高能光电子能谱 $P(\epsilon_2)$,而且自电离能谱 $P_1(\epsilon_1)$ 的 Fano 零点也随之消失。另外, $P_1(\epsilon_1)$ 的峰高随光强的增加而单调减小,而高能光电子能谱 $P_2(\epsilon_2)$ 却与忽略二阶离化时的自电离能谱有些类似。这是因为:自电离态的半离化宽度 β (即离化率)与光强成正比,光强的增加增强了自电离态 $|a\rangle_A$ 向 $|c_2\rangle_A$ 的跃迁,造成 $P_1(\epsilon_1)$ 的减弱和 $P_2(\epsilon_2)$ 的增强,当光强进一步增加时,又会引起缀饰态宽度的明显增加,造成高能光电子能谱 $P_2(\epsilon_2)$ 的下降。

图 5 和图 6 为计入全部二阶离化 ($\beta_A \neq 0, \nu_A \neq 0$) 过程的计算结果。从图中不难看出:连续态之间的偶极相互作用使 $P_1(\epsilon_1)$ 和 $P_2(\epsilon_2)$ 的峰高度略有增加和减小,并且峰宽都有变窄的趋势,这是因为 $|c_1\rangle_A - |c_2\rangle_A$ 耦合,使得缀饰态的宽度在相同的光强下减少的缘故。尽管在计算中将这种耦合强度选取得很少,但仍能看出峰宽的变窄。

最后值得注意的是: 在计算中参数 β_A , ν_A 和 q_c 的选取不是独立的, 从 q_c 的定义可以看出 $q_c = \sqrt{\beta/\nu} = \sqrt{\beta_A/\nu_A}$. 所以当只考虑自电离态的离化(即 $\beta_A \neq 0$) 而忽略连续态之间的耦合 ($\nu_A = 0$) 时, 相当于 $q_c \rightarrow \infty$, $\nu q_c = 0$, 当忽略二阶离化过程($\beta_A = \nu_A = 0$) 时, q_c 为不定的量(没意义), 但 νq 仍等于零.

五、结 论

当在双光子自电离中计入自电离态的光离化和连续态之间的耦合这两种二阶离化过程后, 会在原来的自电离光电子能谱(低能光电子能谱)的基础上出现高能光电子, 这两种光电子的能量大约相差一个光子的能量, 并且原来自电离光电子能谱的 Fano 零点也会因此而消失; 这两种耦合对自电离能谱和高能光电子能谱的强度(峰高)和结构(峰宽)及其随光强的变化关系都会产生明显的影响; 自电离态的光离化 ($|a\rangle_A - |c_2\rangle_A$ 耦合)不仅仅在自电离连续态 $|c_2\rangle_A$ 附近产生高能光电子, 还使原来的自电离光电子能谱的强度大大减弱, 而且自电离能谱的峰高随光强的增加而单调递减; 当在自电离态光离化的基础上再进一步考虑连续态之间的光耦合 ($|c_1\rangle_A - |c_2\rangle_A$ 耦合)时, 尽管这种耦合被认为很弱(在本文的计算中只取为 $|a\rangle_A - |c_2\rangle_A$ 耦合的四分之一, 而且 $|a\rangle_A - |c_2\rangle_A$ 本身也取得很小), 却仍可使自电离能谱 $P_1(\epsilon_1)$ 和高能光电子能谱 $P_2(\epsilon_2)$ 的峰宽变窄.

- [1] D. Feldmann, J. Krautwald, S. L. Chin, A. von Hellfeld and K. H. Welge, *J. Phys. B*, **15**(1982), 1663.
- [2] D. Feldmann and K. H. Welge, *J. Phys. B*, **15**(1982), 1651.
- [3] A. L'Huillier, L. A. Lompre, G. Mainfray and C. Manus, *Phys. Rev. Lett.*, **48**(1982), 1848.
- [4] Young Soon Kim and P. Lambropoulos, *Phys. Rev. Lett.*, **49**(1982), 1698.
- [5] K. R. Dastidar and P. Lambropoulos, *Chem. Phys. Lett.*, **93**(1982), 273.
- [6] P. Lambropoulos, *Appl. Opt.* **19**(1980), 3926.
- [7] S. L. Chin and P. Lambropoulos, *Multiphoton Ionization of Atoms*, Academic, New York, (1984).
- [8] Young, Soon Kim and P. Lambropoulos, *Phys. Rev.*, **A29**(1984), 3159.
- [9] P. Lambropoulos, *Phys. Rev.*, **A9**(1974), 1992.
- [10] 屈卫星、徐至展、张文琦, 光学学报, 待发表.
- [11] U. Fano, *Phys. Rev.*, **124**(1961), 1866.

THE EFFECTS OF SECOND-ORDER IONIZATION PROCESSES ON THE PHOTOELECTRON SPECTRUM OF TWO- PHOTON AUTOIONIZATION

Qu Wei-xing Xu Zhi-zhan Zhang Wen-qi

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

(Received 10 August 1990)

ABSTRACT

In this paper, the two-photon autoionization involving second-order ionization processes is investigated. The photoelectron spectra are calculated, and the effects of second-order process on the photoelectron spectra and the relation of spectra's variation with intensity of light are emphatically analyzed.

PACC: 3280D; 3280K