

不同分子取向向下氢分子非次序双电离对核间距的依赖关系*

童爱红¹⁾²⁾ 廖青¹⁾ 周月明¹⁾ 陆培祥^{1)†}

1) (武汉光电国家实验室(筹), 华中科技大学光电子科学与工程学院, 武汉 430074)

2) (湖北第二师范学院, 物理与电子信息学院, 武汉 430205)

(2010年5月28日收到; 2010年6月25日收到修改稿)

利用三维经典系综模型研究了氢分子非次序双电离对核间距的依赖性. 在不同分子取向向下, 氢分子双电离率随核间距的增大而先增大后减小, 在核间距为 4a. u. 时取最大值. 氢分子非次序双电离对核间距的依赖性随分子轴与激光偏振方向间夹角 ϕ 的增大而减弱. $\phi = 0$ 时, 氢分子非次序双电离包含丰富的相关模式, 对核间距有强烈的依赖性. $\phi = \pi/2$ 时, 不同核间距下的相关模式相似, 重碰撞在双电离过程中发挥更重要的作用. 这些结果表明分子结构对双原子分子非次序双电离有重要影响.

关键词: 非次序双电离, 核间距, 关联动量分布

PACS: 33. 80. Rv, 33. 80. Wz, 33. 80. Eh

1. 引言

高功率激光技术的发展为强场中一些非线性现象(如高次谐波的产生(HHG)^[1-3]、阈值上电离(ATI)^[4,5]和非次序双电离^[6-8]等)的研究提供了有利的条件. 自1983年首次在实验上观测到非次序双电离(NSDI)现象^[9]以来, 原子和分子在强激光场作用下的非次序双电离已经成为原子分子物理的重要研究方向^[10-12]. 目前, 被实验结果所支持且大家广泛认可的原子非次序双电离的机理是 Corkum 等人提出的准经典重碰撞模型^[13]: 第一个电子通过隧穿方式电离后可能在激光场的驱动下返回到母离子附近, 与母离子发生非弹性碰撞, 与第二个电子交换能量使第二个电子电离. 这种机理同样适用于分子非顺序双电离的解释. 与原子情况相比, 分子具有一个附加的振动坐标(核间距 R), 该附加坐标也会对分子非次序双电离产生影响, 使分子非次序双电离的研究更加复杂.

作为最简单的分子, $H_2(D_2)$ 的双电离已经被广泛而深入地研究. 研究发现, 分子的电离机理不仅

与激光强度有关, 也与分子的核间距有关. 分子电离率对核间距有很强的依赖关系. 一方面, 当分子核间距被拉伸到数倍平衡核间距时, 分子裂片的电离率会显著增大. 这种电离增强现象起源于束缚电子基态与第一激发态的共振耦合, Zuo 和 Bandrauk 称之为电荷共振电离增强^[14], 它属于次序双电离^[15]. 实验^[16,17]证实了上述电离增强现象. 在实验^[16,17]中, 所用的激光强度大于 $4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 测得的质子动能谱主要分布于 3 eV 附近. 质子动能近似等于电离势能 $U = 1/4\pi\epsilon_0 R$, 可以反映了电离时刻的核间距. 由质子动能谱知, 在实验^[16,17]中, H_2^+ 在大于两倍平衡间距的核间距下电离. 基于数值求解含时薛定谔方程的理论研究^[14,18,19]也表明, 当核间距增大到临界核间距(电离率最大时的核间距)时, 分子的电离率会增大几个数量级. 另一方面, 当核间距较小时, 由于电离势能的增加, 分子发生双电离的概率会显著减小, 但包含分子非次序双电离^[7,20]. 在文献[21]中, 利用三维经典系综模型, 我们研究了分子取向平行于激光偏振方向时氢分子非次序双电离中电子关联和双电离率对核间距的依赖关系, 并利用经典势垒抑制模型^[22]和向后分析

* 国家重点基础研究发展计划(批准号:2006CB806006), 国家自然科学基金(批准号:10774054)资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: lupeixiang@mail.hust.edu.cn

方法进行了定性解释.

本文采用三维经典系综模型研究了不同分子取向向下氢分子非次序双电离对核间距的依赖关系. 研究表明, 氢分子非次序双电离对核间距的依赖性随分子轴与激光偏振方向间夹角增大而逐渐减弱. 文献[21]讨论了分子轴与激光偏振方向平行时氢分子非次序双电离对核间距的依赖关系, 本文则重点关注分子轴垂直激光偏振方向的情况. 在垂直排列下, 氢分子双电离电子关联动量分布在不同核间距时相似, 重碰撞发挥更重要的作用. 计算表明, 当核间距约为 4a. u. 时, 非次序双电离率达到最大值. 基于经典势垒抑制模型^[22]和向后分析的定性分析表明, 电子关联性和双电离率对核间距的依赖关系起源于分子势垒、第二个电子的电离势以及第一个电子返回碰撞概率对核间距的依赖关系.

2. 理论方法

本文采用的三维经典系综模型在文献[23]中有详细的介绍, 并被广泛地应用于非次序双电离的研究^[24-28]. 对于氢分子, 电子与核、电子与电子之间的库仑相互作用由双中心三维软核势描述(采用原子单位)为

$$V(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = -1/\sqrt{(\mathbf{r}_1 - \mathbf{R}/2)^2 + a^2} - 1/\sqrt{(\mathbf{r}_1 + \mathbf{R}/2)^2 + a^2} - 1/\sqrt{(\mathbf{r}_2 - \mathbf{R}/2)^2 + a^2} - 1/\sqrt{(\mathbf{r}_2 + \mathbf{R}/2)^2 + a^2} + 1/\sqrt{(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)^2 + b^2},$$

$\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2$ 表示两个电子的坐标, \mathbf{R} 是核间距矢量. a 为氢核对电子吸引的屏蔽软核参数, b 为电子之间相互作用的软核参数. 为了避免自电离, 并且获得一个稳定的初始系综, a 取 1.25. 与文献[24]相同, b 取 0.05. 两电子的演化由牛顿运动方程决定: $d^2\mathbf{r}_i/dt^2 = \mathbf{E}(t) - \nabla_{\mathbf{r}_i}V(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$, $i = 1, 2$ 分别代表第一, 二个电子. $\mathbf{E}(t)$ 是波长为 800 nm 的线偏振梯形激光脉冲, 偏振方向沿 z 轴方向, 整个脉冲包含 10 个光周期, 前 2 个光周期强度线性增加, 中间 6 个光周期保持光强最大值, 后 2 个光周期光强线性减小为 0. 对于强场激光驱动的氢分子, 当激光强度低于 $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时, 非次序双电离占主导地位; 在较高的激光强度时, 次序双电离占主导地位^[20]. 本文选用的激光强度是 $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

在本文获取初始系综的计算中, 与核间距 R 相对应的氢分子基态能量从文献[29]中获得. 不失一般性, 假定两个氢核被固定在 $x-z$ 平面内, 坐标分别为 $(-R\sin\phi, 0, -R\cos\phi)$ 和 $(R\sin\phi, 0, R\cos\phi)$, 其中 ϕ 为分子轴与 z 轴之间的夹角. 电子的起始位置沿分子轴随机分布. 我们首先选出两电子总动能大于 0 的电子对, 将总动能随机地分配给两个电子, 然后让电子对在无外场情况下自由运动足够长时间 (100 a. u.), 直至系综内的所有电子对达到一个稳定的状态分布. 图 1(a) 和 (b) 分别给出了 $\phi = \pi/2$, $R = 6$ a. u. 时氢分子初始系综沿 x 轴和 z 轴方向的位置分布.

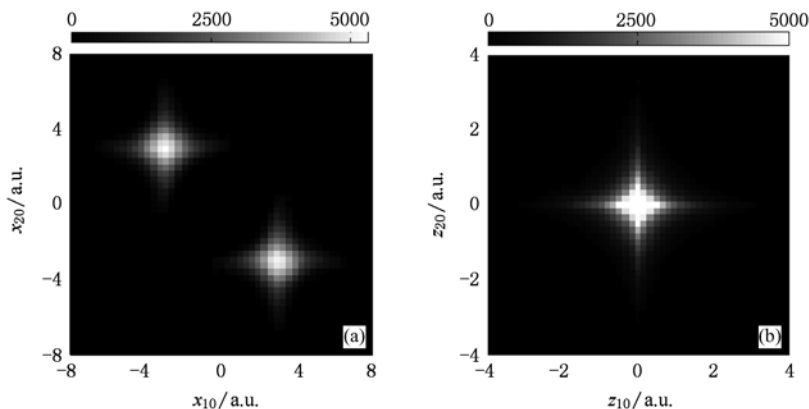


图 1 $\phi = \pi/2$, $R = 6$ a. u. 时初始系综轨迹密度分布 (a) x 空间; (b) z 空间, 系综大小为 1×10^6

在系综处于稳定状态后加入激光场, 每个电子对都在库仑场和激光场中运动, 其运动仍然遵循耦

合牛顿方程. 激光场结束后, 统计系综的双电离和非次序双电离产额. 当两个电子的能量都大于 0 时, 认为分子发生了双电离; 当任一个电子的能量首次大于 0 时, 则认为分子发生了单电离; 在第一个电子电离后, 如果两个电子的距离小于 $d = 5a. u.$, 则认为发生了重碰撞. 根据双电离过程中是否有重碰撞发生, 我们将双电离区分为非次序双电离和次序双电离. 当 d 在 4 到 7a. u. 范围内变化时, 非次序双电离的统计结果变化非常小.

3. 结果和讨论

图 2 给出了分子轴与激光偏振方向间夹角 ϕ 取不同值时, 氢分子双电离率随核间距的变化曲线. 核间距的变化范围为 2 到 12a. u. . 从图 2 可以看出, ϕ 取各种角度时, 氢分子双电离率随核间距的变化趋势相同, 都是先增加后减小, 在 $R = 4a. u.$ 时取最大值. 从图 2 也可以看出, 在相同核间距下, 双电离率随 ϕ 的增大迅速减小. 这是因为, 当 ϕ 增大时, 一方面, 激光场作用的有效距离减少, 对分子势垒的抑制作用降低. 另一方面, 第一个电子返回碰撞的概率也会减小. 对于 $\phi = 0$ 的情况, 我们在文献 [21] 中已经详细讨论了氢分子双电离率及双电离电子关联动量谱随核间距的变化, 并利用经典势垒抑制模型和向后分析方法进行了定性分析. 在本文中, 重点关注 $\phi = \pi/2$ 的情况.

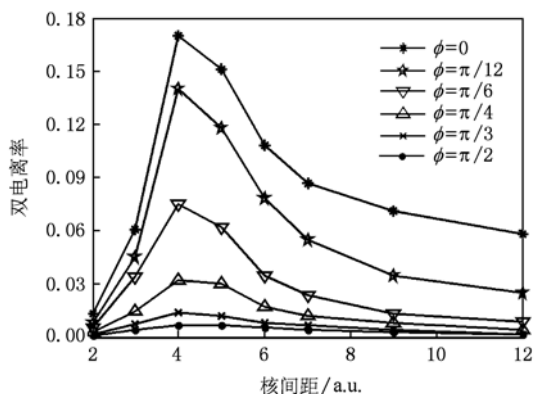


图 2 ϕ 取不同值时, 氢分子双电离率随核间距的变化曲线. 激光波长为 800 nm, 强度为 $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$

图 3 给出了激光场垂直分子轴 ($\phi = \pi/2$) 时双电离电子的关联动量分布. $p_1^{\parallel}, p_2^{\parallel}$ 分别表示两电子平行于激光偏振方向的动量. 在图 3 的 8 个关联动量分布中, 关联动量都主要分布于一、三象限, 表明

双电离电子主要朝同方向出射. 另外, 关联电子动量分布在一、三象限呈现出 V 形结构, V 形结构由两电子同向出射过程中相互之间的排斥力产生, 表明两个电子几乎同时电离并且反映了 $(e, 2e)$ 碰撞过程中的反冲碰撞^[30]. 比较而言, V 形结构在图 3 (a) 和图 3 (h) 中比较模糊, 这主要是由于核间距非常小或者非常大时总双电离率非常低的缘故. 文献 [21] 中图 2 显示了 $\phi = 0$ 时双电离电子关联动量分布随核间距的变化, 其中包含了丰富的相关模式, 核间距较小时, 关联动量分布在一、三象限呈现 V 形结构, 对应于 $(e, 2e)$ 碰撞过程中的反冲碰撞^[30]; 中等核间距时, 关联动量分布在一、三象限对角线取极大值, 表明两电子几乎同时沿相同方向以相同的速率出射^[31]; 大核间距时, 两电子的关联性减弱, 关联动量在二、四象限的分布增多, 对应于碰撞激发场致电离^[32]. 比较本文图 3 和文献 [21] 中图 2 可知, ϕ 从 0 变化到 $\pi/2$ 时, 双电离电子关联动量分布对核间距的依赖性明显减弱. 这主要是因为, ϕ 从 0 变化到 $\pi/2$ 时, 沿激光外场方向的分子势阱随核间距的变化明显减小 (比较文献 [21] 中图 5 与本文图 7 可知).

图 3 也反映了不同核间距下双电离产额随核间距的变化规律. 根据上述关于双电离、非次序双电离、单电离的定义, 我们计算了核间距从 2 到 12a. u. 变化时氢分子的双电离率、非次序双电离率、单电离率以及非次序双电离率与双电离率比值 (如图 4 (a) — (d)). 图 4 (c) 所示的单电离率随核间距的增大先快速增大, 后缓慢变化. 从图 4 (a), (b), (d) 可以看出, 随着核间距的增大, 双电离率和非次序双电离率先快速增大后缓慢减小, 而非次序双电离率与双电离率比值先快速减小后缓慢增大. $R = 4a. u.$ 时, 前两者同时达到最大值, 而后者达到最小值, $4a. u.$ 是氢分子非次序双电离的临界核间距.

最后, 我们定性讨论 $\phi = \pi/2$ 时氢分子电离率随核间距变化规律的物理解释. 大家知道, 在次序双电离中, 两个电子先后独立地通过隧穿方式电离, 而在非次序双电离中, 第一个电子在第二个电子电离前至少与母核发生一次碰撞. 因此, 对于选定的核间距, 次序双电离率主要取决于单电离率、第二电离能和被激光场抑制的氢分子势阱. 而非次序双电离率除了受这些因素影响外, 还与第一个电子重碰撞概率以及第一个电子返回能量有关.

我们先逐一分析各个影响因素随核间距的变

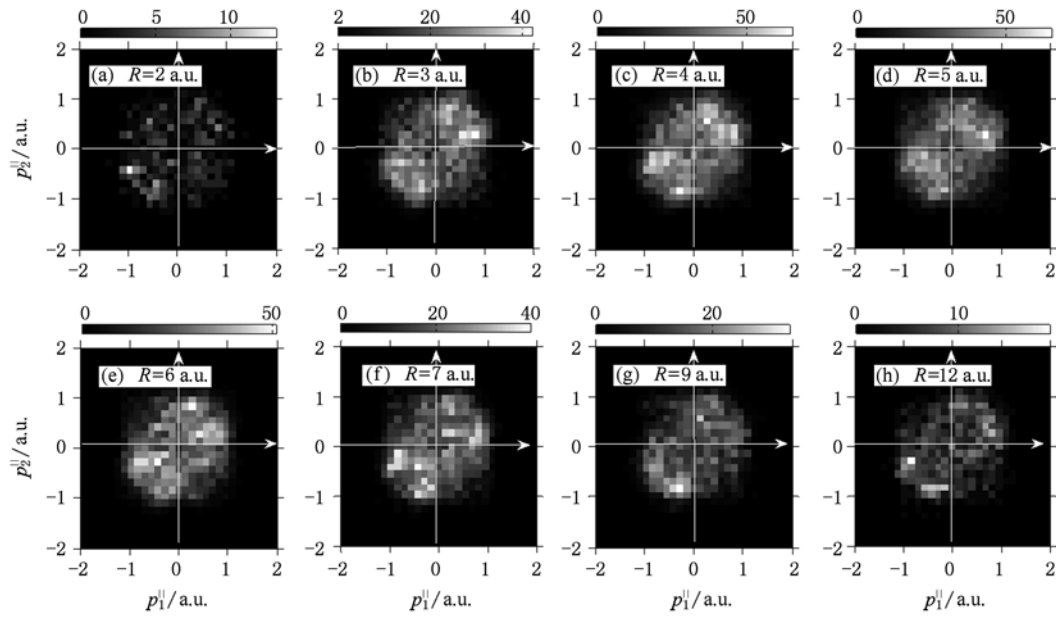


图3 $\phi = \pi/2$, $R = 2-12$ a. u. 时 H_2 双电离电子的动量关联. 横轴: 电子 1 平行于激光电场偏振方向的动量, 纵轴: 电子 2 平行于激光电场偏振方向的动量. 系综大小为 1×10^6

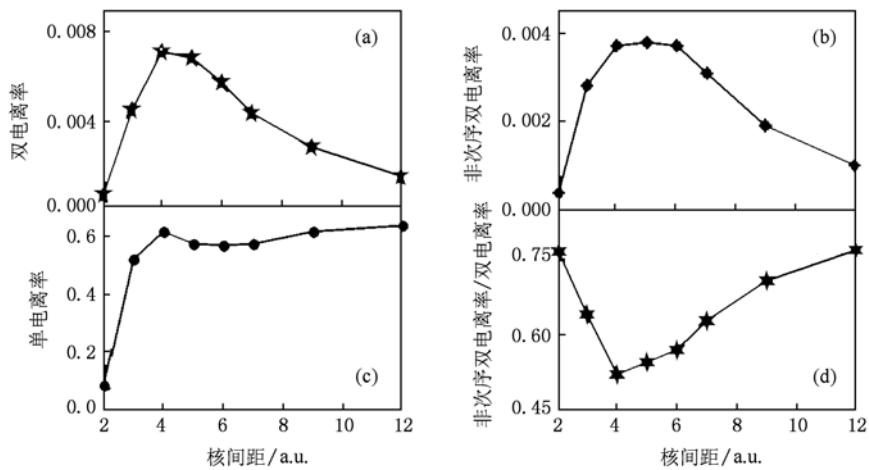


图4 (a) 氢分子双电离率随核间距的变化; (b) 氢分子非次序双电离率随核间距的变化; (c) 氢分子单电离率随核间距的变化; (d) 氢分子非次序双电离率与双电离率比值随核间距的变化

化规律. 氢分子单电离率随核间距的变化如图 4(c) 所示, 该变化趋势与文献[21]中图 3(c) 相似, 但每个核间距下的单电离率都略微降低, 这也是由于 $\phi = \pi/2$ 时, 激光电场对势阱的抑制作用降低. 图 5(a) 是氢分子第二电离能随核间距的变化曲线. 从图 5(a) 可以看出, 氢分子第二电离能随着核间距的增大单调减小. 图 6(a) — (c) 分别显示了 $R = 2, 4, 9$ a. u. 时 H_2^+ 的库仑和激光电场组合势的立体图像 (激光电场处于最大值时刻). 图 7 对应图 6 中 x 取定值时的势阱曲线, 其中, 实线对应于 $x = \pm R/2$, 虚

线对应于 $x = 0$ ($R = 2$ a. u. 时, 实线与虚线几乎重合). $z = 0$ 处虚线的数值代表氢分子双势阱中内势垒的高度, 而实线的极大值代表氢分子势阱沿外场方向外势垒的高度. 图 5(b) 给出了第一个电子重碰撞概率随核间距的变化, 该概率随核间距的增大而减小. 利用向后分析方法发现, 在不同的核间距下, 第一个电子的返回动能分布相似. 在后面的讨论中, 将忽略第一个电子返回动能对重碰撞效果的影响. 因此, 非次序双电离率主要取决于第二电离能和第一个电子的重碰撞概率.

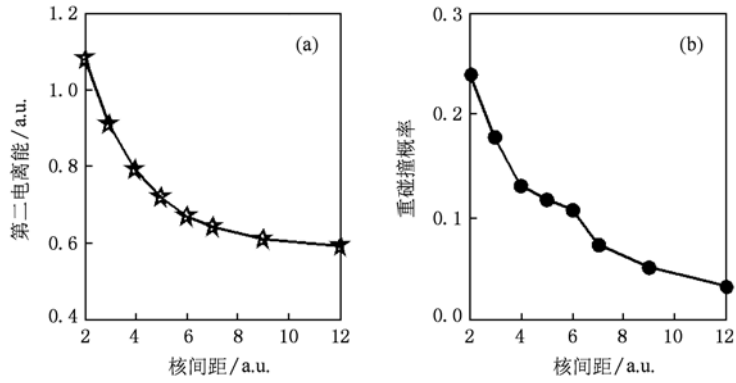


图5 (a) 氢分子第二电离能随核间距的变化; (b) 第一个电子重碰撞概率随核间距的变化

当 $R = 2 \text{ a.u.}$ 时, H_2^+ 的库仑和激光电场组合势如图 6(a) 所示, 它与单个原子势阱相似. 由于单电离率低且第二电离能高, 第二个电子在激光电场单独作用下电离的概率很低, 即次序双电离率很低. 第二个电子需要在第一个电子与母核碰

撞的帮助下电离, 因此多数双电离属于非次序双电离, 非次序双电离率与双电离率比值很高. 另外, 虽然第一个电子重碰撞概率较高, 但由于单电离率低以及第二电离能高, 非次序双电离率也很低.

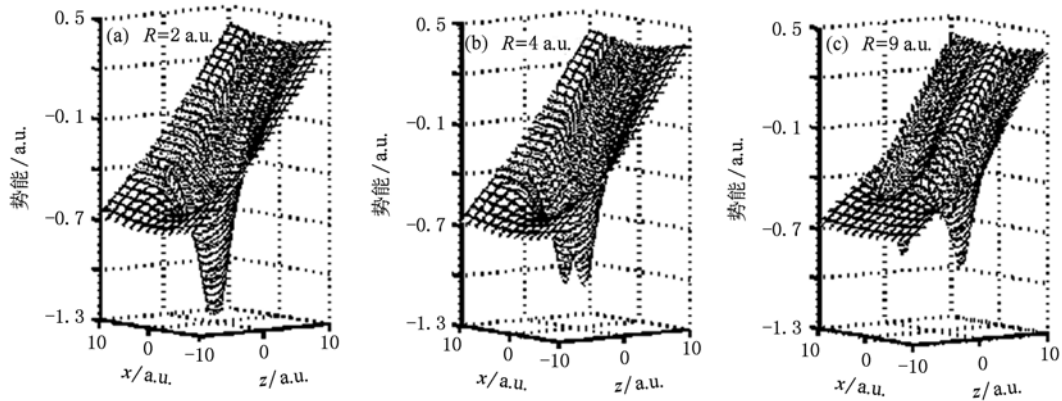


图6 激光电场最大时 H_2^+ 的库仑和激光电场组合势 (a) $R = 2 \text{ a.u.}$; (b) $R = 4 \text{ a.u.}$; (c) $R = 9 \text{ a.u.}$ (激光偏振方向沿 z 轴方向)

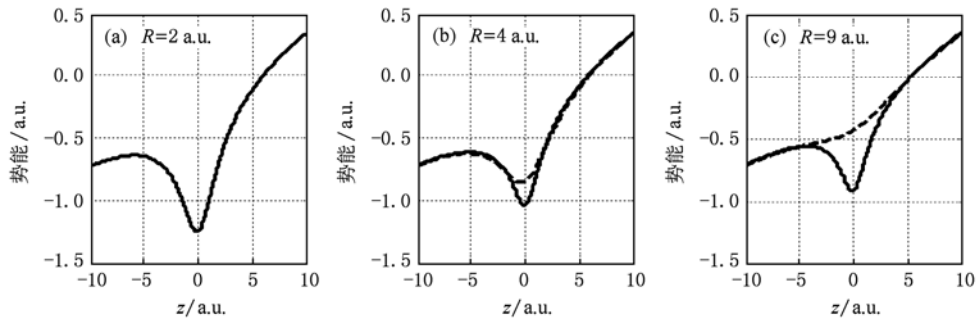


图7 图6中 x 取定值时对应的一维势阱曲线. 实线: $x = \pm R/2$, 虚线: $x = 0$. (a) $R = 2 \text{ a.u.}$ (实线与虚线几乎重合); (b) $R = 4 \text{ a.u.}$; (c) $R = 9 \text{ a.u.}$

当核间距从 2a. u. 增大到 4a. u. 时,两个原子核之间的内势垒略微升高,但不会限制第二个电子在双势阱中的运动. 沿电场方向的外势垒变化较小,但由于第二电离能的降低,第二个电子在激光场作用下电离的概率增大,即次序双电离率会增大. 另一方面,虽然第一个电子重碰撞概率降低,但由于单电离率显著增大,返回碰撞的电子数目会明显增大,再由于第二电离能的降低,非次序双电离率也会明显增大. 因此,双电离率、非次序双电离率增加但非次序双电离率与双电离率比值减小.

当核间距从 4a. u. 继续增大时,单电离率变化较小. 内势垒的继续升高限制了电子在双势阱中的运动,氢分子更趋近于两个独立的氢原子. 第二个电子沿图 7(c)实线所示的势阱最容易电离. 比较图 7(a),图 7(b)和图 7(c)可以看出,随着核间距的增大,实线所示外势垒高度增加,这会导致次序双电离率的降低. 另外,由于第一个电子重碰撞概率

降低,非次序双电离率也会降低. 向后分析显示,次序双电离的降低更显著. 因此,总双电离率、非次序双电离率降低,但非次序双电离率与双电离率比值增加.

4. 结 论

本文利用三维经典系综模型研究了不同分子取向向下氢分子非次序双电离对核间距的依赖关系. 计算表明,不同分子取向向下,氢分子双电离率随核间距的增大而先增大后减小,4a. u. 为氢分子非次序双电离的临界核间距. 氢分子非次序双电离对核间距的依赖性随分子轴与激光偏振方向夹角增大而减小. 当分子轴与激光偏振方向垂直时,双电离电子关联动量分布相似,重碰撞在垂直取向向下发挥更重要的作用. 这些结果表明分子结构对双原子分子非次序双电离有重要影响.

- [1] Lan P F, Lu P X, Li F, Li Y H, Yang Z Y 2008 *Opt. Express* **16** 5868
- [2] Hong W Y, Yng Z Y, lan P F, Zhang Q B, Li Q G, Lu P X, 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 4914 (in Chinese) [洪伟毅、杨振宇、兰鹏飞、张庆彬、李钱光、陆培祥 2009 物理学报 **58** 4914]
- [3] Zhang Q B, Lan P F, Hong W Y, Liao Q, Yang Z Y, Lu P X 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 4908 (in Chinese) [张庆彬、兰鹏飞、洪伟毅、廖青、杨振宇、陆培祥 2009 物理学报 **58** 4908]
- [4] Liao Q, Lu P X, Lan P F, Cao W, Li Y H 2008 *Phys. Rev. A* **77** 013408
- [5] Paulus G G, Lindner F, Walther H, Baltuska A, Goulielmakis E, Lezius M, Krausz F 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 253004
- [6] Lein M, Gross E K U, Engel V 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 4707
- [7] Saugout S, Cornaggia C 2006 *Phys. Rev. A* **73** 041406(R)
- [8] Zhou Y M, Liao Q, Zhang Q B, Hong W Y, Lu P X 2010 *Opt. Express* **18** 632
- [9] L' Huillier A, Lompre L A, Mainfray G, Manus C 1983 *Phys. Rev. A* **27** 2503
- [10] Walker B, Sheehy B, DiMauro L F, Agostini P, Schafer K J, Kulander K C 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 1227
- [11] Liu X, Rottke H, Eremina E, Sandner W, Goulielmakis E, Keeffe K O, Lezius M, Krausz F, Lindner F, Schatzel M G, Paulus G G, Walther H 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 263001
- [12] Liao Q, Lu P X, Zhang Q B, Yang Z Y, Wang X B 2008 *Opt. Express* **16** 17070
- [13] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [14] Zuo T, Bandrauk A D 1996 *Phys. Rev. A* **52** R2511
- [15] Saugout S 2008 *Phys. Rev. A* **77** 023404
- [16] Gibson G N, Li M, Guo C, Neira J 1997 *Phys. Rev. Lett.* **79** 2022
- [17] Trump C, Rottke H, Wittmann M, Korn G, Sandner W, Lein M, Engel V 2000 *Phys. Rev. A* **62** 063402
- [18] Yu H, Zuo T, Bandrauk A D 1996 *Phys. Rev. A* **54** 3290
- [19] Saenz A 2000 *Phys. Rev. A* **61** 051402
- [20] Alnaser A S, Tong X M, Osipov T, Voss S, Maharjan C M, Ranitovic P, Ulrich B, Shan B, Chang Z, Lin C D, Cocke C L 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 183202
- [21] Tong A H, Liao Q, Zhou Y M, Lu P X 2010 *Opt. Express* **18** 9064
- [22] Codling K, Frasiniski L J, Hatherly P A 1989 *J. Phys. B* **22** L321
- [23] Haan S L, Breen L, Karim A, Eberly J H 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 103008
- [24] Haan S L, Van Dyke J S, Smith Z S 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 113001
- [25] Liao Q, Lu P X 2009 *Opt. Express* **17** 15550
- [26] Zhou Y M, Liao Q, Lu P X 2009 *Phys. Rev. A* **80** 023412
- [27] Zhou Y M, Liao Q, Lan P F, Lu P X 2008 *Chin. Phys. Lett.* **25** 3950
- [28] Tang Q B, Zhang D L, Yu B H, Chen D 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 7775 (in Chinese) [汤清彬、张东玲、余本海、陈东 2010 物理学报 **59** 7775]
- [29] Nguyen-Dang T T, Châteauneuf F, Manoli S 1997 *Phys. Rev. A* **56** 2142
- [30] Staudte A, Ruiz C, Schöffler M, Schössler S, Zeidler D, Weber Th, Meckel M, Villeneuve D M, Corkum P B, Becker A, Dörner R 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 263002

- [31] Weber Th, Giessen H, Weckenbrock M, Urbasch G, Staudte A, Spielberger L, Jagutzki O, Mergel V, Vollmer M, Dörner R 2000 *Nature* **405** 658
 Deipenwisch J, Crespo Lopez-Urrutia J R, Höhr C, Neumayer P, Ullrich J, Rottke H, Trump C, Wittmann M, Korn G, Sandner W 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 043003
- [32] Feuerstein B, Moshhammer R, Fischer D, Dorn A, Schröter C D,

Internuclear-distance dependence of nonsequential double ionization of H₂ in different alignments*

Tong Ai-Hong¹⁾²⁾ Liao Qing¹⁾ Zhou Yue-Ming¹⁾ Lu Pei-Xiang^{1)†}

1) (Wuhan National Laboratory for Optoelectronics, School of Optoelectronic Science and Engineering, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China)

2) (Department of Physics and Electronics, Hubei University of Education, Wuhan 430205, China)

(Received 28 May 2010; revised manuscript received 25 June 2010)

Abstract

Using a three-dimensional classical ensemble, we have investigated the internuclear distance (R) dependence of nonsequential double ionization (NSDI) of H₂ molecules. In all alignments, as R increases, the double ionization (DI) rate first increases and then decreases, and it reaches its maxima when R is 4a. u. . The dependence of NSDI of H₂ on R weakens as the angle between molecular axis and laser polarization (ϕ) increases. When ϕ is zero, the NSDI of H₂ provides rich correlation patterns, which is strongly dependent on R . When ϕ is $\pi/2$, the correlation patterns are similar for different values of R and recollisions play a more important role in DI process. These results indicate that molecular structure has an important influence on NSDI of diatomic molecules.

Keywords: nonsequential double ionization, internuclear distance, correlated momentum distribution

PACS: 33.80. Rv, 33.80. Wz, 33.80. Eh

* Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant No. 2006CB806006), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10774054).

† Corresponding author. E-mail: lupeixiang@mail.hust.edu.cn