

非序列双电离向饱和区过渡的电子最大关联度*

辛国国¹⁾ 赵清¹⁾ 刘杰^{1)2)†}

1) (北京理工大学物理学院, 北京 100081)

2) (北京应用物理与计算数学研究所计算物理重点实验室, 北京 100088)

(2011年9月11日收到; 2011年9月30日收到修改稿)

本文采用三维半经典再散射模型系统地研究了 He 原子在光强从域下到近序列双电离区强场作用下的非序列双电离问题, 统计了各种场强下最终电离的两个电子正负关联的几率之比, 发现发生最大正关联的场强处于向非序列双电离饱和区过渡的区域, 并在关联纵向动量谱中展示了形成最大关联度的过程. 最后通过轨道“回溯”分析, 进一步研究了其背后的物理机理, 发现在碰撞后其中一个电子再散射和隧穿电子高速弱碰撞分别是低场强和高场强下负关联比例增加的原因.

关键词: 强场, 非序列双电离, 再散射

PACS: 32.80.Rm, 42.5.Hz, 33.80.Fb

1 引言

强场中原子的非序列双电离 (NSDI) 最突出的一个特点是双电离的产率在场强比较低时比单活跃电子近似的预言高很多, 特别是在二价与一价离子产率之比随场强变化的曲线中存在一个“Knee”结构区域^[1], 在这个区域中二价与一价离子的产率比为常数, 我们称之为 NSDI 的饱和区域. 超出预测如此高的双电离率表明在单活跃电子近似下描述双电离的序列电离机理此时不再适用, 必须考虑两个电子的关联作用. 之前, 在对 NSDI 电子关联的研究中, 得到普遍认可的理论为三步再碰撞模型^[2], 即原子中最外面的电子在激光场的峰值相位附近首先电离出去, 然后在激光场中自由运动并获得能量, 最后随着激光场反向后重新被拉回到母体离子附近并与束缚在核附近的第二个电子发生碰撞且分配一部分能量给第二个电子. 如果碰撞后两个电子有足够的能量便可以直接电离出去, 这种电离方式称为碰撞电离 (CI). 如果其中一个电子的能量比较低, 就会在激发态停留一段时间, 等到

电场足够高时被电离出去, 这种方式为碰撞激发电离 (CEI)^[3]. CI 与 CEI 最明显的区别在于发生双电离与碰撞时刻的时间延迟前者比后者短. 在两个电子的关联纵向动量谱 (CLMS) 中, 普遍认为 CI 机理主要贡献于一三象限, 即两个电子沿相同方向发射, 称之为正关联. CEI 则对二四象限 (负关联) 与一三象限的贡献同样多. 本文将在后面的分析中显示这两种机理对两个电子正负关联贡献的比例与场强的变化有关.

最近几年, 随着实验技术的发展, 低至域下电离 (BRT) 区域的低场强和高至越垒电离的高场强区的 NSDI 引起了人们的注意. 在 BRT 区域, 马普所的研究人员在 CLMS 中惊奇地发现了两个负关联的电子占优, 这与之之前在更高场强中总是正关联的情况截然相反^[4]. 在随后大量的理论研究中逐渐揭示了这种现象的机理, 发现这种现象是 CI, CEI 和碰撞激发隧穿电离机理 (CETI) 联合作用的结果^[5]. 随后, 又有学者在处于由 NSDI 向序列双电离过渡的高场强区也发现了明显的反关联比例升高的现象, 而这时此现象被解释为碰撞前激光场对两个电子的强烈作用以及激光脉冲打开阶

* 科技部创新项目 (批准号: 2009IM033000) 资助的课题.

† E-mail: liu.jie@iapcm.ac.cn

段 (turn-on stage) 发生了再碰撞 [6].

由此可见, 在低场强和高场强时 NSDI 的电子都表现为反关联比例增加的特性, 我们有理由相信存在一个在 NSDI 中发生正关联最大的场强, 对于这个场强区域的研究是本文的主要任务. 我们采用三维半经典方法系统地计算了从低至 BRT 到高至近越垒区各种场强下 NSDI 中两个电子正负关联的比例, 发现最大的关联率出现在向双电离饱和区域过渡的场强附近. 进一步研究发现在这个场强附近 CI 贡献起主导作用, 并分析了由这种机理产生的出现正负关联比例最大值的原因. 在本文的第 2 节, 简要地介绍了我们的三维半经典再散射模型. 第 3 节给出了本文的主要结果和相关讨论. 最后的第 4 节为结论部分.

2 模型

我们采用三维半经典再散射模型, 运用这个模型我们成功地研究过原子在强激光场中单电离的电离率问题, 重现了光电子能谱的平台结构、截止特性、光电子的发射角分布 [7], 以及原子和分子双电离的多种现象 [5,8-12]. 而且此方法在研究原子和分子的非序列双电离方面与量子 S 矩阵模型符合得很好 [13]. 以下考虑线极化超短超强激光脉冲作用下的 He 原子, 激光电场的形式为 (除非特别说明, 本文均采用原子单位): $\epsilon(t) = \epsilon_0 f(t) \cos(\omega t) \hat{e}_z$, 其中, $\tau_p = 13T$ 和 $T = 2\pi/\omega$ 分别为脉冲宽度和振荡周期, $f(t)$ 为脉冲的包络, 在前十个周期为常数, 后三个周期以余弦平方的形式关闭. $\omega = 0.057$ a.u., 对应的激光波长为 800 nm. 在激光场的作用下, 沿着激光电场极化方向的库仑势能曲线被显著压低, 形成一个等效势垒, 此时原子中电离能最低的电子首先穿越势垒发生隧穿电离, 电离率由 ADK 公式给出 [14]. 初始时刻 t_0 定义为隧穿电离发生的时刻, 在模拟中我们取其值均匀分布于激光脉冲的第一个周期. 电子的隧穿位置位于激光电场极化方向上, 由隧穿前后能量守恒条件唯一确定. 沿着激光电场极化方向的速度与抖动速度相比较小, 可近似取为零, 而垂直于极化方向的速度满足高斯形式的分布 [8]. 另外一个被撞击的束缚电子处于 He⁺ 的基态, 服从微正则分布 [15]. 电子的动力学行为由牛顿运动方程描述, 在模拟中, 同时考虑了每一步的隧穿效

应 [5,16]. 每个强度模拟了 10⁷ 条轨道 (或者更多), 最终收集到上万条双电离轨道, 以进行统计分析.

3 结果和讨论

3.1 电子最大关联度对应的场强

我们计算了 He 原子在场强从 0.18 PW/cm² 到 4 PW/cm² 激光场中的 NSDI, 并统计了出射电子正负关联的比例 (RCA), 如图 1(a) 所示. 在这幅图中, 可以看出两个特殊的强度: 第一个 (0.21 PW/cm²) 位于两个电子从负关联占优向正关联占优转变的场强, 而它正好对应于从域下到阈上转变的场强, 由公式 $3.17(\epsilon_{th}^2/4\omega^2) - |I_{p2}| = -2\sqrt{\epsilon_{th}}$ 给出 [5], 其中 $I_{p2} = 2$ 为束缚电子的电离能. 第二个特殊场强为图 1(a) 中两个电子正关联几率最大时的强度 (0.9 PW/cm²). 可以看出它对应于图 1(b) 中二价离子与一价离子的产率比向饱和区过渡的场强. 这两个场强将整个 NSDI 区域分成如图 1(a) 所示的三个部分, 场强从低到高依次为: BRT 区, 低于饱和强度 (BS) 区和高于饱和强度 (AS) 的区域. 在 BRT 区域, 两个电子负关联占优, 这个结论与文献 [4] 中 Ar 的情况类似, 并且 RCA 的值对场强的变化不敏感. 在 BS 区和 AS 区, RCA 的值随场强的升高先迅速增大之后又快速减小.

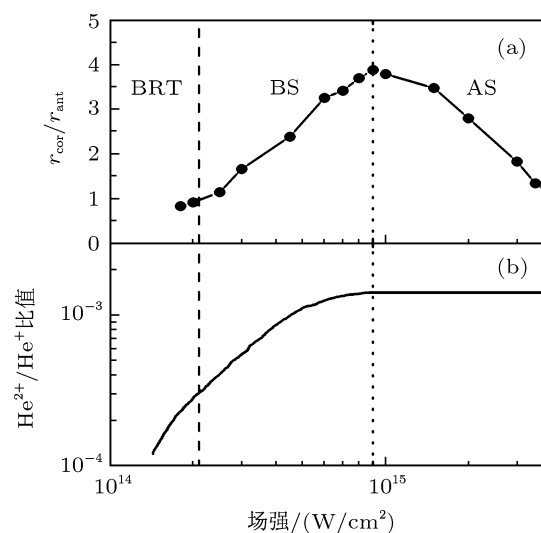


图 1 不同激光场强下, NSDI 中两个出射电子正负关联的比例 (a) 以及由文献 [1] 中得到的二价离子与一价离子的产率之比 (b). 其中虚线和点线分别为第一和第二个特殊场强的位置

为了更清楚地理解正负关联比例随场强的

变化过程, 我们统计了各种场强下最终双电离两个电子的 CLMS, 如图 2 所示. 可以看出在 BRT 区域 (图 2(a) 和图 2(b)) 为一方形结构, 且二四象限的比例稍微占优. 当场强进入到 BS 区域 (图 2(c) 到图 2(j)), 开始时出现了一个很明显的环状结构 (图 2(c) 到图 2(f)), 在低场强时处于二四象限的分布随着场强增大沿着这个环向一三象限流动, 直到光强为 0.6 PW/cm^2 时此环形结构断裂成为在一三象限占优的两团结构. 随着场强继续增加, 一方面二四象限距离坐标轴比较

远的分布向一三象限移动, 而在一三象限中处于直线 $p_1^{\parallel} = p_2^{\parallel}$ 附近的分布则向二四象限移动, 在场强处于饱和强度之下时前者占优, 因此正关联的几率仍然增加. 而当场强处于 AS 区时, 后者开始占优, 反关联的比例逐渐增加. 这样在饱和点附近形成了一个正负关联比例为极大值的点. 当场强达到近越垒区时 (大概 3 PW/cm^2), CLMS 的结构逐渐变成一个“X”形状, 并且随着场强继续增加, 此 X 形状的末端逐渐向二四象限弯曲, 这样也导致了一三象限的比例降低.

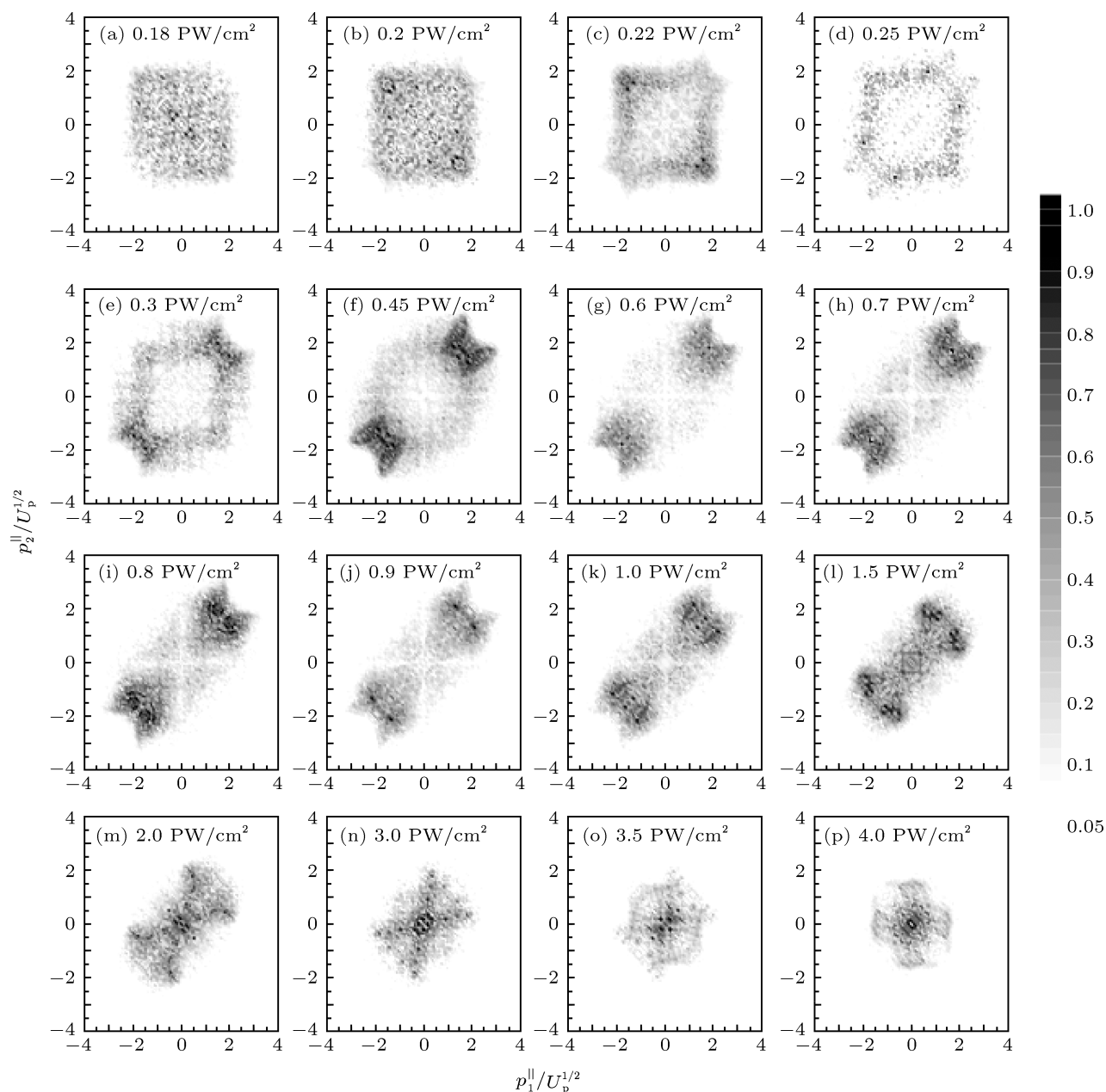


图 2 不同激光强度下, 非序列双电离的两个电子的纵向动量关联谱

3.2 机理分析

NSDI 中两个电子存在最大关联的场强意味着随着场强的变化, 电离机理发生了改变. 这里需要注意的是, 我们的计算结果显示即使场强高至接近于“Knee”结构末端 (4.0 PW/cm^2) 时, NSDI 依然占主导地位, 序列双电离的几率始终小于 10%, 这与文献 [17] 中的描述的在饱和区域主要发生的是序列双电离的机理不同. 这里我们将产生 NSDI 的机理分为三种: CETI, CEI 和 CI 机理. 第一个电子发生隧穿电离之后, 如果其中任何一个电子发生了激发隧穿电离, 我们就将其归为 CETI 机理. 另外两种双机理可以按照发生双电离与两个电子碰撞时刻的时间延迟划分 [18], 如果时间延迟超过 $T/4$, 其电离机理为 CEI, 否则为 CI 机理 [9]. 这三种机理对于 NSDI 贡献的相对几率以及在相同几率下对两个电子正负关联比例的作用分别如图 3 和图 4 所示. 从这两幅图可以看出两个明显的特征: (1) CI 机理总是对两个电子正关联的贡献占优, 并且对正负关联比例的作用随场强发生显著得变化. CEI 和 CETI

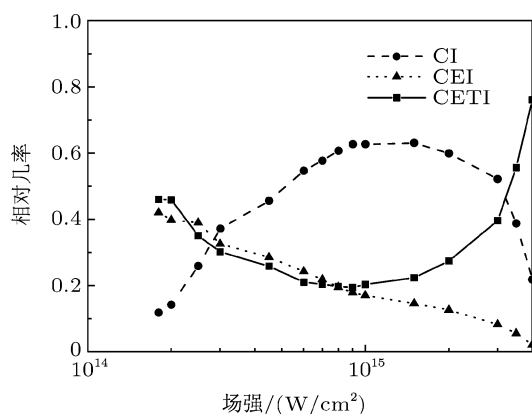


图 3 不同激光场强下, 贡献于 NSDI 三种机理的相对几率

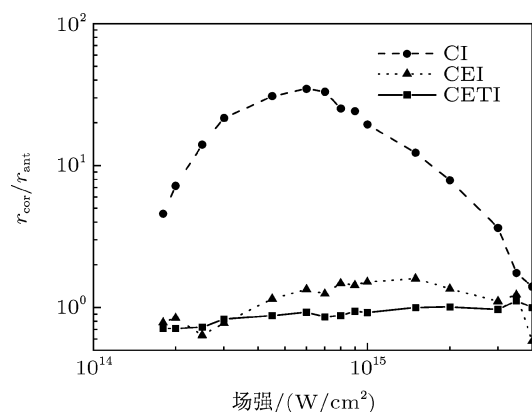


图 4 不同激光场强下, 贡献于 NSDI 的三种机理在几率相同的情况下对正负关联比例的作用

机理则主要贡献于负关联且在相同几率的情况下对正负关联的比例随场强变化不大 (图 4). (2) 在 BRT 场强区, 负关联增多的原因是 CEI 和 CETI 机理都占优, 而在 AS 区域则是因为随着场强增加 CETI 机理的比例迅速升高. 在 NSDI 整个区域 CI 机理在大多数场强范围 ($0.45\text{--}3 \text{ PW/cm}^2$) 占主导地位, 这也是在实验上经常观察到在 CLMS 中一三象限占优 [19] 和离子纵向动量谱中呈现双峰结构 [20,21] 的原因. 下面我们进一步分析在场强 0.9 PW/cm^2 处出现电子最大关联度的动力学过程, 由于在这个场强附近 CI 机理占主导地位, 因此在以下的分析中将仅考察这种机理在不同场强时对 NSDI 电子关联方式的表现.

我们通过对不同场强下 CI 机理的轨道“回溯”分析, 发现存在如图 5 所示的三类典型的轨道. CI 机理对两个电子的正负关联都有贡献. 正关联的轨道如图 5(a) 和 5(d) 所示, 隧穿电子在场强最强时电离出去, 在大约 0.75 个光周期之后, 经过了电场反向加速后再次回到了母体离子附近, 并与束缚在核附近的另一个电子发生碰撞. 碰撞之后两个电子由于都有足够的能量, 同时直接电离出去, 随后在激光场的作用下一同加速和减速, 最终沿着相同方向发射. 这种轨道在所有场强的 NSDI 中由 CI 机理导致的正关联的形式基本相同. 而贡献于负关联的轨道则与场强有关: 在低场强时, 如图 5(b) 和图 5(e) 所示, 在第二个电子发生再散射 ($1.05T$ 附近) 之前, 与正关联的轨道类似, 但是由于此时场强很低, 第一次发生双电离 ($1T$ 附近) 后, 其中一个电子 (图 5(b) 和图 5(e) 中为隧穿电子) 不能够被电离至离核很远的位置, 因此有可能随后被长程库仑势再次拉回到核附近并发生再散射使得动量发生了改变, 此时运动方向与第一个电子相反, 并且由于这时电场矢量很小, 在正则动量守恒的条件下最终两个电子仍然沿相反方向发射. 而场强更高时, 如图 5(c) 和 5(f) 所示, 当隧穿电子重新回到母核附近与束缚电子发生碰撞时拥有很大的动能, 因此在核附近停留的时间很短, 只交给了第二个电子很少一部分能量 (相对于自身能量而言), 之后仍然沿着之前的方向以很高的速度向前冲, 以至于在激光场结束后仍然保持前向运动. 但是第二个电子仅仅得到了能够使自己电离出去的能量, 在随后的激光场中改变了方向, 最终沿着与第一个电子相反的方向发射 (对于这种轨道更详细的分析见文献 [22]).

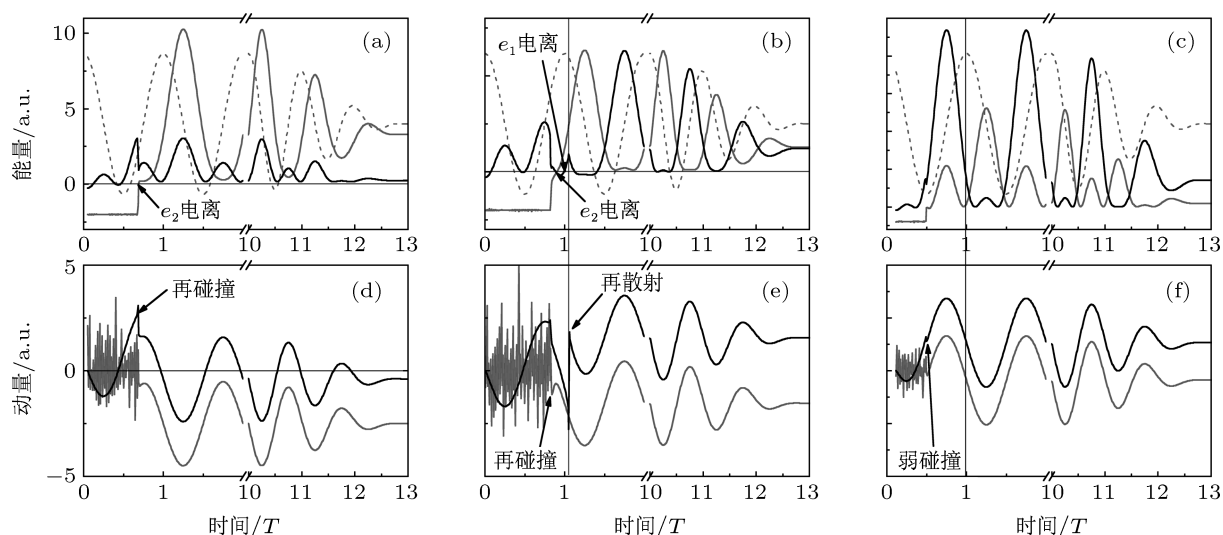


图5 NSDI中CI机理的典型轨道 (a), (d)和(b), (e)分别为在BS场强区域贡献于两个电子正关联和反关联的轨道, (c),(f)为AS区中贡献于反关联的轨道, 黑色和灰色曲线分别表示隧穿(第一个)和束缚(第二个)电子. (a)—(c)中的虚线表示激光场. (a), (b), (d)和(e)对应于场强为 0.45 PW/cm^2 时的情况, (c)和(f)对应的场强为 2 PW/cm^2 的情况

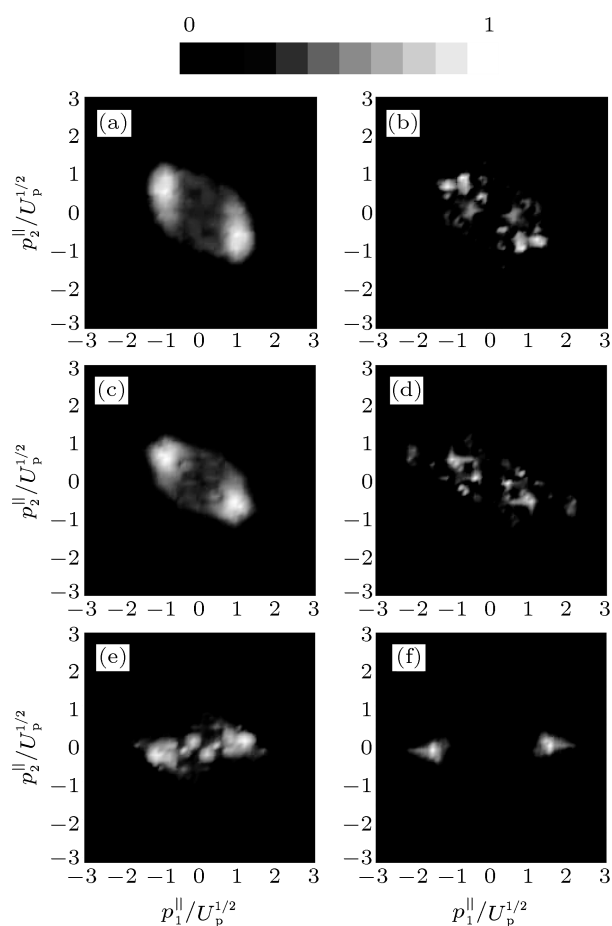


图6 在激光强度分别为 0.45 PW/cm^2 (第一行), 0.6 PW/cm^2 (第二行)和 4 PW/cm^2 (第三行)时, 由CI电离机理贡献的正关联(第一列)和反关联(第二列)轨道在刚碰撞后的CLMS. 每个子图都以自己的最大值做了归一化. 对应于从上到下三行的最大正关联和反关联之比分别为:18, 26和0.9

为了分析这三种CI轨道在不同场强下对NSDI的贡献几率, 我们将最终电子正关联和反关联的轨道分开研究, 分别统计它们在碰撞之后两个原子单位时刻的CLMS, 结果如图6所示. 研究的三种典型场强分别为 0.45 PW/cm^2 (图6(a)和6(b)), 0.6 PW/cm^2 (图6(c)和6(d)), 以及 4 PW/cm^2 (图6(e)和6(f)), 分别低于, 等于和高于相同几率下CI对NSDI中处在电子最大关联几率的场强(如图4(b)所示). 对比图6左右两列可以看出对于电子正关联的轨道两个电子碰撞后纵向动量在前两个场强下都集中分布于 $2\sqrt{U_p}$ 区域之内, 呈现出明显的反关联(分布于二四象限)占优的现象, 且都分布于二四象限对角线附近, 说明两个电子在碰撞时彼此强烈地排斥, 而最终能够沿相同方向发射说明碰撞后激光场起了主导作用. 在高场强时, 由于第一个电子返回时动量很大, 两个电子作用时间很短, 所以排斥作用不是很明显. 在反关联轨道中, 碰撞后的CLMS在三种强度下存在更明显的差别, 在低场强时, 两个电子在碰撞后的纵向动量都集中分布于 $2\sqrt{U_p}$ 范围内, 这意味着在刚碰撞后很短的一段时间内两个电子的运动与产生正关联的轨道类似, 至于最终却沿相反的方向发射的原因是在碰撞后很短的一段时间内其中一个电子类似于图5(b)和5(e)中所示的被核再捕获后在其作用下发生了再散射. 而在高场强时, 两个电子碰撞后动量大小有明显的差异, 第一个电子的运动比

第二个电子快得多,这是典型的如图 5(c) 和 5(f) 所示的弱碰撞轨道的特征.而在处于对电子正关联贡献最大的中等场强附近,这两种产生反关联的机理都得到了抑制(如图 6(e) 和图 6(f) 所示,内侧的两团分布为第一种机理的特征,外侧的两个斑点为第二种机理),因此在此种情况下正反关联的几率之比变大.

4 结论

虽然强场中原子的 NSDI 研究 20 多年了,但是要完全认识其中的规律还有很长的路.随着最近在 BRT 区域中 CLMS 中二四象限占优以及高强度区域反关联几率的增加现象的发现,可以看出这个领域仍然有很多有待探讨的地方.我们采用三维半经典再散射模型系统地研究了整个 NSDI 场强区域 He 原子的双电离现象,以求能够揭示在各种场强下的 NSDI 机理.首先,我们统计了发生双电离的两个电子正反关联的比例随场强变化的情况,发现存在两个特征场强,分别对应于阈值场强和两个电子最大关联度的场强,而且后者处于向双电离饱和区过渡的区域.这两个特征场强可以将 NSDI 电离的整个场强范围划分为 BRT, BS 和 AS 三个区域.在两个电子的 CLMS 中可以更加详细地看出随着场强增加两个电子正反关联转化的整个过程,随着

场强增大,从 BRT 进入到 BS 区域时 CLMS 由方形变成了一个环状结构,二四象限的电子在场强不断增加的情况下沿着这个环逐渐向一三象限流动,使得正关联的比例不断升高.之后,环状结构破裂,随着分布于二四象限外围的电子向一三象限流动的同时,沿着一三象限分布于主对角线附近的电子向二四象限流动,开始时前者占优,正反关联的比例持续增加,当场强增加到一定值后,后者起主导作用,使得正反关联的比例减小.随后我们对三种产生 NSDI 的机理分开研究,并统计了它们在各种场强所占的比例和相同几率下对正反关联所做的贡献,发现在两个电子最大关联度附近主要是 CI 机理在起作用,因此在本文最后的分析中我们集中考察了这种机理,并发现在低场强时主要是因为碰撞后其中一个电子被核再捕获而发生了再散射导致了两个电子最终反关联增多,而高场强时则由于两个电子碰撞时第一个电子的动能过大使得它们相互作用的时间变短,从而交换能量变小,碰撞后第一个电子由于损失了很小的能量而最终仍然保持前向(相对于碰撞前第一个电子的运动方向),但是第二个电子在随后的激光场中反向,最终两个电子的反关联比例也增大.而在处于向饱和区域过渡的中等场强下这两种机理均被抑制,使得正反关联的几率之比最大.

- [1] Walker B, Sheehy B, DiMauro L F, Agostini P, Schafer K J, Kulander K C 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 1227
- [2] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [3] Feuerstein B, Moshhammer R, Fischer D, Dorn A, Schröter C D, 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
- [4] Liu Y, Tschuch S, Rudenko A, Dürr M, Siegel M, Morgner U, Moshhammer R, Ullrich J 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 053001
- [5] Ye D F, Liu J 2010 *Phys. Rev. A* **81** 043402
- [6] Haan S L, Smith Z S, Shomsky K N, Plantinga P W, Atallah T L 2010 *Phys. Rev. A* **81** 023409
- [7] Hu B, Liu J, Chen S G 1997 *Phys. Lett. A* **236** 533
- [8] Fu L B, Liu J, Chen J, Chen S G 2001 *Phys. Rev. A* **63** 043416
- [9] Liu J, Ye D F, Chen J, Liu X 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 013003
- [10] Li H Y, Wang B B, Jiang H B, Chen J, Li X F, Liu J, Gong Q H, Fu P M 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 124 (in Chinese) [李洪云, 王兵兵, 蒋红兵, 陈京, 李晓峰, 刘杰, 龚旗煌, 傅盘铭 2008 物理学报 **57** 124]
- [11] Xin G G, Ye D F, Zhao Q, Liu J 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 093204 (in Chinese) [辛国国, 叶地发, 刘杰 2011 物理学报 **60** 093204]
- [12] Li Y, Yang S P, Jia X Y, Chen J 2010 *Chin. Phys. B* **19** 043303
- [13] Wei Y N, Yang S P 2009 *Acta Phys. Sin.* **59** 7788 (in Chinese) [魏雅娜, 杨世平 2009 物理学报 **59** 7788]
- [14] Ammosov M V, Delone N B, Krainov V P 1986 *Sov. Phys. JETP* **64** 1191
- [15] Abrines R, Percival I C 1966 *Proc. Phys. Soc.* **88** 861
- [16] Cohen J S 2001 *Phys. Rev. A* **64** 043412
- [17] Becker A, Faisal F.H.M 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 3546
- [18] Haan S L, Breen L, Karim A, Eberly J H 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 103008
- [19] Weber T H, Gllessen H, Weckenbrock M, Staudte A, Spielberger, Jagutzki O, Mergel V, Vollmer M, Dörner R 2000 *Nature* **405** 658
- [20] Weber Th, Weckenbrock M, Staudte A, Spielberger L, Jagutzki O, Mergel V, Afaneh F, Urbasch G, Vollmer M, Giessen H, Dörner R 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 443
- [21] Moshhammer R, Feuerstein B, Schmitt W, Dorn A, Schröter, Ullrich J 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 447
- [22] Xin G G, Ye D F, and Liu J 2010 *Phys. Rev. A* **82** 063423

Maximum correlation at the transition to the saturation regime of nonsequential double ionization*

Xin Guo-Guo¹⁾ Zhao Qing¹⁾ Liu Jie^{1)2)†}

1) (*School of Science, Beijing Institute of Technology, Beijing 100081, China*)

2) (*Science and Technology Computation Physics Laboratory, Institute of Applied Physics and Computational Mathematics, Beijing 100088, China*)

(Received 11 September 2011; revised manuscript received 30 September 2011)

Abstract

The nonsequential double ionization of helium in the laser with intensities ranging from below the recolliding ionization threshold to near the sequential double ionization regime is studied systematically. We obtain the probability ratio between correlation and anti-correlation of the two final electrons, and find the maximum ratio is in the transition region to the saturation regime of nonsequential double ionization. The maximum ratio generation course is shown in correlated two-electron longitudinal momentum spectrum, and the deep mechanism is investigated by orbit back-trace analysis. The rescattering of one electron after recollision and the high speed recollision of the tunneled electron lead to the increases of anticorrelation ratio in low- and high- intensity laser fields respectively.

Keywords: strong field, nonsequential double ionization, rescattering

PACS: 32.80.Rm, 42.5.Hz, 33.80.Fb

* Project supported by the Ministry of Science and Technology of China (Grant No. 2009IM033000).

† E-mail: liu_jie@iapcm.ac.cn