

原子激发态在高频强激光作用下的光电离研究*

田原野¹⁾ 郭福明¹⁾ 曾思良²⁾³⁾ 杨玉军^{1)†}

1) (吉林大学原子与分子物理研究所, 长春 130012)

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)

3) (北京应用物理与计算数学研究所, 高能量密度物性数据中心, 北京 100088)

(2013年1月14日收到; 2013年2月26日收到修改稿)

本文通过数值求解动量空间的三维含时薛定谔方程, 研究了原子高激发态在高频激光脉冲作用下, 在电离阈值附近的光电子能谱和两维动量角分布. 研究表明: 在该能量范围内, 单光子电离过程的贡献是最主要的. 体系初态的主量子数可以由光电子能谱峰值的位置来确定; 体系初态的角量子数可以通过光电子的两维动量角度分布确定. 在比较宽泛的参数范围内, 这一规律不随入射激光的强度和脉冲时间宽度的改变而改变, 因此原则上可以利用它对原子的初态进行识别. 此外, 还研究了体系的初态为相干叠加态, 光电子动量谱随着叠加态相对相位的变化规律.

关键词: 阈上电离, 激发态, 高频激光脉冲, 两维动量角度分布

PACS: 32.80.Rm, 42.50.Hz

DOI: 10.7498/aps.62.113201

1 引言

随着强激光脉冲技术的发展, 人们已经能够利用激光脉冲与原子分子相互作用, 观察到高次谐波发射 (HHG), 阈上电离 (ATI), 非序列双电子电离等强场物理现象^[1-3]. 其中一个典型的非微扰物理现象就是 ATI. 一般而言, ATI 谱呈现出两个平台结构, 分别对应束缚态电子的直接电离和再散射电离过程. 对此, 人们已经进行了广泛的研究^[4-11]. 此外, ATI 光电子能谱还可以用于探测激光脉冲的载波包络相位^[12,13], 以及原子、分子的内部结构^[14,15].

长期以来, 高频强场与原子分子的相互作用多集中于理论研究. 如, 原子的动力学稳定问题: 在动力学稳定区域, 在高频强激光作用下, 光电子谱呈现出明显的干涉相图, 有复杂的峰值结构. 这些结构的产生可以归结为在激光脉冲上升沿和下降沿, 电离电子之间的干涉效应^[16,17]. 随着

HHG 和自由电子激光技术的发展, 尤其是在德国 (Free-electron Laser in Hamburg), 美国 (Linac Coherent Light Source) 以及日本 (Spring-8 Compact SASE Source) 的自由电子光源装置的服役, 实验上已经可以获得亮度很高、波长很短的激光脉冲^[18-23]. 因此从实验上利用高频强激光精细研究原子的电离过程成为可能.

本文将聚焦于高频强场与激发态原子的相互作用问题, 着重考察阈值附近 ATI 光电子能谱和动量角度分布. 系统考察 ATI 谱与体系初态间的关联, 并研究如何对体系初态的波函数进行识别的新方案. 与之前人们常采用的 HHG 信号对原子、分子波函数识别的方案不同. 在 HHG 方案中, 根据“三步”模型, 初态电子要经历电离、在激光场中的运动, 和再散射三个过程才能和谐波信号关联起来. 相比之下, 本文拟采用的方案更为直接, 只利用直接电离信号对体系的初态进行识别. 从原则上讲, 信噪比更高.

若无特殊说明, 本文均采用原子单位.

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2013CB922200)、国家自然科学基金 (批准号: 11274141, 11034003, 11274001) 和中国工程物理研究院科学技术发展基金 (批准号: 2011B0102026) 资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: yangyj@jlu.edu.cn

2 理论方法

为了描述激发态原子在强激光作用下的光电子发射谱,我们采用含时伪谱方案,在动量空间求解体系的含时薛定谔方程^[24].在速度规范下和偶极近似下,原子在强激光场作用下的含时薛定谔方程为

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(r, t) = \left[\frac{\hat{p}^2}{2} + \frac{1}{c} A(t) \cdot \hat{p} + U(r) \right] \Psi(r, t), \quad (1)$$

这里, c 是光速, $A(t)$ 是激光场的矢势, $U(r)$ 是原子的库仑势. 动量空间的波函数 $\Phi(k, t)$ 可以由坐标空间的波函数 $\Psi(r, t)$ 做傅里叶变换得到

$$\Phi(k, t) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \int \Psi(r, t) \exp(-ik \cdot r) dr. \quad (2)$$

将方程(2)代入方程(1),可以得到动量空间的含时薛定谔方程,该方程是一个微分积分方程

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Phi(k, t) = \frac{k^2}{2} \Phi(k, t) + \frac{1}{c} A(t) \cdot k \Phi(k, t) + \int V(k, k') \Phi(k', t) dk', \quad (3)$$

其中动量空间的库仑势定义为

$$V(k, k') = \frac{1}{(2\pi)^3} \int U(r) \exp[i(k' - k) \cdot r] dr. \quad (4)$$

对于核电荷数为 Z 的类氢体系上式可简化为^[25]

$$V(k, k') = -\frac{Z}{2\pi^2} \frac{1}{|k - k'|^2}. \quad (5)$$

设入射线偏振激光电场的方向为 z , 则体系关于 z 轴对称, 动量空间的波函数可以进行分波展开:

$$\Phi(k, t) = \frac{1}{k} \sum_{l=0}^{l_{\max}} \phi_l(k, t) Y_{l0}(\theta, \varphi), \quad (6)$$

其中 l_{\max} 是最大分波数, $\phi_l(k, t)$ 是径向波函数, $Y_{lm}(\theta, \varphi)$ 是球谐函数. 对于氢原子, 库仑势方程(5)可以利用分波展开为^[25-27]

$$V(k, k') = \frac{1}{kk'} \sum_{l=0}^{l_{\max}} \sum_{m=-l}^l V_l(k, k') \times Y_{lm}(\theta, \varphi) Y_{lm}^*(\theta', \varphi'), \quad (7)$$

其中 $k = |k|$,

$$V_l(k, k') = -\frac{Z}{\pi} Q_l \left(\frac{k^2 + k'^2}{2kk'} \right), \quad (8)$$

这里的 $Q_l(z)$ 为第二类勒让德函数.

采用含时广义伪谱方案^[24], 在动量空间求解(3)式, 得到体系任意时刻的含时波函数. 在激光

脉冲结束时, 将体系的波函数向无外场时体系的本征态做投影, 可以得到各态的布居系数. 根据散射态的定义, 计算得到对应的光电子谱角分布^[28]. 若 $b_l(\varepsilon, t)$ 为能量归一化的连续态布居振幅. 则一重微分电离截面为

$$\frac{dP_\varepsilon}{d\varepsilon} = \sum_l |b_l(\varepsilon, t)|^2. \quad (9)$$

将散射连续态

$$\Psi^- = 4\pi \sqrt{\frac{\pi}{2k}} \sum_l \sum_{m=-l}^l (i)^l e^{-i\delta_l} \times Y_{lm}^*(\mathbf{k}) Y_{lm}(\mathbf{r}) R_{kl}(r), \quad (10)$$

向脉冲结束时刻的波函数做投影, 得到光电子的角分布

$$\frac{d^2 P_\varepsilon(\mathbf{k}, t)}{d\mathbf{k} d\varepsilon} = \left| \sum_l \sum_{m=-l}^l (-i)^l e^{i\delta_l} Y_{lm}(\mathbf{k}) b_l(\varepsilon, t) \right|^2. \quad (11)$$

对于线性偏振激光脉冲的情形, 简化为

$$\frac{d^2 P_\varepsilon(\vartheta, t)}{d\vartheta d\varepsilon} = \left| \sum_l (-i)^l e^{i\delta_l} Y_{l0}(\vartheta) b_l(\varepsilon, t) \right|^2. \quad (12)$$

3 结果与分析

选择入射激光电场方向为 z 方向的线偏振激光脉冲, 激光脉冲的电场矢势为

$$A(t) = e_z \frac{c\varepsilon_0}{\omega} f(t) \sin(\omega t + \alpha), \quad (13)$$

这里 α 为载波包络相位, 这里 α 设置为 0, 其中包络形式为 $f(t) = \sin^2\left(\frac{\pi t}{2\tau_R}\right)$, τ_R 为光学周期数目. ε_0 和 ω 为激光脉冲的电场峰值振幅和频率, 本文选择的入射激光频率为 1.

利用伪谱方案, 首先计算了氢原子的各个本征态. 图 1 给出了氢原子 5s, 5p, 5d 和 5f 在动量空间的波函数. 在含时伪谱方案中, 我们采用变步长的方法, 在动量很小的区域, 选择足够多的计算网格点, 对于空间较大的区域, 选择的计算网格点较少, 同时可以保证计算的边界足够大. 选择动量径向网格点数目为 1000 时, 就可以将基态能量和精确解差值降低到 10^{-9} . 进而为进一步的波函数含时演化奠定基础.

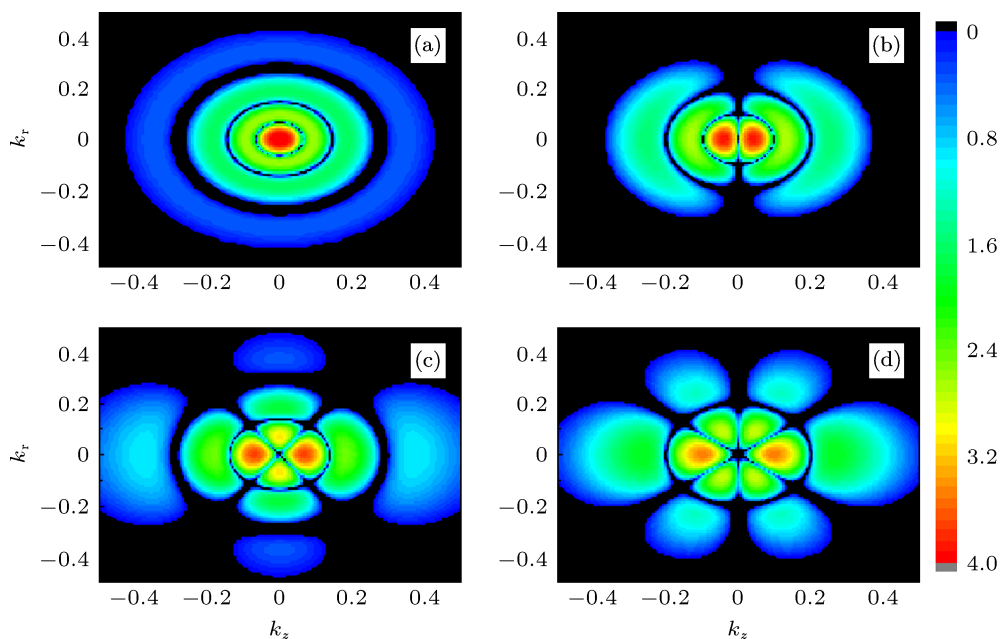
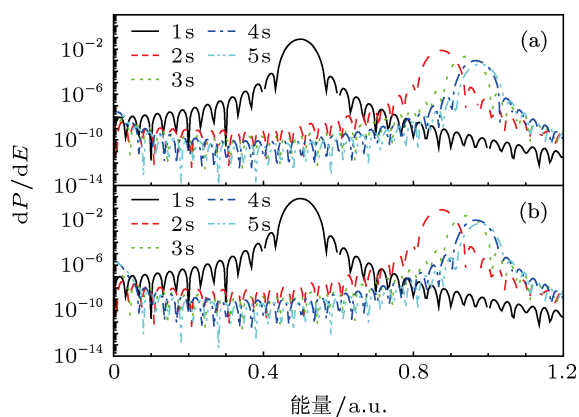


图1 动量空间氢原子激发态波函数 (a) 5s; (b) 5p; (c) 5d; (d) 5f

基于时间演化得到的含时波函数, 我们计算了初态为不同激发态光电子能谱. 这里选择体系的初态分别为氢原子的 1s, 2s, 3s, 4s 和 5s. 为了一般起见, 设入射激光的持续时间为 30 个光学周期, 激光的频率为 1 个原子单位, 强度为 10^{13} W/cm². 在该电场作用下, 体系不同初态的 ATI 光电子能谱如图 2(a) 所示. 从图中可以看出, ATI 谱呈现出明显的峰值结构. 随着不同初态主量子数 n 的增加, 第一个 ATI 的峰值位置逐渐向高能移动. 峰值位置满足公式 $E_k = \omega - I_p - U_p$, 这里 ω 是激光的频率, I_p 和 U_p 分别为体系的电离能和激光场的有质动力势. 图 2(b) 给出了激光强度为 10^{14} W/cm² 的结果. 由于在两组激光强度下, 激光场的有质动力势的数值很小, 可以忽略不计, 因此 ATI 光电子谱的峰值位置仅和初态的 I_p 相关. 利用这一规律, 在一定的激光强度范围内, 可以对初态的主量子数进行判断.

为了研究如何对初态波函数的角量子数进行识别, 我们进一步研究了不同初态的光电子谱动量角度分布. 不失一般性, 设入射激光的频率为 1, 脉冲强度为 10^{13} W/cm², τ_R 为 5 个光学周期, 假设体系的初始状态分别为氢原子的 5s, 5p, 5d 和 5f. 在该激光场的作用下, 不同初态的光电子动量角度分布如图 3 所示. 从图中可以看出, 对于不同的初态, 在关注的动量范围内, 主要有两个发射区域, 一个是在动量为 0 附近, 另一个是在动量为 1.4 附近. 在

这个能量范围内, 都是以单光子电离过程为主. 对于某一个初态, 由于单光子吸收, 其对应的量子数增加 1. 各个不同初态的差别在于角度的分布差别: 随着角度量子数 l 的增加, 角度分布中花瓣的数目相应地增加到 $2(l+1)$. 该光电子动量角度分布环呈现规律的增加.


 图2 入射激光为 30 个周期, 频率为 1 a.u., 强度分别为 (a) 10^{13} W/cm²; (b) 10^{14} W/cm², 原子体系初态分别为 1s, 2s, 3s, 4s 和 5s 的 ATI 谱

此外, 为了研究激光参数对这个规律的影响, 我们改变了激光脉冲强度和激光脉冲的宽度. 将激光强度从 10^{13} W/cm² 提高到 10^{15} W/cm², 对于初态为 5p 的情形, 在 5 个光学周期激光脉冲作用下的光电子动量角度分布谱如图 4(a) 和 (b) 所示. 从

图中可以看出, 光电子动量角度分布基本呈现相同的结构, 主要的差别在于, 对于更高的激光强度, 对应的电离概率更高. 在激光强度不变的条件下, 原子初态为 5p, 我们计算了激光脉冲持续时间分别为 1 和 30 个光学周期的光电子动量角度分布谱. 从图 4(c) 和 (d) 可以看出, 随着激光脉冲持续时间的增加, 在能量为 1 附近的强度逐渐增强, 在动量为 0 附近的发射强度逐渐降低. 但其角度分布仍呈现出相同的规律. 通过对不同激光参数作用下电子动量分布的分析, 在入射光强不是很高的条件下, 该规律并不随着入射激光参数发生变化. 从 (12)

式可以看出, 光电子的动量角度分布和所有分波 $b_l(\epsilon, t)$ 求和的模方成正比, 在高频激光脉冲作用下, 在低能区主要是单光子吸收, 对于给定的初态, 由于单光子过程, 只有对应的一个 $b_{l'}(\epsilon, t)$, 因此 (12) 式可以简化为 $\frac{d^2 P_\epsilon(\vartheta, t)}{d\vartheta d\epsilon} = |(-i)^{l'} Y_{l'0}(\vartheta) b_{l'}(\epsilon, t)|^2$. 由此, 可以根据光电子谱角分布信息确定初态的角动量信息. 结合光电子的动量分布和 ATI 谱, 我们可以实现对体系初态的识别: 通过光电子动量角度分布谱确定角量子数 l , 利用 ATI 谱峰值位置确定主量子数 n .

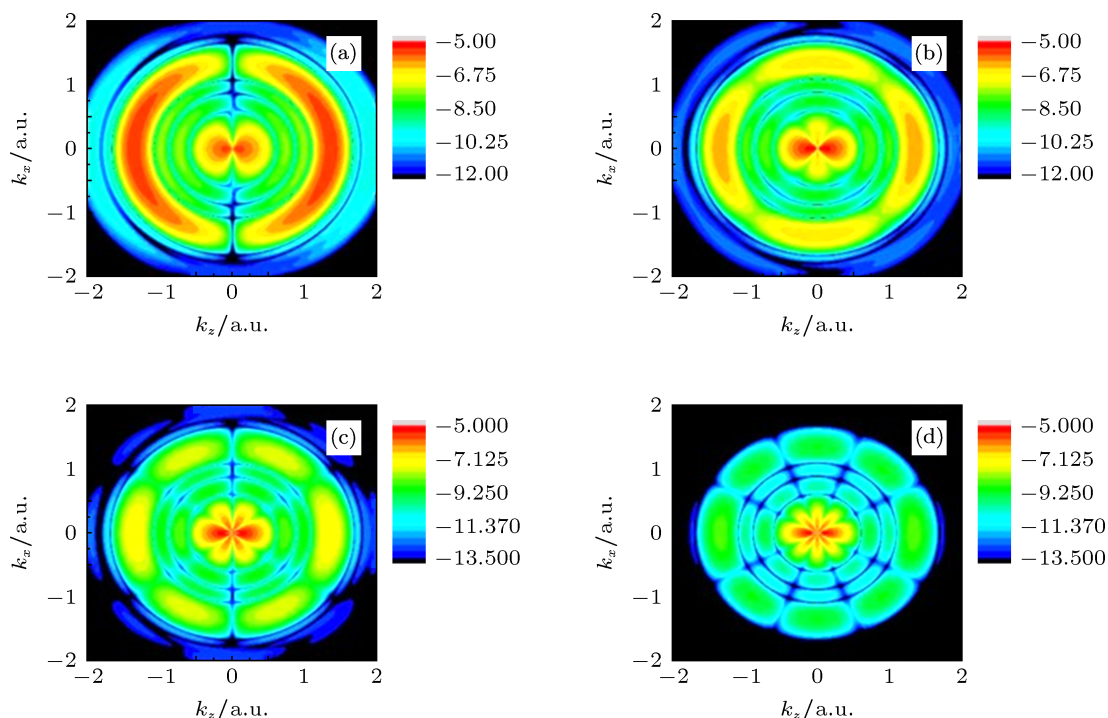


图 3 入射激光为 5 个周期, 频率为 1 a.u., 强度为 10^{13} W/cm², (a), (b), (c) 和 (d) 分别对应原子体系初态为 5s, 5p, 5d 和 5f 的光电子动量角度分布

在对初态为纯态的结构识别基础上, 还可以对体系初态为相干叠加态的原子进行识别. 对于体系为叠加态的原子, 由于是单电子过程, 因此可以分析其 ATI 能谱信息, 确定该光电子分别来源于哪一个 n . 同时计算不同分波的投影 $b_{l'}(\epsilon, t)$, 进而确定对应的初始叠加态中的 l , 同时还可以确定不同的权重信息. 为了准确对体系初态为叠加态的原子结构识别, 还需要给出叠加态之间的相对相位信息. 为了确定叠加态相对相位, 为此我们计算了不同初始相干态相位的光电子动量分布信息. 选择的激光

脉冲为 5 个光学周期, 强度为 5×10^{14} W/cm². 选择的初态为 5s 和 5p 的叠加态:

$$\Psi(r) = \sqrt{\frac{1}{2}} \varphi_{5s}(r) + e^{i\delta} \sqrt{\frac{1}{2}} \varphi_{5p}(r). \quad (14)$$

计算结果表明: 由于初态不再是纯态, 其动量分布呈现出非对称结构. 我们在动量空间, 对 x 方向积分, 得到在激光电场方向的光电子动量分布. 通过改变两个激发态的相对相位, 我们得到了对应的光电子发射谱的动量分布, 如图 5 所示. 从图中可以看出, 随着相对相位的变化, 动量分布的峰值从一

侧转换到另一侧, 因此可以在实验上通过探测不同方向动量的分布来探测叠加态中两个初态的相对

相位. 尽管本文的识别方案主要是针对原子的初态, 但原则上可以将该方案推广到对分子结构的探测.

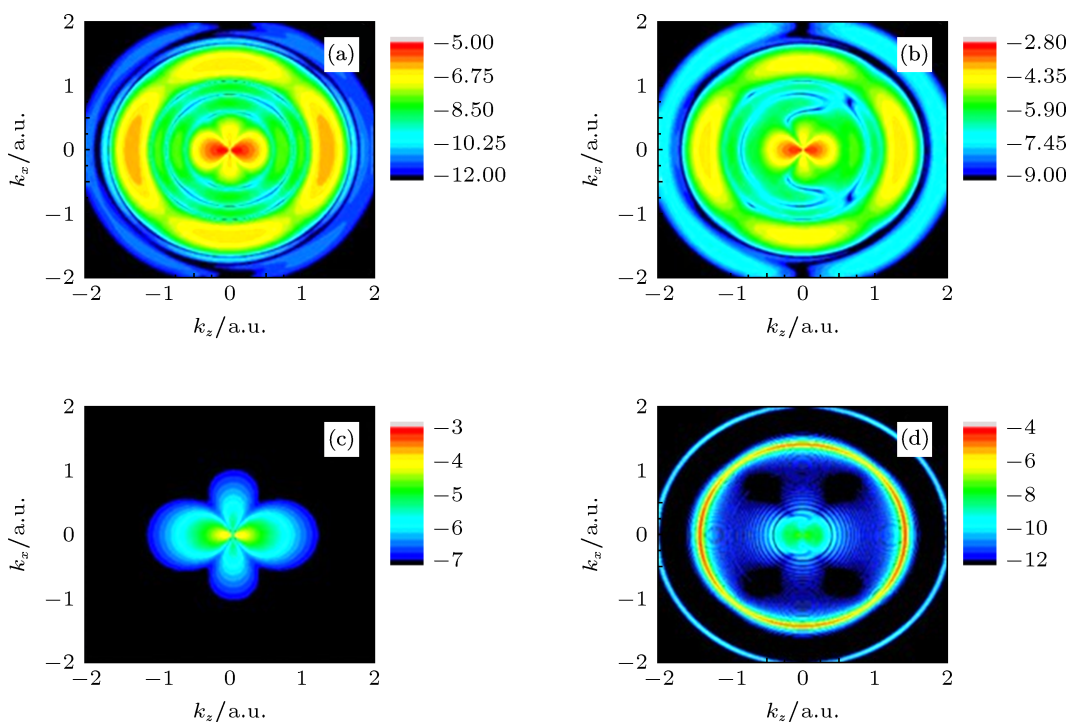


图 4 初态为 5p 的光电子动量角度分布 (a), (b) 分别表示入射激光频率为 1 a.u., 强度为 10^{13} W/cm² 和 10^{15} W/cm², 5 个光学周期; (c), (d) 分别表示脉冲持续时间为 1 和 30 个光学周期, 强度为 10^{13} W/cm²

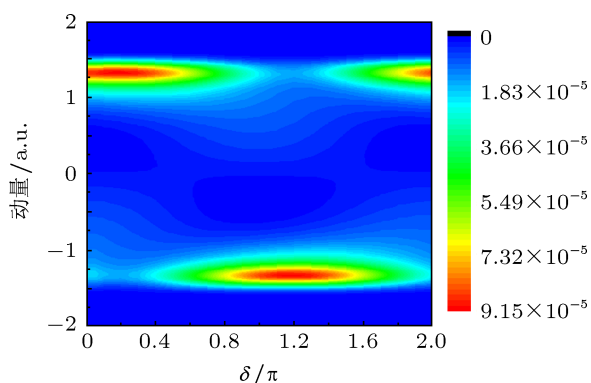


图 5 相对相位 δ 和动量积分谱的依赖关系. 初态为 $\sqrt{\frac{1}{2}}\varphi_{5s}(r) + e^{i\delta}\sqrt{\frac{1}{2}}\varphi_{5p}(r)$, 激光频率为 1 a.u., 强度为 10^{15} W/cm², 5 个光学周期

4 结论

本文基于含时伪谱方案在动量空间数值求解

三维含时薛定谔方程, 系统地研究了原子的激发态在高频激光脉冲作用下的光电离问题, 给出了电离阈值附近的 ATI 光电子能谱和二维动量角分布. 通过对 ATI 光电子能谱和二维动量谱的分析, 可以分别确定体系初态的主量子数 n 和角量子数 l , 从而实现原子初态的识别. 对于体系初态为纯态的情形, 光电子动量角度分布呈现的圆环规律特征不随入射激光脉冲强度和脉宽改变而改变; 对于体系初态为叠加态情形, 出现了有趣的非对称结构. 通过改变叠加态的相对位相, 相应的光电子动量角度分布的对称性也随之发生变化. 值得指出的是, 与通常采用 HHG 对初态波函数成像的方法不同 (其中包含了电离电子的再散射过程), 本文提出的方法利用的是高频激光脉冲的直接电离过程, 电离电子携带了初态波函数的信息. 原则上讲, 本方法的信息的提取更为准确和直接.

- [1] Macklin J J, Kmetec J D, Gordon C L 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 766
- [2] Walker B, Sheehy B, DiMauro L F, Agostini P, Schafer K J, Kulander K C 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 1227
- [3] Wang B B, Li X F, Gao L H, Fu P M, Guo D S, Freeman R R 2001 *Chin. Phys. Lett.* **18** 1199
- [4] Cormier E, Garzella D, Breger P, Agostini P, Cheriaux G, Leblanc C 2001 *J. Phys. B* **34** L9
- [5] Becker W, Grasbon F, Kopold R, Milosevic D B, Paulus G G, Walther H 2002 *Advances in Atomic, Molecular, and Optical Physics* **48** 35
- [6] Grasbon F, Paulus G G, Walther H, Villoresi P, Sansone G, Stagira S, Nisoli M, Silverstri S 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 173003
- [7] Armstrong G S J, Parker J S, Taylor K T 2011 *New. J. Phys.* **13** 013024
- [8] Paulus G G, Nicklich W, Xu H, Lambropoulos P, Walther H 1994 *Phys. Rev. Lett.* **72** 2851
- [9] Toyota K, Tolstikhin O I, Morishita T, Watanabe S 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 153003
- [10] Telnov D A, Chu S I 2009 *Phys. Rev. A* **79** 043421
- [11] Tian Y Y, Guo F M, Yang Y J, The effect of atomic potential on above threshold ionization (to be published)
- [12] Tong X M, Hino K, Toshima N 2008 *Phys. Rev. A* **74** 031405(R)
- [13] Kling M F, Rauschenberger J, Verhoef A J, Hasovic E, Uphues T, Milosevic D B, Muller H G, Vrakking M J J 2008 *New. Journal. Phys.* **10** 025024
- [14] Meckel M, Comtois D, Zeidler D, Staudte A, Pavicic D, Bandulet H C, Pepin H, Kieffer J C, Dornier R, Villeneuve D M, Corkum P B 2008 *Science* **320** 1478
- [15] van der Zwan E V, Lein M 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 043004
- [16] Ebadi H, Keitel C H, Hatsagortsyan 2011 *Phys. Rev. A* **83** 063418
- [17] Ebadi H 2012 *J. Opt. Soc. Am. B* **29** 2503
- [18] Song Y, Guo F M, Li S Y, Chen J G, Zeng S L, Yang Y J 2012 *Phys. Rev. A* **86** 033424
- [19] Yang Y J, Chen J G, Chi F P, Zhu Q R, Zhang H X, Sun J Z 2007 *Chin. Phys. Lett.* **24** 1537
- [20] Chen J G, Wang R Q, Zhai Z, Chen J, Fu P M, Wang B B, Liu W M 2012 *Phys. Rev. A* **86** 033417
- [21] <http://hasylab.desy.de/facilities/flash/>, <http://lcls.slac.stanford.edu/>, <http://www-xfel.spring8.or.jp/> [2013-01-15]
- [22] Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, Yakovlev V S, Gagnon J, Uiberacker M, Aquila A L, Gullikson E M, Attwood D T, Kienberger R, Krausz F, Kleineberg U 2008 *Science* **320** 1614
- [23] Chen J G, Yang Y J, Zeng S L, Liang H Q 2011 *Phys. Rev. A* **83** 023401
- [24] Zhou Z Y, Chu S I 2011 *Phys. Rev. A* **83** 013405
- [25] Landau R H 1983 *Phys. Rev. C* **27** 2191
- [26] Maung K M, Kahana D E, Norbury J W 1993 *Phys. Rev. D* **47** 1182
- [27] Norbury J W, Maung K M, Kahana D E 1994 *Phys. Rev. A* **50** 2075
- [28] Dionissopoulou S, Mercouris T, Lyras A, Nicolaidis C A 1997 *Phys. Rev. A* **55** 4397

Investigation of photoionization of excited atom irradiated by the high-frequency intense laser*

Tian Yuan-Ye¹⁾ Guo Fu-Ming¹⁾ Zeng Si-Liang²⁾³⁾ Yang Yu-Jun^{1)†}

1) (*Institute of Atomic and Molecular Physics, Jilin University, Changchun 130012, China*)

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

3) (*Data Center for High Energy Density Physics, Institute of Applied Physics and Computational Mathematics, Beijing 100088, China*)

(Received 14 January 2013; revised manuscript received 26 February 2013)

Abstract

Solving numerically the time-dependent Schrödinger equation in three-dimensional momentum space, we have investigated the energy spectroscopy and two-dimensional momentum angular distribution near the ionization threshold of the photoelectron generated from excited atom under the action of high-frequency laser pulse. The results show that the ionized process is mainly the single-photon ionization in this energy range. The principal quantum number of the initial state can be determined by the position of the first peak in photoelectron spectrum; its angular quantum number of the initial state can be determined by the angular distribution of the two-dimensional momentum of the photoelectron. This law does not change with the variation of the intensity and pulse duration of the incident laser pulse within a relatively broad range of these parameters. In principle, we can utilize these spectra to identify the initial state of the atoms. In addition, the photoelectron momentum spectrum of superposition state is investigated for different relative phase of the state.

Keywords: above threshold ionization, excited state, high-frequency laser pulse, two-dimensional momentum angular distribution

PACS: 32.80.Rm, 42.50.Hz

DOI: 10.7498/aps.62.113201

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2013CB922200), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11274141, 11034003, 11274001), and the Science and Technology Funds of China Academy of Engineering Physics (Grant No. 2011B0102026).

† Corresponding author. E-mail: yangyj@jlu.edu.cn