

共振条件下载波包络相位效应对阈上电离谱的影响*

田原野 魏珊珊 郭福明 李苏宇 杨玉军†

(吉林大学原子与分子物理研究所, 长春 130012)

(2013年3月18日收到; 2013年4月25日收到修改稿)

本文通过求解三维含时薛定谔方程, 从理论上研究了共振条件下氢原子的光电子能谱与角分布随着激光脉冲载波包络相位 (CEP) 的变化规律. 研究表明: 在共振位置附近, 光电子能谱的强度与 CEP 有强烈的依赖关系; 进一步对各个分波的分析, 可以确定共振电离初态的角量子数. 此外, 利用光电子的角分布信息, 可以对多周期激光脉冲的初始相位信息进行高精度探测.

关键词: 阈上电离, 超短脉冲, 载波包络相位

PACS: 32.80.Rm, 42.50.Hz

DOI: 10.7498/aps.62.153202

1 引言

随着激光技术的发展, 人们可以获得的激光电场强度已经接近乃至高于原子内价电子所能感受核作用的电场强度^[1]. 利用如此高强度的激光脉冲与原子分子相互作用, 人们发现了阈上电离 (above threshold ionization, ATI)、高次谐波产生和非序列电离等强场现象^[2-6]. 当激光的脉冲宽度逐渐减小到几个光学周期时, 相应的物理现象和入射激光脉冲的载波包络相位 (CEP) 息息相关^[7,8], 如在原子中电子的光电离^[9-16], 高次谐波的产生^[17,21]以及分子离子的解离^[22,23]等过程中均观察到明显的 CEP 效应.

超短的 CEP 可控的强激光脉冲有着重要的应用, 如通过选择某一特定的相位稳定的脉冲, 人们可以在实验上产生孤立的阿秒激光脉冲, 利用 CEP 不同的脉冲与原子分子相互作用, 可以在阿秒尺度内观察电子的超快动力学过程^[16,19]. 而如何准确表征超短激光脉冲的 CEP 效应需要借助于对电离原子的阈上电离谱的观测^[24,25]. 对于 ATI 的 CEP 效应研究, 人们利用强场近似和数值模拟分别在隧穿区的光电子谱发射进行了研究和分析, 其研究结果和实验符合得很好, 进而证明可以利用该方案对

激光脉冲的 CEP 进行标定. 利用 ATI 可以对 CEP 探测的原理是在隧穿电离过程中, 电子的 ATI 谱的分布由激光电场决定, 对于不同 CEP 的超短激光脉冲, 其电场强度分布存在很大差别. 值得指出的是: 在这些研究中没有考虑到 Freeman 共振效应^[26]的影响, Freeman 共振是指在短激光脉冲作用下, 电子在基态和较高激发态之间的共振效应, 由于共振效应的存在, 电子除了直接从基态电离, 还有机会从较高里德堡态发生电离. 在 Freeman 共振存在的条件下, 原子的光电子谱是否对 CEP 效应敏感, 能否还利用该方案对 CEP 进行测量是本文研究的内容.

若无特殊说明, 本文均采用原子单位.

2 理论方法

为了通过数值模拟的手段研究原子的 ATI, 首先需要计算氢原子在强激光作用下电子的含时波函数. 坐标空间下, 电离电子会在强激光脉冲作用下运动到远离离子的区域, 需要非常大的计算空间和比较多的网格点才能得到收敛的结果. 本文采用在动量空间求解体系的含时薛定谔方程, 可以实现准确计算的条件下, 大幅度地降低对计算资源的需求. 在偶极近似和速度规范下, 原子在强激光场作

* 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

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 $\Psi(r, t)$ 作傅里叶变换得到

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

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. 采用含时广义伪谱方案^[27,28], 能够实现对该方程的求解, 进而得到体系任意时刻的含时波函数. 在得到体系的末态含时波函数后, 我们采用 Dionissopoulou 等^[29] 给出的方案计算阈上电离信息. 当激光脉冲结束时, 将无外场时体系的本征态函数向末态波函数投影, 可以得到各态所占的布居. 将散射连续态:

$$\Psi^- = 4\pi \sqrt{\frac{\pi}{2k}} \sum_l \sum_{m=-l}^l i^l e^{-i\delta_l} Y_{lm}^*(\mathbf{k}) \times Y_{lm}(\mathbf{r}) R_{kl}(r) \quad (3)$$

向脉冲结束时刻的波函数做投影, 若 $b_l(\varepsilon, t)$ 为能量归一化的连续态布居振幅, 得到光电子的角分布

$$\frac{d^2 P_\varepsilon(\mathbf{k}, t)}{d\mathbf{k} d\varepsilon} = \left| \sum_l \sum_{m=-l}^l (-i)^l e^{i\delta_l} Y_{lm}(\mathbf{k}) b_l(\varepsilon, t) \right|^2, \quad (4)$$

对于线性偏振激光脉冲的情形, 简化为

$$\frac{d^2 P_\varepsilon(\vartheta, t)}{d\vartheta d\varepsilon} = \left| \sum_l (-i)^l e^{i\delta_l} Y_{l0}(\vartheta) b_l(\varepsilon, t) \right|^2. \quad (5)$$

对应的一重微分电离截面为

$$\frac{dP_\varepsilon}{d\varepsilon} = \sum_l |b_l(\varepsilon, t)|^2. \quad (6)$$

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 $E(t)$ 为

$$E(t) = -\frac{\partial A}{\partial t} = E_0 \left[f(t) \cos(\omega t + \phi) + \frac{1}{2\tau_R} \sin\left(\frac{\omega t}{\tau_R}\right) \sin(\omega t + \phi) \right], \quad (7)$$

这里的 E_0 和 ω 为激光脉冲的电场峰值振幅和频率, 其中 $f(t) = \sin^2\left(\frac{\omega t}{2\tau_R}\right)$, τ_R 为光学周期数目, 这里 ϕ 为载波包络相位. 本文选择的入射激光频率为 0.125.

3 结果与分析

利用该方案, 我们首先计算了 ATI 光电子能谱随着入射光强的变化. 图 1 给出了 CEP 分别为 (a)

$\phi = 0\pi$ 和 (b) $\phi = 0.5\pi$ 的阈上电离谱, 对应的激光电场如图 1(c) 所示. 原子在激光场作用下电离, 电离后的光电子发射谱由于激光电场的周期性出现多个峰值结构, 两个峰值之间的间距为一个光子能量. 由于激光电场的作用, 原子的本征能级由于 AC-Stark 效应发生移动, 对应的 ATI 峰值位置可以由公式 $E_k = n\omega - I_p - U_p$ 确定, I_p 和 $U_p = E_0^2/(4\omega^2)$ 分别为体系的电离能和激光场的有质动力势. 从该公式可知, 随着激光光强的增加, ATI 的峰值位置呈线性减小. 从图 1(a) 和 (b) 中可以看出, 对于不同的 CEP, ATI 峰值的移动基本满足这一规律, 随着场强的增加, 电离的概率增加, 对应的 ATI 谱的强度逐渐增加. 需要注意到, 在激光峰值强度为 $3 \times 10^{14} - 4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 能量在 0.1 附近, 其峰值不再随入射激光脉冲强度发生变化, 对应一个共振的区域. 在非共振区, CEP 分别为 $\phi = 0\pi$ 和 $\phi = 0.5\pi$ 的阈上电离谱接近相同, 对于共振区二者有较大的差别.

为了清楚的看到这一差别, 在图 2 中给出了入射激光强度为 $3.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, CEP 分别为 $\phi = 0\pi$ 和 $\phi = 0.5\pi$ 的 ATI 发射谱. 从中可以清晰的看出, 光电子能量从 0—0.6 之间存在 4 个峰结构, 随着光电子能量的增加, 峰值强度逐渐降低. 分别对于 $\phi = 0\pi$ 和 $\phi = 0.5\pi$ 两种情形, 第一个峰值结构有明显的区别 (对应共振结构), 后面的三个峰值位置和强度基本一致.

选择该 ATI 谱中的第一个峰值和第二个峰值, 研究其峰值强度随 CEP 的变化. 如图 3 所示, 随着激光载波包络的变化, 第二个峰值的强度基本不发生改变, 而第一个峰值的强度有明显的变化. 在 CEP 为 0 附近, ATI 的峰值最大, 随着 CEP 值的增加, 强度逐渐降低, 到达最低点后又逐渐增加.

为了进一步分析 CEP 效应对 ATI 的影响, 我们分别研究 (6) 式各个分波对 ATI 的影响. 如图 4 所示, 我们给出了不同分波强度随着能量的变化, 这里选择了 ATI 中贡献最大的 7 个分波. 在该图中给出了 $\phi = 0\pi$ 和 $\phi = 0.5\pi$ 的结果, 从图中可以看出, 在这两个相位下, 对第二个峰值的贡献主要来源于 $l = 5$ 的分波, 对于第三个峰值的主要贡献来源于 $l = 6$ 的分波, 分别对应 6 光子和 7 光子跃迁. 第一个峰值的主要贡献来源于两部分, $l = 4$ 和 $l = 2$. 对于 $l = 4-6$ 的分波, 不同的 CEP 下, 强度很接近, 而对于 $l = 2$, 在第一个峰值附近差别很大. 对总体 ATI 峰值强度 CEP 影响最大的主要来源于 $l = 2$ 的贡献.

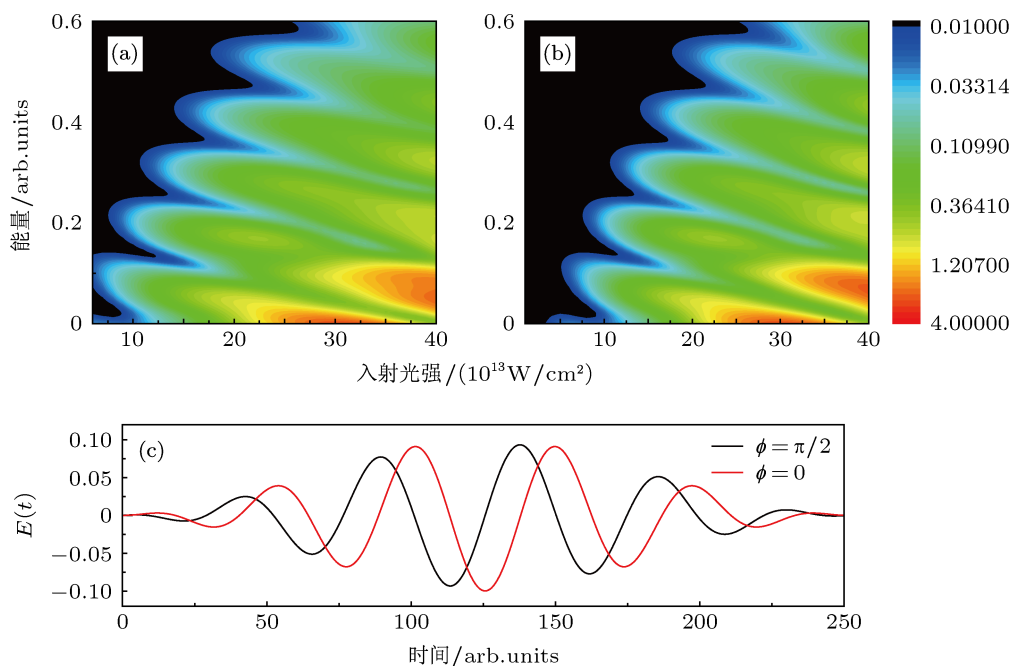


图1 (a) $\phi = 0\pi$ 时; (b) $\phi = 0.5\pi$ 时, ATI 随着入射光强的变化; (c) $\phi = 0\pi$ 和 $\phi = 0.5\pi$ 的入射激光脉冲电场

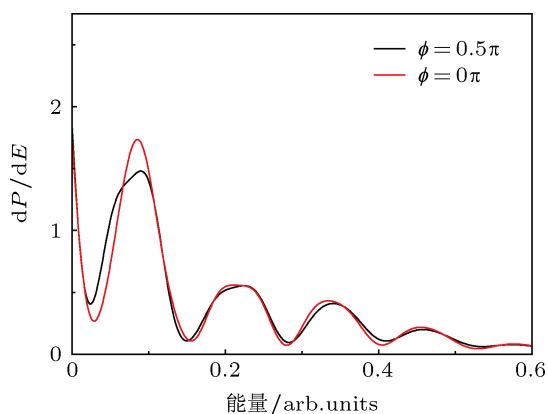


图2 激光强度为 $3.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 5 个光学周期, CEP 分别为 $\phi = 0\pi$ 和 $\phi = 0.5\pi$ 的 ATI 发射谱

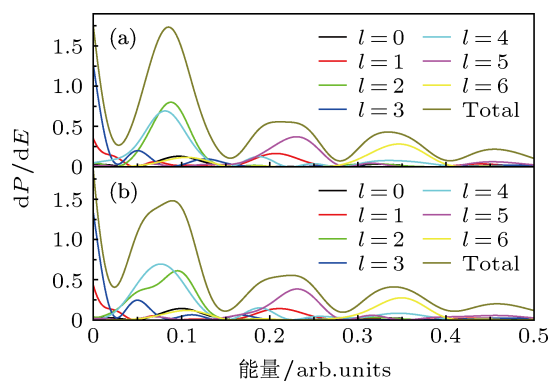


图4 一重微分截面的分波分析 (a) $\phi = 0\pi$; (b) $\phi = 0.5\pi$

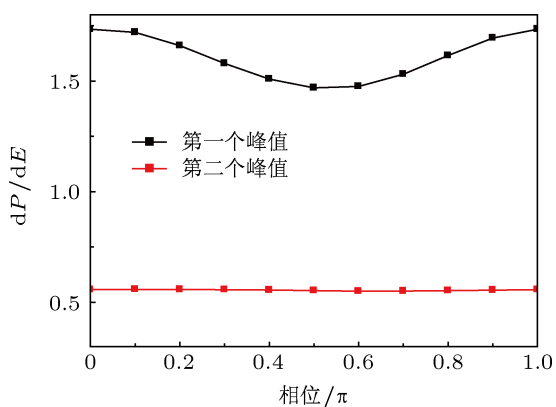


图3 激光强度为 $3.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, ATI 中第一个峰值和第二个峰值强度随着激光相位的变化

接下来我们将不同分波对 ATI 的影响聚焦在第一个峰值. 如图 5 所示, 我们给出了对第一个峰值贡献最大的 $l = 4$ 和 $l = 2$ 的分波强度随着 CEP 的变化. 从图中可以看出, $l = 4$ 的强度贡献基本为 0.7, 随着 CEP 的改变基本不发生变化. 对于 $l = 2$ 的分波, 其强度在 0.6 到 0.8 之间变化, 其变化的趋势和整体 ATI 峰值随 CEP 变化的趋势一致. 其他分波的贡献相对很小, 且随着 CEP 的变化也很小, 这点可以从整体峰值和 $l = 2$ 与 $l = 4$ 的差值看出. 由于我们观察到的 ATI 峰值主要由基态直接电离 (这里称为直接通道) 以及经由共振作用由高激发态电离 (这里称为共振通道) 产生. 这两个通道中, 在该激光脉冲作用下, 直接电离的 ATI 效应随激光脉冲的 CEP 变化较小, 而共振通道的电离对 CEP 的改

变十分敏感. 为此, 在其他激光条件下, 如能产生这样的两个通道, 均可以观察到此现象. 由此可以判断, 第一个 ATI 峰值强度随 CEP 的变化主要来源于 $l=2$ 的贡献.

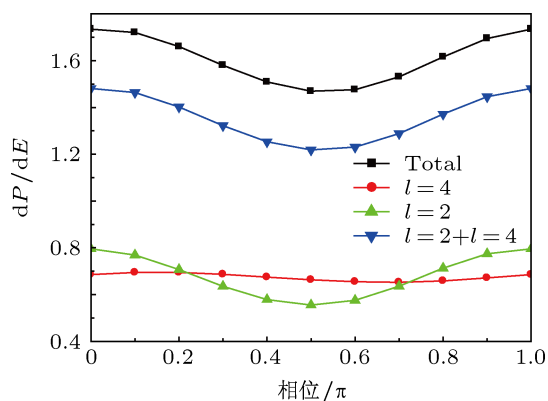


图5 $l=4$ 和 $l=2$ 分波以及整体 ATI 峰值强度随 CEP 的变化

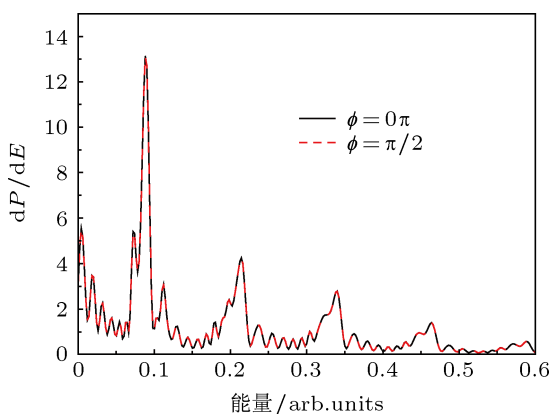


图6 激光强度为 $3.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 30 个光学周期, CEP 分别为 $\phi = 0\pi$ 和 $\phi = 0.5\pi$ 的 ATI 发射谱

此外, 我们还研究了多周期激光脉宽的条件下, CEP 效应对阈上电离谱的影响. 计算得到的 ATI 谱如图 6 所示, 这里选择的入射激光脉冲为 30 个光学周期. 随着激光脉冲宽度的增加, ATI 的峰值变得更加尖锐, 两个主峰值中间出现许多小峰. 更为重要的是, 在 CEP 分别为 $\phi = 0\pi$ 和 $\phi = 0.5\pi$ 的条件下, 其一重微分散射截面的强度相同, 在图象给出的尺度内已经看不到差别. 说明随着激光脉冲脉宽的增加, 初始的 CEP 效应逐渐减弱. 但在共振条件

下, 光电子角分布仍能看出差别.

在图 7 中, 我们给出了利用 (5) 式计算得到的电离电子的角度分布. 由于入射激光的对称性, 角度分布在垂直于激光入射方向上是对称的, 我们这里只是给出了一半的信息. 为了便于比较, 对于 $\phi = 0\pi$ 给出的范围为 $0-0.1$, 对于 $\phi = 0.5\pi$ 给出的范围为 $-0.1-0$. 从图中可以清晰的看到, 对于第二个峰值和第三个峰值, 两个相位给出的角度分布完全相同, 在零附近呈现非常好的对称性. 而对于第一个峰值, 两个相位的结果呈现出很大的差别. 由于我们观察到的 ATI 峰值贡献来源于直接电离和共振电离, 二者的强度随着 CEP 的变化规律不同, 我们可以通过对光电子发射谱角度的观察, 根据角动量守恒, 确定共振的高里德堡态的角量子数信息. 为此, 在实验上可以测量平行于入射激光电场方向的光电子发射角度分布信息, 测量周期更长的激光脉冲的 CEP.

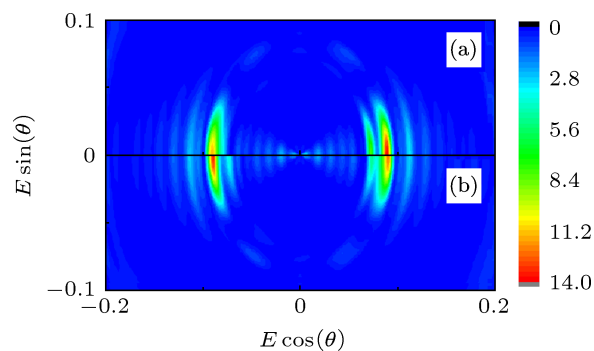


图7 激光强度为 $3.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 30 个光学周期的二重微分散射截面, CEP 分别为 (a) $\phi = 0\pi$; (b) $\phi = 0.5\pi$

4 结论

通过数值求解动量空间下的三维含时薛定谔方程, 我们理论上研究了激光脉冲 CEP 效应对氢原子阈上电离谱的影响. 研究发现, 和非共振光电子发射谱峰值相比, 共振峰值对 CEP 的影响更为敏感. 利用该特点, 我们可以通过观测共振条件下的光电子角分布信息对多周期激光的载波包络相位进行探测.

[1] Protopapas M, Keitel C H, Knight P L 1997 *Rep. Prog. Phys.* **60** 389
 [2] Agostini P, Fabre F, Mainfray G, Petite G, Rahman N K 1979 *Phys. Rev. Lett.* **42** 1127
 [3] McPherson A, Gibson G, Jara H, Johann U, Luk T S, McIntyre I A,

Boyer K, Rhodes C K 1987 *J. Opt. Soc. Am. B* **4** 595
 [4] Walker B, Sheehy B, DiMauro L F, Agostini P, Schafer K J, Kulander K C 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 1227
 [5] Chen J, Zeng B, Liu X, Cheng Y, Xu Z Z 2009 *New J. Phys.* **11** 113021

- [6] Tian Y Y, Guo F M, Yang Y J 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 073202 (in Chinese) [田原野, 郭福明, 杨玉军 2013 物理学报 **62** 073202]
- [7] Brabec T, Krauze F 2000 *Rev. Mod. Phys.* **72** 545
- [8] Posthumus J H 2004 *Rep. Prog. Phys.* **67** 623
- [9] Paulus G G, Grasbon F, Walther H, Villaresi P, Nisoli M, Stagira S, Priori E, Silvestri S D 2001 *Nature* **414** 182
- [10] Paulus G G, Lindner F, Walther H, Baltuska A, Goulielmakis E, Lezius M, Krausz F 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 253004
- [11] Milosevic D B, Paulus G G, Becker W 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 153001
- [12] Kienberger R, Goulielmakis E, Uiberacker M, Baltuska A, Yakovlev V, Bammer F, Scrinzi A, Westerwalbesl T, Kleineberg U, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2004 *Nature* **427** 817
- [13] Milosevic D B, Paulus G G, Bauer D, Becker W 2006 *J. Phys. B* **39** R203
- [14] Chen Z, Wittmann T, Horvath B, Lin C D 2009 *Phys. Rev. A* **80** 061402(R)
- [15] Li H, Chen J, Jiang H, Fu P, Liu J, Gong Q, Yan Z C, Wang B 2008 *Opt. Express* **16** 20562
- [16] Peng L Y, Pronin E A, Starace A F 2008 *New J. Phys.* **10** 025030
- [17] Bohan A D, Antoine P, Milosevic D B, Piraux B 1998 *Phys. Rev. Lett.* **81** 1837
- [18] Wang B, Chen J, Liu J, Yan Z C, Fu P 2008 *Phys. Rev. A* **78** 023413
- [19] 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
- [20] Apolonski A, Poppe A, Tempea G, Spielmann C, Udem T, Holzwarth R, Hansch T W, Krausz F 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 740
- [21] Baltuska A, Udem T, Uiberacker M, Hentschel M, Goulielmakis E, Gohle C, Holzwarth R, Yakovlev V S, Scrinzi A, Hansch T W, Krausz F 2003 *Nature* **421** 611
- [22] Tong X M, Lin C D 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 123002
- [23] Roudnev V, Esry B D, Itzhak I B 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 163601
- [24] Milosevic D B, Paulus G G, Becker W 2003 *Opt. Express* **11** 1418
- [25] Tong X M, Hino K, Toshima N 2006 *Phys. Rev. A* **74** 031405 (R)
- [26] Freeman R R, Bucksbaum P H, Milchberg H, Darack S, Schumacher D, Geusic M E 1987 *Phys. Rev. Lett.* **59** 1092
- [27] Zhou Z Y, Chu S I 2011 *Phys. Rev. A* **83** 013405
- [28] Tian Y Y, Guo F M, Zeng S L, Yang Y J 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 113201 (in Chinese) [田原野, 郭福明, 曾思良, 杨玉军 2013 物理学报 **62** 113201]
- [29] Dionissopoulou S, Mercouris T, Lyras A, Nicolaides C A 1997 *Phys. Rev. A* **55** 4397

Effect of carrier envelope phase on the above threshold ionization under resonant condition*

Tian Yuan-Ye Wei Shan-Shan Guo Fu-Ming Li Su-Yu Yang Yu-Jun†

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

(Received 18 March 2013; revised manuscript received 25 April 2013)

Abstract

By solving the three-dimensional time-dependent Schrödinger equation, we have theoretically investigated the variation of photoelectron spectroscopy and angular distribution of hydrogen atom with carrier envelope phase (CEP) under the resonant condition. The results show that the intensity of photoelectron spectroscopy is strongly dependent on CEP near the resonant position; and the angular momentum quantum number of resonant initial-ionized state can be determined by further analyzing each partial wave. In addition, we can detect the information of initial phase of multi-cycle pulses with high accuracy by utilizing the information of angular distribution of photoelectron.

Keywords: above threshold ionization, ultra-short pulse, carrier-envelope phase

PACS: 32.80.Rm, 42.50.Hz

DOI: 10.7498/aps.62.153202

* 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