

低强度周期量级脉冲驱动排列分子的非次序双电离

黄诚 钟明敏 吴正茂

Nonsequential double ionization of aligned molecules by few-cycle laser pulses at low intensity

Huang Cheng Zhong Ming-Min Wu Zheng-Mao

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 083301 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.083301

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.083301>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I8>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

以二乙烯硫/砜基为中心的新型电荷转移分子双光子吸收特性

Two-photon absorption properties of novel charge transfer molecules with divinyl sulfide/sulfone center

物理学报.2015, 64(23): 233301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.233301>

分子双电离对激光偏振性的依赖关系

Laer polarization dependence of double ionization of molecules

物理学报.2014, 63(2): 023303 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.023303>

高激发态原子的相干效应

Coherence effect of high excited state atoms

物理学报.2012, 61(19): 193302 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.193302>

氦原子非次序双电离对正交双色场强度比的依赖关系

Dependence of nonsequential double ionization of He on intensity ratio of orthogonal two-color field

物理学报.2012, 61(9): 093303 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.093303>

低强度周期量级脉冲驱动排列分子的非次序双电离*

黄诚[†] 钟明敏 吴正茂

(西南大学物理科学与技术学院, 重庆 400715)

(2016年1月7日收到; 2016年1月29日收到修改稿)

本文利用三维经典系综模型研究了低强度周期量级脉冲驱动排列分子的非次序双电离. 结果表明, 电子对的关联特性强烈地依赖于分子的排列方向和激光脉冲的载波包络相位; 垂直分子反关联电子对的比例总是高于平行分子反关联电子对的比例; 当载波包络相位从0到 π 逐渐增加时, 反关联电子对的数目先增加再减少; 对于平行分子, 电子对的释放总是以正关联为主; 而垂直分子的主导关联模式则依赖于激光脉冲的载波包络相位, 当载波包络相位为 0.3π — 0.7π 之间时, 电子对以反关联释放为主, 其他相位下以正关联为主. 本文利用分子势能曲线和电子返回能量很好地解释了电子关联特性对分子排列方向和载波包络相位的依赖关系.

关键词: 非次序双电离, 关联特性, 周期量级脉冲, 反关联

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

DOI: 10.7498/aps.65.083301

1 引言

非次序双电离 (nonsequential double ionization, NSDI) 为研究电子关联现象提供了一个最为简单和直接的模型^[1-5], 是近三十年来强场物理研究的热点之一. 大量的实验和理论研究证明, NSDI 可以用重碰撞模型来理解^[6,7]. 处在激光场中的原子分子的势井被电场显著扭曲形成一个较低的势垒, 原子分子中的电子可以通过隧穿电离或者过垒电离的形式脱离母核的束缚成为自由电子. 该电离电子在激光场的驱动下先远离母核, 然后返回与母核发生碰撞, 在此过程中电子从激光场中获得了能量. 返回电子携带能量的大小将直接影响NSDI的后续过程. 如果返回电子携带了较大的能量, 它可以通过碰撞直接释放第二个电子, 这个过程称之为碰撞电离^[8]. 此时, 两电子几乎同时电离, 电离后两电子将在激光的加速作用下出射到相同的方向,

产生正关联的电子对. 如果返回电子携带的能量不足以通过碰撞直接电离第二个电子, 但是可以通过碰撞来激发第二个电子并保持自身的自由, 这样的过程被称之为碰撞激发电离机理^[8]. 此时, 两电子的关联特性主要取决于激发电子电离时间延迟的长短. 如果返回电子的能量太小, 不能激发第二个电子并保持自身的自由, 那么它会被母核俘获, 形成一个双电子激发态^[9-11], 然后两个电子将在随后的激光作用下依次发生场致电离. 此时, 电子对的关联特性主要取决于两电子从双激发态中电离的时间差.

虽然重碰撞模型为NSDI的描述提供了一个基本的框架. 但是NSDI的细节动力学过程及电子关联特性显著地依赖激光参数和靶材种类^[12-18]. 多年来, 研究人员通过对双电离产量的强度依赖曲线、离子动量分布和关联电子动量谱的测量和分析, 不断揭示强场NSDI中的新现象和新机理^[19-27]. 如: He原子NSDI的电子关联动量谱上的手指结

* 国家自然科学基金(批准号: 11504302, 61178011, 61475127, 11504301)和中央高校基本业务费专项资金(批准号: SWU114069, XDJK2015C148)资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: huangcheng@swu.edu.cn

构(V形结构)^[19–20]揭示了母核的库仑吸引、两电子之间的相互作用以及碰撞过程的能量分布不均对NSDI的电子关联特性的影响^[21–23]; 198 nm激光脉冲驱动的He原子NSDI的动量分布中的双环结构揭示了双电子拉比振荡对NSDI超快动力学的影响^[24]; 低强度多周期激光脉冲驱动下Ar原子NSDI的电子对以反关联释放为主^[25]; Xe原子的动量分布显示出了不同于He, Ne, Ar的均匀分布^[26]; 椭圆激光脉冲驱动的NSDI的研究揭示了电子横向动量对于电子返回的重要作用^[28–30], 进一步研究表明随着激光脉冲椭圆率的增加NSDI的产率逐渐减小^[31], 同时碰撞激发电离对NSDI的贡献越来越大^[32]; S矩阵的研究表明, 分子的结构对NSDI产率有着显著影响, 尤其是氧分子的NSDI产率具有显著的抑制效应^[33]; 近期的研究表明, 末态电子之间的相互排斥^[34]和多次碰撞^[35]对低强度下NSDI的电子关联特性起着至关重要的作用. 在对NSDI机理研究不断深入的同时, 近年来人们已经开始探索利用正交双色场来控制电子的运动轨迹, 进而操控电子对的关联特性^[36–39].

以上的研究主要是针对多周期激光脉冲开展的. 这是因为周期量级的短脉冲驱动的NSDI的电离概率非常低, 要获得高分辨的关联电子动量分布非常困难. 所以早期针对周期量级脉冲的研究仅仅测量了离子动量分布^[40], 并据此发现了NSDI动力学对载波包络相位(carrier-envelope phase, CEP)的依赖^[41–45]. 随着激光技术的发展, 近期人们已经完成了周期量级激光脉冲驱动Ar原子NSDI的高分辨关联电子动量谱的测量. 高强度下(3×10^{14} W/cm²), 关联电子动量分布呈现出一个新奇的十字架结构^[46,47]. 低强度下(9×10^{13} W/cm²), Ar原子NSDI的关联电子动量分布呈现出一个平行于主对角线的两线结构^[10], 该结构揭示了低能碰撞时双激发态的存在. 那么低强度周期量级激光脉冲驱动下分子NSDI的电子关联特性会是怎样的呢? 另外先前的研究已经表明, 在多周期情况下对称分子^[48,49]和不对称分子^[50]非次序双电离中电子关联特性都会受到排列方向的影响. 那么在低强度周期量级的情况下, 分子的排列方向对电子关联特性会有怎样的影响呢? 并且周期量级激光脉冲的CEP对电子对的关联特性有何影响? 本文将针对这些问题展开研究.

本文利用三维经典系综模型研究低强度周期

量级脉冲驱动排列分子的NSDI. 通过研究不同CEP的激光脉冲驱动平行排列和垂直排列分子的NSDI, 来探索电子关联特性对分子排列方向和激光脉冲载波包络相位的依赖关系. 研究表明, 垂直分子反关联电子对的比例总是高于平行分子反关联电子对的比例. 随着载波包络相位的增加, 反关联电子对的数目先增加再减少. 随后利用经典模型的向后分析方法, 探索了电子关联特性对分子排列和激光CEP依赖的原因.

2 理论方法

本文采用三维经典系综模型来研究排列分子的NSDI. 该模型首先由Eberly等^[51]提出, 随后被广泛地用于强场NSDI和SDI的研究^[52–54], 揭示了许多双电离过程中的超快动力学, 深化了人们对强场双电离过程的认识. 它不仅成功地解释了多种已观测的实验现象, 还对新条件下的双电离现象做出了准确的预言^[36–38].

在三维经典系综模型中, 两个电子遵循牛顿经典运动方程(除非另作规定, 本文均采用原子单位):

$$\frac{d^2 r_i}{dt^2} = -\nabla[V_{ne}(r_i) + V_{ee}(r_1, r_2)] - E(t), \quad (1)$$

其中, i 是两电子的标记, 可以取值1或2; r_i 为电子的坐标; $E(t)$ 是激光脉冲的电场强度. 本文采用沿 x 方向偏振的周期量级激光脉冲. 其电场 $E(t)$ 的表达式为

$$E(t) = E_0 \sin(\pi t/\tau)^2 \cos(\omega t + \phi), \quad (2)$$

其中, E_0 , ω , ϕ , τ 分别为激光电场的幅值、角频率、CEP和脉冲的全宽. 本文采用的是波长为800 nm、强度为 1×10^{14} W/cm²、全宽为4个光周期的激光脉冲(半高全宽约为3.8 fs). $V_{ne}(r_i)$ 和 $V_{ee}(r_1, r_2)$ 分别表示核与电子及两电子之间的库仑相互作用势能. 它们的表达式分别为

$$V_{ne}(r_i) = -\frac{1}{\sqrt{(r_i + R/2)^2 + a}} - \frac{1}{\sqrt{(r_i - R/2)^2 + a}}, \quad (3)$$

$$V_{ee}(r_1, r_2) = \frac{1}{\sqrt{(r_1 - r_2)^2 + b}}, \quad (4)$$

(3)式中 R 表示分子的核间距, 本文中 R 取2 a.u.;

(3)和(4)式中, a 表示核与电子间的软核参数, b 为电子与电子间的软核参数, 为避免数值计算的奇

异性和自电离, 本文设置 $a = 1.25$, $b = 0.0025$. 为获得系综的初始状态, 首先将两电子随机地放在核子附近, 然后给两电子一个确定的动能, 使得系统的总能量, 即两电子的势能和动能之和等于分子的第一、第二电离能之和. 本文设置总能量为 -1.67 a.u. (对应 H_2 的第一二电离能之和). 将动能随机地分配给两个电子, 并且这两电子的速度方向随机给定. 然后两电子系统在没有激光场的情况下, 按照牛顿运动方程自由演化. 经过一段时间后 (300 a.u.), 可以得到一个稳定的初始系综分布. 本文中对平行排列的系综大小为 3×10^7 , 对于垂直排列的系综大小为 3.6×10^8 . 初始系统确定后, 原子将在激光场的作用下演化, 直到激光脉冲结束, 即可得到系综中各个分子的最终状态, 包括位置和动量. 分析两个电子的能量, 如果两个电子的末态能量都大于零, 则认为该分子发生了双电离.

3 结果与讨论

图 1 给出了平行和垂直排列分子在不同 CEP 情况下的关联电子动量分布. 第一行和第二行分别对应了分子平行于激光偏振方向和垂直于激光偏振方向排列的情况. 从左到右对应的 CEP 分别为 0 , 0.25π , 0.5π 和 0.75π . 从图 1 中可以看出, 关联电子动量分布相对于次对角线存在显著的不对称性, 并且随着 CEP 的增大, 双电离分布从次对角线的上方向下方转移. 这一现象已经被人们很好地研

究和解释 [35–38]. 在这里我们主要研究电子对的正关联和反关联释放对 CEP 和分子排列方向的依赖. 从图 1(a) 至图 1(d) 可以看出, 对于平行排列的分子, 所有的 CEP 电子对都主要分布在一三象限, 即电子对以正关联释放为主. 随着 CEP 的变化, 反关联释放的数目有所变化, CEP 为 0.25π 和 0.5π 比 CEP 为 0 和 0.75π 时有更多的反关联释放. 进一步对比平行排列和垂直排列的情况, 可以发现垂直排列分子总是有比平行分子更多的电子对处在二四象限, 即不管 CEP 如何取值, 垂直分子总是比平行分子有更多的反关联释放. 如图 1(g) 所示, 当 CEP 为 0.5π 时, 垂直分子的反关联释放的电子对已经多于正关联释放的电子对, 总的动量谱表现出反关联为主的特性.

为了更加清晰地显示电子关联特性随 CEP 的变化, 以及何种关联模式占主要地位, 我们统计了不同 CEP 时正关联电子数与反关联电子数的比值, 结果如图 2 所示. 从图 2(a) 和 (b) 中可以看出, 对于平行和垂直排列, 正关联和反关联之比总是随着 CEP 的增加先减小后增大, 也就是说反关联数目先增多后减小. 如图 2(a) 所示, 平行排列时, 正关联和反关联之比处在 1.7 — 3.1 之间, 即总是以正关联为主. 而垂直排列时, 正关联和反关联之比在 0.65 — 1.2 之间变化, 即占主导的关联模式随着激光脉冲 CEP 的变化而变化. 如图 2(b) 所示, 当 CEP 为 0 — 0.2π 和 0.8π — π 时, 电子对以正关联释

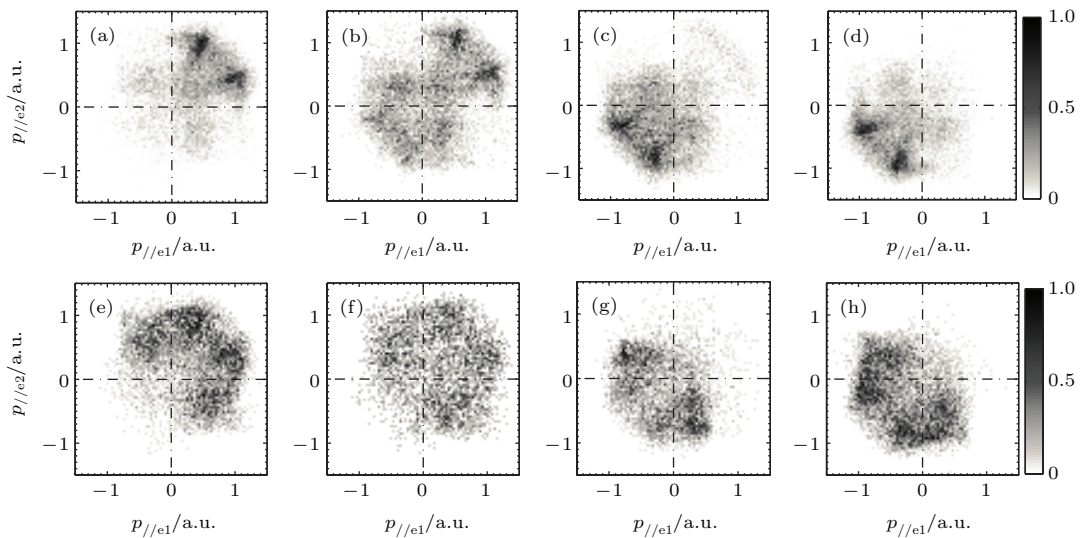


图 1 分子 NSDI 的关联电子动量分布 (a)–(d) 平行排列; (e)–(h) 垂直排列; (a), (e) $\phi = 0$; (b), (f) $\phi = 0.25\pi$; (c), (g) $\phi = 0.5\pi$; (d), (h) $\phi = 0.75\pi$

Fig. 1. Correlated electron momentum distributions for NSDI of molecules. (a)–(d) Parallel alignment; (e)–(h) perpendicular alignment. (a), (e) $\phi = 0$; (b), (f) $\phi = 0.25\pi$; (c), (g) $\phi = 0.5\pi$; (d), (h) $\phi = 0.75\pi$.

放为主, 当 CEP 为 0.3π — 0.7π 时, 电子对以反关联释放为主. 另外, 仔细对比图 2(a) 和 (b) 我们可以发现所有的相位情况下, 平行排列的正关联与反关联之比都比垂直情况的大, 即垂直排列总是比平行排列有更多的反相关释放.

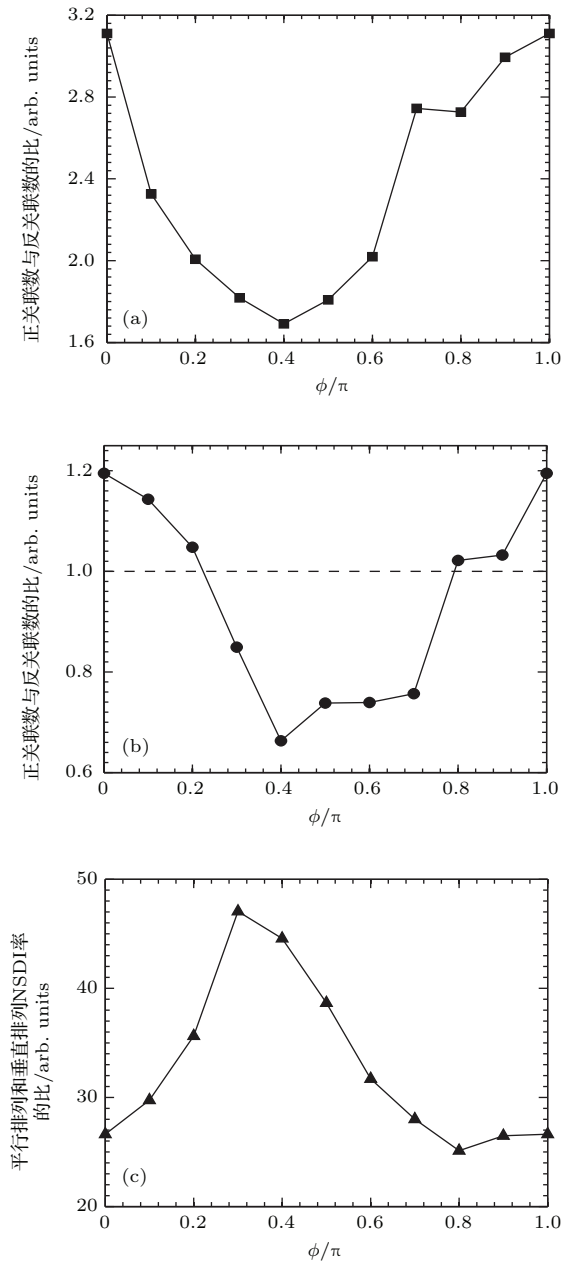


图2 平行(a)和垂直(b)排列的分子NSDI中正关联事件数目与反关联事件数目的比对激光 CEP 的依赖; (c) 平行排列和垂直排列时 NSDI 率的比对激光 CEP 的依赖
Fig. 2. The ratio of correlated events to anticorrelated events from NSDI as a function of CEP for parallel alignment (a) and perpendicular alignment (b); (c) the ratio of NSDI events from parallel alignment and perpendicular alignment as a function of CEP.

从上面的分析我们知道, 无论 CEP 如何取值, 垂直排列总是比平行排列有更多的反相关释放;

随着 CEP 的增加, 反关联释放的数目先增加后减小. 为了解释电子关联特性对分子排列方向和脉冲 CEP 的这些依赖关系, 我们跟踪和向后分析了 NSDI 时间的电子运动轨迹. 跟踪双电离轨迹能够使我们确定再碰撞时间和电离时间. 这里, 我们把第一个电子电离之后, 它与另一个电子最靠近的时刻定义为再碰撞时间. 将一个电子的能量首次为正的時刻定义为电离时间, 其中电子的能量由电子的动能、电子与两个原子核相互作用的势能和电子间的排斥势能的一半所组成.

由于本文采用的是低强度的周期量级脉冲, 电子返回时能量较小, 不足以在保证自身自由的情况下电离或者是激发第二个电子. 因此返回电子与母核碰撞时, 它将因为失去能量而被俘获, 从而形成一个双激发态. 此后两个电子在激光电场的驱动下一个接一个地场致电离. 先前的研究已经表明, 两电子的关联特性显著地依赖于两电子最终从双激发态中电离的时间差, 如果两电子电离的时间差小于 $0.25T$ (T 为激光电场周期), 则两电子主要正相关释放. 如果两电子电离的时间差大于 $0.25T$, 那么两电子主要反相关释放^[10].

首先我们研究电子关联特性对分子排列方向依赖的原因. 图 3 是双电离事件关于两电子从双激发态中电离时间差的概率分布. 其中图 3(a) 和 (c) 是平行排列的情况, 图 3(b) 和 (d) 是垂直排列的情况. 图 3(a) 和 (b) 对应的 CEP 为 0, 图 3(c) 和 (d) 对应的 CEP 为 0.5π . 当 CEP 为 0 时, 如图 3(a) 和 (b) 所示, 垂直排列时两电子的时间差除了在零值处有一个峰值外, 在 $0.5T$ 附近也有一个峰值, 而平行排列却只有零值处一个峰值. 即当 CEP 为 0 时, 垂直排列可能导致更大的电离时间差. 当 CEP 为 0.5π , 如图 3(c) 和 (d), 虽然此时平行排列也有一些双电离事件具有约 $0.5T$ 的时间差, 但与垂直分子比起来, 数量则少得多. 正是由于垂直分子有着更多的双电离事件具有较大的电离时间差, 从而导致了垂直排列比平行排列更多的反关联释放. 更大的时间差表明垂直排列时电子更难场致电离. 相对于平行排列, 垂直排列更难电离的原因可以通过它们的势能曲线的差别来定性理解. 如图 4 所示, 实线和虚线分别显示了平行和垂直排列时分子在激光偏振方向 (x 方向) 形成的势能曲线. 从图中我们可以看出垂直分子的势垒高于平行分子, 从而导致了垂直排列时

更难电离,使得更多的垂直分子具有更大的两电子电离时间差,导致了比平行分子更多的反相关释放. 另外,平行排列分子的双电离率比垂直排

列高20到40多倍,如图2(c)所示. 这也进一步证明了垂直分子较高的势垒对电离有着强烈的抑制作用.

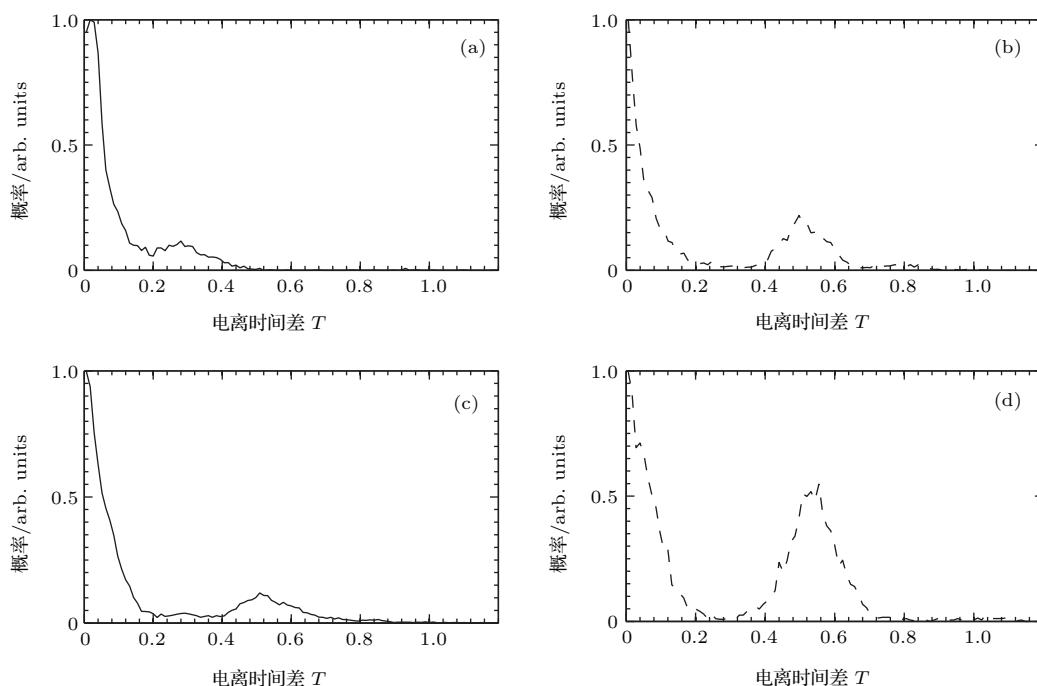


图3 双电离事件关于两电子电离时间差的概率分布 (a), (c) 平行排列; (b), (d) 垂直排列. (a), (b) $\phi = 0$; (c), (d) $\phi = 0.5\pi$

Fig. 3. NSDI events as a function of the time difference of the final ionizations of the two electrons: (a), (c) Parallel alignment; (b), (d) perpendicular alignment. (a), (b) $\phi = 0$; (c), (d) $\phi = 0.5\pi$.

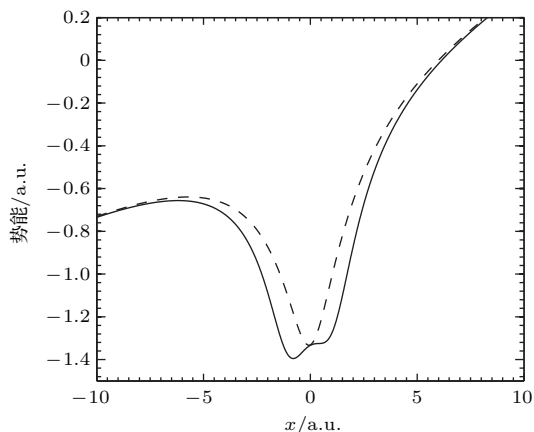


图4 分子平行(实线)和垂直(虚线)排列时激光偏振方向的势能曲线

Fig. 4. Potential energy curves along the laser polarization direction for the parallel (solid curve) and perpendicular (dashed curve) alignments.

进一步,我们以CEP为0和 0.5π 为例来研究电子关联特性的CEP依赖的原因. 对比图3(a)和(c)可以发现,当CEP为 0.5π 时比CEP为0时有更

多的双电离事件具有约 $0.5T$ 的两电子电离时间差. 同样的结论对垂直排列也适用,如图3(b)和(d). $\phi = 0.5\pi$ 时更多的双电离事件具有约 $0.5T$ 的电离时间差,导致了较 $\phi = 0$ 更多的反相关释放. 那么是什么原因导致了 $\phi = 0.5\pi$ 时更多的双电离事件具有约 $0.5T$ 的电离时间差呢? 为了回答这个问题,我们进一步分析了碰撞前后电子的能量分布. 这里我们将再碰撞时刻以前 $0.3T$ 的状态定义为碰撞前的状态,再碰撞之后 $0.3T$ 的状态定义为碰撞后的状态. 图5给出了平行排列分子碰后两电子的能量分布(a), (d), 碰后两电子能量和的分布(b), (e)以及入碰电子的返回能量分布(c), (f). 其中第一行和第二行分别对应了 $\phi = 0$ 和 $\phi = 0.5\pi$ 的情况. 如图5(a)和(d)所示,两电子在碰撞之后能量都是小于零,两个电子都没有电离,而是处于某个双激发态. 从图5(b)和(e)可以看出, $\phi = 0$ 时电子对的和能量(峰值在 -0.34 a.u.)大于 $\phi = 0.5\pi$ 时电子对的和能量(峰值在 -0.4 a.u.). 当然电子对的能量主要是来自返回电子在电场中运动获得的,所以

我们进一步给出了返回电子在碰撞前的能量分布, 如图 5(c) 和 (f) 所示, $\phi = 0$ 时返回电子的能量分配的峰值在 0.64 a.u., 而 $\phi = 0.5\pi$ 时返回电子的能量分配峰值 0.56 a.u., 即 $\phi = 0$ 时返回电子的能量大于 $\phi = 0.5\pi$ 时返回电子的能量. 图 6 显示的各个物理量与图 5 相同, 惟一不同的是它是分子垂直排列

的情况. 从图 6 中可以得出与图 5 相同的结论, 即 $\phi = 0$ 时返回电子的能量大于 $\phi = 0.5\pi$ 时返回电子的能量, 导致最终形成的双激发态中两电子的总能量更高, 最后两电子更快地电离, 具有更小的电离时间差. 所以 $\phi = 0$ 时比 $\phi = 0.5\pi$ 时反相关释放的数目要少.

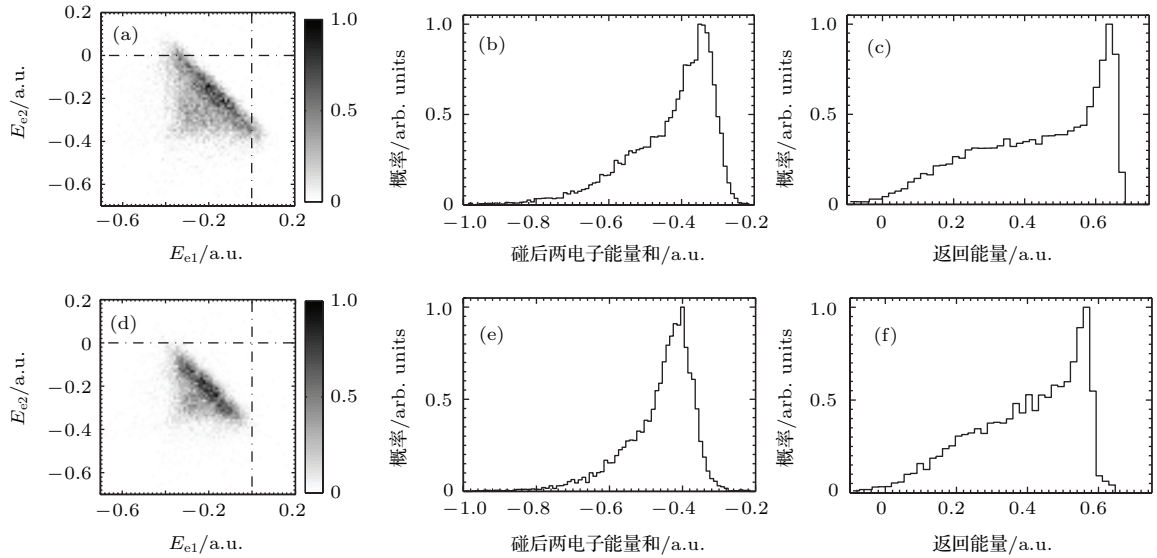


图 5 平行排列分子碰后两电子能量分布 (a), (d), 碰后两电子能量和的分布 (b), (e) 以及入碰电子的返回能量分布 (c), (f). CEP: (a)—(c) $\phi = 0$; (d)—(f) $\phi = 0.5\pi$

Fig. 5. Energy distributions of two electrons (a), (d), total energy distributions of the two electrons (b), (e) after recollision and energy distributions of the returning electron (c), (f) for parallel alignment. (a)—(c) $\phi = 0$; (d)—(f) $\phi = 0.5\pi$.

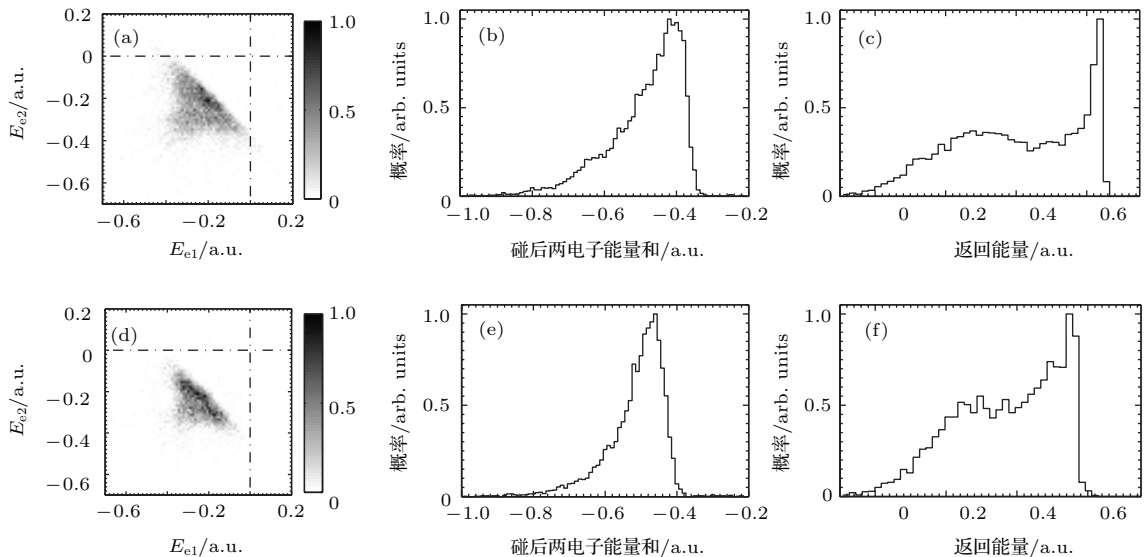


图 6 垂直排列分子碰后两电子能量分布 (a), (d), 碰后两电子能量和的分布 (b), (e) 以及入碰电子的返回能量分布 (c), (f). CEP: (a)—(c) $\phi = 0$; (d)—(f) $\phi = 0.5\pi$

Fig. 6. Energy distributions of two electrons (a), (d), total energy distributions of the two electrons (b), (e) after recollision and energy distributions of the returning electron (c), (f) for perpendicular alignment. (a)—(c) $\phi = 0$; (d)—(f) $\phi = 0.5\pi$.

图7给出了平行排列分子双电离事件关于第一次单电离时间的概率分布. 图7(a)和(b)分别对应了 $\phi = 0$ 和 $\phi = 0.5\pi$ 的情况. 当 $\phi = 0$ 时, 单电离主要发生在 $t = 1.5T$ 处的激光峰值附近, 相应的对它的返回起加速作用的就是从 $t = 1.75T$ 到 $t = 2.25T$ 之间的电场. 同理, 当 $\phi = 0.5\pi$ 时, 对返回电子起加速作用的是从 $t = 2.0T$ 到 $t = 2.5T$ 之间的电场. 由于激光脉冲的中心在 $t = 2T$ 的时刻, 所以与 $\phi = 0.5\pi$ 的情况相比, 当 $\phi = 0$ 时, 返回电子得到了更大的电场加速, 因此获得了更多的能量, 碰撞之后两电子处在一个较高的双激发态, 两个电子具有更少的电离时间差. 最终导致 $\phi = 0$ 时比 $\phi = 0.5\pi$ 更多的正相关释放, 更少的反相关释放.

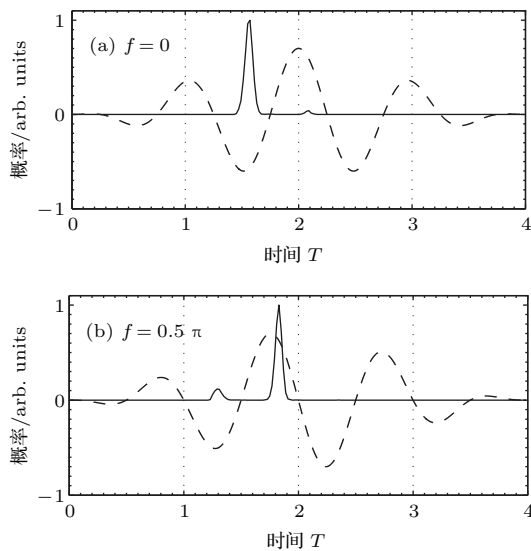


图7 平行分子双电离事件关于单电离时间的概率分布 CEP: (a) $\phi = 0$; (b) $\phi = 0.5\pi$. 虚线是对应的激光电场
Fig. 7. NSDI events as a function of the single ionization (the first ionization) time for parallel alignment. (a) $\phi = 0$; (b) $\phi = 0.5\pi$. The dashed curves are the corresponding laser electric fields.

4 结 论

本文利用三维经典系综模型研究了低强度周期量级脉冲驱动排列分子的NSDI. 结果表明, 电子对的关联特性强烈地依赖分子排列方向和激光脉冲的 CEP, 无论 CEP 如何取值, 垂直分子反关联电子对的比例总是大于平行分子反关联电子对的比例. 另外, 当 CEP 从 0 到 π 逐渐增加时, 反关联电子对的数目先增加再减少. 分析表明分子的排列方向通过影响势垒的高低, 进而影响两电子从双激发

态电离的时间差, 影响电子关联特性. 而激光脉冲的 CEP 则通过影响有效加速电场的强弱来影响返回电子的动能, 进而影响双激发态能量的高低来影响电子对释放的关联性.

参考文献

- [1] L'Huillier A, Lompre L A, Mainfray G, Manus C 1983 *Phys. Rev. A* **27** 2503
- [2] Walker B, Sheehy B, DiMauro L F, Agostini P, Schafer K J, Kulander K C 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 1227
- [3] Weber T, Giessen H, Weckenbrock M, Urbasch G, Staudte A, Spielberger L, Jagutzki O, Mergel V, Vollmer M, Dörner R 2000 *Nature* **405** 658
- [4] Becker W, Liu X, Jo Ho P, Eberly J H 2012 *Rev. Mod. Phys.* **84** 1011
- [5] Figueira de Morisson Faria C, Liu X 2011 *J. Mod. Opt.* **58** 1076
- [6] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [7] Schafer K J, Young B, DiMauro L F, Kulander K C 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 1599
- [8] 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
- [9] Eckhardt B, Prauzner-Bechcickib J S, Sachac K, Zakrzewski J 2010 *Chem. Phys.* **370** 168
- [10] Camus N, Fischer B, Kremer M, Sharma V, Rudenko A, Bergues B, Kubel M, Johnson N G, Kling M F, Pfeifer T, Ullrich J, Moshhammer R 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 073003
- [11] Liao Q, Lu P X 2010 *Phys. Rev. A* **82** 021403
- [12] Lein M, Gross E K U, Engel V 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 4707
- [13] Tong A H, Zhou Y M, Lu P X 2015 *Opt. Express* **23** 15774
- [14] Zhou Y M, Huang C, Lu P X 2011 *Phys. Rev. A* **84** 023405
- [15] Hao X L, Chen J, Li W D, Wang B B, Wang X D, Becker W 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 073002
- [16] Wu M Y, Wang Y L, Liu X J 2013 *Phys. Rev. A* **87** 013431
- [17] Guo J, Liu X S, Chu S I 2013 *Phys. Rev. A* **88** 023405
- [18] Dong S S, Zhang Z L, Bai L H, Zhang J T 2015 *Phys. Rev. A* **92** 033409
- [19] Staudte A, Ruiz C, Schöffler M, Schössler S, Zeidler D, Weber T, Meckel M, Villeneuve D M, Corkum P B, Becker A, Dörner R 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 263002
- [20] Rudenko A, Jesus V L B, Ergler T, Zrost K, Feuerstein B, Schröter C D, Moshhammer R, Ullrich J 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 263003
- [21] Ye D F, Liu X J, Liu J 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 233003
- [22] Zhou Y M, Liao Q, Lu P X 2010 *Phys. Rev. A* **82** 053402

- [23] Chen Z J, Liang Y, Lin C D 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 253201
- [24] Liao Q, Zhou Y M, Huang C, Lu P X 2012 *New J. Phys.* **14** 013001
- [25] Liu Y Q, Tschuch S, Rudenko A, Dürr M, Siegel M, Morgner U, Moshhammer R, Ullrich J 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 053001
- [26] Sun X F, Li M, Ye D F, Xin G G, Fu L B, Xie X G, Deng Y K, Wu C Y, Liu J, Gong Q H, Liu Y Q 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 103001
- [27] Parker J S, Doherty B J S, Taylor K T, Schultz K D, Blaga C I, DiMauro L F 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 133001
- [28] Wang X, Eberly J H 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 103007
- [29] Fu L B, Xin G G, Ye D F, Liu J 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 103601
- [30] Tong A H, Feng G Q 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 023303 (in Chinese) [童爱红, 冯国强 2014 物理学报 **63** 023303]
- [31] Yu W W, Guo J, Liu X S 2010 *Chin. Phys. B* **19** 023201
- [32] Tong A H, Liu D, Feng G Q 2014 *Chin. Phys. B* **23** 103302
- [33] Jia X Y, Fan D H, Li W D, Chen J 2013 *Chin. Phys. B* **22** 013303
- [34] Huang C, Guo W L, Zhou Y M, Wu Z M 2016 *Phys. Rev. A* **93** 013416
- [35] Ma X M, Zhou Y M, Lu P X 2016 *Phys. Rev. A* **93** 013425
- [36] Zhou Y M, Huang C, Tong A H, Liao Q, Lu P X 2011 *Opt. Express* **19** 2301
- [37] Zhou Y M, Huang C, Liao Q, Hong W Y, Lu P X 2011 *Opt. Lett.* **36** 2758
- [38] Zhang L, Xie X H, Roither S, Zhou Y M, Lu P X, Kartashov D, Schoffler M, Shafir D, Corkum P B, Baltuska A, Staudte A, Kitzler M 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 193002
- [39] Tong A H, Feng G Q, Deng Y J 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 093303 (in Chinese) [童爱红, 冯国强, 邓永菊 2012 物理学报 **61** 093303]
- [40] 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
- [41] Morisson Faria C F, Liu X, Sanpera A, Lewenstein A 2004 *Phys. Rev. A* **70** 043406
- [42] Liao Q, Lu P X, Zhang Q B, Hong W Y, Yang Z Y 2008 *J. Phys. B* **41** 125601
- [43] Li H Y, Chen J, Jiang H B, Liu J, Fu P M, Gong Q H, Yan Z C, Wang B B 2009 *J. Phys. B* **42** 125601
- [44] 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]
- [45] Zhou Y M, Liao Q, Lan P F, Lu P X 2008 *Chin. Phys. Lett.* **25** 3950
- [46] Bergues B, Kubel M, Johnson N G, Fischer B, Camus N, Betsch K J, Herrwerth O, Senftleben A, Sayler A M, Rathje T, Pfeifer T, Ben-Itzhak I, Jones R R, Paulus G G, Krausz F, Moshhammer R, Ullrich J, Kling M F 2012 *Nature Commun.* **3** 813
- [47] Huang C, Zhou Y M, Zhang Q B, Lu P X 2013 *Opt. Express* **21** 11382
- [48] Zeidler D, Staudte A, Bardon A B, Villeneuve D M, Dörner R, Corkum P B 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 203003
- [49] Huang C, Zhou Y M, Tong A H, Liao H Q, Y, Lu P X 2011 *Opt. Express* **19** 5627
- [50] Liao Q, Lu P X 2009 *Opt. Express* **17** 15550
- [51] Haan S L, Breen L, Karim A, Eberly J H 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 103008
- [52] Haan S L, Dyke J S V, Smith Z S 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 113001
- [53] Zhou Y M, Huang C, Liao Q, Lu P X 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 053004
- [54] Zhou Y M, Zhang Q B, Huang C, Lu P X 2012 *Phys. Rev. A* **86** 043427

Nonsequential double ionization of aligned molecules by few-cycle laser pulses at low intensity*

Huang Cheng[†] Zhong Ming-Min Wu Zheng-Mao

(School of Physical Science and Technology, Southwest University, Chongqing 400715, China)

(Received 7 January 2016; revised manuscript received 29 January 2016)

Abstract

Using the three-dimensional classical ensemble model, nonsequential double ionization (NSDI) of aligned molecules by the few-cycle laser pulse at the low intensity is investigated. Here the two electrons involved in NSDI finally are ionized through a transition doubly excited state induced by the recollision. The results show that the electron correlation behavior in NSDI is strongly dependent on the molecular alignment and the carrier-envelope phase (CEP) of the laser pulse. There are more anti-correlated emissions for the perpendicular molecules than those for the parallel molecules regardless of CEP. The dependence of the electron correlation behavior on molecular alignment can be well explained by the potential energy curves of molecules. That is because the suppressed potential barrier for perpendicular molecules is higher and the electron is more difficult to ionize than for parallel molecules. Thus for perpendicular molecules the ionization of the two electrons has longer time delay, which results in more anticorrelated emissions. Additionally, because the potential barrier for the perpendicular molecules is higher than that for the parallel molecules, the ionization yield of NSDI is about an order of magnitude smaller than that for the parallel molecules. With CEP increasing from 0 to π , the anti-correlated emission first increases and then decreases. For parallel alignment, the correlated emission is always dominant at all CEPs. However, for perpendicular alignment, the dominant correlation behavior depends on the CEP of the laser pulse. When the CEP is in a range from 0.3π to 0.7π , the anti-correlated emission is dominant. At other CEPs, the correlated emission is dominant. The dependence of the electron correlation behavior on the CEP of the laser pulse is well explained by the dependence of the returning energy of the electron on the CEP of the laser pulse. For different CEPs, the single ionization times resulting in NSDI and the corresponding acceleration electric field are different, which leads to at some CEPs the returning energy of the electron being large and at some other CEPs the returning energy of the electron being small. When those CEPs are available where the returning energy of the electron is larger, the doubly excited state induced by the recollision is more energetic. Thus at those CEPs the emissions of the two electrons from the doubly excited state have smaller time delays and more correlated emissions occur. On the contrary, at those CEPs where the returning energy of the electron is small, more anti-correlated emissions are produced.

Keywords: nonsequential double ionization, correlation behavior, few-cycle laser pulse, anti-correlation

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

DOI: 10.7498/aps.65.083301

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11504302, 61178011, 61475127, 11504301) and the Fundamental Research Funds for the Central Universities, China (Grant Nos. SWU114069, XDJK2015C148).

[†] Corresponding author. E-mail: huangcheng@swu.edu.cn