



Ar原子和K<sup>+</sup>离子序列双光双电离光电子角分布的非偶极效应

马堃 朱林繁 谢录有

**Non-dipole effects on angular distribution of photoelectrons in sequential two-photon double ionization of Ar atom and K<sup>+</sup> ion**

Ma Kun Zhu Lin-Fan Xie Lu-You

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 063201 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20211905

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211905>

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

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

Ar原子序列双光双电离产生光电子角分布的理论计算

Theoretical calculations on photoelectron angular distribution of sequential two-photon double ionization for Ar atom

物理学报. 2020, 69(5): 053201 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191814>

基于共振里德伯偶极-偶极相互作用的双反阻塞机制及量子逻辑门的实现

Implementation of the Rydberg double anti-blockade regime and the quantum logic gate based on resonant dipole-dipole interactions

物理学报. 2021, 70(13): 134202 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210059>

同向旋转双色圆偏场中非次序双电离的频率比依赖

Frequency-ratio-dependent ultrafast dynamics in nonsequential double ionization by co-rotating two-color circularly polarized laser fields

物理学报. 2021, 70(24): 243201 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20211112>

强场非次序双电离中再碰撞动力学的强度依赖

Intensity-dependent recollision dynamics in strong-field nonsequential double ionization

物理学报. 2019, 68(3): 033201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181811>

双色双光子阿秒干涉光谱的程函近似模型

An eikonal approximation model for two-color two-photon attosecond interferometric spectrum

物理学报. 2021, 70(11): 113202 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201785>

高频激光脉宽对原子光电子发射谱的影响

Pulse duration effect on photoelectron spectrum of atom irradiated by strong high frequency laser

物理学报. 2018, 67(7): 073202 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172440>

# Ar 原子和 $K^+$ 离子序列双光双电离 光电子角分布的非偶极效应\*

马堃<sup>1)2)†</sup> 朱林繁<sup>2)</sup> 颀录有<sup>3)</sup>

1) (黄山学院信息工程学院, 黄山 245041)

2) (中国科学技术大学近代物理系, 合肥 230026)

3) (西北师范大学物理与电子工程学院, 兰州 730070)

(2021 年 10 月 13 日收到; 2021 年 11 月 23 日收到修改稿)

基于多组态 Dirac-Fock 方法和密度矩阵理论, 给出了原子序列双光双电离光电子角分布的计算表达式, 开发了相应的计算程序. 利用该程序计算了 Ar 原子和  $K^+$  离子  $np$  ( $n = 2, 3$ ) 壳层的光电离截面、电偶极和非偶极角各向异性参数, 进一步给出了光电子的角分布情况. 结果表明: 在序列双光双电离中两次光电离过程相互影响, 两次光电离的截面以及各向异性参数类似; 在电离阈值附近, 3p 壳层和 2p 壳层光电离截面以及各向异性参数展现出较大的差异, 在远离阈值时, 3p 和 2p 壳层的截面和角各向异性参数变化行为类似; 在光电离截面的 Cooper 极小能量位置, 电偶极的贡献被压制, 凸显出非偶极效应的贡献. 非偶极效应导致光电子相对于入射光方向出现前向-后向不对称分布.

**关键词:** 序列双光双电离, 光电子角分布, 非偶极效应

**PACS:** 32.80.Fb, 32.80.Rm, 32.80.Wr

**DOI:** 10.7498/aps.71.20211905

## 1 引言

序列双光双电离 (2PDI) 是指原子在辐射场的作用下, 吸收一个光子后电离一个束缚态电子, 紧接着再次吸收一个光子并电离另一个束缚态电子的双电子电离过程. 2PDI 是 XUV 波段最简单的非线性原子过程, 它广泛地存在星际介质<sup>[1]</sup> 和太阳系行星电离层外部介质<sup>[2]</sup> 中. 2PDI 产生光电子的角分布和角向关联包含了量子体系的电子结构以及光与物理相互作用动力学过程的重要信息, 对其进行的研究在揭示光与物质相互作用的非线性物

理机理、建立非线性原子碰撞理论模型方面具有重要的物理意义<sup>[3]</sup>, 同时也是揭示原子、分子、团簇以及稠密物质的物理和化学性质的重要工具之一<sup>[4]</sup>. 尽管如此, 由于光源、离子源的强度以及实验检测技术的限制, 人们在光电子角分布方面的实验研究开展较少.

近年来, XUV 和 X 射线自由电子激光光源技术的进步极大地推动了人们对原子光电离过程的实验和理论研究的开展. 对 2PDI 光电子能谱和角分布谱的研究是自由电子激光主要的实验任务之一. 2007 年, Braune 等<sup>[5]</sup> 利用德国汉堡的 FALSH 自由电子激光器首次观察了惰性气体原子在 XUV

\* 国家重点研发计划 (批准号: 2017YFA0402300)、国家自然科学基金 (批准号: 11804112, 12064041)、安徽省自然科学基金 (批准号: 1808085QA22)、安徽省高校自然科学基金重点研究项目 (批准号: KJ2019A0610) 和安徽省高校优秀拔尖人才培养项目 (批准号: gxgnfx2021146) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: makun0602@163.com

波段的 2PDI 过程. 随后, 在该平台上又分别对 Ne, Ar 和 Kr 原子的 2PDI 过程展开了研究<sup>[6-10]</sup>. 实验揭示出当单光子能量大于第二次电离阈值时, 2PDI 是主要的双电离通道. 通过对两个光电子关联函数分析, 他们提取了 2PDI 过程中两个光电子角分布的各向异性参数, 指出了这些光电子的各向异性参数与单光电离的区别. 除此之外, 国际上其他自由电子激光装置也开展了 2PDI 过程的研究<sup>[11,12]</sup>. 特别值得指出的是, 近年在意大利的 FERMI 自由电子激光装置上开展了 Ar 和 Ne 原子 2PDI 光电子角分布和剩余离子的完备信息实验测量<sup>[13,14]</sup>, 重点关注了 Cooper 极小位置附近光电子相对于入射光方向的前向/后向不对称散射行为, 理论上分析了这种行为的产生原因, 即光电离过程的非偶极效应. 进一步通过控制入射光子的极化行为, 讨论了入射光的极化对 2PDI 动力学过程的影响, 并在电偶极近似下对实验结果进行了理论验证.

对光电离的实验与理论工作的开展相互促进. 最初, 理论计算主要是基于电偶极 (E1) 近似<sup>[15-17]</sup>展开的. 在光子能量不是很高时, 电偶极近似的理论计算结果可以很好地解释实验测量结果. 然而, 近年的实验发现, 在几百电子伏特甚至更低的入射光子能量时, 电偶极近似已不再适用, 需要考虑 E1 与电四极 (E2) 和磁偶极 (M1) 之间的干涉<sup>[18-22]</sup>. 由于 2PDI 过程在 XUV 及更短的波段上发生, 因此该过程中的非偶极效应更加值得关注. 2015 年, Gryzlova 等<sup>[23]</sup> 计算了 Ar 原子 3p 壳层的 2PDI 光电子角分布, 并与 Ne 原子 2p 壳层的结果进行了比较. Ar 原子 3p 壳层光电离截面存在 Cooper 极小, Ne 原子 2p 壳层的光电离不存在这一现象. 在 Cooper 极小能量附近电偶极的贡献被抑制, 非偶极效应对光电离动力学参数的影响明显. 2016 年, Grum-Grzhimailo 等<sup>[24]</sup> 利用密度矩阵理论给出了包含所有电多极和磁多极辐射场下 2PDI 光电子角分布的一般性表达式. 作为应用, 他们计算了一级非偶极修正下 Ne 原子 2p 壳层 2PDI 的光电子角分布, 并讨论了非偶极效应导致光电子角向散射的不对称分布现象. 据我们所知, 目前开展的 2PDI 研究主要针对原子体系外壳层电子的第 2 个光电子角分布, 而对内壳层电子或者第 1 个光电子的角分布研究较少. 实际上, 在 2PDI 中第 1 个光电子

角分布不仅与第一次光电离过程有关, 还受到第二次光电离过程的影响. 此外, 由于不同壳层电子受到原子核的束缚不同, 将导致内、外壳层电子的 2PDI 过程有明显的差异. 2020 年, 我们在多组态 Dirac-Fock 理论框架下, 基于密度矩阵理论研究了电偶极近似下 Ar 原子 2PDI 过程的光电离总截面、磁截面、角分布的电偶极参数以及光电子角分布, 并与已有的实验结果进行了比较<sup>[25]</sup>. 本文将在此基础上, 把电偶极近似扩展到非偶极的情况, 给出原子 2PDI 光电子角分布计算表达式, 并开发相应的计算程序. 具体计算 Ar 原子、K<sup>+</sup>离子外壳层 3p 和内壳层 2p 在 2PDI 过程中两次光电离的截面以及两个光电子角各向异性参数, 讨论非偶极效应对光电子角分布的影响.

## 2 理论方法

2PDI 过程靶原子中的两个束缚电子被电离为连续态, 对这两个连续态光电子角分布以及相互关联的研究是揭示电子结构、动力学过程以及量子等相关信息的重要途径. 伴随着自由电子激光光源技术的进步, 2PDI 过程引起了人们极大的研究兴趣<sup>[26-28]</sup>. 在文献<sup>[16, 24]</sup>中有较为详细的理论计算方法描述, 这里仅给出相关的主要理论公式. 2PDI 物理过程可以用下式描述:

$$\gamma_1 + A(\alpha_0 J_0) \rightarrow A^+(\alpha_d J_d) + e_1, \quad (1)$$

$$\gamma_2 + A^+(\alpha_d J_d) \rightarrow A^{++}(\alpha_f J_f) + e_2, \quad (2)$$

其中,  $\gamma_{1/2}$  表示第 1/第 2 个入射光子,  $A(A^+, A^{++})$  表示靶原子 (离子),  $e_{1/2}$  表示第 1/第 2 个光电子,  $J_{0/d/f}$  表示靶离子初态/中间共振态/末态的总角动量,  $\alpha_{0/d/f}$  表示确定初态/中间共振态/末态所需的其他量子数. 光电离之后剩余离子会出现一定的取向, 该取向会影响光电子的空间分布. 在对 2PDI 过程中光电子和剩余离子完备信息的实验测量中, 总截面不能简单地表示为第一次光电离截面和第二次光电离截面的直接乘积, 需要综合考虑第一步光电离和第二步光电离后剩余离子的取向. 考虑线性极化光入射, 同时测量 2PDI 的两个光电子, 用  $\theta_i$  和  $\varphi_i$  分别表示第  $i$  个光电子相对于入射光极化方向的极角和方位角, 两个光电子的角向关联函数可以表示为

$$W(J_f; \theta_1, \varphi_1, \theta_2, \varphi_2) = \pi\alpha\omega_2 \sum_{k_2 k_{\gamma_2} k_d q_d q_{\gamma_2} q_d} \sum_{\pi_2 L_2 \pi'_2 L'_2 J_d J'_d} \bar{B}^{\pi_2 L_2, \pi'_2 L'_2}(k_d, k_2, k_{\gamma_2}) \rho_{k_{\gamma_2} 0}^\gamma(\pi_2 L_2, \pi'_2 L'_2) \\ \times \rho_{k_d q_d}(J_d, J'_d; \theta_1, \varphi_1) \langle k_d q_d, k_{\gamma_2} q_{\gamma_2} | k_2 q_2 \rangle \sqrt{\frac{4\pi}{2k_2 + 1}} Y_{k_2 q_2}(\theta_2, \varphi_2), \quad (3)$$

式中  $\bar{B}^{\pi_2 L_2, \pi'_2 L'_2}(k_d, k_2, k_{\gamma_2})$  是与第二次光电离过程相关的动力学参数, 可以展开为如下的表达式:

$$\bar{B}^{\pi_2 L_2, \pi'_2 L'_2}(k_d, k_2, k_{\gamma_2}) = \frac{\hat{k}_d \hat{k}_{\gamma_2}}{\hat{L}_2 \hat{L}'_2} \sum_{\ell_2 \ell'_2 j_2 j'_2 J_2} (-1)^{J_2 + J_f + k_2 - 1/2} \hat{\ell}_2 \hat{\ell}'_2 \hat{j}_2 \hat{j}'_2 \hat{J}_2 \hat{J}'_2 \langle \ell_2 0, \ell'_2 0 | k_2 0 \rangle \\ \times \left\{ \begin{matrix} j_2 & J_2 & J_f \\ J'_2 & j'_2 & k_2 \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} j_2 & \ell_2 & 1/2 \\ \ell'_2 & j' & k_2 \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} J_d & L_2 & J_2 \\ J'_d & L'_2 & J'_2 \\ k_d & k_{\gamma_2} & k_2 \end{matrix} \right\} M_{J_f, J_f \ell_2 j_2 J_2}^{\pi_2 L_2} M_{J'_f, J'_f \ell'_2 j'_2 J'_2}^{\pi'_2 L'_2*}, \quad (4)$$

其中  $\hat{a}$  是  $\sqrt{2a+1}$  的缩写,  $L$  是辐射多极,  $j/\ell$  表示光电子的总角动量/轨道角动量,  $k$  是求和常数. (3) 式中  $\rho_{k_d q_d}(J_d, J'_d; \theta_1, \varphi_1)$  是第一次光电离后, 剩余离子与光电子的统计张量, 可以展开为

$$\rho_{k_d q_d}(J_d, J'_d; \theta_1, \varphi_1) = \pi\alpha\omega_1 (2J_0 + 1)^{-1/2} \sum_{k_1 q_1 k_{\gamma_1} q_{\gamma_1} \pi_1 L_1 \pi'_1 L'_1} \langle k_i q_i, k_1 q_1 | k_{\gamma_1} q_{\gamma_1} \rangle B^{\pi_1 L_1, \pi'_1 L'_1}(k_1, k_d, k_{\gamma_1}), \quad (5)$$

式中  $B^{\pi_1 L_1, \pi'_1 L'_1}(k_1, k_d, k_{\gamma_1})$  是与第一次光电离过程相关的动力学参数, 可以写为

$$B^{\pi_1 L_1, \pi'_1 L'_1}(k_1, k_d, k_{\gamma_1}) = \frac{3\hat{k}_d \hat{k}_1}{\hat{L}_1 \hat{L}'_1} \sum_{\ell_1 \ell'_1 j_1 j'_1 J_1 J'_1} (-1)^{J_1 + J_0 + k_{\gamma_1} + j'_1 + L'_1 + 1/2} \hat{\ell}_1 \hat{\ell}'_1 \hat{j}_1 \hat{j}'_1 \hat{J}_1 \hat{J}'_1 \langle \ell_1 0, \ell'_1 0 | k_1 0 \rangle \\ \times \left\{ \begin{matrix} j_1 & \ell_1 & 1/2 \\ \ell'_1 & j'_1 & k_1 \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} k_{\gamma_1} & J_1 & J'_1 \\ J_0 & L'_1 & L_1 \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} J_d & j_1 & J_1 \\ J'_d & j'_1 & J'_1 \\ k_d & k_1 & k_{\gamma_1} \end{matrix} \right\} M_{J_0, J_d \ell_1 j_1 J_1}^{\pi_1 L_1} M_{J'_0, J'_d \ell'_1 j'_1 J'_1}^{\pi'_1 L'_1*}. \quad (6)$$

观察可见, (4) 式和 (6) 式都有  $M_{J_0, J_d \ell_d j_d J_i}^{\pi_i L_i} = \langle (J_d, \ell_d j_d) J_i \parallel \sum_n \alpha_n \cdot \mathbf{A}_n^{\pi_i L_i} \parallel J_0 \rangle$ , 称为光电离的跃迁约化矩阵元. 它包括任意电多极和磁多极的贡献, 其中  $\pi = 0$  表示磁多极,  $\pi = 1$  表示电多极. 需要指出的是, 角向关联函数 (3) 式包含了两个光电子角向分布的完整信息, 对其中一个光电子角向部分进行积分, 可得到另外一个光电子角向分布的表达式. 在电偶极近似下, 对 (3) 式中的一个光电子进行角向积分, 可以得到第  $i$  个光电子角向分布的参数表达式的形式:

$$\frac{d\sigma^{(i)}}{d\Omega^{(i)}} = \frac{\sigma^{(i)}}{4\pi} (1 + \beta_2^{(i)} P_2 \cos\theta_i + \beta_4^{(i)} P_4 \cos\theta_i), \quad (7)$$

式中  $\beta_2^{(i)}$  和  $\beta_4^{(i)}$  分别表示光电子 2 阶和 4 阶电偶极各向异性参数,  $P_2$  和  $P_4$  分别是 2 阶和 4 阶勒让德多项式. 值得注意的是, 由于 2PDI 中两次光电离过程是相互影响的, 因此 (7) 式与单光子单电离光电子角分布以及各向异性参数的表达式是不同的. 近年来, 随着实验测量技术和光源的发展, 实验上揭示出电偶极近似在很多情况下已经不再成立, 需要考虑非偶极修正. 包括一级非偶极效应后, 对

(3) 式中的一个光电子进行角向积分, 可以得到一级非偶极修正下的光电子角分布参数化表达式:

$$\frac{d\sigma^{(i)}}{d\Omega^{(i)}} = \frac{\sigma^{(i)}}{4\pi} [1 + \beta_2^{(i)} P_2 \cos\theta_2 + \beta_4^{(i)} P_4 \cos\theta_2 \\ + (\delta^{(i)} + \gamma_2^{(i)} \cos^2\theta_2 + \gamma_4^{(i)} \cos^4\theta_2) \sin\theta_2 \cos\varphi_2]. \quad (8)$$

式中  $\delta^{(i)}$ ,  $\gamma_2^{(i)}$  和  $\gamma_4^{(i)}$  为光电子角分布的一级非偶极各向异性参数. 考虑到 (8) 式是对 (3) 式角向部分积分得到的, 所以电偶极和非偶极各向异性参数最终将表示为一系列  $B^{\pi_1 L_1, \pi'_1 L'_1}(k_1, k_d, k_{\gamma_1})$  和  $\bar{B}^{\pi_2 L_2, \pi'_2 L'_2}(k_d, k_2, k_{\gamma_2})$  参数组合.

### 3 计算和讨论

基于以上公式, 在 RATIP 程序的基础上<sup>[29]</sup>, 开发了用于计算 2PDI 光电子角分布的计算程序. 电偶极计算的正确性已在之前工作中<sup>[25]</sup> 得以验证, 本文将进一步拓展到一级非偶极近似情况. 具体以 Ar 原子、K<sup>+</sup> 离子为研究对象, 分别计算了外壳层 3p 和内壳层 2p 电子 2PDI 的总截面、光电子角分布各向异性参数. 原子靶态采用基于多组态 Dirac-Fock 理论方法开发的 GRASP2K 程序<sup>[30]</sup> 计算.

### 3.1 光电离截面

Ar 原子 ( $K^+$ 离子) 基态  $np$  ( $n = 2, 3$ ) 壳层的 2PDI 物理过程可以用下式表示:

$$\begin{aligned} \gamma_1 + \text{Ar}/K^+(np^6 : ^1S_0) \rightarrow \\ \text{Ar}^+/K^{++}(np^5 : ^2P_{3/2,1/2}) + e_1, \end{aligned} \quad (9a)$$

$$\begin{aligned} \gamma_2 + \text{Ar}^+/K^{++}(np^5 : ^2P_{3/2}) \rightarrow \\ \text{Ar}^{++}/K^{3+}(np^4 : ^3P_{2,1,0}, ^1D_2, ^1S_0) + e_2. \end{aligned} \quad (9b)$$

满壳层  $np$  第一次光电离有 2 个电离通道, 对应末态分别为  $^2P_{3/2}$  和  $^2P_{1/2}$  离子态. 考虑到  $^2P_{1/2}$  态的总角动量小于 1/2, 是无取向的, 本文仅研究  $^2P_{3/2}$  态.  $^2P_{3/2}$  态的 p 壳层发生第二光电离后产生  $^3P_{2,1,0}$ ,  $^1D_2$  和  $^1S_0$  五个电离末态. 为了验证本文计算结果的正确性, 图 1 分别给出了 Ar 原子和  $K^+$  满壳层 3p/2p 壳层的一次和二次光电离截面与光子能量关系曲线. 本文的计算结果与文献 [23] 的截面数据具有很好的一致性. 从图 1 可以看出, Ar 原子和  $K^+$  离子 3p 壳层的第一和第二次光电离截面都出现了 Cooper 极小. 相比于第一次电离, 第二次电离的 Cooper 极小位置向低能端偏移, 这是由于靶原子被剥离一个电子后, 原子核对电子的束缚变强. 分析可知, p 壳层电子光电离截面主要来自

$np \rightarrow \varepsilon d$  电偶极跃迁的贡献, 在 Cooper 极小的能量区域该电离通道受到明显的抑制. 这一现象为研究非偶极贡献提供了理想的能量区间. 与 3p 外壳层情况不同, 2p 壳层两次光电离的截面随着光子能量增加单调减小, 没有出现 Cooper 极小.

### 3.2 光电子各向异性参数

图 2 和图 3 分别给出了 Ar 原子和  $K^+$  离子在 2PDI 过程中  $p_{3/2}$  壳层第一次光电离光电子 2 阶和 4 阶电偶极各向异性参数 ( $\beta_2^{(1)}, \beta_4^{(1)}$ ) 与入射光子能量的关系. 由第 2 节理论分析可知, 这两个参数均来自纯电偶极跃迁的贡献. 虽然第一次光电离的光电子能量不受第二次光电离影响, 但图 2 和图 3 给出的第一个光电子电偶极各向异性参数共有 5 条并不重合的曲线, 对应第二次电离的 5 个末态. 这说明中间态的取向会导致 2PDI 中的电偶极各向异性参数不仅与本次电离末态有关, 还与第二次光电离末态有关. 由图 2 和图 3 还可知, 在 Cooper 极小的能量位置附近 3p 壳层的电偶极参数变化较为复杂, 其他能量区域 Ar 原子和  $K^+$  离子 3p 和 2p 壳层的光电子角分布各向异性参数随着光子能量的增加表现出类似的行为, 即随着光子能量的增加而增加, 最后逐渐地趋于一个恒定的值.

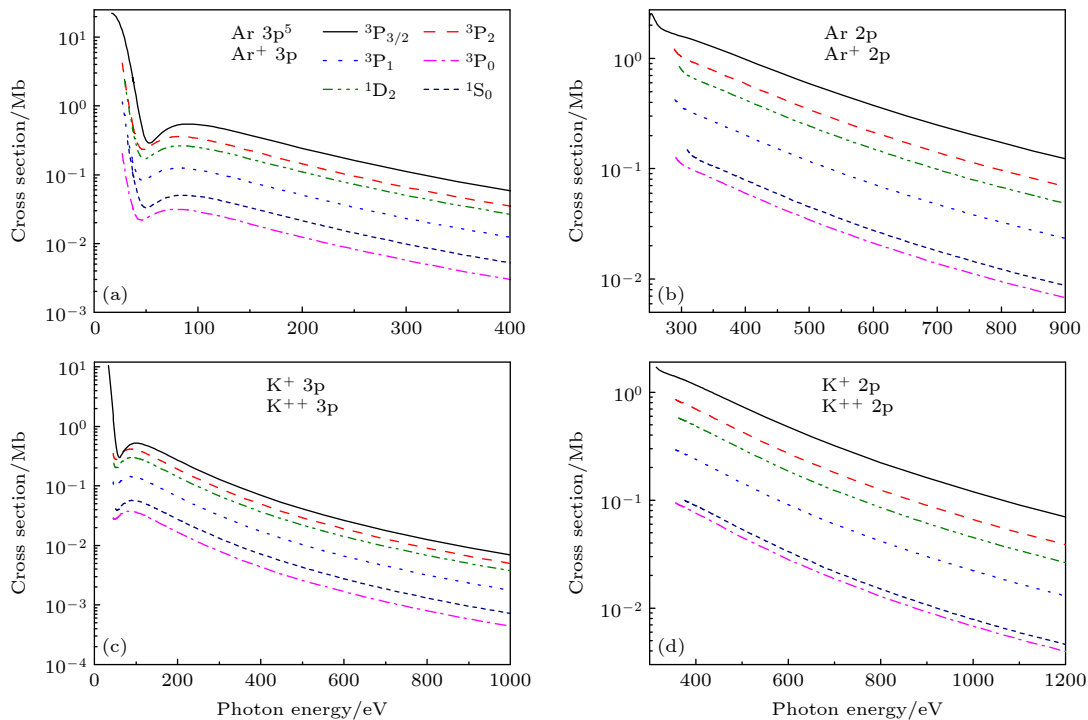


图 1 Ar 原子和  $K^+$  离子  $np$  ( $n = 2, 3$ ) 壳层第一次和第二次光电离截面 ( $1 \text{ b} = 10^{-28} \text{ m}^2$ )

Fig. 1. The first and second photoionization cross section of the  $np$  ( $n = 2, 3$ ) shell in Ar atom and  $K^+$  ion.

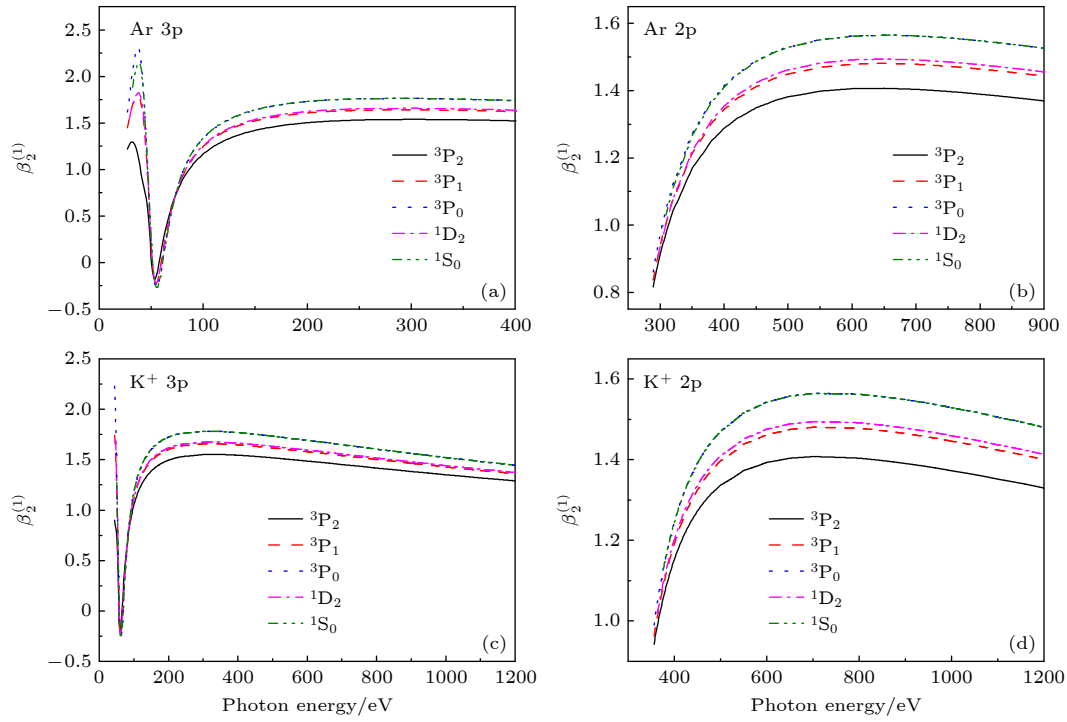


图 2 Ar 原子和  $K^+$  离子  $np$  ( $n = 2, 3$ ) 壳层序列双光双电离中第 1 个光电子的电偶极角各向异性参数  $\beta_2^{(1)}$   
 Fig. 2. Asymmetry parameter of electric dipole  $\beta_2^{(1)}$  for the first photoelectron angular distribution in 2PDI of the Ar and  $K^+$   $np$  ( $n = 2, 3$ ) shell as a function of the photon energy.

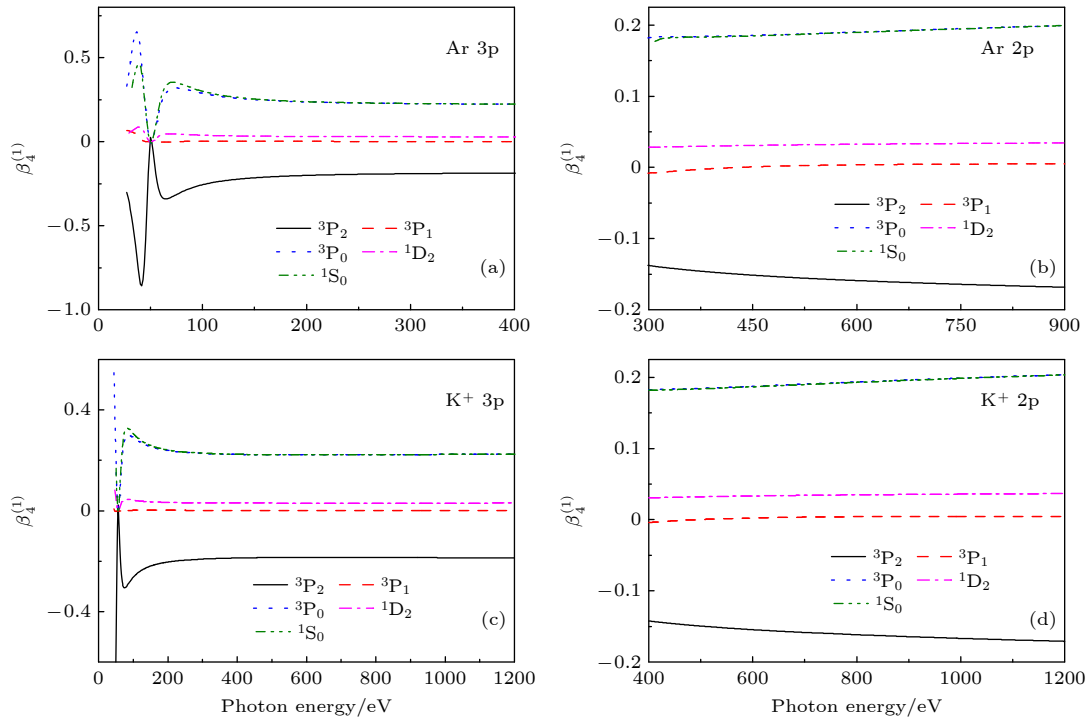


图 3 Ar 原子和  $K^+$  离子  $np$  ( $n = 2, 3$ ) 壳层序列双光双电离中第 1 个光电子的电偶极角各向异性参数  $\beta_4^{(1)}$   
 Fig. 3. Asymmetry parameter of electric dipole  $\beta_4^{(1)}$  for the first photoelectron angular distribution in 2PDI of the Ar and  $K^+$   $np$  ( $n = 2, 3$ ) shell as a function of the photon energy.

进一步分析图 2 可发现, Ar 原子和  $K^+$  离子 3p 壳层电离后各原子态的  $\beta_2^{(1)}$  参数变化行为类似,

在 Cooper 极小附近,  $\beta_2^{(1)}$  随着光子能量的增加先减小再增加, 且有两个零点. Ar 原子 ( $K^+$  离子)  $\beta_2^{(1)}$

参数零点对应的光子能量分别为 50.1 和 57.4 eV (56.6 和 65.8 eV). 这表明该能量点处, 电偶极参数  $\beta_2^{(1)}$  对光电子角分布的各向异性没有贡献. 图 3 表明  $\beta_4^{(1)}$  参数与原子态有关,  $^3P_0$  和  $^1S_0$  态变化规律类似, 先减小到 0, 再增加最后趋于 0.25.  $^3P_2$  态的  $\beta_4^{(1)}$  从 -0.88 增加到 0 再减小到 -0.34,  $^3P_1$  和  $^1D_2$  两个原子态的  $\beta_4^{(1)}$  数值很小, 尤其是  $^3P_1$  态, 可以忽略不计. 我们分析这是因为在电偶极近似下,  $J = 0$  的末态 ( $^3P_0$  和  $^1S_0$ ) 只有 1 个电离通道, 即  $np_{3/2} \rightarrow \epsilon d_{3/2}$ , 而  $J = 1$  和 2 的末态 ( $^3P_{2,1}$  和  $^1D_2$ ) 对应多个电离通道, 各通道的贡献相互影响. 需要指出, 虽然 5 个电离末态的  $\beta_4^{(1)}$  在 Cooper 极小附近变化较为复杂, 但 Ar 原子 ( $K^+$  离子) 在 51.4 eV (57.7 eV) 能量点附近  $\beta_4^{(1)}$  的值均近似为零. 即在该能量附近, 4 阶电偶极参数对光电子角分布的各向异性贡献很弱.

图 4—图 6 给出了一级非偶极各向异性参数  $\delta^{(1)}$ ,  $\gamma_2^{(1)}$  和  $\gamma_4^{(1)}$  随入射光子能量的变化情况. 这 3 个非偶极参数来自电偶极 (E1) 与电四极 (E2) 和磁偶极 (M1) 干涉的贡献. 与电偶极参数类似, 除 Cooper 极小能量附近外, 其他能量区域 3p 和 2p 壳层一级非偶极参数随着光子能量的变化趋势类似.

第二次电离末态对  $\delta^{(1)}$  和  $\gamma_2^{(1)}$  参数的影响不大, 5 个末态对应的参数值随光子能量的增加变化趋势基本一致. 具体有如下特点: 1) 在 Cooper 极小附近, 3p 壳层的  $\delta^{(1)}$  随着光子能量增加先减小再逐渐增加, 该变化规律与 2 阶电偶极参数  $\beta_2^{(1)}$  变化行为类似, 且均有两个零点.  $\gamma_2^{(1)}$  随着光子能量增加先快速增加, 然后快速减小到零附近, 再缓慢增加. 2) 2p 壳层的  $\delta^{(1)}$  和  $\gamma_2^{(1)}$  随着光子能量变化规律类似, 随着光子能量增加单调地增加.

与  $\delta^{(1)}$  和  $\gamma_2^{(1)}$  不同, 非偶极参数  $\gamma_4^{(1)}$  对第二次电离末态的依赖性较大. 如  $^3P_0$  和  $^1S_0$  态变化趋势类似, 与  $^3P_2$  态的变化趋势相反.  $^3P_1$  和  $^1D_2$  对应的  $\gamma_4$  参数数值很小, 近似为 0. 3p 壳层的  $\gamma_4^{(1)}$  参数在 Cooper 极小位置展现了复杂的变化行为, 即存在 1 个极大值、1 个极小值和 2 个零点. 尽管第二次电离的不同末态对应的  $\gamma_4^{(1)}$  具有差异性, 但他们的零点位置相近. 如 Ar 原子 ( $K^+$  离子) 3p 壳层  $\gamma_4^{(1)}$  参数两个零点位置能量分别为 52.6 和 176.8 eV (75 和 208 eV). 由于 2p 壳层电子比 3p 壳层电子感受到的原子核束缚更强, 不同末态对应  $\gamma_4^{(1)}$  参数的数值从零开始随着光子能量的增加单调地增大或减小, 没有出现极值的情况.

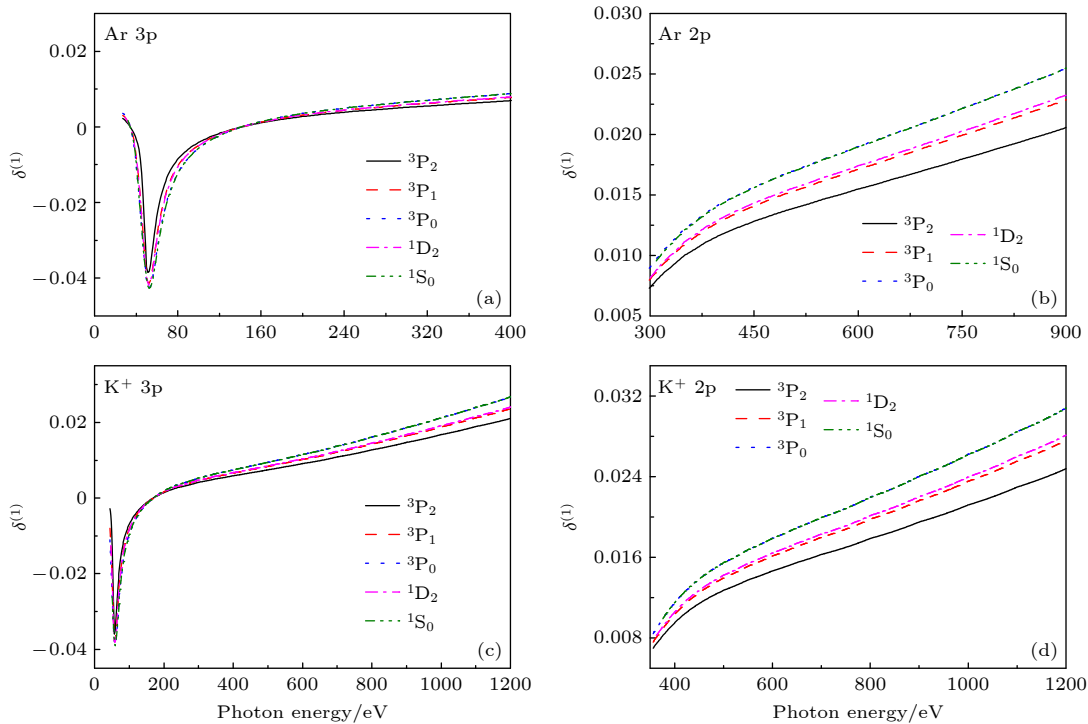


图 4 Ar 原子和  $K^+$  离子  $np$  ( $n = 2, 3$ ) 壳层 2PDI 中第 1 个光电子的一级非偶极各向异性参数  $\delta^{(1)}$

Fig. 4. Asymmetry parameter of non-dipole  $\delta^{(1)}$  for the first photoelectron angular distribution in 2PDI of the Ar and  $K^+$   $np$  ( $n = 2, 3$ ) shell as a function of the photon energy.

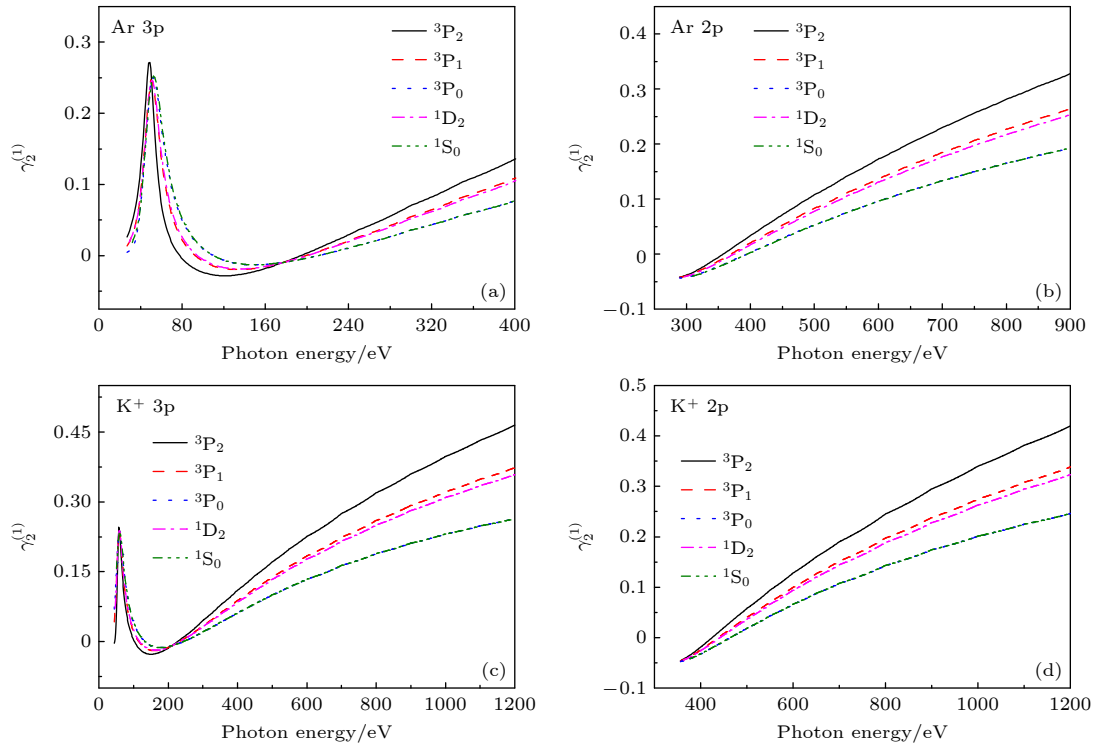


图 5 Ar 原子和  $K^+$  离子  $np$  ( $n = 2, 3$ ) 壳层 2PDI 中第 1 个光电子的一级非偶极各向异性参数  $\gamma_2^{(1)}$   
 Fig. 5. Asymmetry parameter of non-dipole  $\gamma_2^{(1)}$  for the first photoelectron angular distribution in 2PDI of the Ar and  $K^+$   $np$  ( $n = 2, 3$ ) shell as a function of the photon energy.

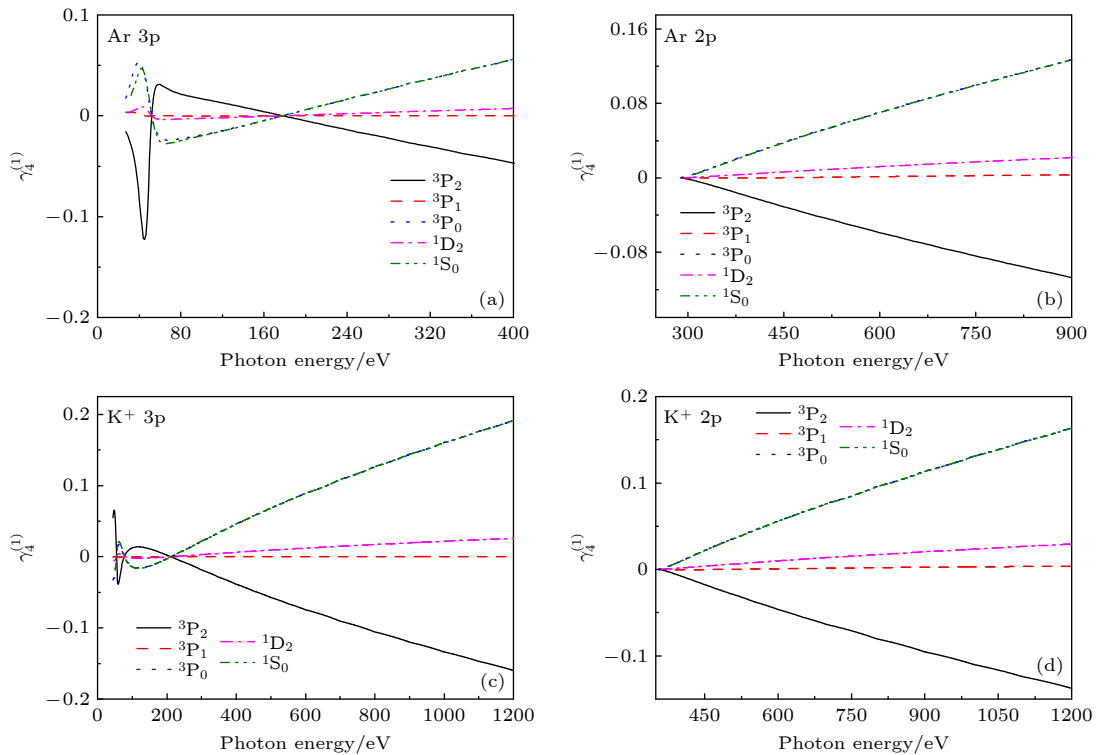


图 6 Ar 原子和  $K^+$  离子  $np$  ( $n = 2, 3$ ) 壳层 2PDI 中第 1 个光电子的一级非偶极各向异性参数  $\gamma_4^{(1)}$   
 Fig. 6. Asymmetry parameter of non-dipole  $\gamma_4^{(1)}$  for the first photoelectron angular distribution in 2PDI of the Ar and  $K^+$   $np$  ( $n = 2, 3$ ) shell as a function of the photon energy.



### 3.3 光电子角分布

利用上面得到的电偶极和非偶极各向异性参数并结合 (8) 式, 可以获得 2PDI 过程光电子的角分布情况. 为了考察第二次光电离过程对第 1 个光电子角分布的影响, 图 7 给出了入射光子能量 72 eV、方位角  $\varphi_1 = 0$  时 Ar 原子 2PDI 中第 1 个光电子  $3p_{3/2}$  壳层光电子角分布. 实线和虚线分别表示第二次电离末态为  $^3P_2$  和  $^1S_0$  的情况. 可以看出这两个原子态对应的光电子角分布具有很大的差异,  $^1S_0$  态光电子角分布极大值在入射光极化方向,  $^3P_2$  态光电子角分布的极大值在入射光极化方向  $45^\circ$  附近. 另外, 我们发现在入射光方向,  $^3P_2$  态光电子角分布强度出现极小值, 而  $^1S_0$  态光电子角分布强度出现极大值. 这些差别进一步表明: 在 2PDI 过程中, 第二次光电离过程的发生会对第一次光电离的光电子角分布产生影响. 这里需要说明的是, 本文计算结果表明第 2 个光电子各向异性参数和角分布与第 1 个光电子类似, 因此正文中仅给出了第 1 个光电子的情况, 第 2 个光电子的各向异性参数以补充材料 (online) 形式给出.

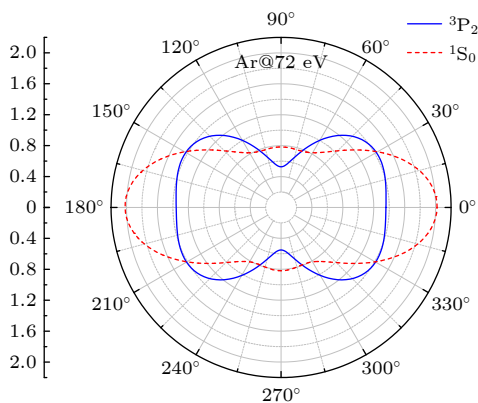


图 7 Ar 原子  $3p_{3/2}$  壳层 2PDI 过程第 1 个光电子角分布  
Fig. 7. The first photoelectron angular distribution in 2PDI of Ar atom  $3p_{3/2}$  shell.

非偶极效应破坏光电子关于入射光极化方向角分布的对称性, 即光电子相对于入射光方向出现前向和后向不对称分布. 图 8 给出了入射光子能量为 57 eV 时,  $K^+$  离子  $3p$  壳层 2PDI 过程的第 1 个光电子角分布, 图中给出第二次电离末态为  $^3P_2$  的结果. 实线和虚线分别表示电偶极近似和包括一级非偶极效应的角分布情况. 可以看出, 在电偶极近似下, 光电子相对于入射光极化方向和入射光方向均具有较好的对称性. 包括一级非偶极效应后, 相

对于入射光极化方向的对称性被破坏, 即光电子相对于入射光方向呈现前向-后向不对称的分布. 为了定量考察非偶极效应的影响, 引入非对称性参数, 定义如下:

$$A(45^\circ) = \frac{W(-45^\circ) - W(45^\circ)}{W(-45^\circ) + W(45^\circ)}. \quad (10)$$

其中,  $W(\theta)$  表示  $\theta$  方向光电子强度. 计算可得电偶极近似和一级非偶极下, 该参数分别为 0.00067 和 0.05509, 可见非偶极角分布的非对称性参数是电偶极近似下的 82 倍.

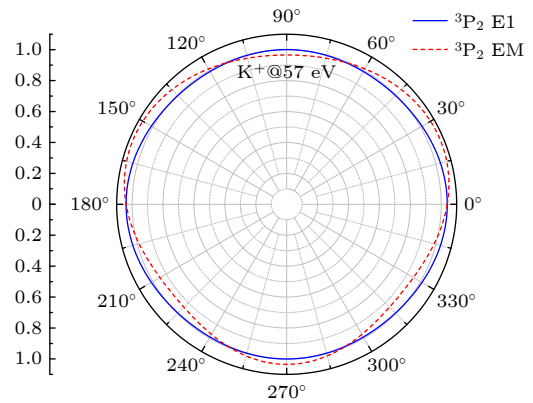


图 8  $K^+$  离子  $3p_{3/2}$  壳层 2PDI 过程第 1 个光电子角分布  
Fig. 8. The first photoelectron angular distribution in 2PDI of the  $K^+$  ion  $3p_{3/2}$  shell.

## 4 总结

本文在前期工作基础上 [25], 将电偶极近似拓展到非电偶极情形, 对 2PDI 过程两次光电离的截面、各向异性参数以及角分布进行了计算. 结果表明: 1) 在 2PDI 过程中两个光电子的各向异性参数和角分布具有类似形状特征. 2) 阈值附近, 外壳层  $3p$  的光电离截面存在 Cooper 极小, 在 Cooper 极小能量附近光电子角分布各向异性参数变化行为复杂, 对光子能量的依赖性很强; 内壳层  $2p$  的光电离截面随入射光子的增加单调减小, 角分布各向异性参数随光子能量增加也是单调变化. 远离阈值区域,  $3p$  和  $2p$  壳层光电子角分布各向异性参数随光子能量的变化行为类似. 3) 在 Cooper 极小能量附近, 电偶极各向异性参数经过零点. 在电偶极近似下, 入射光子能量为零点位置能量时光电子角分布相对于入射光方向和入射光极化方向均呈对称性分布. 包括非偶极效应贡献后, 光电子相对于入射光方向出现前向-后向不对称性分布. 4) 在 2PDI

过程中, 无论第二次光电离过程是否测量, 第 1 个光电子角分布都会受到第二次电离的影响. 近年, 随着 XUV 和 X 射线自由电子激光技术的进步, 促进了 2PDI 过程的实验研究, 这对揭示光与物理相互作用的非线性机制具有重要的意义. 我们期望本文在 2PDI 方面的工作能够在自由电子激光装置上开展的双光电离实验及相关理论研究工作提供具有价值的参考.

## 参考文献

- [1] Böhme D K 2011 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **13** 18253
- [2] Thissen R, Witasse O, Dutuit O, et al. 2011 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **13** 18264
- [3] Gillaspay J D, Pomeroy J M, Perrella A C, et al. 2007 *J. Phys. Conf. Ser.* **58** 451
- [4] Ott C, Kaldun A, Raith P, et al. 2013 *Science* **340** 716
- [5] Braune M, Reinköster A, Viefhaus J, et al. 2007 *XXV Int. Conf. on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC)* Freiburg, Germany, July 25–31, 2007 Fr034
- [6] Moshhammer R, Jiang Y H, Foucar L, et al. 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 203001
- [7] Rudenko A, Foucar L, Kurka M, et al. 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 073003
- [8] Kurka M, Rudenko A, Foucar L 2009 *J. Phys. B* **42** 141002
- [9] Augustin S, Schulz M, Schmid G, et al. 2018 *Phys. Rev. A* **98** 033408
- [10] Braune M, Hartmann G, Ilchen M, et al. 2015 *J. Mod. Opt.* **63** 1047422
- [11] Fukuzawa H, Gryzlova E V, Motomura K, et al. 2010 *J. Phys. B* **43** 111001
- [12] Gryzlova E V, Ma Ri, Fukuzawa H, et al. 2011 *Phys. Rev. A* **84** 063405
- [13] Ilchen M G, Hartmann G, Gryzlova E V 2018 *Nat. Commun.* **9** 4659
- [14] Carpeggiani P A, Gryzlova E V, Reduzzi M 2019 *Nat. Phys.* **15** 170
- [15] Kheifets A S 2007 *J. Phys. B* **40** F313
- [16] Fritzsche S, Grum-Grzhimailo A N, Gryzlova E V, Kabachnik N M 2008 *J. Phys. B* **41** 165601
- [17] Gryzlova E V, Grum-Grzhimailo A N, Fritzsche S, Kabachnik N M 2010 *J. Phys. B* **43** 225602
- [18] Krässig B, Jung M, Gemmell D S, Kanter E P, LeBrun T, Southworth S H, Young L 1995 *Phys. Rev. Lett.* **75** 4736
- [19] Jung M, Krässig B, Gemmell D S, Kanter E P, LeBrun T, Southworth S H, Young L 1996 *Phys. Rev. A* **54** 2127
- [20] Hemmers O, Fisher G, Glans P, Hansen D L, Wang H, Whitfield S B, Wehlitz R, Levin J C, Sellin I A, Perera R C C, Dias E W B, Chakraborty H S, Deshmukh P C, Manson S T, Lindle D W 1997 *J. Phys. B* **30** L727
- [21] Holste K, Borovik A A, Buhr T, Ricz S, Kövér Á, Bernhardt D, Schippers S, Varga D, Müller A 2014 *J. Phys. Confer. Ser.* **488** 022041
- [22] Ma K, Xie L Y, Zhang D H, Jiang J, Dong C Z 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 083201 (in Chinese) [马堃, 颀录有, 张登红, 蒋军, 董晨钟 2016 物理学报 **65** 083201]
- [23] Gryzlova E V, Grum-Grzhimailo A N, Staroselskaya E I 2015 *J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenom.* **15** 277
- [24] Grum-Grzhimailo A N, Gryzlova E V, Fritzsche S 2016 *J. Mod. Opt.* **63** 334
- [25] Ma K, Xie L Y, Dong C Z 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 053201 (in Chinese) [马堃, 颀录有, 董晨钟 2020 物理学报 **69** 053201]
- [26] Wang M X, Chen S G, Liang H, Peng L Y 2020 *Chin. Phys. B* **29** 013302
- [27] Kiselev M D, Carpeggiani P A, Gryzlova E V, et al. 2020 *J. Phys. B* **53** 244006
- [28] Varvarezos L, Düsterer S, Kiselev M D, et al. 2021 *Phys. Rev. A* **103** 022832
- [29] Fritzsche S 2012 *Comput. Phys. Commun.* **183** 1525
- [30] Jönsson P, Gaigalas G, Bieroń J, et al. 2013 *Comput. Phys. Commun.* **184** 2197

# Non-dipole effects on angular distribution of photoelectrons in sequential two-photon double ionization of Ar atom and $K^+$ ion<sup>\*</sup>

Ma Kun<sup>1)2)†</sup> Zhu Lin-Fan<sup>2)</sup> Xie Lu-You<sup>3)</sup>

1) (*School of Information Engineering, Huangshan University, Huangshan 245041, China*)

2) (*Department of Modern Physics, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China*)

3) (*College of Physics and Electronic Engineering, Northwest Normal University, Lanzhou 730070, China*)

( Received 13 October 2021; revised manuscript received 23 November 2021 )

## Abstract

Owing to the development of XUV and X ray of the free-electron lasers, the photoelectron angular distribution in the sequential two-photon double ionization has received increasing attention of theorists and experimentalists, because it provides the valuable information about the electronic structure of atom or molecule systems and allows the obtaining of additional information about mechanisms and pathways of the two-photon double ionization. In this paper, the expression of the sequential two-photon double ionization process of the photoelectron angular distributions, including the non-dipole effects, is obtained based on the multi-configuration Dirac-Fock method and the density matrix theory, and the corresponding calculation code is also developed. Based on the code, the sequential two-photon double ionization process of the 3p and 2p shells of Ar atom and  $K^+$  ion are studied, in which, the dipole and the non-dipole parameters of photoelectron angular distribution are investigated systematically. It is found that the angular distributions of the first- and second-step electrons in sequential two-photon double ionization are similar and the two photoionization processes affect each other. Near the ionization threshold, the photoionization cross-sections and anisotropy parameters for the 3p shell and the 2p shell show a large difference. While away from the threshold, the cross-section and angular anisotropy parameters of the 3p and 2p shells show similar behaviors. At the position of Cooper minimum of the photoionization cross section, the contribution of the electric dipole is suppressed, and the non-dipole effect is obvious. The non-dipole effect leads to a forward-backward asymmetric distribution of photoelectrons relative to the direction of incident light. The results of this paper will be helpful in studying the nonlinear processes of photon and matter interaction in the XUV range.

**Keywords:** sequential two-photon double ionization, angular distribution of photoelectron, non-dipole effect

**PACS:** 32.80.Fb, 32.80.Rm, 32.80.Wr

**DOI:** [10.7498/aps.71.20211905](https://doi.org/10.7498/aps.71.20211905)

<sup>\*</sup> Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant No. 2017YFA0402300), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11804112, 12064041), the Natural Science Foundation of Anhui Province, China (Grant No. 1808085QA22), the Natural Science Foundation of Higher Education Institutions of Anhui Province, China (Grant No. KJ2019A0610), and the Excellent Top Talent Cultivation Project of Higher Education Institutions of Anhui Province, China (Grant No. gxgnfx2021146).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [makun0602@163.com](mailto:makun0602@163.com)