

不同原子在飞秒强激光场中的里德堡态激发和双电离

赵磊 张琦 董敬伟 吕航 徐海峰

Rydberg state excitations and double ionizations of different atoms in strong femtosecond laser field

Zhao Lei Zhang Qi Dong Jing-Wei Lü Hang Xu Hai-Feng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 223201 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.223201

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.223201>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I22>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

49S 里德堡态的射频双光子光谱

Two-photon radio frequency spectroscopy of 49S Rydberg state

物理学报.2015, 64(16): 163201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.163201>

长程铯里德堡分子的势能曲线

Potentials of long-range cesium Rydberg molecule

物理学报.2015, 64(13): 133202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.133202>

高激发态原子间的范德瓦尔斯相互作用

Van der Waals interaction between high excited states

物理学报.2014, 63(13): 133201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.133201>

铯 Rydberg 原子 Stark 态的避免交叉

Observation of the avoided crossing of Cs Rydberg Stark states

物理学报.2013, 62(1): 013201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.013201>

超冷铯 Rydberg 原子寿命的测量

Measurement of lifetime of ultracold cesium Rydberg states

物理学报.2011, 60(7): 073202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.60.073202>

专题: 超快强激光驱动的原子里德堡态

不同原子在飞秒强激光场中的里德堡态 激发和双电离*

赵磊 张琦 董敬伟 吕航[†] 徐海峰

(吉林大学原子与分子物理研究所, 长春 130012)

(2016年6月15日收到; 2016年8月12日收到修改稿)

利用质量分辨的脉冲电场电离方法结合飞行时间质谱, 系统地研究了 He, Ar 和 Xe 原子在 800 nm 飞秒强激光场中的里德堡态激发过程, 并将其与非序列双电离过程进行了比较, 探讨了激发与非序列双电离过程的区别, 以及不同原子里德堡态激发过程的规律性变化. 研究结果有助于深入了解强激光场中原子里德堡态激发的物理机理.

关键词: 里德堡态激发, 隧穿电离, 强激光场, 双电离

PACS: 32.80.Ee, 32.80.Rm, 33.15.Ta, 34.50.-s

DOI: 10.7498/aps.65.223201

1 引言

在过去的几十年里, 超短脉冲激光技术的飞速发展使得原子分子与超快强激光场的相互作用成为国际前沿和热点研究领域之一. 原子分子与强激光场的相互作用呈现了很多新奇的物理现象, 包括高次谐波发射 (high harmonic generation, HHG)^[1-3]、高阶阈上电离 (high-order above threshold ionization, HATI)^[4-8] 和非序列双电离 (non-sequential double ionization, NSDI)^[9-15] 等. Corkum^[16] 提出的三步重散射模型在解释原子的强场物理过程中取得了巨大成功. 按照三步重散射模型, 原子中的束缚电子在强激光场中首先发生隧穿电离, 其后在激光电场的作用下加速飞离母核, 当激光电场的方向改变时, 部分自由电子可反向运动返回到母核附近, 与母核复合发射高能光子 (即 HHG), 或与母核非弹性碰撞导致另一个束缚电子电离 (即 NSDI), 或与母核发生弹性碰撞导致 HATI 过程.

最近的实验^[17] 与理论研究^[18] 表明, 在隧穿电离光强区域中性里德堡态原子可以稳定地存活于强激光场中. 这种强激光场中原子的里德堡态激发 (Rydberg state excitation, RSE) 被称之为受挫的隧穿电离 (frustrated tunneling ionization, FTI)^[17], 或隧穿电离电子重俘获过程^[18], 是原子分子与超短强激光相互作用的一个新特征, 可作为一种有效的中性粒子加速手段^[19], 已引起了广泛的理论和实验研究兴趣^[20-28]. 除 He 原子外, 研究还观测到双原子分子^[21] 以及由分子解离^[22] 或库仑爆炸^[23-25] 产生原子碎片的中性激发, 表明 RSE 是一个普遍存在的强场物理过程. 有理论研究表明, 原子在强激光场中经多光子吸收的 Freeman 共振亦是导致 RSE 过程的一种可能物理机理^[26,27]. 最近的研究表明^[28], 强场 RSE 过程中可能蕴含着新的量子效应, 期待更深入的理论和实验研究.

相比于其他强场物理过程, 实验上直接测量里德堡态激发的研究工作仍非常有限^[17]. 强场中不同原子体系的 RSE 过程及其与隧穿电离电子诱导的强场物理过程 (如 HHG, NSDI, HATI) 之间

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2013CB922200) 和国家自然科学基金 (批准号: 11534004, U1532138, 11274140) 资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: Lvhang0811@jlu.edu.cn

的竞争关系, 实验上尚缺乏系统的研究. Landsman 等^[29]在强场近似下计算了He原子里德堡态激发产率对激光椭圆偏率的依赖, 并首次将RSE过程与HHG过程进行了对比, 指出两种物理过程中电子的电离时刻不同, 但电离之后的运动过程相似, 导致了对激光椭圆偏率有相似的依赖关系. Huang 等^[30]通过三维半经典模型研究了不同原子的里德堡态激发产率对激光椭圆偏率的依赖, 他们的理论结果预言了里德堡态激发产率会随着原子序数的增加而增加, 且隧穿电子的初始条件决定了存活窗口的大小.

本文中, 我们在实验上针对不同原子 (He, Ar, Xe) 在强激光场中的里德堡态激发过程进行了系统的研究, 并将其与双电离过程进行了对比分析, 包括不同原子的激发和电离的产率及其与激光光强和偏振状态的关系, 实验发现原子RSE的产率随原子序数的增加而增加, 对激光椭圆偏率的依赖程度随原子序数的增加而减弱. 本研究有助于深入理解强激光场中原子的里德堡态激发过程.

2 实验方法

实验采用类似质量分辨阈值光电离技术^[31], 利用延迟的脉冲静电场电离飞秒激光场中的中性里德堡态, 通过飞行时间质谱 (TOF) 检测由中性里德堡态电离产生的离子信号. 图1为脉冲电场电离里德堡态方法的示意图. 简单地说, 一束原子束通过连续溢流进入反应区, 与中心波长800 nm、脉宽50 fs的飞秒激光垂直相互作用. 直接电离的离子 M^+ 被一个反向电场推走后, 剩下存活的中性里德堡态 M^* 被一个延迟1 μs 的正向脉冲静电场电离, 1 μs 的延迟时间能够确保直接电离的离子 M^+ 全部被推走, 此时中性里德堡态电离形成的离子 $(M^*)^+$ 经电场引出加速后, 自由飞行穿过50 cm长

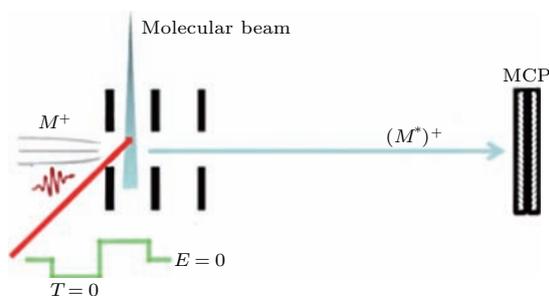


图1 脉冲电场电离里德堡态方法的示意图

Fig. 1. Schematic representation of pulsed electric field ionize Rydberg states.

的飞行腔, 由微通道板探测器检测并通过PC分析.

激光脉冲的能量使用一个半波片和一个格兰棱镜连续控制, 在激光进入反应室前由一个250 mm的平凸透镜聚焦, 聚焦后的激光光强根据Ammosov-Delome-Krainov (ADK) 模型^[32]计算的Xe原子的饱和光强进行标定. 激光的偏振状态用一个1/4波片连续改变.

3 结果与讨论

我们采用脉冲静电场电离中性里德堡态的方法, 研究了不同原子在50 fs, 800 nm强激光场中的RSE过程. 相比直接测量中性粒子的方法^[17], 荷电粒子检测的灵敏度更高, 同时可以在相同实验条件和检测效率下比较电离和激发过程. 在我们的实验条件下, 根据绝热场致电离公式 $F = 1/9n^4$ (F 为原子单位制下的激光电场, n 为里德堡态的主量子数), 估算所测量的中性里德堡态的主量子数 n 大致在20—30之间.

首先研究了He原子的强场RSE过程, 并与文献^[17]的结果进行了比较. 图2(a)给出了800 nm线偏振激光场下直接电离的飞行时间质谱 (He^+) 和同样条件下由脉冲静电场电离原子里德堡态的飞行时间质谱 ($(\text{He}^*)^+$), 对应光强为1 PW/cm^2 . 实验中, 脉冲静电场相比激光脉冲的延迟时间为1 μs , 电压与检测直接电离离子的静电场电压大小保持一致, 以保证 $(M^*)^+$ 和 M^+ 离子的检测效率的一致. 从图中可以看出明显的由中性里德堡态 He^* 经脉冲静电场电离产生的 $(\text{He}^*)^+$ 离子信号, 其飞行时间与直接电离产生 He^+ 离子飞行时间相差1 μs , 即脉冲电场的延迟时间. $(\text{He}^*)^+$ 的飞行时间与脉冲电场的延迟时间呈现很好的线性关系 (图2(a)中的插图), 进一步证实了其由中性里德堡态由脉冲静电场电离产生的离子信号.

图2(b)给出了光强 $I = 1 \text{ PW}/\text{cm}^2$ 下 $(\text{He}^*)^+$ 的产率随着激光椭圆偏率的变化曲线, 可以看出 $(\text{He}^*)^+$ 的产率强烈依赖于激光的椭圆偏率, 对实验结果进行高斯拟合得到了半高半宽 (half width at half maximum, HWHM), $\sigma_{\text{He}} = 0.13$, 与文献^[17]的测量结果一致. 需要指出的是, 我们测量的里德堡态主量子数 n 范围为20—30, 而文献^[17]中 n 主要分布为6—10, 这说明强场中RSE产率对激光椭圆偏率的依赖与里德堡态的主量子数无关. 在文

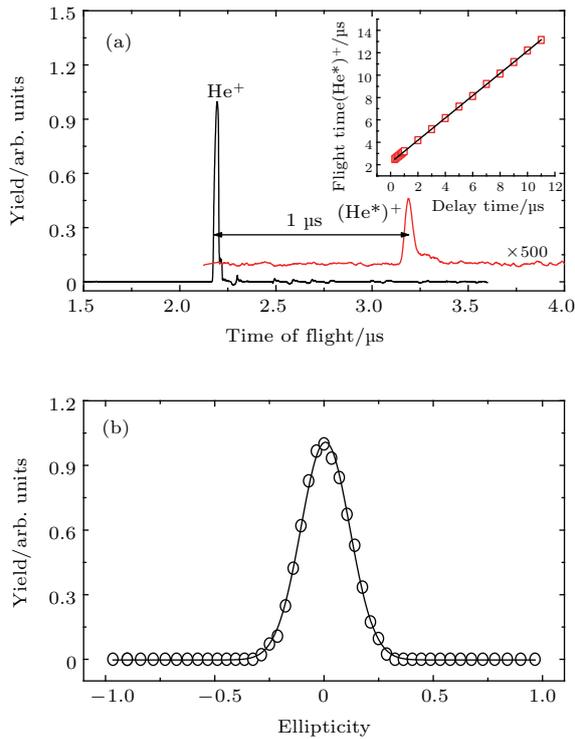


图2 (a) He 原子直接电离的飞行时间质谱和中性里德堡态电离的质谱, 插图表示里德堡态 $(\text{He}^*)^+$ 的飞行时间随着延迟时间的变化; (b) 在激光强度 $I = 1 \text{ PW/cm}^2$ 下, He 原子的中性里德堡态产率随激光椭圆率的变化关系, 其中黑色实线为使用 Gauss 函数对实验测量结果拟合
 Fig. 2. (a) TOF mass spectra of direct ionization He^+ and field-ionization of Rydberg atoms $(\text{He}^*)^+$, the inset shows the flight time of $(\text{He}^*)^+$ as a function of the delay time. (b) dependence of the $(\text{He}^*)^+$ yield on ellipticity at fixed pulse energy corresponding to laser intensity about 1 PW/cm^2 , black line is Gauss fitting of the $(\text{He}^*)^+$ yield.

献 [17] 中, 这种 RSE 产率强烈依赖于激光的椭圆率的现象被认为是三步重散射模型的必然结果, 由此 RSE 过程被认为是三步重散射模型的重要补充. 而在我们的研究中, 高里德堡态 ($20 < n < 30$) 对应的电子轨道半径 $R (\approx n^2 \text{ a.u.})$ 远远大于自由电子在激光场中的振荡半径 $r_{\text{max}} (\approx F/\omega^2)$, 因此不是由隧穿电子与母核重碰产生的. 事实上, RSE 的产生可以认为是具有较低能量的隧穿电子出射过程中在激光场与库仑势的共同作用下被俘获到里德堡态. 随着激光椭圆率的增加, 一方面电离电子波包的弥散导致俘获概率降低, 另一方面低能电子的相对产率降低, 从而导致 RSE 的产率强烈依赖于激光的椭圆率.

进一步, 我们研究了不同原子的强场 RSE 过程. 图 3 中给出了 Ar 和 Xe 原子在强激光场中直接电离的飞行时间质谱, 以及产生的中性里德堡态被脉冲电场电离的质谱. 为了便于比较, 图中对母体一价离子峰强度进行了归一. 激光光强分别选择为 0.206 PW/cm^2 (Ar) 和 0.0783 PW/cm^2 (Xe), 使得具有不同电离限的原子都具有相同的 ADK 电离概率, 其他实验条件保持不变. 从图 3 中可以看出, 与 He 原子相似, Ar 和 Xe 原子在 800 nm 强激光场中亦能产生中性里德堡态, 同时强场直接电离除一价 M^+ 离子外, 还存在二价离子 M^{2+} . 在该光强下, M^{2+} 都来自于 NSDI 过程 [33]. 因此, 我们的实验可直接比对不同原子的 RSE 和 NSDI 这两种与隧穿电离相关的强场物理过程.

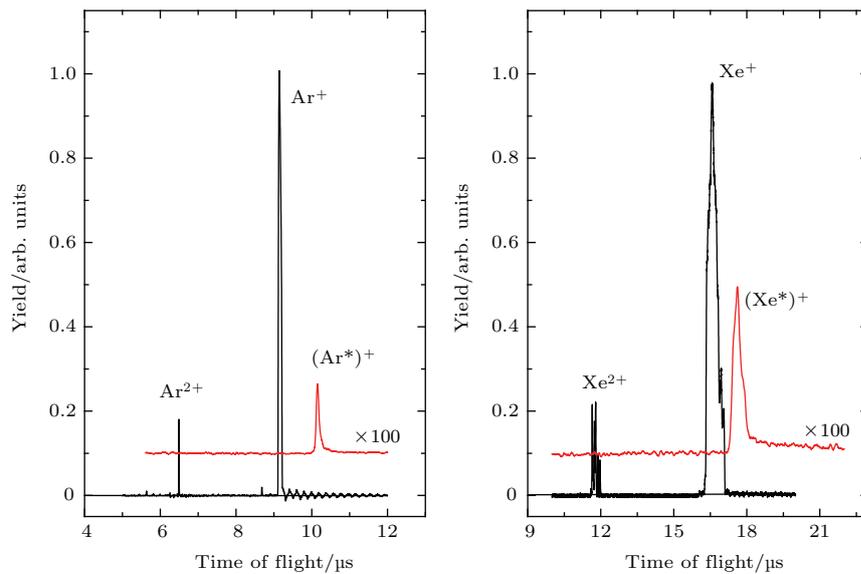


图3 Ar 和 Xe 的飞行时间质谱和中性里德堡态激发质谱

Fig. 3. TOF mass spectra of direct ionization Ar^+ , Ar^{2+} , Xe^+ , Xe^{2+} and field-ionization of Rydberg atoms $(\text{Ar}^*)^+$ and $(\text{Xe}^*)^+$.

表 1 不同原子的里德堡态激发和双电离的产率与相应电离的比值
Table 1. The yield ratio of RSE and double ionization with single ionization for different atom.

Atom	I_p/eV	$I/PW \cdot cm^{-2}$	$M^{2+}/M^+/(%)$	$(M^*)^+/M^+/(%)^a$	$(M^*)^+/M^+/(%)^b$
He	24.59	1	0.23 ^c	0.18	9
Ar	15.76	0.206	1.51	0.28	14
Xe	12.13	0.0783	3.46	0.58	29

a, 代表主量子数 n 范围 $20 < n < 30$ 的激发产率; b, 代表总的激发产率; c, 引自文献 [34].
a, Rydberg state yield between $20 < n < 30$; b, total Rydberg state yield; c, Ref. [34].

表 1 列出了不同原子 RSE 与电离产率的比值 $(M^*)^+/M^+$, 以及 NSDI 与电离产率的比值 M^{2+}/M^+ ($M = He, Ar$ 或 Xe). 对于 He 原子, 由于其电离限较高, 二次电离的概率低, 且其荷质比与实验背景 H_2^+ 重合, 在我们的实验条件下无法区分, 表中 He^{2+}/He^+ 比值引自文献 [34]. 表中给出了实验直接测量的比值 $[(M^*)^+/M^+]^a$ (里德堡态 n 为 $20 < n < 30$), 根据 Nubbemeyer 等 [17] 使用半经典计算的原子 RSE 里德堡态 n 分布结果, 处于 $20 < n < 30$ 的里德堡态产率约占总激发产率的 2%, 由此可估算总激发概率与电离的比值结果亦列于表 1 中 ($[(M^*)^+/M^+]$).

从表 1 可以看出, 无论是对于 He, Ar 或 Xe, 总的 RSE 产率比 NSDI 产率都高约一个量级. 如上所述, RSE 是低能电子在激光场与库仑势的共同作用下被俘获到里德堡态上的结果, 而在 NSDI 过程中, 隧穿电子需返回母核附近并与之碰撞, 且具有足够的能量产生二次电离. 而在强场电离中, 高能电子的产率相对较低, 因此 NSDI 的产率明显低于 RSE 的产率. 对于不同原子体系, RSE 产率随原子序数的增加而逐渐增加, $He^* < Ar^* < Xe^*$. 对于 He, 我们得到的总激发概率约占电离的 9%, 与文献 [17] 相近. 而 Ar 和 Xe 的激发概率达到电离的 14% 和 29%. NSDI 产率具有相同的趋势, 即 $He^{2+} < Ar^{2+} < Xe^{2+}$. Schnürer 等在强激光场中原子 HHG 的实验中观测到类似的现象 [35]. Santra 和 Gordon [36] 根据多体微扰理论, 在三步模型中考虑电子交换势和电子-电子相互作用的修正, 表明原子中的多电子效应对强激光场 HHG 的产率起着重要作用. 至于多电子效应是否以及如何影响强激光场中原子的里德堡态激发产率, 仍需要进一步的深入研究予以揭示.

图 4 给出了线偏振激光场中 Ar 和 Xe 原子的里德堡态激发产率随激光强度的变化曲线, 为了比

较, 同时也给出了每个原子的一价离子和二价离子的产率随激光强度的变化曲线. 从图 4 中可以看出, Ar 原子与 Xe 原子的一价离子随着光强的增加其产率逐渐增大直至饱和, 二价离子的光强依赖呈现出了 NSDI 过程的特征“knee”结构, 其出现的光强位置与已有的文献报道的结果 [33] 符合. RSE 产率随着光强的增大而增加直至趋于饱和, 饱和位置在二价离子“knee”结构对应的光强附近. 需要指出的是, 图 4 中给出的 $(M^*)^+$ 实验测量结果为 $20 < n < 30$ 的里德堡态的产率, 如上所述, 这部分里德堡态仅占总 RSE 概率的 2%. 因此, 在低于“knee”结构的光强区域内, 原子总的 RSE 产率是高于双电离产率的(可参见表 1 结果). 同时随着光强的降低, RSE 相对双电离产率的增加更为明显. 这是由于在较低光强时, 能够形成 NSDI 的高能电子产率降低, 与之相比, 能够被俘获形成里德堡态的低能电子所占比率有所增加, 导致强场 RSE 的产率高于 NSDI.

图 5 给出了原子 Ar, Xe 的里德堡态激发概率以及 NSDI 概率随激光椭圆偏率的变化关系. 无论是 Ar 还是 Xe, 它们的二价离子都表现出了对激光椭圆偏率的强烈依赖. 根据 Corkum 的三步重散射模型 [16], 随着激光椭圆偏率的增加, 激光场附加给隧穿电子的横向速度增大, 电子波包更加弥散, 从而导致隧穿电子与核重碰的概率降低. 因此, 原子的 NSDI 明显依赖于激光椭圆偏率. 对于 RSE 过程, 随着激光椭圆偏率增加, 激发产率亦随之减小, 但对激光椭圆偏率的依赖明显弱于 NSDI 过程. 如前所述, 激光椭圆偏率的增加导致电离电子波包弥散, 使得其俘获到里德堡态的概率降低, 而与 NSDI 不同, RSE 过程不需要电子返回核附近发生“硬碰” [37], 因此 RSE 过程对隧穿电子初始横向速度的依赖不像 NSDI 那么强烈.

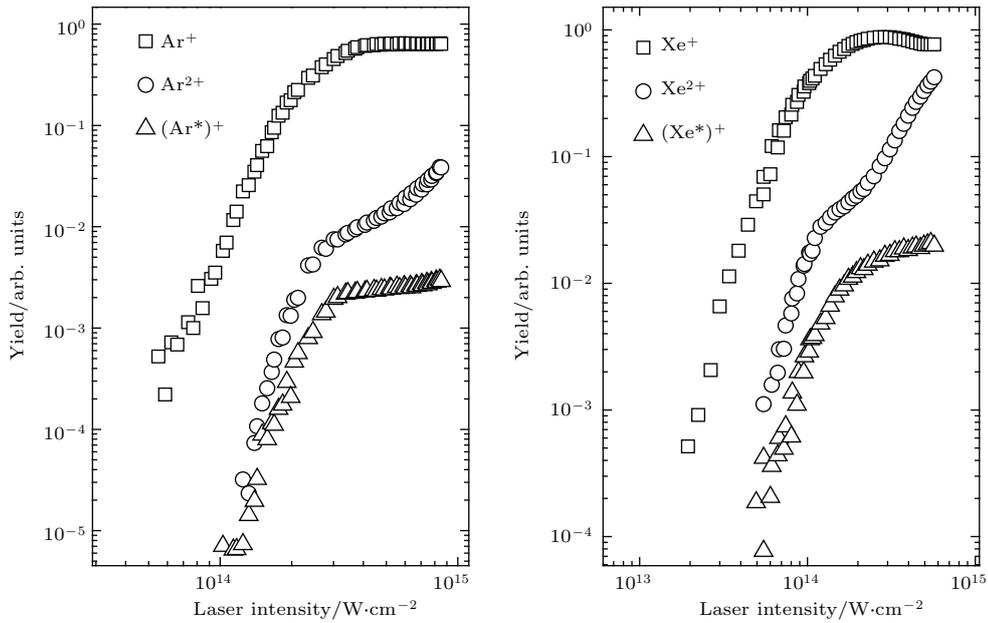


图4 Ar和Xe的一价离子, 二价离子和中性里德堡态电离产生的离子的产率随激光强度的变化曲线
 Fig. 4. Dependence of the yield of Ar^+ , Ar^{2+} , $(\text{Ar}^*)^+$ and Xe^+ , Xe^{2+} , $(\text{Xe}^*)^+$ on the intensity of linear polarized laser field.

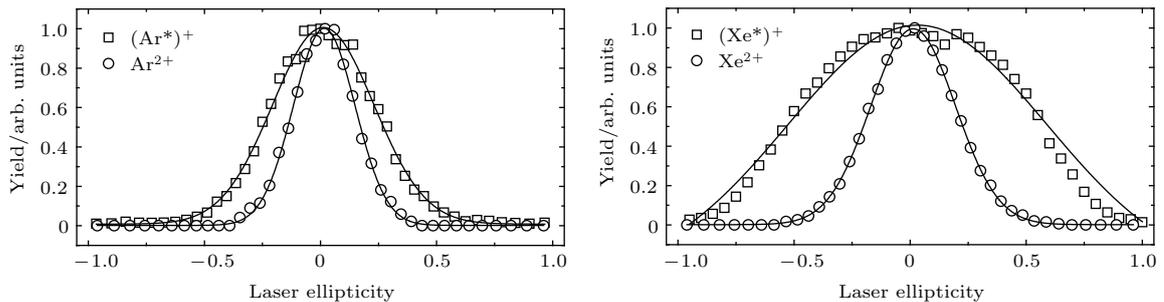


图5 Ar和Xe原子的里德堡态激发产率以及二价离子产率随激光椭圆率的变化关系 相应的光强 Ar, $I = 0.206 \text{ PW/cm}^2$; Xe, $I = 0.0783 \text{ PW/cm}^2$; 其中黑色实线为 Gauss 函数的拟合
 Fig. 5. Dependence of $(\text{Ar}^*)^+$, Ar^{2+} and $(\text{Xe}^*)^+$, Xe^{2+} yield on ellipticity at fixed pulse energy corresponding to a laser intensity of about 0.206 PW/cm^2 for Ar and 0.0783 PW/cm^2 for Xe respectively. Black lines are the results of Gauss fitting.

表2给出了实验测量的不同原子RSE随激光椭圆率变化的半高半宽 σ 值, 同时作为比较, 给出了Huang等[30]半经典计算的理论结果. 对比He, Ar, Xe, 可以看出 σ 随原子序数增加而逐渐增加, 即 $\sigma_{\text{He}} < \sigma_{\text{Ar}} < \sigma_{\text{Xe}}$, 与Huang等的理论计算定性一致. 根据Huang等[30]的研究, σ 值与隧穿电子的初始状态密切相关, 对于电离限低的原子, 隧穿电子可经历多次前向和背向散射, 其杂乱无章的轨迹使得在较大椭圆率的激光场中亦有可能被原子核俘获形成里德堡态. 对于He, 实验测量值与半经典计算结果非常符合. 对于Ar, 实验测量值与半经典计算结果比较符合. 而对于高Z原子Xe, 实

验测量值则远大于半经典计算结果. 结合Santra和Gordon[36]对不同原子HHG的研究, 我们在半经典计算中考虑核诱导偶极势[38]及电子屏蔽势等[39]多电子效应的影响, 以寻求高Z原子实验和计算差别的原因. 但计算结果显示, 无论是单独考虑诱导偶极势和屏蔽势, 或同时考虑两个修正都对理论计算结果影响不大, 与实验测量结果仍差别较大, 说明在隧穿电子被俘获到里德堡态的过程中, 这两种多电子效应的影响可以忽略. 目前我们正在对该问题开展后续的理论 and 实验研究, 以期深入揭示强场中高Z原子的里德堡态激发的物理机理.

表2 不同原子里德堡态激发对椭圆率依赖的半高半宽的实验测量值 σ_{exp} 与文献中半经典计算值 σ_{semi}

Table 2. The experimental and sem-classical theoretical results of HWHM in ellipticity dependence of atomic RSE for all three atoms.

Atom	σ_{exp}	σ_{semi} [30]
He	0.13	0.13
Ar	0.25	0.20
Xe	0.48	0.29

4 结 论

本文研究了在强激光场下 He, Ar 和 Xe 的里德堡态激发过程, 并与双电离过程进行了比较. 研究表明, 里德堡态激发和 NSDI 的概率都随着原子序数的增加而增加, 且都依赖于激光椭圆率. 在整个光强范围内, 里德堡态激发的相对产率大于 NSDI, 对激光椭圆率的依赖则弱于 NSDI. 对不同原子体系的强场 RSE 和 NSDI 的研究发现, 与 NSDI 相同, 原子 RSE 对激光椭圆率的依赖程度随原子序数的增加逐渐减弱. 本文的研究为进一步的理论和实验研究, 提供了有价值的参考.

参考文献

[1] Jin C, Bertrand J B, Lucchese R R, W Orner H J, Corkum P B, Villeneuve D M, Le A, Lin C D 2012 *Phys. Rev. A* **85** 13405

[2] Tudorovskaya M, Lein M 2011 *Phys. Rev. A* **84** 13430

[3] Cao W J, Cheng C Z, Zhou X X 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 054210 (in Chinese) [曹卫军, 成春芝, 周效信 2011 物理学报 **60** 054210]

[4] Li M, Geng J, Liu H, Deng Y, Wu C, Peng L, Gong Q, Liu Y 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 113002

[5] Liao Q, Lu P, Lan P, Cao W, Li Y 2008 *Phys. Rev. A* **77** 13408

[6] Becker W, Grasbon F, Kopold R, Milošević D B, Paulus G G, Walther H 2002 *Adv. Atom., Molec., Opt. Phys.* **48** 35

[7] Lohr A, Kleber M, Kopold R, Becker W 1997 *Phys. Rev. A* **55** R4003

[8] Wang P Y, Jia X Y, Fan D H, Chen J 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 143201 (in Chinese) [王品懿, 贾欣燕, 樊代和, 陈京 2015 物理学报 **64** 143201]

[9] Jia X Y, Fan D H, Li W D, Chen J 2013 *Chin. Phys. B* **1** 13301

[10] Ishikawa T, Tong X M, Toshima N 2010 *Phys. Rev. A* **82** 33411

[11] Mauger F, Chandre C, Uzer A T 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 43005

[12] Hao X, Wang G, Jia X, Li W 2009 *Phys. Rev. A* **80** 23408

[13] Cornaggia C, Hering P 2000 *Phys. Rev. A* **62** 23403

[14] Watson J B, Sanpera A, Lappas D G, Knight P L, Burnett K 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 1884

[15] Talebpoury A, Chien C, Liangz Y, Larochelle S, Chin S L 1997 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **30** 1721

[16] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994

[17] Nubbemeyer T, Gorling K, Saenz A, Eichmann U, Sandner A W 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 233001

[18] Wang B B, Li X F, Fu P M, Chen J, Liu J 2006 *Chin. Phys. Lett.* **23** 2729

[19] Eichmann U, Nubbemeyer T, Rottke H, Sandner W 2009 *Nature* **461** 1261

[20] Maher-McWilliams C, Douglas P, Barker P F 2012 *Nat. Photon.* **6** 386

[21] Lü H, Zhang J F, Zuo W L, Xu H F, Jin M X, Ding D J 2015 *Chin. Phys. B* **24** 063303

[22] Mckenna J, Zeng S, Hua J J, Sayler A M, Zohrabi M, Johnson N G, Gaire B, Carnes K D, Esry B D, Ben-Itzhak I 2011 *Phys. Rev. A* **84** 43425

[23] Wu J, Vredenburg A, Ulrich B, Schmidt L P H, Meckel M, Voss S, Sann H, Kim H, Jahnke T, Do Rner R 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 43003

[24] Nubbemeyer T, Eichmann U, Wsandner 2009 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **42** 134010

[25] Manschwetus B, Nubbemeyer T, Gorling K, Steinmeyer G, Eichmann U, Rottke H, Sandner W 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 113002

[26] Volkova E A, Popov A M, Tikhonova O V 2011 *Sov. Phys. JETP* **113** 394

[27] Popov A M, Tikhonova O V, Volkova E A 2010 *Laser Phys.* **20** 1028

[28] Lü H, Zuo W, Zhao L, Xu H, Jin M, Ding D, Hu S, Chen J 2016 *Phys. Rev. A* **93** 33415

[29] Landsman A S, Pfeiffer A N, Hofmann C, Smolarski M, Cirelli C, Keller U 2013 *New J. Phys.* **15** 13001

[30] Huang K, Xia Q, Fu L 2013 *Phys. Rev. A* **87** 33415

[31] Baer T 1989 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **40** 637

[32] Ammosov M V, Delone N B, Krainov V P 1986 *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **91** 2008

[33] Larochelle S, Talebpoury A, Chin S L 1998 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **31** 1201

[34] Walker B, Sheehy B, Dimauro L F, Agostini P, Schafer K J, Kulander K C 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 1227

[35] Brabec T, Krausz F 2000 *Rev. Mod. Phys.* **72** 545

[36] Santra R, Gordon A 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 73906

[37] Shvetsov-Shilovskia N I, Goreslavskia S P, Popruzhenkoa S V, Beckerb W 2009 *Laser Phys.* **19** 1550

[38] Dimitrovski D, Maurer J, Stapelfeldt H, Madsen L B 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 103005

[39] Sun X, Li M, Ye D, Xin G, Fu L, Xie X, Deng Y, Wu C, Liu J, Gong Q, Liu Y 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 103001

SPECIAL TOPIC — Atomic and molecular processes driven by ultrafast intense laser fields

Rydberg state excitations and double ionizations of different atoms in strong femtosecond laser field*

Zhao Lei Zhang Qi Dong Jing-Wei Lü Hang[†] Xu Hai-Feng

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

(Received 15 June 2016; revised manuscript received 12 August 2016)

Abstract

We experimentally investigate the Rydberg state excitations (RSEs) of noble gas atoms, He, Ar and Xe, in an 800-nm 50-fs strong laser field, by using the mass resolved pulsed electric field ionization method combined with the time-of-flight mass spectrometer. We measure the yields of the atomic RSE at different laser intensities and ellipticities, and compare the results with those of the nonsequential double ionization (NSDI) in strong laser fields. Our study shows that like that of NSDI, the yield of the atomic RSE increases as the atomic number increases, i.e., RSE yield trend is He < Ar < Xe. On the other hand, for any of the atoms, the probability of NSDI is lower than that of total RSE at the same laser intensity, which can be understood as that the yield of high energy electrons (for NSDI) is less than that of low energy electrons that can be captured into the Rydberg states. Additionally, our results show that the RSE yield strongly depends on the laser ellipticity, which is completely suppressed by a circularly polarized laser field. The dependence of RSE on laser ellipticity turns weaker as the atomic number increases, and is weaker than that of NSDI for any of the atoms. It is indicated that the atomic RSE in strong laser field can be attributed to the capture of the low energy electrons after tunneling ionization into Rydberg states by the Coulomb potential at the end of the laser pulse.

Keywords: Rydberg state excitation, tunneling ionization, strong laser field, double ionization

PACS: 32.80.Ee, 32.80.Rm, 33.15.Ta, 34.50.-s

DOI: [10.7498/aps.65.223201](https://doi.org/10.7498/aps.65.223201)

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2013CB922200) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11534004, U1532138, 11274140).

[†] Corresponding author. E-mail: Lvhang0811@jlu.edu.cn

专题: 超快强激光驱动原子分子过程

编者按 利用光与物质相互作用是人类探索微观物质结构及运动规律的重要手段. 飞秒强激光技术的出现与发展为揭示极端强场条件下的原子物理新现象、新效应, 认识分子、原子及其内部电子的超快运动规律提供了强有力的技术手段和研究条件. 超快强激光驱动原子分子过程的研究进展还直接推动了新兴学科领域——阿秒科学的发展, 强激光驱动原子分子的高次谐波辐射已成为产生极紫外阿秒光源的重要途径, 利用强场电离及高次谐波产生过程可实现对分子结构及动力学的超快成像, 在原子级时间与空间尺度上的电子调控已成为可能.

“超快强激光驱动的原子分子过程”专题结合对超快强激光驱动的原子分子电离、高次谐波产生、中性里德堡态原子产生及分子解离等基本物理过程的研究, 介绍该领域的一些基本理论方法、实验技术以及研究成果, 以帮助读者了解该研究领域的最新进展, 推动对超快强激光与原子分子相互作用相关研究的进一步深入.

(客座编辑: 中国科学院武汉物理与数学研究所 柳晓军)

强激光场中原子单电离的半经典方法*

肖相如¹⁾ 王慕雪¹⁾ 黎敏²⁾ 耿基伟¹⁾ 刘运全¹⁾³⁾ 彭良友^{1)3)†}

1) (北京大学物理学院, 人工微结构和介观物理国家重点实验室, 北京 100871)

2) (华中科技大学, 武汉光电国家实验室和物理学院, 武汉 430074)

3) (量子物质科学协同创新中心, 北京 100871)

(2016年9月9日收到; 2016年10月25日收到修改稿)

随着激光器技术的发展, 实验室中可获得的激光场强度不断增大, 可以观测到各种高度非线性的实验现象, 比如原子分子中的电子可以从强激光场中吸收比克服电离能需要的光子数更多的光子而发生电离, 被称为阈上电离. 这些非线性现象向量子力学的微扰理论提出了挑战, 而精确求解含时薛定谔方程的方法只局限在少数的简单原子或分子, 并且计算复杂. 在这种情形下, 基于电子轨迹的半经典理论由于其物理过程清晰、计算简单等优点应运而生, 在强场光电离领域已经广泛应用. 本文从原子分子电离的经典描述出发, 介绍了半经典理论的发展. 半经典理论结合了量子力学隧穿效应、电子经典的轨道描述以及量子的相位信息, 能够很好地解释在强场隧穿区的各种实验现象. 文中重点介绍两种已经发展得较为成熟的半经典方法, 即量子轨道蒙特卡罗方法 (quantum trajectory Monte Carlo) 和库仑修正下的强场近似方法 (Coulomb-corrected strong field approximation). 这两种方法的优点在于同时考虑了电子轨迹的库仑势作用以及电子轨迹之间的干涉效应, 能够通过追踪电子的运动轨迹对电离电子动量谱中各种结构的形成给出直观清晰的解释.

关键词: 强激光场, 原子光电离, 半经典方法

PACS: 02.70.-c, 31.15.xg

DOI: 10.7498/aps.65.220203

* 国家自然科学基金 (批准号: 11574010, 11322437) 和国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2013CB922402, 2013CB922403) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: liangyou.peng@pku.edu.cn

1 引言

光电效应是最常见、最基础的光与物质相互作用过程之一. 爱因斯坦因一个多世纪前成功解释了光电效应而获得诺贝尔物理学奖. 爱因斯坦认为, 光能量应该是一份一份的, 每一份光能量被称之为一个光子. 束缚在原子核中的电子只能吸收一个光子的能量发生跃迁, 当光子的能量大于被束缚电子的能量时, 电子将吸收一个光子而发生逃逸, 即发生光电离. 事实上, 该理论并没有否认电子吸收多个光子的可能性, 利用低阶微扰理论可以预言电子可吸收两个光子发生电离^[1,2]. 只是就当时的实验条件而言, 光源的光强普遍偏低, 这种光强下的物理现象都呈线性, 因此爱因斯坦所描述的电子一次吸收一个光子几乎无一例外都是成立的. 自20世纪60年代第一台红宝石激光器诞生^[3]以来, 激光光源的发展迅猛. 光强很高是激光光源的特点之一, 并且结合不同的技术, 激光光强还在不断提高^[4]. 由于光源光强的大大增强, 其与物质相互作用产生了许多非线性的物理现象, Voronov等^[5,6]和 Agostini等^[7]先后在实验上观察到了多光子电离现象 (multi-photon ionization, MPI), 发现被电离的电子产率与光强成指数关系. 这些实验中采用的激光为红外光, 其单个光子能量小于原子的电离能, 然而实验中却观察到了电子被电离, 这种现象可以沿用光量子理论唯像解释. 在高光强下, 光子数密度极大, 使得电子不再仅仅只能吸收一个光子, 而是有很大的概率能够同时吸收多个光子的能量而发生电离. 随着实验室激光峰值功率进一步增加, 1979年, Agostini等^[8]首次在Xe原子的电离实验中观测到了阈上电离现象 (above threshold ionization, ATI), 即电子吸收了比克服电离能需要的光子数更多的光子, 从而在电子的能量谱上形成以光子能量为间隔的峰状结构, 这些峰状结构也被称之为阈上电离峰. 后续不断有实验观测电子的阈上电离, 随着实验条件的改善, 更高阶的阈上电离峰变得明显, 甚至出现了更高阶阈上电离峰强度大于低阶峰的情况. 然而唯像的光量子理论认为, 同时吸收更多光子的概率总是会少于吸收少光子的概率, 因此显然已不再适用于解释这些实验现象.

我们不得不摒弃简单光量子理论, 从而寻求更精确的描述. 光量子理论的提出, 开拓了人们的

思维, 让人们意识到世界可能不是连续的. 不久之后, 20世纪最伟大的理论之一——量子力学理论诞生. 从现在看来, 量子力学能够解释绝大多数原子分子尺度的微观物理现象, 电子电离现象便是其中之一. 量子力学中的电子状态用波函数描述, 被束缚在原子中的电子稳定地处于原子哈密顿量的本征态上. 若外加电磁场, 系统哈密顿量会出现电子与电磁场相互作用项. 随着时间的演化, 电子波函数将偏离原子本征态, 并包含束缚态和连续态成分, 而处于连续态的电子则可看成被电离的自由电子. 这样, 量子力学提供了一套系统的方法, 通过求解含时薛定谔方程得到电子波函数的演化, 从而获得被电离电子的概率即电离率, 又或者更细致地得到不同能量或动量的电子概率, 即电子能量谱或动量谱. 然而求解含时薛定谔方程并非一项简单的任务, 方程本身没有精确的解析解, 只能借助于计算机数值求解. 事实上迄今为止, 即使是借助计算机集群, 也仅仅只能精确求解非常少的电子(两个左右)的原子分子系统的含时薛定谔方程, 而对于多体系统, 必须做或多或少的近似才能够进行数值计算. 这也是人们不断建立简单模型的原因, 简便快捷地得出有效结果的方法显然更受欢迎.

在没有计算机的年代, 人们在使用量子力学理论进行计算时需要采取各种合理的近似才能得到在一定条件下适用的结果. 对于强场下的电离现象, 1964年, Keldysh^[9]提出了一个独到的想法. 在计算初态到末态的跃迁矩阵元时, 把末态用电磁场中的自由电子态近似, 忽略末态库仑势的影响. 这样做的理由是被电离的电子感受到的库仑力相比外电场可以忽略, 因而此方法被后人称作强场近似. Keldysh理论不仅能给出强场下电子电离概率的规律, 还能预测出非微扰电离现象, 比如ATI峰. 但由于当时激光器刚起步, 激光光强不足以达到要求, 无法在实验上观察到更多的现象, Keldysh理论的价值暂时被埋没了. 直到1979年ATI现象才首次在实验上得以证实. 在1973年和1980年, Faisal^[10]和 Reiss^[11]分别依据相同的出发点, 在速度规范下计算初态到末态的跃迁矩阵元, 得到了用贝塞尔函数展开的跃迁矩阵元解析表达式. 之后借助啁啾放大技术^[4], 激光光强达到了Keldysh预言的透穿区, Keldysh, Faisal和Reiss的理论(KFR理论)开始被广泛用于解释这种激光条件下的实验现象. 随着短激光脉冲、库仑势效应修正等多种

情形的考虑, KFR 理论日趋完善, 由此发展出来的方法可统一称为强场近似方法. 另一方面, 1966 年, Perelomov 等^[12]利用另外的方法, 计算了电子在短程势下任意束缚态的电离率 (PPT 率). 这个方法得到了与 Keldysh 相同的指数项, 并且给出了指数前因子的解析表达式. PPT 理论还得到了原子库仑势系统在非绝热条件下的电离率. 1986 年, Ammosov 等^[13]利用准静条件, 将 PPT 率的表达式化简, 得到在绝热近似下的原子电离率 (ADK 率). 这些早期的工作为后来的半经典理论打下了坚实的基础, 也成为强场领域不可或缺的根本.

本文着重介绍原子体系单电子电离的半经典方法. 此处的半经典是指用经典的图像描述电子运动, 并给经典粒子赋予非经典的相位信息. 被电离的电子可看作一个具有确定轨道的经典粒子, 在库仑势和外场作用下运动规律满足经典牛顿方程, 最后末态动量相同的电子之间会产生干涉而形成电子动量谱. 经典模型最初由 Corkum^[14,15]在处理长波长激光场的电离问题中使用, 在波长较长的强激光场下不再将光视为光子, 而是利用经典电磁场描述光场, 电子在外场作用下发生隧穿成为自由电子, 而后继续受到外场驱动进行经典运动. 该模型通过清晰的图像解释了强场中的许多物理现象, 之后被不同的理论具体量化而发展成为各种各样的半经典理论, 其中量子轨道蒙特卡罗方法 (quantum trajectory Monte Carlo, QTMC)^[16]和库仑修正的强场近似方法 (Coulomb corrected strong field approximation, CCSFA)^[17]占主导地位. 第二, 三部分将重点介绍 QTMC 和 CCSFA 两种方法, 从历史的发展脉络顺序给出该方法的关键元素, 并对理论推导和具体实现做出详细说明; 第四部分着重于半经典方法的举例应用, 比如用轨道分析动量谱结构的来源以及对非绝热效应的研究; 第五部分总结全文. 文中统一使用原子单位, 即令 $\hbar = e = m_e = 1$.

2 QTMC 方法

QTMC 方法^[16]属于成熟的半经典方法, 其原型是经典三步模型^[15]. 三步模型方法开创了用经典粒子描述强场中原子尺度下电子运动的研究时代. 1997 年, Hu 等^[18]将该方法加以拓展, 考虑电子隧穿的横向动量分布以及隧穿后的电子经

典运动受库仑力的影响, 成功地解释了高能电子的角分布结构, 经典轨道蒙特卡罗方法 (classical-trajectory Monte Carlo, CTMC) 由此产生. 在此基础上, Li 等^[16,19]在 2014 年提出的量子轨道蒙特卡罗方法, 利用费曼路径积分的思想, 考虑通过不同路径达到相同末态动量的电子之间的干涉效应, 对经典的粒子赋予相位信息, 能够很好地解释二维电子动量谱中丰富的干涉结构.

2.1 经典三步模型

在 19 世纪发现电子后的很长一段时间里, 人们普遍认为电子是体积相当小、质量不为零的带电粒子, 宏观尺度上应遵循经典运动规律, 在电磁场中的运动也可以完全预计, 运动轨迹可通过威尔逊云室观察. 许多设备和测量仪器都是基于电子经典的运动行为设计的, 例如电子加速器、电子速度选择器、电子离子速度谱仪 VMI (velocity map imaging)、冷靶反冲电子离子动量谱仪 COLTRIMS (cold target recoil ion momentum spectroscopy) 等. 这些仪器的设计都是基于对电子是带电粒子这一说法的认同, 电子在电磁场中受到电磁作用力, 其运动规律可以用牛顿第二定律描述从而具有确定的运动轨道. 量子力学的提出使得人们对电子有了新的认识, 普朗克的波粒二象性指出所有粒子都具有波动性, 而由于电子质量小从而其波动性更容易被观察到. 随后的电子衍射实验以及电子双缝干涉实验证实了这一点. 值得注意的是, 电子的经典行为和量子行为并不矛盾, 其量子行为必须在非常小的微观尺度下才能发生, 而宏观上的电子运动的确是经典的. 那么究竟在多大的尺度下经典的轨道描述不再适用, 而电子的波动性才会得以体现呢? 这一点可以用量子力学的不确定性原理粗略估计. 原子单位下有 $\Delta p \Delta x \approx 1$, 宏观下电子的热运动速度量级为 $c/1000$, 原子单位下光速 $c = 137$, 如果考虑电子有 0.1% 的速度误差, 那么可以估算出电子位置的误差范围大概为 10^4 a.u. ≈ 200 nm. 这个误差范围对于宏观测量几乎是一个很小的量, 也就是说宏观上可以认为电子具有足够精度的运动轨迹, 但它却远大于分子原子尺度或者晶格间距 (10 a.u. 量级), 这也是电子入射晶体会发生衍射的原因, 我们无法在分子原子尺度确定电子的位置. 原则上, 此时经典描述已经失效, 我们需要借助量子力学来描述原子分子系统, 电子

不再被当成粒子, 而是以概率波的形式存在. 量子力学的确能够解释几乎所有的原子尺度的物理现象, 包括本文研究的强场中的原子电离现象. 引言中提到, 量子力学描述虽然理论上是最正确的, 但实际使用却过于复杂甚至无法计算. 尤其是当激光场强度增大到发生高度非线性物理过程时, 无法再用量子力学的微扰理论进行计算, 需要发展其他方法求解薛定谔方程, 或者建立一个在此条件下成立的新模型.

Corkum 等^[14,15]创新性地提出了一个方法, 即重新用经典的图像来描述电子. 他认为在强激光场作用下, 原子中的电子发生了如下几个过程: 第一步, 足够强的激光场将库仑势垒压低, 使得电子隧穿出去成为自由电子, 隧穿概率由 Ammosov-Delone-Krainov (ADK) 率给出^[13]; 第二步, 电子成为自由电子之后可看作初始位置为0、在激光场中运动的经典粒子, 忽略核库仑力的作用, 电子的运动轨迹可以利用牛顿运动方程求解. 如果激光场是圆偏振光, 则会发现电子的运动轨迹不再返回原点, 即认为激光结束后电子会由于电场做功获得能量, 最后直接飞向探测器被探测到, 而不再与原子核发生作用. 最终探测到的电子电离率就是第一步中的电子隧穿概率, 所以人们常用圆偏振光来研究电子电离率或隧穿概率的问题^[20,21]. 线偏振光的情况下则会出现更丰富的物理现象, 比如第三步, 某些时刻出射的电子被光场驱动将在某一时刻返回原点, 即电子返回原子核. 这个过程需要考虑电子与核的相互作用, 可能出现三种物理过程: 第一种是电子与核发生弹性散射, 速度大小不变, 出射方向有偏转甚至反向, 之后电子继续受到激光场驱动最后将获得相当高的能量, 这个过程解释了电子谱高能平台区的产生; 第二种是电子返回核与残余核相互作用时, 将部分能量传递给另一个电子从而发生双电离过程; 第三种是返回核的电子被俘获, 电子能量转化成了光辐射, 释放出高次谐波. 用经典运动方程计算出电子返回核的最大能量是 $3.17U_p$, 即理论上辐射的光子能量最大应该为 $3.17U_p + I_p$, 其中有质动能 $U_p = F^2/4\omega^2$, 表示自由电子在激光场中做简谐运动一个周期可以获得的平均动能, F 为激光电场峰值大小, I_p 为电离势. 上述预测与实验中观测到的高次谐波截止频率相符.

上述模型将强场中的物理过程提炼成三个主

要步骤, 故称为三步模型. 由于第二步中电子被看成经典粒子, 该方法又被称作准经典方法. 三步模型的精髓在于大胆地在原子尺度将电子看作粒子, 我们在文章一开始就讨论过这种处理方式的局限性, 然而此处却能够定性甚至粗略地定量符合实验观测, 于是我们有理由相信这种处理在某些条件下是适用的. 那么在何种条件下, 电子又能多大程度地被看作粒子成为一个重要的问题. 前文提到对于宏观上相对低速的电子, 在对速度精度要求较高的情况下位置弥散程度达 200 nm, 这使得其在原子尺度是无论如何都不能被看作粒子. 然而强场中的情况并没有那么糟糕, 当激光波长为 2000 nm, 光强为 2×10^{14} W/cm² 时, 电子受到光场驱动能达到的最大速度可以用光场矢势估算 $A = F/\omega \approx 3.3$ a.u., 电子的运动范围大概为 $F/\omega^2 \approx 145$ a.u.. 我们假设电子速度的不确定度为 5%, 则有 $\Delta p = 0.165$ a.u., 根据不确定性原理估算出位置不确定的范围为 $\Delta x \approx 6$ a.u.. 可以看出这时的电子波包不确定范围相对于电子受电场驱动的运动范围的确是个小量, 因此在这个条件下将电子视为粒子是可行的. 这是强场中能够使用经典粒子图像描述电子运动的基础, 根本原因在于足够强的激光场能够将电子加速到足够大的速度, 其位置不确定范围相应较小, 另一方面电子在强场驱动下的运动范围较大, 因此能够近似使用轨迹描述电子的运动. 反之, 若激光场强太小, 位置不确定范围大于电子的运动范围, 经典图像也就失效了. 由此可见, 激光波长越长、光强越大, 经典图像就越能够准确地描述强场中的电子行为.

2.2 隧穿概率

三步模型的第一步电子隧穿出势垒成为自由电子是至为关键的一步, 隧穿概率以及初始动量分布直接影响到最终的动量谱结果. 电子隧穿过程在量子力学中早有研究, Landau 和 Lifshits^[22]给出了氢原子系统中电子在静电场下的隧穿概率, 该方法是求解准静条件下电离概率的基础, PPT 率以及 ADK 率均由此得来. 下文将简单叙述朗道推导隧穿概率的重要步骤. 设外电场强度为 F , 偏振方向沿 z 轴方向, 含外场氢原子系统的定态薛定谔方程写作

$$\left(\frac{1}{2}\nabla^2 + E + \frac{1}{r} - F \cdot z\right)\Psi = 0. \quad (1)$$

对于柱对称系统, 使用抛物坐标系更加方便, 定义直角坐标与抛物坐标间的变换

$$x = \sqrt{\xi\eta} \cos \varphi, \quad y = \sqrt{\xi\eta} \sin \varphi, \quad z = (\xi - \eta)/2. \quad (2)$$

将本征态写成如下形式:

$$\Psi = \frac{f_1(\xi)f_2(\eta)}{\sqrt{\xi\eta}} e^{im\varphi}, \quad (3)$$

其中 m 是磁量子数. 那么薛定谔方程可以分离变量为

$$\frac{d^2 f_1}{d\xi^2} + \left(\frac{E}{2} + \frac{\beta_1}{\xi} - \frac{m^2 - 1}{4\xi^2} - \frac{F}{4}\xi \right) f_1 = 0, \quad (4)$$

$$\frac{d^2 f_2}{d\eta^2} + \left(\frac{E}{2} + \frac{\beta_2}{\eta} - \frac{m^2 - 1}{4\eta^2} + \frac{F}{4}\xi \right) f_2 = 0, \quad (5)$$

$$\beta_1 + \beta_2 = 1.$$

分离变量后将得到两个方向的一维定态薛定谔方程, 对每个方程粒子总能量相当于 $E/4$, 等效势能为

$$U_1(\xi) = -\frac{\beta_1}{2\xi} + \frac{m^2 - 1}{8\xi^2} + \frac{F}{8}\xi,$$

$$U_2(\eta) = -\frac{\beta_2}{2\eta} + \frac{m^2 - 1}{8\eta^2} - \frac{F}{8}\eta.$$

这表明在 ξ 方向是一个无限深势阱, 电子在这个方向被约束. 而在 η 方向形成一个势垒, 电子有一定概率隧穿出去. 对于氢原子基态, 在无外场的情况下, 有 $E = -1/2, m = 0$, 基态电子波函数为

$$\Psi = e^{-(\xi+\eta)/2} / \sqrt{\pi}. \quad (6)$$

在有外场且场强较弱即 $F \ll 1$ 的情况下, 在 ξ 方向认为波函数依然为 (6) 式的关系. 对于 η 方向, 需要求解一维薛定谔方程 (5) 式. 求解过程使用 Wenzel-Kramer-Brillouin (WKB) 近似 [22] 方法, 在势垒中取一点满足 $1 \ll \eta_{\text{turn}} \ll 1/F$, 在 $\eta \leq \eta_{\text{turn}}$ 区域认为波函数为基态波函数 (6) 式, 而在 $\eta > \eta_{\text{turn}}$ 区域则将波函数看作准经典的, 并容易求得外区域的近似波函数. 最后, 电离概率定义为出射总概率流

$$W = \int_S \mathbf{j} \cdot d\mathbf{S}, \quad \mathbf{j} = \frac{i}{2}(\Psi \nabla \Psi^* - \Psi^* \nabla \Psi), \quad (7)$$

其中 S 取远处垂直于电场方向的平面. 该方法求得氢原子在静电场下从基态电离的概率为

$$W = \frac{4}{F} \exp\left(-\frac{2}{3F}\right). \quad (8)$$

该电离率可作为检验标准, 之后发展出来的各种电离率表达式必须满足在准静极限下的氢原子基态

结果与此式相符, 后文会多次使用此式对得到的各种电离概率加以验证.

值得一提的是, CTMC 以及 QTMC 方法在经典传播中用到的初始位置取自电子的隧穿出口. 常用的隧穿出口用抛物坐标方法给出, 在 η 方向隧穿出口定义为势能与总能量相等, 满足三次方程

$$\frac{E}{4} = U_2(\eta_{\text{out}}) = -\frac{\beta_2}{2\eta_{\text{out}}} + \frac{m^2 - 1}{8\eta_{\text{out}}^2} - \frac{F}{8}\eta_{\text{out}}. \quad (9)$$

在 ξ 方向由于波函数是中心在 0 点的高斯分布, 故认为电子出射位置 $\xi = 0$. 换算回直角坐标有 $x = 0, y = 0, z = -\eta_{\text{out}}/2$. 可以验证当 $F \ll 1$ 时, 有 $\eta_{\text{out}} \approx 2E/F = 2I_p/F$ 或 $z \approx -I_p/F$, 与预计相符.

随后 Smirnov 和 Chibisov [23] 用同样的方法计算了静电场下类氢原子任意束缚态的电离概率. 很快 Perelomov 等 [12] 将其结果直接运用到了简谐交变的光场中, 认为光场只要满足准静条件 $\gamma = \omega/\omega_T \ll 1$, 就可以认为在电子隧穿过程中电场不发生变化, 将每个时刻发生隧穿的电子在隧穿过程中受到的外电场近似为静电场, 从而直接使用静电场隧穿概率. 其中 ω 是光场圆频率, $1/\omega_T$ 是电子隧穿所需要的时间, 参数 γ 将在第三部分详细说明. 对于核电荷数为 Z 的类氢原子, 有效主量子数为 n^* 的能级能量为 $E = Z^2/(2n^{*2})$, 定义特征场强 $F_0 = (2E)^{3/2}$, 则在静电场下任意主量子数 n^* 、角量子数 l 、磁量子数 m 态的电离概率为

$$\begin{aligned} & W_{\text{stat}}(F) \\ &= EC_{n^*l}^2 \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|}(|m|)!(l-|m|)!} \\ &\quad \times \left(\frac{2F_0}{F}\right)^{2n^*-|m|-1} \exp\left(-\frac{2F_0}{3F}\right). \end{aligned} \quad (10)$$

上式成立还需满足弱场条件 $F \ll F_0$. 线偏振单色场下的电场强度随时间变化 $F(t) = F \cos \omega t$, 电离率应该在一个周期内取平均, 最后与静电场电离率公式相比多一个系数 $W_{\text{lin}} = (3F/\pi F_0)^{1/2} W_{\text{stat}}$. 而对于圆偏振光, 由于电场方向在不断变化, 磁量子数 m 并不为常数, 一般情况很复杂. 但是对于 s 态而言, 由于电场强度大小是一个常数, 故其电离率应该和静电场情况相同 $W_{\text{cir}} = W_{\text{stat}}$. 上式中的 C_{n^*l} 是各类原子相关的渐进系数, 部分可参看文献 [24,25]. 早在 1927 年 Hartree [26] 给出了一个适用于某些情况的解析表达式

$$C_{n^*l}^2 = \frac{2^{2n^*}}{n^*(n^*+l)!(n^*-l-1)!}. \quad (11)$$

上式对于氢原子是精确成立的, 对于类氢原子仅对主量子数做简单替换. 对于氢原子基态, $E = 1/2$, $n^* = 1$, $l = m = 0$, 容易得到 $C_{10} = 2$, 电离率转化成与 (8) 式相同的结果.

1986年, Ammosov等^[13]给出了准经典极限 $n^* \gg 1$ 下渐进系数较为简单的表达式

$$C_{n^*l} = \left(\frac{2e}{n^*}\right)^{n^*} \frac{1}{\sqrt{2\pi n^*}}. \quad (12)$$

或者可以从 (11) 式出发, 使用斯特林公式将其转化成

$$C_{n^*l}^2 = \left(\frac{4e^2}{n^{*2} - l^{*2}}\right)^{n^*} \left(\frac{n^* + l^*}{n^* - l^*}\right)^{l^* + 1/2} \frac{1}{2\pi n^*}. \quad (13)$$

当满足条件 $n^* \gg l^*$ 时, 上式可简化成 (12) 式, 在准经典极限下渐进系数仅是有效主量子数 n^* 的函数. 将化简的渐进系数代入 (10) 式, 可以得到

$$W_{\text{stat}}^{\text{adk}} = \frac{F}{8\pi Z} \left(\frac{4eZ^3}{Fn^{*4}}\right)^{2n^*} \left(\frac{2Z^3}{Fn^{*3}}\right)^{-|m|} \times \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|}(|m|)!(l-|m|)!} \exp\left(-\frac{2Z^3}{3n^{*3}F}\right). \quad (14)$$

上式在角量子数不大时符合得很好. 对于磁量子数更高的 $|m| + 1$ 态相比于磁量子数为 $|m|$ 的态的电离率存在比例因子 $Fn^{*3}/2Z^3 \ll 1$, 也就是说磁量子数 $m = 0$ 的态的电离率占主导地位. 对于氢原子的 s 态, 上式可简化为 (8) 式. 对于任意原子的 s 态, 线偏振光下的电离率为

$$W_{\text{lin}}^{\text{adk}} = \sqrt{\frac{3F}{\pi F_0}} \frac{FD^2}{8\pi Z} \exp\left(-\frac{2Z^3}{3n^{*3}F}\right), \quad (15)$$

其中定义常数 $D = \left(\frac{4eZ^3}{Fn^{*4}}\right)^{n^*}$, 上式即为我们通常用到的 ADK 电离率.

以上叙述的是原子总电离率, 另外还可以研究末态动量为 \mathbf{p} 的电子电离概率, 即得到隧穿后的电子动量分布. 针对线偏振光中基态为 s 态的原子, Delone 和 Krainov^[27] 利用 Landau-Dykhne 绝热近似的跃迁概率幅形式^[28], 求出了精确到指数项的电子动量分布. 之后 Krainov^[29] 从 KFR 理论 (将在下一章详细叙述) 出发, 得到了完全相同的结论并且给出了指数前因子:

$$W(p_{\perp}, p_{\parallel}) = \frac{p\omega D^2}{8\pi^3 n^* F} \exp\left(-\frac{2Z^3}{3n^{*3}F}\right)$$

$$\times \exp\left(-\frac{p_{\perp}^2 Z}{n^* F}\right) \exp\left(-\frac{p_{\parallel}^2 \gamma^3}{3\omega}\right). \quad (16)$$

上式对动量进行积分则可得到 (15) 式.

上述表达式描述的是隧穿电子的末态动量分布, 一般认为在满足绝热条件且忽略库仑势作用的情况下, 末态动量在垂直电场方向的分布相比于隧穿出口处不发生改变. 于是可以认为刚隧穿出来的电子横向动量分布如同上式的高斯分布. CTMC 方法中^[18,30] 认为电子在隧穿出口处的纵向动量为 $p_{\parallel} = 0$, 这一结论也将在下一章利用 KFR 理论给出. 如此可以确定三步模型中第一步隧穿过程中电子的隧穿概率以及动量分布:

$$W(F, p_{\perp}) = W_0(F)W_1(p_{\perp}),$$

$$W_0(F) = \frac{FD^2}{8\pi Z} \exp\left(-\frac{2(2I_p)^{3/2}}{3F}\right),$$

$$W_1(p_{\perp}) = \frac{\sqrt{2I_p}}{\pi F} \exp\left(-\frac{p_{\perp}^2 \sqrt{2I_p}}{F}\right), \quad (17)$$

其中电离势 $I_p = E = Z^2/2n^{*2}$. 垂直动量分布 W_1 的归一化因子是为了满足 $\int_0^{\infty} W_1 2\pi p_{\perp} dp_{\perp} = 1$, 即对动量积分后得到准静态 ADK 率 $W_0(F)$. 对于变化的光场, 电场强度是时间的函数 $F(t)$, 故每一时刻有相应的隧穿概率 $W(t, p_{\perp}) = W(F(t), p_{\perp})$. 尤其要注意的是 (16) 式与 (17) 式的区别, 避免混淆. (16) 式是最后探测到的末态的动量分布, 而 (17) 式是利用前者推导出的电子在隧穿出口处的初始分布; 前者是纵向动量与横向动量的函数, 后者由于隧穿出口处初始纵向动量为 0, 故只是横向动量的函数; 前者对两个方向动量积分后应该得到线偏光的 ADK 总电离率, 后者对横向动量积分后得到的是准静场下的 ADK 率.

2.3 经典传播与轨道相位

上一节讨论了三步模型中的第一步隧穿过程. 在准静条件下, 认为每一时刻发生隧穿的电子在隧穿过程中感受到的电场为恒定值, 电子在该电场压低的库仑势垒下发生隧穿. 隧穿出口位置、出口动量分布以及电离率都已经得到. 在初始位置和初始动量都确定之后, 电子开始做经典运动. 起初 Corkum 的模型在描述第二步经典传播时, 仅仅考虑外电场对电子的作用. 之后在 CTMC 模型中考虑了电子运动过程中也受到的库仑力的影响. 电子

运动满足牛顿运动方程

$$\frac{d^2 \mathbf{r}}{dt^2} = -\mathbf{F}(\mathbf{t}) - \frac{Z\mathbf{r}}{r^3}. \quad (18)$$

或者写成一阶微分方程组

$$\frac{d\mathbf{p}}{dt} = -\mathbf{F}(\mathbf{t}) - \frac{Z\mathbf{r}}{r^3}, \quad \frac{d\mathbf{r}}{dt} = \mathbf{p}. \quad (19)$$

在实际计算中, 外电场一般为有限长脉冲, 电子在某时刻发生隧穿, 求解上面的运动方程直到脉冲结束. 之后电子的运动仅在库仑力的作用下进行, 用开普勒轨道描述. 若能量小于零, 电子轨道应该为闭合的椭圆, 我们认为这部分电子最终被束缚到了里德堡态而未被电离^[31,32]. 能量大于零的电子为双曲线轨道, 通过解析得到的无穷远处的渐进动量作为探测器探测到的动量. 已知激光结束时的动量 \mathbf{p}_f 和位置 \mathbf{r}_f , 可以得到三个守恒量: 能量, 角动量, 和隆格楞次矢量,

$$\begin{aligned} \frac{p_\infty^2}{2} &= \frac{p_f^2}{2} - \frac{Z}{r}, \quad \mathbf{L} = \mathbf{r}_f \times \mathbf{p}_f, \\ \mathbf{a} &= \mathbf{p}_f \times \mathbf{L} - \frac{Z\mathbf{r}_f}{r_f}. \end{aligned} \quad (20)$$

末态动量则表示为^[32,33]

$$\mathbf{p}_\infty = p_\infty \frac{p_\infty(\mathbf{L} \times \mathbf{a}) - \mathbf{a}}{1 + p_\infty^2 L^2}. \quad (21)$$

如果忽略库仑势作用, 隧穿出来的电子能量一定大于零, 最终全部会到达探测器, 则可直接从运动方程出发解析得到末态电子动量

$$\mathbf{p}_\infty = \mathbf{p}_f = \mathbf{p}_0 - \int_{t_0}^{\infty} \mathbf{F}(\mathbf{t}) dt = \mathbf{p}_0 - \mathbf{A}(t_0), \quad (22)$$

其中 t_0 表示电子电离时刻, \mathbf{p}_0 为电离时刻初始动量, 电场矢势 \mathbf{A} 满足 $\mathbf{F} = -\partial\mathbf{A}/\partial t$, 物理上需要满足在光场开始前与结束后矢势大小为零, 即 $\mathbf{A}(\pm\infty) = 0$. 在考虑了库仑势之后, 一方面有一部分电子末态能量可能小于零, 另一方面末态动量也会偏离(22)式的结果, 甚至可能因为被库仑势散射而出现巨大偏差. 半经典方法认为末态动量相同的电子对该末态动量的电离率都有贡献. CTMC 方法简单地将末态动量相同的电子概率相加 $\sum_j W^j(t_0, p_\perp)$, 其中求和遍历末态动量相同的所有电子, 这样统计的结果呈现出来的是由于初始横向动量分布引起的末态角向分布结构. QTMC 方法在此基础上对每个电子赋予了相位信息, 将达到相同末态动量的电子的概率幅叠加, 会发生干涉, 末态动量为 \mathbf{p} 的概率为

$$M_{\mathbf{p}} = \sum_j \sqrt{W^j(t_0, p_\perp)} \exp(i\Phi_j). \quad (23)$$

上式基于费曼路径积分思想^[34], 后来被用到强场光领域中^[35,36].

接下来的重点在于如何得到每个电子的轨道相位 Φ . 在文献^[16]补充材料可以找到最先提出 QTMC 方法的原文中使用的轨道相位推导过程, 结果是

$$\Phi = - \int_{t_0}^{\infty} \left[\frac{v(t)^2}{2} - \frac{Z}{r(t)} + I_p \right] dt. \quad (24)$$

对于上面相位的表达式, 积分项实际上是电子总能量. 在激光结束之后电子总能量守恒, 末态动量相同的电子总能量相同, 因此对于末态动量相同的电子上式积分从激光结束到无穷远是相同的, 贡献相同的相因子可以略去, 因此上述积分只需要从电离时刻积分到激光场结束时刻. 实际计算中将上式写成微分式

$$\frac{d\Phi}{dt} = - \left[\frac{v(t)^2}{2} - \frac{Z}{r(t)} + I_p \right], \quad (25)$$

然后联立微分方程组(19)式共同求解.

最近, Shvetsov-Shilovski 等^[37]提出半经典两步模型 (semiclassical two-step (SCTS) model), 其本质上是本文所讨论的半经典方法. 该工作重新进行了轨道相位的推导, 文中对相位的推导过程与 QTMC 原文^[16]补充材料中的方法基本相同, 作者指出了原推导过程中的疏漏并做出了修正. 从坐标表象到动量表象的传播子对应的作用量可以表示为

$$\Phi = -\mathbf{v}_0 \cdot \mathbf{r}_0 + \int_{t_0}^{\infty} [-\mathbf{r}(t) \cdot \dot{\mathbf{v}}(t) - H] dt, \quad (26)$$

其中 $H = v^2/2 + \mathbf{F} \cdot \mathbf{r} - Z/r$ 是经典哈密顿量. 联立运动方程(18)式, 并考虑与初态相关的初始相位 $I_p t_0$, 轨道相位最后可以写成

$$\Phi = -\mathbf{v}_0 \cdot \mathbf{r}_0 + I_p t_0 - \int_{t_0}^{\infty} \left[\frac{v(t)^2}{2} - \frac{2Z}{r(t)} \right] dt. \quad (27)$$

该相位对比 QTMC 原文使用的(24)式有两点不同. 相比(24)式, 保留了第一项, 在 QTMC 原文里考虑准静情况, 初始纵向速度为零, 第一项无需考虑. 其次, 上式库仑项因子为 2, 这个因子来源一部分是经典哈密顿量的库仑修正 $-Z/r$, 另外一部分来源运动方程中的库仑修正 $\mathbf{r} \cdot (-Z\mathbf{r}/r^3) = -Z/r$, 原 QTMC 的推导过程中疏漏了后者从而得到(24)式. 为了以示区别, 我们称使用上述修正相位的方法为 SCTS 方法.

由于多了一部分库仑修正项, 上述积分不可忽略激光结束到无穷远的过程. 将积分分为两部分, 从隧穿时刻 t_0 到激光结束时刻 t_f , 再从激光结束时刻到无穷远

$$\begin{aligned} & - \int_{t_0}^{\infty} \left[\frac{v(t)^2}{2} - \frac{2Z}{r(t)} \right] dt \\ &= - \int_{t_0}^{t_f} \left[\frac{v(t)^2}{2} - \frac{2Z}{r(t)} \right] dt \\ & - \int_{t_f}^{\infty} \left[\left(\frac{v(t)^2}{2} - \frac{Z}{r(t)} \right) - \frac{Z}{r(t)} \right] dt. \end{aligned}$$

这种情况下, 由于参与干涉的电子轨迹具有相同的末态能量, 因此上式中右边第二项的电子能量从激光场结束时刻 t_f 到无穷远的积分对于干涉电子相位的贡献是相同的. 故可以不考虑这一项的影响, 只需考虑多余的一项库仑项对电子轨迹相位的贡献. 定义渐进库仑修正项

$$\Phi_f^C(t_f) = \int_{t_f}^{\infty} \frac{Z dt}{r(t)}, \quad (28)$$

(27) 式可以写成

$$\begin{aligned} \Phi &= -\mathbf{v}_0 \cdot \mathbf{r}_0 + I_p t_0 - \int_{t_0}^{t_f} \left[\frac{v(t)^2}{2} - \frac{2Z}{r(t)} \right] dt \\ &+ \Phi_f^C(t_f). \end{aligned} \quad (29)$$

渐进库仑修正项可以用激光结束时电子的速度 \mathbf{p}_f ,

位置 \mathbf{r}_f 以及角动量 l 表示 (详细推导见文献 [37]):

$$\Phi_f^C(t_f) = -Z\sqrt{b} \left[\ln g + \operatorname{arcsinh} \left(\frac{\mathbf{r}_f \cdot \mathbf{p}_f}{g\sqrt{b}} \right) \right], \quad (30)$$

其中 $b = 1/\sqrt{2I_p}$, $g = \sqrt{1 + 2I_p l^2}$. 图 1 分别给出了三维 TDSE、二维 QTMC 和 SCTS 方法在相同激光条件下的电子动量谱在 p_x - p_z 平面的分布. 使用的激光场为高斯包络短脉冲, 矢势形状为

$$\mathbf{A}(t) = -\frac{F_0}{\omega} \exp \left[-\alpha \left(\frac{\omega t}{4} \right)^2 \right] \sin \omega t,$$

其中 F_0 为激光电场强度幅值, 激光光强 $I_0 = F_0^2 = 2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 波长 800 nm, 参数 $\alpha = 4.466$. 上式使用的激光是超短周期脉冲, 目的是为了突出瓣状结构而排除其他如周期间的干涉等结构. 从计算结果可以看到, SCTS 方法再对轨道相位进行修正后能够成功地重复出低能角向结构的瓣数. 此外, 图 1(b) 和图 1(c) 中出现了月牙形状的亮线, 这是这类轨道库仑修正半经典方法的缺点之一. 贡献这部分亮线的电子, 通过追踪轨迹可以发现它们在运动过程中返回到了离母核较小的距离而发生了大角度的散射. 而我们并没有考虑电子发生散射的截面或概率, 因此这部分电子的贡献是高估了的, 从而在散射电子对应末态动量处出现了亮线. 这反映了半经典方法不适用于解释硬散射电子的局限性.

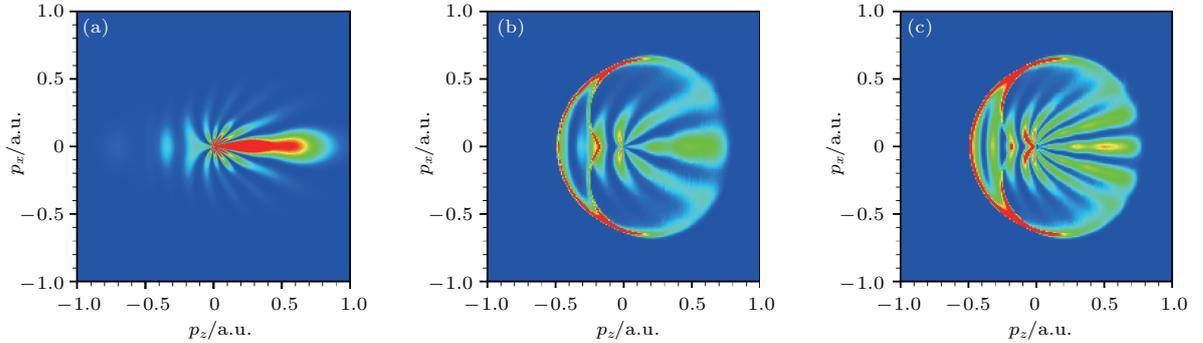


图 1 氢原子电离电子的二维动量谱分布. 系统由峰值光强为 $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 波长 800 nm 的单周期线偏振红外脉冲电离; (a) 由 TDSE 方法求得, (b) 由 QTMC 方法求得, (c) 由 SCTS 方法求得

Fig. 1. The 2D photoelectron momentum distributions of hydrogen atom, ionized by a single-cycle linearly polarized laser pulse at wavelength of 800 nm and peak intensity of $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. The results are shown from: (a) TDSE method, (b) QTMC method, (c) SCTS method.

2.4 半经典数值方法的步骤

在具体数值计算实现中, 半经典方法主要分成如下几个步骤.

1) 制备样本电子. 一个方法是从激光开始到

激光结束均匀取时间点, 每个时刻再对初始横向速度均匀采点, 对应每个时刻和每个初始横向速度有电离率 (17) 式, 其意义原本是在该时刻电离并具有该初速度的隧穿电子数目正比于该电离率, 但这里我们只用一个电子作为代表, 最后乘上 (17) 式作为

权重. 然而均匀采点取样有两个缺点, 一个是可能出现由均匀取点周期性造成的非物理干涉结构, 另一方面为了得到收敛的动量谱需要密集采点也就是需要更大量的样本点. 一个常用的改进方法是蒙特卡罗方法, 在时间空间和初始横向动量空间均匀随机采样, 利用计算机生成的均匀随机数计算样本电子的电离时刻与初始横向动量. 该方法能够使用更少的样本得到收敛的动量谱, 效率更高. 一般典型的样本数量级为 10^9 .

2) 上一步随机采点确定了电子的电离时刻、初始横向速度之后, 可以利用 (9) 式确定隧穿出口位置. 之后求解微分方程组 (19) 和 (25) 式, 可以得到激光结束时电子的位置和速度以及相位积累, 另外还可以记录求解微分方程的过程从而得到该电子在电场驱动下的运动轨迹. 最后利用开普勒公式 (21) 计算得到末态电子动量. 如果轨道相位使用的是 SCTS 方法中的表达式, 相位微分方程 (25) 式中库仑项的系数应该改成 2. 另外在激光场结束后, 需要在求得的相位积累上再加上相位的渐进库仑修正项 (30) 式.

3) 最后将达到相同末态动量的粒子收集起来, 利用 (23) 式计算具有该动量电子的电离概率. 实际操作时, 我们认为末态动量分布在小矩形区域 $[p_x - \Delta p_x/2 \sim p_x + \Delta p_x/2, p_z - \Delta p_z/2 \sim p_z + \Delta p_z/2]$ 内即达到了相同的末态动量 (p_x, p_z) , 这里我们以计算 xz 平面的电子谱为例. 需要注意的是, 统计区域 $\Delta p_x, \Delta p_z$ 不能取得太大, 如果太大, 那么落在区域内相隔较远的电子的动量不能近似认为相同, 这要求区域内间隔最大的点积累的相位差不能太大. 一般对于波长越大的激光, 电子相位随动量分布震荡越快, 或者说动量空间条纹更密集, 这时需要更小的统计区域. 一般可以取某激光参数下动量空间条纹间距的 $1/10$ 作为统计区域范围. 不过若统计区域过小, 则会导致落在该区域内的电子数目不够, 统计效果差. 对于长波长激光, 统计区域范围要小, 这时为了达到一定的统计效果, 需要更多的样本电子, 十分消耗资源.

3 库仑修正强场近似方法

第二部分讲述了 QTMC 半经典方法的发展过程, 该方法从经典模型出发, 量化每一步骤, 最后得到动量谱. 接下来要讲述 CCSFA 半经典方法,

基于 KFR 理论先给出了动量谱, 然后再通过数学手段给 KFR 理论赋予经典的物理图像, 使得能够用经典的两步模型描述该理论结果. 发展成熟的 CCSFA 方法也称为半经典方法, 它和 QTMC 物理图像完全相同, 整个物理过程也可被看作三步. 电子首先被电离成为自由电子, 然后在电场与库仑场共同作用下做经典运动, 最后到达相同末态动量的电子将发生干涉. 后面两步与 QTMC 方法完全相同, 区别仅在于第一步的隧穿过程, CCSFA 方法并不是从准静隧穿模型得到初始条件和电离概率, 而是从 KFR 理论出发由数学计算反推得到的. 接下来我们会详细叙述此方法的重要步骤.

3.1 KFR 理论及强场近似

引言中提到, 量子力学是一个成熟的理论, 它给出了一套非常系统地描述物理过程的方法, 即薛定谔方程. 然而使用薛定谔方程往往不能得到一个精确的解析解, 于是人们寻求各种近似方法来解析地得到一些在特定条件下适用的结果. 例如弱外场下的微扰理论就能解释很多的量子过程. 但是对于我们所考虑的较强的激光场, 微扰理论则不再适用. 这时如果考虑另一种极端的情况, 即激光场远大于库仑场, 利用这个条件的数学处理方法就是强场近似方法, 其中 KFR 理论就是强场近似的具体实现. KFR 是三篇论文^[9-11]作者 Keldysh, Faisal, Reiss 姓名的首字母. 这三篇文章从同一出发点进行了开拓性的推导计算, 后人将它们视为一系列强场近似方法的基础, 统称为 KFR 理论. 更多细节参见综述文献^[38]. 另外还有其他处理强场中电离问题的理论, 如含时有效程理论 (time dependent effective range, TDER)^[39-45], Floquet 理论^[46,47], 解析 R-matrix 理论^[48-50]等. 每种理论基于各自的出发点做出相应近似, 适用情景不尽相同, 细节参看文献. 本文着重介绍 KFR 理论.

根据量子力学原理, 系统在光场下的哈密顿量在速度规范与长度规范下分别写作

$$H^{\text{vol}} = \frac{1}{2} [-i\nabla + \mathbf{A}(t)]^2 + V_a(r),$$

$$H^{\text{len}} = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V_a(r) + \mathbf{F} \cdot \mathbf{r}, \quad (31)$$

其中 $V_a(r)$ 为原子势, 对于类氢原子有 $V_a(r) = -Z/r$, \mathbf{A} 为电场矢势, \mathbf{F} 为电场. 我们定义电子与光场的相互作用势

$$V_{\text{int}}^{\text{vol}} = -i\mathbf{A} \cdot \nabla + A^2/2, \quad V_{\text{int}}^{\text{len}} = \mathbf{F} \cdot \mathbf{r}. \quad (32)$$

系统哈密顿量可以写作

$$H = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V_a(r) + V_{\text{int}}. \quad (33)$$

系统的波函数演化满足薛定谔方程

$$i\frac{\partial}{\partial t}|\psi\rangle = H|\psi\rangle. \quad (34)$$

激光场作用下原子系统将从初态 $|\psi_0\rangle$ 演化到末态 $|\psi_f\rangle = U(t_f, t_0)|\psi_0\rangle$, 其中

$$U(t_f, t_0) = \exp\left(-i\int_{t_0}^{t_f} H dt\right)$$

为在系统哈密顿量 (33) 式作用下从初始时刻 t_0 到 t_f 时刻的演化算符. 由于指数项是对算符的积分, 因此这种表达形式虽简单紧凑却十分不易计算. 定义无外场情况下的哈密顿量

$$H_a = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V_a(r), \quad (35)$$

与其对应的演化算符记为 U_a . 无外场情况下的哈密顿量不含时, 求解定态薛定谔方程可以得到相应的本征态, 能量小于零的态称为束缚态, 一般认为初始电子处于能量最低的束缚态基态上. 激光作用后电子态将被激发到能量更高的束缚态, 或者能量大于零成为自由电子被探测器探测到. 能量大于零的自由电子态的能量是连续分布的, 故又称作连续态, 动量为 \mathbf{p} 的自由电子态记为 $|\psi_{\mathbf{p}}\rangle$. 实验中探测到的动量谱即为自由电子的动量分布, 探测到动量为 \mathbf{p} 的电子的概率应该正比于电子末态中自由态 $|\psi_{\mathbf{p}}\rangle$ 的成分, 即

$$M_{\mathbf{p}} = \langle\psi_{\mathbf{p}}|\psi_f\rangle = \langle\psi_{\mathbf{p}}|U(t_f, t_0)|\psi_0\rangle. \quad (36)$$

上式也是对电子电离概率的严格定义. 在进行精确计算时, 一般是直接求解含时薛定谔方程得到末态波函数 $|\psi_f\rangle$, 然后再用上式计算投影求得动量谱. 接下来我们将进行一些数学处理, 得到强场近似结果.

定义忽略库仑势的哈密顿量

$$H_f = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V_{\text{int}}(t), \quad (37)$$

它描述的是自由电子在外场中的运动, 对应的演化算符为 U_f , 本征态是 Volkov 态 $|\psi_{\mathbf{p}}^V\rangle$ [51-54], 在非相对论情况下由速度规范和长度规范分别得到不同的表达形式:

$$\begin{aligned} |\psi_{\mathbf{p}}^{V,\text{vol}}\rangle &= |\mathbf{p}\rangle \exp(-iS_{\mathbf{p}}(t)), \\ |\psi_{\mathbf{p}}^{V,\text{len}}\rangle &= |\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)\rangle \exp(-iS_{\mathbf{p}}(t)), \end{aligned} \quad (38)$$

其中

$$S_{\mathbf{p}}(t) = \int^t \frac{[\mathbf{p} + \mathbf{A}(\tau)]^2}{2} d\tau. \quad (39)$$

$|\mathbf{p}\rangle$ 表示动量为 \mathbf{p} 的平面波态, 在坐标表象下有

$$\langle\mathbf{r}|\mathbf{p}\rangle = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \exp(i\mathbf{p} \cdot \mathbf{r}).$$

利用 Dyson 方程 [55], 可以将总哈密顿量的演化算符表示成如下等价的对称形式:

$$U(t, t') = U_a(t, t') - i \int_{t'}^t U(t, \tau) V_{\text{int}}(\tau) U_a(\tau, t') d\tau, \quad (40)$$

$$U(t, t') = U_f(t, t') - i \int_{t'}^t U_f(t, \tau) V_a U(\tau, t') d\tau. \quad (41)$$

将 (40) 式代入电离概率 (36) 式, 可以得到电离概率的另一个精确表达式:

$$M_{\mathbf{p}} = -i \int_{t_0}^{t_f} \langle\psi_{\mathbf{p}}(t_f)|U(t_f, \tau)V_{\text{int}}(\tau)|\psi_0(\tau)\rangle d\tau. \quad (42)$$

强场近似的关键一步在于, 假设电子被电离后库仑势作用可以忽略, 电子仅在外电场驱动下运动, 这时可以将上式的演化算符替换成为无库仑势的演化算符, 并且将电子末态替换成为 Volkov 态. 这样上式将在强场近似下简化为

$$M_{\mathbf{p}} = -i \int_{t_0}^{t_f} \langle\psi_{\mathbf{p}}^V(\tau)|V_{\text{int}}(\tau)|\psi_0(\tau)\rangle d\tau. \quad (43)$$

(43) 式就是 KFR 理论的共同出发点, 三篇文章均从上式出发, 详细计算了单色光场下的电离概率. 其中, Keldysh 在长度规范下进行计算得到了著名的 Keldysh 电离率公式:

$$\begin{aligned} &W_{\text{Keldysh}} \\ &\sim \exp\left\{-\frac{2I_p}{\omega}\left[\left(1 + \frac{1}{2\gamma^2}\right)\text{arcsinh}\gamma - \frac{\sqrt{1+\gamma^2}}{2\gamma}\right]\right\}, \end{aligned} \quad (44)$$

Keldysh 参数定义为 $\gamma = \omega\sqrt{2I_p}/F$, 可以理解为电子隧穿时间与光场周期的比值. 指数项与 PPT 文中 [12] 在短程势情况下得到的结果完全一样. 此式的物理内涵在于不仅能够描述隧穿极限下的物理规律, 也能描述多光子过程. 对于隧穿极限即准静近似下, 有 $\gamma \ll 1$, 此时上式可以转化成与准静隧穿概率 (10) 式相同的指数形式. 而 $\gamma \gg 1$ 的情况称为多光子过程, 此时电离概率的可以化成 $W \sim \sigma_N I^N$, 其中 I 为光强, N 为吸收光子数 I_p/ω , σ_N 为多光子吸收截面.

Faisal 和 Reiss 两人均在速度规范下计算电离率 (43) 式, 其中 Faisal 的文章 [10] 中末态使用了任意态, 而 Reiss 的文章 [11] 从一开始就用 Volkov 态代替末态. 将 Faisal 文章结果中的末态取为平面波态即可得到和 Reiss 完全一样的结果 (对比文献 [10] 中的 (21), (22) 式与文献 [11] 中的 (26), (42) 式). 与长度规范下含有矢势的平面波态不同, 速度规范的好处在于 Volkov 态 (38) 式中的平面波态是一个不随时间变化的态. 这样在计算过程中可以利用傅里叶-贝塞尔变换

$$\exp(iz \sin \varphi) = \sum_{k=-\infty}^{+\infty} J_k(z) \exp(ik\varphi),$$

将电离率展开成贝塞尔函数的叠加, 最后写成如下形式:

$$M_{\mathbf{p}}^{\text{FR}} = \sum_n \delta\left(\frac{p^2}{2} + I_p + U_p - n\omega\right) M_{\mathbf{p}n}. \quad (45)$$

对于线偏振光有

$$M_{\mathbf{p}n} = 2\pi i \left(\frac{p^2}{2} + I_p\right) \langle \mathbf{p} | \Psi_0 \rangle \sum_{k=-\infty}^{+\infty} J_k\left(\frac{U_p}{2\omega}\right) \times J_{n+2k}\left(\frac{Fp}{\omega^2}\right), \quad (46)$$

对于圆偏振光有

$$M_{\mathbf{p}n} = 2\pi i \left(\frac{p^2}{2} + I_p\right) \langle \mathbf{p} | \Psi_0 \rangle J_n\left(\frac{Fp}{\omega^2}\right), \quad (47)$$

其中 $\langle \mathbf{p} | \Psi_0 \rangle$ 为初态在动表象下的函数. 从 FR 的结果 (45) 式可以很清楚地看到 ATI 结构, 吸收了 n 个光子的电子将在能量为 $p^2/2 = n\omega - I_p - U_p$ 处出现峰值. 每阶 ATI 峰的电离率大小取决于贝塞尔函数 (46), (47) 式. 同时, 由贝塞尔函数的性质可以预测 ATI 峰的平台结构, 即高阶 ATI 峰的电离率相比于低阶峰的电离率并没有明显下降, 这属于强场与原子相互作用产生的高度非线性现象.

3.2 鞍点方法

上一节讨论的 KFR 理论, 均从强场近似后的电离率分布 (43) 式出发, 严格对单色光场情况进行了深入计算, 结果成功给出了正确描述强场非微扰情况的总电离率, 并且预测了电子谱的 ATI 阈上电离峰结构. 事实上, (43) 式是一个理论上可以直接计算的式子, 在确定激光场的情况下, 被积函数是明确的, 主要任务是计算积分. 五十年前由于计算机刚刚诞生而无法进行复杂的计算, 人们更倾向于

使用解析手段处理数学问题. 如今发展成熟的计算机给我们提供了强大的计算手段, 对于具有明确表达式的函数可以数值积分, 于是强场近似下的 (43) 式开始被广泛应用于处理任意有限长包络光场下的原子电离问题. 接下来我们会介绍一种方法, 将 (43) 式中的积分转化为求和的形式进行近似处理, 并赋予其经典的物理图像. 此方法在数学上称作鞍点方法 (严格上对实数变量叫鞍点方法, 对于复数变量叫最速下降线围道方法), 相关数学内容详见文献 [56]. 早期已有文献 [57, 58] 利用此数学方法处理 (43) 式的积分, 之后文献 [55, 59, 60] 中对此方法进行了拓展与总结. 在长度规范下, 代入 Volkov 态和相互作用势, (43) 式可以写成

$$M_{\mathbf{p}} = -i \int_{t_0}^{t_f} e^{i\tilde{S}_{\mathbf{p}}(t')} \langle \mathbf{p} + \mathbf{A}(t') | \mathbf{r} \cdot \mathbf{F}(t') | \psi_0 \rangle dt', \quad (48)$$

其中

$$\tilde{S}_{\mathbf{p}}(t) = \int^t \left\{ \frac{[\mathbf{p} + \mathbf{A}(\tau)]^2}{2} + I_p \right\} d\tau. \quad (49)$$

积分下限本应从负无穷开始, 但是在光场出现前此相位积累是一个与时间无关的常数, 故上式积分可以从激光起始时刻进行. 若原子势为库仑势, 对初态为 s 态的情况, 偶极跃迁矩阵元可计算为

$$\langle \mathbf{p} + \mathbf{A}(t') | \mathbf{r} | \psi_0 \rangle \propto \frac{\mathbf{p} + \mathbf{A}}{[(\mathbf{p} + \mathbf{A})^2 + 2I_p]^3}, \quad (50)$$

在已知电场时, (48) 式可以直接进行数值积分求解. 值得注意的是, (48) 式不仅适用于长波长红外光场, 对 XUV 光同样可行, 文献 [61, 62] 中利用该式很好地描述了 XUV 光电离谱.

如果相位 $\tilde{S}_{\mathbf{p}}(t)$ 随时间的变化远快于函数 $\langle \mathbf{p} + \mathbf{A}(t') | \mathbf{r} \cdot \mathbf{F}(t') | \psi_0 \rangle$ 的变化, 则积分函数是一个高速振荡的函数, 对时间的积分在大多数地方相互抵消而使积分值接近零, 只有在相位变化十分缓慢的地方才对积分值有显著贡献. 相位稳定的点即稳相点, 由于其在复平面上的形状像马鞍又可称鞍点, 满足相位对时间的一阶导数为零

$$\left. \frac{\partial \tilde{S}_{\mathbf{p}}(t)}{\partial t} \right|_{t=t_s} = \frac{[\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s)]^2}{2} + I_p = 0. \quad (51)$$

上式即为鞍点方程. 鞍点方法的大致思路为, 将 (48) 式的积分近似表示成在各个鞍点附近的积分之和, 而鞍点附近的积分可表示为被积函数在鞍点处的函数值与某个系数的乘积, 经过计算可以将电

离率表示成求和形式:

$$M_p \sim \sum_s \sqrt{\frac{2\pi i}{\tilde{S}_p''(t_s)}} (\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s) | \mathbf{r} \cdot \mathbf{F}(t_s) | \Psi_0) \times e^{i\tilde{S}_p(t_s)}, \quad (52)$$

其中求和遍历所有鞍点, 符号 \sim 表示两个函数具有相同行为. 使用鞍点方法的过程中有些近似条件往往不能被很好地满足, 近似步骤并不绝对严格, 因此最后得到的式子在数值上并不能和原式完全相符. 但是近似后的式子已经足够描述原函数的行为, 或者可以认为仅仅与原函数相差一个系数因子. 在考虑库仑势的情况下, 由于分母是相位的一阶导数, 在鞍点处为零, 偶极跃迁矩阵元 (50) 式在鞍点处的值是发散的, 这时 (52) 式失效. 文献 [60] 中给出了考虑库仑势情况下的电离率修正:

$$M_p \sim \sum_s \frac{(2I_p)^{5/4}}{2^{1/2} \mathbf{F}(t_s) [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s)]} e^{i\tilde{S}_p(t_s)}. \quad (53)$$

指数前因子简单记为 $P(t_s)$, 电离概率可表示成 $M_p \sim \sum_s P(t_s) e^{i\tilde{S}_p(t_s)}$. 上式已经和 QTMC 的电离率 (23) 式非常相似了, 不同之处在于相位因子. 从鞍点方程可以看出, 方程的解即鞍点 $t_s = t_r + it_i$ 是复数, 因此相位因子 (49) 式在鞍点方法下是复变函数的积分. 我们考虑的光场形式和相位的被积函数都是解析函数, 因此可以将积分路径取成两部分:

$$\int_{-\infty}^{t_s} = - \int_{t_s}^{\infty} = - \int_{t_s}^{t_r} - \int_{t_r}^{\infty}.$$

从鞍点直接积分到鞍点实部, 然后再从鞍点实部出发积分至无穷远, 则相位因子也分成两个部分:

$$\begin{aligned} \tilde{S}_p(t) &= \Phi_s^t + \Phi_s, \\ \Phi_s^t &= - \int_{t_s}^{t_r} \left\{ \frac{[\mathbf{p} + \mathbf{A}(\tau)]^2}{2} + I_p \right\} d\tau, \\ \Phi_s &= - \int_{t_r}^{\infty} \left\{ \frac{[\mathbf{p} + \mathbf{A}(\tau)]^2}{2} + I_p \right\} d\tau. \end{aligned} \quad (54)$$

第二部分积分在时间实轴上进行, Φ_s 是纯实数, 可以发现这个相位与 QTMC 的轨道相位 (24) 式在不考虑库仑势的情况下完全一样. 第一部分 Φ_s^t 是从鞍点到鞍点实部的相位积累, 该过程物理上可以理解成电子在势垒中发生隧穿. Φ_s^t 为复数, 实部对应了隧穿的初始相位, 从虚部可以获得隧穿概率 [63]. 电离率可以写成

$$M_p \sim \sum_s P(t_s) \exp(i\Phi_s^t) \exp(i\Phi_s). \quad (55)$$

上式的确与 (23) 式相同, 这样我们就将强场近似理论与半经典理论联系起来. 惟一的区别在于 QTMC 的隧穿概率幅是实数, 而此处隧穿概率幅 $P(t_s) \exp(i\Phi_s^t)$ 是复数, 这意味着不同轨道的初始相位不一定相同. 现在我们可以给强场近似赋予一个经典的物理过程, 电子从 t_r 时刻隧穿成为自由电子, 然后在外场的作用下做经典运动, 忽略库仑势, 末态动量为 \mathbf{p} 的电子可以由 (22) 式反推出隧穿出口处的初始动量

$$\mathbf{p}_0 = \mathbf{p} + \mathbf{A}(t_r). \quad (56)$$

电子在电离时刻 t_r 的初始位置可以利用虚时理论 [64] 中的假设确定, 该理论认为电子在 t_s 到 t_r 期间是在势垒中运动, 轨迹遵循量子轨迹. 量子轨迹的定义满足如下两个边界条件: 1) 电子在隧穿起始的位置实部为零, 即 $\text{Re}(\mathbf{r}(t_s)) = 0$; 2) 电子在隧穿出口处的经典量应该为实数, 即 $\text{Im}(\mathbf{r}(t_r)) = \text{Im}(\mathbf{p}(t_r)) = 0$. 可以构造出满足以上条件的量子轨迹

$$\mathbf{r}_q(t) = \int^t \mathbf{A}(\tau) d\tau - \text{Re} \left[\int^{t_s} \mathbf{A}(\tau) d\tau \right],$$

那么隧穿出口的位置可以写成

$$\mathbf{r}_0 = \mathbf{r}_q(t_r) = \text{Re} \left[\int_{t_s}^{t_r} \mathbf{A}(\tau) d\tau \right]. \quad (57)$$

至此我们基本完成了将强场近似改造为半经典方法的工作. 从跃迁概率幅出发, 借助数学手段将其转化为求和形式, 对求和的每一项赋予经典物理意义, 可看作不同时刻发生隧穿最终能达到相同末态动量的电子对电离率的贡献, 并且求出电子在隧穿出口的初始位置、初始动量以及隧穿概率等经典物理量.

在准静极限下, 光场可看作静电场, 假设光场沿 z 方向, $A_z(t) = -Ft$, 代入鞍点方程 (51) 式有

$$\frac{1}{2} [(p_z - Ft_r - iFt_i)^2 + p_x^2] + I_p = 0.$$

在此仅考虑 xz 平面, 可以求得鞍点

$$t_r = \frac{p_z}{F}, \quad t_i = \frac{\sqrt{2I_p + p_x^2}}{F}.$$

代入 (56) 式可以得到初始动量

$$p_{0x} = p_x, \quad p_{0z} = p_z - Ft_r = 0.$$

从上式可看出, 在满足准静条件时, 初始纵向动量为零. 对于初始位置有

$$r_z = \text{Re} \left[\int_{t_s}^{t_r} -F\tau d\tau \right] = -\frac{Ft_i^2}{2} \approx -\frac{I_p}{F}.$$

与朗道给出的静电场中隧穿出口(9)式一致. 最后计算电离概率

$$W = |P(t_s) \exp(i\Phi_s^t)|^2 \propto \exp(-2\text{Im}\Phi_s^t),$$

其中隧穿相位的虚部

$$\begin{aligned} \text{Im}\Phi_s^t &= \text{Im} \int_{t_r}^{t_s} \left\{ \frac{(p_z - F\tau)^2 + p_x^2}{2} + I_p \right\} d\tau \\ &= \left(\frac{p_x^2}{2} + I_p \right) t_i - \frac{F^2 t_i^3}{6} \\ &= \frac{(p_x^2 + 2I_p)^{3/2}}{3F}. \end{aligned}$$

可以得到电离率为

$$\begin{aligned} W &\propto \exp\left(-\frac{2(p_x^2 + 2I_p)^{3/2}}{3F}\right) \\ &\approx \exp\left[-\frac{2(2I_p)^{3/2}}{3F} \left(1 + \frac{3}{2} \frac{p_x^2}{2I_p}\right)\right] \\ &\propto \exp\left(-\frac{2(2I_p)^{3/2}}{3F}\right) \exp\left(\frac{p_x^2 \sqrt{2I_p}}{F}\right). \end{aligned}$$

上述结果在指数因子上与 QTMC 模型采用的电离率完全一样, 这也证实了这几种方法的一致性与有效性. 以上推导只是强场近似方法的一种特殊情况, 事实上该方法的适用范围十分广泛. 原则上对于一般形式的光场都可用强场近似法, 只不过此时在隧穿出口处纵向初始速度一般不为零, 并且电离概率与初始横向速度的关系也不再是中心为零的高斯分布. 这些差异将导致在不满足准静条件的情况下强场近似结果与绝热 QTMC 方法不一致, 此处绝热即表示准静. 这种不一致的现象统称为非绝热现象, 将在第4部分举例说明.

3.3 数值实现与库仑势修正

上一节给出了正统的强场近似方法计算电子电离动量谱分布的步骤, 忽略电子电离后受到的库仑势影响, 初步实现了半经典化, 将积分形式的跃迁概率幅写成不同时刻电离的电子概率幅求和, 并得到了不同时刻电离的电子初始位置和初始动量. 半经典化后的强场近似用数值方法实现的步骤和 2.4 节基本相同, 该步骤是半经典方法的通用步骤, 区别在于第一步中的采样方式. 强场近似方法首先给定末态动量, 通过鞍点方程(51)式求出所有解, 这些解对应的电子就是采取的样本. 然后从初始条件(57)和(56)式出发, 求解不包含库仑势的运动方程, 得到的末态动量必然就是给定的末态动量, 最后将末态动量相同的电子收集起来, 对包含轨道

相位的电离概率求和, 得到的就是(55)式. 也就是说, 在不考虑库仑势的情况下, 对给定末态动量的所有鞍点采样, 就可以由半经典方法的步骤实现强场近似.

在强场近似方法中加入库仑效应有多种方法, 其中之一是从(42)式出发, 将 Dyson 方程的第二个形式(41)式代入(42)式, 近似取到一阶项得:

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}} &= -i \int_{t_0}^{t_f} \langle \psi_{\mathbf{p}}(t_f) | U_f(t_f, \tau) V_{\text{int}}(\tau) | \psi_0(\tau) \rangle d\tau \\ &\quad - \int_{t_0}^{t_f} \int_{\tau_1}^{\tau_2} \langle \psi_{\mathbf{p}}(t_f) | U_f(t_f, \tau_2) V_a U(\tau_2, \tau_1) \\ &\quad \times V_{\text{int}}(\tau_1) | \psi_0(\tau_1) \rangle d\tau_1 d\tau_2. \end{aligned}$$

第一项就是忽略库仑势的强场近似电离率, 也叫作直接电离项, 物理上该电子电离后不再与母核发生作用. 第二项被称为一次再散射项, 其物理意义是, 处于初态的电子在 τ_1 时刻被相互作用势 $V_{\text{int}}(\tau_1)$ 电离, 然后在库仑势和光场共同作用下经演化算符 $U(\tau_2, \tau_1)$ 传播到 τ_2 时刻, 在 τ_2 时刻与母核发生相互作用并发生散射, 最后电子在光场作用下经演化算符 $U_f(t_f, \tau_2)$ 传播到激光结束. 如果利用(41)式替换再散射项的 $U(\tau_2, \tau_1)$, 则可以写出更高阶的项, 表示多次散射. 此方法是量子方法, 具体工作参考文献[55, 59, 60, 65, 66]. 如果考虑电离电子受库仑势的影响, 即末态不再取为忽略库仑势的自由电子本征态 Volkov 态, 而采用同时包含库仑势和光场的哈密顿量本征态 Coulomb-Volkov (CV) 态, 这就是常见的 CVA (Coulomb-Volkov approximation) 方法[67-76].

本文主要介绍经典的考虑库仑效应的方法, 即库仑修正强场近似方法[17, 77-79]. 该方法以半经典强场近似为出发点, 通过求解鞍点方程, 得到电离时刻和对应的初始位置、初始动量以及隧穿概率, 在电子受光场驱动做经典运动的过程中考虑库仑势, 运动方程同(18)式. 然而需要注意的是, 库仑势的影响会导致从运动方程求解出的电子末态动量不同于采样时给定的动量, 甚至当电子在运动过程中距离原子核太近时还会发生散射, 这样电子动量可能发生很大的偏转甚至反向. 也就是说, 由同一个鞍点方程得到的各个解对应的不同时刻出射的电子, 最后可能不再达到相同的末态动量, 这样电离率计算公式(55)是否依然有效值得商榷. 我们在此说明, 虽然轨道的库仑修正在数学上是不严谨的, 得到的结果在很大程度上却是有效的.

半经典方法中另外一个受到库仑势影响的是轨道相位, 文献 [17,79] 中使用的是和 QTMC 方法相同的 (24) 式, 此文献中对相位的库仑修正推导过程有同样疏漏 (见 2.3 节的讨论). 强场近似方法的传播子相位与 2.3 节的稍有不同, 从强场近似方法相位的来源 (见 (48) 式推导) 可以看出, 应该使用动量空间到动量空间的作用量. 文献 [77, 78] 中使用动量空间到动量空间的传播子相位:

$$\Phi = \int_{t_0}^{\infty} (L - I_p) dt - \mathbf{v}_{\infty} \cdot \mathbf{r}_{\infty} + \mathbf{v}_0 \cdot \mathbf{r}_0, \quad (58)$$

其中拉格朗日量为 $L = \mathbf{v} \cdot \dot{\mathbf{r}} - H$. 该表达式的库仑势修正也表现在哈密顿量的库仑势修正与运动方程修正项部分, 文献中进行了详细研究. 将上式进行分部积分, 可以得到与 2.3 小节中相同的形式:

$$\begin{aligned} \Phi &= I_p t_0 + \int_{t_0}^{\infty} [-\mathbf{r}(t) \cdot \dot{\mathbf{v}}(t) - H] dt \\ &= I_p t_0 - \int_{t_0}^{\infty} \left[\frac{v(t)^2}{2} - \frac{2Z}{r(t)} \right] dt. \end{aligned} \quad (59)$$

上式没有与初始纵向速度相关的初始相位, 并且正确的库仑修正项系数因子为 2. 理论上 (58) 和 (59) 式两种形式的库仑修正是完全相同的, 相比之下后者的形式较为简单, 易于程序实现.

在动量空间的采样策略同样有两种, 一种是直接在动量空间中取均匀格点, 遍历所有动量格点求解鞍点方程, 与每个解相对应的电子作为样本. 这种策略在不考虑库仑势作用时是可行的, 因为前面讨论过当没有库仑势时同一个鞍点方程得到的样本最后将回到相同的末态动量, 不存在统计上的收敛性. 当考虑了库仑势之后, 电子末态动量将无法预计, 最后需要收集末态动量相近的电子做统计. 为了达到一定的统计精度, 需要足够数量的电子, 动量格点要取得十分密集, 这时可以使用另外一种采样策略. 在动量空间中均匀随机地采点, 根据蒙特卡罗的思想, 可以降低采样数目达到相同的统计效果, 从而提高效率.

3.4 高效实现 CCSFA

以上两种半经典方法都具有鲜明的物理图像, 实现步骤与物理过程基本一致, 主要分为隧穿、传播和探测三步. 但在细节上两种方法各有优缺点. QTMC 方法直接对隧穿出口和初始横向动量两个参数进行采样, 然后直接计算得到电子的隧穿概率和初始条件. 第二步求解运动微分方程组是整个过

程中相对耗时的步骤. 对于目前计算机的并行计算速度而言, 对 10^9 量级的样本计算运动方程, 完成一个电子谱的计算只需要不到一个小时. 因此 QTMC 方法是一种高效的半经典方法. 然而该方法的局限性在于第一步的隧穿过程用到了准静条件, 电离率和初始条件都是从电子在准静场下的隧穿求解而来, 使得此方法适用范围比较小, 仅仅在满足绝热条件如激光波长较长的时候才能给出较好的结果. 相比而言, CCSFA 方法的出发点为强场近似, 推导过程只用到了强场条件而不需要绝热条件. 因此从强场近似半经典化后得到的初始动量分布和初始条件等可用于非绝热情况, 适用的范围更广, 在激光参数不满足绝热条件时也能很好地重复出非绝热现象 (第 4 部分将举例说明). 但 CCSFA 方法的缺点在于其采样过程不是直接的, 先在动量空间进行采样, 再对每个动量求解鞍点方程得到样本, 继而得到该样本的初始条件和电离率. 求解鞍点方程的过程相当耗时, 平均对每个样本而言, 求解鞍点方程的时间可能远大于传播的时间. 因此常规的在动量空间采点的 CCSFA 方法是一种非常耗时的半经典方法.

我们结合了 QTMC 方法和 CCSFA 方法的优点, 提出了一种高效实现 CCSFA 的方法 [80]. 该方法使用的是半经典强场近似的初始条件和电离率, 但采样过程和 QTMC 方法类似, 避免了求解鞍点方程的过程, 从而将效率提高到与 QTMC 方法同量级. 此方法的核心在于, 在复时间平面上随机采点, 首先得到鞍点值 $t_s = t_r + it_i$. 以时间为参数, 电子的初始位置、初始动量和电离率等都可以表示成时间的函数并直接求得. 假设考虑极化方向沿 z 方向的有限长线偏振光

$$\mathbf{A}(t) = A_z \hat{e}_z = A_0 \cos^2(\beta t) \sin(\omega t + \phi) \hat{e}_z, \quad (60)$$

其中 $\beta = \pi/T = \omega/(2N_c)$, 脉冲从 $-T/2$ 开始到 $T/2$ 结束, N_c 是脉冲总周期数. 电场矢势的函数延拓到复数域是解析函数. 仅考虑电子在 xz 平面的运动, 鞍点方程将化成代数方程

$$\begin{aligned} p_z + A_r(t_r, t_i) &= 0, \\ p_x^2 + 2I_p - A_i^2(t_r, t_i) &= 0. \end{aligned} \quad (61)$$

从上面的方程可以看出, 我们的采样方法的根本优势在于, 由已知时间来求解动量是一个相对简单的二次方程, 而如果按照传统采样方式, 由已知动量

通过鞍点方程求解时间则是一个复杂的非线性方程组. 在这里动量变量可以直接用采点时间表示:

$$\begin{aligned} p_z &= -A_r(t_r, t_i), \\ p_x &= [A_i^2(t_r, t_i) - 2I_p]^{1/2}. \end{aligned} \quad (62)$$

初始位置、初始动量可以由 (57) 和 (56) 式得到:

$$\begin{aligned} x_0 &= 0, \\ z_0 &= \text{Re} \int_{t_s}^{t_r} A_z(\tau) d\tau, \\ v_{0x} &= [A_i^2(t_r, t_i) - 2I_p]^{1/2}, \\ v_{0z} &= -A_r(t_r, t_i) + A_z(t_r, 0). \end{aligned}$$

(54) 式中的隧穿相位为

$$\begin{aligned} \Phi_s^t &= i \left(\frac{1}{2} p_x^2 + \frac{1}{2} p_z^2 + I_p \right) t_i \\ &\quad - p_z \int_{t_s}^{t_r} A_z(\tau) d\tau - \frac{1}{2} \int_{t_s}^{t_r} A_z^2(\tau) d\tau. \end{aligned}$$

上面各式均可以在已知时间 $t_s = t_r + it_i$ 的情况下直接计算得到, 其中涉及的几个积分, 对于 \cos^2 包络的光场可以得到解析表达式, 对于一般光场则需要做数值积分, 不过这个过程并不耗时.

最后一个关键点在于, 我们的这种采样方式, 在无库仑势时的结果必须和常规强场近似一样才能证实其有效性, 也就是需要保证在没有库仑势的情况下, 我们的采样方式得到的末态动量分布在动量空间是均匀的. 那么在时间平面采点就需要满足某种分布, 或者如果在时间平面均匀采点, 就需要对每个样本乘上一个权重因子. 可知此时我们需要考虑的权重因子为变换的雅克比矩阵

$$\mathbf{J}(t_s) = \mathbf{J}(t_r, t_i) = \begin{vmatrix} \frac{\partial p_x}{\partial t_r} & \frac{\partial p_x}{\partial t_i} \\ \frac{\partial p_z}{\partial t_r} & \frac{\partial p_z}{\partial t_i} \end{vmatrix}, \quad (63)$$

其中的每一项可由 (62) 式求出. 在我们的方案中, 对时间进行均匀采点, 样本的隧穿概率幅应该写成等效隧穿概率幅:

$$P_{\text{eff}}(t_s) = \mathbf{J}(t_s) P(t_s) \exp(i\Phi_s^t). \quad (64)$$

使用 2.4 节的步骤进行数值实现, 就可以具有 QTMC 相同的计算效率, 并得到与 CCSFA 相同的结果.

4 半经典方法的应用

半经典方法的优势在于能以清晰的物理图像研究强场中原子分子中电子的动力学过程, 在经

典轨道描述下, 更容易实现对电子运动的操控. 对电子运动的深入研究, 最大的功劳之一就是催生了利用高次谐波产生阿秒激光的技术 [81,82], 促进了阿秒技术的发展 [83,84]. 忽略库仑势的强场近似理论已经得到广泛使用, 例如描述负离子脱附过程 [85,86], 解释电子谱高能平台区 [87] 和高次谐波谱平台区 [58] 等典型的强场物理现象. 考虑库仑势的半经典方法, 可以描述椭圆光下动量谱的库仑不对称性 [88-90]; 解释受挫电离现象 [31,32,91,92] 以及各种二维谱结构的产生原因, 对不同的结构利用不同类型的电子轨道产生的贡献进行区分 [93-98]; 研究阈值附近的动量谱结构 [99-102]、长波长下的低能谱结构 [103-107]. 接下来我们举例使用半经典方法研究电子电离的物理过程, 首先我们利用半经典方法的优势, 分析不同轨道的电子对动量谱干涉结构的贡献; 其次我们对比使用绝热 QTMC 方法和非绝热 CCSFA 方法的结果, 研究电子隧穿非绝热效应.

4.1 电子谱干涉结构

随着实验精度的提高, 实验上能够得到更高分辨率的电子二维动量谱 [93], 该动量谱呈现出了丰富的结构, 蕴含着复杂的物理过程. 使用 TDSE 方法数值模拟得到的动量谱也可以几乎重复出全部的干涉结构. 就现在的计算能力而言, 数值模拟的动量谱分辨率高于目前实验所能达到的最高分辨率, 所以我们可以使用数值模拟来研究动量谱的干涉结构. 图 2(a) 给出的是一个典型的使用 TDSE 方法计算红外强激光作用下氢原子电离电子的二维动量谱, 选用峰值光强为 $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 波长为 1600 nm 的线偏振光 (具体波形见图 3). 这时的 Keldysh 参数为 $\gamma \approx 0.53$, 比较好地符合了绝热条件, 于是我们使用 QTMC 方法进行研究. 图 2(b) 是使用 QTMC 方法给出的在相同激光条件下的二维动量谱. 可以看出半经典方法能够基本重复出主要的干涉结构, 使用 TDSE 方法虽然能够给出更加精确的动量谱, 但是我们无法清楚地描述动量谱干涉结构背后的物理过程. 而半经典方法认为动量谱的结构是不同轨道的电子达到相同末态动量干涉产生的, 我们可以通过追踪电子轨迹, 从而区分出何种轨道的电子贡献哪种干涉条纹.

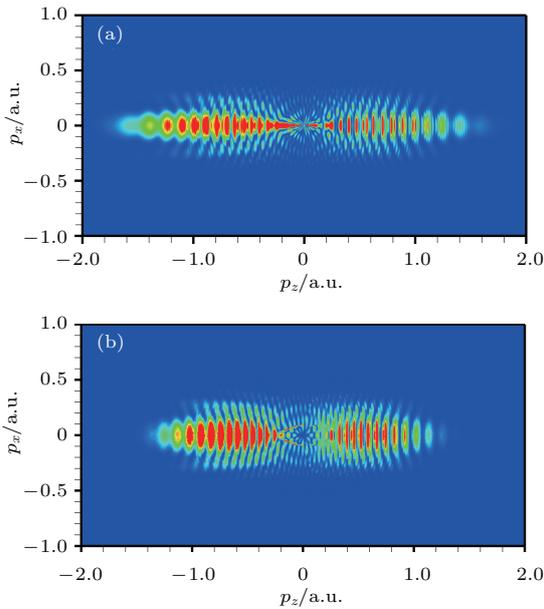


图2 氢原子电离电子的二维动量谱分布 系统由峰值光强为 1×10^{14} W/cm², 波长1600 nm的4周期, sin² 包络, 线偏振红外脉冲电离; (a) 由TDSE方法求得, (b) 由QTMC方法求得

Fig. 2. The 2D photoelectron momentum distributions of hydrogen atom, ionized by a 4-cycle sin² envelope linearly polarized laser pulse at wavelength of 1600 nm and peak intensity of 1×10^{14} W/cm². The results are shown from: (a) TDSE method, (b) QTMC method.

我们从简单情况开始考虑, 在不考虑库仑势的情况下, 末态动量与电离时刻的电场矢量相关, 见(22)式. 对于偏振方向沿 z 轴的线偏光, 半个周期内出射的电子被电场驱动向 z 轴负方向出射, 贡献动量谱的负 z 轴半平面电子谱, 另外半个周期出射的电子贡献正半平面的电子谱. 在半个周期内, 有两个时刻对应的电场矢量相等, 这两个时刻出射的电子最终会达到相同的末态动量(若初始横向动量相同)而发生周期内的干涉. 如图3所示, 图3(a)黑色框中半个周期内电离的电子将沿 z 轴负方向出射, 其中电场峰值后(称之为下降沿)四分之一周期电离的电子记为T2, 电场峰值前(称之为上升沿)四分之一周期电离的电子记为T1. 从图3(b)可以看出, T1轨道的电子隧穿出口在 z 轴负半轴, 之后电子的运动一直沿 z 轴负方向, 直到被探测器探测到, 这一类电子我们称之为直接电离电子; T2轨道的电子隧穿出口位于 z 轴正半轴, 受到电场驱动将沿 z 轴负方向运动并通过 z 的零点, 最后从 z 轴负方向出射, 这类电子我们称之为前向散射电子. 需要注意的是, 这里我们忽略了库仑势作用, 电子在

返回核时自然不会被散射, 在考虑库仑势后, 电子接近母核时会受库仑力作用而发生偏转. 当偏转角度较小时, 比如接近母核的速度沿 z 轴负方向, 离开母核的速度依然沿 z 轴负方向的情况, 我们称之为前向散射. 如果电子返回母核距离核较近, 有可能发生大角度偏转, 对于速度反向出射离开母核的情况, 我们称之为背向散射. 这两种类型的电子动量谱干涉结构如图3(c)所示. 该干涉结构的特点是, 沿激光极化方向动量越大条纹间距越大, 在能量谱上亦是如此. 原因在于末态动量大的电子, 两种轨道对应电离时刻相距较近, 相位差积累变化较缓慢, 于是能量谱间距较大.

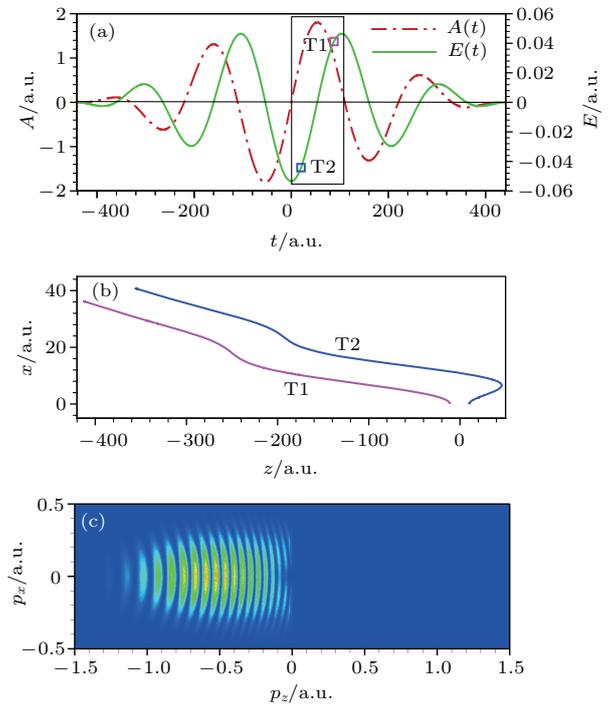


图3 (a) 激光电场与矢量势图, 其中将电离的电子限制在黑色框区域的时间范围内, T1 与 T2 标记的是能到达相同末态动量的两种电子; (b) T1 和 T2 两种电子的运动轨迹; (c) 限制电离后, T1 与 T2 两种轨道电子的动量谱干涉图样, 计算时忽略库仑势作用

Fig. 3. (a) The laser electrical field and vector potential, photoelectrons are restricted in the area of black box, T1 and T2 mark two kind of electrons reaching the same same final momentum; (b) the trajectories of T1 and T2 kinds electrons; (c) the interference structure of the photoelectrons momentum distribution by T1 and T2 electrons. The Coulomb effect is absent in this case.

准单色光场呈周期性结构, 相隔周期整数倍的时刻对应的电场和矢量势相同, 于是出射时间间隔周期整数倍电子最终能够达到相同末态动量发生干涉. 我们将电离电子限制在间隔一个周期的

相邻两个半周期时间范围内, 见图 4(a) 的黑色框所示. 每个半周期内上升沿电离的电子 (T11 轨道以及 T12 轨道) 是前向散射电子, 贡献动量谱 z 方向负半平面; 下降沿电离的直接电离电子 (T21 和 T22 轨道) 贡献动量谱正半平面. 相同半个周期内出射的电子分布到动量空间的不同位置不会发生干涉, 而间隔一个周期电离的电子会发生干涉, 见图 4(c). 这种干涉的特点是, 来自相同电离类型的电子, 电离时刻相隔周期整数倍, 所以干涉条纹在能量谱上是等间距的同心圆环, 在动量谱上动量越大条纹越密, 这就是所谓的 ATI 环结构. 我们的例子中仅考虑了相邻一个周期的两个轨道电子, 对于长脉冲将有更多周期的电子干涉, 类比于光栅, 干涉环间距不变但是条纹变得锐利. 这里, 我们从经典角度出发解释了 ATI 环结构的来源, 这种结构来自于周期内电子的干涉, 结果出现间隔一个光子能量的相邻峰结构.

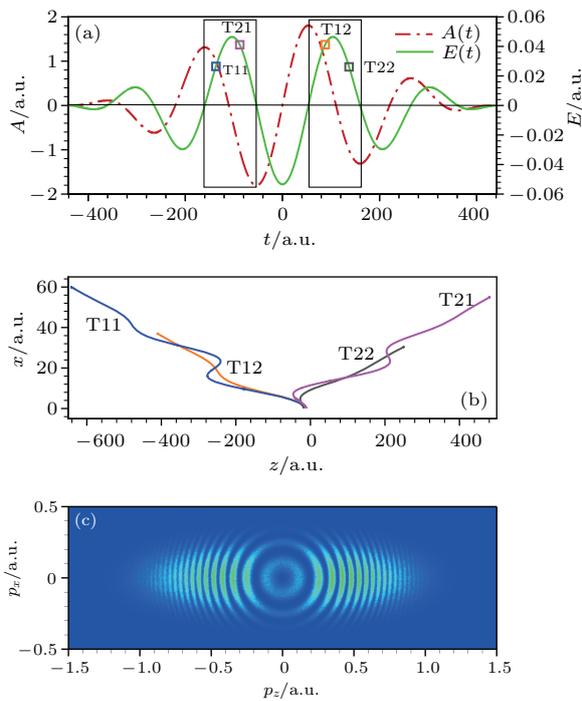


图 4 内容同图 3, 相隔一个周期电离电子的干涉图样, 每个周期内电子被限制在半周期的范围内

Fig. 4. The same as Fig. 3. In this case, the photoelectrons are restricted in a half of each cycle. The interference of inter-cycle electrons is shown.

最后我们考虑库仑势作用. 主要体现在两点: 一是电子运动受到库仑力作用轨迹将有改变, 特别是运动过程中离核较近的电子将可能受到库仑作用而使轨迹发生较大偏转; 二是库仑势对电子轨道的相位积累有贡献. 由于库仑力仅对离核距离

较近的电子作用较大, 对于直接电离电子没有显著影响, 区别主要体现在散射电子, 故我们将电离电子限制在下降沿的四分之一周期处, 见图 5(a). 记录到达某点的电子, 发现有两种前向散射轨道, 见图 5(b) 的 T2 及 T3. 其中 T2 轨道与没有库仑势作用的情况相同, T3 轨道是由于库仑势作用而产生的新的轨道. 从图中可以看到, 两种轨道电子的电离时刻几乎同时, T3 轨道初始的横向动量是一个沿 x 负方向的小量, 返回核时从核下方经过, 过程中受到核向上的作用力从而获得沿 x 正方向的动量. 两种轨道的相位差来源主要是 (24) 式或 (27) 式中的库仑修正项, 干涉条纹呈角向分布的瓣状结构, 见图 5(c). 这种结构对核的作用势敏感 (参看图 1 结果), 故可以作为一种探测母核结构的手段.

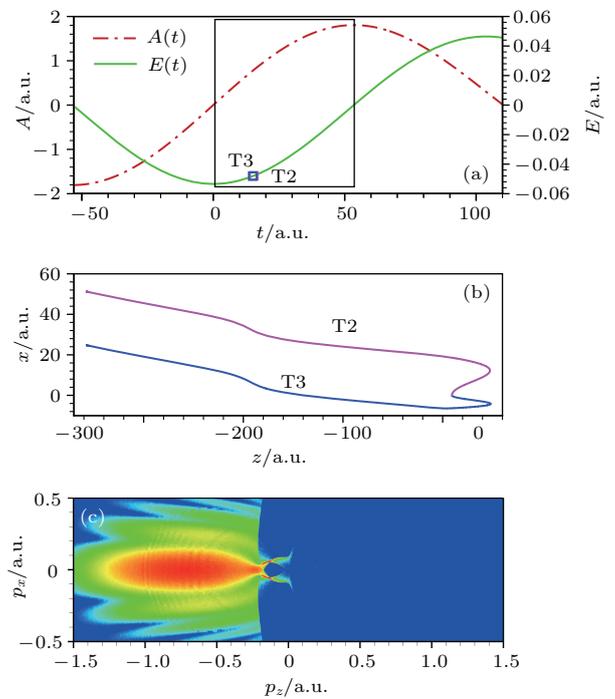


图 5 内容同图 3, 考虑库仑势作用后, 下降沿电离的两种前向散射电子的干涉

Fig. 5. The same as Fig. 3. In this case, the Coulomb effect is considered. Photoelectrons are restricted in the quarter of cycle after the peak of the electrical field. Two kinds of forward scattering electrons get interference.

上面的例子介绍了利用半经典方法研究电子动量谱干涉结构的形成原因, 例子中使用了简单的线偏振光并给出了最主要的三种干涉结构的来源. 在某些激光参数下, 除了上述的几种典型的轨道之外, 还存在许多复杂的散射轨道, 例如文献 [93] 中的多次返回核散射轨道, 和文献 [108,109] 中研究的

横向散射轨道等. 这些轨道和相应的干涉条纹均可以利用半经典方法的优势进行细致研究. 再者, 对于更复杂的光场, 半经典方法同样适用, 文献 [110] 中研究了垂直双色场下波包的干涉, 文献 [111,112] 中用半经典方法给出了双色圆偏光场下的动量谱.

4.2 非绝热效应

上一节我们在绝热条件近似成立的激光参数下进行了干涉结构的研究, 此时两种半经典方法得到的结果基本一样, 于是我们使用了直接的 QTMC 方法进行计算. 如果绝热条件不满足, 两种半经典方法所得到的结果则存在差异, 这种差异我们可以归结为非绝热效应, 因此只要使用两种半经典方法进行对比, 就可以对非绝热效应进行研究. 概括而言, 非绝热效应体现在隧穿概率、初始动量

和隧穿出口位置等方面. 部分文献对 QTMC 方法进行了非绝热修正, 例如文献 [113] 中使用了非绝热条件下的隧穿概率 [114], 在非绝热条件下能得到更佳的结果. 但是该方法并没有对非绝热初始动量进行修正, 考虑初始动量分布的非绝热隧穿率可以参考文献 [115]. 从强场近似出发的半经典方法是一种自然包含非绝热隧穿概率和非绝热初始动量以及隧穿出口的方法 [116,117], 用此方法能够得到较完整的非绝热结果. 非绝热效应研究的意义在于, 现在许多实验在非绝热条件下进行, 最典型的如阿秒钟实验 [118-120], 该实验使用圆偏振光电离, 在圆偏振光下非绝热效应尤其明显. 实验中为了校准光强必须考虑非绝热效应, 为此出现了许多关于圆偏振光下非绝热效应的隧穿出口处动量分布研究 [90,121-124].

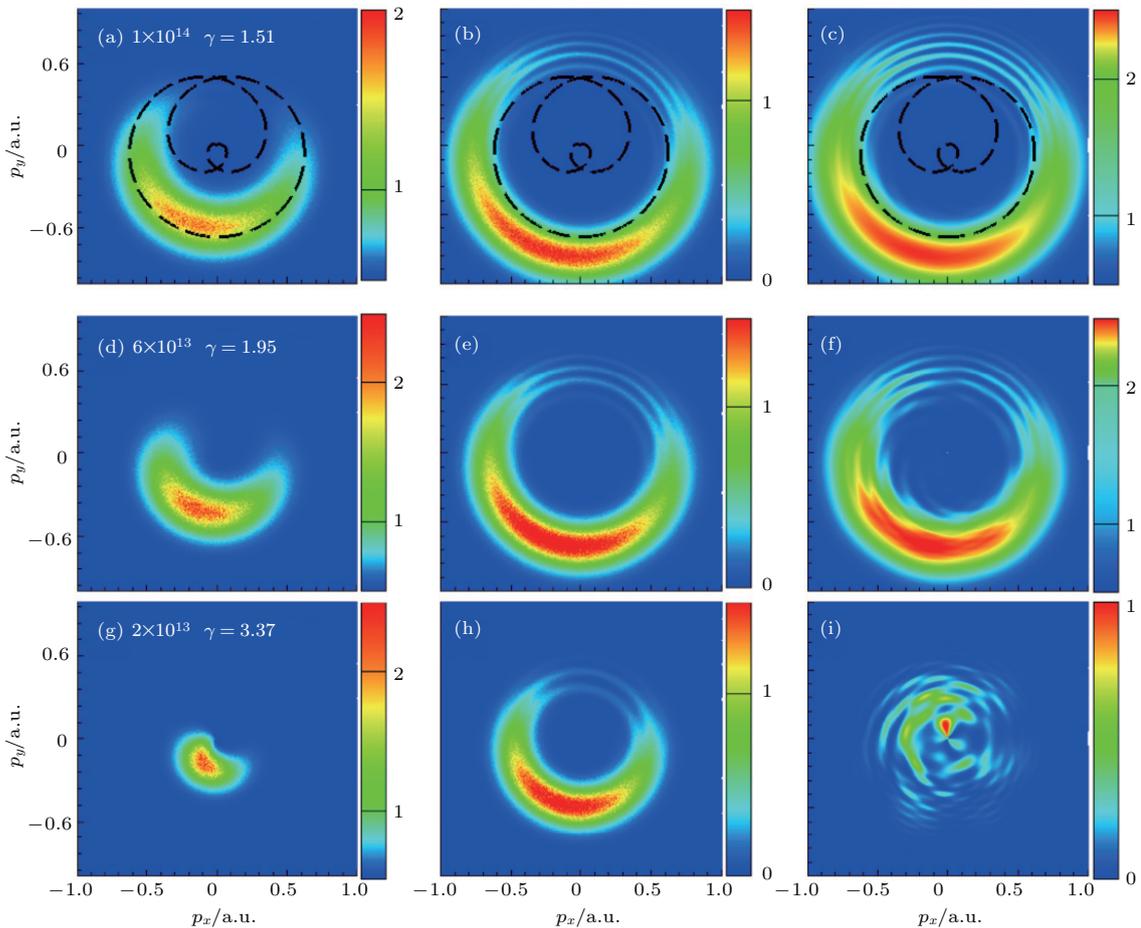


图6 3周期, 800 nm 圆偏振光下氢原子电离动量谱 三行分别在 1×10^{14} , 6×10^{13} , 2×10^{13} W/cm² 三个光强下进行计算. 三列从左到右依次使用 QTMC, CCSFA 和 TDSE 方法; 第一行中的黑色虚线表示激光矢势的负值 [19]

Fig. 6. The 2D photoelectron momentum distributions of hydrogen atom, ionized by a 3-cycle circularly polarized laser pulse at wavelength of 800 nm. The peak intensity of 1×10^{14} , 6×10^{13} , 2×10^{13} W/cm² are used in three line respectively. The results are calculated by QTMC (the left column), the CCSFA (the middle column), and the TDSE method (the right column) respectively. The negative value of laser vector potential is shown as the black dash line in the top line (adapted from Ref. [19]).

绝热也即准静近似认为电子在隧穿过程中电场不变, 隧穿后的电子初始动量分布沿电场方向为零, 垂直于电场方向是以零为中心的高斯分布. 在圆偏振光下, 电子在隧穿出口的初始横向动量分布(垂直于电场方向的动量)不再以零为中心^[125]. 利用两种半经典方法对比可以直接得到初始横向动量^[19]. 图6取自文献^[19], 每一列对应不同的方法, 从左至右依次为QTMC, CCSFA 和 TDSE 的结果; 每一行对应不同的光强, 从上往下依次减小, 激光参数均不满足绝热条件, 即 $\gamma > 1$. 使用非绝热方法 CCSFA 计算的结果和 TDSE 方法能够很好地符合, 然而绝热方法 QTMC 计算得到的动量谱圆环的半径小了许多. 前面提到电子末态动量和电场矢势的关系(22)式, 对于初始动量为零的绝热情况, 末态动量大小就等于电离时刻的电场矢势, 图6第一行的黑色虚线给出了电场矢势. 可以看到绝热情况下的 QTMC 结果动量的确接近电场矢势, 比矢势略小是由于库仑聚焦作用; 而 TDSE 和 CCSFA 结果中的动量大于电场矢势. 直接分析可以知道 CCSFA 与 QTMC 两种方法得到的动量环半径的差值就是电子隧穿出口处的初始横向动量.

上面的例子简单地诠释了利用半经典方法研究非绝热初始动量的思路. 一般对于非一维的光场, 由于电场方向随时间变化, 非绝热效应都会显著. 半经典方法能够用于任意复杂的光场, 文献^[117]中详细研究了双色垂直光场下的非绝热效应, 加深了对非绝热效应的理解.

5 结论与展望

本文重点介绍了强场物理中的半经典方法. 半经典方法有清晰简单的物理图像, 对计算资源消耗少, 已被广泛应用于解释强场中原子和分子领域的各种物理现象.

全文沿着历史发展的脉络, 详细地阐述了目前最主流的两种半经典方法的思路以及具体实现步骤. 以三步模型为出发点, 考虑电子在电场作用下从束缚态隧穿成为自由电子并量化隧穿概率, 然后用经典轨道描述电子在外场下的运动, 最后给电子赋予轨道相位信息从而发展成为 QTMC 方法. 另一方面, 以强场近似为出发点, 通过鞍点方法赋予电子轨道信息, 然后再考虑库仑修正, 最终形成 CCSFA 方法. 两种方法各有优缺点, 结合其本身

特点与具体问题, 介绍了两种方法的应用示例.

本文中方法的介绍和推导是基于简单的类氢原子单电子系统, 是半经典方法的基础. 半经典方法还可以拓展到复杂分子或者多电子系统, 研究多中心分子系统的电子电离动力学过程, 或者电子非序列双电离中的电子关联等. 对于更复杂的系统, 物理图像依然是简单的, 只不过可能涉及多体问题的求解. 在分子和多电子体系, 将会有更加丰富的物理过程等待探索, 因此我们需要继续发展有效的半经典方法来解释更多更复杂的现象.

参考文献

- [1] Göppert-Mayer M 1931 *Ann. Phys.* **9** 273
- [2] Breit G, Wheeler J A 1934 *Phys. Rev.* **46** 1087
- [3] Maiman T H 1960 *Nature* **187** 493
- [4] Brabec T, Krausz F 2000 *Rev. Mod. Phys.* **72** 545
- [5] Voronov G S, Delone N B 1965 *JETP Lett.* **1** 66
- [6] Voronov G S, Delone G A, Delone N B, Kudrevatova O V 1965 *JETP Lett.* **2** 377
- [7] Agostini P, Barjot G, Bonnal J, Mainfray G, Manus C, Morellec J 1968 *IEEE J. Quantum Electron.* **4** 667
- [8] Agostini P, Fabre F, Mainfray G, Petite G, Rahman N K 1979 *Phys. Rev. Lett.* **42** 1127
- [9] Keldysh L V 1964 *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **47** 1945 [Keldysh L V 1965 *Sov. Phys. -JETP* **20** 1307 (Engl. transl.)]
- [10] Faisal F H M 1973 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **6** L89
- [11] Reiss H R 1980 *Phys. Rev. A* **22** 1786
- [12] Perelomov A M, Popov V S, Terent'ev M V 1966 *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **50** 1393 [Perelomov A M, Popov V S, Terent'ev M V 1966 *Sov. Phys. -JETP* **23** 924 (Engl. transl.)]
- [13] Ammosov M V, Delone N B, Krainov V P 1986 *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **91** 2008 [Ammosov M V, Delone N B, Krainov V P 1986 *Sov. Phys. -JETP* **64** 1191 (Engl. transl.)]
- [14] Corkum P B, Burnett N H, Brunel F 1989 *Phys. Rev. Lett.* **62** 1259
- [15] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [16] Li M, Geng J W, Liu H, Deng Y, Wu C, Peng L Y, Gong Q, Liu Y 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 113002
- [17] Yan T M, Popruzhenko S V, Vrakking M J J, Bauer D 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 253002
- [18] Hu B, Liu J, Chen S 1997 *Phys. Lett. A* **236** 533
- [19] Geng J W, Qin L, Li M, Xiong W H, Liu Y, Gong Q, Peng L Y 2014 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **47** 204027
- [20] Mohideen U, Sher M H, Tom H W K, Aumiller G D, Wood O R, Freeman R R, Boker J, Bucksbaum P H 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 509
- [21] Arissian L, Smeenk C, Turner F, Trallero C, Sokolov A V, Villeneuve D M, Staudte A, Corkum P B 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 133002
- [22] Landau L D, Lifshits E M 1963 *Quantum Mechanics* (2nd Ed.) (Moscow: Fizmatlit)

- [23] Smirnov B M, Chibisov M I 1966 *Sov. Phys. JETP* **22** 585
- [24] Popov V S 2004 *Usp. Fiz. Nauk* **174** 921
- [25] Popov V S 2004 *Phys. Usp.* **47** 855
- [26] Hartree D R 1927 *Proc. Camb. Phil. Soc.* **24** 89
- [27] Delone N B, Krainov V P 1991 *J. Opt. Soc. Am. B* **8** 1207
- [28] Delone N B, Krainov V P 1985 *Atoms in Strong Light Fields* (Berlin, New York: Springer-Verlag)
- [29] Krainov V P 1997 *J. Opt. Soc. Am. B* **14** 425
- [30] Chen J, Liu J, Chen S G 2000 *Phys. Rev. A* **61** 033402
- [31] Nubbemeyer T, Gorling K, Saenz A, Eichmann U, Sandner W 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 233001
- [32] Shvetsov-Shilovski N I, Goreslavski S P, Popruzhenko S V, Becker W 2009 *Laser Phys.* **19** 1550
- [33] Shvetsov-Shilovski N I, Dimitrovski D, Madsen L B 2012 *Phys. Rev. A* **85** 023428
- [34] Feynman R P 1948 *Rev. Mod. Phys.* **20** 367
- [35] Milošević D B 2013 *J. Math. Phys.* **54** 042101
- [36] Salieres P, Carré B, Le Déroff L, Grasbon F, Paulus G G, Walther H, Kopold R, Becker W, Milošević D B, Sanpera A, Lewenstein M 2001 *Science* **292** 902
- [37] Shvetsov-Shilovski N I, Lein M, Madsen L B, Räsänen E, Lemell C, Burgdärfer J, Arbó D G, Tökési K 2016 *Phys. Rev. A* **94** 013415
- [38] Popruzhenko S V 2014 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **47** 204001
- [39] Frolov M V, Manakov N L, Silaev A A, Vvedenskii N V 2010 *Phys. Rev. A* **81** 063407
- [40] Frolov M V, Manakov N L, Sarantseva T S 2011 *Phys. Rev. A* **83** 043416
- [41] Frolov M V, Manakov N L, Silaev A A, Vvedenskii N V, Starace A F 2011 *Phys. Rev. A* **83** 021405
- [42] Frolov M V, Knyazeva D V, Manakov N L, Popov A M, Tikhonova O V, Volkova E A, Xu M H, Peng L Y, Pi L W, Starace A F 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 213002
- [43] Frolov M V, Manakov N L, Sarantseva T S, Starace A F 2012 *Phys. Rev. A* **86** 063406
- [44] Frolov M V, Manakov N L, Popov A M, Tikhonova O V, Volkova E A, Silaev A A, Vvedenskii N V, Starace A F 2012 *Phys. Rev. A* **85** 033416
- [45] Frolov M V, Knyazeva D V, Manakov N L, Geng J W, Peng L Y, Starace A F 2014 *Phys. Rev. A* **89** 063419
- [46] Shivaram N, Timmers H, Tong X M, Sandhu A 2011 *Phys. Rev. Lett.* **108** 193002
- [47] Chu S I, Telnov D A 2004 *Phys. Rep.* **390** 1
- [48] Kaushal J, Smirnova O 2013 *Phys. Rev. A* **88** 013412
- [49] Torlina L, Smirnova O 2012 *Phys. Rev. A* **86** 043408
- [50] Barth I, Friedland L, Gat O, Shagalov A G 2011 *Phys. Rev. A* **84** 013837
- [51] Gordon W 1926 *Z. Phys.* **40** 117
- [52] Wolkow D M 1935 *Z. Phys.* **94** 250
- [53] Volkov D M 1937 *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **7** 1286
- [54] Berestetskii V B, Lifshitz E M, Pitaevskii L P 1982 *Quantum Electrodynamics* (2nd Ed.) (Oxford: Pergamon)
- [55] Becker W, Grasbon F, Kopold R, Milošević D B, Paulus G G, Walther H 2002 *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **48** 35
- [56] Bleistein N, Handelsman R A 1986 *Asymptotic Expansions of Integrals* (New York: Dover Publications, Inc.)
- [57] Gribakin G F, Kuchiev M Y 1997 *Phys. Rev. A* **55** 3760
- [58] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, L'Huillier A, Corkum P B 1994 *Phys. Rev. A* **49** 2117
- [59] Figueira De Morrison Faria C, Schomerus H, Becker W 2002 *Phys. Rev. A* **66** 043413
- [60] Milošević D B, Paulus G G, Bauer D, Becker W 2006 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **39** R203
- [61] Kitzler M, Milosevic N, Scrinzi A, Krausz F, Brabec T 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 173904
- [62] Geng J W, Peng L Y, Song S N, Gong Q 2013 *Phys. Rev. A* **88** 053418
- [63] Popruzhenko S V, Mur V D, Popov V S, Bauer D 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 193003
- [64] Popov V S 2005 *Phys. At. Nucl.* **68** 686
- [65] Suárez N, Chacón A, Ciappina M F, Biegert J, Lewenstein M 2015 *Phys. Rev. A* **92** 063421
- [66] Guo L, Han S S, Liu X, Cheng Y, Xu Z Z, Fan J, Chen J, Chen S G, Becker W, Blaga C I, DiChiara A D, Sistrunk E, Agostini P, DiMauro L F 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 013001
- [67] Jain M, Tzoar N 1978 *Phys. Rev. A* **18** 538
- [68] Cavalieri P, Ferrante G, Leone C 1980 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **13** 4495
- [69] Dorr M, Shakeshaft R 1987 *Phys. Rev. A* **36** 421
- [70] Shakeshaft R, Potvliege 1987 *Phys. Rev. A* **36** 5478
- [71] Basile S, Trombetta F, Ferrante G 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 2435
- [72] Jaron A, Kaminski J Z, Ehlötzky F 1999 *Opt. Commun.* **163** 115
- [73] Paulus G G, Grasbon F, Dreischuh A, Walther H, Kopold R, Becker W 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 3791
- [74] Arbó D G, Miraglia J E, Gravielle M S, Schiessl K, Persson E, Burgdörfer J 2008 *Phys. Rev. A* **77** 013401
- [75] Kornev A S, Zon B A 2002 *Laser Phys.* **12** 795
- [76] Kornev A S, Zon B A 2002 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **35** 2451
- [77] Popruzhenko S V, Paulus G G, Bauer D 2008 *Phys. Rev. A* **77** 053409
- [78] Popruzhenko S V, Bauer D 2008 *J. Mod. Opt.* **55** 2573
- [79] Yan T M, Bauer D 2012 *Phys. Rev. A* **86** 053403
- [80] Xiao X R, Wang M X, Xiong W H, Peng L Y 2016 *Phys. Rev. E* (in press)
- [81] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, Reider G A, Milosevic N, Brabec T, Corkum P, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2001 *Nature* **414** 509
- [82] Paul P M, Toma E S, Breger P, Mullot G, Auge F, Balcou P, Muller H G, Agostini P 2001 *Science* **292** 1689
- [83] Peng L Y, Jiang W C, Geng J W, Xiong W H, Gong Q 2015 *Phys. Rep.* **575** 1
- [84] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [85] Gazibegović-Busuladžić A, Milošević D B, Becker W 2007 *Opt. Commun.* **275** 116
- [86] Korneev P A, Popruzhenko S V, Goreslavski S P, Becker W, Paulus G G, Fetić B, Milošević D B 2012 *New J. Phys.* **14** 055019

- [87] Lohr A, Kleber M, Kopold R, Becker W 1997 *Phys. Rev. A* **55** R4003
- [88] Goreslavski S P, Paulus G G, Popruzhenko S V, Shvetsov-Shilovski N I 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 233002
- [89] Chelkowski S, Bandrauk A D 2005 *Phys. Rev. A* **71** 053815
- [90] Li M, Liu Y, Liu H, Ning Q, Fu L, Liu J, Deng Y, Wu C, Peng L, Gong Q 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 023006
- [91] Liu H, Liu Y, Fu L, Xin G, Ye D, Liu J, He X T, Yang Y, Liu X, Deng Y, Wu C, Gong Q 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 093001
- [92] Li M, Qin L, Wu C, Peng L, Gong Q, Liu Y 2014 *Phys. Rev. A* **89** 013422
- [93] Huismans Y, Rouzee A, Gijsbertsen A, Jungmann J H, Smolkowska A S, Logman P S W M, Lepine F, Cauchy C, Zamith S, Marchenko T, Bakker J M, Berden G, Redlich B, van der Meer A F G, Muller H G, Vermin W, Schafer K J, Spanner M, Ivanov M Y, Smirnova O, Bauer D, Popruzhenko S V, Vrakking M J J 2011 *Science* **331** 61
- [94] Huismans Y, Gijsbertsen A, Smolkowska A S, Jungmann J H, Rouzée A, Logman P S W M, Lépine F, Cauchy C, Zamith S, Marchenko T, Bakker J M, Berden G, Redlich B, van der Meer A F G, Ivanov M Y, Yan T M, Bauer D, Smirnova O, Vrakking M J J 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 013002
- [95] Bian X B, Huismans Y, Smirnova O, Yuan K J, Vrakking M J J, Bandrauk A D 2011 *Phys. Rev. A* **84** 043420
- [96] Bian X B, Bandrauk A D 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 263003
- [97] Bian X B, Bandrauk A D 2014 *Phys. Rev. A* **89** 033423
- [98] Li M, Sun X, Xie X, Shao Y, Deng Y, Wu C, Gong Q, Liu Y 2015 *Sci. Rep.* **5** 8519
- [99] Chen Z, Morishita T, Le A T, Wickenhauser M, Tong X M, Lin C D 2006 *Phys. Rev. A* **74** 053405
- [100] Arbó D G, Yoshida S, Persson E, Dimitriou K I, Burgdörfer J 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 143003
- [101] Arbó D G, Dimitriou K I, Persson E, Burgdörfer J 2008 *Phys. Rev. A* **78** 013406
- [102] Arbó D G, Ishikawa K L, Schiessl K, Persson E, Burgdörfer J 2010 *Phys. Rev. A* **81** 021403
- [103] Blaga C I, Catoire F, Colosimo P, Paulus G G, Muller H G, Agostini P, DiMauro L F 2009 *Nat. Phys.* **5** 335
- [104] Faisal F H M 2009 *Nat. Phys.* **5** 319
- [105] Quan W, Lin Z, Wu M, Kang H, Liu H, Liu X, Chen J, Liu J, He X T, Chen S G, Xiong H, Guo L, Xu H, Fu Y, Cheng Y, Xu Z Z 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 093001
- [106] Liu C, Hatsagortsyan K Z 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 113003
- [107] Wu C Y, Yang Y D, Liu Y Q, Gong Q H, Wu M, Liu X, Hao X L, Li W D, He X T, Chen J 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 043001
- [108] Song X, Liu P, Lin C, Sheng Z, Yu X, Yang W, Hu S, Chen J, Xu S, Chen Y, Quan W, Liu X 2016 *arxiv* 1602.05668v1
- [109] Möller M, Meyer F, Sayler A M, Paulus G G, Kling M F, Schmidt B E, Becker W, Milošević D B 2014 *Phys. Rev. A* **90** 023412
- [110] Li M, Geng J W, Liu M M, Zheng X, Peng L Y, Gong Q, Liu Y 2015 *Phys. Rev. A* **92** 013416
- [111] Mancuso C A, Hickstein D D, Grychtol P, Knut R, Kfir O, Tong X M, Dollar F, Zusin D, Gopalakrishnan M, Gentry C, Turgut E, Ellis J L, Chen M, Fleischer A, Cohen O, Kapteyn H C, Murnane M M 2015 *Phys. Rev. A* **91** 031402
- [112] Mancuso C A, Hickstein D D, Dorney K M, Ellis J L, Hasović E, Knut R, Grychtol P, Gentry C, Gopalakrishnan M, Zusin D, Dollar F J, Tong X M, Milošević D B, Becker W, Kapteyn H C, Murnane M M 2016 *Phys. Rev. A* **93** 053406
- [113] Song X, Lin C, Sheng Z, Liu P, Chen Z, Yang W, Hu S, Lin C D, Chen J 2016 *Sci. Rep.* **6** 28392
- [114] Yudin G L, Ivanov M Y 2001 *Phys. Rev. A* **64** 013409
- [115] Bondar D I 2008 *Phys. Rev. A* **78** 015405
- [116] Li M, Geng J W, Han M, Liu M M, Peng L Y, Gong Q, Liu Y 2016 *Phys. Rev. A* **93** 013402
- [117] Geng J W, Xiong W H, Xiao X R, Peng L Y, Gong Q 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 193001
- [118] Eckle P, Smolarski M, Schlup P, Biegert J, Staudte A, Schöffler M, Muller H G, Dörner R, Keller U 2008 *Nat. Phys.* **4** 565
- [119] Eckle P, Pfeiffer A N, Cirelli C, Staudte A, Dörner R, Muller H G, Buttiker M, Keller U 2008 *Science* **322** 1525
- [120] Pfeiffer A N, Cirelli C, Smolarski M, Dimitrovski D, Abu-samha M, Madsen L B, Keller U 2011 *Nat. Phys.* **8** 76
- [121] Pfeiffer A N, Cirelli C, Landsman A S, Smolarski M, Dimitrovski D, Madsen L B, Keller U 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 083002
- [122] Boge R, Cirelli C, Landsman A S, Heuser S, Ludwig A, Maurer J, Weger M, Gallmann L, Keller U 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 103003
- [123] Hofmann C, Landsman A S, Zielinski A, Cirelli C, Zimmermann T, Scrinzi A, Keller U 2014 *Phys. Rev. A* **90** 043406
- [124] Sun X, Li M, Yu J, Deng Y, Gong Q, Liu Y 2014 *Phys. Rev. A* **89** 045402
- [125] Mur V D, Popruzhenko S V, Popov V S 2001 *J. Exp. Theor. Phys.* **92** 777

SPECIAL TOPIC — Atomic and molecular processes driven by ultrafast intense laser fields

Semiclassical methods for strong field ionization of atoms*

Xiao Xiang-Ru¹⁾ Wang Mu-Xue¹⁾ Li Min²⁾ Geng Ji-Wei¹⁾
Liu Yun Quan¹⁾³⁾ Peng Liang-You^{1)3)†}

1) (State Key Laboratory for Mesoscopic Physics and School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China)

2) (Wuhan National Laboratory for Optoelectronics and School of Physics, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China)

3) (Collaborative Innovation Center of Quantum Matter, Beijing 100871, China)

(Received 9 September 2016; revised manuscript received 25 October 2016)

Abstract

As the advances of laser technology, more and more nonlinear phenomena are observed in the atoms and molecules driven by strong laser pulses. Systematic investigations on these findings, such as above threshold ionization and high-order harmonic generation, will lead us to understanding the mechanisms in the microscopic world. The most exact way to simulate the experimental measurements is to solve the time-dependent Schrödinger equation (TDSE) numerically, in which the system is described by the wave function and thus one cannot have an intuitive insight into the underlying process. Therefore, several semiclassical methods have been developed to understand the strong field ionization. In the classical point of view, the electrons tunnel out when the strong laser field suppresses the Coulomb potential. Then the electrons are driven by the laser electric field according to the Newtonian equations. Semiclassical methods take into account the tunnelling of the electron, the classical orbit of the electron, and the action as the phase of trajectory, which have successfully explained main structures in the ionization spectrum. Two of the most popular semiclassical methods are the quantum trajectory Monte Carlo method and the Coulomb-corrected strong field approximation method. In the present review, we will introduce these basic methods and show how they have been developed step by step, covering the most relevant and important works in the strong field physics. Finally we give two example of applications to show how these methods work. With the advantage of the classical picture, we can identify different kind of structures in the 2D photoelectron momentum distributions and tell how the structures are formed. Nonadiabatic effects can be studied by comparing the results of the two methods, together with accurate simulation from the numerical solution of TDSE. The current semiclassical methods can be further developed into advanced ones, which can be used in more complex molecular systems or multi-electron systems, and be widely used in the study of dynamics of molecule and atoms in strong laser fields.

Keywords: strong laser field, ionization of atoms, semiclassical

PACS: 02.70.-c, 31.15.xg

DOI: 10.7498/aps.65.220203

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11574010, 11322437) and the National Basic Research Program of China (Grant Nos. 2013CB922402, 2013CB922403).

† Corresponding author. E-mail: liangyou.peng@pku.edu.cn

原子多光子激发对电离阈值附近谐波发射的影响

张岷玉 李庆仪 郭福明 杨玉军

The influences of multiphoton excitation on near-threshold Harmonic emission in atoms

Zhang Di-Yu Li Qing-Yi Guo Fu-Ming Yang Yu-Jun

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 223202 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.223202

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.223202>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I22>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

非均匀激光场中氢分子离子高次谐波的增强

Enhancement of high-order harmonic generation from H_2^+ in near plasmon-enhanced laser field

物理学报.2016, 65(12): 123201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.123201>

调制激光场中 Rydberg 原子的电磁感应透明

Electromagnetically induced transparency of Rydberg atoms in modulated laser fields

物理学报.2016, 65(10): 103201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.103201>

红外激光场中共振结构原子对极紫外光脉冲的压缩效应

Compression of extreme ultraviolet pulse for atom with resonant structure exposed to an infrared laser field

物理学报.2016, 65(10): 103202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.103202>

氢负离子在少周期激光场中解离时的干涉效应

Interference effect in the photodetachment from H^- ion in a few-cycle laser pulse

物理学报.2016, 65(8): 083202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.083202>

激光驱动晶体发射高次谐波的特性研究

Study of high-order harmonic generation in crystals exposed to laser fields

物理学报.2016, 65(6): 063201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.063201>

专题: 超快强激光驱动原子分子过程

原子多光子激发对电离阈值附近谐波发射的影响*

张颀玉¹⁾²⁾ 李庆仪¹⁾²⁾ 郭福明¹⁾²⁾ 杨玉军^{1)2)†}

1)(吉林大学原子与分子物理研究所, 长春 130012)

2)(吉林省应用原子与分子光谱重点实验室, 长春 130012)

(2016年9月1日收到; 2016年11月2日收到修改稿)

基于动量空间和坐标空间含时伪谱方法, 通过求解氢原子在强激光作用下的含时薛定谔方程, 系统地研究了原子在强激光作用下电离阈值附近的高次谐波发射随着激光电场强度的变化关系. 研究发现, 随着入射激光强度的增加, 九次谐波发射效率呈现周期性振荡结构. 结合原子的激发几率计算, 发现电离阈值附近的谐波增强与高激发态的布居存在相互竞争关系.

关键词: 高次谐波发射, 电离阈值, 多光子激发

PACS: 32.80.Rm, 42.50.Hz

DOI: 10.7498/aps.65.223202

1 引言

强激光和原子、分子相互作用, 可以观测到入射频率整数倍的相干高次谐波发射^[1-3]. 高次谐波发射的强度随着谐波能量的增加首先呈现快速的下降, 之后是一个强度下降很慢的平台结构, 在能量为 $I_p + 3.17U_p$ 后快速下降^[4]. 这里的 I_p 是原子的电离势, $U_p = E_0^2/(4\omega^2)$ 是自由电子在强激光电场中运动而获得的平均动能, E_0 是激光电场的峰值强度, ω 是入射激光的频率. 谐波发射谱在较高能量具有较高的发射效率, 因此可以利用谐波产生极紫外乃至 X 射线波段的相干光源, 或是产生阿秒尺度的超短光脉冲^[5-8]. 阿秒脉冲是探测和控制原子分子体系中电子运动的重要手段^[9-11]. 高次谐波发射的高能部分可以利用三步模型解释: 处于束缚态的电子首先隧穿由激光电场和原子势共同作用形成的势垒发生电离, 电离电子有部分几率在振荡的强激光电场作用下返回到母体离子, 这部分高能的电子跃迁返回到体系的基态发射出高能的光子^[12]. 而对于低次谐波, 尤其是对于谐

波能量接近电离阈值的谐波发射, 原子势将起很大的作用, 而三步模型没有包含原子势的效应, 无法对这部分谐波产生的机制给出清晰的解释. 因此, 对于阈值附近的谐波发射研究逐渐成为人们关注的热点^[13-19]. 人们关注这部分谐波发射的重要原因之一是其可以被用来产生极紫外频域的光梳^[17]. 此外, 影响谐波发射广泛应用的一个重要因素是其转化效率较低, 而阈值附近的谐波发射转化效率随着压力的增加可以达到很高的强度 (10^{13} W/cm²)^[16].

理论上, Xiong等^[14]研究了阈值以下谐波发射机制, 发现这部分谐波的产生机制除了量子路径干涉外, 库仑势也起了很大的作用. He等^[15]分析了不同激光强度区域的阈值以下谐波发射, 发现入射激光强度 10^{13} W/cm² 附近随着波长的变化存在周期结构变化, 利用谐波发射的量子路径分析和时间频率行为研究, 发现这些结构产生的根源是两条量子路径的干涉. Li等^[13]利用同步压缩变化方案, 研究了中红外激光作用下的 Cs 原子的阈值以下谐波发射, 分析了多光子和重散射轨迹对这部分谐波发射的影响. 在研究中, 人们发现原子势函数对该

* 国家重点基础研究计划(批准号: 2013CB922200)、国家自然科学基金(批准号: 11274141, 11264001, 11304116, 11534004, 11627807)和吉林省自然科学基金(批准号: 20140101168JC)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yangyj@jlu.edu.cn

阈值附近谐波发射起了重要的作用^[19]. 原子在强激光作用下, 基态电子不但会发生电离而且也会被激发, 这些电子的激发过程会对谐波的产生产生影响.

本文利用含时伪谱方案数值求解原子的含时薛定谔方程(TDSE), 利用得到的波函数信息, 系统地研究了高次谐波发射随着入射激光强度的变化. 同时基于动量空间求解 TDSE, 准确地计算体系激发态布居^[20]. 研究发现, 阈值附近的九次谐波发射强度随着激光强度的增加呈现出振荡的结构, 谐波强度的改变和较高束缚态的布居呈现同步变化.

2 理论方法

为了理论研究原子的高次谐波发射过程, 需要数值求解原子在强激光作用下的 TDSE. 在长度规范和偶极近似条件下, 入射激光为线性偏振沿着 z 方向, 该方程可以表示为(如无特殊说明, 本文均采用原子单位):

$$i \frac{\partial \psi(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = \hat{H} \psi(\mathbf{r}, t) = [\hat{H}_0 + \hat{V}] \psi(\mathbf{r}, t), \quad (1)$$

其中 \hat{H}_0 为无激光场作用下原子体系的哈密顿, $\psi(\mathbf{r}, t)$ 为原子波函数

$$\hat{H}_0 = -\frac{1}{2} \frac{d^2}{dr^2} + \frac{\hat{L}^2}{2r^2} - \frac{1}{r}, \quad (2)$$

\hat{V} 是激光与原子相互作用

$$\hat{V} = -\mathbf{E}(t) \cdot \mathbf{r}, \quad (3)$$

这里的 $\mathbf{E}(t)$ 是激光的电场, 本文选择的激光电场的矢势包络形式为 \sin^2 . 对于方程(1), 我们采用含时伪谱方案求解^[21]. 该方法不同于通常的分拆算符方案在坐标空间和动量空间传播, 而是在坐标空间和能量空间传播波函数. 得到准确的体系本征态是保障计算结果准确的关键. 该方法将坐标空间映射到一个有限的空间, 使得在原子核附近有足够多的网格点. 该方法利用很少的网格点就可以得到很准确的计算结果. 利用计算得到的含时波函数, 可以计算体系加速度形式的跃迁矩阵元 $a(t)$:

$$a(t) = \langle \psi(\mathbf{r}, t) | -\frac{z}{r^3} + Ff(t) | \psi(\mathbf{r}, t) \rangle. \quad (4)$$

根据含时加速偶极矩, 可以计算高次谐波发射谱 $P(\omega)$:

$$P(\omega) = \left| \frac{1}{\sqrt{2\pi\omega^2(t_f - t_i)}} \int_{t_i}^{t_f} a(t) \exp(i\omega t) dt \right|^2. \quad (5)$$

为了保障结果的准确性, 对 TDSE 方程同时基于坐标空间和动量空间求解^[22-24]. 对于坐标空间的波函数利用傅里叶变换, 我们可以得到动量空间的波函数. 动量空间的 TDSE 可以写为

$$i \frac{\partial \Phi(\mathbf{k}, t)}{\partial t} = \frac{\mathbf{k}^2}{2} \Phi(\mathbf{k}, t) + \frac{1}{c} \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{k} \Phi(\mathbf{k}, t) + \int V(\mathbf{k}, \mathbf{k}') \Phi(\mathbf{k}', t) d\mathbf{k}', \quad (6)$$

其中 $V(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$ 是动量空间的库仑势

$$V(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = \frac{1}{2(\pi)^3} \int U(\mathbf{r}) \exp[i(\mathbf{k}' - \mathbf{k}) \cdot \mathbf{r}] d\mathbf{r}. \quad (7)$$

对于类氢体系, 动量空间库仑势可以写为^[25]

$$V(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = -\frac{Z}{2\pi^2} \frac{1}{|\mathbf{k} - \mathbf{k}'|^2}. \quad (8)$$

利用 Lange 提出的方案可以消除势函数中的奇点^[26], 给出准确的结果. 利用含时伪谱方案, 可以对动量空间的 TDSE 进行求解. 在求解过程中, 同样首先计算动量空间无场条件下体系的本征函数, 之后在动量空间和能量空间演化体系的波函数. 对于本征值的计算, 采用广义伪谱方案, 在动量零点附近有足够多的格点分布, 因此利用一定数目的格点就可以包含足够多的束缚本征态, 进而可以方便地计算较高激发态的布居. 而在坐标空间下, 为了包含足够多的束缚态, 需要选择非常大的计算空间、非常多的计算资源. 在激光脉冲结束后, 将体系的本征束缚波函数向含时波函数进行投影, 就可以得到束缚态在强激光作用下的布居 p_i :

$$p_i = |\langle \varphi_i(\mathbf{k}) | \psi(\mathbf{k}, t_{\text{final}}) \rangle|^2. \quad (9)$$

3 结果与讨论

在计算得到体系的含时波函数后, 利用波函数信息可以计算体系在强激光作用下的高次谐波发射谱. 首先计算了激光脉冲持续时间为 20 个光学周期、入射激光强度分别为 38, 48 和 56 TW 的激光脉冲辐照下原子的谐波发射谱, 如图 1 所示. 从图 1 可以看出, 对于较高次谐波发射(大于十五次), 随着入射激光强度的增加, 谐波的强度持续快速增加. 而对于阈值附近的谐波发射呈现出不同的行为, 如九次谐波发射. 随着激光强度的增加, 其谐波强度呈现出先增加再下降的行为. 对于较低次谐波发射, 随着激光强度的增加, 其谐波强度振幅增加不多.

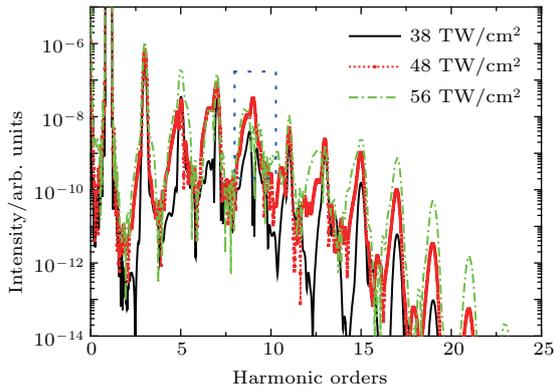


图1 强度为 38 TW (黑色实线), 48 TW (红色点线) 和 56 TW (绿色点划线) 的高次谐波发射谱

Fig. 1. The harmonic emission spectra of 38 TW (solid black line), 48 TW (red dotted line) and 56 TW (green dotted line).

为了得到阈值附近的谐波的变化规律, 我们大幅度地改变入射激光的强度从 1 到 100 TW, 其谐波发射强度随着入射激光强度的改变如图 2 所示. 从图中可以看出, 对于能量较低的三次谐波, 随着入射激光强度 I 的增加, 其强度逐渐增加. 而对于其他次谐波发射, 其强度分布均可以观察到振荡结构. 在图中除了可以看到清晰的谐波发射峰值外, 在两次谐波之间还可以观察到清晰的其他频率的光辐射. 例如在强度较弱的条件下 (10^{12} W/cm²), 光子能量在 $6.5\omega_0$ 附近可以观察到较强的光发射, 这对应于原子体系束缚态能级之间的跃迁. 对于九次谐波发射, 从图中可以看出除了在图 1 给出的在 38 TW 入射激光强度下谐波减小外, 在强度为 20 TW 和 60 TW 附近也可以观察到清晰的强度减小现象, 如图 2 中黑色圈标注区域所示.

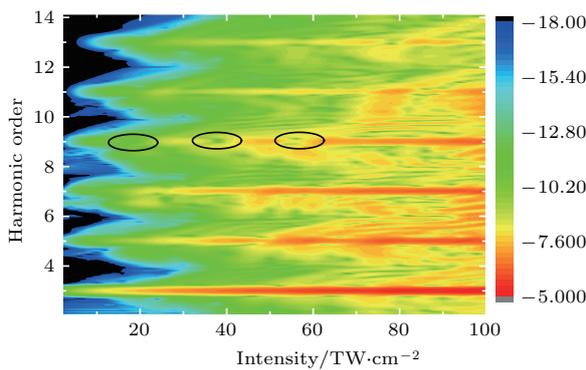


图2 高次谐波发射强度随着入射激光强度的变化

Fig. 2. The change of intensity of the high harmonic emission with the changes of the incident laser intensity.

为了详细地分析谐波发射随着入射激光的变化, 我们选择三、五、七、九、十一和十三次谐波, 观察其强度随着入射光强度改变, 如图 3 (b) 所示. 从

图中可以看到, 对于三次谐波, 随着激光强度的增加, 其发射强度呈现指数增加. 这一趋势一直从多光子区域延续到隧穿区域. 为了便于分析, 图 3 (a) 给出了激光强度对应的 Keldysh 参数 γ 值. 而随着谐波次数的增加, 这种指数增加的行为只能在场强较低条件下才保持, 例如对于十一次谐波发射, 当 $\gamma > 3$ 的条件下才会保持指数增加, 之后逐渐饱和并达到另一个指数关系. 这部分谐波强度的增加和原子的电离有关, 当光强增加到一定程度后, 体系的电离逐渐过渡到隧穿过程, 在目前计算的激光强度范围内, 基态的布居并没完全被耗尽. 谐波发射是一个受激过程, 因此在这个条件下的强度变化决定于原子电离的概率, 电离几率正比于激光电场的 e 指数次幂, 因此其谐波强度随着入射激光的增加而呈现指数增加. 与三次谐波和高次谐波不同的是, 更加接近电离阈值的七次和九次谐波, 在低场强的条件下就不是单调的增加过程, 而是随着光强增加呈现振荡行为. 对于七次谐波振幅较小. 而对于九次谐波发射, 存在明显振荡, 在强度分别为 18 TW, 38 TW 和 57 TW 时存在强度极小值. 由于七次谐波和九次谐波发生在电离阈值附近, 因此可以推断其变化行为与原子的束缚态布居有关. 本文研究的体系是氢原子, 其第一激发态的能量为 -0.125 , 基态与第一激发态之间的能差接近于七次谐波. 而九次谐波接近于电离阈值, 其对应的能量位置存在非常多的较高本征激发态. 原子在激光电场作用下除了会发生电离外, 激发也是非常重要的过程. 如果这些激发本征态存在较大的布居, 这些电子不再跃迁到体系的基态, 体系的谐波发射则会受到影响.

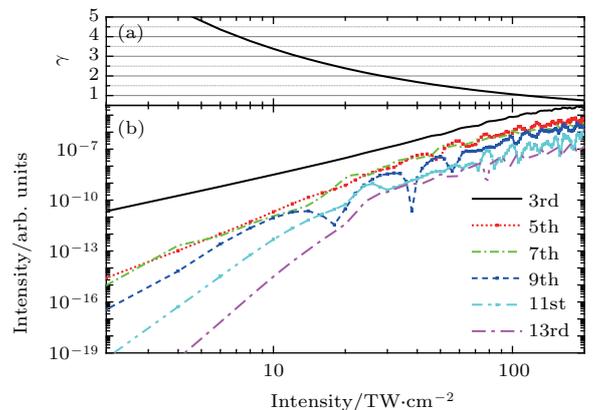


图3 (a) Keldysh 参数 γ 值和 (b) 谐波发射谱随着入射激光强度的变化

Fig. 3. The change of (a) the value of the Keldysh parameter γ and (b) the harmonic emission with the changes in the incident laser intensity.

为了分析束缚态布居是否对谐波产生影响, 我们计算了激光脉冲结束后体系的束缚态布居随着入射激光强度的改变, 如图4所示. 在图中同时给出了总的激发态的布居随着入射光强的变化行为. 从图中可以看出, 随着入射激光强度的增加, 体系总的激发态布居逐渐加大, 且呈现周期改变的规律. 如对于20 TW之前, 激发态的布居随着光强的变化呈指数增加. 当强度达到20 TW 呈现出一个局域峰值, 之后随着场强的增加, 束缚态布居呈现小的下降或是维持不变, 之后强度又迅速增加然后再出现局域峰值, 呈现出周期性的规律. 对于较低激发态的布居, 如 $n = 2$ 的本征态, 随着激光强度的增加, 也逐渐增加且存在周期性结构. 但是其结构出现的位置和全部的激发并不完全同步. 同时需要注意, 在整体的束缚态布居中, 较低的束缚态布居 ($n < 5$) 并不占有重要的比重. 随着入射激光电场强度的增加, 不同束缚态布居占总的束缚态布居的比例也在发生变化. 例如对 $n = 2$ 本征态, 在20 TW附近, 其布居几乎和整体的激发态布居接近, 随着入射光强度的增加, 其布居远小于总的激发态布居. 我们同时注意到, 在这个光强附近, 基态和 $n = 2$ 之间跃迁产生的频率在6.5倍基频频率的位置光辐射具有较高的强度, 如图2所示. 对于较高的束缚态布居, 如 $n = 7$, 其布居随着入射激光强度的变化与总的激发态布居随着入射激光强度变化行为一致. 需要注意的是, 束缚态布居增加到峰值附近对应的场强刚好对应九次谐波发射对应的强度减弱的区域. 根据我们之前的研究^[20], 较高能量束缚态布居的增加原因和通道闭合相关. 而对于近阈值附近的谐波发射而言这一效应会影响其发射效率. 低能的电离电子有机会返回母体离子发射谐波也有可能布居在较高的激发态, 二者存在竞争关系. 当较多电子束缚于较高激发态时, 对应的谐波效率会降低, 而较高的束缚态布居较小时, 谐波的效率会增加.

此外, 本文还研究了谐波发射随着入射激光强度的变化, 如图5所示. 在图中我们计算了激光脉冲持续时间分别为5, 10和20个光学周期的条件下, 三次谐波和九次谐波随着入射激光强度的改变. 从图中可以看出, 随着入射激光强度的增加, 不同激光脉冲宽度下, 三次谐波的变化较小, 都是指数增加. 对于九次谐波, 10和20个光学周期的情况结果很接近, 而对于5个周期的结果则有较大的变化. 九次谐波整体的效率随着光强的变化基本一

致, 而对于出现峰值的位置则存在差别. 对于超短脉冲, 其频率在中心频率附近有较大的带宽, 因此其他频率会影响通道闭合效应.

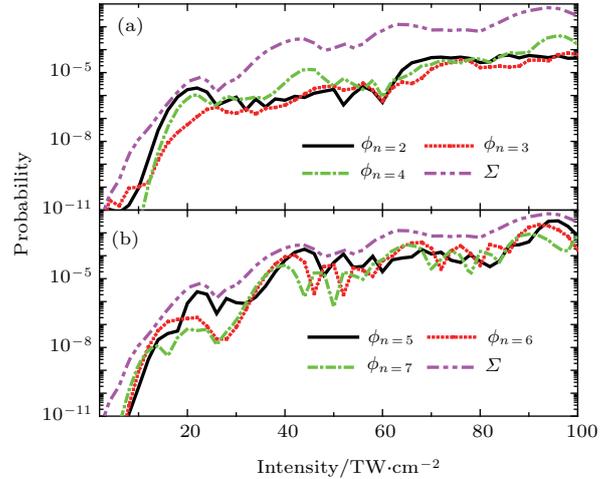


图4 激光脉冲结束后 (a) 较低激发态 ($n = 2-4$) 和 (b) 稍高激发态 ($n = 5-7$) 的布居随着入射激光强度的变化
Fig. 4. At the end of the laser pulse, (a) the population of the lower excited states ($n = 2-4$) and (b) the higher excited states ($n = 5-7$) change with the incident laser intensity.

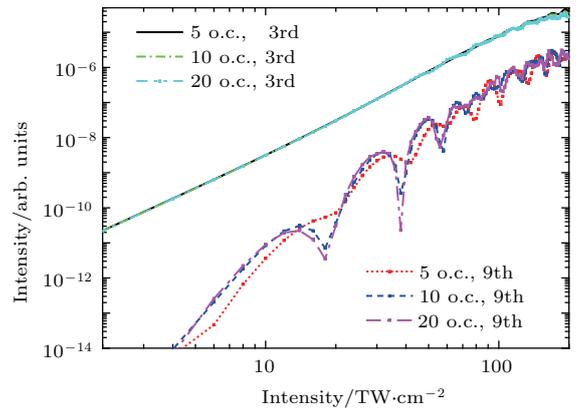


图5 脉宽分别为5, 10和20个光学周期辐照下原子的三次谐波和九次谐波强度随着入射激光强度的变化
Fig. 5. The intensity changes of the third harmonic and the ninth harmonic of the atoms irradiated by 5, 10 and 20 optical pulse with the incident laser intensity respectively.

4 结 论

本文通过数值求解含时薛定谔方程, 系统地研究了强激光作用下的阈值附近的九次谐波发射和体系的激发概率随着入射激光强度的变化. 研究发现, 该次谐波效率随着入射激光强度的增加出现振荡结构. 而对应于相应的体系的总的激发概率也呈现出振荡的规律. 在一定场强范围内, 体系的激发

态布居的增强对应着谐波发射效率的降低,二者存在清晰的竞争关系. 因此,可以在选定波长的条件下,通过优化入射激光的强度实现阈值附近谐波的高效率发射.

感谢吉林大学超算中心的计算支持.

参考文献

- [1] Li X F, L' Huillier A, Ferry M, Lompre L A, Mainfray 1989 *Phys. Rev. A* **39** 5751
- [2] L' Huillier A, Lompre L A, Mainfray G, Manus C 1992 *Adv. At. Mol. Opt. Phys. Suppl* **1** 139
- [3] Yang Y J, Chen G, Chen J G, Zhu Q R 2004 *Chin. Phys. Lett.* **21** 652
- [4] Kohler M C, Pfeifer T, Hatsagortsyan K Z, Keitel C H 2012 *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **61** 159
- [5] Paul P M, Toma E S, Breger P 2001 *Science* **292** 1689
- [6] Meckel M, Comtois D, Zeidler D, Staudte A, Pavicic D 2008 *Science* **320** 1478
- [7] Wang J, Chen G, Guo F M, Li S Y, Chen J G, Yang Y J 2013 *Chin. Phys. B* **22** 033203
- [8] Blaga C I, Xu J L, Dichiara A D, Sistrunk E, Zhang K, Agostini P, Miller T A, DiMauro L F, Lin C D 2012 *Nature* **483** 194
- [9] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [10] Wei S S, Li S Y, Guo F M, Yang Y J, Wang B B 2013 *Phys. Rev. A* **87** 063418
- [11] Corkum P B, Krausz F 2007 *Nat. Phys.* **3** 381
- [12] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [13] Li P C, Sheu Y L, Laughlin C, Chu S I 2015 *Nat. Commun.* **6** 7178
- [14] Xiong W H, Geng J W, Tang J Y, Peng L Y, Gong Q H 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 233001
- [15] He L X, Lan P F, Zhai C Y, Li Y, Wang Z, Zhang Q B, Lu P X 2015 *Phys. Rev. A* **91** 023428
- [16] Chini M, Wang X W, Cheng Y, Wang H, Wu Y, Cunningham E, Li P C, Haslar J, Telnov D A, Chu S I, Chang Z H 2014 *Nat. Photon.* **8** 437
- [17] Yost D C, Schibli T R, Ye J, Tate J L, Hostetter J, Gaarde M B, Schafer K J 2009 *Nat. Phys.* **5** 815
- [18] Brizuela F, Heyl C M, Rudawski P, Kroon D, Rading L, Dahlstrom J M, Maurisson J, Johnsson P, Arnold C L, L' Huillier A 2013 *Sci. Rep.* **3** 1410
- [19] Shafir D, Fabre B, Higuete J, Soifer H, Dagan M, Descamps D, Mevel E, Petit S, Werner H J, Pons B, Dudovich N, Mairesse Y 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 203001
- [20] Tian Y Y, Wang C C, Li S Y, Guo F M, Ding D J, Roeterdink W G, Chen J G, Zeng S L, Liu X S, Yang Y J 2015 *Chin. Phys. B* **24** 043202
- [21] Tong X M, Chu S I 1997 *Chem. Phys.* **217** 119
- [22] Zhou Z Y, Chu S I 2011 *Phys. Rev. A* **83** 013405
- [23] Tian Y Y, Li S Y, Wei S S, Guo F M, Zeng S L, Chen J G, Yang Y J 2014 *Chin. Phys. B* **23** 053202
- [24] Wang C C, Tian Y Y, Luo S Z, Roeterdink W G, Yang Y J, Ding D J, Okunishi M, Prumper G, Shimada K, Ueda K, Zhu R H 2014 *Phys. Rev. A* **90** 023405
- [25] Landau R H 1983 *Phys. Rev. C* **27** 2191
- [26] Raekwon Y, Tabakin F 1978 *Phys. Rev. C* **18** 932

SPECIAL TOPIC — Atomic and molecular processes driven by ultrafast intense laser fields

The influences of multiphoton excitation on near-threshold Harmonic emission in atoms*

Zhang Di-Yu¹⁾²⁾ Li Qing-Yi¹⁾²⁾ Guo Fu-Ming¹⁾²⁾ Yang Yu-Jun^{1)2)†}

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

2) (Jilin Provincial Key Laboratory of Applied Atomic and Molecular Spectroscopy (Jilin University), Changchun 130012, China)

(Received 1 September 2016; revised manuscript received 2 November 2016)

Abstract

When an atom or a molecule interacts with an intense laser field, a coherent high-order harmonic emission is observed at a frequency that is an integer multiple magnitude of the initial frequency of the incident laser field. The harmonic emission has the characteristic of high emission efficiency at relatively high orders, and it also has a wide expansion in the frequency domain. Thus, the high-order harmonic generation can be utilized to generate coherent EUV or soft X-ray light sources as well as ultrashort attosecond laser pulses. It is promising that the attosecond laser pulse will be an important tool for detecting and controlling the electron dynamics in atom and molecule systems.

The mechanisms of high-order harmonics especially the high energy part of the harmonic spectrum can be explained by the well-known three-step model. The three-step model assumes that the electron in the bound state firstly are ionized by the potential barrier formed by the laser electric field and the atomic potential, then the ionized electrons oscillate in the laser field, and finally the electron with high kinetic energy gained in the laser field has the possibility to return back to the parent ion and recombines with the ground state of the system with a high energy photon emitted. As for harmonics with low orders, especially those with single photon energy near the ionization threshold, the Coulomb potential of the atom has significant influences on them. However, the effect of the Coulomb potential of the atom are not included in the three-step model, so the mechanism of near-threshold harmonics (NTH) cannot be clearly interpreted with the three-step model alone. In this circumstance, the study of the mechanism of near-threshold harmonic emission attracted people's attention in general. One important application of NTH is that it can be utilized to generate optical comb with EUV frequencies.

Theoretically, Xiong *et al.* studied the mechanism of below-threshold harmonic (BTH) emission and found that the mechanism of this part of harmonics include the effect of the quantum-path interference and the Coulomb potential. He *et al.* analyzed the emission of BTH in various laser intensity regions and found that the harmonic spectrum exhibits a periodic structure as a function of the harmonic frequency when the incident laser intensity is about 10^{13} W/cm². Utilizing the quantum-path and time-frequency analyses of the harmonic emission, He *et al.* indicated that this periodic structure can be attributed to the interference effect between two specific quantum paths. Li *et al.* adopted the synchroqueezing scheme to study the near- and below-threshold harmonic emission of Cs atoms in an intense mid-infrared laser field and they showed that the multiphoton and the multiple rescattering trajectories have an effect on the NTH and BTH generation processes. Shafir *et al.* found that the ionic potential plays an critical role in NTH emission.

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2013CB922200), the National Natural Science Foundation of China (Grants Nos. 11274141, 11264001, 11304116, 11534004, 11627807), and the Jilin Provincial Research Foundation for Basic Research, China (Grant No. 20140101168JC).

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

Under the interaction between the atom and the intense laser field, electron in the ground state not only can be ionized but also be pumped into excited state, and these excitation processes also affect the harmonic emission.

We studied the harmonic emission process near the ionization threshold by solving the time-dependent Schrödinger equation of an atom interacting with a strong laser field. Utilizing the obtained wavefunction, we systematically studied the high-order harmonic emission with the variation of the incident laser intensity. Meanwhile, through solving the TDSE with the momentum-space method, the excited-state population is precisely calculated and achieved. We show that the ninth harmonic exhibits a periodic oscillation structure with the intensity of the incident laser field increasing, and we reveals that there is a synchronous variation between the harmonic intensity and the relatively high bound state population. Within a certain range of laser intensity, the increase of the total population of the excited states corresponds to the low efficiency of harmonic emission, and this competition relationship is quite clear. Therefore, when the wavelength of the driving laser pulse is fixed, we can optimize the driving laser intensity to achieve the near-threshold harmonic emission with high efficiency.

Keywords: high-order harmonic generation, ionization threshold, multi-photon excitation

PACS: 32.80.Rm, 42.50.Hz

DOI: [10.7498/aps.65.223202](https://doi.org/10.7498/aps.65.223202)

利用“类维格纳分布函数”方法研究阈上电离

郭丽 韩申生 陈京

Study of above-threshold ionization by “Wigner-distribution-like function” method

Guo Li Han Shen-Sheng Chen Jing

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 223203 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.223203

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.223203>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I22>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

非均匀激光场中氢分子离子高次谐波的增强

Enhancement of high-order harmonic generation from H_2^+ in near plasmon-enhanced laser field

物理学报.2016, 65(12): 123201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.123201>

调制激光场中 Rydberg 原子的电磁感应透明

Electromagnetically induced transparency of Rydberg atoms in modulated laser fields

物理学报.2016, 65(10): 103201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.103201>

红外激光场中共振结构原子对极紫外光脉冲的压缩效应

Compression of extreme ultraviolet pulse for atom with resonant structure exposed to an infrared laser field

物理学报.2016, 65(10): 103202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.103202>

氢负离子在少周期激光场中解离时的干涉效应

Interference effect in the photodetachment from H^- ion in a few-cycle laser pulse

物理学报.2016, 65(8): 083202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.083202>

激光驱动晶体发射高次谐波的特性研究

Study of high-order harmonic generation in crystals exposed to laser fields

物理学报.2016, 65(6): 063201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.063201>

专题: 超快强激光驱动的原子的分子过程

利用“类维格纳分布函数”方法研究阈上电离*

郭丽¹⁾ 韩申生¹⁾ 陈京^{2)†}

1)(中国科学院上海光学精密机械研究所, 量子光学重点实验室, 上海 201800)

2)(北京应用物理与计算数学研究所, 北京 100088)

(2016年9月15日收到; 2016年10月24日收到修改稿)

提出了一种类维格纳分布函数并用该分布函数计算了氢原子在少周期、不同偏振方向和不同激光频率的激光脉冲中电离后光电子的各种分布: 线偏振下的时间-能量分布、时间电离率分布和椭圆偏振下的时间-出射角分布、角度分布和时间电离率分布. 结果显示: 随着激光频率降低, 所有分布清楚直观地展现出电子从多光子区域到隧穿区域的转变过程. 对线偏振情况, 伴随着这种转变, 电离时间与最终动量之间的半经典关系与时间-能量分布越来越一致. 同时, 时间-能量分布清楚地展现了隧穿区域中的干涉结构, 并给出了干涉原因是由不同时刻电离出的具有相同能量的电子干涉形成的. 对椭圆偏振, 通过量子计算与半经典结果的比较, 分别得到了角度分布的角度偏移和时间分布的时间偏移. 计算发现时间偏移远小于角度偏移, 两者之间并不对应. 因此, 基于两种偏移相对应原理的“阿秒测量技术”是不准确的. 而且计算表明时间偏移的数值有正有负, 因此该偏移也不能解释为隧穿时间.

关键词: 阈上电离, 类维格纳分布函数, 时间-能量分布, 隧穿电离

PACS: 32.80.Rm, 32.80.Fb

DOI: 10.7498/aps.65.223203

1 引言

阈上电离(ATI)是强场物理中的基本电离过程. 通过对阈上电离的研究有助于更好地理解原子物理中发生的各种现象^[1,2]. 目前, 电离过程可分为两个区域: 多光子电离区域和隧穿电离区域. 两个区域通过Keldysh参数判断 $\gamma = \sqrt{I_p/(2U_p)}$ (I_p 是原子的电离能, U_p 是有质动能^[3]). 当 $\gamma > 1$ 时, 为多光子区域, 该区域的能谱是一系列间隔为一个光电子能量的窄峰结构^[1]. 当 $\gamma \ll 1$ 时, 为隧穿电离区域. 隧穿电离过程通常被看作是一个准静态过程, 电子通过隧穿由库仑场和激光场叠加产生的势垒发生电离, 电离后的电子作为一个自由电子在激光场中运动, 该图像被广泛称为“simple man picture”^[4]. 在隧穿区域, 能谱先是在低能部

分出现一个快速的下降, 约到 $2U_p$ 处紧接一个高能平台, 该平台一直延续到 $10U_p$ 处, 再呈现快速下降^[5,6]. 对于能谱的高能部分产生的原因, “simple man picture”中的再散射机理给出了很好的解释: 电子隧穿电离后作为一个自由电子在激光场中运动, 当电场反向时, 电子可能又会回到核附近, 与离子核发生碰撞, 产生高能平台和截止能量^[5,7]. 该半经典图像还成功地解释了强场物理中的其他现象, 例如: 高次谐波谱中的平台和截止等现象.

上面所述的ATI过程中半经典图像(“simple man picture”)基于如下描述: 电子通过激光场电离, 电离率与电离瞬间电场呈指数关系, 电离后电子在激光场(或是激光场与离子的库仑场的叠加场)中做经典运动. 换句话说, 电子的最终漂移动量 \mathbf{p} 与电离时刻 t 存在对应关系: $\mathbf{p} = -\mathbf{A}(t)$ ($\mathbf{A}(t)$ 为电场矢势). 然而上述准静态近似图像还没有被

* 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2013CB922201)、国家自然科学基金(批准号: 11304329, 11175227, 11105205, 11274050, 11334009, 11425414)和上海市自然科学基金(批准号: 13ZR1463100)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: chen_jing@iapcm.ac.cn

严格地检验过. 另一方面, 基于半经典理论, 最近出现了一种测量强场中原子分子时间动力学的新技术——阿秒角度条纹技术, 也称为“阿秒钟”技术 [8–13]. 该技术不同于以往借助高次谐波产生阿秒脉冲的传统测量, 它主要是利用一个接近圆偏振的激光脉冲, 让旋转的电场使径向方向上的光电子偏转, 并把电离时刻映射到电子动量矢在偏振面的最终角度上 [8]. 当把实验测到的少周期激光脉冲的电子角分布与相同参数下半经典计算的角分布对比时, 发现两种分布的峰值存在角度偏移, 此后关于该角度偏移背后的机理引起了广泛的争议 [9,10,12,14]. 电子库仑势、隧穿时间延迟和非绝热效应被提出用来解释该偏移. Eckle 等 [9] 在 He 原子的隧穿电离实验中, 得到一个平均强度的隧穿延迟上限 12 as. Boge 等 [12] 认为非绝热效应不重要, 然而 Ivanov 和 Kheifets [14] 通过三维薛定谔方程计算的结果与半经典比较, 得出与文献 [12] 相反的结论. 最近, Torlina 等 [15] 运用理论计算把该偏移归于库仑势作用并证实了零隧穿时间.

很明显, 阿秒条纹测量技术的原理是基于半经典理论中的电子最终动量矢的角度与电离时刻的对应这一原理, 而这种对应原理一直没被证实. 因此, 在考虑库仑势和非绝热效应之前, 我们应该对阿秒钟技术原理, 即描述电子光电离过程的半经典图像的精度进行严格检测.

维格纳分布函数是研究相空间量子态的强有力方法 [16,17]. Kim 等 [18] 把它应用到高次谐波的时频分析中. 本文将该方法应用到 ATI 中, 并重新定义为“类维格纳分布” [19,20] (此定义的原因将在文中给出). 运用“类维格纳分布”可以计算得到目前其他量子方法无法得到的一些分布, 例如时间-能量分布, 时间电离率分布, 时间-出射角度的分布等. 本文利用“类维格纳分布”对不同激光参数下的 ATI 进行了研究.

2 理论方法

2.1 类维格纳分布 [19]

首先, 从 S 矩阵的 0 阶矩阵元开始:

$$S_{fi} = -i \int_{-\infty}^{\infty} dt \langle \psi_{Af}(\mathbf{p}, t) | V_A(\mathbf{p}, t) | \varphi_i(t) \rangle, \quad (1)$$

这里, $V_A(\mathbf{p}, t) = -\mathbf{p} \cdot \mathbf{A}(t) + \mathbf{A}(t)^2/2$ 是激光场与光电子的相互作用, $\mathbf{A}(t)$ 是激光场矢势;

$\varphi_i(t) = |\varphi_0\rangle e^{iI_p t}$ 是原子的基态, I_p 是原子的电离势能, $|\psi_{Af}(\mathbf{p}, t)\rangle$ 是 Volkov 态, 在速度规范下的形式为

$$|\psi_{Af}(\mathbf{p}, t)\rangle = \frac{1}{\sqrt{v}} \exp \left[i\mathbf{p} \cdot \mathbf{r} - i\frac{p^2}{2}t - i \int_{-\infty}^t V_A(\mathbf{p}, \tau) d\tau \right], \quad (2)$$

v 是归一化体积.

把 (2) 式代入 (1) 式, 得到

$$\begin{aligned} S_{fi} &= \frac{-i}{\sqrt{v}} \int_{-\infty}^{\infty} dt \varphi_i(\mathbf{p}) V_A(\mathbf{p}, t) \\ &\quad \times \exp \left[i \int_{-\infty}^t V_A(\mathbf{p}, \tau) d\tau + iI_p t + i\frac{p^2}{2}t \right] \\ &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} dt S' e^{i\frac{p^2}{2}t}, \end{aligned} \quad (3)$$

其中,

$$\begin{aligned} S' &= \frac{-i\sqrt{2\pi}}{\sqrt{v}} \varphi_i(\mathbf{p}) V_A(\mathbf{p}, t) \\ &\quad \times \exp \left[i \int_{-\infty}^t V_A(\mathbf{p}, \tau) d\tau + iI_p t \right], \end{aligned} \quad (4)$$

这里, $\varphi_i(\mathbf{p})$ 是原子基态的傅里叶变换.

我们知道一般的傅里叶变换表达式为

$$F(\Omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} F'(t) e^{i\Omega t} dt. \quad (5)$$

通过 (3) 式与 (5) 式的比较, 我们可近似认为 S_{fi} 是 S' 的傅里叶变换. 因此, 我们根据维格纳分布定义了一个关于时间与能量的“类维格纳分布 (WDL)”:

$$\begin{aligned} &f\left(t, \frac{p^2}{2}\right) \\ &= \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dt' S'^*(t+t') S'(t-t') e^{-2i\frac{p^2}{2}t'}. \end{aligned} \quad (6)$$

显然, 这里称为“类维格纳分布”的原因是由于 S' 是 p 的函数, 因此 S_{fi} 不是 S' 的严格傅里叶变换. 尽管如此, $f(t, p^2/2)$ 依然满足 marginal 关系:

$$|S_{fi}|^2 = \int f(t, p^2/2) dt. \quad (7)$$

把 (6) 式的能量进行积分, 即得到时间电离率:

$$P(t) = \int f\left(t, \frac{p^2}{2}\right) d\left(\frac{p^2}{2}\right). \quad (8)$$

以上是类维格纳分布函数的推导过程, 接下来, 我们将分别给出在线偏振和椭圆偏振有限脉冲下的具体分布及处理方法.

2.2 线偏振下的类维格纳分布

当激光脉冲是线偏振的有限脉冲时, 激光场的矢势形式如下:

$$\mathbf{A}(t) = -\frac{E_0}{\omega} \sin^2\left(\frac{\omega t}{n}\right) \cos(\omega t + \varphi) \hat{e}_z, \quad (9)$$

这里, E_0 是电场的峰值强度, ω 是激光频率, $n/2$ 是脉冲中的周期个数, φ 是激光场的初始相位, \hat{e}_z 是单位矢量.

为了简化起见, 在计算中我们采用了一维系统. 时间-能量分布为

$$f\left(t, \frac{p^2}{2}\right) = \frac{1}{\pi} \int_0^{T_c} \mathbf{S}'^*(t+t') \mathbf{S}'(t-t') \times e^{-2i\frac{p^2}{2}t'} dt', \quad (10)$$

其中, $T_c = n\pi/\omega$ 是脉冲长度.

2.3 椭圆偏振下的类维格纳分布

当激光脉冲是椭圆偏振的有限脉冲时, 激光场的矢势可以写为

$$\mathbf{A}(t) = -\frac{E_0}{\omega} \sin^2\left(\frac{\omega t}{n}\right) \left[\cos\frac{\theta}{2} \cos(\omega t + \varphi) \hat{e}_x - \sin\frac{\theta}{2} \sin(\omega t + \varphi) \hat{e}_y \right], \quad (11)$$

其中, $\varepsilon = \cot(\theta/2)$ 是椭圆偏振率, 长轴为 y 轴.

同样, 为了简化计算, 我们采用了二维系统. 因此, 对于固定能量的电子, 它的出射方向可以从 0 到 2π . 此时, 类维格纳分布可写为

$$f\left(t, \frac{p^2}{2}, \Theta\right) = \frac{1}{\pi} \int_0^{T_c} \mathbf{S}'^*(t+t', \Theta) \mathbf{S}'(t-t', \Theta) \times e^{-2i\frac{p^2}{2}t'} dt', \quad (12)$$

其中 Θ 是电子在偏振面的出射方向与 x 轴的夹角, T_c 是脉冲长度.

通过对 (12) 式进行能量积分, 得到时间-角度分布:

$$f'(t, \Theta) = \int f\left(t, \frac{p^2}{2}, \Theta\right) d\left(\frac{p^2}{2}\right). \quad (13)$$

进一步, 通过对 (13) 式的时间和角度分别进行积分, 可以得到角度分布和时间电离分布

$$W(\Theta) = \int_0^{T_c} f'(t, \Theta) dt \quad (14)$$

和

$$P(t) = \int_0^{2\pi} f'(t, \Theta) d\Theta. \quad (15)$$

3 结果与讨论

3.1 少周期线偏振下 ATI 的研究

本节主要研究计算一维氢原子在电场峰值强度 $I = 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 、脉冲长度为 4 个光学周期 (o.c.)、不同激光频率 ω 和不同初始相位 φ 的激光场中分别电离得到的光电子时间电离分布和时间-能量分布.

图 1 给出了两组不同初始相位、不同激光频率、分别从正方向 (沿电场方向) 和负方向 (沿电场反方向) 出射的光电子时间电离率分布. 当激光频率比较高 $\omega = 0.5 \text{ a.u.}$ [a.u. 为原子单位] 时, 时间电离分布呈现出光滑的接近激光包络的分布 (图 1 (a) 和图 1 (b)). 当激光频率 $\omega = 0.182 \text{ a.u.}$ 时, 电离率倾向于在电场强度最大时刻达到最大 (图 1 (c) 和图 1 (d)). 当激光频率进一步降低到 $\omega = 0.05691 \text{ a.u.}$ 时, 电离率强烈地依赖于电场幅度, 时间电离率在电场最大的位置形成了一个窄峰, 峰的高度也呈现出对电场幅度的依赖 (图 1 (e) 和图 1 (f)). 当激光频率继续降低, 上述现象更加明显, 时间电离分布的峰进一步变窄 (图 1 (g) 和图 1 (h)). 上述四个激光频率对应的 Keldysh 参数分别为 9.35, 3.4, 1.06 和 0.56. 因此, 我们的计算清楚表明: 随着 γ 的减小, 电离率越来越依赖于电场幅度, 这可以看作光电子从多光子区域到隧穿区域的转变. 严格来讲, ATI 的隧穿图像只有在 $\gamma \ll 1$ 时才适用, 然而在 $\gamma \sim 1$ 时, 实验数据与隧穿理论已符合得很好 [21,22]. 从我们的计算结果来看 (图 1 (e) 和图 1 (f)), 当 $\gamma \sim 1$ 时, 时间电离分布也显示出隧穿特性. 因此, 半经典图像在 $\gamma \sim 1$ 时也是近似适用的.

从图 1 我们还可得到, 对少周期的脉冲, 当电场分布随 CEP 变化时, 电子的时间电离率分布也随 CEP 变化. 电场还表现出了空间不对称性 (即电子电离率在不同出射方向的不对称性 (图 1 (a), $\varphi = 0$) 或者时间不对称性 (图 1 (b), $\varphi = \pi/2$)). 电离率在时间或空间上的不对称性也显示了从多光子区域到隧穿区域的转变过程. 在深多光子区域, 例如 $\omega = 0.5 \text{ a.u.}$, 电离率随 CEP 的变化表现出轻微的时间和空间不对称. 但随着激光频率的降低, 不对称变得越来越明显.

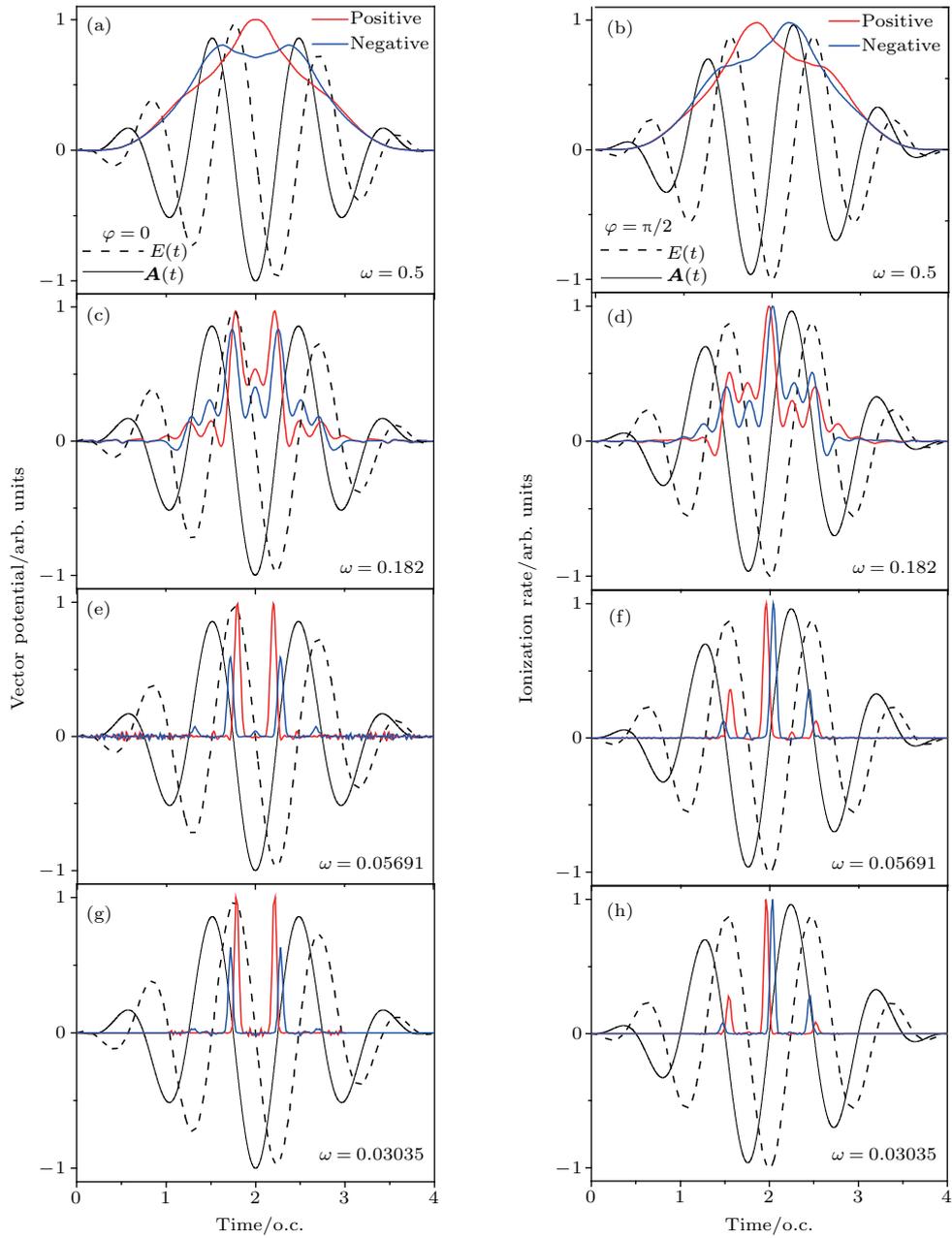


图1 四个光学周期不同激光频率的激光脉冲中分别从正负方向出射的光电子 $P(t)$ 峰值强度 $I = 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, CEP $\varphi = 0$ [(a), (c), (e), (g)] 和 $\varphi = \pi/2$ [(b), (d), (f) 和 (h)]; 红色虚线表示从正方向出射的电子; 蓝色实线表示从负方向出射的电子

Fig. 1. Calculated $P(t)$ of photoelectrons ejected in two opposite directions in four-cycle laser pulses with different laser frequencies. Peak intensity $I = 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. The CEP $\varphi = 0$ [(a), (c), (e), and (g)] and $\varphi = \pi/2$ [(b), (d), (f), and (h)]. Dashed dotted red line: electron emitted in the positive direction; blue solid line: electron emitted in the negative direction.

图2给出了四个光频率在相位 $\varphi = 0$ 时分别从正方向和负方向出射的电子时间-能量分布和能谱. 图2也清晰地表现出电子从多光子区域到隧穿区域的转变. 在多光子区域, 从正方向和负方向出射的电子能谱是相同的且都呈现出一个光滑的ATI峰, 但两个方向的时间-能量分布表现出轻微的差别(图2(a)—(d)). 当激光频率进一步降到

$\omega = 0.05691$ 和 0.03035 a.u. 时, 两个方向的能谱和时间-能量分布都表现出很大的差异, 并且分布上出现了很多干涉峰. 这些干涉峰是由在不同时刻电离出的具有相同能量的电子干涉产生的. 显然, 这一干涉图像只有在隧穿区域才成立, 即电子最终的漂移能量与电离时刻有关. 这个问题稍后将进一步阐述.

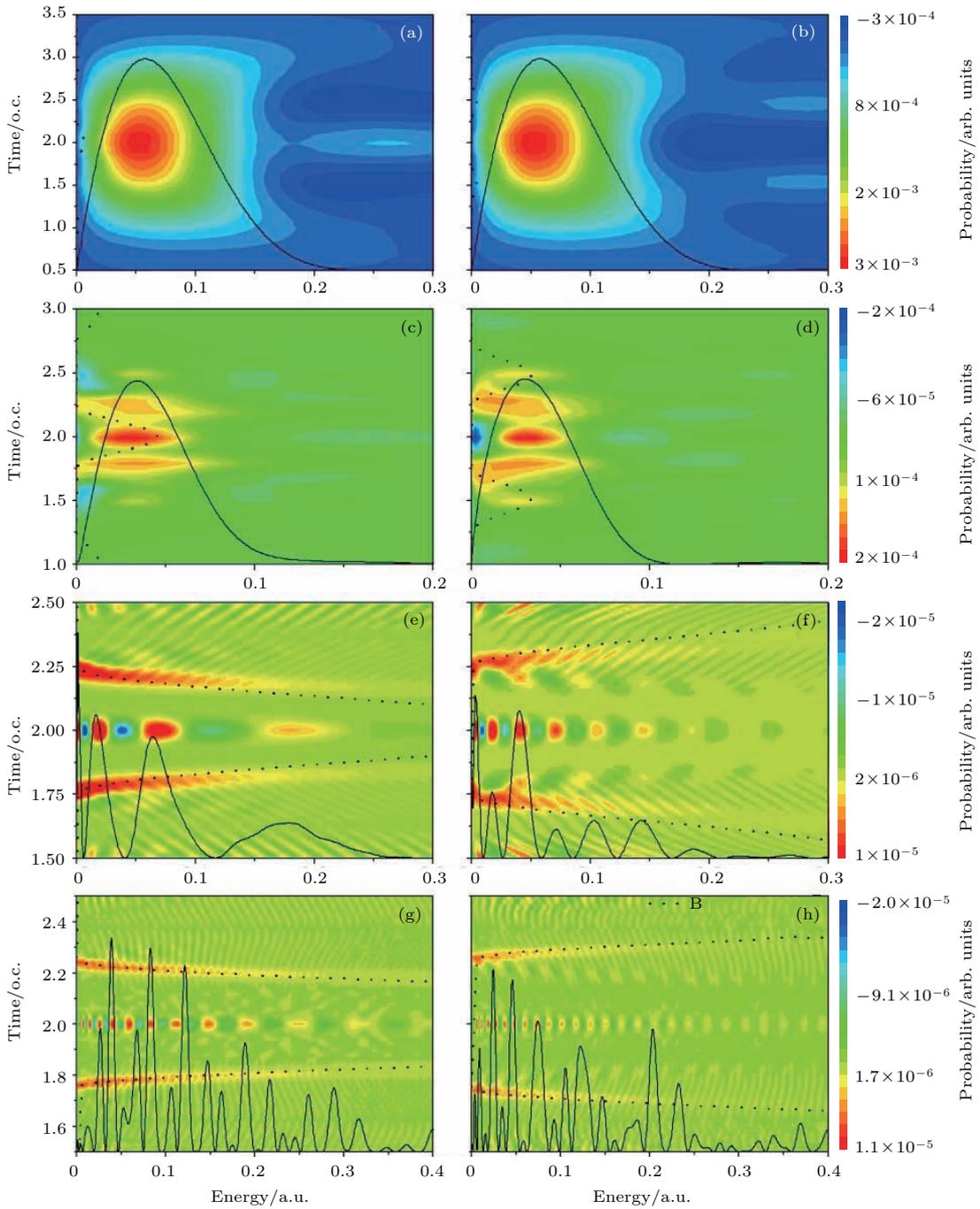


图2 四个光学周期及初始相位 $\varphi = 0$ 激光脉冲中电离电子的时间-能量分布和能谱(实线), 激光参数同图1 (a), (c), (e), (g) 从正方向出射的电子; (b), (d), (f), (h) 从负方向出射的电子; 点线是半经典模型中最终能量与电离时刻的关系 [$p^2/2 = A^2(t)/2$]

Fig. 2. Time-energy distribution and energy spectrum (solid line) of an electron emitted in four-cycle laser pulses with the $\varphi = 0$. The laser parameters are the same as those used in Fig. 1. (a), (c), (e), and (g) an electron ejected in the positive direction; (b), (d), (f), and (h) an electron ejected in the negative direction. Dotted lines show the semiclassical relationship between the drift kinetic energy and the ionization moment [$p^2/2 = A^2(t)/2$].

我们进一步分析低频时时间-能量分布中出现的复杂结构. 从图2(e)和图2(g)可看到在 $t \sim 1.75$ 和 2.25 o.c. 处出现了两条关于脉冲中心对称的条纹, 且条纹随能量的增加向脉冲中心倾斜.

而在电子出射为负方向时(图2(f)和图2(h)), 同样在 $t \sim 1.75$ 和 2.25 o.c. 处也有两条对称条纹, 但条纹随着能量增加向远离中心的方向倾斜. 无论电子出射方向是正方向还是负方向, 两条条纹中心处

都存在干涉结构,且干涉结构的极大和极小值与各自能谱结构对应符合.从图2我们还得出:低频分布(图2(g)和图2(h))相比高频分布(图2(e)和图2(f))存在更多的干涉结构;相同频率时,负方向分布相比正方向分布干涉结构更密一些.

对于(图2(e)—(h))中的干涉结构,可以归于 $t \sim 1.75$ 和 2.25 o.c.处两条条纹间的干涉.在文献[23]中已经讨论过少周期激光脉冲中ATI谱的干涉结构,文中把ATI能谱中的高能结构归于双缝干涉效应.我们用类似的机理来解释图2(e)—(h)中的干涉.图3给出了 $\varphi = 0$ 时,激光脉冲的电场和矢势.在隧穿电离中,根据ATI中的半经典图像,电子最终的漂移动量 $\mathbf{P} = -\mathbf{A}(t)$.因此,图3中红线标出的是从正方向出射的电子动量.当具有相同能量、不同时刻电离的电子(如图3中一对圆圈所示)发生干涉时造成了图2(e)和图2(g)的干涉结构;同理,粗黑线标出的是从负方向电离的具有相同能量不同时刻电离出的电子(黑体实心圆圈所示)之间的干涉,产生了图2(f)和图2(h)中的干涉结构.而图2(e)与图2(f)(或图2(g)与图2(h))干涉结构疏密不一样的原因,在于发生干涉的电子两电离时刻间隔不同.图2(e)和图2(g)中随能量的增加,时间间隔降低.而图2(f)和图2(h)正好相反,即随能量增加时间间隔也增加.

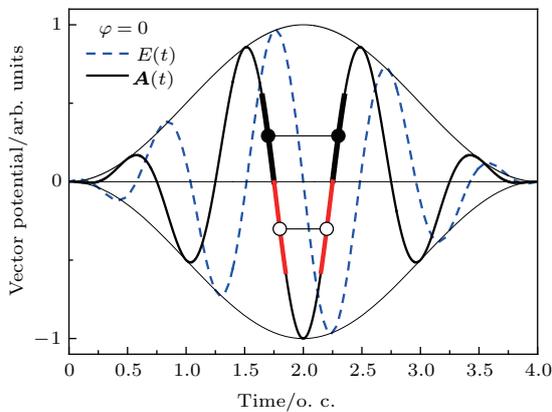


图3 四个光学周期及初始相位 $\varphi = 0$ 激光脉冲的矢势和电场

Fig. 3. Vector potential and electric field of a four-cycle pulse with the initial phase $\varphi = 0$.

很明显,上述机理只有在半经典图像中有效.换句话说,在隧穿区域内(或接近该区域如图1(e)和图1(f)),电子最终漂移动量与电离时刻存在对应时,上述机理有效.而在如图2(a)—(d)所示的多光子区域,在某一能量范围内,具有固定能量的电子,其电离率发生在一个很宽的时间区域内.这

意味着电子最终漂移动量与电离时刻的对应不存在.这样,电离概率在时间上的不确定抹掉了干涉结构.

最后,图2也展现了ATI中半经典图像随Keldysh参数 γ 的演化.半经典图像中最终漂移能量与电离时刻的关系曲线 $p^2/2 = \mathbf{A}^2(t)/2$ 用虚线给出.当 $\gamma > 1$ 时,时间-能量分布中的能量与电离时刻的关系与半经典关系曲线完全不符(这里需要说明的是对激光频率 $\omega = 0.5$ a.u.,由 $p^2/2 = \mathbf{A}^2(t)/2$ 计算得到的漂移动量太小 $2U_p = 0.0057$ a.u.,以至于在图2(a)和图2(b)中观察不到).当 $\gamma \sim 1$ 时,尽管时间电离率图1(e)和图1(f)已显出隧穿电离的特性,但时间-能量分布与半经典关系仍然存在差异,表现在能量比较高时,例如 $E_k > 0.1$ a.u.,可看到电离条纹与虚线明显分离.当 $\gamma < 1$ 时,时间-能量分布与半经典关系符合得很好.

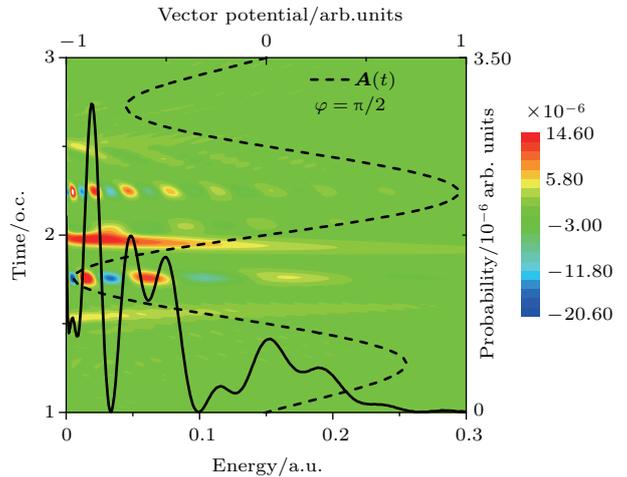


图4 四个光学周期激光脉冲中电离电子的时间-能量分布和能谱.激光参数除了 $\varphi = \pi/2$ 外,其他同图2(e);实线是能谱,虚线是矢势

Fig. 4. Time-energy distribution and energy spectrum of an electron emitted in four-cycle laser pulses with the same parameters as those in Fig. 2(e), except the initial phase $\varphi = \pi/2$. The solid line is the energy spectrum and the dashed line is the vector potential.

图4给出了 $\varphi = \pi/2$ 时的时间-能量分布,其他计算参数同图2(e).干涉结构出现在 $t \sim 1.75$ 和 2.25 o.c.处,其产生干涉结构的机理与 $\varphi = 0$ 时(图2)中的干涉机理一样.因此,在 $t \sim 1.75$ 和 2.25 o.c.处的干涉结构分别与图2(e)和图2(f)类似.由于 $t \sim 1.5, 2.0$ 和 2.5 o.c.处的电离条纹对最后谱线都有贡献,导致干涉结构增多,能谱更加复杂.另外,当 $\varphi = \pi/2$ 时,正方向的时间-能量分布(图4)与负方向的时间-能量分布(这里没给出)是

对称的, 与图 1 (f) 中两方向的时间电离对称一致, 这也使得负方向和正方向的能谱完全相同.

3.2 少周期椭圆偏振下 ATI 的研究 (阿秒技术原理的检测)

本节主要计算分析二维氢原子在椭圆偏振率为 0.882, 电场峰值强度 $I = 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 、脉冲长度为 6 个光学周期 ($n = 12$)、初始相位 $\varphi = \pi/2$

和不同激光频率的电场中, 分别电离得到的光电子的时间-出射方向分布、时间电离分布以及角分布等.

图 5 给出的是分别用 WDL 和半经典计算的四个不同激光频率的时间-出射角度分布 (以下简称为“时间-角度”分布). 其中, 图 5 (a), (c), (e) 和 (g) 是由 (13) 式计算得到; 图 5 (b), (d), (f) 和 (h) 是由半经典计算得到 (本节中所用的半经典计算方法

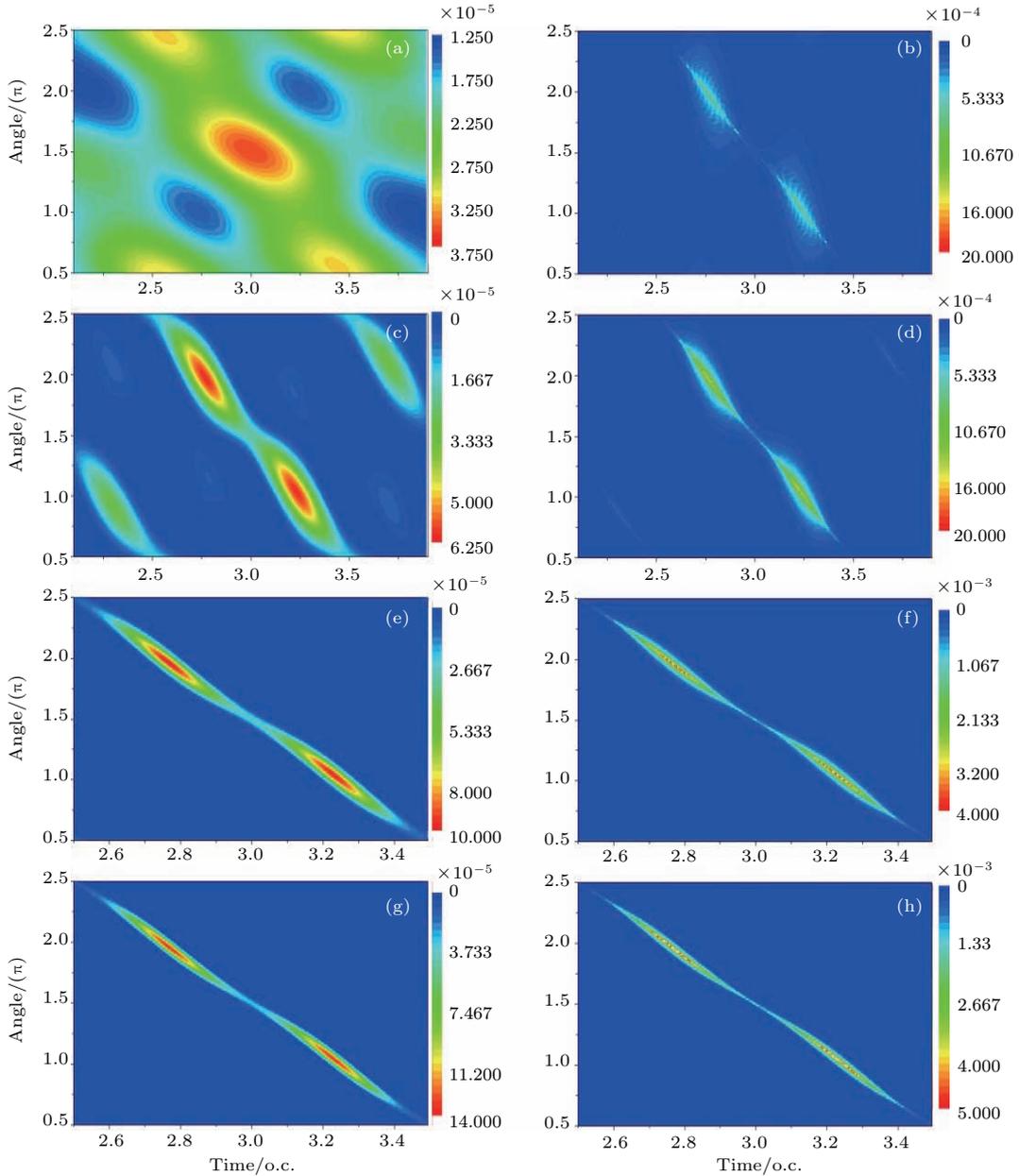


图 5 六个光学周期及初始相位 $\varphi = \pi/2$ 和不同激光频率脉冲中的电离电子的时间-出射角度分布 激光频率分别为 $\omega = 0.5 \text{ a.u.}$ ((a) 和 (b)), 0.182 a.u. ((c) 和 (d)), 0.05691 a.u. ((e) 和 (f)) 和 0.03502 a.u. ((g) 和 (h)); 峰值强度 $I = 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 和椭圆偏振率 $\varepsilon = 0.882$; (a), (c), (e), (g) 为量子结果; (b), (d), (f), (g) 半经典结果
Fig. 5. Time-emission angle distributions in six-cycle laser pulses with the CEP $\varphi = \pi/2$ for different laser frequencies $\omega = 0.5 \text{ a.u.}$ ((a) and (b)), 0.182 a.u. ((c) and (d)), 0.05691 a.u. ((e) and (f)) and 0.03502 a.u. ((g) and (h)). Peak intensity $I = 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ and the ellipticity $\varepsilon = 0.882$. Quantum results: (a), (c), (e) and (g); calculations of the semiclassical theory: (b), (d), (f) and (g).

是考虑横向和纵向初始速度的 Ammosov-Delone-Krainov 理论, 没有考虑离子库仑势的作用). 对于半经典计算, 四个不同激光频率的分布都呈现出两个主峰结构, 结构位置 (t [o.c.], Θ [rad]) 的数据约为 (2.75, 2.0π) 和 (3.25, 1.0π) 以及在 $t \sim 2.3$ 和 3.7 o.c. 处的两个小峰结构 (图 5 (f) 和图 5 (h) 没给出). 以上是我们所期望的, 因为半经典中电离率不依赖激光频率. 而量子计算结果与半经典不同, 随着激光频率降低, 时间-角度分布也呈现出明显的转变过程. 当 $\omega = 0.5$ a.u. ($\gamma = 9.36$) 时, 时间-角度分布呈现在 (3.0, 1.5π) 处的一主峰结构, 其整个分布 (图 5 (a)) 与半经典结果 (图 5 (b)) 完全不同. 当激光频率降到 $\omega = 0.182$ a.u. ($\gamma = 3.4$) 时, 图 5 (c) 的分布开始类似于半经典计算 (图 5 (d)). 当激光频率进一步降到 $\omega = 0.05691$ a.u. ($\gamma = 1.07$) 和 0.035 a.u. ($\gamma = 0.66$) 时, 量子结果与半经典计算越来越接近. 因此, 图 5 展示了椭圆偏振激光场下电离从多光子区域到隧穿区域的转变过程, 这与线偏振下的电离转变过程一致 (图 1 和图 2).

我们分别用 (14) 式^[24] 和半经典理论计算了四个不同激光频率的角度分布. 正如图 6 所示, 所有半经典计算都是关于 $\Theta = 1.5\pi$ 对称的双峰结构, 这与图 5 (b), (d), (f) 和 (h) 是一致的. 随着频率降低, 半经典计算的最大值与最小值的比值随光频率的减小而增大. 这主要是当激光频率减小时, 电子从场中获得的动量相比初始动量越来越大引起的.

图 6 中的量子计算也展现出电子从多光子区域到隧穿区域的转变过程. 当 $\omega = 0.5$ a.u. 时, 角分布是三峰结构, 中心峰在 $\Theta = 1.5\pi$ 处, 该结构与半经典角分布完全不同 (图 6 (a)). 当 $\omega = 0.182$ a.u. 时, 尽管量子分布也是双峰结构, 但峰的宽度比半经典分布更宽, 而且两种方法计算的双峰位置也存在偏差 (图 6 (b)). 峰的偏移 $\Delta\Theta = \pm 0.115$ rad, 这里的“+”和“-”分别代表角分布的左边峰和右边峰差. 当激光频率进一步减小时, 量子计算的角度分布越来越接近半经典分布. 角度差从 $\omega = 0.05691$ a.u. 时 $\Delta\Theta = \pm 0.05$ rad 到 $\omega = 0.035$ a.u. 时 $\Delta\Theta = \pm 0.025$ rad. 有趣的是, 我们的计算尽管显示在隧穿区域量子计算才能与半经典结果更接近, 但从基于半经典结果比较的角度, 其有效性甚至可以达到 $\gamma = 3.4$ 的多光子区域. 测量精度约为 10—20 as ($\Delta\Theta = 0.115$ rad 时对应 15 as), 该精度在 Keldysh 参数较宽的范围内, 不依

赖于激光参数. 两种计算的定量比较显示半经典图像甚至有多光子区域都有效且精度随着 γ 的减小而显著提高.

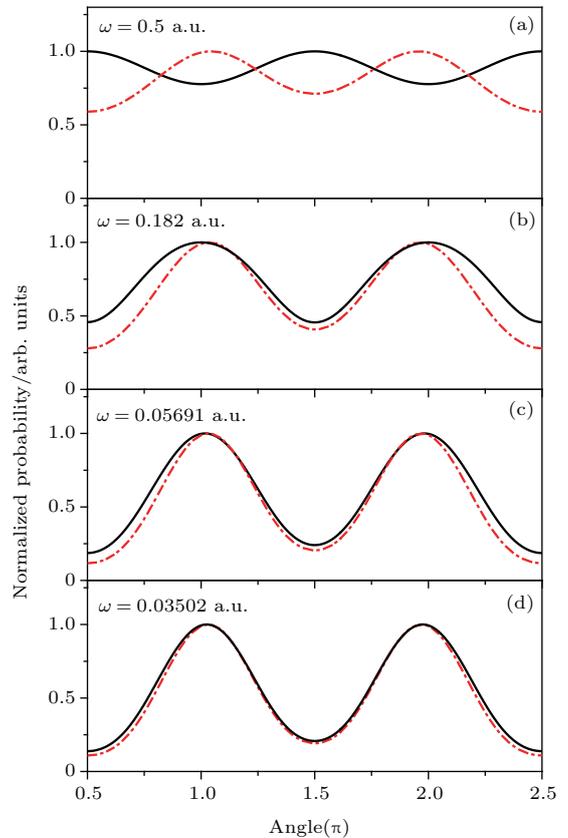


图 6 用 (14) 式 (实线) 和半经典理论 (虚线) 计算的角度分布, 激光参数同图 5

Fig. 6. Angular distributions calculated by Eq. (14) (solid line) and the semiclassical theory (dashed line) for different laser frequencies with the same parameters as those in Fig. 5.

为了更清楚地表明半经典与量子计算的不同, 我们把两种方法得到的时间-角度分布归一化后, 两者相减 (量子计算减去半经典计算) 得到图 7 (a) 所示的时间-角度分布 (这里以 $\omega = 0.05691$ a.u. 为例, 因为此激光频率为通常的实验条件). 从图 7 (a) 可看到, 由于量子与半经典分布宽度的不同, 导致整个分布被分成了两部分. 两部分的不对称说明两种时间-角度分布之间存在角度移动. 另一方面, 仅从图 7 (a) 很难看出两种计算的时间偏移. 为此我们进一步计算了电离率的时间分布 $P(t)$, 如图 7 (b) 所示. 由于半经典理论中的电离率只与强度有关, 与激光频率无关, 因此半经典计算的四个不同激光频率的时间分布完全重合, 都是双峰结构, 且双峰对应着电场强度最大的时

刻($t = 2.767$ 和 $t = 3.233$ o.c.). 而量子计算的电离率时间分布(图7(b))随激光频率的不同而不同. 当激光频率比较高时($\omega = 0.5$ a.u.), 时间分布是一条光滑且分布比较宽的曲线, 曲线的最大值在 $t = 3$ o.c.. 这说明在深多光子区域, 时间分布与脉冲包络更接近, 与图1(a)和图1(b)类似. 而其他三个频率的时间分布都是双峰结构, 且峰的宽度随

激光频率的减小越来越接近半经典分布. 图7(b)中的插图显示量子计算与半经典计算之间存在的时间偏差. 按照我们的计算, 当 $\omega = 0.182$ a.u.时, 时间偏移 $\Delta t = \pm 0.002$ o.c.; 当 $\omega = 0.05691$ 和 0.035 a.u.时, $\Delta t = \pm 0.001$ o.c.(这两种激光频率的时间电离率分布中电离峰值对应的时间偏差约 1×10^{-4} o.c.).

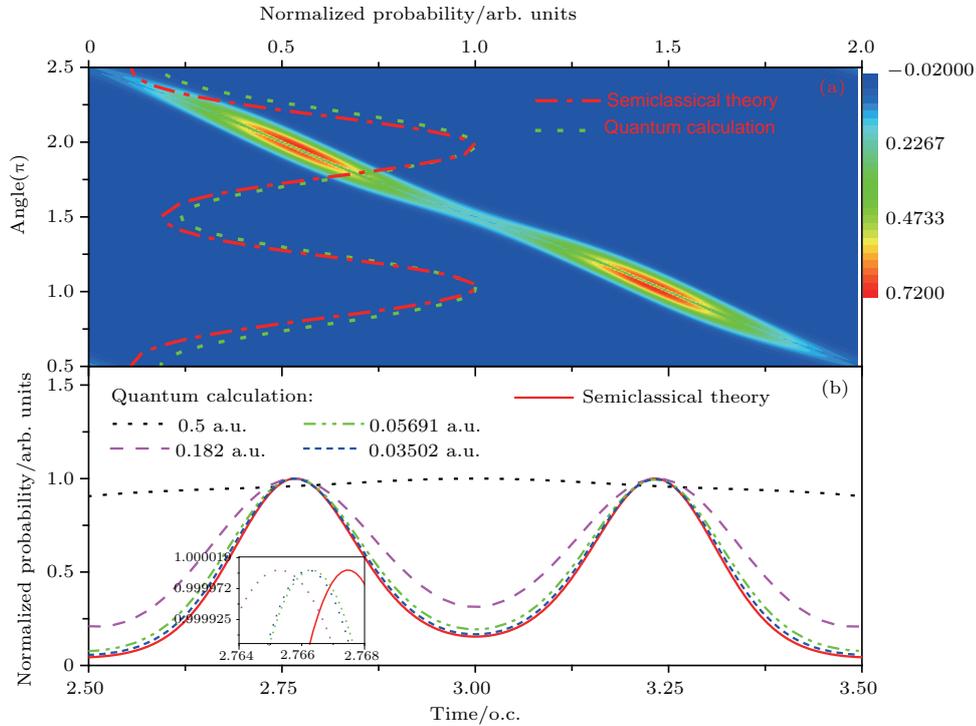


图7 (a) 激光频率 $\omega = 0.05691$ a.u. 时的时间-角度分布相减后的结果(见正文)和角度分布; (b) 分别用量子和半经典方法计算的四个不同频率的时间电离分布; 其他激光参数同图6
 Fig. 7. (a) Subtraction of the time-angle distributions (see text) and the angular distribution for $\omega = 0.05691$ a.u.; (b) the time distribution obtained by the quantum and semiclassical methods for four different laser frequencies; The other parameters are the same as those in Fig. 6.

以上通过比较量子计算和半经典计算, 得到了不同激光频率角度偏移 $\Delta\theta$ (角度分布)和时间偏移 Δt (时间电离率分布). 进一步, 通过相同频率下 $\Delta\theta$ 与 Δt 间的比较, 可以发现时间偏移远小于角度偏移[$\Delta t = \pm 0.001$ o.c.对应计算得到 $\Delta\theta = 0.00628$ rad, 此值远小于 $\Delta\theta = 0.05$ rad ($\omega = 0.05691$ a.u.)和 $\Delta\theta = 0.025$ rad ($\omega = 0.035$ a.u.)]. 这意味着角分布中的角度偏移与时间分布中的时间偏移是不对应的. 因此, 依靠这种时间和角度偏移对应的“阿秒钟测量^[9]”是不准确的. 需要指出的是, 最近对实验上测到的He原子角度偏移是否由非绝热效应引起的问题一直存在争议^[12,14]. 我们的计算显示, 随着波长

增加 $\Delta\theta$ 越来越小. 但是所计算的四个激光频率的角度偏移和时间偏移所对应的时间范围分别是15—20 as和2—4 as, 可见在比较宽的Keldysh参数范围内, 角度偏移与时间偏移之间的差别几乎不依赖于激光参数. 这说明不能把角度偏移归于非绝热效应^[25-27]. 另外, 图6和图7中的角度偏移和时间偏移有正有负, 说明这种偏移也不能解释为隧穿过程所需的时间.

4 结 论

我们用类维格纳分布函数分别计算了氢原子在少周期不同偏振强激光场下电离后的分布: 线

偏振下的时间-电离分布、时间-能量分布和椭圆偏振下的时间-出射角度分布、角度分布、时间电离分布. 对线偏振激光场, ATI过程的半经典关系, 即最终漂移动量与电离时刻的关系, 随着激光频率的减小, 与时间-能量分布符合得越来越好; 进一步减小激光频率时, 电子能谱出现很多精细结构且依赖于电子的出射方向和激光场的初始相位; 通过分析, 我们把精细结构归于不同时刻电离出具有相同能量的电子间的干涉. 对椭圆偏振激光场, 通过将WDL计算的角度分布和时间分布分别与半经典结果比较得到了角度偏移和时间偏移, 发现角度偏移远小于时间偏移, 这暗示基于角度偏移和时间偏移对应的“阿秒测量技术”是不准确的. 而且计算结果表明时间偏移的数值有正有负, 因此该偏移也不能解释为隧穿时间.

参考文献

- [1] Gostini P A, Fabre F, Mainfray G, Petite G, Rahman N K 1979 *Phys. Rev. Lett.* **42** 1127
- [2] Becker W, Grasbon F, Kopold R, Milošević D B, Paulus G G, Walther H 2002 *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **48** 35
- [3] Keldysh L V 1965 *Sov. Phys. JETP* **20** 1307
- [4] van Linden van den Heuvell H B, Muller H G 1988 *Multiphoton Processes* (edited by Smith S J, Knight P L) (Cambridge, UK: Cambridge University Press) p25
- [5] Mohideen U, Sher M H, Tom H W K, Aumiller G D, Wood O R, Freeman R R, Bokor J, Bucksbaum P H 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 509
- [6] Paulus G G, Nicklich W, Xu H, Lambropoulos P, Walther H 1994 *Phys. Rev. Lett.* **72** 2851
- [7] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [8] Eckle P, Smolarski M, Schlup P, Biegert J, Staudte A, Schöffler M, Müller H G, Dörner R 2008 *Nat. Phys.* **4** 565
- [9] Eckle P, Pfeiffer A N, Cirelli C, Staudte A, Doerner R, Müller H G, Büttiker M, Keller U 2008 *Science* **322** 1525
- [10] Pfeiffer A N, Cirelli C, Smolariski M, Dörner R, Keller U 2011 *Nat. Phys.* **7** 428
- [11] Pfeiffer A N, Cirelli C, Smolarski M, Dimitrovski D, Abu-samha M, Madsen L B, Keller U 2012 *Nat. Phys.* **8** 76
- [12] Boge R, Cirelli C, Landsman A S, Heuser S, Ludwig A, Maurer J, Weger M, Gallmann L, Keller U 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 103003
- [13] Wu J, Ph L, Schmidt H, Kunitski M, Meckel M, Voss S, Sann H, Kim H, Jahnke T, Czasch A, Dörner R 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 183001
- [14] Ivanov I A, Kheifets A S 2014 *Phys. Rev. A* **89** 021402
- [15] Torlina L, Morales F, Kaushal J, Ivanov I, Kheifets A, Zielinski A, Scrinzi A, Müller H G, Sukiasyan S, Ivanov M 2015 *Nat. Phys.* **11** 503
- [16] Hillery M, O'Connell R F, Scully M O, Wigner E P 1984 *Phys. Rep.* **106** 121
- [17] Lee H W 1995 *Phys. Rep.* **259** 147
- [18] Kim J H, Lee D G, Shin H J, Nam C H 2001 *Phys. Rev. A* **63** 063403
- [19] Guo L, Han S S, Chen J 2010 *Opt. Express* **18** 1240
- [20] Guo L, Han S S, Chen J 2012 *Phys. Rev. A* **86** 053409
- [21] Larochelle S F J, Talebpoury A, Chin S L 1998 *J. Phys. B* **31** 1215
- [22] Chen J, Liu J, Chen S G 2000 *Phys. Rev. A* **61** 033402
- [23] Lindner F, Schatzel M G, Walther H, Baltuška A, Goulielmakis E, Krausz F, Milošević D B, Bauer D, Becker W, Paulus G G 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 040401
- [24] Reiss H R 1980 *Phys. Rev. A* **22** 1786
- [25] Yudin G L, Ivanov M Y 2001 *Phys. Rev. A* **64** 013409
- [26] Barth I, Smirnova O 2011 *Phys. Rev. A* **84** 063415
- [27] Wang C L, Lai X Y, Hu Z L, Chen Y J, Quan W, Kang H P, Gong C, Liu X J 2014 *Phys. Rev. A* **90** 013422

SPECIAL TOPIC — Atomic and molecular processes driven by ultrafast intense laser fields

Study of above-threshold ionization by “Wigner-distribution-like function” method*

Guo Li¹⁾ Han Shen-Sheng¹⁾ Chen Jing^{2)†}

1) (Key Laboratory of Quantum Optics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

2) (Institute of Applied Physics and Computational Mathematics, Beijing 100088, China)

(Received 15 September 2016; revised manuscript received 24 October 2016)

Abstract

A Wigner-distribution-like function is proposed to obtain various distributions of photoelectron emitted from H atoms in few-cycle laser pulses with different frequencies: time-energy distribution, time ionization distribution for linearly polarized laser field and time-emission angle distribution, angular distribution, and time ionization distribution for elliptically polarized laser field. With decreasing frequency, all the distributions clearly show a transition of ionization process from the multi-photon regime to the tunneling regime. For the case of linearly polarized laser pulse, accompanying this transition, the semiclassical relationship between the ionization moment and the final drift energy is becoming more and more close to the time-energy distribution. Meanwhile, the time-energy distribution clearly shows the interference structures in the tunneling regime, which can be attributed to the interference between the electrons with the same energy ejected at different times. For the case of elliptically polarized laser pulse, both the angular offset in the angular distribution and the time offset in the time ionization distribution are obtained by comparing the quantum calculation with the semi-classical result. The results show that the time offset is much smaller than the angular offset. This indicates that the “attoclock” technique which is based on the correspondence between two offsets is in principle inaccurate. Furthermore, the time offset can be both positive and negative. So this time offset cannot be interpreted as the tunneling time.

Keywords: above-threshold ionization, Wigner-distribution-like function, time-energy distribution, tunneling ionization

PACS: 32.80.Rm, 32.80.Fb

DOI: 10.7498/aps.65.223203

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2013CB922201), the National Natural Science of Foundation of China (Grant Nos. 11304329, 11175227, 11105205, 11274050, 11334009, 11425414) and the Shanghai Natural Science Foundation, China (Grant No. 13ZR1463100).

† Corresponding author. E-mail: chen_jing@iapcm.ac.cn

超快强场下低能光电子的研究进展——解析 R 矩阵半经典轨迹理论

黄文道 张逸竹 阎天民 江玉海

Progress in study of low-energy photoelectron in ultra-fast strong fields-analytical R-matrix theory based semiclassical trajectory method

Huang Wen-Xiao Zhang Yi-Zhu Yan Tian-Min Jiang Yu-Hai

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 223204 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.223204

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.223204>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I22>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

非均匀激光场中氢分子离子高次谐波的增强

Enhancement of high-order harmonic generation from H_2^+ in near plasmon-enhanced laser field

物理学报.2016, 65(12): 123201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.123201>

调制激光场中 Rydberg 原子的电磁感应透明

Electromagnetically induced transparency of Rydberg atoms in modulated laser fields

物理学报.2016, 65(10): 103201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.103201>

红外激光场中共振结构原子对极紫外光脉冲的压缩效应

Compression of extreme ultraviolet pulse for atom with resonant structure exposed to an infrared laser field

物理学报.2016, 65(10): 103202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.103202>

氢负离子在少周期激光场中解离时的干涉效应

Interference effect in the photodetachment from H^- ion in a few-cycle laser pulse

物理学报.2016, 65(8): 083202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.083202>

激光驱动晶体发射高次谐波的特性研究

Study of high-order harmonic generation in crystals exposed to laser fields

物理学报.2016, 65(6): 063201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.063201>

专题: 超快强激光驱动的原于分子过程

超快强场下低能光电子的研究进展 ——解析 R 矩阵半经典轨迹理论*

黄文道¹⁾²⁾ 张逸竹¹⁾ 阎天民^{1)†} 江玉海^{1)2)3)‡}

1) (中国科学院上海高等研究院, 上海 201210)

2) (中国科学院大学, 北京 100049)

3) (上海科技大学, 上海 201210)

(2016年10月9日收到; 2016年11月1日收到修改稿)

该综述回顾了近期解析 R 矩阵方法结合半经典理论的发展, 介绍其应用于线偏振光场下单活跃电子系统中的求解强场电离概率幅的过程 [Torlina L, Smirnova O 2012 *Phys. Rev. A* **86** 043408]. 解析 R 矩阵方法通过内外区域分割, 可以获得对外区光电子的半解析描述. 内区能够提供良好定义的边界条件, 外区光电子波函数则可近似为 Eikonal-Volkov 解. 进一步, 使用稳相近似, 可以将电离概率幅中的积分近似为半经典轨迹及相应相因子对应的分量之和. 基于该方法讨论了不同电离时刻隧穿而出波包的形状, 近似表现为以半经典轨线为中心的高斯型. 在外光场与库仑势同时存在的条件下, 亚周期非绝热修正对电离概率有不同的影响. 作为特殊的案例, 文中重点讨论在复时间平面上使用纯光驱动轨迹与库仑修正相因子研究光电子返回母核附近发生软回碰过程中的一系列关键环节以及对低能结构的影响 [Pisanty E, Ivanov M 2016 *Phys. Rev. A* **93** 043408]. 在引入库仑势后, 使用传统积分曲线存在一定的问题, 因积分路径可能遭遇分支-切割面导致积分函数丧失解析性. 为了克服该问题, 隧穿电离后演化过程的时间被拓展到复平面, 电子轨迹允许具有虚部. 当回碰发生时, 需要谨慎处理复时间平面上的分支-切割面. 研究发现, 复平面上的导航方法与最接近时间有关, 最接近时间总存在于一对分支-切割面之间, 它可以帮助规避不连续路径. 最接近时间解的集合形成丰富的几何结构, 使电子在回碰过程中表现出有趣的性质, 与低能结构有关的回碰信息就隐藏在这些几何结构中, 我们讨论了最接近时间方程解的拓扑结构随参数的变化以及设计路径搜索算法的依据, 介绍了实验上与低能结构相关的可观测到的现象.

关键词: 阈上电离, 半经典理论, 解析 R 矩阵方法, 复时间方法

PACS: 32.80.Rm, 42.50.Hz, 33.80.Wz

DOI: 10.7498/aps.65.223204

1 引言

原子分子与强场激光相互作用会展现出丰富的特性, 如何描述横跨大范围能量尺度的非微扰现象是理论工作中的一个难题. 本文主要回顾近期结合半经典轨迹技术的解析 R 矩阵理论用于光电子

谱中低能结构分析的发展.

近些年来发现的中红外强场下原子的光电子能谱的低能区域出现的一系列特殊现象, 例证之一便是低能结构 (low-energy structure, LES) 的出现 [1,2]. 在长波长强场光电离过程中, 人们发现光电子峰中除了一般的阈上电离外, 还出现了能量值远低于场中电子平均能量的峰. LES 的特殊之

* 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: 11420101003, 11274232, 11604347, 61675213, 91636105) 和上海科委扬帆计划 (批准号: 16YF1412600) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yantm@sari.ac.cn

‡ 通信作者. E-mail: jiangyh@sari.ac.cn

处在于它的出现与强场近似理论 (strong field approximation, SFA) 的预言相悖. 根据 SFA 理论, 光电子谱在低能区中应当是光滑的、没有特殊结构的, 并且当外光场频率降低、系统深入到光学隧穿区的时候, 人们本期望 SFA 能更精确地描述强场现象. 这激发了人们发展用于描述低能结构的理论方法、识别产生低能结构物理机制的兴趣.

第一性原理的含时薛定谔方程 (time-dependent Schrödinger equation, TDSE) 数值模拟能重现 LES, 通过对比包含与不包含长程库仑势的计算结果, 可以表明库仑相互作用对 LES 的产生具有决定性作用. 不过, 在长波长情况下, TDSE 的求解相当耗时, 且其结果难以分析, 很多物理机制没有明确的图像. 人们需要借助其他的近似手段, 其中最为直接的是经典轨迹方法, 它同样可以重现 LES 现象. 同时包含外光场与库仑场效应的经典轨迹蒙特卡罗模拟 (classical trajectory Monte Carlo, CTMC) [3-5] 支持了长程库仑势对 LES 的作用的解释, 它将 LES 的成因归结为库仑场对回碰光电子的前向散射.

半经典近似是相比于经典轨迹更为精细的理论描述方法. 通过对散射矩阵元进行 Dyson 级数展开, 在已有的处于连续态电子的基础上, 通过包含高阶项可引入母核势的效应, 人们能够处理高阶阈上电离 (high-order above-threshold ionization, HATI) [6-8]. 但 HATI 主要针对具有 $2U_p$ — $10U_p$ 范围具有更高能量的光电子, 而 LES 则是低能区的现象. 为了解释低能区库仑效应, 人们发展了基于轨迹的库仑修正强场近似 (trajectory-based Coulomb-corrected strong field approximation, TCSFA) 方法 [9-11], 对 SFA 电离概率幅进行重写以包含库仑场对轨迹的效应, 结果同样指向了前向散射电子. 在 TCSFA 方法中, 轨迹遵循了在电场与库仑场混合作用下的经典运动方程, 从本质上说, TCSFA 中体现的 LES 特征依然源于复合场中经典轨迹的性质. 除了典型的 LES 外, 一系列更低能区的谱特征也被发现, 包括极低能结构 (very-low-energy structure, VLES) [12]、零能结构 (zero-energy structure, ZES) (或称为近零能结构 NZES) [13-15] 等. 尽管现象繁多, 但其产生的根源均与复合场共同作用有关, 其中多数现象均在经典轨迹的框架下获得解释. 当然, 基于复合场轨迹下的半经典方法也能够复现这些实验特征.

近些年来发展的解析 R 矩阵方法 (analytical R-matrix, ARM) [16,17] 则对低能谱现象有新的见解 [18]. ARM 方法在波函数的相因子中包含了库仑场效应, 也可解析地结合半经典轨迹技术用于研究 LES 的产生机制. 最近的一项工作表明, 即使舍弃以往 (半) 经典方法中使用的复合场驱动下的轨迹, 认为库仑场中发生散射的程度较弱, 在低能区的散射为软回碰的假设下, 人们也应当能够观测到一系列由母核势导致的低能区电离率变化. 分析暗示 LES 的本质根植于 simple-man 模型中纯光场驱动下的轨迹, 库仑势的作用只是通过库仑修正相位因子增强或减弱了这些轨迹的贡献. 这产生了一个可能性, 即发生软回碰的一系列轨迹可以解释最近实验光电子谱中观测到的一系列显著的峰. 此外, 进一步扩展该轨迹系列能够证明实际上有两类软回碰轨迹在电离后半周期的奇数或偶数倍时刻处回碰母核离子. 先前描述的轨迹在半个周期的奇数倍时间处发生回碰, 其漂移能量是有质动力势 U_p 的常数倍. 与之对比的是, 在整数倍激光周期处发生软回碰的轨迹具有更低的能量, 大约在 1 meV , 与 U_p 的尺度关系呈 $1/U_p$, 低能轨迹意味着产生的峰可能对 NZES 有贡献.

本文下面的内容分为两个部分: 第一部分中首先回顾 ARM 方法的基本原理 [16], 介绍 ARM 应用于线偏振光场下的求解强场电离概率幅的过程, 其中引入了半经典近似, 为轨迹方法的使用奠定了基础; 第二部分介绍了文献 [18] 在 ARM 方法框架上进行半经典轨迹分析得到的一系列新颖结论, 重点回顾在复时间平面上使用纯光驱动轨迹研究软回碰过程影响低能结构的一系列关键环节, 特别是如何处理积分路径在复值时间平面上遭遇到由库仑项形成的分支切割面的情况, 以及提出利用最接近时间来规避分支切割面的解决方案, 讨论了最接近时间方程解的拓扑结构随参数的变化以及如何据此设计路径搜索算法. 基于轨迹分析, 提出了实验上可能观测到的低能峰与电离被抑制的沟道现象, 以及软回碰轨迹与 U_p 的尺度关系.

2 解析 R 矩阵方法的基本原理

2.1 ARM 概述

ARM 方法最初用于线偏振光场下的电离过程 [16], 也用于研究母核附近多电子与光电子关联

对电离的影响^[17]、圆偏振场下的电离问题^[19,20]等。R 矩阵方法的主要思想来源于对碰撞过程与核共振反应的理论处理,它分离了由母核影响主导的区域与其外的区域。在外区域中,研究对象与母核相互作用较弱,使用渐进近似可方便地处理。

作为描述散射与电离过程的一种有效手段,在 R 矩阵方法中,空间被分隔为内外两个区域。空间分隔反映了两个子系统下不同的动力学过程,但子系统间又彼此耦合。对于外区,电子距离母核足够远,电子与母核间相互作用可被简化(例如,忽略电子的交换势)。对于内区,尽管动力学过程可能十分复杂,有限的内区空间允许将其处理为多电子系统的束缚态。当使用解析方法或半经典方法时,这样的内外分区具有很大的优势。实际上,解析方法遇到的主要困难是难以处理需同时考虑外光场与电子、母核与电子间相互作用的复合场问题。当两种相互作用量级相差较小时,标准的微扰处理失效。但在适当的分区后,外区因为远离母核的库仑奇点,很多解析方法,如 eikonal-Volkov 近似(EVA)^[21],就可以很好地描述动力学过程。在此基础上,甚至可以研究关联作用诱导的不同电离通道间的相互作用,如在一阶微扰理论的基础上,外逸电子与驻留在母核附近的电子间的多电子效应会导致关联诱导激发^[22]。值得注意的是,t-SURFF 方法也是基于 R 矩阵思想^[23-25]解析处理外区动力学的,它在外区连续态波函数演化中使用了 Volkov 态,内区通过边界实现向外区 Volkov 态的过渡。因为 Volkov 态是在无母核势作用的情况下纯激光驱动连续态动力学的精确解,要求将边界的位置设定得足够远,但即使针对长程库仑势,边界位置在 100 a.u. 也能较好地描述动力学过程,它具有对外区计算高效、解析的优势。

结合半经典理论,内区与外区的设计自然地引入了强场作用下进出边界的电子轨迹的概念。电离过程中对波包的解析描述可用于获得起源于内区的电子轨迹,被用作接下来进行演化的初始条件,但电离步骤中涉及的隧穿过程会要求轨迹经过经典禁戒区域,它的处理具有一定的技巧性。轨迹形成并演化后,人们可根据电子往返内区次数的不同对轨迹进行分类获得分量,波函数可分解为分量之和。从强场中电子-离子碰撞模型^[26,27]的角度来看,ARM 公式允许将电子与母核碰撞区分为硬碰撞与软碰撞,软碰撞对应于轨迹处于外区,而硬碰

撞对应于电子轨迹进入内区。硬碰撞下碰撞参数小,散射角度大,在大角度散射下,散射电子从强场中获得更高的能量,而二次回碰这样更高阶的碰撞过程发生的概率要小得多,因此波函数以硬碰撞次数对应分量展开的级数会迅速收敛。

内区的近似处理应考虑处于该区的电子能量,电离过程中,当电子总能量为负时,内区波函数以初始束缚态为主,这为外区的演化提供了一个具有良好定义的源项。当电子在外光场的驱动下移动进入内区,不难设想,电子在内区的停驻时间应当很短,电子与外光场的相互作用可通过微扰方法进行处理^[28]。其中,零阶微扰过程对应于定量再散射理论(quantitative rescattering theory, QRS)^[29,30]中应用无场散射概率幅及重碰撞概率幅加之散射截面来描述的回碰过程,这在散射时间很短的情况下是合理的,但 QRS 无法描述激光场驱动下的回碰效应,如库仑-激光耦合^[31]与激光辅助库仑聚焦^[32]等,而 R 矩阵方法则可较好地描述这些效应,因为它所包含的外区动力学主导了这些过程。另外,ARM 原则上也能很好地描述强场驱动下的时间分辨电子全息成像^[33,34],强散射物波与弱散射参考波之间相互干涉,参考波始终在外区,物波则是波函数中电离后重新进入内区的部分。

2.2 ARM 电离概率幅

ARM 的基本思想是根据系统与外光场、系统与母核势间相互作用主导地位的不同,将空间分为内区与外区。在外区,系统与外光场间的相互作用占主导地位,母核势被看作微扰;而在内区,束缚性质的母核势为主要影响。通过引入一个半径为 a 的球壳实现分区。参数 a 的选择需要满足条件 $1/\kappa \ll a \ll I_p/E_0$,使得该球壳的位置同时远离轨迹隧穿势垒的入口与出口。从内区过渡到外区的动力学过程是通过区间的边界匹配实现的。

分区后,原哈密顿量 \hat{H} 本身在内区或外区为非厄米算符,需要通过引入边界项使得新哈密顿量 $\hat{H}^\pm \equiv \hat{H} + \hat{L}^\pm(a)$ 重新具有厄米性。边界项 $\hat{L}^\pm(a) = \pm\delta(r-a)\hat{B}$ 包含了 Bloch 算符 $\hat{B} = d/dr + (1-b)/r$,“+”与“-”分别表示内区与外区。由此可获得新的方程 $i\partial_t\psi(\mathbf{r},t) = \hat{H}^\pm\psi(\mathbf{r},t) - \hat{L}^\pm(a)\psi(\mathbf{r},t)$,并可重写为边界值问题的形式 $i\partial_t\psi(\mathbf{r},t) - \hat{H}^\pm\psi(\mathbf{r},t) = -\hat{L}^\pm(a)\psi(\mathbf{r},t)$ 。求解非齐次边界值问题可利用相应齐次方程的格

林函数 $G_{\text{out}}^a(\mathbf{r}, t, \mathbf{r}', t') = \langle \mathbf{r} | e^{-i \int_{t'}^t \hat{\mathcal{H}}^{(-)} d\tau} | \mathbf{r}' \rangle$, 可得外区的波函数为

$$\psi_{\text{out}}(\mathbf{r}, t) = -i \int d\mathbf{r}' \int_{-\infty}^t dt' G_{\text{out}}^a(\mathbf{r}, t, \mathbf{r}', t') \times [-\hat{L}^-(a)\psi(\mathbf{r}', t')]_{r'=a}.$$

类似地, 内区波函数 $\psi_{\text{in}}(\mathbf{r}, t)$ 呈现相同形式, 区别仅仅是将 $G_{\text{out}}^a(\mathbf{r}, t, \mathbf{r}', t')$ 替换为 $G_{\text{in}}^a(\mathbf{r}, t, \mathbf{r}', t') = \langle \mathbf{r} | e^{-i \int_{t'}^t \hat{\mathcal{H}}^{(+)} d\tau} | \mathbf{r}' \rangle$, 并将 \hat{L}^- 替换为 \hat{L}^+ .

现在以穿越边界的次数为指标写出一系列的波函数分量. 对于穿越过一次边界的外区波函数分量, 边界处的光缀饰波函数可近似为原子波函数的基态分量, 所得外区波函数为

$$\begin{aligned} & \psi_{\text{out}}^{(1)}(\mathbf{r}, t) \\ &= i \int d\mathbf{r}' \int_{-\infty}^t dt' G_{\text{out}}^a(\mathbf{r}, t, \mathbf{r}', t') \\ & \times [\hat{L}^-(a)\psi_{\text{g}}(\mathbf{r}')]_{r'=a} a_{\text{g}}(t') e^{-iE_{\text{g}}t'}, \quad (1) \end{aligned}$$

其中 $a_{\text{g}}(t')$ 包含了内区中无场情况下基态能量 E_{g} 的 Stark 移位及基态波函数 $\varphi_{\text{g}}(\mathbf{r}')$ 的衰减.

反过来, (1) 式可代入 $\psi_{\text{in}}(\mathbf{r}, t)$, 获得从外区再进入内区的波包,

$$\begin{aligned} \psi_{\text{in}}^{(2)}(\mathbf{r}, t) &= i \int d\mathbf{r}' \int_{-\infty}^t dt' G_{\text{in}}^a(\mathbf{r}, t, \mathbf{r}', t') \\ & \times [\hat{L}^+(a)\psi_{\text{out}}^{(1)}(\mathbf{r}', t')]_{r'=a'}. \quad (2) \end{aligned}$$

下一阶的项为 $\psi_{\text{out}}^{(3)}(\mathbf{r}, t)$, 它描述了逸入外区的波包进入内区后再次逸入外区等.

接下来的分析可以引入近似方法. 外区中, ψ_{out} 部分中的 G_{out}^a 可由 EVA [35] 的解代替. EVA 的时间演化算符 $\mathcal{U}^{\text{EVA}}(t, T)$ 可以精确描述系统在母核势 $U(r)$ 没有奇点情况下的强场电离过程, 适宜处理 ARM 的外区. 不过, EVA 演化算符允许波包在边界处同时流入流出, 这与真正的演化算符只允许波函数流出相悖. 幸运的是, 强场电离中流入的部分需要穿越额外的经典禁戒区, 而隧穿概率指数衰减, 因此流入部分的影响可以忽略.

EVA 态 $|\mathbf{p}_T^{\text{EVA}}(t)\rangle$ 是由无外光场情况下 eikonal 连续态 $|\mathbf{p}^{\text{E}}\rangle$ 从 T 起、到 t 止的后向演化定义的, $|\mathbf{p}_T^{\text{EVA}}(t)\rangle = \mathcal{U}^{\text{EVA}}(t, T)|\mathbf{p}^{\text{E}}\rangle$, 其中 T 为脉冲的结束时刻, t 为脉冲的开始时刻. $|\mathbf{p}^{\text{E}}\rangle$ 中的 E 代表“eikonal”, \mathbf{p} 为渐进动量. 在空间表象下, $\langle \mathbf{r} | \mathbf{p}^{\text{E}} \rangle = (2\pi)^{-3/2} e^{i\mathbf{p}\cdot\mathbf{r}} e^{iG_{0\mathbf{p}}(\mathbf{r})}$, 其中, $G_{0\mathbf{p}}(\mathbf{r})$ 描述了相前在位置 \mathbf{r} 处相比平面波发生的形变. 后

向演化中, 可将 $|\mathbf{p}^{\text{E}}\rangle$ 作为 EVA 态从 T 时刻起的初始条件. 演化后, 可得 $|\mathbf{p}_T^{\text{EVA}}(t)\rangle$ 的表达式,

$$\begin{aligned} & \langle \mathbf{r} | \mathbf{p}_T^{\text{EVA}}(t) \rangle \\ &= (2\pi)^{-3/2} e^{i[\mathbf{p}+\mathbf{A}(t)]\cdot\mathbf{r} - \frac{i}{2} \int_T^t d\tau [\mathbf{p}+\mathbf{A}(\tau)]^2} \\ & \times e^{-i \int_T^t d\tau U(\mathbf{r}_L(\tau; \mathbf{r}, \mathbf{p}, t))} e^{iG_{0\mathbf{p}}(\mathbf{r}_L(T; \mathbf{r}, \mathbf{p}, t))}, \end{aligned}$$

上式第一行为 Volkov 波函数, $\mathbf{A}(t)$ 为矢势, 与电场 $\mathbf{F}(t)$ 的关系满足 $\mathbf{F}(t) = -\partial_t \mathbf{A}(t)$; 第二行首项代表母核诱导的相前形变, 第二项为无场态的相前形变, 保证了 T 时刻处波函数与 EVA 态的连续衔接. 其中,

$$\mathbf{r}_L(\tau) \equiv \mathbf{r}_L(\tau; \mathbf{r}, \mathbf{p}, t) = \mathbf{r} + \int_t^\tau dt'' [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t'')]$$

代表了始于时刻 t , 从 \mathbf{r} 点出发, 末态渐进动量为 \mathbf{p} 的轨迹. 无场态的相形变 $G_{0\mathbf{p}}(\mathbf{r}_L(T; \mathbf{r}, \mathbf{p}, t))$ 保证了解的连续性, 当 $t = T \rightarrow \infty$ 时, $\mathbf{r}_L(T; a, \mathbf{p}, t) \rightarrow \infty$, $G_{0\mathbf{p}}(\mathbf{r}_L(T; \mathbf{r}, \mathbf{p}, t)) \rightarrow 1$ 等价于在无限远处将 eikonal 初始条件替换为平面波, 当波前向母核方向后向传播时, 平面波前在光场与母核势作用的共同影响下发生形变, 不断累积. 利用 EVA 态, EVA 格林函数为

$$\begin{aligned} G^{\text{EVA}}(\mathbf{r}, t, \mathbf{r}', t') &= \langle \mathbf{r} | \mathcal{U}^{\text{EVA}}(t, t') | \mathbf{r}' \rangle \\ &= \theta(t - t') \int d\mathbf{p} \langle \mathbf{r} | \mathbf{p}_T^{\text{EVA}}(t) \rangle \langle \mathbf{p}_T^{\text{EVA}}(t') | \mathbf{r}' \rangle, \end{aligned}$$

将其代入 (1) 式可计算外区波函数 $\psi_{\text{out}}^{(1)}(\mathbf{r}, t)$. 由 Bloch 算符的边界性可知, 构造 EVA 态与 EVA 格林函数的相关轨迹均来自边界, 处于外区的轨迹对应于直接电离的电子. 由 EVA 格林函数写出的 $\psi_{\text{out}}^{(1)}(\mathbf{r}, t)$ 可进一步通过鞍点方法进行分析.

为了获取电离概率幅, 可将上面得到的 ψ_{out} 投影到无场 eikonal 连续态 $|\mathbf{p}^{\text{E}}\rangle$ 上, $a_{\mathbf{p}}(T) = \int_a d\mathbf{r} \langle \mathbf{p}^{\text{E}} | \mathbf{r} \rangle \psi_{\text{out}}(\mathbf{r}, T)$, 其中, \int_a 表示对外区空间进行积分. 当 $T \rightarrow \infty$ 时, 电子波包距离母核足够远, 可投影到平面波连续态上获得电离概率幅, $a_{\mathbf{p}}(T) = \int_a d\mathbf{r} \langle \mathbf{p} | \mathbf{r} \rangle \psi_{\text{out}}(\mathbf{r}, T)$. 将 G^{EVA} 代入 ψ_{out} , 并利用 EVA 态之间的正交关系, 电离概率幅的通式为

$$\begin{aligned} & a_{\mathbf{p}}(T) \\ &= -i \int_T^t dt' e^{-\frac{i}{2} \int_{t'}^T d\tau [\mathbf{p}+\mathbf{A}(\tau)]^2} \\ & \times \int \frac{d\mathbf{r}'}{(2\pi)^{3/2}} e^{-i \int_{t'}^T d\tau U[\mathbf{r}_L(\tau)]} e^{-i[\mathbf{p}+\mathbf{A}(t')]\cdot\mathbf{r}'} \end{aligned}$$

$$\times \delta(r' - a) \hat{B} \Psi_{\text{in}}(\mathbf{r}', t'). \quad (3)$$

需要注意的是, 上式 $a_{\mathbf{p}}(T)$ 只适用于直接光电子, 不适合描述与母核发生硬回碰的情况.

3 线偏振光下半周期内的电离概率幅

接下来将应用上一节中得到的结论, 具体推导 ARM 应用于半个周期线偏振光场中类氢原子的电离概率幅, 其中将引入半经典近似, 与轨迹分析建立联系. 半个周期光场下的电离结果可方便地推广到光场包含多个周期的情况.

边界上 $r' = a$ 处的基态波函数 $\Psi_{\text{in}}(\mathbf{r}', t') \simeq e^{iI_{\text{p}}t'} a_{\text{g}}(t') \psi_{\text{g}}(\mathbf{r}')$, 其中 $a_{\text{g}}(t')$ 包含了 Stark 移位及基态衰减, $\psi_{\text{g}}(\mathbf{r}')$ 则为空间波函数. 对于运动在库仑势场 $U(r) = -Q/r$ 中的类氢原子, $\psi_{\text{g}}(\mathbf{r}) = \varphi_{\kappa,l}(r) Y_{lm}(\theta, \phi)$, 其中, 空间波函数的径向部分 $\varphi_{\kappa,l}(r) = C_{\kappa l} \kappa^{3/2} e^{-\kappa r} (\kappa r)^{Q/\kappa} / \kappa r$, $\kappa = \sqrt{2I_{\text{p}}}$ 对应于束缚态原子的特征动量, I_{p} 为电离能, $1/\kappa$ 为束缚态原子的特征尺度, $C_{\kappa l}$ 为常量. 如果在描述边界性质的 Bloch 算符中, 令 $b = Q/\kappa$, 易证 $\hat{B} \varphi_{\kappa,l}(r) = -\kappa \varphi_{\kappa,l}(r)$.

假定在线偏振光场下, 场偏振方向沿 z 方向, 电场分量 $\mathbf{E}(t) = F \cos \omega t \hat{e}_z$, 矢势 $\mathbf{A}(t) = -(F/\omega) \sin \omega t \hat{e}_z$, 将边界上的波函数 $\Psi_{\text{in}}(\mathbf{r}', t')$ 代入 (3) 式, 可得电离率^[16]

$$\begin{aligned} a_{\mathbf{p}}(T) &= \frac{i\kappa}{(2\pi)^{3/2}} a^2 \varphi_{\kappa,l}(a) e^{-i\frac{p_{\perp}^2}{2}T} \\ &\times \int_0^{\pi} d\theta \sin \theta \int_0^{2\pi} d\phi Y_{lm}(\theta, \phi) \\ &\times e^{-iap_{\perp} \sin \theta \cos(\phi - \phi_{\text{p}})} \\ &\times \int_{t'}^T dt' a_{\text{g}}(t') e^{-iS_V(T, t', \mathbf{p})} e^{-i\sigma_U(t')} \\ &\times e^{-iv_z(t')a \cos \theta}, \end{aligned} \quad (4)$$

其中

$$\begin{aligned} S_V(T, t', \mathbf{p}) &= \frac{1}{2} \int_{t'}^T d\tau v_z(\tau)^2 - \left(I_{\text{p}} + \frac{p_{\perp}^2}{2} \right) t', \\ v_z(t') &= p_{\parallel} + A(t'), \\ \sigma_U(t') &= \int_{t'}^T d\tau U[\mathbf{r}_L(\tau; \theta, \mathbf{p}, t')], \end{aligned} \quad (5)$$

且定义 $p_{\parallel} = p_z$, $p_{\perp}^2 = p_x^2 + p_y^2$, ϕ_{p} 为垂直动量 p_{\perp} 与 x 轴间的夹角. (4) 式的第二行为空间积分, 第三行为时间积分.

时间积分项中, 被积函数包含高频振荡部分, 在长波长情况下, 这类积分可通过渐进展开得以简

化. 利用鞍点近似条件, 在假定 $\sigma_U(t')$ 相比 $S_V(t')$ 变化很慢的情况下, 令指数部分的导数为零, 可获得边界处的鞍点方程:

$$\begin{aligned} &\frac{1}{2} [p_{\parallel} + A(t')]^2 \\ &+ \left[I_{\text{p}} + \frac{p_{\perp}^2}{2} + Fa \cos \theta \cos \omega t' \right] = 0. \end{aligned} \quad (6)$$

若鞍点方程的解为 $t' = t_a$, 鞍点近似后 $a_{\mathbf{p}}(T)$ 可简化为

$$\begin{aligned} a_{\mathbf{p}}(T) &= \frac{i\kappa}{(2\pi)^{3/2}} a^2 \varphi_{\kappa,l}(a) e^{-i\frac{p_{\perp}^2}{2}T} \\ &\times \int_0^{\pi} d\theta \sin \theta \int_0^{2\pi} d\phi Y_{lm}(\theta, \phi) \\ &\times e^{-iap_{\perp} \sin \theta \cos(\phi - \phi_{\text{p}})} \\ &\times \frac{\sqrt{2\pi} a_{\text{g}}(t_a)}{\sqrt{|S_V''(t_a) + A''(t_a) a \cos \theta|}} \\ &\times e^{-iS_V(t_a)} e^{-i\sigma_U(t_a)} e^{-iv_z(t_a) a \cos \theta}. \end{aligned} \quad (7)$$

如果按照 TCSFA 中鞍点方程的定义, t_s 是方程 $\frac{1}{2} [p_{\parallel} + A(t_s)]^2 + p_{\perp}^2 = -I_{\text{p}}$ 的鞍点解, 由划分内区时要求 $Fa \ll I_{\text{p}}$, 可以证明 $t_a \simeq t_s$, ARM 与 TCSFA 中所使用的鞍点方程区别在于 (6) 式中的最后一项 $F(a) \cos \theta \cos \omega t'$. 在时间变量积分后所得 (7) 式的基础上, 继续对空间变量进行积分. 利用贝塞尔函数的积分公式可显式求解对变量 ϕ 的积分, $\int_0^{2\pi} d\phi' \exp[-iap_{\perp} \sin \theta \cos \phi' + im\phi'] = 2\pi(-i)^m J_m(p_{\perp} a \sin \theta)$. 在对 θ 进行积分处理时, 因电离率最高的方向在 $\theta = \pi$ 附近, 可做变换 $\theta' = \pi - \theta$, 并对 θ' 进行小角度展开, 经过一系列推导, 最终可获得线偏振光场下的电离概率幅:

$$\begin{aligned} a_{\mathbf{p}}(T) &\simeq \frac{(-1)^{l+m} i^{m+1}}{\sqrt{|S_V''(t_s)|}} C_{lm} e^{im\phi_{\text{p}}} e^{-i\frac{p_{\perp}^2}{2}T} \left[\frac{p_{\perp}}{\kappa} \right]^m \\ &\times e^{-\frac{i}{2} \int_{t_s}^T d\tau [p_{\parallel} + A(\tau)]^2 + i(I_{\text{p}} + p_{\perp}^2/2)t_s} a_{\text{g}}(t_s) \\ &\times \varphi_{\kappa,l}(a) a e^{-i \int_{t_a}^T d\tau U(-a + \int_{t_a}^{\tau} [p_{\parallel} + A(t'')] dt'')}, \end{aligned} \quad (8)$$

其中 $C_{lm} = \frac{1}{2^m m!} \sqrt{\frac{(2l+1)(l+m)!}{4\pi(l-m)!}}$. 注意, 电离率在原则上应与边界的选取无关, 但 $a_{\mathbf{p}}(T)$ 的最后一项中出现了边界 a , 这是因为在解析推导的过程中使用了近似处理, 人为假定了内区波函数未受外场影响, 而外区受到外光场的作用. 实际上, 通过

证明束缚势 U 中的 a 与空间波函数部分的 a 相消, 可以证明 $a_{\mathbf{p}}(T)$ 与人为选取的边界 a 无关.

对于类氢原子电离概率幅的计算, 可以将类氢原子空间波函数 $\varphi_{\kappa,l}(a)$ 代入 (8) 式中, 对边界 a 的依赖关系可与 (8) 式最后一项合并而被处理掉, 进一步可获得半周期内的电离概率幅:

$$a_{\mathbf{p}}(T) \simeq R_{\kappa lm}(\mathbf{p}) a_g(t_s) e^{-i\frac{p_{\perp}^2}{2}T} \times e^{-i\int_{t_{\kappa}}^T d\tau U(\int_{t_s}^{\tau} dt'' [p_{\parallel} + A(t'')])} \times e^{-\frac{i}{2}\int_{t_s}^T d\tau [p_{\parallel} + A(\tau)]^2 + i(I_p + p_{\perp}^2/2)t_s}, \quad (9)$$

其中的积分限 $t_{\kappa} = t_s - i/\kappa^2$ 被平移到了 t_s 的下方, 这个平移来自对外区波函数与束缚态波函数 WKB (Wentzel-Kramers-Brillouin) 渐进解的匹配条件. 第一行中, 首项

$$R_{\kappa lm}(\mathbf{p}) = \frac{(-1)^{l+m} i^{m+1}}{\sqrt{S_V''(T, t_s)}} C_{lm} \times e^{im\phi_p} \left[\frac{p_{\perp}}{\kappa} \right]^m C_{\kappa l} \kappa^{1/2} \quad (10)$$

描述了波函数的角向结构对电离过程的影响. (9) 式的第二行体现了库仑势的贡献, 动量集中分布在 $p = 0$ 处, 对应在外电场的峰值时发生电离, 这与 PPT (Perelomov, Popov, Terent'ev) 理论中的库仑修正是一致的^[36]. 此外, 在 ARM 理论中, 库仑修正与 \mathbf{p} 有关, 不同的末态动量对应于外光场半周期内的不同时刻, 因此库仑修正亦与外光场半周期内的时刻有关. (9) 式的第三行为标准 Keldysh 电离理论中的指数项 $e^{-iS_V(T, t_s, \mathbf{p})}$. 为了比较 (9) 式与 PPT 的理论结果, 可以从 (9) 式出发计算多光子电离的光电子谱峰以获得与 PPT 理论结果^[37] 的直接对比,

$$w_n = \int_{E_n - \omega/2}^{E_n + \omega/2} d\mathbf{p} |a_{\mathbf{p}}(T)|^2.$$

PPT 的结果是针对无限长脉冲所得的电离概率幅, 而 (9) 式反映了亚周期的电离动力学过程, 因此也可用于研究在时刻 t 隧穿波包的结构.

对在外场峰值附近单次集中电离逸出的电子波包

$$|\Delta\Psi(T)\rangle = \int d\mathbf{p} a_{\mathbf{p}}(T) |\mathbf{p}\rangle$$

进行后向演化, 并将所得波函数 $|\Delta\Psi(t)\rangle$ 投影到平面波 $|\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)\rangle$ 上, 可得电离概率幅

$$a_{\mathbf{p}}(t) \simeq a_g(t_s) e^{-iW_C(\mathbf{r}_s(\mathbf{p}, t))} e^{iI_p t_s} R_{\kappa l 0}(\mathbf{p}) \times e^{-\frac{i}{2}\int_{t_s}^t [p + \mathbf{A}(t'')]^2 dt''},$$

其中

$$W_C(\mathbf{r}_s(\mathbf{p}, t)) = \int_{t_{\kappa}}^t d\tau U \left(\int_{t_s}^{\tau} dt'' [p + \mathbf{A}(t'')] \right)$$

为库仑项, 轨迹

$$\mathbf{r}_s(\mathbf{p}, t) \equiv \int_{t_s}^t [p + \mathbf{A}(t'')] dt''.$$

此式对所有时间 t 均成立, 只要求 t 通过原时间积分的鞍点 $t_s = t_s(\mathbf{p})$. 注意当 $t = T$ 时, 此式等于 (9) 式中 T 很大时的电离概率幅 $a_{\mathbf{p}}(T)$. 它对连接复时间鞍点 $t_s = t_0 + i\tau_T$ 与实轴上时间点 t_0 的路径也成立, 允许分析隧穿过程中波包 $\Delta\Psi$ 是如何形成的.

另一方面, 也可对 $a_{\mathbf{p}}(t)$ 中 \mathbf{k} 的积分应用稳相近似, 可得

$$a_{\mathbf{p}}(t) \simeq \int d\mathbf{r} (a_g(t_s)) \frac{R_{\kappa l 0} e^{-iW_C - i\pi/4 + iI_p t_s}}{[2\pi(t - t_s)]^{3/2}} \times e^{\frac{i}{2}\frac{(\mathbf{r} - \mathbf{r}_s(\mathbf{p}, t))^2}{t - t_s}} e^{-\frac{i}{2}\int_{t_s}^t (p + \mathbf{A}(t''))^2 dt''}.$$

可见 ARM 联系了亚周期电离动力学与隧穿波包的结构. 在经典禁戒区, 复时间 $t - t_s = -i\xi$ 导致高斯型波包 $e^{-[\mathbf{r} - \mathbf{r}_s(\mathbf{p}, t)]^2/2\xi}$ 以轨迹 \mathbf{r}_s 为中心, 随 $(t - t_s)^{-3/2}$ 逐渐扩散. 因此, 隧穿后的动量分量都对应一个从经典禁戒区中产生并且不断扩散的高斯波包.

4 亚周期光场中的库仑效应

过去的研究中, 往往仅考虑光场幅最大时刻离开的光电子的轨迹以研究库仑效应对总电离率的影响, 这在 γ 很大时甚至也适用^[38]. 而当研究高次谐波等问题时, 场幅最大后离开母核的轨迹 (短轨迹) 也十分重要, 亚周期的强场光电离效应中的非绝热效应会对光电子谱产生一定影响^[34], 因此, 亚周期瞬时电离率的研究成为一种需要. 在 TCSEFA 方法中, 库仑势的作用在两方面得到体现, 库仑势场一方面会影响轨迹的演化, 另一方面在连带的作用量上加入了额外的库仑相互作用项. 而在 ARM 中, 库仑效应只反映在作用量 W_C 上, 适宜于描述库仑势场中发生的“软”散射. 当然, TCSEFA 本身的修正也是在直接电子电离概率幅的基础上进行的, 尽管对“硬”散射 (即 HATI 的部分) 的描述在轨迹的经典行为上符合观测结果, 但高阶项的量子概率幅尚未完善.

ARM 半经典轨迹分析可用于解释库仑势对亚周期瞬时电离率的影响. 假定 $p_{\perp} = 0$, 库仑势的贡献为 e^{-iW_C} , 其中, 轨迹始于 $t_s(p_{\parallel}) = t_0(p_{\parallel}) + i\tau_T(p_{\parallel})$, 沿该轨迹计算

$$W_C(p) = \int_{t_{\kappa}}^t d\tau U \left(\int_{t_s}^{\tau} dt'' [p_{\parallel} + A(t'')] \right),$$

积分路径可分为两段, 第一段 C_1 始自 $t_{\kappa} = t_0 + i\tau_T - i/\kappa^2$, 平行于时间虚轴下降到实轴的 t_0 点. 第二段 C_2 沿着实轴从 t_0 演化到 t . 库仑势被解析延拓到复平面上, $V_C(x) = -Q/|x|$ 被延拓为 $V_C(x + iy) = -Q/\sqrt{(x + iy)^2} = -\text{sign}(x)Q/(x + iy)$. 这里只关心对电离率有贡献的库仑修正因子的虚部. 当光场最大时, 虚部只沿第一段路径累计作用, 尽管在原则上, 两段路径对库仑修正均有贡献. 对电离概率 $|a_p(t)|^2$ 的库仑影响可表达为 $e^{2W_{C_1} + 2W_{C_2}}$, 其中,

$$W_{C_1} = \frac{Q}{\omega} \int_0^{\phi_{\kappa}} \frac{|r'_1|}{r_1'^2 + r_1''^2} d\phi,$$

$$W_{C_2} = \frac{Q}{\omega} \int_{\phi_i}^{\omega t} \text{sign}(r'_2) \frac{r_2''}{r_2'^2 + r_2''^2} d\phi',$$

其中 $\phi_{\kappa} = \omega\tau_{\kappa} = \omega(\tau_T - 1/\kappa^2)$, $\phi_{\tau} = \omega\tau_T$ 为无量纲时间变量, 积分路径的两段电子轨迹的实部 r' 与虚部 r'' 分别可求,

$$r'_1 = \alpha(F/\omega^2) |\cos \phi_i| (\cosh \phi_{\tau} - \cosh \phi),$$

$$r''_1 = \beta(F/\omega^2) |\sin \phi_i| (\sinh \phi_{\tau} - \sinh \phi + \cosh \phi_{\tau}(\phi - \phi_{\tau})),$$

$$r'_2 = (F/\omega^2) [\cos \phi - \cos \phi_i \cosh \phi_{\tau} + \sin \phi_i \cosh \phi_{\tau}(\phi - \phi_i)],$$

$$r''_2 = \beta(F/\omega^2) |\sin \phi_i| (\sinh \phi_{\tau} - \phi_{\tau} \cosh \phi_{\tau}),$$

这里, $\alpha = -\text{sign}(\cos \phi_i)$, $\beta = \text{sign}(\sin \phi_i) = \text{sign}(p_{\parallel})$. α 与电离时刻电场的正负有关, 决定了电子外逸的方向, β 则包含了电子动量方向的信息. 由 α 与 β 的组合可以发现两种图像: 一种情况, 当 $\alpha = \beta$ 时, 电子沿着负(正) z 方向以负(正)动量外逸, 这种情况下电子不再返回母核, 对应于 $\phi_i \in (-\pi/2, 0), (\pi/2, 0), \dots$ 的电离时间, 此时势垒开放. 另一情况, 当 $\alpha \neq \beta$ 时, 势垒关闭, 电离发生后电子被反方向的动量拉回母核而可能导致回碰. 在只考虑第一种直接电离的情况可直接求得 W_{C_1} 与 W_{C_2} . W_{C_1} 在一个周期内的变化很小, W_{C_2} 的亚周期动力学依赖于速度的符号 β . 对于直接电

离, $W_{C_2} < 0$ 导致电离被抑制, 该修正过程本质上是非绝热的. 当势垒变薄开放时, 可以认为电子被拉回被母核俘获. 非绝热修正 $e^{2W_{C_2}}$ 不会影响产生于光场峰值附近的电子, 但是, 在电离窗口开启附近隧穿而出的电子的电离概率会被抑制达三个量级.

5 近零能结构的复轨迹分析

5.1 隧穿电离发生后的复轨迹演化

在过去半经典轨迹分析中, 往往只将虚时间演化方法应用于隧穿过程, 隧穿后连续态的光电子动力学均以实轨迹处理. 但最近的研究发现, 隧穿后的光电子轨迹依然可以维持复值, 且其虚部具有实际的物理意义^[20], 这使连续态运动过程也能改变电离概率幅. 在此过程中, 电子可能首先被束缚势捕获为里德堡态, 而在接下来与光场的相互作用中进一步再电离. 另外, 电子波包在离开母核的过程中被库仑场减速, 导致了光电子动量分布趋向低能部分.

通过对远离母核的 EVA 波函数与母核附近使用 WKB 近似的束缚态波函数进行匹配可以为轨迹提供初始条件. 通过这种匹配获得的轨迹在进入经典禁戒区域时是实值的, 这导致了在轨迹隧穿后, 即离开经典禁戒区域, 轨迹沿实时间轴演化时, 轨迹坐标的虚部非零. 这样, ARM 理论不同于电离隧穿后只使用实值轨迹的 TCSFA 方法^[10,11]. ARM 方法允许隧穿后的轨迹依然保持复值, 这使其在实时间演化过程中也能改变轨迹的权重. 这是因为, 在数学上, 位置决定了作用量, 作用量的虚部决定了复变量振幅的变化, 而在物理上, 这对应了全经典轨迹方法中发现的动态聚焦效应^[39,40].

半经典轨迹虚部的重要性在光电子回碰母核的时候表现得最为突出. 数学上, 母核势被扩展到复平面, 当轨迹实部较小时, 解析延拓后的复平面上会存在积分路径无法直接通过的分支切割面 (branch cuts), 这使得常用的标准积分路径不再可行 (如 TCSFA 中, 从电离时间点直接积分到实时间轴, 再沿着实轴进行积分). 这种情况下, 为了保证路径的连续性需要发展系统性程序化的方法探索库仑作用造成的分支切割面. 研究发现, 分支切割面总是成对出现, 在一对分支切割面之间包含着一个距离原点 $\sqrt{r(t)^2}$ 的鞍点, 该鞍点是最接近时间

方程 $\mathbf{r}(t) \cdot \mathbf{v}(t) = 0$ 的解. 不论从复量子轨迹还是从 simple-man 经典轨迹的角度进行分析, 这些最接近时间解都构成具有丰富拓扑性质的结构面. 从实用计算的角度而言, 通过选择一系列合适的最近时间, 人们可以系统地选择正确的积分路径.

在此框架下, 可以研究与 NZES 相关的软回碰过程. 所谓软回碰轨迹, 指的是电子在纯光场驱动轨迹的拐点处趋近母核并受母核作用发生轻微偏折, 但不会与母核发生对碰. 回碰轨迹显然指那些已经隧穿而出的电子, 但考虑到引入隧穿后复轨迹的概念, 这允许回碰过程改变电离概率幅. 软回碰表现为不同分支切割面间的复杂相互作用, 以两组或三组最近鞍点解彼此靠近以及分支切割面位型的拓扑变化为典型特征. 光电子在母核离子附近驻留时间更长, 在复平面上表现为奇点与鞍点相互接近, 导致了电离概率幅值的增加, 反映了实验中增强的光电子峰. 在文献 [18] 的分析中, 离子库仑势被假定不会改变轨迹的经典运动, 它只影响波函数的相位, 这样的假设可以大大简化分析过程. 下面, 将在纯光场驱动轨迹的基础上, 介绍软回碰过程与 NZES 的关系.

5.2 纯光场驱动下经典轨迹的软回碰

Simple-man 模型是描述隧穿电离后光电子动力学最简单的方法. 考虑单色线偏振光场, 场强为 $\mathbf{F}(t) = F \cos \omega t \hat{z}$, 矢势为

$$\mathbf{A}(t) = -\int \mathbf{F}(t) dt = -(F/\omega) \sin \omega t \hat{z}.$$

在 SFA 中, 电子速度 $\mathbf{v}(t) = \mathbf{p} + \mathbf{A}(t)$, 其中 \mathbf{p} 为探测器处测得的正则动量. 在 $t_s = t_0 + i\tau_T$ 时刻发生电离, 外逸电子从于原点处出发, 满足鞍点方程 $\frac{1}{2}[\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s)]^2 + I_p = 0$. 电子的复空间轨迹为

$$\mathbf{r}_{\text{cl}}(t) = \int_{t_s}^t [\mathbf{p} + \mathbf{A}(\tau)] d\tau.$$

软回碰事件发生在激光驱动轨迹的拐点, 电子在母核附近的拐点处速度为零. 为了找到经典轨迹中的软回碰时间 t_r , 令位置与速度的实部均为零,

$$\begin{aligned} \text{Re}[z_{\text{cl}}(t_r)] &= \text{Re} \left[\int_{t_s}^{t_r} [p_z + A(\tau)] d\tau \right] = 0, \\ v_z(t_r) &= p_z + A(t_r) = 0. \end{aligned}$$

代入单色光场, 进一步表达为可数值求解的运动方程

$$z_{\text{exit}} + p_z(t_r - t_0) + \frac{F}{\omega^2} [\cos \omega t_r - \cos \omega t_0] = 0,$$

$$p_z - \frac{F}{\omega} \sin \omega t_r = 0, \quad (11)$$

其中

$$\begin{aligned} z_{\text{exit}} &= \text{Re} \left[\int_{t_s}^{t_0} [p_z + A(\tau)] d\tau \right] \\ &= \frac{F}{\omega^2} \cos(\omega t_0) (1 - \cosh \omega \tau_T) \end{aligned}$$

为隧穿出口. 因为所有的软回碰都发生在相比 U_p 能量很小的情况, 可以将轨迹以 p_z 为小量做展开(线性化). 由鞍点方程可将初始电离时间 t_s 表达为

$$\begin{aligned} t_0 + i\tau_T &= \frac{1}{\omega} \arcsin \left(\frac{\omega}{F} (p_z + i\kappa) \right) \\ &\simeq \frac{p_z}{F} \frac{1}{\sqrt{1 + \gamma^2}} + i \frac{1}{\omega} \text{arcsinh} \gamma, \end{aligned}$$

其中 Keldysh 参数 $\gamma = \omega\kappa/F$, 则

$$t_0 \simeq \frac{p_z}{F} \frac{1}{\sqrt{1 + \gamma^2}}, \quad \tau_T = \frac{1}{\omega} \text{arcsinh} \gamma.$$

代入隧穿出口并取级数展开的第一项, 得 $z_{\text{exit}} \simeq -(F/\omega^2) (\sqrt{1 + \gamma^2} - 1)$. 在隧穿极限 $\gamma \ll 1$ 下, z_{exit} 趋于 $-I_p/F$. (11) 式在线性化后近似为

$$\begin{aligned} p_z t_r + \frac{F}{\omega^2} [\cos \omega t_r - \sqrt{1 + \gamma^2}] &= 0, \\ p_z - \frac{F}{\omega} \sin \omega t_r &= 0. \end{aligned} \quad (12)$$

求解 (12) 式需要对 t_r 关于 p_z 进行线性化. 对未做近似的原系统数值求解可以发现, 每半个周期在 $\omega t_r = 2\pi$ 后都会发生一次软回碰, 因此令 $\omega t_r = (n+1)\pi + \omega \delta t_r$, 其中 $n = 1, 2, 3, \dots$, 代入 (12) 式可得 $\delta t_r \simeq (-1)^{n+1} p_z/F$, 且有 $\cos \omega t_r \simeq (-1)^{n+1}$, 因此反过来可求发生连续软回碰的轨迹的漂移动量:

$$p_z^{\text{sr}} \simeq \frac{F}{\omega} \frac{\sqrt{1 + \gamma^2} + (-1)^n}{(n+1)\pi}.$$

该式可以很好地近似 (11) 式的精确解. n 的奇偶性决定了轨迹从哪个方向回碰母核, 它赋予了轨迹不同的行为, 特别是随 γ 变化的尺度关系: 对于 n 为奇数, 隧穿极限 $\gamma \rightarrow 0$ 下,

$$p_z^{\text{sr}} \simeq \frac{F}{\omega} \frac{\gamma^2}{(n+1)2\pi} = \frac{\gamma\kappa}{(n+1)2\pi},$$

对 κ 固定的特定原子, 动能 $p^2/2 \propto \gamma^2$; 对于 n 为偶数,

$$p_z^{\text{sr}} \simeq \frac{F}{\omega} \frac{1}{(n+1)\pi} = \frac{\kappa}{\gamma(n+1)\pi},$$

动能 $p^2/2 \propto \gamma^{-2}$. 在波长为 $3.1 \mu\text{m}$, 强度为 $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 的外光场中, 氩原子在 n 为奇

数情况下, 最高动量 $p_z \simeq 0.02$ a.u., 对应 8 meV 的动能, 这与 NZES 的观测范围相一致.

实验上可以通过研究 NZES 光电子能量是否具有 $\gamma^2 I_p$ 的尺度关系来决定软回碰机制是否起作用. 受限于当前实验条件对低能区电子能量探测的分辨率, 同时又需要保证系统处于 $\gamma \rightarrow 0$ 的隧穿极限, 这个尺度关系对当前实验而言过于苛刻. 它暗示了使用具有高电离能的靶将有益于 NZES 的探测, 例如, 通过离子束或顺序电离制备具有四倍于氢原子电离能的 He^+ 离子, 可使用不同光强与波长, 在保持 γ 很小的同时也能令 $p_z^{\text{sr}} \sim \gamma \kappa = \kappa^2 \omega / F$ 足够大, 以使直接测量成为可能.

两类软回碰轨迹的动量比率构成了一组与系统参数无关的序列. 当 n 为偶数, 序列为 3/5, 5/7, 7/9, ...; 当 n 为奇数, 序列为 1/2, 2/3, 3/4, ... 当前实验条件还难以实现对上述序列的验证, 但这种探测一旦实现将对隧穿出口的确定产生重要意义.

在软碰撞过程中, 不论是经典轨迹的动态聚焦, 还是量子轨迹中作用量虚部的增加导致的复振幅增强, 均可用来解释产生的光电子谱峰. 奇数 n 轨迹与 U_p 间的尺度关系为人们提供了一个独立的窗口去了解 NZES 的行为, 特别是涉及有关激光场中产生里德堡态的解释^[41,42]. 如果系统中已存在里德堡态, 高激发态电子会被之后探测的牵引场再电离, 这种机制下, 光电子谱峰宽与将牵引场参数有关. 有关里德堡态的解释与这里讨论的软回碰机制很有可能将互相影响.

5.3 ARM 中的半经典复值轨迹分析

从光电离的 ARM 理论中可以自然地发现两类软回碰. 在 ARM 理论中, 可以认为母核势对光电子的主要贡献是相位的影响, 通过使用 EVA 波函数严格验证. 类似于 SFA 中, 对电离时间进行积分可以利用鞍点近似进行化简, 这提供了基于半经典轨迹的物理图像. 从 ARM 中所得的电离概率幅可以从量子轨迹的角度解释光电子行为. 在时刻 t_s 发生电离, 之后逸出的电子向探测方向演化, 直到时刻 T 结束. 电子速度为 $\mathbf{v}(t) = \mathbf{p} + \mathbf{A}(t)$, 电子轨迹位置

$$\mathbf{r}_{\text{cl}}(t) = \int_{t_s}^t [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)] d\tau. \quad (13)$$

随着轨迹演化, 根据 (9) 式, 不同来源的相位贡献不断积累: 来自电离前束缚态的 $e^{iI_p t_s}$, 来自电离后光场中运动的 $e^{-\frac{i}{2} \int_{t_s}^T [\mathbf{p} + \mathbf{A}(\tau)]^2 d\tau}$, 来自库仑相互作用的 $e^{-i \int_{t_s}^T U(\mathbf{r}_{\text{cl}}(\tau)) d\tau}$. 因为相位为复值, 它们不仅贡献纯相位, 也会对幅值造成影响并决定了隧穿的发生概率. 复平面上的积分需要选择积分路径. 原则上, 只要连接首尾两点, 任意连续路径都可以用作积分路径, 常见的做法以 TCSFA 为例, 选择平行于时间虚轴的路径从 t_s 直降到实时间轴, 再沿着实时间轴演化到 T , 这样, 两段路径分离了时间变量的实部与虚部. 积分中, 前半段路径贡献了幅值因子 $|e^{iI_p t_s} e^{-\frac{i}{2} \int_{t_s}^{t_0} [\mathbf{p} + \mathbf{A}(\tau)]^2 d\tau}|$, 它自然地包含了隧穿概率. 后半段路径再沿实轴演化, 处理起来很方便. 然而, 可以证明, 这样选择的路径在实轴段的积分上可能存在问题.

在 ARM 中使用匹配过程的主要效果是将依赖于初始位置 \mathbf{r} 的光场驱动轨迹

$$\mathbf{r}_L(\tau; \mathbf{r}, \mathbf{p}, t) = \mathbf{r} + \int_t^\tau [\mathbf{p} + \mathbf{A}(\tau')] d\tau'$$

替换为 (13) 式从原点出发的轨迹 $\mathbf{r}_{\text{cl}}(t)$, 且该轨迹所关联的库仑作用相因子变为

$$\exp \left[-i \int_{t_s}^T U(\mathbf{r}_{\text{cl}}(\tau)) d\tau \right].$$

新的库仑修正相因子中包含的时间积分是对原 EVA 库仑修正相因子

$$\exp \left[i \int_T^t U(\mathbf{r}_L(\tau; \mathbf{r}, \mathbf{p}, t)) d\tau \right]$$

中实值积分的解析延拓, 它唯一地确定了用于库仑修正的轨迹, 初始条件由匹配过程所决定.

ARM 与 TCSFA 中对轨迹的使用有几点不同. ARM 中, 轨迹 $\mathbf{r}_{\text{cl}}(t)$ 只由纯光场作用下的运动方程 $\ddot{\mathbf{r}}_{\text{cl}}(t) = -\mathbf{F}(t)$ 决定, 这不同于 TCSFA 方法中轨迹满足复合场下 (同时包含激光场与库仑势场) 相互作用的运动方程. 这种选择的合理性是, EVA 波函数里出现 \mathbf{r}_{cl} , 若想包含母核势对轨迹的作用, 在 EVA 波函数的层面上处理应是理想的选择. ARM 初始条件的选择不同于 TCSFA 中的初始条件. ARM 中, 轨迹的初始条件是从第一性原理中获得的, 它要求轨迹在隧穿入口处为实, 而不限定轨迹在出口处的性质; 而在 TCSFA 中, 假定轨迹在隧穿出口处为实. 但不论选取何种方法, 在复空间中计算包含全相互作用的运动方程的半经典轨迹都存在很多困难, 其中, 困难之一就在于复时间平面上会出现分支切割面.

ARM 方法允许使用基于轨迹的方法来描述母核势对光电子的作用. 沿着电子的复轨迹对势能做积分, 可以得到正确的修正因子

$$\exp \left[i \int_T^t U[\mathbf{r}_L(\tau; \mathbf{r}, \mathbf{p}, t)] d\tau \right].$$

在时刻 t_κ 处, 轨迹始于实位置 $\mathbf{r}_{cl}(t_\kappa) \simeq -\hat{z}/\kappa$, 但此后轨迹演化进入复数域, 积分函数、积分时间与轨迹位置均为复值. 位置的虚部有两个来源, 其一源自横向动量 p_\perp , 因为实值的 p_\perp 会在时间 $t_s = t_0 + i\tau_T$ 与 $t = t_0$ 间积累纯虚的横向位移 $i\mathbf{p}_\perp\tau_T$. 另外, 纵向位置也会通过对矢势的积分产生虚分量.

在电子向探测器演化的方向上, 当积分时间为纯实时, (13) 式中的积分函数总为实值, 沿实轴演化过程中, 虚位置将不变, 在 T 时刻前电子被探测到前它将一直维持存在, 但那时位置变量在演化过程中积累的实部将远超虚部. 但在回碰过程中, 位置变量的实部会减小, 虚部将居于主导, 这在计算母核势时成为一个需要讨论的问题. 对于库仑势, 最简单的形式可写为复平面上的解析表达式 $U(\mathbf{r}) = -1/\sqrt{\mathbf{r}^2} = -1/\sqrt{x^2 + y^2 + z^2}$. 对于使用了平方根的复值库仑势, 复平面上沿着 $\mathbf{r}^2 \in (-\infty, 0)$ 方向会存在无法忽略的分支切割面. 电子回碰时会遇到这些分支切割面, 同时, \mathbf{r}^2 的虚部会远大于实部. 实际上, 复值位置的平方可被分解为 $\mathbf{r}^2 = \text{Re}\mathbf{r}^2 - \text{Im}\mathbf{r}^2 + 2i\text{Re}\mathbf{r} \cdot \text{Im}\mathbf{r}$. 在 $\text{Im}\mathbf{r}^2 > \text{Re}\mathbf{r}^2$ 的条件下, 当 $\text{Re}\mathbf{r} \cdot \text{Im}\mathbf{r} \rightarrow 0$ 时 (即符号改变处), 轨迹到达分支切割面, 导致 $\sqrt{\mathbf{r}^2}$ 在复平面上随 \mathbf{r} 的变化不连续, 因为虚部 $\text{Im}\sqrt{\mathbf{r}^2}$ 的符号会发生突然改变. 如果积分路径不加选择地直接经过该分支切割面, 以 t 为变量的库仑势作用量积分不再是解析函数, 这样就无法将实值积分式 (4) 转化为复平面上通过鞍点 t_s 的曲线积分, 计算结果也将失去意义. 为了解决这个问题, 需要将整个势能看作是复变量时间 t 的单值解析函数, $U[\mathbf{r}_{cl}(t)] = -1/\sqrt{\mathbf{r}_{cl}(t)^2}$, 通过共形映射 $t \mapsto \mathbf{r}_{cl}(t)^2$ 可以将 $U(\mathbf{r})$ 的分支切割面嵌入到时间复平面中. 当电子回到母核附近时, 一般的积分路径可能会经过分支切割面, 为了保证库仑修正相因子的解析性, 人们须将积分路径移离实轴, 避开分支切割面, 使积分函数再次解析连续. 这个过程也会同时改变复值轨迹的路径 $\mathbf{r}_{cl}(t)$, 其主要效果是最小化碰撞时刻的 $\text{Im}\mathbf{r}_{cl}(t)$. 通常, 所选时间路径

与空间坐标的关系复杂, 末态动量 \mathbf{p} 对分支切割面的结构以及 $U(\mathbf{r}_{cl}(t))$ 也具有很强的影响, 特别是在软回碰过程中有时会十分敏感, 因此也会决定如何选择复平面上的路径.

5.4 路径选择-最接近时间

因为横亘在实轴上的分支切割面会阻碍标准积分路径的使用, 为了避免这种情况, 选择的积分路径需要通过分支切割面缝隙间的避障门 (slalom gate). 计算光电子动量谱时会涉及大量不同的动量参数, 因此, 发展一套系统的程序方法使之能够按动量自动选择合适的积分路径是十分必要的.

通过研究两个分支切割面之间空隙的性质, 可以发现选择合适积分路径的方法. 已知每个分支切割面都是 $\text{Re}\sqrt{\mathbf{r}_{cl}(t)^2} = 0$ 的等高线, 如果分支切割面能够组成避障门的构型, 切割面之间总会出现鞍点, 它是自动选择避开分支切割面的重要对象. 能在复平面上横跨左右的路径, 离原点的实值距离 $\text{Re}\left[\sqrt{\mathbf{r}_{cl}(t)^2}\right]$ 会先减少, 到达其最小值后再增大. 对通过分支切割面的路径, 最小值为零, 这伴随着虚部符号的变化, 造成复变函数的不连续性. 而对于避开分支切割面的路径, 当它通过鞍点时可以获得最大化的最小值. 因此, 可以称鞍点为“最接近时间”, 定义为 t_{CA} . 准确地说, 通过 $t = t_{CA}$ 的路径使得得到原点的距离 $\text{Re}\sqrt{\mathbf{r}_{cl}(t)^2}$ 最小时的实部具有最大值. 换句话说, 它可以令电子在最接近母核时的距离达到最大. 类似地, 当沿着这些所选路径计算库仑势时, 可以在保证路径不遭遇分支切割面的情况下, 最小化 $1/\sqrt{\mathbf{r}_{cl}(t)^2}$ 实部与绝对值的最大值, 并令库仑相互作用尽可能地保证有界. 为了找出鞍点, 需求出令 $\partial_t \sqrt{\mathbf{r}_{cl}(t)^2} \stackrel{!}{=} 0$ 的解, 进一步知需满足 $\partial_t [\mathbf{r}_{cl}(t)^2] = 0$, 则鞍点条件为

$$\mathbf{r}_{cl}(t_{CA}) \cdot \mathbf{v}(t_{CA}) = 0. \quad (14)$$

描述该式的物理图像是, 电子回到母核附近, 当速度与位置矢量垂直时, 电子与母核距离最近. 不论是经典轨迹还是复值半经典轨迹描述, 该式的解均表现出丰富的几何结构, 而当软回碰发生时, 相应时间与动量关系即为几何结构中的临界点.

5.5 经典最接近时间解的特征

值得说明的是, (14) 式的解未必全都是最接近时间. 不难想象, 不论电子离母核有多远, 经典轨

迹中拐点也是 (14) 式的解, 因为它们也是 r^2 的极值点. 为了用最接近时间避免分支切割面, 需要区别避障门中心点 t_{CA} 与其他解. 某些情况下容易区分这些解, 如当 $p_{\perp} = 0$ 时, 其解可分成满足 $v_z(t) = 0$ 的拐点与满足 $z_{cl}(t) = 0$ 的回碰点. 进一步, 通过计算 $d^2[r_{cl}(t)^2]/dt^2$ 的正负号, 可以根据 $r_{cl}(t)^2$ 的最小值与最大值对拐点进行归类. 这种情况下, 软回碰发生在两条曲线的交点, 即同时满足 $v_z(t) = 0$ 与 $z_{cl}(t) = 0$ 的时间. 随着动量变化, 拐点的个数可能发生变化, (14) 式的根能够在拐点曲线的极值点处合并, 在这些点上, 纵向动量大于振荡幅度 F/ω , 速度 $v_z(t) = p_z - \frac{F}{\omega} \sin(\omega t)$ 将不再改变符号. 当 $p_x \neq 0$ 时, 最接近时间的解形成了单个结构面, 它包含了一系列有界的叶瓣. 叶瓣在软回碰点处彼此相连, 局域上看起来果核. 这样, 就有可能通过结构面上的路径连续地连接任何两个根. 在一般情况下, 没有简单的办法可以直接区分拐点与最接近时间点.

但是, 还是可以鉴别出向外的拐点, 因为 $r_{cl}(t)^2$ 在这类拐点处具有局域最大值. 更具体地说, 任何常动量的水平线需要通过一个最大值点进入表面, 而从一个最小值点离开表面, 因为任何轨迹都会在最大值与最小值间相互交替. 这样, 表面点的最大值一侧指向负 t , 最小值一侧指向正 t . 在结构面上两部分的边界处, 最大与最小合并消失.

5.6 量子最接近时间解的特征

因为具有额外的虚时间维度, 量子最接近时间解具有更丰富的几何结构. 解的数量得到增加: 在经典情况下, 两个实值解可以合并消失, 但在量子情况下, 复值解依然存在, 它会移动到含有虚时间分量的区域. 总的来说, 在经典解存在的情况下, 量子解和经典解相近. 以经典解的结构面为参考, 当趋近于瓣的尾端时, 对应的量子解会在实轴靠近彼此, 在保持实部相对常量的同时, 虚部向正负方向发散. 若将量子解投影到实时间, 结果就是一对彼此靠近的表面, 紧紧跟随着经典解结构面上最大值面与最小值面的部分, 当到达边界时, 发散为大致平行的渐进面.

前几个少量的最接近时间的解平滑地依赖于动量, 相对容易处理. 最重要的 t_{CA} 最接近事件发生在软回碰附近, 它具有非常复杂的动量依赖关系. 在量子区域, 软碰撞代表了三种不同的最接近

时间解之间的相互作用. 不同于经典时间, 这些根不会合并, 相反, 其中两个在三路碰撞规避之后移动进虚时间. 多个鞍点间的接近度表明了软碰撞时, 电子在离子附近驻留更久.

更有趣的是, 该三条路径的碰撞标记了与软碰撞有关的分支切割面构型中重要的拓扑变化. 外鞍点 $t_{CA}^{(1)}$ 与 $t_{CA}^{(3)}$ 具有一对与之相关的分支切割面, 它们位于虚时间面中. 不过, 这些结构会在 p_z 通过软回碰动量 p_z^{sr} 时发生改变. 如图 1(a), 对于 $p_z < p_z^{sr}$, 分支切割面未跨越实时间轴而转回虚时间域, 当轨迹动量较低时, 轨迹碰撞不特别剧烈, 相关的分支切割面没有强迫改变路径. 但当 $p_z = p_z^{sr}$ 时, 分支切割面接触并发生重连, 当 $p_z > p_z^{sr}$, 如图 1(b), 拓扑结构变化, 此时轨迹经过母核, 相关的分支切割面跨越实轴, 迫使积分路径改变以通过分支切割面构成的避障门.

这个过程对电离概率幅的计算有重要的影响, 因为积分函数刚好在它最大的时候发生剧烈变化. 在此区域里, 选择错误的路径会影响积分函数中具有最大贡献的部分, 进而影响积分本身. 出乎意料的是, 一旦迫使路径穿过门点 t_{CA} , 对于刚好高于 p_z^{sr} 的 p_z , 它们的贡献会抑制电离概率.

为了澄清电离抑制发生的过程, 考虑图 1(a) 中构型的积分 $\int U[r_{cl}(t)]dt$. 在中心鞍点处 $t_{CA}^{(2)}$, $\sqrt{r_{cl}(t)^2}$ 有最小值, $1/\sqrt{r_{cl}(t)^2}$ 具有最大值, 是整个积分的主要贡献. 此时, 接近距离 $r_* = \sqrt{r_{cl}(t_{CA}^{(2)})^2}$ 的主要成分是一个适中的正值虚部, 意味着 $U_* = -1/r_*$ 值较大且为虚值, 修正因子 $e^{-i \int U dt}$ 的幅值因此较大.

另一方面, 图 1(b) 中积分主要是由避障门最接近时间决定的, $r'_* = \sqrt{r_{cl}(t_{CA}^{(1)})^2}$ 几乎为实值, 其值比 r_* 的小很多, 相应的势 $U'_* = -1/r'_*$ 接近一个很大的负值实数, 因此 $-iU'_*$ 沿着 $+i$ 方向. 但是, 线元 dt 需要带着一个正值虚部沿上坡行进以强调鞍点的贡献, 这使得 $-i \int U[r_{cl}(t)]dt$ 具有一个很大的负值实分量, 进而抑制库仑修正因子 $e^{-i \int U dt}$.

这个效应在光电子谱中呈现为刚好在软回碰下出现的高峰伴随着一个深而窄的沟道. 实验上, 沟道极有可能被附近的数据平均掉, 但峰应当会被观测到. 此外, 这些效应反映了基于经典轨迹方法所得布居的重排, 动态聚焦产生的峰代表了从其他渐进动量获取的轨迹, 相应的幅值会缩减.

5.7 积分路径的设计

复时间平面上, 分支切割面的拓扑变化除了会影响电离概率幅, 也会影响积分路径的设计. 利用最接近时间可以找到避障门来避免分支切割面, 但

不是所有的 t_{CA} 都是需要经过的点, 一些避障门会将积分路径最终引入本无需跨越的死胡同. 通过算法可以获得适当的路径, 对于外鞍点, 在软回碰时, 连接分支切割面间的拓扑变化总是伴随着 $v(t)^2$ 实部的变化.

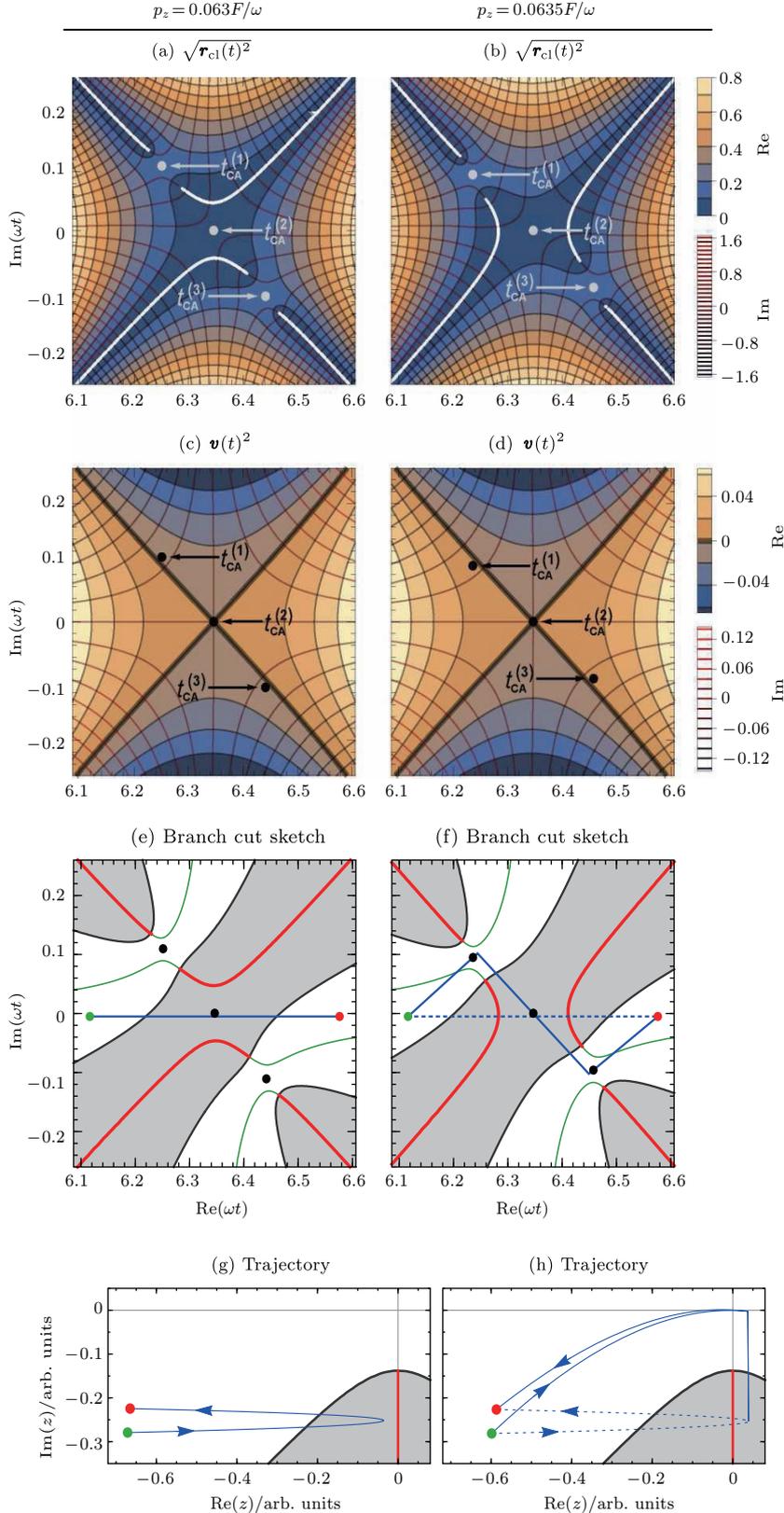


图1 摘自文献 [18] 中图 12, 在软回碰的过程中, 量子最接近时间表现为三路接近 (a) 与 (b) 显示, 当接近发生时, 与这些鞍点有关的分支切割面会发生重连并改变拓扑结构; (c) 与 (d) 显示, 当拓扑发生改变时, 外鞍点 $t_{CA}^{(1)}$ 与 $t_{CA}^{(3)}$ 出现在经典禁戒区域, 动能的实部 $\text{Re} \left[\frac{1}{2} v(t)^2 \right]$ 会改变符号, 拓扑结构变化后, 回碰的光电子无需通过隧穿便可到达外鞍点, 这时积分路径应当经过它们; (e) 与 (f) 展示了相关的分支切割面以及对不同拓扑结构所选择合适的积分路径; (g) 与 (h) 展示了上述所选积分路径所对应的复值轨迹沿着 z 方向的演化. 如果光电子在演化中没有到达母核, 轨迹不存在特殊变化. 但是, 对于较高的动量, 若轨迹经过原点 (h), 继续沿用 (f) 中虚线的积分路径将会导致遭遇分支切割面, 因此需要通过改变积分路径来避开切割面

Fig. 1. Adapted from Fig.12 in Ref. [18]. The closest approach times perform a three-way close approach during a soft recollision. (a) and (b) show the branch cuts of these saddle points will reconnect and the topologies will change, at which point the outer saddle points $t_{CA}^{(1)}$ and $t_{CA}^{(3)}$ emerge from the classically forbidden region and the kinetic energy $\text{Re} \left[\frac{1}{2} v(t)^2 \right]$ changes sign, as shown in (c) and (d). After the change, the outer saddle points can be reached without tunneling and the integration contour should pass them. Panels (e) and (f) illustrate the relevant branch cuts along with the proper integration contour for each topology, the corresponding trajectories moving along z -axis are shown in (g) and (h). No change occurs if the electron does not return to the core as shown in (g), however, the trajectory passes the origin and would cross the associated branch cut if taken along the dashed integration contour of (f), so the contour must be deformed to avoid it, as shown by the solid line.

在图 1(b) 的闭合拓扑结构中, 在鞍点 $t_{CA}^{(1)}$ 与 $t_{CA}^{(3)}$ 处, 动能实部 $\text{Re}[\mathbf{v}(t_{CA})^2]$ 为正值, 路径通过了这些最接近时间点. 对比之下, 在图 1(a) 的开放拓扑中, $\text{Re}[\mathbf{v}(t_{CA}^{(1)})^2]$ 与 $\text{Re}[\mathbf{v}(t_{CA}^{(3)})^2]$ 均为负值, 路径丢弃了这两个鞍点. 这个选择标准的物理意义在于, 经典禁戒区是复平面上动能值或其实部为负的区域. 如图 1(a) 所示, 被舍弃的鞍点是那些在回碰过程中, 对应于轨迹向母核方向行进需要穿越势垒的鞍点.

根据这个标准, 产生积分路径所选取的最接近时间只要满足: 1) 发生在电离以后; 2) 虚部合理地有界; 3) 动能为正值. 然后将这些满足条件的最接近时间按 $\text{Re}[t_{CA}]$ 增加的次序排列, 就可以构成复时间平面上正确的积分路径.

5.8 库仑修正电离率

引入库仑修正因子相比标准 SFA 能将光电离率提高 2 到 3 个量级, 这主要是在经典禁戒区内的库仑相互作用导致的, 这种增强效应在经典软碰撞 p_z^{sr} 处具有很强的变化. 导致了在 p_z^{sr} 一侧动量分布会高度增强, 而在另一侧则出现一个深而窄的沟道. 在母核附近出现多个鞍点, 标志着电子在母核附近驻留得更久, 也意味着库仑修正需要足够大,

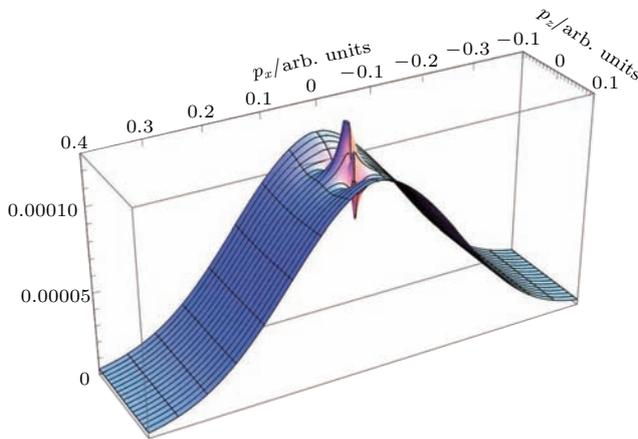


图 2 摘自文献 [18] 中图 14 使用 ARM 方法计算的氩原子在长波长光场情况下 (波长 $\lambda = 3.1 \mu\text{m}$, $\gamma = 0.31$) 的 NZES 结构, 随着在母核附近驻留的时间的增加电离增强会形成电离率上的尖峰, 但随后会突然从增强变为抑制

Fig. 2. Adapted from Fig. 14 in Ref. [18]. The subcycle ionization yield calculated by ARM method shows the NZES in Argon for long-wavelength fields ($\lambda = 3.1 \mu\text{m}$, $\gamma = 0.31$). The ionization yield may get enhanced with the increasing time around the core when $p_z < p_z^{sr}$. However, the enhancement turns into a strong suppression for $p_z > p_z^{sr}$.

但是, 库仑修正的效果取决于发生软回碰时拓扑变化的细节. 如图 2 所示, 在发生软回碰的附近, 当横向动量很小时, 光电子动量谱上会出现一个锐利的脊, 脊终止于 p_z^{sr} . 这个脊类似于在长波长情况下, 动量谱上小横向动量附近观测到的尖峰 (cusps) [14]. 当 p_{\perp} 改变时, 尖峰会突然从高斯分布中突升而出. 在软回碰的另一侧, $p_z > p_z^{sr}$, 电离行为刚好相反, 电离增强变成电离抑制, 增强与抑制间的相互作用在其临近处形成复杂的结构.

在实验中很难完全分辨光电子动量分布结构中的细节, 但是现有条件应该能够观测到电离增强的突起结构. 此外, 通过图 2 中拓扑改变过程中电离信号发生从增强到抑制的快速变化, 比较其与波长的尺度关系, 可以建立光电离率与经典软回碰过程的直接联系, 也可设计实验探索两种低能结构尺度关系的不同.

6 总 结

ARM 方法从第一性原理的角度, 有效地对电子-光场、电子-母核势相互作用随作用范围的不同进行分区, 在半经典近似的基础上提供了包含库仑效应的强场电离的量子轨迹图像, 并将库仑势的效果简化为一个额外的作用量. 对于与低能区光电子谱有关的软回碰问题, 半经典轨迹可假定为从一个实值位置出发, 在穿越经典禁戒区域的同时获得虚分量的电子轨迹. 该虚分量在回碰点附近占主导地位, 会极大地影响复平面上的库仑相互作用 $U[\mathbf{r}_{cl}(t)] \cdot U[\mathbf{r}_{cl}(t)]$ 本应为解析函数, 但在解析延拓 $U(\mathbf{r}) = -1/\sqrt{\mathbf{r}^2}$ 时会产生分支切割面, 导致函数不连续, 积分时需谨慎, 可以通过精心设计的时间路径来避免这些分支切割面. 避免分支切割面的一个关键方法就是最接近时间 t_{CA} , 它满足复值方程 $\mathbf{r}_{cl}(t_{CA}) \cdot \mathbf{v}(t_{CA}) = 0$, t_{CA} 总会在每个分支切割面所组成避障门的中间出现. 不论是在复数域还是实数域 (simple-man 模型), 这些最接近时间本身就具有丰富几何结构. 此外, 与低能结构有关的软回碰信息也被嵌入在这些几何结构中.

使用最接近时间发展的系统性算法允许对所有动量都能够程序化地选择正确的积分路径. 特别是, 该公式除了引入了一系列能够产生已知低能结构的轨迹, 还预测了另一个系列的具有更低动量的轨迹. 这些轨迹不会出现在不包含隧穿入口的理论

中, 这解释了为何这些低动量轨迹迄今仍被忽视, 它们可能对 NZES 有贡献.

该方法为发展电离理论的全第一性原理提供了一个参考, 指出了可能遇到的困难及相应的解决方案. 在当前计算中, 轨迹本身仅考虑了激光驱动下的轨迹而尚未包含库仑势的作用, 但是可以预期, 试图包含库仑相互作用的的第一性原理也会遇到与 ARM 理论同样的虚位置性质, 且全轨迹计算会更加困难. 特别是, 类似的理论会像 ARM 理论一样, 遇到复时间平面上同样的分支切割面.

此外, 近零能结构形成机制的研究能够帮助设计实验方案. 特别是, 奇数阶软回碰轨迹的能量尺度比例为 γI_p^2 , 这表明, 针对更硬的目标, 如 He^+ , 相关实验会澄清这些结构的根源. 此外, 基于轨迹的解释为通过直接改变轨迹形状的进行探测的方案开放了大门. 这包括改变脉宽、椭圆偏振光等, 它提供了一个可用于理解低能光电子在隧穿区域半经典动力学行为的系统工具, 可为其他尚未发现的低能电离现象提供预言.

参考文献

- [1] Blaga C I, Catoire F, Colosimo P, Paulus G G, Muller H G, Agostini P, DiMauro L F 2008 *Nat. Phys.* **5** 335
- [2] Quan W, Lin Z, Wu M, Kang H, Liu H, Liu X, Chen J, Liu J, He X T, Chen S G, Xiong H, Guo L, Xu H, Fu Y, Cheng Y, Xu Z Z 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 093001
- [3] Liu C, Hatsagortsyan K Z 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 113003
- [4] Liu C, Hatsagortsyan K Z 2011 *J. Phys. B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **44** 095402
- [5] Liu C, Hatsagortsyan K Z 2012 *Phys. Rev. A* **85** 023413
- [6] Paulus G G, Becker W, Nicklich W, Walther H 1994 *J. Phys. B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **27** L703
- [7] Becker W, Grasbon F, Kopold R, Milošević D, Paulus G, Walther H 2002 *In Advances in Atomic, Molecular, and Optical Physics* (edited by Walther B B A H) (Vol. 48) (Waltham: Academic Press) pp35–98
- [8] Milosevic D B, Ehlötzky F 1998 *J. Phys. B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **31** 4149
- [9] Popruzhenko S, Bauer D 2008 *J. Mod. Opt.* **55** 2573
- [10] Yan T M, Popruzhenko S V, Vrakking M J J, Bauer D 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 253002
- [11] Yan T M, Bauer D 2012 *Phys. Rev. A* **86** 053403
- [12] Wu C Y, Yang Y D, Liu Y Q, Gong Q H, Wu M, Liu X, Hao X L, Li W D, He X T, Chen J 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 043001
- [13] Dura J, Camus N, Thai A, Britz A, Hemmer M, Baudisch M, Senftleben A, Schröter C D, Ullrich J, Moshhammer R, Biegert J 2013 *Sci. Reports* **3** 2675
- [14] Pullen M G, Dura J, Wolter B, Baudisch M, Hemmer M, Camus N, Arne Senftleben, Schroeter C D, Moshhammer R, Ullrich J, Biegert J 2014 *J. Phys. B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **47** 204010
- [15] Wolter B, Lemell C, Baudisch M, Pullen M G, Tong X M, Hemmer M, Senftleben A, Schröter C D, Ullrich J, Moshhammer R, Biegert J, Burgdörfer J 2014 *Phys. Rev. A* **90** 063424
- [16] Torlina L, Smirnova O 2012 *Phys. Rev. A* **86** 043408
- [17] Torlina L, Ivanov M, Walters Z B, Smirnova O 2012 *Phys. Rev. A* **86** 043409
- [18] Pisanty E, Ivanov M 2016 *Phys. Rev. A* **93** 043408
- [19] Kaushal J, Smirnova O 2013 *Phys. Rev. A* **88** 013421
- [20] Torlina L, Kaushal J, Smirnova O 2013 *Phys. Rev. A* **88** 053403
- [21] Smirnova O, Spanner M, Ivanov M 2006 *J. Phys. B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **39** S307
- [22] Walters Z B, Smirnova O 2010 *J. Phys. B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **43** 161002
- [23] Caillat J, Zanghellini J, Kitzler M, Koch O, Kreuzer W, Scrinzi A 2005 *Phys. Rev. A* **71** 012712
- [24] Scrinzi A 2010 *Phys. Rev. A* **81** 053845
- [25] Tao L, Scrinzi A 2012 *New J. Phys.* **14** 013021
- [26] Kuchiev M Y 1987 *JETP Lett.* **45** 404
- [27] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [28] Yudin G L, Ivanov M Y 2001 *Phys. Rev. A* **63** 033404
- [29] Chen Z, Le A T, Morishita T, Lin C D 2009 *Phys. Rev. A* **79** 033409
- [30] Le A T, Lucchese R R, Tonzani S, Morishita T, Lin C D 2009 *Phys. Rev. A* **80** 013401
- [31] Smirnova O, Mouritzen A S, Patchkovskii S, Ivanov M Y 2007 *J. Phys. B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **40** F197
- [32] Brabec T, Ivanov M Y, Corkum P B 1996 *Phys. Rev. A* **54** R2551
- [33] Huismans Y, Rouzée A, Gijsbertsen A, Jungmann J H, Smolkowska A S, Logman P S W M, Lépine F, Cauchy C, Zamith S, Marchenko T, Bakker J M, Berden G, Redlich B, van der Meer A F G, Muller H G, Vermin W, Schafer K J, Spanner M, Ivanov M Y, Smirnova O, D Bauer, Popruzhenko S V, Vrakking M J J 2011 *Science* **331** 61
- [34] Song X, Lin C, Sheng Z, Liu P, Chen Z, Yang W, Hu S, Lin C D, Chen J 2016 *Sci. Reports* **6** 28392
- [35] Smirnova O, Spanner M, Ivanov M 2008 *Phys. Rev. A* **77** 033407
- [36] Popov V S 1999 *Physics-Uspeski* **42** 733
- [37] Perelomov A M, Popov V S, Terent'ev M V 1966 *JETP* **23** 924
- [38] Popruzhenko S V, Mur V D, Popov V S, Bauer D 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 193003
- [39] Kästner A, Saalmann U, Rost J M 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 033201
- [40] Kästner A, Saalmann U, Rost J M 2012 *J. Phys. B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **45** 074011
- [41] Nubbemeyer T, Gorling K, Saenz A, Eichmann U, Sandner W 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 233001
- [42] Landsman A S, Pfeiffer A N, Hofmann C, Smolarski M, Cirelli C, Keller U 2013 *New J. Phys.* **15** 013001

SPECIAL TOPIC — Atomic and molecular processes driven by ultrafast intense laser fields

Progress in study of low-energy photoelectron in ultra-fast strong fields-analytical R-matrix theory based semiclassical trajectory method*

Huang Wen-Xiao¹⁾²⁾ Zhang Yi-Zhu¹⁾ Yan Tian-Min^{1)†} Jiang Yu-Hai^{1)2)3)‡}

1) (Shanghai Advanced Research Institute, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201210, China)

2) (University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

3) (ShanghaiTech University, Shanghai 201210, China)

(Received 9 October 2016; revised manuscript received 1 November 2016)

Abstract

The semi-classical method based on the recently developed analytical R-matrix theory is reviewed in this work. The method is described with the application to ultra-fast strong-field direct ionization of atoms with one active electron in a linearly polarized field [Torlina L, Smirnova O 2012 *Phys. Rev. A* **86** 043408]. The analytical R-matrix theory separates the space into inner and outer regions, naturally allowing the possibility of an analytical or semi-analytical description of wave function in the outer region, which can be approximated by Eikonal-Volkov solutions while the inner region provides well-defined boundary conditions. Applying the stationary phase method, the calculation of the ionization amplitude is cast into a superposition of components from trajectories and their associated phase factors. The shape of the tunneling wave packets associated with different instants of ionization is presented. It shows the exponential cost of deviating from the optimal tunneling trajectory renders the tunneling wave packet a Gaussian shape surrounding the semi-classical trajectory. The intrinsically non-adiabatic corrections to the sub-cycle ionization amplitude in the presence of both the Coulomb potential and the laser field is shown to have different influences on the probability of ionization. As a specific study case, soft recollisions of the released electron near the ionic core is investigated by using pure light-driven trajectories with Coulomb-corrected phase factor [Pisanty E, Ivanov M 2016 *Phys. Rev. A* **93** 043408]. Incorporating the Coulomb potential, it is found problematic to use the conventional integration contour as chosen in other methods with trajectory-based Coulomb corrections, because the integration contour may run into the Coulomb-induced branch cuts and hence the analyticity of the integrand fails. In order to overcome the problem, the evolution time of the post-tunneling electron is extended into the complex domain which allows a trajectory to have an imaginary component. As the soft recollision occurs, the calculation of the ionization amplitude requires navigating the branch cuts cautiously. The navigating scheme is found based on closest-approach times which are the roots of closest-approach times equations. The appropriately selected closest-approach times that always present in the middle of branch-cut gate may serve to circumvent these branch cuts. The distribution of the closest-approach times presents rich geometrical structures in both the classical and quantum domains, and intriguing features of complex trajectories emerge as the electron returns near the core. Soft recollisions responsible for the low-energy structures are embedded in the geometry, and the underlying emergence of near-zero energy structures is discussed with the prediction of possible observations in experiments.

Keywords: above-threshold ionization, semiclassical theory, analytical R-matrix method, complex time method

PACS: 32.80.Rm, 42.50.Hz, 33.80.Wz

DOI: 10.7498/aps.65.223204

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2013CB922200), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11420101003, 11274232, 11604347, 61675213, 91636105), and the Shanghai Sailing Program, China (Grant No. 16YF1412600).

† Corresponding author. E-mail: yantm@sari.ac.cn

‡ Corresponding author. E-mail: jiangyh@sari.ac.cn

中红外激光驱动激发态 Na 原子产生单个短脉冲

贾妍雯 郭巧玲 李鹏程 王国利 周效信

A single short pulse produced by the excited state of Na atom exposed to an infrared laser

Jia Yan-Wen Guo Qiao-Ling Li Peng-Cheng Wang Guo-Li Zhou Xiao-Xin

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 223205 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.223205

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.223205>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I22>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

非均匀激光场中氢分子离子高次谐波的增强

Enhancement of high-order harmonic generation from H_2^+ in near plasmon-enhanced laser field

物理学报.2016, 65(12): 123201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.123201>

调制激光场中 Rydberg 原子的电磁感应透明

Electromagnetically induced transparency of Rydberg atoms in modulated laser fields

物理学报.2016, 65(10): 103201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.103201>

红外激光场中共振结构原子对极紫外光脉冲的压缩效应

Compression of extreme ultraviolet pulse for atom with resonant structure exposed to an infrared laser field

物理学报.2016, 65(10): 103202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.103202>

氢负离子在少周期激光场中解离时的干涉效应

Interference effect in the photodetachment from H^- ion in a few-cycle laser pulse

物理学报.2016, 65(8): 083202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.083202>

激光驱动晶体发射高次谐波的特性研究

Study of high-order harmonic generation in crystals exposed to laser fields

物理学报.2016, 65(6): 063201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.063201>

专题: 超快强激光驱动的原子的分子过程

中红外激光驱动激发态Na原子产生单个短脉冲*

贾妍雯 郭巧玲 李鹏程[†] 王国利 周效信[‡]

(西北师范大学物理与电子工程学院, 兰州 730070)

(2016年9月24日收到; 2016年10月26日收到修改稿)

利用伪谱法数值求解碱金属Na原子在中红外激光场中的含时薛定谔方程, 在计算中使用了精确的原子模型势函数, 通过该模型势能够得到与实验一致的束缚态能级, 从而能够研究Na原子处在激发态时发射高次谐波的特点. 研究表明, 在过垒电离区域, 当Na原子初态处于4s或5s激发态时发射的高次谐波在阈值之下具有超连续的特点, 通过叠加阈值以下到阈值附近的高次谐波, 能够得到中心频率从可见光高频波段到中紫外的单个脉冲. 通过分析原子的电离概率及谐波的时频特性表明, 在过垒电离区域原子发射低阶谐波的过程与隧穿区域发射的过程有所不同.

关键词: 原子的激发态, 高次谐波, 单个脉冲

PACS: 32.80.Rm, 42.65.Ky, 42.65.Re

DOI: 10.7498/aps.65.223205

1 引言

强激光与原子(分子)相互作用产生的高次谐波(high-order harmonic generation, HHG)不仅能用来探测原子分子^[1-4]和固体结构^[5]的工具, 而且是获得超短脉冲的主要手段^[6-8], 并且还能够得到原子的光电离截面^[9], 因此, 研究原子(分子)在强激光场中高次谐波的发射特点引起了人们极大的兴趣^[10]. 高次谐波的产生过程可用Corkum^[11]提出的“三步模型”来解释: 首先, 原子或分子在强激光场的作用下发生隧穿电离, 被电离的电子由于激光场的持续作用而加速, 最后当加速后的电子返回母离子附近时发生复合, 发射出高能光子, 即产生高次谐波. 高次谐波谱的一般特征是: 低阶谐波的强度会随阶数的增加迅速降低, 接着出现一个平台区域, 最后谐波强度在某阶突然下降而出现截止, 谐波的截止位置(最高阶谐波的光子能量)为 $I_p + 3.17U_p$, 其中 I_p 是原子(或分子)的电离能, $U_p = E^2/4\omega^2$ 为有质动力能(E 是入射激光的振幅,

ω 是入射激光的角频率). 高次谐波的频率范围可以从紫外一直延伸到极紫外甚至达到软X射线区域, 利用原子(分子)在强激光场中产生高次谐波具有频率宽、并有超连续分布的特点, 是合成超短脉冲的理想光源, 目前实验上已经得到脉宽为67 as的单个脉冲^[12], 为实现对物质内部的电子动力学过程的探测提供了方便.

根据“三步模型”, 原子(分子)在强激光场中发射高次谐波合成的超短脉冲在每个激光周期内会出现2次, 通常会得到一个阿秒脉冲串, 这对于应用来说是不利的, 为了得到单个的阿秒脉冲, 人们可以通过控制激光的波形来实现, 如两色场^[13-17]、三色场^[18]、啁啾场^[19,20]、极化门等^[12,21]方法. 这样合成超短脉冲的光子频率范围一般在极紫外甚至达到软X射线范围, 能够探测物质内部的电子动力学行为. 然而, 对于探测原子内部的波包动力学或者原子束缚态的特点时, 则需要波长较长的高次谐波来合成短脉冲, 这可以通过强激光作用在惰性气体上所发射的谐波其光子能量在阈值附近来实

* 国家自然科学基金(批准号: 11264036, 11364038, 11364039)资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: lipc@nwnu.edu.cn[‡] 通信作者. E-mail: zhoux@nwnu.edu.cn

现. 因此, 近年来人们开始关注惰性气体原子阈值附近高次谐波的特点. 然而, 由阈值附近的高次谐波合成得到的是一些脉冲串, 难以得到单个的短脉冲. 由于碱金属原子的电离阈值较低, 其相应的激发态电离阈值更小, 通过长波长的激光驱动激发态的碱金属原子有可能获得中心波长在可见光或中紫外区域的短脉冲. 并且目前光学参量放大器的广泛使用, 使得在实验室中很容易产生波长较长的中红外激光光源, 有条件实现长波长的激光对碱金属原子的驱动, 本文利用精确的碱金属原子 Na 的模型势, 研究了中红外激光作用在碱金属原子 Na 的激发态上发射高次谐波, 该模型势不仅能得到原子的基态能级, 而且能够得到精确的激发态能级及其相应的波函数, 为研究原子处在激发态发射谐波提供了方便. 通过调节激光的波长, 即使在较低的激光强度作用下, 能够实现波长从可见的短波段到中紫外的单个短脉冲的输出, 为探测物质内部的波包动力学和原子(分子)内部的束缚态性质提供了一种有用的工具.

2 理论方法

我们主要研究中红外波长的激光驱动碱金属 Na 原子所发射的高次谐波的特性, 利用偶极近似, Na 原子在激光作用下的含时薛定谔方程可以写为(原子单位)

$$i \frac{\partial}{\partial t} \psi(\mathbf{r}, t) = \hat{H} \psi(\mathbf{r}, t) = [H_0(\mathbf{r}) + \hat{V}(\mathbf{r}, t)] \psi(\mathbf{r}, t), \quad (1)$$

其中 H_0 是无场下 Na 原子的哈密顿量:

$$H_0 = -\frac{1}{2} \nabla^2 + \sum_l |Y_l^0\rangle V_l \langle Y_l^0|, \quad (2)$$

其中, Y_l^0 是球谐函数. V_l [22] 是 Na 原子的模型势:

$$V_l = -\frac{\alpha}{2r^4} W_6\left(\frac{r}{r_c}\right) - \frac{1}{r} - \left(\frac{N-S}{r} + A_1\right) e^{-B_1 r} - \left(\frac{S}{r} + A_2\right) e^{-B_2 r}, \quad (3)$$

α 是 Na^+ 离子的偶极极化率. $W_n(x)$ 是一个截断函数, 可表示为

$$W_n(x) = 1 - \left[1 + x + \frac{(2x)^2}{2!} + \dots + \frac{(nx)^n}{n!}\right] e^{-nx}. \quad (4)$$

$\hat{V}(\mathbf{r}, t)$ 是原子与激光场的相互作用, 在长度规范下可写为

$$\hat{V}(\mathbf{r}, t) = -\mathbf{E} \cdot \mathbf{r} f(t) \sin \omega t = -E z f(t) \sin \omega t. \quad (5)$$

(3) 式中所使用的 Na 原子模型势的相关参数如表 1, 利用此模型势得到 Na 原子的基态能量为 -0.1888477 a.u., 与文献 [23] 的实验结果符合得很好, 同时较低束缚态的能级值和文献 [22] 中的结果一致.

我们利用伪谱方法对 (1) 式的含时薛定谔方程进行数值求解 [24], 已知 t 时刻原子的波函数, 通过下式得到 $t + \Delta t$ 时刻的波函数:

$$\begin{aligned} \psi(\mathbf{r}, t + \Delta t) &= \exp\left(-i\hat{H}_0 \frac{\Delta t}{2}\right) \times \exp\left[-i\hat{V}\left(\mathbf{r}, \theta, t + \frac{\Delta t}{2}\right) \Delta t\right] \\ &\times \exp\left(-i\hat{H}_0 \frac{\Delta t}{2}\right) \psi(\mathbf{r}, t) + O(\Delta t^3). \end{aligned} \quad (6)$$

不断重复 (6) 式的计算过程, 可以得到任意时刻原子的波函数.

获得激光作用下原子的含时波函数后, 原子在激光场中感生偶极矩为

$$d_L(t) = \langle \psi(\mathbf{r}, t) | Z | \psi(\mathbf{r}, t) \rangle. \quad (7)$$

通过傅里叶变换

$$p_L(\omega) = \left| \frac{1}{t_f - t_i} \int_{t_i}^{t_f} d_L(t) e^{-i\omega t} dt \right|^2 \quad (8)$$

得到高次谐波谱, 对数阶高次谐波进行叠加, 最后得到随时间变化的脉冲轮廓为

$$I(t) = \left| \sum_q a_q e^{iq\omega t} \right|^2, \quad (9)$$

其中 $a_q = \int d_L(t) e^{i\omega t} dt$.

表 1 Na 原子模型势参数 (原子单位) [22]
Table 1. Parameters of model potential for Na atom (a.u.) [22].

l	α	r_c	S	A_1	A_2	B_1	B_2
0	0.946	2.05	3.4776465	-4.4987218	-0.77850759	2.54	1.27
≥ 1	0.946	2.05	1.6341570	-6.7354384	-0.23873657	1.88	0.94

3 结果与分析

利用上面的方法, 我们首先计算了当Na原子初态处在激发态4s时原子发射的高次谐波. 在计算过程中, 激光脉冲取为高斯包络, 脉冲的半高全宽为 12 fs, 激光波长为2800 nm, 强度为 5.3×10^{12} W/cm², 由此得到的Keldysh参数 $\gamma = 0.50$ ($\gamma = \sqrt{I_p/2U_p}$, $U_p = E^2/(4\omega^2)$ 是有质动能, I_p 是无场下Na原子激发态4s的电离能, E 是激光电场分量的振幅, ω 是激光圆频率). 图1给出了我们的计算结果, 为了理解高次谐波的发射特点, 图中还给出了Na原子在激光场中的感生偶极矩、电离概率随时间的变化. 从图1(a)给出的Na原子在激光场中的感生偶极矩可以看出, 虽然激光有多次振荡, 但是, 偶极矩仅有1次振荡, 这是由于Na原子的4s激发态电离能很小, 仅为0.0712 a.u., 在强度为 5.3×10^{12} W/cm² 的激光作用下而快速电离; 从图1(b)给出的电离概率随时间的变化可以发现初态为4s的Na原子在激光场上升沿已全部电离, 这样处在束缚态的概率会急剧减小, 反映在偶极矩上就会很快趋近零, 这正是过垒电离的特点; 由此得到的高次谐波如图1(c)所示, 高次谐波的强度虽然没有明显的平台区域, 但是连续性很好, 通过叠加一定范围内的谐波, 就能得到持续时间短的脉冲. 图2给出了叠加5—11阶谐波后得到的单个脉冲. 一般而言, 在隧穿区域, 一个光学周期内有两次发射事件, 且有长轨道和短轨道的贡献, 有可能会是4个脉冲, 但是对于过垒电离的情况, 则有所不同, 由于激光很强, 导致原子的电离极快, 电离电子很难再返回到母离子附近, 感生偶极矩主要是由电子束缚态波函数与处在连续态波函数的叠加引起的, 而感生偶极矩是发射高次谐波的来源, 即 $\langle \psi_b(t) | z | \psi_c(t) \rangle$, 主要由连续态 $\psi_c(t)$ 和束缚态 $\psi_b(t)$ 的重叠相对于 z 的积分, 当 z 不等于0时, 决定于它们之间的重叠, 对高次谐波贡献较大的实际是连续态和束缚态之间的叠加, 因此感生偶极矩在电离概率不太大时较大, 而当电离概率变大时, 电子处在束缚态的布居数很小, 导致感生偶极矩变小, 这就是为什么感生偶极矩仅有一次振荡(见图1(a)). 图1(c)给出相应的高次谐波谱, 可以看出, 原子处在过垒电离区和隧穿电离区谐波谱之间的明显区别是没有平台区, 但是处在过垒电离区

时, 即使低阶的谐波仍较为平滑, 即谐波谱的连续性很好, 这有利于获得单个脉冲. 通过叠加5—11阶的高次谐波谱, 就能得到单个的短脉冲, 脉冲宽度(即半高全宽)为 1.8 fs, 仅为 $0.20/T$ (T 为驱动激光的周期), 中心波长为 551.5 nm, 已经到达可见光的高频范围, 如图2所示. 这样波长为中红外的激光驱动碱金属原子的激发态能够实现高频可见光的单个短脉冲的输出. 图3是利用小波变换得到的时-频图, 可以看出是单个脉冲, 在整个发射范围内都有较为均匀的发射产生, 这是与原子在隧穿区发射谐波的明显区别.

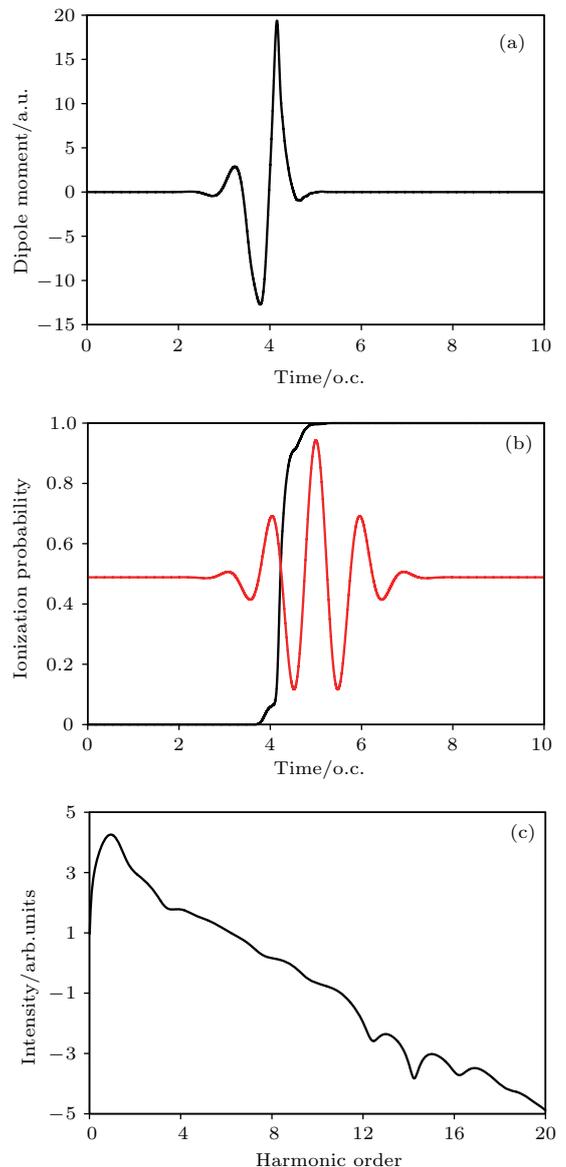


图1 (网刊彩色) Na原子初态为4s时计算出的偶极矩、电离概率和高次谐波($\lambda = 2800$ nm)
 Fig. 1. (color online) Dipole, ionization probability and HHG obtained from 4s state of Na atom ($\lambda = 2800$ nm).

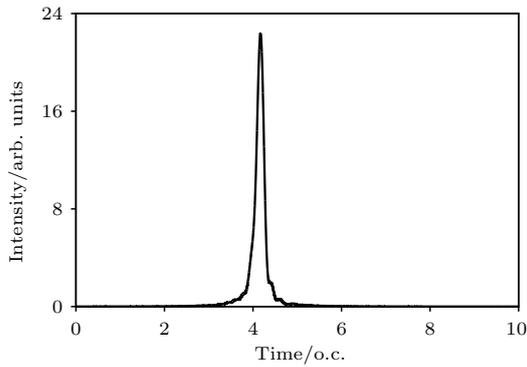


图2 合成的单个脉冲

Fig. 2. A single pulse obtained from HHG.

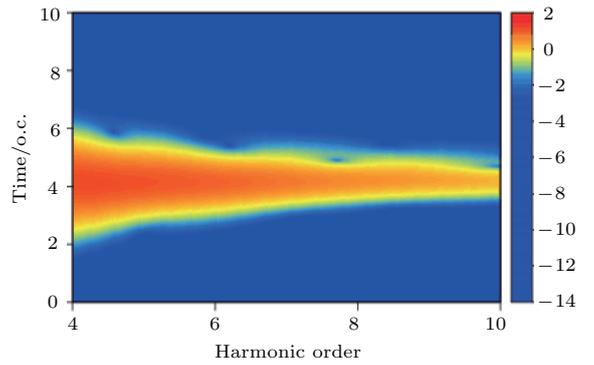


图3 (网刊彩色) 高次谐波的时频分析图

Fig. 3. (color online) Time-frequency analysis of HHG.

上面是用 $\lambda = 2800$ nm 的激光驱动原子得到单个脉冲. 为了得到中心波长更短的单个脉冲, 可以将驱动激光的波长变短. 为此, 我们计算了激光波长分别为 2600, 2400, 2000 和 1800 nm, 激光强度依次取为 6.17×10^{12} , 7.24×10^{12} , 1.04×10^{13} 和 1.29×10^{13} W/cm² 时, 驱动初态为 4s 的 Na 原子, 同样通过叠加 5—11 高次谐波也可以合成单个的短脉冲, 如图 4 所示, 其脉宽为 1.7 fs 左右的单

个脉冲, 中心波长依次分别为 511.3, 467.7, 402.9, 353.9 nm, 波长分布从可见光的短波段达到近紫外波段. 由此可见, 在过垒电离区域, 通过控制激光的波长和强度, 能够得到中心波长为可见的紫光和中紫外光的单个脉冲. 图 4(c) 和图 4(d) 中的单个脉冲旁还有一些较小的侧峰, 这是由于激光波长和强度的变化, 使得在激光的下半个周期内电离的电子仍有较小的概率返回母离子引起的.

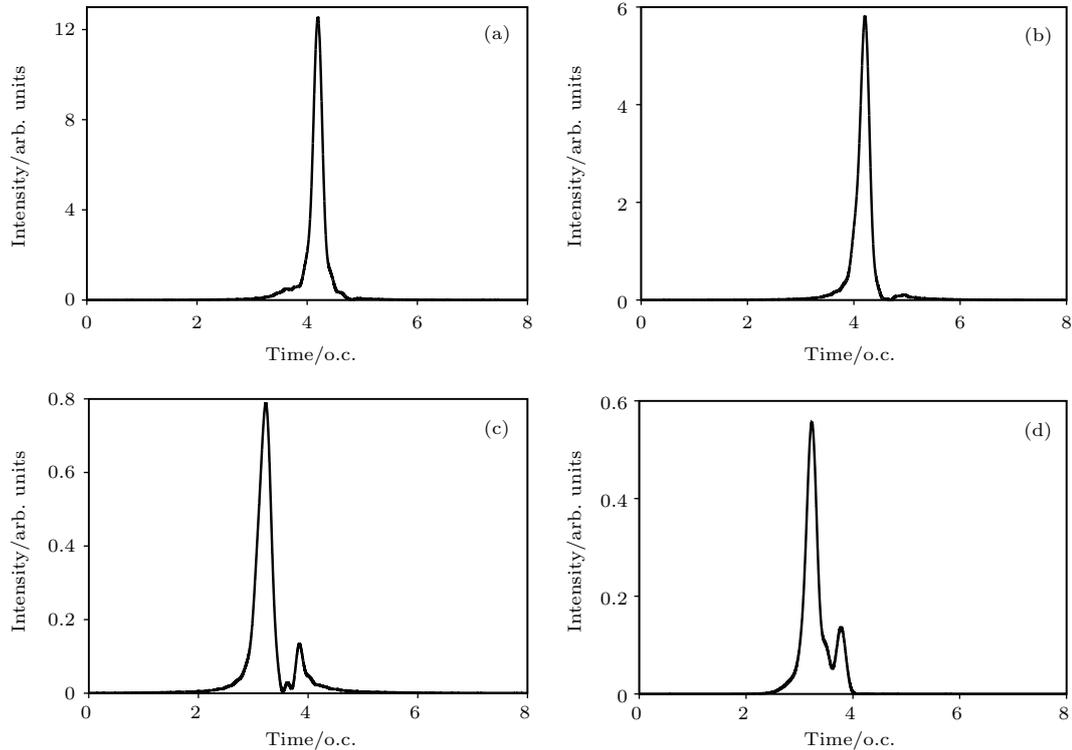


图4 合成的单个脉冲(初态为 4s), 激光波长分别取 2600, 2400, 2000 和 1800 nm, 强度依次为 6.17×10^{12} , 7.24×10^{12} , 1.04×10^{13} 和 1.29×10^{13} W/cm²

Fig. 4. A single pulse obtained from HHG (initial state 4s), wavelengths of laser are 2600, 2400, 2000 and 1800 nm, respectively; and intensities of laser are 6.17×10^{12} , 7.24×10^{12} , 1.04×10^{13} and 1.29×10^{13} W/cm², respectively.

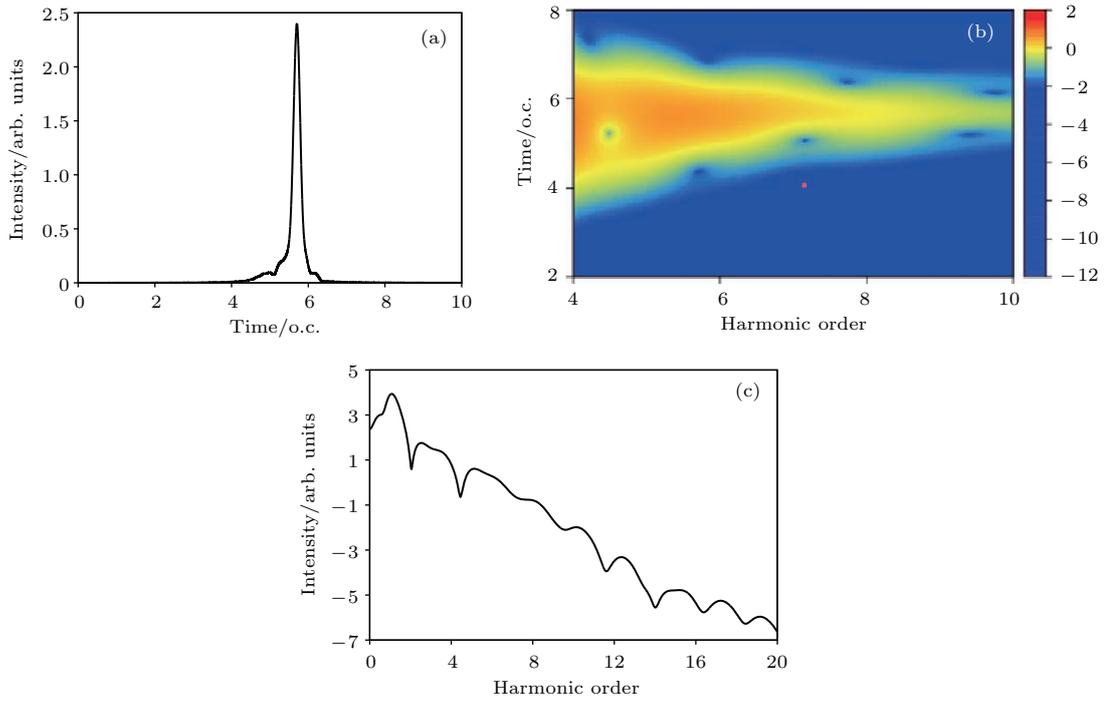


图5 (网刊彩色) 合成的单个脉冲(初态为5s), 相应的时频图和高次谐波谱激光波长 2800 nm, 强度 $5.4 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$

Fig. 5 (color online) A single pulse obtained from HHG (initial state 5s), time-frequency analysis, and HHG, wavelength and intensity of laser are 2800 nm, $5.4 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$, respectively.

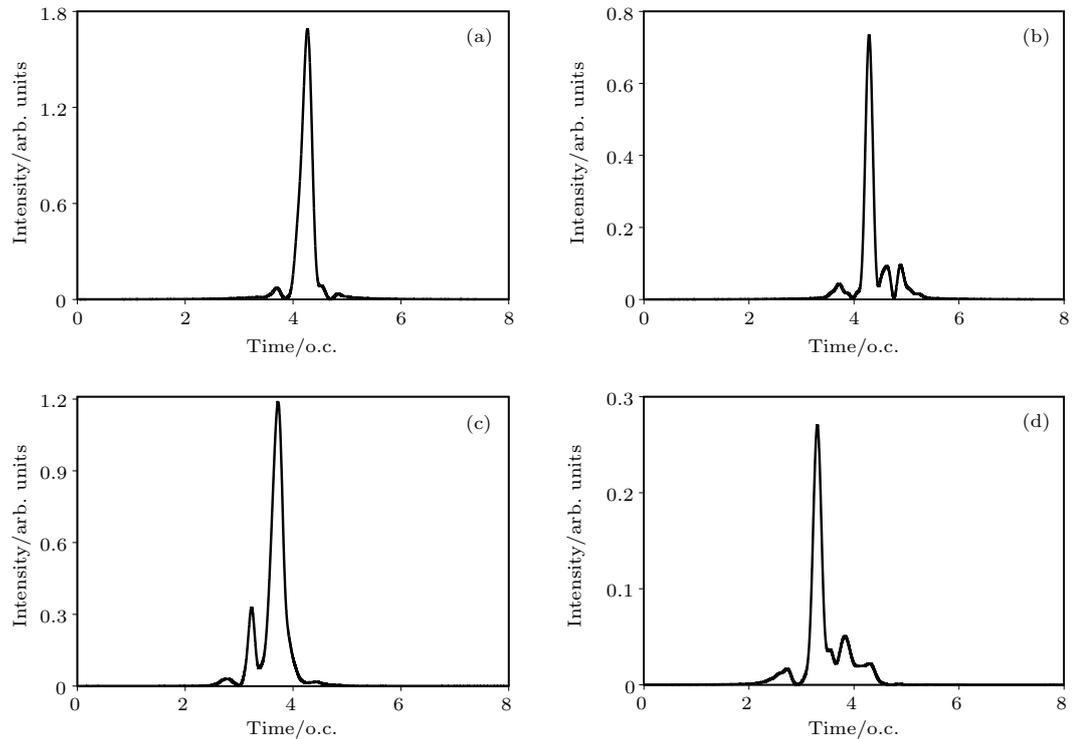


图6 合成的单个短脉冲(初态为5s), 激光波长分别取 2600, 2200, 1800, 1400 nm, 强度依次为 6.1×10^{12} , 8.72×10^{12} , 1.3×10^{13} , $2.15 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$

Fig. 6. A single pulse obtained from HHG (initial state 5s), wavelengths of laser are 2600, 2200, 1800 and 1400 nm, respectively; and intensities of laser are 6.1×10^{12} , 8.72×10^{12} , 1.3×10^{13} and $2.15 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, respectively.

Na原子的5s激发态能级与4s能级差别很小, 仅为0.034 a.u., 不到1 eV. 由上述的计算结果可以推测, 若用中红外激光驱动Na原子的5s激发态时, 在过垒电离区域同样也能得到单个的短脉冲. 我们取激光波长为2800 nm, 激光强度为 5.4×10^{12} W/cm², 得到的单个脉冲宽度为1.8 fs, 如图5所示, 图5(b)还给出了相应的时频分析结果. 可以看出, 在整个时间范围内都有谐波产生. 与初态为4s不同的是图5(b)中谐波在4.5阶附近出现了一个暗点, 该暗点表明该处的谐波发射强度较低, 如图5(c)的谐波谱所示, 这是由于在该能量处电离电子与母离子的复合效应被抑制.

若用更短波长的激光驱动5s态的Na原子, 如激光波长为2600, 2200, 1800和1400 nm, 强度依次取为 6.10×10^{12} , 8.72×10^{12} , 1.30×10^{13} 和 2.15×10^{13} W/cm²时, 合成的单个脉冲如图6所示, 仍能获得单个的短脉冲, 中心波长分别为496.8, 411, 402.6和254.8 nm, 波长分布从可见光的短波段到中紫外波段.

由以上得到的结果可以看出, 当Na原子初态处在4s或5s时, 利用波长较长的中红外光驱动, 在过垒电离区域的激光驱动下, 能够得到单个的短脉冲, 其短脉冲的半高全宽大约在1—2 fs之间, 通过选择激光的波长和强度, 可以控制短脉冲的中心波长, 是获得波长在可见光的短波到中紫外区间光源的一种途径. 当然, 从激发态的制备而言, 4s的制备比较容易, 因为激发态越高, 相邻能级靠得越近, 有选择地制备高激发态就会变得更为困难.

4 结 论

本文利用碱金属Na原子的精确模型势函数, 通过伪谱法数值求解三维含时薛定谔方程的方法, 研究了在过垒电离区域Na原子初态处在激发态时由中红外波长激光驱动下发射高次谐波的特性. 研究表明, 在过垒电离区域, Na原子初态无论是处在激发的4s态还是5s态, 所发射的高次谐波谱在阈值以下的频率范围内都具有良好的连续性, 通过叠加阈值以下范围内的谐波谱, 能够得到单个的短脉冲, 这些短脉冲的半高全宽一般都在2 fs以下, 其中心波长分布在可见光的短波段到中紫外光范围内. 由于碱金属原子本身的电离能较低, 若处在激发态, 就更容易电离, 因此即使激光强度相对较

弱, 对于碱金属来说, 已经处于过垒电离区域, 通过分析碱金属原子的电离特性和低阶高次谐波谱的时频分析图发现, 在这种情况下, 原子发射高次谐波的机理与在隧穿区域的半经典模型有所不同, 主要决定于连续态和束缚态的重叠相对于 z 的积分, 在这个积分最大附近发射能力较强, 在其他时间发射较弱或者几乎不发射, 因而, 即使驱动激光的时间较长, 但是由发射的谐波合成的脉冲是单个的, 且持续时间相对于驱动脉冲的长度来说短得多, 从而形成单个的短脉冲. 相对于隧穿区域能够得到中心频率在XUV或软X射线范围的超短阿秒来说, 本方法能够实现中心波长从可见光的短波范围到中紫外的单个脉冲, 为实验上获得中心波长不同的单个脉冲提供了一种途径.

参考文献

- [1] Niikura H, *et al.* 2002 *Nature* **417** 917
- [2] Niikura H, *et al.* 2003 *Nature* **421** 826
- [3] Kienberger R, *et al.* 2004 *Nature* **427** 817
- [4] Itatani J, *et al.* 2004 *Nature* **432** 867
- [5] Vampa G, *et al.* 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 193603
- [6] Goulielmakis E, *et al.* 2008 *Science* **320** 1614
- [7] Luo X Y, Ben S, Ge X L, Wang Q, Guo J, Liu X S 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 193201 (in Chinese) [罗香怡, 贲帅, 葛鑫磊, 王群, 郭静, 刘学深 2015 物理学报 **64** 193201]
- [8] Chen G, Yang Y J, Guo F M 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 73203 (in Chinese) [陈高, 杨玉军, 郭福明 2013 物理学报 **62** 73203]
- [9] Wang G L, Jin C, Le A T, Lin C D 2012 *Phys. Rev. A* **86** 015401
- [10] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [11] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [12] Zhao K, Zhang Q, Chini M, *et al.* 2012 *Opt. Lett.* **37** 3891
- [13] Zeng Z N, Cheng Y, Song X H, Li R X, Xu Z Z 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 203901
- [14] Zhang G T, Liu X S 2009 *J. Phys. B* **42** 125603
- [15] Hong W Y, Yang Z Y, Lan P F, Zhang Q B, Li Q G, Lu P X 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 4919 (in Chinese) [洪伟毅, 杨振宇, 兰鹏飞, 张庆斌, 李钱光, 陆培祥 2009 物理学报 **58** 4919]
- [16] Chen J G, Zeng S L, Yang Y J 2010 *Phys. Rev. A* **82** 043401
- [17] Du H C, Wang H Q, Hu B T 2010 *Phys. Rev. A* **81** 063813
- [18] Lu R F, He H X, Guo Y H, Han K L 2009 *J. Phys. B* **42** 225601
- [19] Li P C, Zhou X X, Zhao S F, Wang G L, Zhao Z X 2009 *Phys. Rev. A* **80** 053825
- [20] Xiang Y, Niu Y P, Gong S Q 2009 *Phys. Rev. A* **79** 053419

- [21] Jiao Z H, Wang G L, Li P C, Zhou X X 2014 *Phys. Rev. A* **90** 025401
- [22] Chu X, Chu S I, Laughlin C 2001 *Phys. Rev. A* **64** 013406
- [23] Kramida A, Ralchenko Y, Reader J, NIST ASD Team 2013 *NIST Atomic Spectra Database* (ver. 5.1), [online]. Available: <http://physics.nist.gov/asd> [2013, December 25]. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD
- [24] Tong X M, Chu S I 1997 *Chem. Phys.* **217** 119

SPECIAL TOPIC — Atomic and molecular processes driven by ultrafast intense laser fields

A single short pulse produced by the excited state of Na atom exposed to an infrared laser*

Jia Yan-Wen Guo Qiao-Ling Li Peng-Cheng[†] Wang Guo-Li Zhou Xiao-Xin[‡]

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

(Received 24 September 2016; revised manuscript received 26 October 2016)

Abstract

The time-dependent Schrodinger equation of alkali metal Na atom in an infrared laser field is solved numerically by using the pseudo-spectral method. In the calculation, an accurate model potential of Na atom is used. The bound state energy levels, which are consistent with experimental data, are obtained with the potential, so that we can study the characteristics of high-order harmonic generation for emission of the excited state of Na atom. Our results show that the high-order generation spectrum of emission of 4s, and 5s excited states of Na atom is super-continuum in the over-barrier ionization regime. By superposed certain orders harmonics below threshold, a single pulse can be obtained with the central frequency from high frequency of visible light to the ultraviolet band. Through the calculated ionization probability of Na atom and the time-frequency analysis by wavelet transform of the superposed harmonics, it reveals that the emission process of low-order harmonic generation in over-barrier ionization regime is different from in the tunnel ionization regime.

Keywords: excited states of atom, high-order harmonic generation, a single pulse

PACS: 32.80.Rm, 42.65.Ky, 42.65.Re

DOI: 10.7498/aps.65.223205

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11264036, 11364038, 11364039).

[†] Corresponding author. E-mail: lipc@nwnu.edu.cn

[‡] Corresponding author. E-mail: zhouxx@nwnu.edu.cn

双色场控制与测量原子分子超快电子动力学过程的研究进展

刘灿东 贾正茂 郑颖辉 葛晓春 曾志男 李儒新

Research progress of the control and measurement of the atomic and molecular ultrafast electron dynamics using two-color field

Liu Can-Dong Jia Zheng-Mao Zheng Ying-Hui Ge Xiao-Chun Zeng Zhi-Nan Li Ru-Xin

引用信息 Citation: [Acta Physica Sinica](#), 65, 223206 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.223206

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.223206>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphys.ac.cn/CN/Y2016/V65/I22>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

非均匀激光场中氢分子离子高次谐波的增强

Enhancement of high-order harmonic generation from H_2^+ in near plasmon-enhanced laser field

物理学报.2016, 65(12): 123201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.123201>

调制激光场中 Rydberg 原子的电磁感应透明

Electromagnetically induced transparency of Rydberg atoms in modulated laser fields

物理学报.2016, 65(10): 103201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.103201>

红外激光场中共振结构原子对极紫外光脉冲的压缩效应

Compression of extreme ultraviolet pulse for atom with resonant structure exposed to an infrared laser field

物理学报.2016, 65(10): 103202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.103202>

氢负离子在少周期激光场中解离时的干涉效应

Interference effect in the photodetachment from H^- ion in a few-cycle laser pulse

物理学报.2016, 65(8): 083202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.083202>

激光驱动晶体发射高次谐波的特性研究

Study of high-order harmonic generation in crystals exposed to laser fields

物理学报.2016, 65(6): 063201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.063201>

专题: 超快强激光驱动的原于分子过程

双色场控制与测量原子分子超快电子动力学过程的研究进展*

刘灿东 贾正茂 郑颖辉 葛晓春 曾志男[†] 李儒新[‡]

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 强场激光物理国家重点实验室, 上海 201800)

(2016年9月14日收到; 2016年10月17日收到修改稿)

超短超快激光脉冲的出现为人们探索原子分子中超快电子动力学过程提供了强有力的工具. 阿秒脉冲和强激光脉冲电场整形技术能够获得电子波包在亚飞秒时间尺度的动力学信息, 发展出了一系列阿秒超快光谱学技术, 如阿秒条纹相机、阿秒瞬态吸收谱等, 成功地应用于原子、分子和固体中电子运动的探测. 其中双色激光场就是通过电场整形技术实现电子相干运动控制和探测的一种重要手段, 本文综述了中科院上海光机所强场激光物理国家重点实验室近几年来在双色场控制与测量原子分子超快过程方面的研究工作.

关键词: 阿秒脉冲, 双色场, 超快电子动力学

PACS: 32.80.Rm, 42.65.Ky, 42.65.Re

DOI: 10.7498/aps.65.223206

1 引言

电子的运动与量子状态决定了物质的基本特性. 例如原子分子中的电子结构决定了其基本的物理化学性质, 化学反应的发生、生物体系的神经信号传递与半导体材料中的信号处理则与这些电子的运动密切相关, 因此控制与探测原子分子中的超快电子动力学过程对理解化学、生命科学与材料科学的物理学本质具有重要意义. 当飞秒量级的超短脉冲出现时, 由于其脉冲宽度与化学反应过程中原子核的运动时间尺度相当, 这使得飞秒激光成为研究分子化学反应动力学的有力工具^[1]. 进一步, 由于原子分子中电子运动的时间尺度通常都在百阿秒量级 ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$), 这就需要更短的光脉冲和超快光谱学技术才能实现电子运动的时间分辨测量. 阿秒脉冲的产生为这一目标提供了重要工具, 给超快探测领域注入了新鲜的血液, 并极大地推动了相关研究的发展, 渐渐形成了一门新的学

科——阿秒科学^[2-4].

目前, 气体高次谐波产生 (high order harmonic generation, HHG) 已经成为实验上获得极紫外 (XUV) 阿秒脉冲的标准方法. HHG 的物理过程通常可以用“三步”模型来简单描述: 1) 原子在驱动激光场作用下发生隧穿电离; 2) 隧穿出的自由电子进一步在后续光场的作用下加速获得动能; 3) 当激光电场反向时, 部分电子被引导回到原子核附近发生复合, 辐射出高能光子, 即为高次谐波. 从光谱分布上看, 高次谐波谱表现出典型的平台区加截止区的结构, 其宽带的 XUV 光谱足以产生超短的阿秒脉冲. 从时域上看, 上述“三步”过程 (电离-加速-复合过程) 每半个光周期重复一次, 导致多光周期驱动激光很自然地产生阿秒脉冲链 (attosecond pulse trains, APT). 但是, 超快电子动力学过程的探测需要单阿秒脉冲 (isolated attosecond pulse, IAP). 因此, 为了能够从时域上选择出单一的阿秒发射, 人们提出了各式各样的光场整形“门”

* 国家自然科学基金 (批准号: 11127901, 61521093 11227902, 11404356, 11274325, 11574332, 1151101142)、国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2011CB808103)、上海市扬帆计划项目 (批准号: 14YF1406000)、上海市科委科技基金 (批准号: 12QA1403700)、上海光学精密机械研究所青年特聘研究员项目 (批准号: 1401561J00) 和中国科学院青年创新促进会项目资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: zhinan_zeng@mail.siom.ac.cn

[‡] 通信作者. E-mail: ruxinli@mail.shcnc.ac.cn

技术^[5-6]. 例如,“振幅门”方案利用周期量级激光脉冲在不同的半光周期内产生的HHG的最大光子能量不同,通过光谱滤波方法选择出高次谐波截止区附近的光谱,实现单个阿秒脉冲的产生^[7].这通常要求驱动激光的脉宽短于两个光周期,且具有稳定的载波包络相位(carrier envelope phase, CEP).2008年,Goulielmakis等使用这种方案在1.5个光周期的驱动激光条件下成功地获得了脉宽短至80 as的单阿秒脉冲^[8].基于该原理,通过增加一个倍频场实现电场整形,可以大幅提高HHG的连续谱的光谱宽度,使其足以支持脉冲宽度小于一个原子单位的阿秒脉冲产生^[9-11].“电离门”方案利用强激光脉冲的过度电离效应,在激光脉冲前沿很窄的时间窗内产生单阿秒脉冲,在氙气中获得了能量2.1 nJ,脉宽155 as的单阿秒脉冲^[12].“偏振门”方案利用高次谐波辐射对驱动激光椭圆度的强烈依赖关系,通过调控驱动激光的偏振态使其从圆偏振变化到线偏振再变到圆偏振,从而在时间宽度很短的线偏振窗口部分产生单阿秒脉冲.这个方案首次于1994年被提出^[13],并于2006年在实验上成功实现,获得了130 as的单阿秒脉冲^[14].“双光学门”方案则利用偏振门叠加倍频场实现光场整形产生单阿秒脉冲^[15].这种方法可以降低对驱动激光脉宽的要求,在多光周期激光脉冲条件下也可以产生单阿秒脉冲^[16].“时空门”方案利用了阿秒灯塔(lighthouse)效应^[17,18],在时间上旋转驱动光场的波矢方向,使得多光周期激光脉冲产生的阿秒脉冲链中的每一个阿秒脉冲具有不同的发射方向.这样只要保证相邻半光周期的波矢方向旋转角度大于阿秒脉冲自身的发散角,就可以在远场用空间滤波的方法选择出单阿秒脉冲.

为了进一步拓展阿秒超快测量技术的应用,目前关于阿秒脉冲产生的研究开始多样化发展,比如高重复频率的高次谐波/阿秒脉冲,圆偏振的阿秒脉冲,涡旋高次谐波/阿秒脉冲等.例如,由于剧烈的吸收导致缺少XUV波段的透射光学元件,阿秒脉冲的偏振态调控很难像红外/可见光那样用各种波片来实现.为了实现这个目的,人们提出了各种各样的方案.例如,利用分子环形电流态^[19]和He⁺的2p激发态^[20]作为产生介质,在分子介质中用周期量级的椭圆偏振光叠加一个太赫兹场^[21],或者采用相反旋转方向的双色圆偏振光等^[22].最近,Hickstein等^[23]在实验上使用了非共轴的一对反向旋转圆偏振光成功地产生了圆偏振阿秒脉冲.

从上述研究中可以看出,双色激光场与原子分子相互作用是实现超快控制和测量的一种重要手段,它既包含了光场的亚周期整形对电子运动的相干控制,也涵盖了抽运-探测的方法(其中一束光激发某个动力学过程,然后另一束光追踪超快时间分辨的演化).不同参数区域的双色光场有着不同的应用.例如,阿秒条纹相机技术即XUV+IR(infrared)双色场的重要应用,它利用红外光辅助的阿秒光电离过程,通过扫描红外光脉冲与阿秒脉冲之间的相对时间延迟,得到一套条纹光电子谱,再利用一些反演算法,如FROG-CRAB等^[24],PROOF^[25],重建出阿秒脉冲的光谱相位和脉宽.如果所选的阿秒脉冲光谱宽度足够宽,它能够同时将不同量子态的电子电离出去,那么阿秒条纹光电子谱还可以用于揭示原子分子中不同壳层电子电离的相对时间延迟^[26-28].当阿秒脉冲能够同时激发出束缚态相干电子波包和连续态波包时,红外激光脉冲的进一步电离可以构成光电子干涉仪,实现束缚态电子运动的测量^[29].对于分子介质,阿秒脉冲能够通过单光子电离过程快速移除某个电子,使剩下的分子离子产生超快弛豫甚至解离过程.然后我们可以用另一束时间延迟的红外激光脉冲与分子离子相互作用,通过测量解离后的分子离子动能谱随延迟的变化,可以揭示出H₂和D₂分子光电离的电子局域化过程^[30],N₂O⁺高激发态下的电子-核非奥本海默近似的关联动力学过程^[31],苯基丙氨酸离子中的超快空穴密度变化过程^[32]以及H₂⁺相干振动核波包中复振幅的相位调制过程^[33]等.

除了分析光电子谱和离子谱以外,超快电子动力学的测量还可以通过全光学的方法实现.其中阿秒瞬态吸收光谱技术便是一种重要的测量手段,它通过测量延迟可控的双色场(XUV+IR)与物质作用后的吸收光谱获取超快动力学信息.2010年,Goulielmakis等^[34]首次利用阿秒瞬态吸收谱技术成功观测到了Kr⁺价电子的运动.随后这种技术被用于探测瞬时束缚态波包干涉效应^[35]、观测激发态的亚周期Stark移动^[36]以及揭示Fano吸收线型与时间依赖的偶极响应相位之间的联系^[37].近几年,人们对原子分子中的阿秒瞬态吸收谱技术从理论和实验上都进了广泛的研究,加深了对这种技术的理解并取得了众多的结果^[38-41].从原子分子实验中建立起来的双色场超快测量技术在固体材料上也获得了很大的成功,Schultze等^[42]用阿秒

瞬态吸收谱技术确定了硅中载流子注入引起的带隙减小和电子-电子散射的时间尺度上限. 利用超快强激光脉冲对固体材料中载流子的测量与控制对现代电子学发展将具有重要意义^[43].

本文综述了我们实验室近几年在双色场控制与测量原子分子超快过程方面的一些研究工作, 主要涉及阿秒脉冲的表征和应用, 以及超快电子的运动控制, 包括XUV/IR双色场方法测量原子分子激发态的复杂相干运动和寿命、阿秒脉冲载波包络相位以及光谱相位的光学表征, 以及THz/UV和MIR/IR双色场控制电子的超快运动.

2 束缚态相干电子波包的测量

宽带XUV阿秒脉冲激发原子分子可以产生局部的电子波包(EWPs), 这种电子波包通常可以表示为多个定态量子态的相干叠加, 其时间演化与其包含的定态之间的能级差直接相关. 目前, 人们已经提出了各种技术来完全重建这种波包, 包括: 1) 阿秒瞬态吸收光谱技术; 2) 基于测量单次碰撞的高次谐波谱调制结构的全光学方法^[44]; 3) 使用啁啾阿秒脉冲产生的光电子谱调制信号^[45]; 4) 测量阿秒光电离的不对称性参数^[46,47].

当宽带的阿秒脉冲与原子分子相互作用时, 如果阿秒脉冲的中心光子能量在原子分子电离能附近, 阿秒脉冲可以激发出包含了一系列本征束缚态的相干电子波包. 由于包含了多个本征束缚态, 这种相干电子波包展现出复杂的运动过程, 这里采用单电子近似下的氢原子模型阐述如何测量这种束缚态相干电子运动. 假设一个宽带的阿秒脉冲与氢原子相互作用制备出包含了1s, 2p₀, 3p₀和4p₀态的相干电子波包. 这些定态可以分别由原子轨道 $\psi_1(\mathbf{r})$, $\psi_2(\mathbf{r})$, $\psi_3(\mathbf{r})$, 和 $\psi_4(\mathbf{r})$ 表示, 则相干电子波包可以描述为

$$\begin{aligned} \psi(\mathbf{r}, t) = & \alpha_1 \psi_1(\mathbf{r}) + \alpha_2 e^{-i\gamma(t)} \psi_2(\mathbf{r}) \\ & + \alpha_3 e^{-i\beta_3 - i\gamma(t) \frac{\Delta I_{13}}{\Delta I_{12}}} \psi_3(\mathbf{r}) \\ & + \alpha_4 e^{-i\beta_4 - i\gamma(t) \frac{\Delta I_{14}}{\Delta I_{12}}} \psi_4(\mathbf{r}), \end{aligned} \quad (1)$$

式中: α_i^2 ($i = 1, 2, 3, 4$) 为第*i*个态的初始布居数, β_j ($j = 2, 3, 4$) 为初始相位, $\Delta I_{ij} = I_i - I_j$ ($i, j = 1, 2, 3, 4$) 为两个原子轨道*i*和*j*的能级差, $\gamma(t) = \Delta I_{12}t + \beta_2$ 为时间依赖的相位. 这里 I_i 为第

*i*个原子轨道的电离能. 为了简化符号, 方程(1)的下标1, 2, 3, 和4分别代表了1s, 2p₀, 3p₀和4p₀态, 其中的指数项描述了波包的时间演化.

方程(1)描述的相干电子波包运动可以通过阿秒光电离过程来测量. 选取线偏振阿秒脉冲作为探测脉冲, 理论上通过求解含时薛定谔方程得到电子波包的时间演化^[48]. 将最终的波函数 $\psi(\mathbf{r}, t_f)$ 投影到原子系统的散射态 $\psi_{\mathbf{p}}^{\mathbf{C}}(\mathbf{r})$ 上, 可以得到动量空间的概率幅 $a(\mathbf{p}) = \langle \psi_{\mathbf{p}}^{\mathbf{C}}(\mathbf{r}) | \psi(\mathbf{r}, t_f) \rangle$. 对于具有类氢离子结构的原子, 其库仑势为 $V(r) = -Z/r$, $a(\mathbf{p})$ 可以写出解析表达式^[49]. 考虑到波函数的旋转对称性, 我们可以得到微分电离概率:

$$\begin{aligned} D(\mathcal{E}, \theta_p) &= \frac{\partial^2 P}{\partial \mathcal{E} \sin \theta_p \partial \theta_p} \\ &= 2\pi \sqrt{2\mathcal{E}} |a(\sqrt{2\mathcal{E}}, \theta_p, 0)|^2, \end{aligned} \quad (2)$$

式中 $\mathcal{E} = p^2/2$ 为光电子动能. 沿着阿秒探测光的偏振方向, 我们可以定义一个电离不对称参数 $A_d(\mathcal{E}) = D(\mathcal{E}, 0) - D(\mathcal{E}, \pi)$.

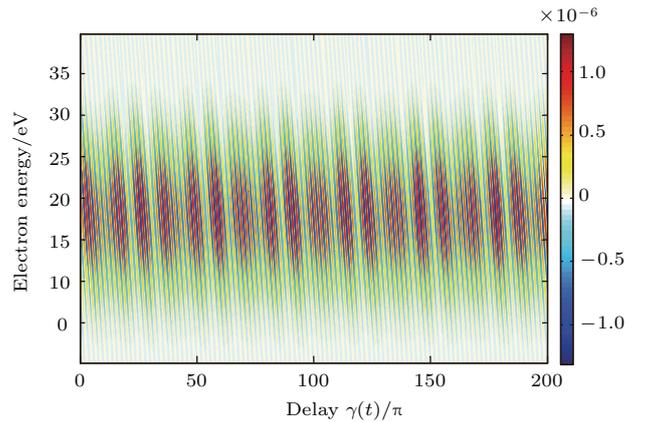


图1 微分电离不对称性参数 A_d , 作为电子能量和抽运探测时间延迟的函数^[48]

Fig. 1. Differential ionization asymmetry parameter, A_d , as a function of the electron energy and of the pump-probe temporal delay^[48].

我们假设抽运光制备了相干电子波包 $\psi(\mathbf{r}, t)$, 每个束缚态具有相等的布居数 $\alpha_i^2 = 1/4$, 随后用阿秒脉冲探测电子运动. 阿秒脉冲参数: 峰值强度 $I_0 = 1.0 \times 10^{12}$ W/cm², 傅里叶极限脉宽 $\tau = 130$ as, 中心光子能量 $\omega_0 = 36$ eV, 线性啁啾率 $\xi = 3$, 和载波包络相位 $\phi_0 = 0$. 通过扫描延迟, 我们可以计算出不同电子能量的电离不对称性参数 $A_d(\mathcal{E})$ 随时间延迟的变化, 如图1所示, 可以看到一系列倾斜的干涉条纹. 为了进一步提取图1中

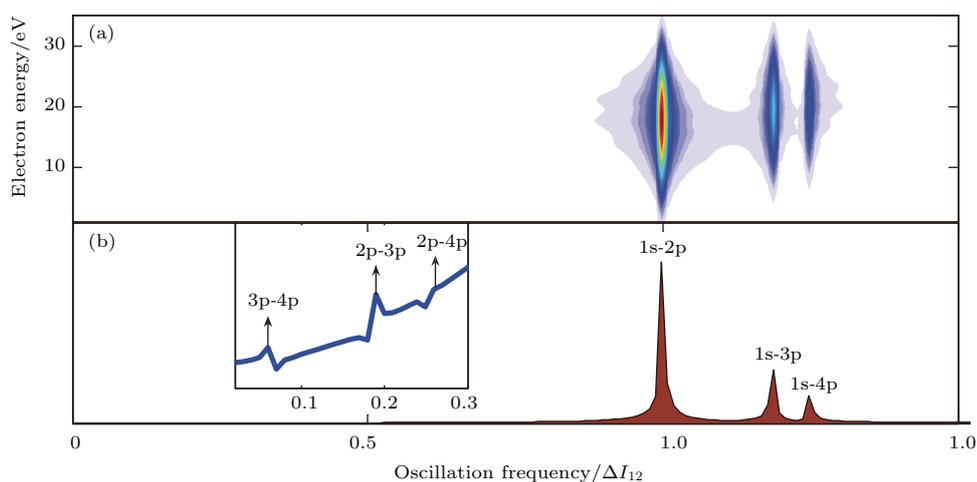


图2 (a) 二维量子拍频图, 对图1中每个电子能量沿着时间延迟轴做傅里叶变换得到; (b) 一维量子拍频图, 通过对(a)中纵轴积分得到, 插图为量子拍频信号在低振荡频率区域的放大^[48]

Fig. 2. (a) Two-dimensional quantum beats obtained from Fourier transform of the map shown in Fig. 1 along the delay axis at each electron energy; (b) one-dimensional quantum beats obtained by integrating panel (a) along the electron energy axis at each oscillation frequency, inset is the close-up of quantum beats signal in the region of low oscillation frequencies^[48].

包含的信息, 我们对每个电子能量的时间延迟轴做傅里叶变换, 得到二维频率能量图, 如图2(a)所示, 即不同电子能量位置的干涉条纹的频率特性。

显然, 傅里叶分析清晰地给出了三对原子轨道的量子拍频信号. 为了突出量子拍频信号, 可以对图2(a)沿着纵轴方向积分, 得到一维振荡频率的函数, 如图2(b)所示, 三个主峰分别对应了1s-2p, 1s-3p, 1s-4p三对宇称相反的量子拍频. 要想观测到相同宇称态之间的量子拍频, 要求其中一个态单光子电离产生的电子波包和另一个态双光子电离产生的电子波包的能谱有重叠. 在图1所使用的探测阿秒脉冲参数下, 相同宇称态的量子拍频信号很弱. 放大图2(b)中低振荡频率区域的曲线, 如图2(b)插图所示, 可以看到微弱的3p-4p, 2p-3p, 和2p-4p量子拍频信号。

阿秒脉冲电离相干电子波包 $\psi(\mathbf{r}, t)$ 的过程可以理解为将波包包含的每个定态都激发到连续态上, 理论分析可以给出量子拍频强度 $Q_{1j} \propto \alpha_1 \alpha_j R_{1j}$ ^[48], 其中 R_{1j} 与探测光光谱和原子结构有关. 利用这个简单表达式, 我们可以通过测量量子拍频的强度比来获得不同束缚态之间的相对布居数. 进一步分析量子拍频信号, 用不同的滤波器选择单独的拍频峰, 然后逆傅里叶变换到时间域, 我们可以实现不同激发态寿命的测量. 值得注意的是, 在测量激发态寿命时, 这种方法不需要知道探测阿秒脉冲和原子结构的相关信息^[48].

3 阿秒脉冲的CEP效应

单个阿秒脉冲的产生与测量得益于CEP稳定的周期量级IR脉冲的发展^[3,4]. 阿秒条纹相机技术是实现阿秒脉冲时域测量的重要手段. 虽然阿秒条纹相机技术被证明适用于单周期阿秒脉冲^[14], 但是它无法提供阿秒脉冲的CEP信息. 基于FROG-CRAB或者其他反演技术的重建算法可以获得阿秒脉冲的光谱相位, 但是其中有一个任意常数无法确定, 这对应了时域上阿秒脉冲的CEP无法测量. 周期量级阿秒脉冲的CEP能够影响光电子发射的不对称性^[50], 但是这个效应要在阿秒脉冲的峰值强度大于 10^{14} W/cm²才能体现出来, 当前的阿秒实验技术尚无法达到如此高的聚焦光强. 为了克服这个困难, 我们提出了一种观测阿秒脉冲CEP效应的新方案: 利用强IR脉冲辅助下的阿秒光电离过程, 保证IR脉冲的光强能够产生阈上电离 (above threshold ionization, ATI) 谱, 只要阈上电离产生的电子波包和阿秒条纹电子波包有重叠, 我们就可以观测到干涉现象, 阿秒脉冲的CEP信息就可以从干涉条纹位置读出. 在这个过程中, IR脉冲产生的阈上电离自由电子充当了参考波包反映出阿秒脉冲CEP的变化。

我们选择氩原子作为相互作用介质, 采用的阿秒XUV脉冲参数为光强 10^{12} W/cm²、脉宽为250 as、中心光子能量36 eV, CEP为0, IR脉冲的参

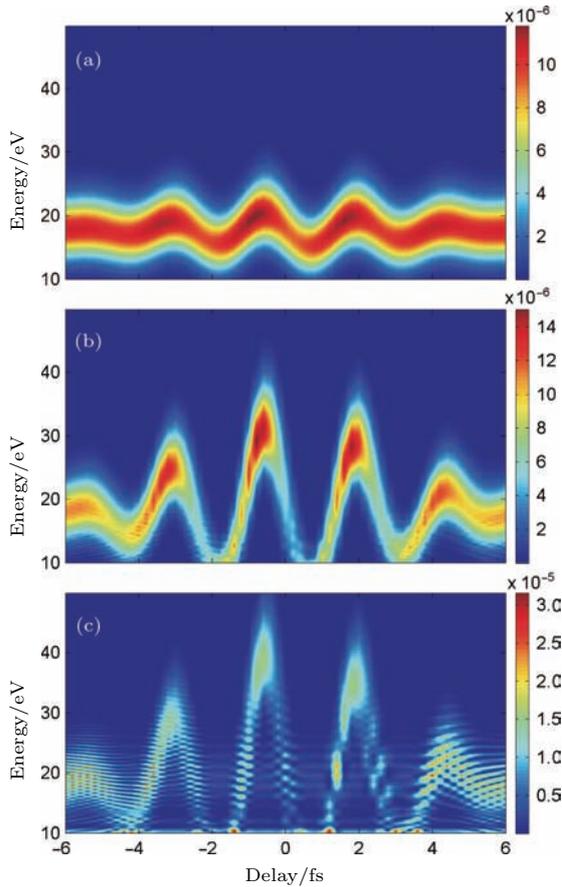


图3 三个不同IR脉冲光强下的阿秒条纹光电子谱 (a) $I_{\text{IR}} = 10^{12} \text{ W/cm}^2$, (b) $I_{\text{IR}} = 2 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$; (c) $I_{\text{IR}} = 4.5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ [51]
 Fig. 3. Attosecond streaking photoelectron spectra generated for three different IR intensities: (a) $I_{\text{IR}} = 10^{12} \text{ W/cm}^2$; (b) $I_{\text{IR}} = 2 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$; (c) $I_{\text{IR}} = 4.5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ [51].

数为脉宽5 fs、中心光子能量1.63 eV. 通过直接求解含时薛定谔方程, 我们可以得到角度分辨的光电子谱. 图3给出了在三个不同IR脉冲光强下得到的沿着负z轴方向探测的阿秒条纹光电子谱: (a) $I_{\text{IR}} = 10^{12} \text{ W/cm}^2$, (b) $I_{\text{IR}} = 2 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, 和 (c) $I_{\text{IR}} = 4.5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$. 计算中氙原子采用中心势模型, 它可以很好地描述3p价电子态 [51]. 图3(a)给出了在低IR脉冲光强下典型的阿秒条纹光电子谱图, 可以看到光电子能量的移动, 条纹移动轨迹直接对应了IR脉冲的矢势. 随着IR脉冲光强的增加, 条纹谱的振荡幅度增大. 当光电子能量朝着低能方向移动时, 可以看到小的调制, 如图3(b)所示. 进一步增加IR脉冲的光强, 从图3(c)中可以看到在整个延迟区域都有强烈的干涉结构, 干涉条纹的形状与具体的时间延迟数值有关.

光电子能谱的干涉调制结构与阿秒脉冲的载波包络相位CEP密切相关, 图4(a)给出了在零延迟下, 三个不同CEP阿秒脉冲产生的光电子能谱. 在低能区域($<10 \text{ eV}$), 电子谱能量峰的位置并不依赖于CEP. 在更高的能量位置($13 \text{ eV} < E < 30 \text{ eV}$), 电子谱能量峰的位置与CEP成线性关系, 呈现了 2π 的周期性, 如图4(b)所示. 这种调制结构和CEP的依赖关系可以理解为两个不同电离通道光电子谱干涉的结果. 一个是阿秒脉冲通过单光子电离产生的自由电子, 在IR场的作用下, 最终形成一个电子能量分布, 另一个

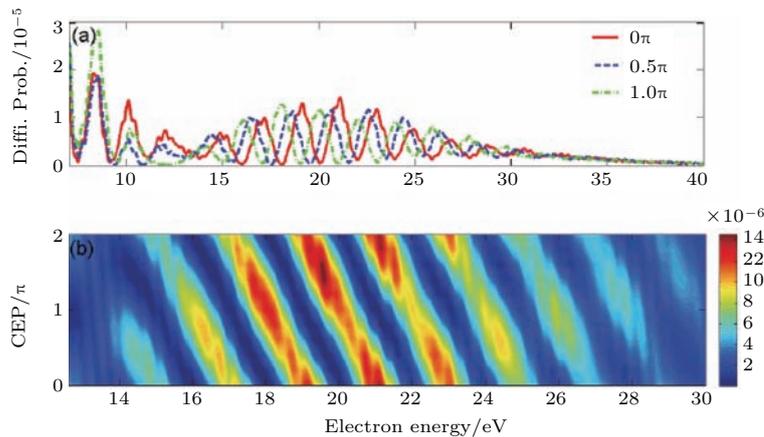


图4 (a) 零延迟下三个不同CEP阿秒脉冲产生的光电子谱, $\phi_{\text{XUV}} = 0$ (红色实线), $\pi/2$ (蓝色虚线), 和 π (绿色虚点线); (b) 阿秒脉冲CEP在 $[0, 2\pi]$ 范围内改变时产生的光电子能谱的干涉结构 [51]
 Fig. 4. (a) Simulated photoelectron spectra for zero delay, for the CEPs $\phi_{\text{XUV}} = 0$ (red-solid line), $\pi/2$ (blue-dashed line), and π (green dashed-dotted line); (b) interference fringes as a function of the electron energy in the CEP range $[0, 2\pi]$ [51].

是强 IR 脉冲产生的阈上电离电子, 这两个不同来源的电子波包的能量相同时, 就会发生干涉. 在图 3(c) 中所用的 IR 脉冲强度下, 阈上电离电子能量可以达到 $10U_p$, 其中 U_p 是 IR 场的有质动力势 [51], 这表明电子发生过重散射 [52,53]. 图 4(a) 的能量调制结构对应于两个电子波包的时间延迟 $\delta t = 1.95$ fs, 通过对阈上电离重散射电子波包的经典轨道分析, 可以获得散射时刻为 $t_{\text{resc}} = 1.8$ fs [51]. 这两个时间符合得很好, 进一步确认了双波包干涉物理图像.

这种干涉效应提供了一种测量阿秒脉冲 CEP 的方法: 首先在低强度 IR 脉冲作用下获得传统的阿秒条纹光电子谱, 用 FROG-CRAB 反演算法得到阿秒脉冲的光谱相位和 IR 脉冲的电场形状; 然后增加 IR 脉冲的光强, 得到有干涉结构的光电子谱, 此时可以认为 IR 脉冲的电场形状维持不变. 用第一步得到的阿秒脉冲光谱相位附加一个拟合参数, 通过搜索计算寻找与高 IR 脉冲光强下测量的干涉结构达到最佳匹配的模拟结果, 此时得到的拟合参数便是待测量阿秒脉冲的 CEP.

4 阿秒脉冲光谱相位的光学表征

除了通过光电子谱的测量实现阿秒脉冲相位的测量, 人们还提出了一些全光学的方法来表征阿秒脉冲的光谱相位. 这些全光学方法只需要测量光谱, 简化了实验过程, 具有很大的优势. 全光学方法通常都是建立在原位 (*in situ*) 测量概念上, 其中阿秒脉冲的产生和测量纠缠在一起, 但是它提供了高的探测效率和高的信噪比, 这对高光子能量阿秒脉冲的测量尤其有利. 最近, 针对阿秒脉冲时空结构的光学测量方法在实验上获得成功 [54]. 为了避免阿秒脉冲产生与测量的纠缠, 我们提出了一种全光学方法测量阿秒脉冲相位的新方案 [55]. 阿秒脉冲电离原子产生自由电子波包, 在 CEP 稳定的 IR 脉冲作用下, 产生的自由电子波包可以被引导回原子核附近, 与基态波包发生干涉产生快速振荡的偶极矩, 辐射出新波段的光谱, 这里称作“碰撞发射谱”. 这种发射谱的结构和形状与阿秒脉冲的啁啾密切相关, 因此它提供了表征阿秒脉冲光谱相位的可能.

我们首先计算氦原子在 XUV 阿秒脉冲和 IR 飞秒脉冲组成的双色场作用下产生的碰撞发射谱. 阿秒脉冲的参数为: 峰值强度 10^{12} W/cm²,

傅里叶变换极限脉宽 260 as, 中心光子能量 36 eV, 线性啁啾率 $\xi = 0$. IR 脉冲的参数为: 峰值强度 6×10^{13} W/cm², 脉宽 5 fs, 中心光子能量 1.63 eV, 对应于 760 nm 波长. 图 5 给出了随双色场延迟变化的碰撞发射谱, 光谱能量范围为 18—30 eV. 图 5 中的黄色虚线给出了 IR 脉冲矢势的时间变化. 从图中可以看出, 碰撞发射谱只能在特定时间延迟位置产生, 该位置对应于 IR 脉冲矢势的极值点附近, 呈现周期性调制的特点, 调制周期为 IR 脉冲光周期的一半. 这种依赖于 XUV-IR 时间延迟的发射谱可以按照碰撞干涉的图像来理解. 对于图 5 所使用的脉冲参数, 电离过程主要来自阿秒脉冲, 它通过单光子电离产生自由电子波包. IR 脉冲主要控制已经电离出去的自由电子运动, 因此在 IR 矢势极值点附近电离的电子获得最大的动量变化和能量移动, 从而在自由电子回到原子核附近与基态电子波包干涉时, 可以产生有效而高能的连续束缚态跃迁, 辐射出碰撞发射谱. 这一解释可以通过改变 XUV 阿秒脉冲的中心光子能量来确认, 计算发现当 XUV 阿秒脉冲的中心光子能量增加大 50 eV 时, 碰撞发射谱消失 [55]. 这是因为当光子能量增加时, 通过单光子电离产生的自由电子初始速度会增大, 计算中所用的 IR 脉冲光强不足以将电子拉回原子核, 所以无法产生碰撞发射谱. 经典电子轨道分析可以更直观地理解碰撞发射谱的产生过程, 分析结果表明相邻两个发射谱来源于两个不同的电子轨道分支, 对应于两个相反的初始电子发射速度方向.

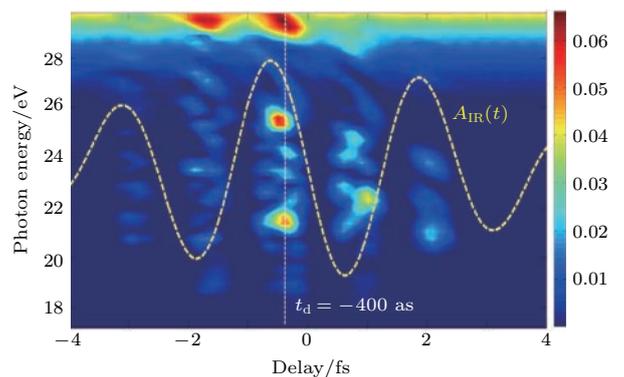


图 5 改变双色场时间延迟, 全量子模拟得到的氦原子在 IR 脉冲和阿秒脉冲联合作用下的碰撞发射谱, 黄色虚线代表 IR 脉冲的矢势波形 [55]

Fig. 5. Emission spectrum generated in helium by the combination of an IR pulse and an isolated attosecond pulse, vs. the temporal delay between the two pulses, calculated by using the full quantum simulations [55].

上述过程中一个很重要的结果是这种双色场产生的碰撞发射谱携带了阿秒脉冲光谱相位信息. 因为电离过程主要由阿秒脉冲的单光子电离决定, 它将阿秒脉冲的光谱相位信息映射到自由电子波包上, 当IR脉冲将电子波包引导回原子核与基态干涉产生碰撞发射谱时, 阿秒脉冲的光谱相位信息将会表现出来. 图6(a)给出了三个不同啁啾率XUV阿秒脉冲下产生的碰撞发射谱, 可以看到在低于10 eV和高于30 eV的光谱区域, 光谱形状不依赖于啁啾, 因为这两段光谱分别由IR和XUV脉冲各自单独产生. 但是, 在20 eV和30 eV之间的光

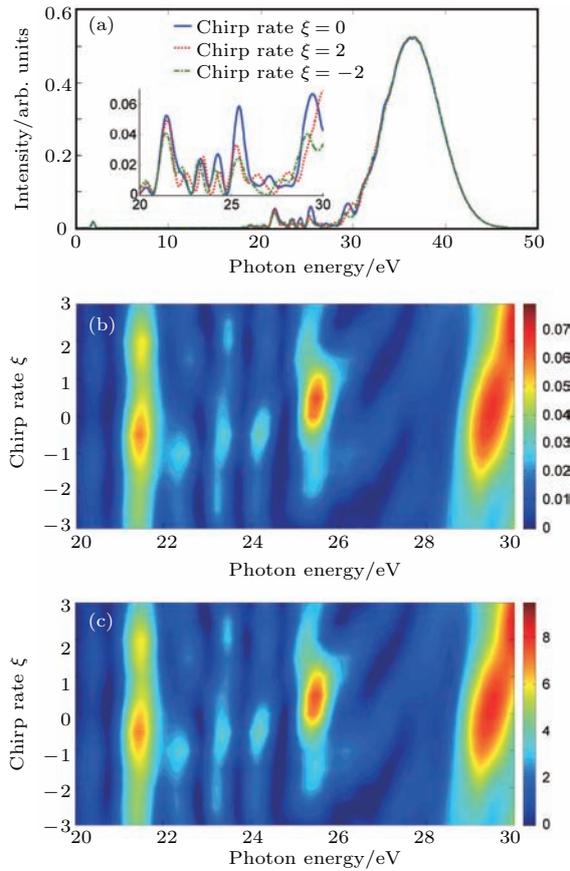


图6 (a) 比较在固定XUV-IR延迟 $t_d = -400$ as下, 三个不同啁啾率的XUV脉冲产生的碰撞发射谱, 插图是20—30 eV处光谱曲线的放大; (b) 在固定XUV-IR延迟 $t_d = -400$ as下, 单原子发射谱随着XUV啁啾率的变化; (c) 在固定XUV-IR延迟 $t_d = -400$ as下, 轴向的发射谱随着XUV啁啾率的变化^[55]

Fig. 6. (a) Comparison of the XUV spectrum calculated at the fixed XUV-IR delay $t_d = -400$ as for three different chirp rates of the XUV pulse. inset is a zoom of the XUV pulse at the fixed XUV-IR delay $t_d = -400$ as; (b) single-atom emission spectrum versus chirp rates of the XUV pulse at the fixed XUV-IR delay $t_d = -400$ as; (c) macroscopic on-axis emission spectrum versus chirp rates of the XUV pulse at the fixed XUV-IR delay $t_d = -400$ as^[55].

谱结构则强烈地依赖于阿秒脉冲的啁啾, 这提供了全光测量XUV光谱相位的可能性. 图6(b)给出了扫描线性啁啾率 $-3 \leq \xi \leq 3$ 得到的单原子发射谱变化情况. 众所周知, 宏观传播效应对最终的光谱有重要的影响^[56,57]. 完全模拟宏观的碰撞发射谱要求数值求解麦克斯韦方程, 其中单原子源项需要用三维含时薛定谔方程获得. 这种涉及到双重时间和空间尺度的模拟非常耗时, 为了控制计算量并且获得清晰的物理图像, 我们采用一维的传播方程计算轴向的发射谱, 而单原子源项依然用三维含时薛定谔方程计算^[55]. 假设IR脉冲采用松聚焦方式, XUV脉冲的束腰为20 μm , 气体靶长度为1 mm, 压强为10 Torr. 图6(c)给出了考虑宏观效应后扫描线性啁啾率 $-3 \leq \xi \leq 3$ 得到的轴向发射谱变化情况. 比较图6(b)和图6(c)可以发现, 宏观传播效应对发射谱的结构影响很小. 线性啁啾率和发射谱结构具有一一对应的关系, 即不同的线性啁啾率产生的发射谱形状也不同, 这从理论上保证了用碰撞发射谱提取阿秒脉冲啁啾特性的惟一性.

5 太赫兹 (THz) 场控制电子局域化

在化学反应过程中, 控制化学反应途径获得特定的最终产物引起了人们很大的兴趣^[58], 其中一个重要的目标是找到光化学反应中选择性断裂和形成化学键的方法. 随着现代激光技术的出现与发展, 尤其是CEP稳定的周期量级脉冲和单阿秒脉冲的产生, 一系列的相干控制方法被相继提出, 控制分子解离过程中的电子局域化是其中的一个研究重要内容. 与单个激光脉冲的方法相比, 双脉冲被证明在通道选择和提高电子局域化方面具有更好的效果^[59-61]. 基于双色场方案, 我们提出了一种有效增强分子解离过程中电子局域化概率的方案: 选择 H_2^+ 作为模型分子, 用超短紫外 (UV) 脉冲将基态电子态 $1s \sigma_g$ 激发到解离态 $2p \sigma_u$ 上, 然后用强THz场引导电子在两个核之间运动^[62].

由于计算规模的限制, 模拟中我们考虑简化的二维 H_2^+ 模型 (一维电子运动, 一维核振动), 通过直接求解非波恩-奥本海默 (NBO) 近似的含时薛定谔方程, 得到耦合的电子和核波函数. H_2^+ 解离的两个通道定义为

$$P_{\pm} = \int_{10.0}^{R_{\max}} dR \int_{\pm R/2.0-5.0}^{\pm R/2.0+5.0} d\varphi |\varphi(z, R, t_{\text{end}})|^2, \quad (3)$$

式中 R_{\max} 对应于计算中设置的核间距的边界最大值, $\varphi(z, R, t_{\text{end}})$ 是系统最终的电子-核耦合波函数. 激发电子波包到解离态 $2p \sigma_u$ 的UV脉冲参数为: 波长 228 nm, 光强 5.0×10^{14} W/cm², 脉冲宽

度 7.9 fs; 控制电子运动的THz脉冲参数为: 波长 25.6 μm (11.7 THz), 光强 3.8×10^{12} W/cm², 脉冲宽度 85.3 fs (一个光周期). 基于方程 (3), 可以定义解离不对称参数 $A = (P_+ - P_-)/(P_- + P_+)$.

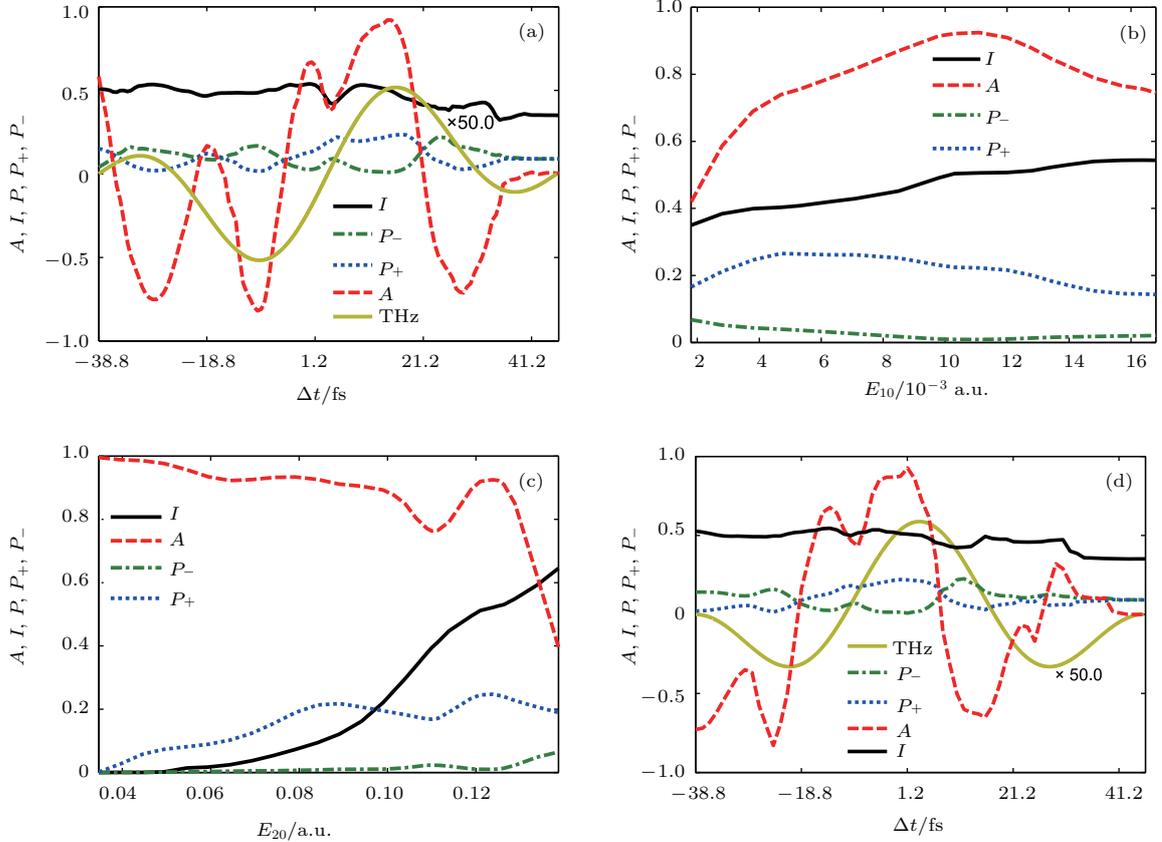


图7 (a) 解离不对称参数 A 、电离率 I 和 P_{\pm} 随着时间延迟 Δt 的变化关系; (b) 在固定延迟 $\Delta t = 14.6$ fs 下, 解离不对称参数 A 、电离率 I 和 P_{\pm} 随着 THz 电场强度 E_{10} 的变化关系; (c) 在固定延迟 $\Delta t = 14.6$ fs 下, 解离不对称参数 A 、电离率 I 和 P_{\pm} 随着 UV 脉冲电场强度 E_{20} 的变化关系; (d) 与 (a) 一致, 仅 THz 脉冲 CEP 变为 0.5π [62]

Fig. 7. Asymmetry parameter A , total ionization I , and P_{\pm} as functions of time delay Δt ; (b) asymmetry parameter A , total ionization I , and P_{\pm} as functions of the electric-field strength of the THz field E_{10} , at the fixed delay of $\Delta t = 14.6$ fs; (c) asymmetry parameter A , total ionization I , and P_{\pm} as functions of the electric-field strength of the UV pulse E_{20} , at the fixed delay of $\Delta t = 14.6$ fs; (d) the same as panel (a), but the CEP of the THz pulse is 0.5π [62].

图 7(a) 给出了不同 THz 和 UV 脉冲时间延迟下, 不对称参数 A 、总的电离概率 I 和 P_{\pm} 的变化. 可以看到大的解离不对称参数 $A = 0.922$ 出现在延迟 $\Delta t = 14.6$ fs 的位置, 对应于所有解离事件中高达 96.1% 的电子局域化概率. 对于曲线 A , 如果忽略掉延迟 -18.8 fs 和 3.2 fs 位置附近的变形, 整个曲线与 THz 电场形状基本一致. 进一步的研究表明电子局域化在这两个延迟位置的破缺是由于电子被过度激发造成的. 因为 THz 场的影响, 在这些延迟位置 UV 脉冲不仅能将电子激发到 $2p \sigma_u$ 态, 而且还将一部分激发到更高的 $3s \sigma$ 态上, 这导致电子局域化概率的迅速下降. 图 7(d) 与图 7(a) 类

似, 只不过 THz 脉冲的 CEP 从 0 改为 0.5π , 可以看到同样存在两个延迟位置 (-28.8 和 -8.8 fs), 曲线 A 发生畸变, 即电子局域化被破坏, 这同样是由于电子过度激发造成. 图 7(a) 和图 7(d) 清晰地表明 THz 场的波形对控制电子局域化过程有重要的影响, 因此实验中 THz 脉冲的 CEP 需要很好地锁定.

图 7(b) 给出了 A , I 和 P_{\pm} 随着 THz 场强 E_{10} 的变化关系, 计算中 UV 和 THz 脉冲的延迟固定在 14.6 fs. 从图中可以看到, 当 THz 场强在 0.0071 a.u. (1.8×10^{12} W/cm²) 和 0.0134 a.u. (6.4×10^{12} W/cm²) 之间时, 解离态 $2p \sigma_u$ 中超过 90.0% 的电子被引导到右边的核上, 同时解离概率

大于 20.0%. 当 E_{10} 低于 0.0071 a.u. 时, 电子局域化概率小于 90%, 且随着 E_{10} 下降而迅速下降. 如果 E_{10} 高于 0.0134 a.u., 电子局域化概率又开始迅速下降, 因为大量电子被激发到更高的 $3s \sigma$ 态上, 导致解离不对称参数 A 下降. 因此, 只有 THz 脉冲的光强在 1.8×10^{12} W/cm² 和 6.4×10^{12} W/cm² 之间时, 才可以有效地控制电子局域化.

图 7(c) 给出了 A , I , 和 P_{\pm} 随着 UV 脉冲场强 E_{20} 的变化关系. 从图中可以看出, 当 E_{20} 很低时, 可以获得很大的解离不对称参数, 但是电离概率几乎为零, 解离概率也很小. 例如, $E_{20} = 0.0446$ a.u. 时, $A = 0.986$, 电子局域化概率可以达到 99.3%, 但是解离概率只有 6.14%, 分子几乎不被电离 (<0.0013%). 随着 E_{20} 的增加, P_{+} 在增加, 但是 P_{-} 和 I 也在增长. 例如, 当 $E_{20} = 0.124$ a.u. 时, 得到 $P_{+} = 0.246$, $P_{-} = 0.096$, $A = 0.926$, 总的电离

概率 $I = 0.521$. 总的解离概率增加到 25.6%, 解离过程中超过 96.3% 的电子仍然可以被引导到右边的核上. 这意味着选择合适光强的 UV 光也是非常重要的.

6 正交中红外双色场操纵电子离子碰撞

激光驱动的电子离子碰撞是强场激光与物质相互作用中一个基本的物理过程. 对于高次谐波产生过程, 这种碰撞可以理解为电子干涉仪 [63]. 因此, 高次谐波可以用于获得微观电子结构和超快动力学信息 [64]、强场电离的多通道过程 [65] 和分子轨道的全息成像 [66]. 激光驱动电子离子碰撞过程很敏感地依赖于激光脉冲的偏振状态: 对于线偏振激

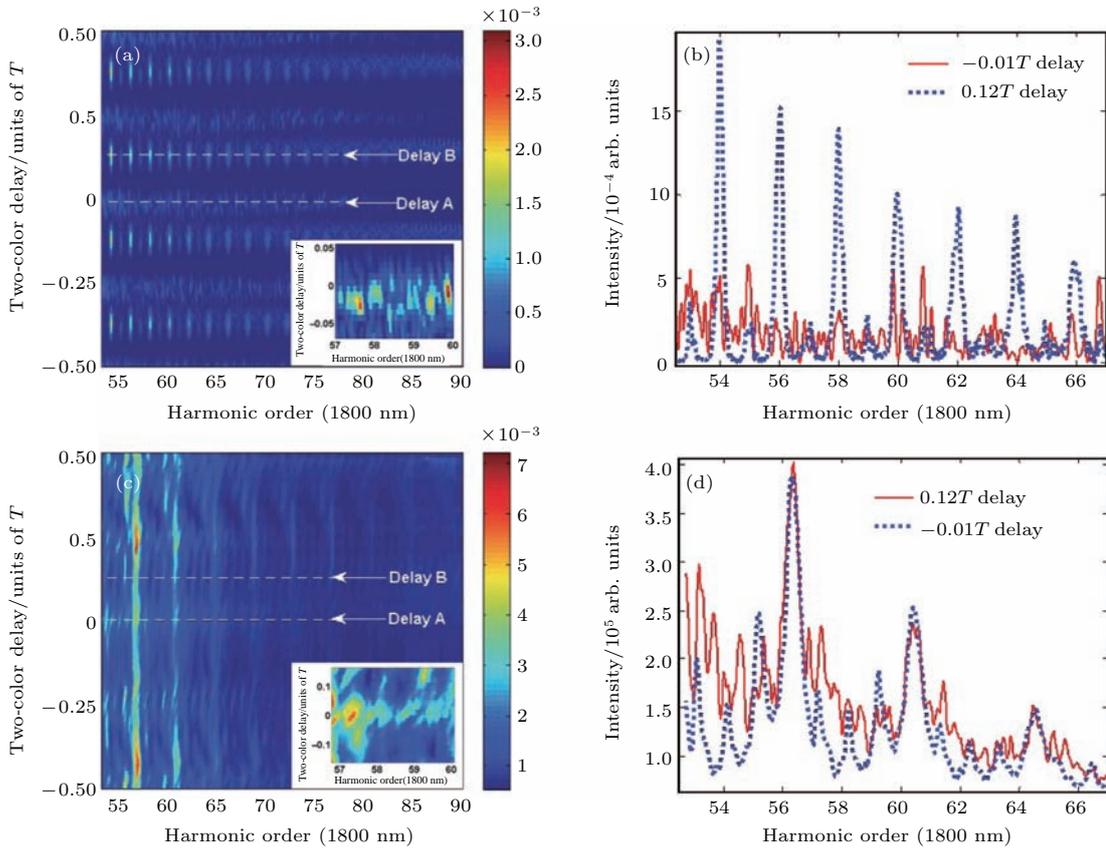


图 8 1800/900 nm 正交双色场下随着双色场延迟改变的高次谐波谱 (a) 理论计算结果; (c) 实验测量结果, (a) 和 (c) 中的插图给出了 57 次到 60 次高次谐波光谱的放大图; 在 1800/900 nm 正交双色场两个固定延迟 $-0.01T$ 和 $0.12T$ 位置 (b) 理论计算结果和 (d) 实验测量的高次谐波谱的比较 [67]

Fig. 8. Calculated (a) and experimental (c) harmonic spectra driven by the 1800/900 nm OTC field as a function of the relative time delay, respectively, the insets in (a) and (c) show the enlarged spectrum from 57 th to 60 th harmonics; calculated (b) and experimental (d) comparison of the harmonic spectrum driven by the 1800/900 nm OTC field at two different time delays, i.e., $-0.01T$ and $0.12T$, respectively [67].

光, 碰撞过程每半个光周期重复一次, 而对于圆偏振激光, 电子无法回到母核, 不能发生碰撞. 对于正交偏振的双色场 (OTC), 每半光周期被释放出来的电子只有在某些特定的双色场延迟下才能与母核离子碰撞, 而在其他延迟位置, 电子由于无法精确地返回到母核位置, 导致无法产生有效的碰撞过程. 我们将正交双色场控制电子碰撞的研究拓展到了中红外波段 (MIR) [67], 发现在 1800/900 nm 正交场中仅有少数碰撞事件可以发生. 碰撞次数可以由双色场之间的相对延迟控制, 并且控制过程可以通过高次谐波谱直接反映出来.

图 8(a) 给出了不同双色场延迟下 1800/900 nm 正交双色场在氩气中产生的高次谐波谱. 正延迟代表 1800 nm 脉冲在 900 nm 脉冲的前面. 从图 8 可以看出有两类随延迟周期性变化的谐波谱, 周期均为 $T/4$. 在 $T/8$ 延迟附近 (图中标 Delay B), 可以清晰地看到分立的强偶次谐波和弱奇次谐波, 而在 0 延迟附近 (图中标 Delay A), 可以看到有密密麻麻的多个谐波峰, 出现类似连续谱的结构. 为了更清晰地观察谐波结构, 我们单独画出 $-0.01T$ 和 $0.12T$ 延迟位置的谐波谱, 如图 8(b) 所示. 很明显在 $-0.01T$ 延迟位置, 原本分立的奇偶次谐波之间出现了多个峰结构. 但是在 $0.12T$ 延迟附近位置, 仅仅存在正常的、清晰的偶次和奇次谐波. 计算中所使用的激光参数为 1800 nm/50 fs/ 7.7×10^{13} W/cm² 和 900 nm/50 fs/ 1.5×10^{14} W/cm². 由于所用的脉冲强度远低于饱和光强, 产生的电离率仅为 6%, 这样确保了谐波谱上的多峰结构不是因为过度电离和基态耗尽引起的. 通过经典电子轨道分析 [67] 可以得出: 在延迟 A 附近出现的多峰谐波结构是由单个半光周期内的少数电子碰撞引起, 在延迟 B 附近清晰的谐波结构是由于类似线偏振光的不同半光周期的电子碰撞干涉效应引起.

我们通过实验证实了上述结果, 详细的实验参数可以从文献 [67] 中获得. 图 8(c) 给出了实验观测的高次谐波谱随 1800/900 nm 正交双色场时间延迟变化的结果. 图 8(d) 给出了在 $-0.01T$ 和 $0.12T$ 两个不同延迟位置处的高次谐波谱. 将图 8(a) 和图 8(b) 与图 8(c) 和图 8(d) 对比, 可以看到实验结果和理论计算符合得相当好. 进一步的分析发现, 在 800/400 nm 的正交双色场下结果会很不一样, 少数电子碰撞产生的多峰谐波结构与长波长的中

红外激光脉冲相关.

7 结语与展望

从 2001 年人们首次在实验上成功获得阿秒脉冲以来, 原子分子中超快电子动力学研究获得了长足的进展, 各种不同的超快技术和探测方法相继被提出. 目前, 阿秒脉冲应用的主要瓶颈在于, 由于目前阿秒脉冲的光子通量还比较低, 只能在强的红外脉冲辅助下才能实现抽运-探测研究. 但是高强度的红外脉冲电场本身会改变体系的状态, 使得测量结果未必代表无场状态. 因此, 发展高强度阿秒脉冲光源是超快电子探测方面的一个重要的目标, 只要这样才能最终实现阿秒-抽运-阿秒探测的超快科学研究. 这方面主要的实现途径包括大能量的飞秒激光脉冲直接在气体介质中产生阿秒脉冲, 高强度的飞秒激光脉冲在固体等离子体介质中产生阿秒脉冲以及在自由电子激光器中产生阿秒脉冲等.

过去十多年的阿秒脉冲应用主要集中在简单原子分子方面, 这是因为简单体系便于人们从基本的物理方向建立相关理论模型, 获得超快电子运动的清晰图像. 随着激光技术的成熟与理论框架的建立, 超快电子动力学研究必将由简单体系向更复杂的有机分子和生物分子等体系发展, 由气相介质向凝聚态纳米材料等方向发展. 目前已经在固体介质中开展了一些研究, 包括固体表面的超快光电离过程, 不同能带的电子布居过程等.

双色场作为研究和控制原子分子中超快电子动力学的重要手段, 一直在该领域占据重要的地位, 各种不同参数配置的双色场分别应用于不同的体系. 除了前文所说的作为阿秒超快电子动力学测量过程中的重要技术手段外, 也是一种重要的抽运-探测技术. 随着激光技术的发展, 强激光场的概念正在逐渐推进到中红外甚至太赫兹波段, 强场超快电子运动控制的概念已经发展到固体介质中, 但是这方面的研究目前刚刚起步, 有待于进一步的研究.

参考文献

- [1] Zewail A H 2000 *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* **39** 587
- [2] Ivanov M Y, Kienberger R, Scrinzi A, Villeneuve D M 2006 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **39** R1

- [3] Nisoli M, Sansone G 2009 *Prog. Quantum Electron.* **33** 17
- [4] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [5] Agostini P, DiMauro L F 2004 *Rep. Prog. Phys.* **67** 813
- [6] Sansone G, Poletto L, Nisoli M 2011 *Nature Photon.* **5** 655
- [7] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, Reider G A, Milosevic N, Brabec T, Corkum P B, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2001 *Nature* **414** 509
- [8] 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
- [9] Zeng Z N, Cheng Y, Song X, Li R, Xu Z 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 203901
- [10] Lan P F, Lu P X, Cao W, Li Y H, Wang X L 2007 *Phys. Rev. A* **76** 011402
- [11] Zheng Y H, Zeng Z N, Li X F, Chen X W, Liu P, Xiong H, Lu H, Zhao S T, Wei P F, Zhang L, Wang Z G, Liu J, Cheng Y, Li R X, Xu Z Z 2008 *Opt. Lett.* **33** 234
- [12] Ferrari F, Calegari F, Lucchini M, Vozzi C, Stagira S, Sansone G, Nisoli M 2010 *Nature Photon.* **4** 875
- [13] Corkum P B, Burnett N H, Ivanov M Y 1994 *Opt. Lett.* **19** 1870
- [14] Sansone G, Benedetti E, Calegari F, Vozzi C, Avaldi L, Flammini R, Poletto L, Villoresi P, Altucci C, Velotta R, Stagira S, De Silvestri S, Nisoli M 2006 *Science* **314** 443
- [15] Mashiko H, Gilbertson S, Li C, Khan S, Shakya M, Moon E, Chang Z 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 103906
- [16] Feng X, Gilbertson S, Mashiko H, Wang H, Khan S, Chini M, Wu Y, Zhao K, Chang Z 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 183901
- [17] Vincenti H, Quéré F 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 113904
- [18] Wheeler J, Borot A, Monchocé S, Vincenti H, Ricci A, Malvache A, Martens R, Quéré F 2012 *Nature Photon.* **6** 829
- [19] Xie X, Scrinzi A, Wickenhauser M, Baltuška A, Barth I, Kitzler M 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 033901
- [20] Liu C, Nisoli M 2012 *Phys. Rev. A* **85** 013418
- [21] Yuan K, Bandrau A 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 023003
- [22] Medišauskas L, Wragg J, Hart H, Ivanov M 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 153001
- [23] Hickstein D, Dollar F, Grychtol P, Ellis J, Knut R, García C, Zusin D, Gentry C, Shaw J, Fan T, Dorney K, Becker A, Becker A, Kapteyn H, Murnane M, Durfee C 2015 *Nature Photon.* **9** 743
- [24] Mairesse Y, Quéré F 2005 *Phys. Rev. A* **71** 011410
- [25] Chini M, Gilbertson S, Khan S, Chang Z 2010 *Opt. Express* **18** 13006
- [26] Schultze M, Fieß M, Karpowicz N, Gagnon J, Korbman M, Hofstetter M, Neppl S, Cavalieri A, Komninos Y, Mercouris T, Nicolaides C, Pazourek R, Nagele S, Feist J, Burgdörfer J, Azzeer A, Ernstorfer R, Kienberger R, Kleineberg U, Goulielmakis E, Krausz F, Yakovlev V 2010 *Science* **328** 1658
- [27] Nagele S, Pazourek R, Feist J, Doblhoff-Dier K, Lemell C, Tökési K, Burgdörfer J 2011 *J. Phys. B* **44** 081001
- [28] Pazourek R, Nagele S, Burgdörfer J 2015 *Rev. Mod. Phys.* **87** 765
- [29] Mauritsson J, Remetter T, Swoboda M, Klünder K, L'Huillier A, Schafer K, Ghafur O, Kelkensberg F, Siu W, Johnsson P, Vrakking M, Znakovskaya I, Uphues T, Zherebtsov S, Kling M, Lépine F, Benedetti E, Ferrari F, Sansone G, Nisoli M 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 053001
- [30] Sansone G, Kelkensberg F, Pérez J, Morales F, Kling M, Siu W, Ghafur O, Johnsson P, Swoboda M, Benedetti E, Ferrari F, Lépine F, Sanz-Vicario J, Zherebtsov S, Znakovskaya I, L'Huillier A, Ivanov M, Nisoli M, Martín F, Vrakking M 2010 *Nature* **465** 763
- [31] Zhou X, Ranitovic P, Hogle C, Eland J, Kapteyn H, Murnane M 2012 *Nature Phys.* **8** 232
- [32] Calegari F, Ayuso D, Trabattori A, Belshaw L, Camillis S, Anumula S, Frassetto F, Poletto L, Palacios A, Decleva P, Greenwood J, Martín F, Nisoli M 2014 *Science* **346** 336
- [33] Yasuo N, Furukawa Y, Okino T, Eilanlou A, Takahashi E, Yamanouchi K, Midorikawa K 2015 *Nature Commun.* **6** 8197
- [34] Goulielmakis E, Loh Z, Wirth A, Santra R, Rohringer N, Yakovlev V, Zherebtsov S, Pfeifer T, Azzeer A, Kling M, Leone S, Krausz F 2010 *Nature* **466** 739
- [35] Holler M, Schapper F, Gallmann L, Keller U 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 123601
- [36] Chini M, Zhao B, Wang H, Cheng Y, Hu S, Chang Z 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 073601
- [37] Ott C, Kaldun A, Raith P, Meyer K, Laux M, Evers J, Keitel C, Greene C, Pfeifer T 2013 *Science* **340** 716
- [38] Cao W, Warrick E, Neumark D, Leone S 2016 *New. J. Phys.* **18** 013041
- [39] Gaarde M, Buth C, Tate J, Schafer K 2011 *Phys. Rev. A* **83** 013419
- [40] Bækthøj J, Yue L, Madsen L 2015 *Phys. Rev. A* **91** 043408
- [41] Reduzzi M, Hummert J, Dubrouil A, Calegari F, Nisoli M, Frassetto F, Poletto L, Chen S, Wu M, Gaarde M, Schafer K, Sansone G 2015 *Phys. Rev. A* **92** 033408
- [42] Schultze M, Ramasesha K, Pemmaraju C, Sato S, Whitmore D, Gandman A, Prell J, Borja L, Prendergast D, Yabana K, Neumark D, Leone S 2014 *Science* **346** 1348
- [43] Krausz F, Stockman M 2014 *Nature Photonics* **8** 205
- [44] Niikura H, Villeneuve D M, Corkum P B 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 083003
- [45] Yudin G L, Bandrauk A D, Corkum P B 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 063002
- [46] Yudin G L, Chelkowski S, Itatani J, Bandrauk A D, Corkum P B 2005 *Phys. Rev. A* **72** 051401
- [47] Chelkowski S, Yudin G L, Bandrauk A D 2006 *J. Phys. B* **39** S409
- [48] Liu C, Zeng Z, Li R, Xu Z, Nisoli M 2014 *Phys. Rev. A* **90**,013403
- [49] Liu C, Nisoli M 2012 *Phys. Rev. A* **85** 053423
- [50] Peng L, Starace A 2007 *Phys. Rev. A* **76** 043401
- [51] Liu C, Reduzzi M, Trabattori A, Sunilkumar A, Dubrouil A, Calegari F, Nisoli M, Sansone G 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 123901

- [52] Paulus G, Nicklich W, Xu H, Lambropoulos P, Walther H 1994 *Phys. Rev. Lett.* **72** 2851
- [53] Paulus G, Becker W, Nicklich W, Walther H 1994 *J. Phys. B* **27** L703
- [54] Kim K, Zhang C, Shiner A, Kirkwood S, Frumker E, Garipey G, Naumov A, Villeneuve D, Corkum P 2013 *Nat. Phys.* **9** 159
- [55] Liu C, Zeng Z, Li R, Xu Z, Nisoli M 2015 *Opt. Express* **23** 9858
- [56] Priori E, Cerullo G, Nisoli M, Stagira S, Silvestri S, Villoresi P, Poletto L, Ceccherini P, Altucci C, Bruzzese R, Lisio C 2000 *Phys. Rev. A* **61** 063801
- [57] Liu C, Li R, Zeng Z, Zheng Y, Liu P, Xu Z 2010 *Opt. Lett.* **35** 2618
- [58] Brixner T, Gerber G 2003 *Chem. Phys. Chem.* **4** 418
- [59] He F, Ruiz C, Becker A 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 083002
- [60] Liu K, Zhang Q, Lu P 2012 *Phys. Rev. A* **86** 033410
- [61] Lan P, Takahashi E, Midorikawa K 2012 *Phys. Rev. A* **86** 013418
- [62] Jia Z, Zeng Z, Li R, Xu Z, Deng Y 2014 *Phys. Rev. A* **89** 023419
- [63] Corkum P 2011 *Phys. Today* **64** 36
- [64] Smirnova O, Mairesse Y, Patchkovskii S, Dudovich N, Villeneuve D, Corkum P, Ivanov M 2009 *Nature* **460** 972
- [65] Mairesse Y, Higuier J, Dudovich N, Shafir D, Fabre B, M'evél E, Constant E, Patchkovskii S, Walters Z, Ivanov M, Smirnova O 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 213601
- [66] Itatani J, Levesque J, Zeidler D, Niikura H, P'epin H, Kieffer J, Corkum P, Villeneuve D 2004 *Nature* **432** 867
- [67] Zheng Y, Diao H, Zeng Z, Ge X, Li R, Xu Z 2015 *Phys. Rev. A* **92** 033417

SPECIAL TOPIC — Atomic and molecular processes driven by ultrafast intense laser fields

Research progress of the control and measurement of the atomic and molecular ultrafast electron dynamics using two-color field*

Liu Can-Dong Jia Zheng-Mao Zheng Ying-Hui Ge Xiao-Chun
Zeng Zhi-Nan[†] Li Ru-Xin[‡]

(State Key Laboratory of High Field Laser Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

(Received 14 September 2016; revised manuscript received 17 October 2016)

Abstract

The advent of the ultrafast laser pulse provides the powerful and efficient tool for probing the ultrafast electron dynamics in atoms and molecules. The various nonlinear process induced by the laser-matter interaction allows one to obtain the electron motion information on the sub-femtosecond time scale. A series of the ultrafast spectroscopic technique, such as attosecond streak camera, attosecond transient absorption spectrum, and *etc.*, have been successfully applied to the probe of electron dynamics in atoms, molecules, and solids. Using two-color field is one of the significant methods to achieve the coherent control and exploring of the electron motion. This paper summarizes recent research activities in the field of the atomic and molecular ultrafast process investigated in State Key Laboratory of High Field Laser Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, including the detection of the electron dynamics of the multi-bound states, measurement of the carrier envelope phase (CEP) and the phase of the attosecond pulse, and the ultrafast electron control with the THz/UV and MIR/IR field. To measure the dynamics of the multi-bound states, a broadband attosecond pulse can be used to ionize the electrons after it is excited by the pump laser. By changing the delay between the pump laser and the attosecond pulse, the measured electrons ionized by the broadband xuv attosecond pulse can present the multi-bound states dynamics simultaneously. The XUV/IR scheme is popularly used in attosecond dynamics measurement. But usually, the IR field is not very strong. We find that, if the IR field is strong enough to induce the above threshold ionization (ATI), the interference between the ATI electron and the electron from XUV pulse can be used to measure the CEP of the attosecond XUV pulse. Besides, if the electron ionized by attosecond pulse can be pushed back to the nuclei, the emission from the recombination can be used to determine the spectral phase of the attosecond pulse, which is an all-optical measurement. We also investigate the two color scheme of THz/UV and MIR/IR fields. With THz/UV two color scheme, very high electron localization can be achieved duration molecular dissociation when we use the UV pulse to excite the electron and the THz pulse to control the following electron movement. When we use the MIR/IR field to control the electron motion during the high harmonic generation, the recollision can be greatly decreased and the single attosecond pulse can be produced with multi-cycle MIR laser field.

Keywords: attosecond pulses, two-color field, ultrafast electron dynamics

PACS: 32.80.Rm, 42.65.Ky, 42.65.Re

DOI: 10.7498/aps.65.223206

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11127901, 61521093, 11227902, 11404356, 11274325, 11574332, 1151101142), the National Basic Research Program of China (Grant No. 2011CB808103), the Science and Technology Commission of Shanghai Municipality Sailing Project, China (Grant No. 14YF1406000), Shanghai Commission of Science and Technology, China (Grant No. 12QA1403700) the Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics Specialized Research Fund, China (Grant No. 1401561J00), and the Youth Innovation Promotion Association CAS.

[†] Corresponding author. E-mail: zhinan_zeng@mail.siom.ac.cn

[‡] Corresponding author. E-mail: ruxinli@mail.shenc.ac.cn

用推广的量子轨迹蒙特卡罗方法研究强场光电子全息

林呈 张华堂 盛志浩 余显环 刘鹏 徐竞文 宋晓红 胡师林 陈京 杨玮枫

Strong field photoelectron holography studied by a generalized quantum-trajectory Monte Carlo method
Lin Cheng Zhang Hua-Tang Sheng Zhi-Hao Yu Xian-Huan Liu Peng Xu Jing-Wen Song Xiao-Hong
Hu Shi-Lin Chen Jing Yang Wei-Feng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 223207 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.223207

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.223207>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I22>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

三态 K_2 分子飞秒含时光电子能谱的理论研究

Theoretical investigation of femtosecond-resolved photoelectron spectra of three-level ladder K_2 molecules

物理学报.2015, 64(14): 143303 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.143303>

NaLi 分子飞秒含时光电子能谱的理论研究

Theoretical study of the influence of femtosecond pump-probe pulse on the photoionization of NaLi molecule

物理学报.2014, 63(2): 023302 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.023302>

非晶/结晶共混对聚合物光伏电池性能的影响

Amorphous/crystalline blend effects on the performance of polymer-based photovoltaic cells

物理学报.2009, 58(9): 6582-6589 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.58.6582>

微波 ECR 磁控溅射制备 SiN_x 薄膜的 XPS 结构研究

An XPS study on the structure of SiN_x film deposited by microwave ECR magnetron sputtering

物理学报.2009, 58(6): 4109-4116 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.58.4109>

专题: 超快强激光驱动原子分子过程

用推广的量子轨迹蒙特卡罗方法研究 强场光电子全息*

林呈¹⁾ 张华堂¹⁾ 盛志浩¹⁾ 余显环¹⁾ 刘鹏¹⁾ 徐竟文¹⁾ 宋晓红^{1)†}
胡师林²⁾³⁾ 陈京^{2)3)†} 杨玮枫^{1)†}

1)(汕头大学理学院物理系, 汕头 515063)

2)(北京应用物理与计算数学研究所, 北京 100088)

3)(北京大学应用物理与技术中心, 高能密度物理数值模拟教育部重点实验室, 北京 100871)

(2016年8月25日收到; 2016年10月19日收到修改稿)

强场光电子全息因其二维光电子动量谱中携带着电子和离子的时空动力学信息, 所以在实验中被发现后迅速成为近年来强场超快物理中的一个热点研究领域. 本文主要介绍一种推广的量子轨迹蒙特卡罗计算方法. 利用这种方法可在更广泛的实验条件下探讨原子分子光电子全息现象背后深层次的物理机理. 与含时薛定谔方程的对比发现利用推广的量子轨迹蒙特卡罗方法计算的光电子全息干涉结构的截止能量位置能清楚地反映非绝热隧穿电离效应. 而且, 我们发现了深隧穿电离条件下一种新颖的圆环干涉结构. 这一圆环状干涉结构遮蔽了光电子全息条纹, 因此, 这一结果表明: 深隧穿区并非是形成光电子全息的有利实验条件. 在非绝热隧穿区, 长程库仑势对于光电子全息的形成起着至关重要的作用.

关键词: 强场光电子全息, 推广的量子轨迹蒙特卡罗方法, 非绝热隧穿电离

PACS: 32.80.Wr, 33.60.+q, 61.05.jp

DOI: 10.7498/aps.65.223207

1 引言

强激光诱导光电离无疑是强场光与物质相互作用中一个最基本的过程. 自从30多年前实验中观测到阈上电离 (above-threshold ionization, ATI) 以来^[1], 一系列的实验以及随后的理论工作极大地拓展了人们对原子分子与强激光相互作用物理机理的认识和理解^[2,3]. 最近, Huisman等^[4]用7000 nm自由电子激光电离亚稳态的氩原子成功地在二维光电子动量谱中观察到全息的“叉子”状干涉结构. 光电子全息 (photoelectron holography, PH) 记录了亚周期时间尺度内电子动力学行为, 因

此, 通过光电子全息可以提取记录在二维光电子动量谱干涉结构中的离子和电子的动力学信息^[5-14].

众所周知, 根据 Keldysh 参数 $\gamma = \sqrt{I_p/(2U_p)}$ (其中 I_p 是电离势, 有质动力势 $U_p = I/(4\omega^2)$, I 是激光场强度, ω 是角频率), 原子在强激光场中的光电离可分为两个区域: 隧穿电离区和多光子电离区^[15]. 最近, 多光子区和隧穿区之间的过渡区 ($\gamma \sim 1$), 即所谓的非绝热隧穿区, 已经受到了越来越多的关注^[16,17]. 对于非绝热效应怎样影响电离过程已经成为这一领域关注的热点^[18-22]. 研究表明, 光电子全息不仅仅会出现在隧穿区^[4], 它也会出现在非绝热隧穿区^[7,8]. 当前迫切需要对非绝热区的光电子全息的物理机理进行深入的研究.

* 国家重点研发计划重点专项 (批准号: 2016YFA0401100)、国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2013CB922201)、国家自然科学基金 (批准号: 11374202, 11674209, 11274220, 11274050, 11334009, 11425414)、广东省自然科学基金重点项目 (批准号: 2014A030311019) 和广东省“扬帆计划”引进紧缺拔尖人才项目资助.

† 通信作者. E-mail: songxh@stu.edu.cn; chen_jing@iapcm.ac.cn; wfyang@stu.edu.cn

另一方面,在以往的半经典图像中,离子的库仑势常常被忽略.然而,最近研究者在光电子能谱中发现了“低能结构”^[23,24],人们意识到库仑势在“低能结构”以及一系列的光电子动力学过程中起着举足轻重的作用^[23-30].但是在隧穿领域的光电子全息中,库仑势并没有在干涉结构中起明显的作用.于是,库仑势是否在非绝热隧穿区的光电子全息中起作用仍是一个有待解决的问题.

我们的计算基于数值求解含时薛定谔方程(time-dependent Schrödinger equation, TDSE),TDSE能够可靠地再现光电离实验中的各种干涉结构^[4,6,8-12].但是我们很难从TDSE的结果中分析其中的物理机理.最近,人们提出了一种从经典轨迹蒙特卡罗(classical-trajectory Monte Carlo, CTMC)方法^[31-33]发展而来的量子轨迹蒙特卡罗(quantum-trajectory Monte Carlo, QTMC)方法.这种方法是利用费曼路径积分原理,将电子隧穿电离之后的各种作用,包括库仑势作用和量子干涉作用考虑进去实现的^[34].这种方法可以复制出光电子的角分布,并能够对隧穿后的电子行为有更深入的分析 and 了解.近年来QTMC方法已经被成功地广泛应用于光电子谱的分析工作中.但是这种QTMC方法的局限性在于它对电离概率采取了准静态近似处理,导致这种方法只在描述 $\gamma \ll 1$ 时的情形比较适用^[15].

我们发展了一套推广的量子轨迹蒙特卡罗(generalized quantum-trajectory Monte Carlo method, GQTMC)方法.这种方法对相对较大取值的Keldysh参数 γ 都能够适用.GQTMC方法提供了一个研究非绝热效应和库仑势效应的有效方法,它还能够提取出光电离动量谱中干涉结构所包含的电子动态轨迹的信息.

2 推广的量子轨迹蒙特卡罗方法

GQTMC方法^[35,36]基于包括非绝热隧穿电离率、非绝热初始位置等的非绝热电离理论^[16,37],并结合了电场和库仑场作用下电子的经典运动^[31-33]以及费曼路径积分方法^[34,38].

电离率由以下形式给出:

$$\Gamma(t) = N(t) \exp\left(-\frac{E_0^2 f^2(t)}{\omega^3} \Phi(\gamma(t), \theta(t))\right). \quad (1)$$

指数项之前的因子的形式为

$$N(t) = A_{n^*,l^*} B_{l,|m|} \left(\frac{3\kappa}{\gamma^3}\right)^{\frac{1}{2}} \times C I_p \left(\frac{2(2I_p)^{3/2}}{E(t)}\right)^{2n^* - |m| - 1}, \quad (2)$$

这里 $\kappa = \ln(\gamma + \sqrt{\gamma^2 + 1}) - \frac{\gamma}{\sqrt{\gamma^2 + 1}}$. A_{n^*,l^*} 和 $B_{l,|m|}$ 与Ammosov-Delone-Krainov (ADK)电离率公式^[38]中一样.式中 $C = (1 + \gamma^2)^{|m|/2 + 3/4} A_m(\omega, \gamma)$ 是Perelomov-Popov-Terentev (PPT)对 A_m 的库仑指数前项因子的准静态限制 $\gamma \ll 1$ 的修正.其中 A_m 形式为^[37]

$$A_m(\omega, \gamma) = \frac{4}{\sqrt{3\pi}} \frac{1}{|m|!} \frac{\gamma^2}{1 + \gamma^2} \times \sum_{n \geq \nu}^{\infty} \exp\{-\alpha(n - \nu)\} \times \omega_m \left(\sqrt{\beta(n - \nu)}\right), \quad (3)$$

这里

$$\omega_m = e^{-x^2} \int_0^x e^{\nu^2(x^2 - y^2)^{|m|} dy} = \frac{x^{2|m|+1}}{2} \int_0^1 \frac{e^{-x^2 t^{|m|}}}{(1-t)^{1/2}} dt, \quad (4)$$

$$\alpha(\gamma) = 2 \left[\text{Arsh} \gamma - \frac{\gamma}{(1 + \gamma^2)^{1/2}} \right], \quad (5)$$

$$\beta = 2\gamma(1 + \gamma^2)^{-1/2}. \quad (6)$$

在 $\gamma \ll 1$ 时,有 $A_m(\omega, \gamma) \rightarrow 1$,并且 $\Gamma(t)$ 会过渡到ADK的绝热电离率;在 $\gamma \gg 1$ 的时候, $A_m(\omega, \gamma)$ 可以用多光子电离区^[37]的指数前项因子来近似处理.

在(1)式中, $E_0 f(t)$ 和 $\theta(t)$ 分别是激光电场的包络和相位, $\gamma(t)$ 包含了脉冲包络.函数 $\Phi(\gamma, \theta)$ 用下面的式子来表示:

$$\Phi(\gamma, \theta) = \left(\gamma^2 + \sin^2 \theta + \frac{1}{2}\right) \ln c - \frac{3\sqrt{b-a}}{2\sqrt{2}} \sin|\theta| - \frac{\sqrt{b+a}}{2\sqrt{2}} \gamma, \quad (7)$$

$$a = 1 + \gamma^2 - \sin^2 \theta, \quad (8)$$

$$b = \sqrt{a^2 + 4\gamma^2 \sin^2 \theta}, \quad (9)$$

$$c = \sqrt{\left(\sqrt{\frac{b+a}{2}} + \gamma\right)^2 + \left(\sqrt{\frac{b-a}{2}} + \sin^2 |\theta|\right)}. \quad (10)$$

电离之后, 电子在电场力和库仑力作用下的运动可以用牛顿方程来表示:

$$\frac{d^2}{dt^2} \mathbf{r} = -\mathbf{E}(t) - \nabla(V(\mathbf{r})), \quad (11)$$

式中 $V(\mathbf{r})$ 是离子势. 每一条电子轨迹的权重由电离概率 $\Gamma(t_0, v_{r0}) = \Gamma(t_0) \times \Omega(v_{r0})$ 表示, 式中

$$\Omega(v_{r0}) \propto \left[\frac{\sqrt{2I_p}}{|E(t_0)|} \right] \exp \left[\frac{\sqrt{2I_p}(v_{r0})^2}{|E(t_0)|} \right].$$

为了正确地描述非绝热隧穿电离效应, 不仅仅是对电离率进行修正, 还需要进一步考虑非绝热的隧穿位置:

$$z_0 = \frac{2I_p}{E(t_0)} \left(1 + \sqrt{1 + \gamma^2(t_0)} \right)^{-1}. \quad (12)$$

随电场和含时 Keldysh 参数变化的隧穿位置由于非绝热效应会更靠近核 [37]. 另外, 也可进一步考虑纵向初始速度分布 [39], 根据费曼路径积分方法, 我们对第 j 条轨迹的经典运动沿着其轨迹积分来获得它的轨迹的相位 [34,38]:

$$S_j(\mathbf{p}, t_0) = \int_{t_0}^{+\infty} \left\{ \frac{\mathbf{v}_p^2(\tau)}{2} + I_p - \frac{1}{|\mathbf{r}(t)|} \right\} d\tau, \quad (13)$$

\mathbf{p} 是第 j 条电子的渐近动量. 每一个渐进动量对应的概率:

$$|\Psi|_{\mathbf{p}}^2 = \left| \sum_j \sqrt{\Gamma(t_0, v_r^j)} \exp(-iS_j(\mathbf{p}, t_0)) \right|^2. \quad (14)$$

结合并行计算方法, 我们可以计算十亿条电子轨迹以达到干涉条纹的收敛, 从而获得正确的最终电子动量角分布谱. 在第 3 部分, 我们会看到 GQTMC 模拟能够很好地再现实验和 TDSE 计算结果 [35,36], 并且, 能够提取电子轨道、初始电离相

位和初始速度等电子动力学信息. 最近, Lin 等 [40] 也发展了一套基于强场近似方法的 QTMC 理论, 也可以很好地处理非绝热电离相关效应. 这里简要介绍我们 GQTMC 程序包里应用的重要轨迹筛选算法以及干涉条纹收敛性.

要得到收敛的计算结果, 蒙特卡罗计算必须基于大量经典轨道样本的计算. 为了提高计算效率, 我们采用了一种重要轨迹筛选算法. 在初始设置随机样本时对每条轨道的重要性做一个判定, 对最终干涉结构有重要影响的轨道会保留并进行接下来的计算, 反之则舍弃该条轨迹. 这样我们就能快速有效地提取到足够数目的能完整表现干涉结构的轨道来. 根据激光参数以及重要轨迹筛选算法, 我们能在获得足够轨迹数目保证计算的收敛性的同时大幅节省计算时间.

干涉的收敛性需要与重要轨迹筛选算法相结合. 如不考虑干涉, 只需计算 10^6 条轨道就可以得到收敛 CTMC 结果 [41], 而考虑干涉条纹的收敛性的 GQTMC, 所需要的轨道数目要远远多于 CTMC 情况. 如图 1(a)—(c) 是在同样的参数条件下轨道数目为 1×10^5 , 2×10^6 和 1×10^9 条时获得的动量谱. 从图 1(a) 可以看出, 轨道数目太少不足以反映任何有效信息. 由于 GQTMC 的计算实际上包含了不考虑干涉的 CTMC 计算, 当轨道数目达到 10^6 量级时, 从图 1(b) 的二维动量谱已经可以得到非相干的结构, 但还不足以清楚地分辨干涉结构. 当轨道数目进一步增加到 1×10^9 条时, 从图 1(c) 中可清晰地看到阈上电离的圆环和光电子全息的叉子结构.

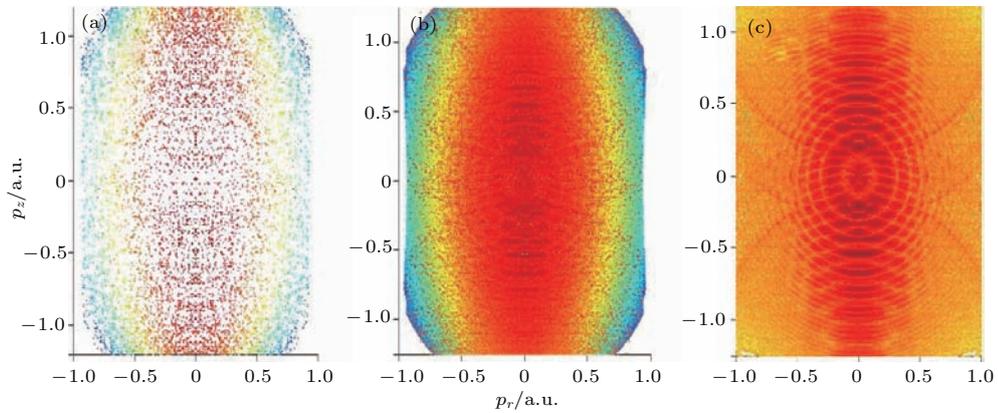


图 1 干涉收敛性示意图

Fig. 1. Convergence of the interference in GQTMC.

3 计算结果与分析

3.1 强场光电子全息中的亚周期非绝热电离

为了验证GQTMC计算程序包的正确性和可靠性,我们获得了Huisman等^[4]关于强场光电子全息文章中的实验数据,并用我们的计算方法重现了他们的实验结果(见图2)^[35].为了更符合实验情形,这些计算我们用到了高斯型场强平均方法^[42]:

$$N \propto \int_0^{I_0} \frac{dI}{I} R(I) \left(\ln \frac{I_0}{I} \right)^{\frac{1}{2}},$$

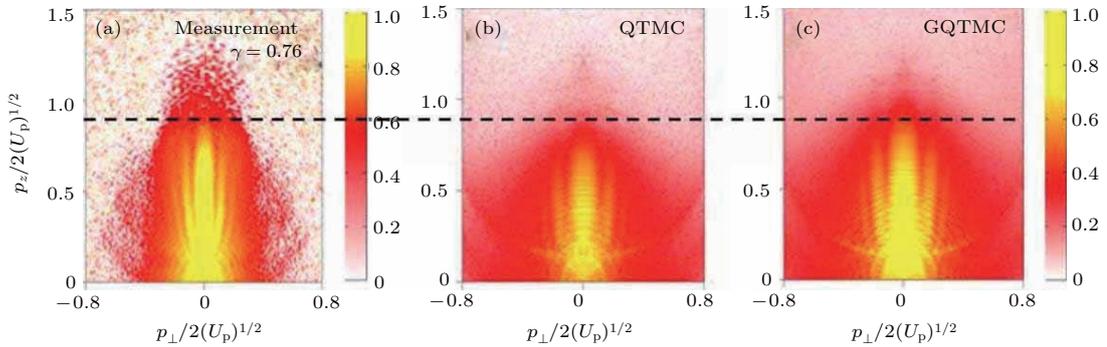


图2 实验和数值计算中利用波长为7000 nm的激光场作用在6s态Xe原子上光获得的二维光电子动量分布图像对比(引自文献^[35])

Fig. 2. Comparison of experimental two-dimensional photoelectron momentum distributions with calculations, for the metastable 6s state ($I_p = 0.14$ a.u.) of xenon atom by lasers of wavelength of 7000 nm (adapted from Ref. ^[35]).

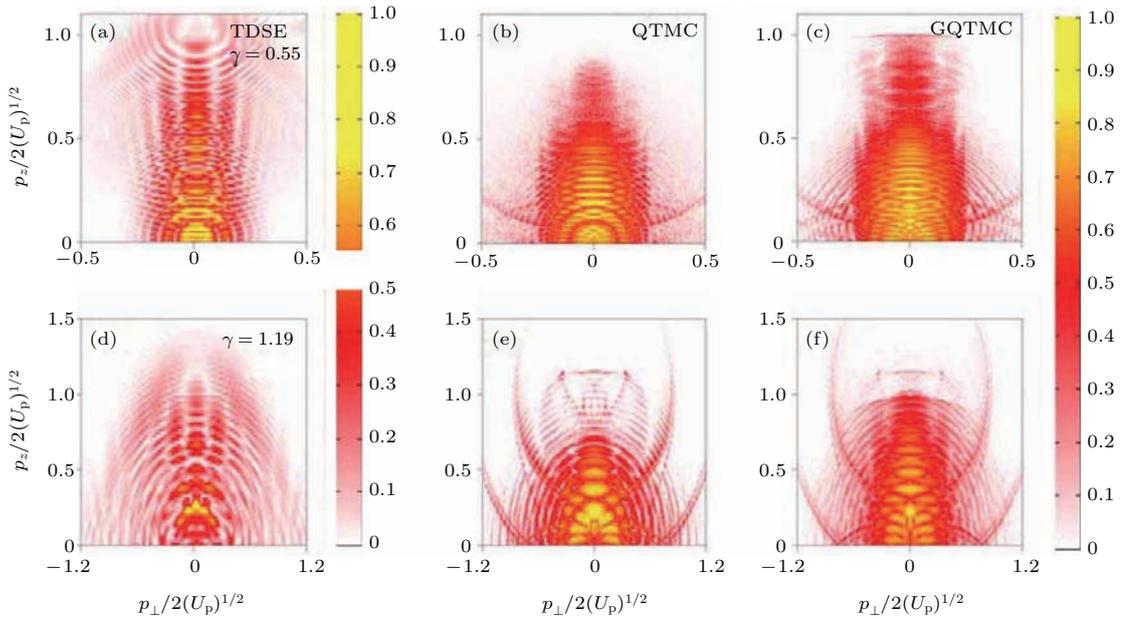


图3 基态Xe原子的TDSE, QTMC和GQTMC光二维光电子动量分布的比较(引自文献^[35])

Fig. 3. Comparison of two-dimensional photoelectron momentum spectra of Xenon atom from the ground state using TDSE, QTMC and GQTMC (adapted from Ref. ^[35]).

$R(I)$ 是电场为 I 时获得的光电子全息图像, I_0 是峰值强度.

图2(a)是在激光场强度为 7.1×10^{11} W/cm²的实验条件下获得的光电子动量分布图像,对应的Keldysh参数 γ 为0.76.图2(b)是准静态ADK电离率下的QTMC模拟计算结果,图2(c)是GQTMC的模拟计算结果,模拟计算的峰值光强均为 9.1×10^{11} W/cm².由图可以很清楚地看到我们的模拟计算结果无论是在fork结构上还是能量截止位置上都与实验结果更为接近,这也说明了我们的计算的可靠性是非常高的.

接下来我们进一步研究了Keldysh参数 γ 分别

为0.55和1.19时的两种情形,如图3.从图3中我们可以很清楚地看到无论是在能量cut-off还是fork结构上,GQTMC和TDSE都是比较接近的,而QTMC的结果出现了很大的缺陷,尤其是在Keldysh参数 γ 为1.19的情形.以上两组计算清楚地表明了,在非绝热情形下,PPT理论能更准确地描述原子的电离.

在准静态绝热理论下,在电场力很小时电离率也非常小,相比之下,非绝热电离率拓宽了电离区间,也就是在电场很小时也有较ADK更强的电离率,从而增强全息结构.

为了更清楚地理解非绝热电离效应,我们对图3两种情形的结果做了电离率分析,如图4.图4对应的动量分布的范围为 $U_p^{0.5}-U_p$,这一区域是全息干涉条纹最为明显的区域.我们根据所获得的初始横向速度-电离相位-电离率分布,把一个

周期内的电离分为A, B, C, D 4个部分.图4(e)是一个周期内绝热ADK和非绝热的电离率分布对比.根据强场近似和经典理论的计算结果,A区域电离出来的电子对应动量谱中全息干涉结构的竖条纹部分.因此我们提取了A区域对应的动量谱,如图5.在Keldysh参数 γ 为0.55时,QTMC和GQTMC的结果都能很好地重现TDSE中竖条纹结构,但是对于Keldysh参数 γ 为1.19的情形,GQTMC条纹结构截止的位置要更高,也更接近TDSE的结果.通过图4(c)—(e)可以看到其中的差别:在电场趋近于0时,GQTMC仍有着较高的电离率.也就是说,GQTMC在Keldysh参数 γ 接近1仍能非常准确地描述电子电离,也就是说对于更大范围内的Keldysh参数 γ 取值,我们的计算都是十分可靠的.

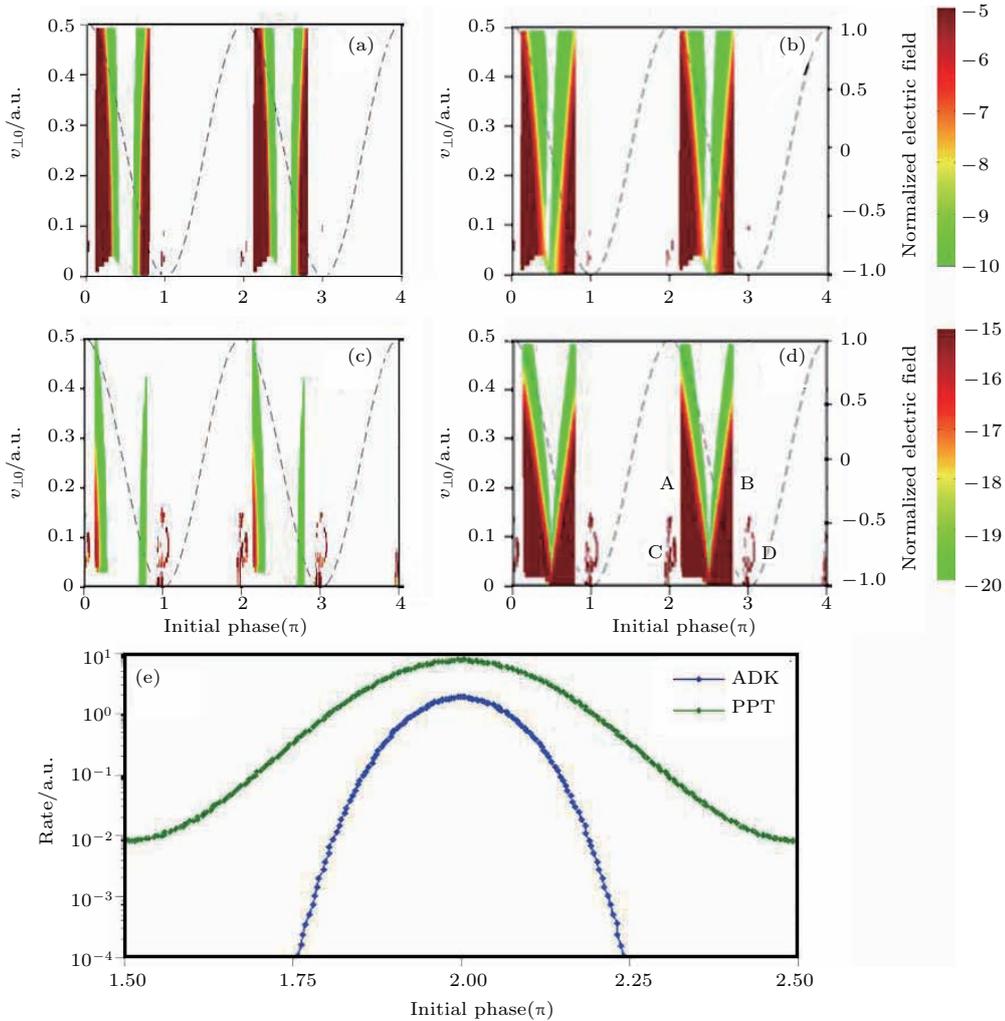


图4 初始横向速度以及初始电离相位与电离率关系图像 (引自文献 [35])

Fig. 4. Distributions of the initial transverse velocity and the initial ionization phase of the laser (adapted from Ref. [35]).

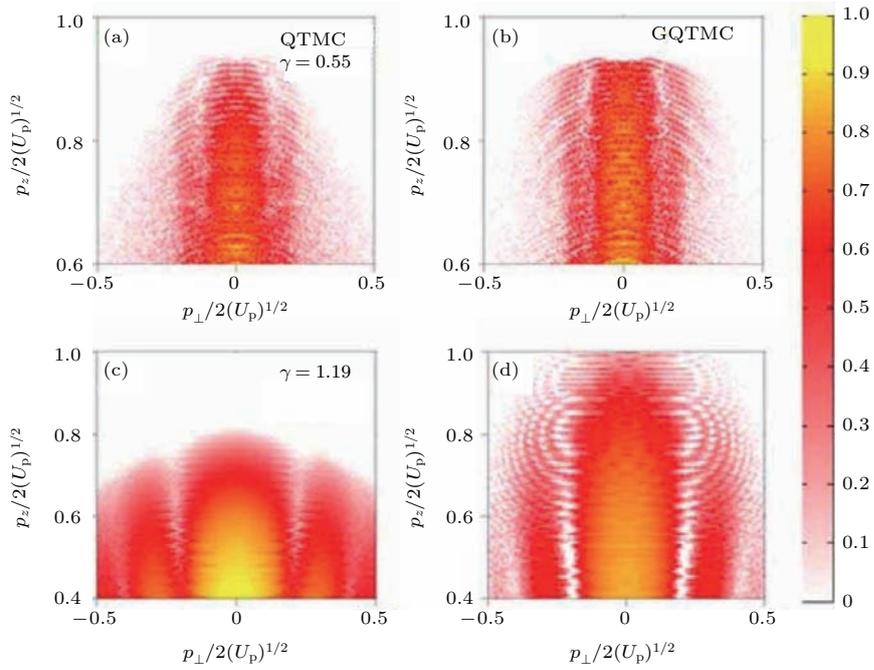


图5 QTMC和GQTMC计算中Keldysh参数分别为0.55和1.19时A部分对应动量概率分布的比较(引自文献[35])
 Fig. 5. Comparison of the final PMD due to ionization from area A (see Fig. 3(d)) calculated by the QTMC and GQTMC for $\gamma = 0.55$ and 1.19, respectively (adapted from Ref. [35]).

3.2 圆环干涉结构

在深隧穿区,我们在TDSE和GQTMC计算中

都发现了一种环形干涉结构[36].这种结构是由周期内干涉和周期内干涉叠加导致的,并且该干涉结构的形成与长程库仑势无关.

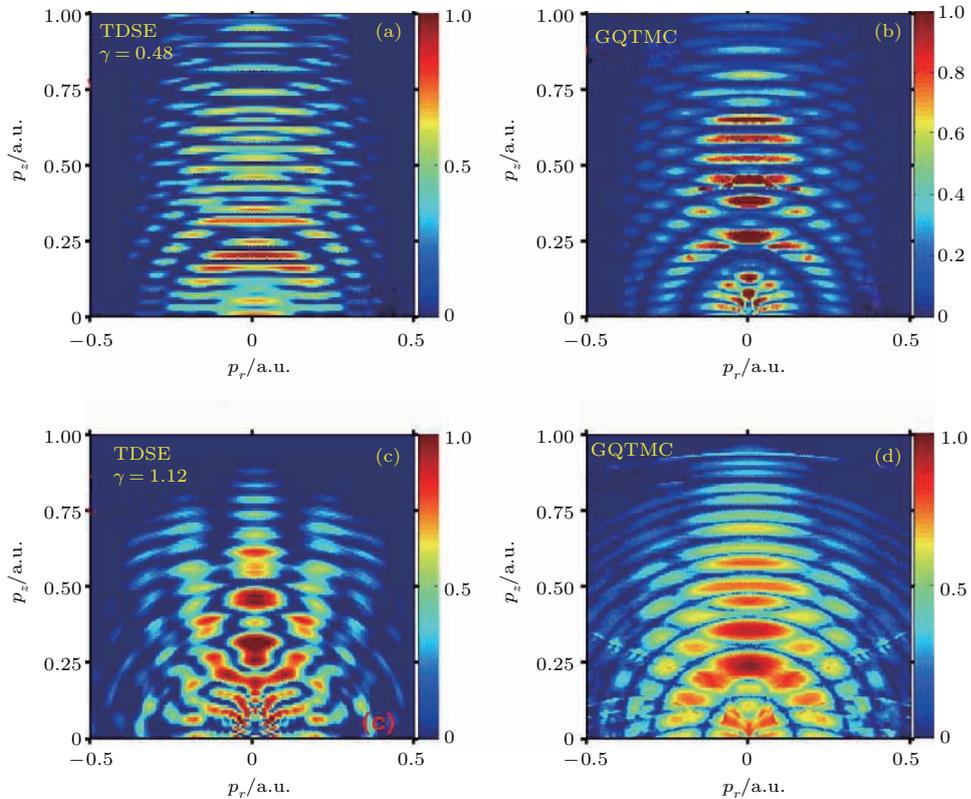


图6 Ar的光电子动量谱[36]

Fig. 6. Simulated two-dimensional photoelectron momentum spectra of an Ar atom[36].

图6分别给出了TDSE和GQTMC的计算结果, 所用原子为氩原子. 通过对比我们可以看到, 无论是在隧穿区还是过渡区, GQTMC的计算结果和TDSE计算结果都符合得非常好. 在Keldysh参数 $\gamma = 0.48$ 的情形, TDSE和GQTMC动量谱中两个环的中心均分别在 $p_z \sim 0.56$ a.u. 和 $p_z \sim 0$ a.u., p_x 均为0 a.u.. 然而在Keldysh参数 $\gamma = 1.12$ 时, 圆环结构消失, “叉子”状光电子全息结构变得更加明显.

图8给出了不同时间窗口发射光电子二维动量谱. 图8(a)和图8(d)给出了由窗口A和C发射的电子形成的时域双缝干涉结构; 图8(b)和图8(e)的ATI图样是由窗口A和B发射的光电子相互干涉形成的; 图8(c)和图8(f)所示的干涉结构是由来自所有这三个时间窗口A, B和C光电子

形成的. 可以看出, 与ATI向外的环相比, 时域的双缝干涉图样是一个内凹的结构.

为了更清楚地分析长程库仑势的影响, 我们进一步研究了不考库仑势的情况(图9). 与图8比较可以看到, 库仑势的影响主要体现在: 1) 在低动量区扭曲了二维光电子谱; 2) 由于库仑势的存在才产生了再散射轨道即轨迹R. 没有库仑势, 轨道R将不存在也因此不会产生全息干涉. 图8(a)和图8(b)几乎观察不到全息干涉结构, 这就意味着轨迹R在 $\gamma = 0.48$ 的情况下贡献很小, 更有趣的是: 当我们重新构建3个窗口光电子动量谱时, 在考虑、不考虑库仑势两种情况下都能观察到环状干涉结构(图8(c)与图9(c)), 证明库仑势和它产生的轨迹R对这种干涉的影响可以忽略不计.

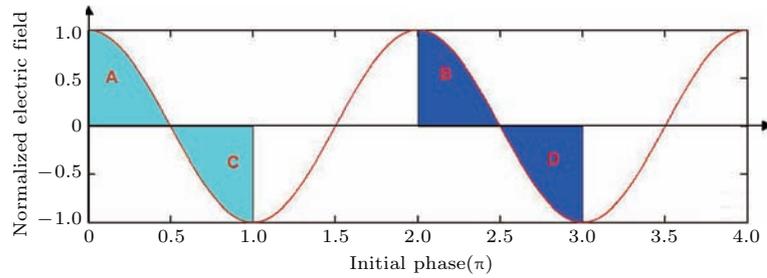


图7 电子电离的时间窗口(引自文献[36])

Fig. 7. Subcycle time windows from which photoelectrons are emitted (adapted from Ref. [36]).

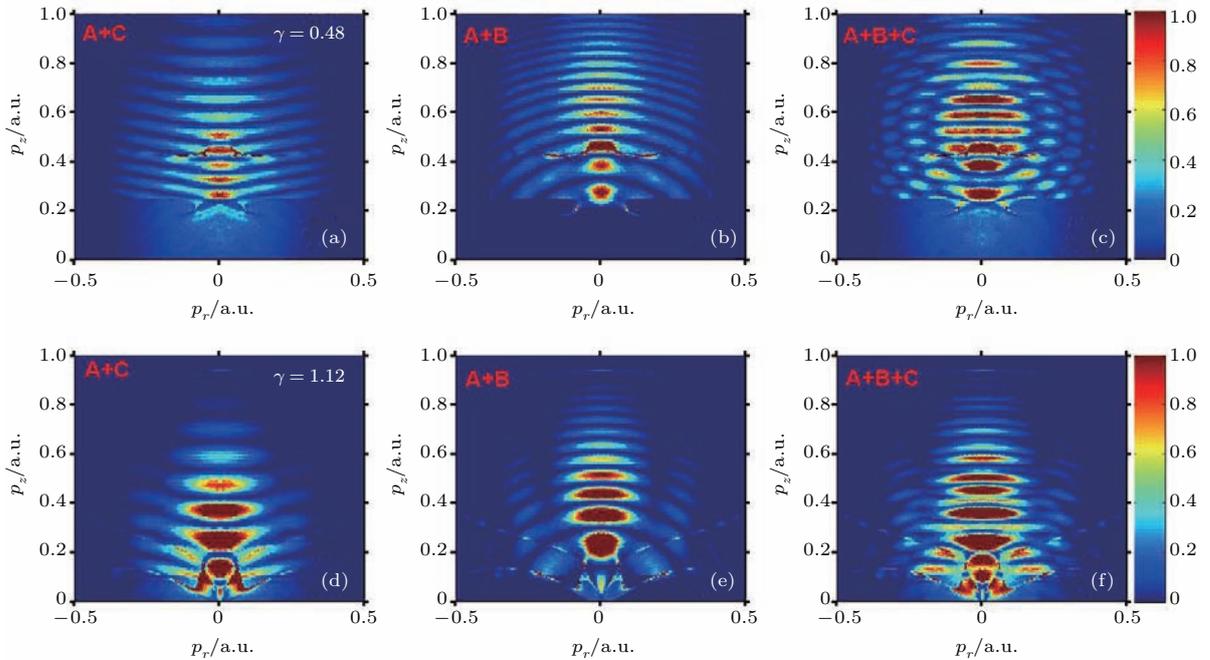


图8 Ar的光电子在不同时间窗口的动量谱(引自文献[36])

Fig. 8. Reconstructed photoelectron momentum spectra with EWPs from different time windows (adapted from Ref. [36]).

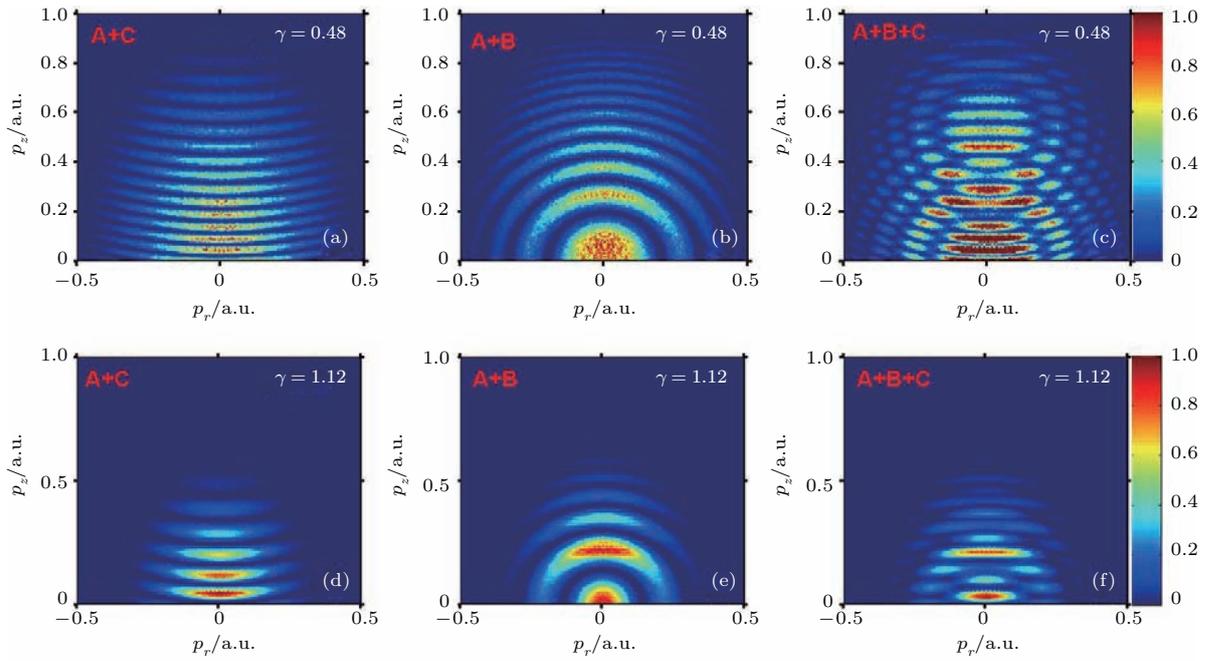


图9 同图8, 但是不考虑库仑势 (引自文献 [36])

Fig. 9. The same as with Fig. 8 but without considering the Coulomb potential (adapted from Ref. [36]).

$\gamma = 1.12$ 的情况就非常不同. 轨迹 R 对整个动量谱的贡献非常大, 导致 fork 结构能在动量谱清晰地分辨出来. 与 $\gamma = 0.48$ 情形不同的是, 从三个窗口提取出来的动量分布并不能形成圆环结构而全息干涉结构可以被清楚地观察到 (见图 8 (f)). 这表明再散射轨迹 R 的确对全息干涉结构的形成起着至关重要的作用.

为了更深入地了解圆环结构的具体干涉机理, 我们分别提取一个电离周期内电场峰值右侧

半个周期内所有电子如图 10 (a) 和图 10 (e) (对应图 7 中 A 部分和 C 部分), 不同电离周期的电场峰值右侧四分之一周期内所有电子的动量以及相位信息和图 11 (a) 和图 11 (e) (对应图 7 中 A 部分和 B 部分). 图 10 (b)–(d) 以及图 10 (f)–(h) 分别为对应图 10 (a)、图 10 (e) 标记区域轨迹的相位和概率. 图 11 与图 10 做了同样的分析. 我们可以清楚地看到, 对于周期内的干涉, 相位-概率图中有三个圆弧, 由内向外分别对应直接、非直接和散射轨道. 当

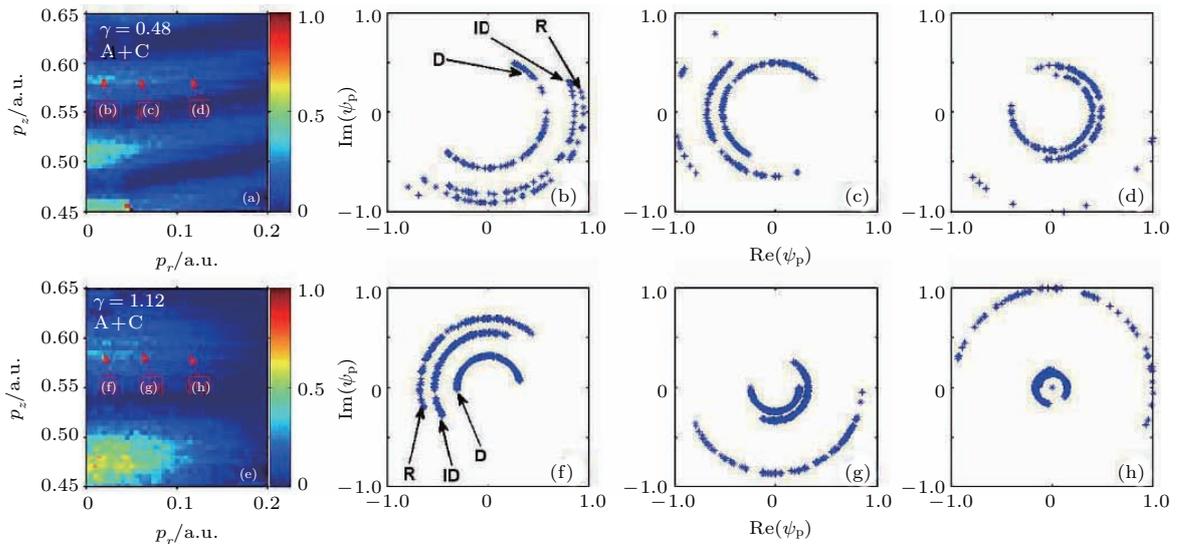


图10 动量谱各点在复平面上的相位的概率 (引自文献 [36])

Fig. 10. The probabilities of the summed trajectories Ψ_p in the complex plane (adapted from Ref. [36]).

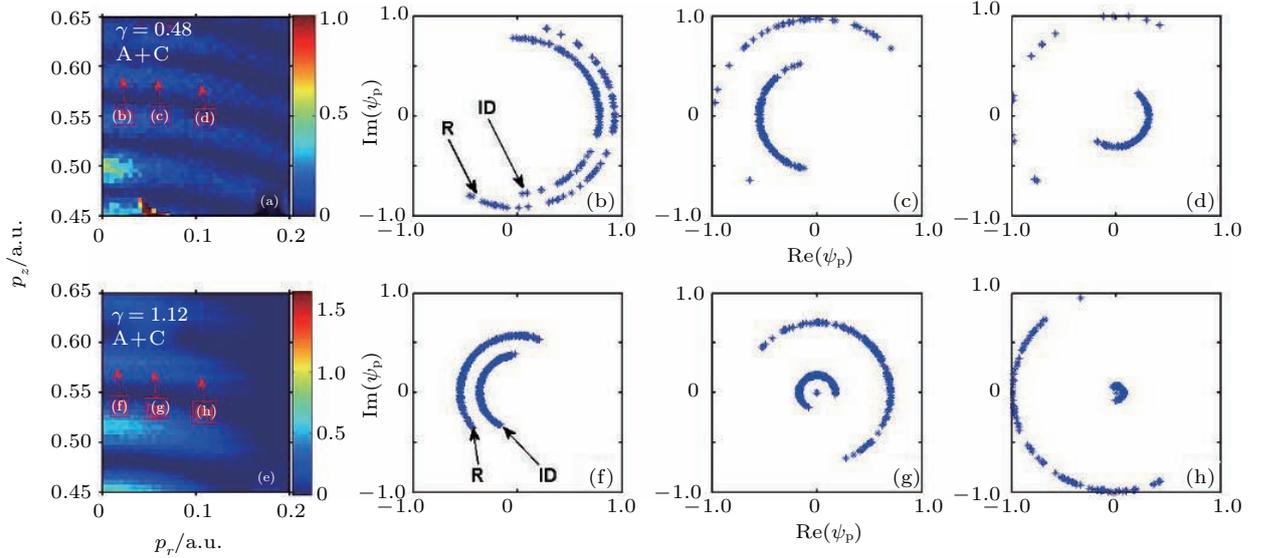


图 11 动量谱各点在复平面上的相位的概率 (引自文献 [36])

 Fig. 11. The probabilities of the summed trajectories Ψ_p in the complex plane (adapted from Ref. [36]).

不同圆弧张角方向越靠近时, 干涉结构就越明显. 通过对比 Keldysh 参数 $\gamma = 0.48$ 和 $\gamma = 1.12$ 两种情形, 我们发现 Keldysh 参数 $\gamma = 0.48$ 时, 散射轨道明显减少, 而 Keldysh 参数 $\gamma = 1.12$ 条件下散射电子对总动量谱贡献更大. 因此, 我们得到如下结论: 随着散射电子对总动量谱贡献增大, 全息干涉结构会越来越明显, 而圆环结构是由直接电子和非直接电子之间的周期以及周期内的干涉形成.

3.3 分子光电子全息

实验研究已经发现分子光电子全息的干涉结构可以反映连续态电子的相位信息 [6]. 最近, 一种关于分子的强场近似方法被用于模拟相关实验 [43,44]. 为了做进一步的探索和研究, 我们在 GQTM 方法的基础上发展了分子的量子轨道蒙特卡罗方法, 并用它来解释强激光场与分子直接相互作用的光电子全息现象.

3.3.1 分子电离率

首先, 我们给出通过垂直于 Z 轴的任意一平面的总概率流, 具体形式如下:

$$\omega = \int_0^\infty |\psi|^2 v_z \rho d\rho d\phi, \quad (15)$$

这里 ψ 为电子基态波函数, ρ 为平面内的半径. 由椭球坐标和笛卡尔之间坐标转换:

$$\rho^2 = (R^2/4)(\lambda^2 - 1)(1 - \mu^2). \quad (16)$$

电子的速率可以表示为

$$v_z \approx \frac{R^2}{2} \mu v_\lambda = \frac{R}{2} \mu p, \quad (17)$$

其中 $p = (2E_0 - R\varepsilon\mu\lambda)^{1/2}$.

电子的波函数表达式为

$$\psi = \kappa^{5/2} / \sqrt{2\pi(1+s)} \times \left(e^{-\kappa r_A} r_A \cos \theta_A + e^{-\kappa r_B} r_B \cos \theta_B \right), \quad (18)$$

椭球坐标下:

$$\psi = C R e^{-\frac{\kappa R}{2} \lambda} \left(\lambda \mu \cosh \left(\frac{\kappa R}{2} \mu \right) + \sinh \left(\frac{\kappa R}{2} \mu \right) \right), \quad (19)$$

其中 $C = \kappa^{5/2} / \sqrt{2\pi(1+s)}$.

氮分子的电离率表达式为

$$W_a = \frac{2(3\pi)^{1/2} C^2 (2E_0)}{\varepsilon^{3/2}} e^{-\kappa R} \frac{R^3}{4} \times \int_0^1 \mu^{1/2} \left[\mu \cosh \left(\frac{\kappa R}{2} \mu \right) + \sinh \left(\frac{\kappa R}{2} \mu \right) \right]^2 \times \exp \left[-2(2E_0)^{3/2} / \varepsilon \right] d\mu. \quad (20)$$

3.3.2 隧穿位置

隧穿位置的求解我们根据能量守恒 [6,45]:

$$V + E_0 - E_Z(t)Z = \left(-\frac{1}{r_a} - \frac{1}{r_b} \right) \frac{1}{2} + E_0 - E_Z(t)Z = 0, \quad (21)$$

这样便能求解出随电场变化的电子隧穿位置 Z_0 .

3.3.3 计算结果对比

从图 12 我们能很清楚地看到, 引入激光场与分子核轴之间的夹角, 全息干涉结构会出现关于偏

振方向不对称的现象. 通过与这一实验及其他不同实验结果的对比, 分子量子轨道蒙特卡罗方法都能很好地复制实验结果.

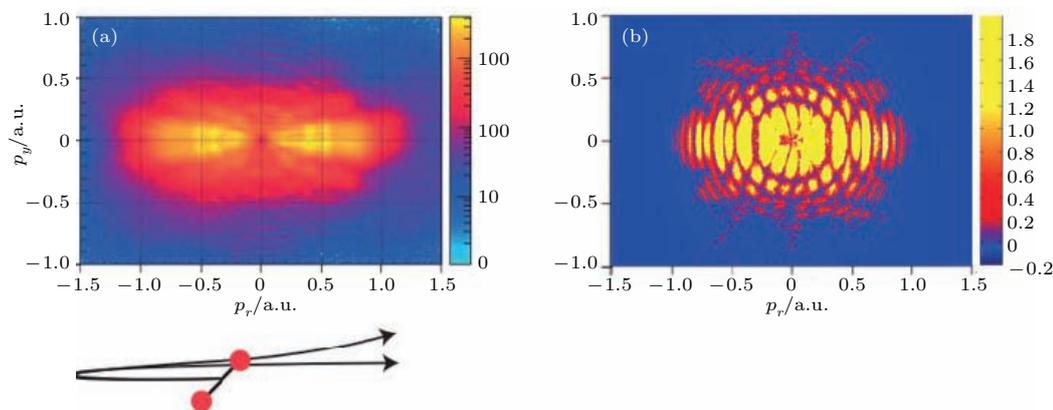


图 12 N_2 分子核与激光场夹角为 45° 时的实验图 (a) [6] 与 MO-GQTMC 算的模拟对比图 (b)

Fig. 12. Measured and simulated photoelectron spectra showing the holographic interference for 45° alignment (Fig. (a) is adapted from Ref. [6]).

4 结 论

我们发展了一套处理强激光场与原子、分子相互作用的数值计算方法: GQTMC. 这种方法可以用于研究不同的激光参数条件下的强场电离动力学过程. 我们用这种方法很好地重复了一些实验结果和 TDSE 的计算结果, 同时, 又能全面地分析电子动力学过程中的物理信息. 利用 GQTMC 方法, 我们研究了光电子全息中的库仑势效应和非绝热亚周期电离. 而且, 我们在深隧穿条件下发现了一种环状干涉结构, 这种环状结构会抹掉光电子全息的干涉结构. 了解了这些干涉机理使我们能够给出观察光电子全息的有利实验条件. 我们进一步发展了分子的量子轨迹蒙特卡罗方法, 能够准确地再现相关实验结果. 量子轨迹蒙特卡罗方法提供了一种有效而又准确的方式来探究光电子动量分布中的干涉结构及其隐含的电子动力学过程的时空信息.

参考文献

- [1] Agostini P, Fabre F, Mainfray G, Petite G, Rahman N K 1979 *Phys. Rev. Lett.* **42** 1127
- [2] Becker W, Grasbon F, Kopold R, Milosevic D B, Paulus G G, Walther H 2002 *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **48** 35
- [3] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [4] Huismans Y, Rouzée A, Gijsbertsen A, Jungmann J H, Smolkowska A S, Logman P S W M, Lépine F, Cauchy

- C, Zamith S, Marchenko T, Bakker J M, Berden G, Redlich B, Meer A F G, Muller H G, Vermin W, Schafer K J, Spanner M, Ivanov M Y, Smirnova O, Bauer D, Popruzhenko S V, Vrakking M J J 2011 *Science* **331** 61
- [5] Hickstein D D, Ranitovic P, Stefan W, Tong X M, Huismans Y, Arpin P, Zhou X B, Keister K E, Hogle C W, Zhang B S, Ding C Y, Johnsson P, Toshima N, Vrakking M J J, Mumane M M, Kapteyn H C 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 073004
- [6] Meckel M, Staudte A, Patchkovskii S, Villeneuve D M, Corkum P B, Dörner R, Spanner M 2014 *Nature Phys.* **10** 594
- [7] Huismans Y, Gijsbertsen A, Smolkowska A S, Jungmann J H, Rouzée A, Logman P S W M, Lépine F, Cauchy C, Zamith S, Marchenko T, Bakker J M, Berden G, Redlich B, Meer A F G, Ivanov M Y, Yan T M, Bauer D, Smirnova O, Vrakking M J J 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 013002
- [8] Marchenko T, Huismans Y, Schafer K J, Vrakking M J J 2011 *Phys. Rev. A* **84** 053427
- [9] Yang W F, Song X H, Chen Z J 2012 *Opt. Express* **20** 12067
- [10] Yang W F, Song X H, Zeng Z N, Li R X, Xu Z Z 2010 *Opt. Express* **18** 2558
- [11] Bian X B, Huismans Y, Smirnova O, Yuan K J, Vrakking M J J, Bandrauk A D 2011 *Phys. Rev. A* **84** 043420
- [12] Yang W F, Sheng Z H, Feng X P, Wu M L, Chen Z J, Song X H 2014 *Opt. Express* **22** 2519
- [13] Haertelt M, Bian X B, Spanner M, Staudte A, Corkum P B 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 133001
- [14] Zhou Y M, Tolstikhin O I, Morishita T 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 173001
- [15] Keldysh L V 1965 *Sov. Phys. JETP* **20** 1307
- [16] Yudin G L, Ivanov M Y 2001 *Phys. Rev. A* **64** 013409

- [17] Ivanov M Y, Spanner M, Smirnova O 2005 *J. Mod. Opt.* **52** 165
- [18] Ecker P, Pfeiffer A N, Cirelli C, Staudte A, Dörner R, Müller H G, Büttiker M, Keller U 2008 *Science* **322** 1525
- [19] Boge R, Cirelli C, Landsman A S, Heuser S, Ludwig A, Maurer J, Weger M, Gallmann L, Keller U 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 103003
- [20] Gkortsas V M, Bhardwaj S, Lai C J, Hong K H, Filho E L F, Kärter F X 2011 *Phys. Rev. A* **84** 013427
- [21] Ivanov I A, Kheifets A S 2014 *Phys. Rev. A* **89** 021402(R)
- [22] Wang C, Lai X Y, Hu Z L, Chen Y J, Quan W, Kang H P, Gong C, Liu X 2014 *Phys. Rev. A* **90** 013422
- [23] Blaga C I, Catoire F, Colosimo P, Paulus G G, Müller H G, Agostini P, DiMauro L F 2009 *Nature Phys.* **5** 335
- [24] Quan W, Lin Z, Wu M, Kang H, Liu H, Liu X, Chen J, Liu J, He X T, Chen S G, Xiong H, Guo L, Xu H, Fu Y, Cheng Y, Xu Z Z 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 093001
- [25] Wu C Y, Yang Y D, Liu Y Q, Gong Q H, Wu M, Liu X, Hao X L, Li W D, He X T, Chen J 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 043001
- [26] Liu C P, Hatsagortsyan K Z 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 113003
- [27] Yan T M, Popruzhenko S V, Vrakking M J J, Bauer D 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 253002
- [28] Kästner A, Saalman U, Rost J M 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 033201
- [29] Chu W, Wu M Y, Zeng B, Yao J P, Ni J L, Xiong H, Xu H, Lin Z Y, Kang H P, Quan W, Chen J, Liu X, Cheng Y, Xu Z Z 2012 *Phys. Rev. A* **85** 021403
- [30] Guo L, Han S S, Liu X, Cheng Y, Xu Z Z, Fan J, Chen J, Chen S G, Becker W, Blaga C I, DiChiara A D, Sistrunk E, Agostini P, DiMauro L F 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 013001
- [31] Brabec T, Ivanov M Y, Corkum P B 1996 *Phys. Rev. A* **54** R2551
- [32] Hu B, Liu J, Chen S 1997 *Phys. Lett. A* **236** 533
- [33] Chen J, Liu J, Chen S 2000 *Phys. Rev. A* **61** 033402
- [34] Li M, Geng J W, Liu H, Deng Y, Wu C, Peng L Y, Gong Q, Liu Y 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 113002
- [35] Song X H, Lin C, Sheng Z H, Liu P, Chen Z J, Yang W F, Hu S X, Lin C D, Chen J 2016 *Sci. Rep.* **6** 28392
- [36] Yang W F, Zhang H T, Lin C, Xu J W, Sheng Z H, Song X H, Hu S X, Chen J 2016 *Phys. Rev. A* **94** 043419
- [37] Perelomov A M, Popov V S, Terentev M V 1966 *Sov. Phys. JETP* **23** 924
- [38] Salières P, Carrè B, Dèroff L L, Grasbon F, Paulus G G, Walther H, Kopold R, Becker W, Milošević D B, Sanpera A, Lewenstein M 2001 *Science* **292** 902
- [39] Bondar D I 2008 *Phys. Rev. A* **78** 015405
- [40] Li M, Geng J W, Han M, Liu M M, Peng L Y, Gong Q H, Liu Y Q 2016 *Phys. Rev. A* **93** 013402
- [41] Shvetsov-Shilovski N I, Lein M, Madsen L B, Räsänen E, Lemell C, Burgdörfer J, Arbó D G, Tökési K 2016 *Phys. Rev. A* **94** 013415
- [42] Kopold R, Becker W, Kleber M, Paulus G G 2002 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **35** 217
- [43] Li M, Sun X, Xie X, Shao Y, Deng Y, Wu C, Gong Q, Liu Y 2015 *Sci. Rep.* **5** 8519
- [44] Liu M M, Li M, Wu C, Gong Q, Staudte A, Liu Y 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 163004
- [45] Möller M, Meyer F, Saylor A M, Paulus G G, Kling M F, Schmidt B E, Becker W, Milošević D B 2014 *Phys. Rev. A* **90** 023412

SPECIAL TOPIC — Atomic and molecular processes driven by ultrafast intense laser fields

Strong field photoelectron holography studied by a generalized quantum-trajectory Monte Carlo method*

Lin Cheng¹⁾ Zhang Hua-Tang¹⁾ Sheng Zhi-Hao¹⁾ Yu Xian-Huan¹⁾ Liu Peng¹⁾
 Xu Jing-Wen¹⁾ Song Xiao-Hong^{1)†} Hu Shi-Lin²⁾³⁾ Chen Jing^{2)3)†} Yang Wei-Feng^{1)†}

1) (Department of Physics, College of Science, Shantou University, Shantou 515063, China)

2) (Institute of Applied Physics and Computational Mathematics, Beijing 100088, China)

3) (HEDPS, Center for Applied Physics and Technology, Peking University, Beijing 100871, China)

(Received 25 August 2016; revised manuscript received 19 October 2016)

Abstract

Strong-field photoelectron holography encodes detailed temporal and spatial information about both the electron and ion dynamics. Here, we review a series of numerical studies of strong-field photoelectron holography in atoms and molecules by a generalized quantum-trajectory Monte Carlo method. By comparing the generalized quantum-trajectory Monte Carlo simulation with the numerical solution of the time-dependent Schrödinger equation, we demonstrate that, in the nonadiabatic tunneling regime, pronounced nonadiabatic effects occur which manifest in the energy cutoff of the holographic interference structure. Moreover, we found that a profound ring-like pattern can be observed in the deep tunneling ionization regime. The appearance of the ring-like interference pattern masks the holographic interference structure. In contrast to the tunneling regime, the long-range Coulomb potential is found to play an essential role in the formation of the photoelectron holography in the nonadiabatic tunneling regime.

Keywords: strong field photoelectron holography, generalized quantum-trajectory Monte Carlo method, nonadiabatic tunneling ionization

PACS: 32.80.Wr, 33.60.+q, 61.05.jp

DOI: 10.7498/aps.65.223207

* Project was supported by the National Key Program for S&T Research and Development, China (Grant No. 2016YFA0401100), the National Basic Research Program of China (Grant No. 2013CB922201), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11374202, 11674209, 11274220, 11274050, 11334009, 11425414), the Major Program of Guangdong Natural Science Foundation (Grant No. 2014A030311019), and the “Yang Fan” Talent Project of Guangdong Province, China.

† Corresponding author. E-mail: songxh@stu.edu.cn; chen_jing@iapcm.ac.cn; wfyang@stu.edu.cn

频域图像下的强场非序列电离过程

金发成 王兵兵

Frequency-domain view of nonsequential double ionization in intense laser fields

Jin Fa-Cheng Wang Bing-Bing

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 224205 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.224205

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.224205>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I22>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

1.5 μm 光通信波段明亮压缩态光场的产生及其 Wigner 函数的重构

Generation of bright squeezed light at 1.5 μm telecommunication band and its Wigner function reconstruction

物理学报.2016, 65(4): 044203 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.044203>

原子系统中远失谐脉冲光束对的群速度操控

Group velocity manipulation of far off-resonant pulse-pair in atomic system

物理学报.2015, 64(9): 094208 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.094208>

循环跃迁的 Δ 型三能级系统中的无反转激光

Laser without inversion in a Δ -configuration three-level system with cyclic transition

物理学报.2012, 61(14): 144205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.144205>

二能级原子与高品质因子腔的自发辐射特性

Characteristics of spontaneous emission from a two-level atom in a very high Q cavity

物理学报.2011, 60(10): 104204 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.60.104204>

量子点腔系统中抽运诱导受激辐射与非谐振腔量子电动力学特性的研究

Studies of characteristics for pump-induced emission and anharmonic cavity-QED in quantum dot-cavity systems

物理学报.2011, 60(4): 044202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.60.044202>

专题: 超快强激光驱动下的原子分子过程

频域图像下的强场非序列电离过程*

金发成¹⁾²⁾ 王兵兵^{1)2)†}

1) (中国科学院物理研究所, 北京凝聚态物理国家重点实验室, 光物理重点实验室, 北京 100190)

2) (中国科学院大学物理科学学院, 北京 100049)

(2016年9月18日收到; 2016年11月6日收到修改稿)

自20世纪60年代激光发明以来, 激光与物质的相互作用就一直成为物理学领域的一个重要研究方向. 通过最近几十年激光技术的发展, 大大拓展了激光的频率、强度及脉宽范围, 使得复杂体系在激光场中的激发、辐射及电离过程得到更精细而深入的研究. 本文总结了处理单色和双色激光场中双电子原子非序列电离的频域理论; 归纳了碰撞-电离和碰撞-激发-电离两种机理下原子非序列电离在单色和双色激光场中的动量谱分布, 并对动量谱上的干涉条纹利用量子通道相干的理论进行了分析; 归纳了前向碰撞和背向碰撞在不同激光场条件下对非序列电离的不同贡献, 以及高频激光场在非序列电离中所起的作用.

关键词: 频域, 强激光场, 非序列双电离, 多电子原子

PACS: 42.50.Ct, 34.50.Fa, 33.20.Xx

DOI: 10.7498/aps.65.224205

1 引言

经过三十多年的研究, 人们对强激光场与物质相互作用过程已经有了非常深入的认识^[1], 特别是低频强激光场中原子和分子的电离及辐射过程使我们对强场阈上电离(ATI)^[2-8]、高次谐波(HHG)^[9-18]及非序列双电离(NSDI)^[19-30]等新现象有了全面和细致的理解. 正因如此, 人们也利用这些新的物理过程发展出新的探测物质结构和动力学过程的技术和手段, 例如, 利用电离电子的重散射机理探测分子结构^[31-33]、利用多个原子态的相干效应提高高次谐波产生效率^[34]等, 其中最重要的进展之一就是利用高次谐波得到了阿秒激光脉冲光源^[35,36].

随着激光技术的进一步发展, 特别是最近自由电子激光技术^[37,38]的快速进步, 为科学研究提供了由远红外低频到X射线高频的宽带激光光源. 由此, 人们对激光与物质相互作用的研究也进入到高频激光场的非线性区域. 对于低频强激光场, 人们

可以在大光子数近似下将激光场作为经典场处理, 并且在这样的低频强激光场中原子或分子的电离和辐射产生过程可以由半经典量子力学方法来处理, 电子电离的重碰过程也可以形象地用强场三步模型来解释^[39]: 原子或分子中的电子在激光场中电离, 然后在激光场的驱动下返回母离子并与之发生重碰, 如果电子被母离子重新俘获并将其携带的能量转化为一个大能量的光子释放出去, 这个过程就是HHG的产生过程; 如果电离电子与母离子发生弹性碰撞, 则电子会在碰撞过程中从激光场中吸收更多的光子从而增加动能, 这个过程就是高阶阈上电离(HATI); 而如果电离电子与母离子发生非弹性碰撞并在碰撞过程中将部分能量传递给另一个电子并使其电离的过程, 称为NSDI. 然而, 随着激光场频率的增加, 特别是当单光子能量远大于电子的电离阈值时, 这个重碰三步模型图像将不再适用: 因为在这种高频激光场中, 即使电子只吸收一个光子, 其获得的动能也非常大, 因而激光的经典电场无法驱使电离电子返回到母离子附近发生重

* 国家自然科学基金(批准号: 61275128, 11474348)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: wbb@aphy.iphy.ac.cn

撞过程. 因此, 随着激光场频率的增加, 特别是当单光子能量远大于电子的电离势时, 激光场作为量子场的处理方法将更为合适和方便.

基于非微扰量子电动力学基础上的频域理论产生于求解 Dirac 方程^[40]. 它对激光场的处理是量子化的, 激光场与物质的相互作用由量子跃迁过程来描述该方法具有很强的适应性, 因此我们可以通过应用不同的物理近似处理感兴趣的问题. 最近, 我们课题组发展了该理论, 成功处理了低频强激光场中的三大重碰现象^[41-46], 即 HHG^[41,42], HATI^[43-45] 及 NSDI^[46] 过程, 建立了重碰过程的全量子力学频域方法. 我们研究了时域理论与频域理论的对应关系, 并用频域图像明确解释了 HHG 的平台原因^[41,42]: 它反映的是电子在激光场中的能谱特点. 我们还建立了 HATI 的频域理论并提出利用 HATI 探测分子结构时存在电荷分布效应^[43-45]. 特别地, 我们最近推导了原子在单色激光场和双色激光场中 NSDI 的全量子频域理论, 证明了电子的散射过程在单色激光场和双色激光场下对 NSDI 贡献的差异^[46,47]. 本文对 NSDI 的频域理论进行综述, 并总结不同激光场下不同的 NSDI 谱结构及其形成的原因(本文采取原子单位制, atomic units, a.u.).

2 原子在强激光场中电离的频域理论

建立在非微扰量子电动力学理论基础上的强场原子电离理论是基于 KFR (Keldysh, Faisal, Reiss) 理论^[48-51] 发展起来的. 在 20 世纪 80 年代, Guo 等^[52-54] 重新推导了自由电子在激光场中的量子 Volkov 态并以此为末态得到了原子在激光场中电离过程的跃迁矩阵公式, 后来 Guo 等^[40] 又利用该方法处理了 ATI 过程. 最近该方法被推广到处理 HHG 的产生过程, 建立了 HHG 与 ATI 的基本联系^[41,42]. 这种方法进一步得到发展, 解决了 HATI 及 NSDI 的全量子(即激光场和原子体系都是量子化处理) 计算过程. 至此, 建立起了描述强激光场中重碰过程的全量子频域理论. 下面我们对频域理论给出一般性的描述并给出应用于 NSDI 过程的跃迁公式.

在频域理论中, 原子与激光场形成一个孤立系统, 原子与光子相互作用的每一步跃迁过程都会保持能量守恒, 因此我们可以利用形式散射理论来研究原子与激光场的相互作用. 根据形式散射理论,

在原子与激光场相互作用前及相互作用后, 系统的状态处于原子和激光场相互独立的状态; 在原子与激光场发生相互作用时, 系统在相应的相互作用算符的作用下由碰撞前的状态跃迁到碰撞后的状态. 原子-激光场作为一个孤立系统, 其哈密顿量可表示为 $H = H_0 + U + V$, 其中 $H_0 = \mathbf{p}^2/2 + N_a$, 表示自由电子的动能算符和激光场的光子数目算符, U 为原子中电子与核的库仑势, V 为电子与激光场的相互作用势.

当时间为负无穷时, 原子和激光场没有相互作用, 体系所处状态表示为 $|\psi_i\rangle$, 对应的能量为 E_i , 则在任意时间该初态波函数可以表示为

$$|\psi_i^+\rangle = |\psi_i\rangle + \frac{1}{E_i - H + i\epsilon} V |\psi_i\rangle, \quad (1)$$

其中 ϵ 为无穷小量. 另一方面, 当时间为正无穷时, 原子-激光体系也不再存在相互作用, 体系处于状态 $|\psi_f\rangle$, 对应的能量为 E_f , 则在任意时间该末态波函数可以表示为

$$|\psi_f^-\rangle = |\psi_f\rangle + \frac{1}{E_f - H - i\epsilon} U |\psi_f\rangle. \quad (2)$$

因此, 由形式散射理论可得跃迁公式^[46]

$$\begin{aligned} & \langle \psi_f^- | \psi_i^+ \rangle \\ &= \delta_{fi} - 2i\pi\delta(E_f - E_i) \left[\langle \psi_f | V | \psi_i \rangle \right. \\ & \quad + \langle \psi_f | U \frac{1}{E_f - H + i\epsilon} V | \psi_i \rangle \\ & \quad + \langle \psi_f | V \frac{1}{E_f - H - i\epsilon} U \frac{1}{E_i - H + i\epsilon} V | \psi_i \rangle \left. \right] \\ & \quad + \dots, \end{aligned} \quad (3)$$

(3) 式包含了原子与激光场相互作用的所有跃迁过程. 我们可以通过设定不同的初态和末态来选择不同的物理过程, 例如电离、激发以及强激光场中发生的重碰和多次重碰过程. 正因为频域理论能够在同一的框架下对强激光场动力学所有过程进行理论计算, 我们可以通过该方法考察在相同物理条件下不同动力学过程的发生概率及它们之间的内在关联.

2.1 原子在激光场中的电离及 HATI

原子中的电子在激光场的电离过程可以用图 1 所示的跃迁过程表示^[55]. 在原子与激光场的相互作用前, 电子处于原子基态, 只受库仑势 U 的作用; 在激光场与原子相互作用时, 电子同时受库仑势 U 和电子与激光场的相互作用势 V 的作用; 当

电子电离后, 电子处在激光场中, 只受电子与激光场的相互作用势 V 的作用 (这里我们利用了强场近似). 对于原子-激光体系, 在原子与激光场相互作用前, 其初态波函数 $|\psi_i\rangle = |\Phi_i(\mathbf{r})\rangle \otimes |n_i\rangle$, 其中 $|\Phi_i\rangle$ 为原子基态波函数, $|n_i\rangle$ 为激光场的光子态函数; 在原子与激光场相互作用后, 原子中的电子成为在激光场中的自由电子, 所以体系的末态 $|\psi_f\rangle$ 为 Volkov 态.

自由电子在激光场中运动的量子化态是 Volkov [56] 在 1935 年基于量子电动力学理论推导出来的. Guo 等 [52-54] 重新推导了激光场作为量子场的单色光和双色光两种情况的 Volkov 态. 在频率为 ω 的单色激光场中的 Volkov 态为

$$|\psi_{pk}\rangle = V_e^{-1/2} \sum_{j=-k}^{\infty} \exp\{i[\mathbf{p} + (u_p - j)\mathbf{k}] \cdot \mathbf{r}\} \times J_j^*(\zeta, \eta) |k + j\rangle, \quad (4)$$

对应 Volkov 态的能量为 $E_{pk} = \mathbf{p}^2/2 + (k + 1/2)\omega + u_p\omega$, V_e 为空间归一化常数, \mathbf{p} 为电子的内禀动量, $J_j(\zeta, \eta)$ 为单色激光场下的贝塞尔函数, ζ 和 η 为该贝塞尔函数的宗量, $|k + j\rangle$ 为激光场的光子态函数, \mathbf{k} 为激光场的波矢, $u_p = U_p/\omega$, U_p 为电子在频率为 ω 的激光场中获得的有质动力能.

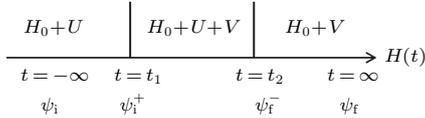


图 1 原子中电子电离过程的形式散射理论跃迁示意图 [55]

Fig. 1. The schematic diagram of formal scattering theory in electron ionization process of atom (reprinted with permission from Ref. [55]).

当激光场是频率为 ω_1 和 ω_2 的双色激光场时, 一个自由电子在这样的复合场中的 Volkov 态为 [52-54]

$$|\psi_{pk_1k_2}\rangle = V_e^{-1/2} \exp\{i[(\mathbf{p} + u_{p_1}\mathbf{k}_1 + u_{p_2}\mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r}]\} \times \sum_{\substack{j_1=-k_1, \\ j_2=-k_2}}^{\infty} \exp\{-i[j_1(\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r} + \phi_1) + j_2(\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r} + \phi_2)]\} \mathfrak{N}_{j_1j_2}^*(\xi) \times |k_1 + j_1, k_2 + j_2\rangle, \quad (5)$$

其中 $\mathfrak{N}_{j_1j_2}(\xi)$ 为双色激光场下的贝塞尔函数, ξ 为对应贝塞尔函数的宗量, \mathbf{k}_1 和 \mathbf{k}_2 分别为两激光场的波矢, ϕ_1 和 ϕ_2 分别为两激光场的初始相位.

利用跃迁 (3) 式, 并只取跃迁矩阵方程的前两项, 得到 [43-45]: $T_{fi} = T_{ATI} + T_{HATI}$, 其中 $T_{ATI} = \langle \psi_f | V | \psi_i \rangle$,

$$T_{HATI} = \langle \psi_f | U \frac{1}{E_f - H - i\epsilon} V | \psi_i \rangle.$$

在这里, T_{ATI} 表示原子发生 ATI 过程的跃迁矩阵元, T_{HATI} 描述原子发生 HATI 过程的跃迁矩阵元.

对于频率为 ω 的单色激光场, 原子发生 ATI 过程的跃迁矩阵元为 [44, 52-54]

$$T_{ATI} = V_e^{-1/2} \omega (u_p - j) J_j(\zeta, \eta) \Phi_i(\mathbf{p}), \quad (6)$$

其中 $\Phi_i(\mathbf{p})$ 为动量空间中的原子初态波函数, j 表示电子在 ATI 过程中吸收的光子数. 值得注意的是, 在上述和后面的推导过程中, 我们在大光子数近似 [52-54] 下忽略了光子动量的影响, 即 $\mathbf{p} - j\mathbf{k} + u_p\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{p}$. 因此, 我们在 (6) 式中将 $\Phi_i(\mathbf{p} - j\mathbf{k} + u_p\mathbf{k})$ 表示为 $\Phi_i(\mathbf{p})$. 对于双色激光场, 相应的 ATI 过程的跃迁矩阵元为 [52-54, 58]

$$T_{ATI} = V_e^{-1/2} (u_{p_1}\omega_1 + u_{p_2}\omega_2 - q_1\omega_1 - q_2\omega_2) \times \mathfrak{N}_{q_1q_2}(\zeta) \Phi_i(\mathbf{p}), \quad (7)$$

其中 q_1 和 q_2 分别为电子在 ATI 过程中从两束激光场中吸收的光子数. 另一方面, 原子发生 HATI 的过程可以看作是两步跃迁过程: 直接电离后的激光辅助碰撞过程. 在频率为 ω 的激光场中, HATI 过程的跃迁矩阵元为 [43-45]

$$T_{HATI} = -i\pi \sum_{p'_1n_1} \langle \psi_{pfn} | U | \psi_{p'_1n_1} \rangle \langle \psi_{p'_1n_1} | V | \psi_i \rangle \times \delta(E_{pfn} - E_{p'_1n_1}). \quad (8)$$

根据上式可以得到 HATI 谱中吸收 q_2 个光子 (其中第一步跃迁吸收 j_1 个光子) 的电子跃迁矩阵元为 [43-45]

$$T_{HATI}^{q_2} = i\pi V_e^{-3/2} \sum_{p'_1j_1} \omega (u_p - j_1) \Phi_i(\mathbf{p}'_1) \langle \mathbf{p}_f | U | \mathbf{p}'_1 \rangle \times J_{j_1}(\zeta'_1, \eta) J_{q_2-j_1}(\zeta'_1 - \zeta_f) \times \delta(E_{pfn} - E_{p'_1n_1}), \quad (9)$$

其中 \mathbf{p}'_1 和 \mathbf{p}_f 分别为电子在 ATI 过程中和 HATI 过程后的动量.

当激光场为双色场时, 电子在 HATI 过程中的跃迁矩阵元为 [55]

$$T_{HATI}^{q_2} = -i\pi V_e^{-3/2} \sum_{p'_1s_1s_2} (\omega_1 u_{p_1} + \omega_2 u_{p_2})$$

$$\begin{aligned}
 & -s_1\omega_1 - s_2\omega_2 \Phi_1(\mathbf{p}'_1) \langle \mathbf{p}_f | U | \mathbf{p}'_1 \rangle \\
 & \times \mathcal{N}_{s_1 s_2}(\zeta'_1) \mathcal{N}_{q_1 - s_1 q_2 - s_2}(\zeta_f - \zeta'_1) \\
 & \times \delta(E_{p_f n_1 n_2} - E_{p'_1 m_1 m_2}). \quad (10)
 \end{aligned}$$

2.2 NSDI的频域理论

NSDI过程可以用重碰撞模型解释^[39], 根据原子种类和激光场的条件, NSDI的机理通常可以分为两类^[1]: 碰撞-电离和碰撞-激发-电离. 一个电子首先在激光场的作用下被电离, 然后在激光场的作用下加速获得能量并返回母核附近与另一个束缚电子碰撞且把部分能量传递给该束缚电子. 若两电子在碰撞后有足够的能量克服电离势便可以直接被电离, 这个过程称为碰撞-电离(CI)过程; 若其中一个电子在碰撞后具有较低能量并处在某一激发态上, 随后在激光场的作用下被电离, 这个过程为碰撞-激发-电离(CEI)过程. 下面将简述原子在红外(IR)激光场和双色激光场——红外激光和深紫外激光(IR+XUV双色激光)下由该两种机理引起的NSDI过程的频域理论.

2.2.1 CI过程

2.2.1.1 原子在IR激光场中的CI过程的频域理论

原子在频率为 ω_1 的IR激光场中的哈密顿量为^[40]

$$H = H_0 + U + V, \quad (11)$$

其中自由电子的动能算符和激光场的光子数目算符 $H_0 = (-i\nabla_1)^2/2 + (-i\nabla_2)^2/2 + \omega_1 N_{a1}$, $U = U_1 + U_2 + U_{12}$, U_1 和 U_2 为每个电子与原子核之间的库仑势, U_{12} 为两电子之间的相互作用势, N_{a1} 为光子数目算符. 另外, $V = V_1 + V_2$ 为电子与激光场的相互作用势, 其中

$$\begin{aligned}
 V_j = & -\mathbf{A}_1(-\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}_j) \cdot (-i\nabla_j) + \frac{\mathbf{A}_1^2(-\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}_j)}{2} \\
 & (j = 1, 2), \quad (12)
 \end{aligned}$$

上式中 \mathbf{A}_1 为波矢为 \mathbf{k}_1 的激光场矢势. 根据(3)式, CI机理引起的跃迁矩阵元为

$$T_{\text{CI}} = \langle \psi_f | U_{12} \frac{1}{E_i - H + i\epsilon} V_1 | \psi_i \rangle, \quad (13)$$

其中 $|\psi_i\rangle$ 为该系统的初态波函数, $|\psi_i\rangle = |\Phi_1(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)\rangle \otimes |n_1\rangle$, E_i 是对应初态的能量, $\Phi_1(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$ 为氢原子的初态波函数. 系统的末态 $|\psi_f\rangle =$

$|\psi_{p_1 p_2 k}\rangle$ 用两电子的Volkov态表示为^[27]

$$\begin{aligned}
 & |\psi_{p_1 p_2 k}\rangle \\
 & = V_e^{-1} \sum_{j_1=-k}^{\infty} \exp\{i[\mathbf{p}_1 + (u_{p_1} - j_1)\mathbf{k}_1] \cdot \mathbf{r}_1\} \\
 & \times J_{j_1}^*(\zeta_1, \eta) \sum_{j_2=-k-j_1}^{\infty} \exp\{i[\mathbf{p}_2 + (u_{p_1} \\
 & - j_2)\mathbf{k}_1] \cdot \mathbf{r}_2\} J_{j_2}^*(\zeta_1, \eta) |k + j_1 + j_2\rangle, \quad (14)
 \end{aligned}$$

对应末态的能量为 $E_{p_1 p_2 k} = \mathbf{p}_1^2/2 + \mathbf{p}_2^2/2 + (k + 1/2)\omega_1 + 2u_{p_1}\omega_1$. 在(14)式中, $u_{p_1} = U_{p_1}/\omega_1$, U_{p_1} 为电子在IR激光场中获得的有质动力能. 利用中间态的完备性, (13)式变为

$$\begin{aligned}
 T_{\text{CI}} = & -i\pi \sum_{p'_1 m} \langle \psi_{p_1 p_2 k} | U_{12} | \psi_{p'_1 m} \Phi_1(\mathbf{r}_2) \rangle \\
 & \times \langle \psi_{p'_1 m} \Phi_1(\mathbf{r}_2) | V_1 | \psi_i \rangle \\
 & \times \delta(E_{p_1 p_2 k} - E_{p'_1 m}). \quad (15)
 \end{aligned}$$

在上式中, 中间态表示为 $|\psi_{p'_1 m} \Phi_1(\mathbf{r}_2)\rangle = |\psi_{p'_1 m}\rangle \otimes |\Phi_1(\mathbf{r}_2)\rangle$, 即一个电子被电离用Volkov态 $|\psi_{p'_1 m}\rangle$ 表示, 而另一个电子处在 He^+ 离子的基态 $|\Phi_1(\mathbf{r}_2)\rangle$. 值得注意的是: $\langle \psi_{p'_1 m} \Phi_1(\mathbf{r}_2) | V_1 | \psi_i \rangle$ 表示第一个电子在IR激光场中吸收 s 个光子发生阈上电离, 这个过程称为ATI; $\langle \psi_{p_1 p_2 k} | U_{12} | \psi_{p'_1 m} \Phi_1(\mathbf{r}_2) \rangle$ 表示第一个电离电子在IR激光场的协助下与束缚电子碰撞发生双电离, 该过程称为激光协助碰撞(LAC). 进一步, 把(4)式和(14)式代入(15)式, 我们得到^[46]

$$\begin{aligned}
 T_{\text{CI}} = & -i\pi V_e^{-2} \sum_{p'_1 s} J_{q_1+q_2-s}(\zeta_1 + \zeta_2 - \zeta'_1, \eta) \\
 & \times \omega_1 (u_{p_1} - s) J_s(\zeta'_1, \eta) \Phi'(\mathbf{p}'_1) \\
 & \times \iint d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \exp[-i(\mathbf{p}_1 - \mathbf{p}'_1) \cdot \mathbf{r}_1] \\
 & \times \exp(-i\mathbf{p}_2 \cdot \mathbf{r}_2) U_{12} \Phi_1(\mathbf{r}_2) \\
 & \times \delta(E_{p_1 p_2 k} - E_{p'_1 m}), \quad (16)
 \end{aligned}$$

其中, 在计算过程中 $\Phi'(\mathbf{p}'_1)$ 用氢原子基态动量波函数近似, \mathbf{p}'_1 表示电子在ATI过程后的动量. (16)式即为原子在单色场下由CI机理引起的NSDI的跃迁矩阵元.

2.2.1.2 原子在IR+XUV激光场中的CI过程的频域理论

原子在频率为 ω_1 的IR激光场和频率为 ω_2 的XUV激光场中的哈密顿量为 $H = H_0 + U + V$, 其

中 $H_0 = (-i\nabla_1)^2/2 + (-i\nabla_2)^2/2 + \omega_1 N_{a1} + \omega_2 N_{a2}$. 另外, $V = V_1 + V_2$, 其中

$$\begin{aligned} V_j = & -[\mathbf{A}_1(-\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}_j) \cdot (-i\nabla_j)] \\ & + \mathbf{A}_2(-\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r}_j) \cdot (-i\nabla_j)] \\ & + \frac{1}{2}[\mathbf{A}_1(-\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}_j) + \mathbf{A}_2(-\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r}_j)]^2 \\ & (j = 1, 2). \end{aligned} \quad (17)$$

在上式中, N_{a2} , \mathbf{A}_2 和 \mathbf{k}_2 分别表示 XUV 激光场的光子数目算符、矢势和波矢. 该系统的初态波函数 $|\psi_i\rangle = |\Phi_i(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)\rangle \otimes |n_1\rangle \otimes |n_2\rangle$, 对应的能量为 $E_{in_1n_2}$, 系统的末态波函数 $|\psi_f\rangle = |\psi_{p_1p_2k_1k_2}\rangle$, 对应的能量为 $E_{p_1p_2k_1k_2}$, 其中

$$\begin{aligned} & |\psi_{p_1p_2k_1k_2}\rangle \\ = & V_e^{-1} \exp\{i[(\mathbf{p}_1 + u_{p_1}\mathbf{k}_1 + u_{p_2}\mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r}_1 \\ & + (\mathbf{p}_2 + u_{p_1}\mathbf{k}_1 + u_{p_2}\mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r}_2]\} \\ & \times \sum_{\substack{j_1=-k_1, \\ j_2=-k_2}}^{\infty} \exp\{-i[j_1(\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}_1 + \phi_1) \\ & + j_2(\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r}_1 + \phi_2)]\} \aleph_{j_1j_2}^*(\xi_1) \\ & \times \sum_{\substack{j_3=-k_1-j_1, \\ j_4=-k_2-j_2}}^{\infty} \exp\{-i[j_3(\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}_2 + \phi_1) \\ & + j_4(\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r}_2 + \phi_2)]\} \aleph_{j_3j_4}^*(\xi_2) \\ & \times |k_1 + j_1 + j_3, k_2 + j_2 + j_4\rangle. \end{aligned} \quad (18)$$

另外, 双色激光场下的中间态表示为^[52-54]

$$\begin{aligned} & |\psi_{p'_1m_1m_2}\rangle \\ = & V_e^{-1/2} \sum_{\substack{j_1=-m_1, \\ j_2=-m_2}}^{\infty} \exp\{i[\mathbf{p}'_1 + (u_{p_1} - j_1)\mathbf{k}_1 \\ & + (u_{p_2} - j_2)\mathbf{k}_2] \cdot \mathbf{r}_1\} \times \aleph_{j_1j_2}^*(\xi'_1) \\ & \times \exp[-i(j_1\phi_1 + j_2\phi_2)] |m_1 + j_1, m_2 + j_2\rangle. \end{aligned} \quad (19)$$

利用中间态的完备性, 双色场下的跃迁矩阵元为

$$\begin{aligned} T_{CI} = & -i\pi \sum_{p'_1m_1m_2} \langle \psi_{p_1p_2k_1k_2} | U_{12} | \psi_{p'_1m_1m_2} \Phi_1(\mathbf{r}_2) \rangle \\ & \times \langle \psi_{p'_1m_1m_2} \Phi_1(\mathbf{r}_2) | V_1 | \psi_i \rangle \\ & \times \delta(E_{p'_1m_1m_2} - E_{in_1n_2}). \end{aligned} \quad (20)$$

把(18)式和(19)式代入(20)式, 我们得到^[47]

$$\begin{aligned} T_{CI} = & -4i\pi^2 V_e^{-2} \sum_{s_1s_2} \aleph_{q_1q_2}(\xi_1 + \xi_2 - \xi'_1) \\ & \times [\omega_1(u_{p_1} - s_1) + \omega_2(u_{p_2} - s_2)] \mathbf{p}'_1 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} & \times \aleph_{s_1s_2}(\xi'_1) \Phi'_1(\mathbf{p}'_1) \iint d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \\ & \times \exp[-i(\mathbf{p}_1 - \mathbf{p}'_1) \cdot \mathbf{r}_1] \exp(-i\mathbf{p}_2 \cdot \mathbf{r}_2) \\ & \times U_{12} \Phi_1(\mathbf{r}_2). \end{aligned} \quad (21)$$

上式即为原子在双色场下由 CI 机理引起的 NSDI 的跃迁矩阵元, 其中 $\Phi'_1(\mathbf{p}'_1)$ 用氢原子基态动量波函数近似. 另外, s_1 和 s_2 表示电子在 ATI 过程中吸收的 IR 和 XUV 光子数, q_1 和 q_2 表示电子在 LAC 过程中吸收的 IR 和 XUV 光子数.

根据(15)式和(20)式, 原子无论在单色激光场还是双色激光场中, 由 CI 机理引起的 NSDI 过程都可以看成两步过程: 电子首先发生 ATI 过程, 然后在激光场的作用下发生 LAC 过程.

2.2.2 CEI 过程

2.2.2.1 原子在 IR 激光场中的 CEI 过程的频域理论

由(3)式, 原子在频率为 ω_1 的 IR 激光场中由 CEI 机理引起的 NSDI 的跃迁矩阵元为

$$T_{CEI} = \langle \psi_f | V_2 \frac{1}{E_f - H - i\varepsilon} U_{12} \frac{1}{E_i - H + i\varepsilon} V_1 | \psi_i \rangle. \quad (22)$$

相比 CI 机理而言, CEI 机理还需要一个中间态: 一个电子处在连续态而另一个电子处在 He^+ 离子的激发态. 在本文的计算中, 我们发现第一激发态对 NSDI 的贡献远大于其他激发态的贡献. 因此, 本文主要考虑第一激发态的贡献. 此时, 该中间态表示为 $|\psi_{p'_1}\Phi_2(\mathbf{r}_2)\rangle = |\psi_{p'_1}\rangle \otimes |\Phi_2(\mathbf{r}_2)\rangle$, 该态对应的能量为 $E_{p'_1}$, 其中 $|\Phi_2(\mathbf{r}_2)\rangle$ 表示电子处在 He^+ 离子的第一激发态的波函数. 利用中间态的完备性, CEI 机理下的跃迁矩阵元为

$$\begin{aligned} T_{CEI} = & \pi^2 \sum_{p'_1} \sum_{p'_1m} \langle \psi_{p_1p_2k} | V_2 | \psi_{p'_1}\Phi_2(\mathbf{r}_2) \rangle \\ & \times \langle \psi_{p'_1}\Phi_2(\mathbf{r}_2) | U_{12} | \psi_{p'_1m}\Phi_1(\mathbf{r}_2) \rangle \\ & \times \langle \psi_{p'_1m}\Phi_1(\mathbf{r}_2) | V_1 | \psi_i \rangle \\ & \times \delta(E_{p_1p_2k} - E_{p'_1}) \delta(E_{p'_1} - E_{p'_1m}). \end{aligned} \quad (23)$$

在(23)式中, $\langle \psi_{p'_1m}\Phi_1(\mathbf{r}_2) | V_1 | \psi_i \rangle$ 为第一个电子在激光场的作用下发生阈上电离, 此过程称为第一个电子的阈上电离(ATI1); $\langle \psi_{p'_1}\Phi_2(\mathbf{r}_2) | U_{12} | \psi_{p'_1m}\Phi_1(\mathbf{r}_2) \rangle$ 为第一个电离电子在激光场的协助下与第二个电子碰撞后并使其处在第一激发态上, 这个过程称为激光协助碰撞激发(LACE); $\langle \psi_{p_1p_2k} | V_2 | \psi_{p'_1}\Phi_2(\mathbf{r}_2) \rangle$ 为第二个电子

发生阈上电离, 此过程称为第二个电子的阈上电离 (ATI2). 进一步, (23) 式变为^[46]

$$\begin{aligned}
 T_{\text{CEI}} &= \pi V_e^{-2} \sum_{\mathbf{p}'_1 s} J_{q_1-s}(\zeta_1 - \zeta'_1) J_{q_2}(\zeta_2, \eta) \\
 &\times \omega_1^2(u_{\mathbf{p}_1} - s)(u_{\mathbf{p}_1} - q_2) \\
 &\times \Phi'(\mathbf{p}'_1) \Phi_2(\mathbf{p}_2) J_s(\zeta'_1, \eta) \delta(E_{\mathbf{p}_1 \mathbf{p}_2 k} - E_{\mathbf{p}_1}) \\
 &\times \delta(E_{\mathbf{p}_1} - E_{\mathbf{p}'_1 m}) \iint d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \\
 &\times \exp[-i(\mathbf{p}_1 - \mathbf{p}'_1) \cdot \mathbf{r}_1] U_{12} \Phi_1(\mathbf{r}_2) \Phi_2(\mathbf{r}_2), \quad (24)
 \end{aligned}$$

其中 $|\Phi_2(\mathbf{p}_2)\rangle$ 为 He^+ 离子的第一激发态在动量空间的波函数. 此公式表示原子在单色激光场下由 CEI 机理引起的 NSDI 过程的跃迁矩阵元.

2.2.2.2 原子在 IR+XUV 激光场中的 CEI 过程的频域理论

同样地, 从单色激光场下的跃迁矩阵元 (23) 式推广到双色激光场下的跃迁矩阵元为

$$\begin{aligned}
 T_{\text{CEI}} &= \pi^2 \sum_{\mathbf{p}'_1 l_1 l_2} \sum_{\mathbf{p}'_1 m_1 m_2} \langle \psi_{\mathbf{p}_1 \mathbf{p}_2 k_1 k_2} | V_2 | \psi_{\mathbf{p}'_1 l_1 l_2} \Phi_2(\mathbf{r}_2) \rangle \\
 &\times \langle \psi_{\mathbf{p}'_1 l_1 l_2} \Phi_2(\mathbf{r}_2) | U_{12} | \psi_{\mathbf{p}'_1 m_1 m_2} \Phi_1(\mathbf{r}_2) \rangle \\
 &\times \langle \psi_{\mathbf{p}'_1 m_1 m_2} \Phi_1(\mathbf{r}_2) | V_1 | \psi_i \rangle \delta(E_{\mathbf{p}'_1 l_1 l_2} - E_{i n_1 n_2}) \\
 &\times \delta(E_{\mathbf{p}'_1 m_1 m_2} - E_{i n_1 n_2}). \quad (25)
 \end{aligned}$$

利用两电子在双色激光场中的 Volkov 态^[46], 进一步把 (25) 式变为

$$\begin{aligned}
 T_{\text{CEI}} &= -4\pi^3 V_e^{-2} \sum_{q_1 q_2} \sum_{s_1 s_2} \mathbf{p}_1 [\omega_1(u_{\mathbf{p}_1} - s_1) \\
 &+ \omega_2(u_{\mathbf{p}_2} - s_2)] \mathcal{N}_{s_1 s_2}(\xi_2) \Phi_2(\mathbf{p}_2) \\
 &\times \mathcal{N}_{d_1 d_2}(\xi_1 - \xi'_1) \mathbf{p}'_1 [\omega_1(u_{\mathbf{p}_1} - q_1) \\
 &+ \omega_2(u_{\mathbf{p}_2} - q_2)] \mathcal{N}_{q_1 q_2}(\xi'_1) \Phi'_1(\mathbf{p}'_1) \\
 &\times \iint d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \exp[-i(\mathbf{p}_1 - \mathbf{p}'_1) \cdot \mathbf{r}_1] \\
 &\times \Phi_2^*(\mathbf{r}_2) U_{12} \Phi_1(\mathbf{r}_2). \quad (26)
 \end{aligned}$$

在上式中, q_1 和 q_2 分别为电子在 ATI1 过程中吸收的 IR 和 XUV 光子数, d_1 和 d_2 分别为电子在 LACE 过程中吸收的 IR 和 XUV 光子数, s_1 和 s_2 分别为电子在 ATI2 过程中吸收的 IR 和 XUV 光子数. (26) 式即为原子在双色激光场下由 CEI 机理引起的 NSDI 过程的跃迁矩阵元.

根据 (23) 式和 (25) 式, 原子无论在单色激光场还是双色激光场中由 CEI 机理引起的 NSDI, 该电离过程都可以看成三步过程: 第一个电子首先在激光场的作用下发生 ATI1 过程, 接着在激光场的作用下碰撞第二个电子后离开母核, 并使得第二个电子处在 He^+ 离子的第一激发态, 最后第二个电子在激光场的作用下发生 ATI2 过程.

3 原子在激光场中的非序列电离过程

3.1 CI 过程

3.1.1 单色激光场中由 CI 机理引起的 NSDI 过程

首先考虑氦原子在 IR 激光场中由 CI 机理引起的 NSDI 过程. 选取的激光强度为 $I_1 = 7 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 波长为 $\lambda_1 = 800 \text{ nm}$. 图 2 给出了两电子沿着激光极化方向出射时的动量谱. 该结果在定性上符合了 Eremina 等^[57] 的实验结果. 从图 2 还可以看到: 1) NSDI 的概率主要是由两电子沿着相同方向出射时主导的; 2) 动量谱呈现出复杂的干涉条纹. 基于这些现象, 我们将通过通道分析进一步解释该动量谱的形成.

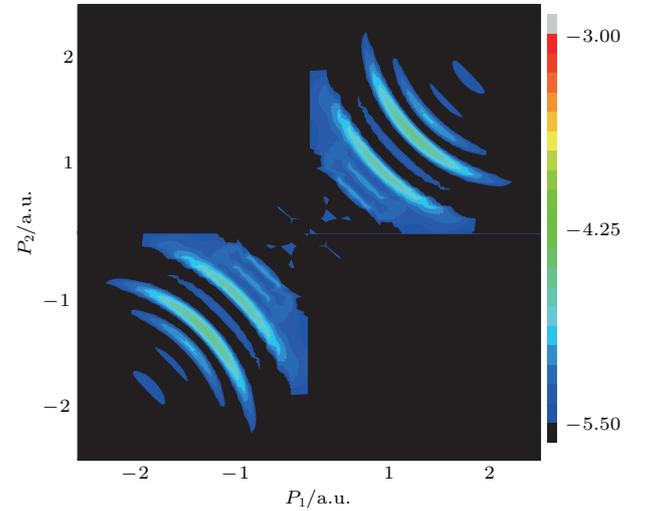


图 2 两电离电子沿着激光极化方向出射时由 CI 机理引起的 NSDI 动量谱, 该图采用对数标度^[46]

Fig. 2. The NSDI momentum spectra of two ionized electrons with their momenta along the laser polarization direction, where the NSDI is caused by the CI mechanism in an IR laser field. In a logarithmic scale (reprinted with permission from Ref. [46]).

根据频域理论, 图 2 给出的动量谱来自于所有 ATI 通道的相干叠加. 由 (16) 式, 每个 ATI 通道的

贡献表示为

$$T_{CI}^k = \Gamma_{LAC}^k \Gamma_{ATI}^k \propto I(P) J_{q_1+q_2-s}(\zeta_1 + \zeta_2 - \zeta'_1, \eta) \Gamma_{ATI}^k, \quad (27)$$

其中 $k = s - [E_1/\omega_1 + u_p]$ 是 ATI 通道的阶数, $\Gamma_{ATI}^k = V_e^{-1/2} \omega(u_p - s) \Phi_1(\mathbf{p}'_1) J_s(\zeta'_1, \eta)$ 为 k 阶 ATI 通道的跃迁矩阵元,

$$I(P) = \iint d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \exp[-i(\mathbf{p}_1 - \mathbf{p}'_1) \cdot \mathbf{r}_1] \times \exp(-i\mathbf{p}_2 \cdot \mathbf{r}_2) U_{12} \Phi_1(\mathbf{r}_2).$$

由(27)式可见,干涉条纹来自于LAC过程.因此,我们下面主要分析(27)式中的贝塞尔函数 $J_{q_1+q_2-s}(\zeta_1 + \zeta_2 - \zeta'_1, \eta)$.

一般地,该贝塞尔函数写成积分形式为

$$J_{q_1+q_2-s}(\zeta_1 + \zeta_2 - \zeta'_1, \eta)$$

$$= \frac{1}{2\pi} \int_{-\pi}^{\pi} d\varphi \exp\{i[(\zeta_1 + \zeta_2 - \zeta'_1) \sin \varphi + \eta \sin(2\varphi) + (q_1 + q_2 - s)\varphi]\}, \quad (28)$$

其中,宗量 $\zeta_1 + \zeta_2 - \zeta'_1 = 2\sqrt{u_{p1}/\omega_1}(\mathbf{p}_1 + \mathbf{p}_2 - \mathbf{p}'_1) \cdot \hat{\mathbf{e}}_1$, $\hat{\mathbf{e}}_1$ 为 IR 激光极化的单位矢量.该宗量依赖于碰撞前和碰撞后的电子动量的方向.如果碰撞前电子的动量 \mathbf{p}'_1 的方向与碰撞后该电子的动量 \mathbf{p}_1 的方向夹角小于 90° ,该过程称为前向碰撞;如果它们的夹角大于 90° ,则称之为背向碰撞.

图3(a)–(d)分别给出了两电子沿着激光极化方向出射时通道1, 5, 11和23的动量谱.从图3(a)–(d)中可以看出:1)随着 k 的增加,动量谱的分布区域减少,并且低阶的通道对 NSDI 过程起主要贡献;2)对低阶的 ATI 通道而言,动量谱的

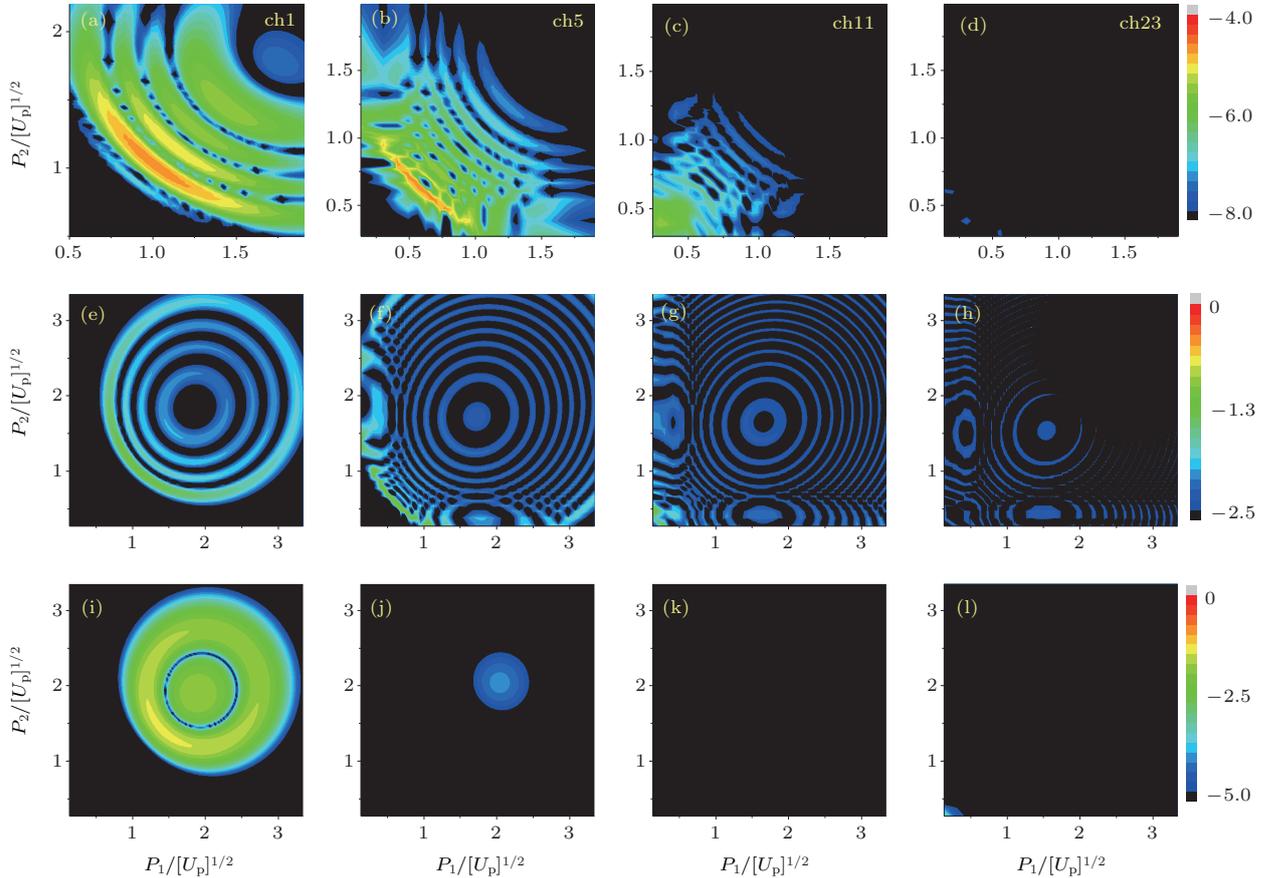


图3 (a)–(d) 两电子沿着相同方向出射时的通道贡献; (e)–(h) 不同通道下在背向碰撞时 $|J_{q_1+q_2-s}(\zeta_1 + \zeta_2 - \zeta'_1, \eta)|^2$ 的动量谱分布; (i)–(l) 在前向碰撞时 $|J_{q_1+q_2-s}(\zeta_1 + \zeta_2 - \zeta'_1, \eta)|^2$ 的动量谱分布, 通道阶数 k 为 1 [(a), (e) 和 (i)], 5 [(b), (f) 和 (j)], 11 [(c), (g) 和 (k)] 和 23 [(d), (h) 和 (l)]; 该图采用对数标度 [46]

Fig. 3. Channel contributions of NSDI momentum spectra with the final momenta of the two ionized electrons along the same direction. (e)–(h) present $|J_{q_1+q_2-s}(\zeta_1 + \zeta_2 - \zeta'_1, \eta)|^2$ for the backward collision; (i)–(l) present $|J_{q_1+q_2-s}(\zeta_1 + \zeta_2 - \zeta'_1, \eta)|^2$ for the forward collision. The orders of these channels are 1 [(a), (e) and (i)], 5 [(b), (f) and (j)], 11 [(c), (g) and (k)] and 23 [(d), (h) and (l)], respectively. In a logarithmic scale (reprinted with permission from Ref. [46]).

分布主要集中在高能区域, 而对高阶的 ATI 通道而言, 动量谱的分布主要集中在低能区域. 为了解释这些现象, 图 3(e)—(h) 给出了电子发生背向碰撞时贝塞尔函数 $|J_{q_1+q_2-s}(\zeta_1 + \zeta_2 - \zeta'_1, \eta)|^2$ 的动量分布, 图 3(i)—(l) 给出了前向碰撞时 $|J_{q_1+q_2-s}(\zeta_1 + \zeta_2 - \zeta'_1, \eta)|^2$ 的动量分布. 从图 3 可以看出: 当两电子沿着相同方向出射时, 背向碰撞对 NSDI 过程起主导作用, 并且图 3(a)—(d) 中干涉条纹的特征主要来自于对应通道下的背向碰撞的贡献.

为了进一步理解图 3 的结果, 我们利用鞍点近似方法分析贝塞尔函数 $J_{q_1+q_2-s}(\zeta_1 + \zeta_2 - \zeta'_1, \eta)$. 电子在经典激光场中的作用量为^[58]:

$$S_c(t, \mathbf{p}) = \frac{1}{2} \int_0^t dt' [\mathbf{p} + \mathbf{A}_1(t')]^2 = \left(\frac{1}{2} \mathbf{p}^2 + U_{p_1}\right)t + 2\sqrt{\frac{u_{p_1}}{\omega_1}} |\mathbf{p} \cdot \hat{\mathbf{e}}_1| \sin(\omega_1 t) + \frac{u_{p_1}}{2} \sin(2\omega_1 t).$$

该贝塞尔函数可以写成

$$J_{q_1+q_2-s}(\zeta_1 + \zeta_2 - \zeta'_1, \eta) = \frac{\omega_1}{2\pi} \int_0^T dt \exp\{-i[\Delta S_{CI}(t) + I_{p_2}t]\}, \quad (29)$$

其中 I_{p_2} 表示氦原子的第二电离势, $\Delta S_{CI}(t) = S_c(t, \mathbf{p}_1) + S_c(t, \mathbf{p}_2) - S_c(t, \mathbf{p}'_1)$ 和 $T_1 = 2\pi/\omega_1$. 利用鞍点近似, (29) 式变为

$$J_{q_1+q_2-s}(\zeta, \eta) = \frac{\omega_1}{2\pi} \sum_{t_0} \sqrt{\frac{2\pi}{i\Delta S''_{CI}(t_0)}} \exp\{-i[\Delta S_{CI}(t_0) + I_{p_2}t_0]\} = \frac{2\omega_1}{\pi\sqrt{\zeta \sin(\omega_1 t_0) + 4\eta \sin(2\omega_1 t_0)}} \cos \Theta, \quad (30)$$

其中 $\Theta = \zeta \sin(\omega_1 t_0) + \eta \sin(2\omega_1 t_0) + (q_1 + q_2 - s)\omega_1 t_0$ 和 $\zeta = \zeta_1 + \zeta_2 - \zeta'_1$. 因此, 鞍点 t_0 满足的能量守恒方程为

$$\frac{[\mathbf{p}'_1 - \mathbf{A}_1(t_0)]^2}{2} - \frac{[\mathbf{p}_1 - \mathbf{A}_1(t_0)]^2}{2} - \frac{[\mathbf{p}_2 - \mathbf{A}_1(t_0)]^2}{2} = I_{p_2}. \quad (31)$$

从(30) 式中看到 NSDI 的跃迁矩阵元正比于 $\sqrt{\frac{2\pi}{i\Delta S''_{CI}(t_0)}}$, 即 $J_{q_1+q_2-s}(\zeta, \eta) \propto 1/\sqrt{f_1}$, 其中对于背向碰撞时 $f_1 = -|\mathbf{p}_1| - |\mathbf{p}_2| - |\mathbf{p}'_1| + 2\sqrt{2\omega_1 u_{p_1}} |\cos(\omega_1 t_0)|$, 而前向碰撞时 $f_1 = -|\mathbf{p}_1| -$

$|\mathbf{p}_2| + |\mathbf{p}'_1| + 2\sqrt{2\omega_1 u_{p_1}} |\cos(\omega_1 t_0)|$. 如果 f_1 的值越小, 那么 $J_{q_1+q_2-s}(\zeta, \eta)$ 的值越大. 在一定的 f_1 下, 对背向碰撞而言, 随着 k 的增加, 两电离电子的动量之和 $|\mathbf{p}_1| + |\mathbf{p}_2|$ 随之减小, 正如图 3(e)—(h) 所示. 对前向碰撞而言, 随着 k 的增加, 两电离电子的动量之和也随之增加, 正如图 3(i)—(l) 所示. 另一方面, 如果两电离电子的动量越大, 那么电子在电离过程中需要吸收的光子越多, 根据微扰理论, NSDI 的概率越低. 因此, 背向碰撞对 NSDI 过程起了主导作用.

另一方面, 图 4(a)—(d) 分别给出了两电离电子沿着相反方向出射时通道 1, 15, 23 和 41 的动量谱. 从图 4 可以看到: 1) 低阶的通道对 NSDI 过程几乎没有贡献, 但 15 到 35 阶的通道对 NSDI 过程起了主要的贡献; 2) 前向碰撞和背向碰撞对 NSDI 过程有相同的贡献.

为了解释图 4 的现象, 我们分析 (30) 式并把该贝塞尔函数表示为 $J_{q_1+q_2-s}(\zeta, \eta) \propto 1/\sqrt{f_1}$, 其中 f_1 变为 $f_1 = -|\mathbf{p}_1| + |\mathbf{p}_2| - |\mathbf{p}'_1| + 2\sqrt{2\omega_1 u_{p_1}} |\cos(\omega_1 t_0)|$. 令 $f_1 = 0$, 那么 $|\mathbf{p}_1| = |\mathbf{p}_2| - |\mathbf{p}'_1| + 2\sqrt{2\omega_1 u_{p_1}} |\cos(\omega_1 t_0)|$. 对于较低阶的通道而言, $|\mathbf{p}'_1| \approx 0$, $|\mathbf{p}_1|$ 有最小值 $2\sqrt{2\omega_1 u_{p_1}} |\cos(\omega_1 t_0)|$. 随着 k 的增加, $|\mathbf{p}'_1|$ 的值也随之增加, 但最小值 $|\mathbf{p}_1| = -|\mathbf{p}'_1| + 2\sqrt{2\omega_1 u_{p_1}} |\cos(\omega_1 t_0)|$ 随之减小. 由于最后电离电子的能量越大, NSDI 的概率就越低, 所以, 对低阶的 ATI 通道而言, NSDI 的概率较低, 并且 NSDI 的概率随着通道阶数的增加而增加. 对于中间阶数的通道, 为了使得 f_1 保持较小值, $|\mathbf{p}_2|$ 必须保持不变, 正如图 4(f) 所示; 随着通道阶数的增加, $|\mathbf{p}'_1|$ 的值变大, 那么 $|\mathbf{p}_2|$ 的值也需要增加, 如图 4(f)—(h) 所示. 另一方面, 由于两电离电子的不可分辨性, 前向碰撞的动量谱 [如图 4(j)—(l) 所示] 也可以理解.

图 2 和图 4 的分析表明, 干涉条纹来自于所有通道贡献的相干叠加, 因此动量谱的干涉归根于每个 ATI 通道下的 LAC 过程. 从 (30) 式可见干涉条纹来自于函数 $\cos \Theta$. 若 $\cos \Theta = 0$, 则动量谱出现干涉相消, 正如图 5(a) 和图 5(b) 中的黑点所示. 从图 5 可见这些黑点的位置与量子计算结果符合得很好. 这说明图 2 中的干涉条纹来自于不同碰撞时刻 t_0 和 $2\pi/\omega_1 - t_0$ 处两条轨道的量子相干, 而两个轨道的相位差导致了函数 $\cos \Theta$ 的出现.

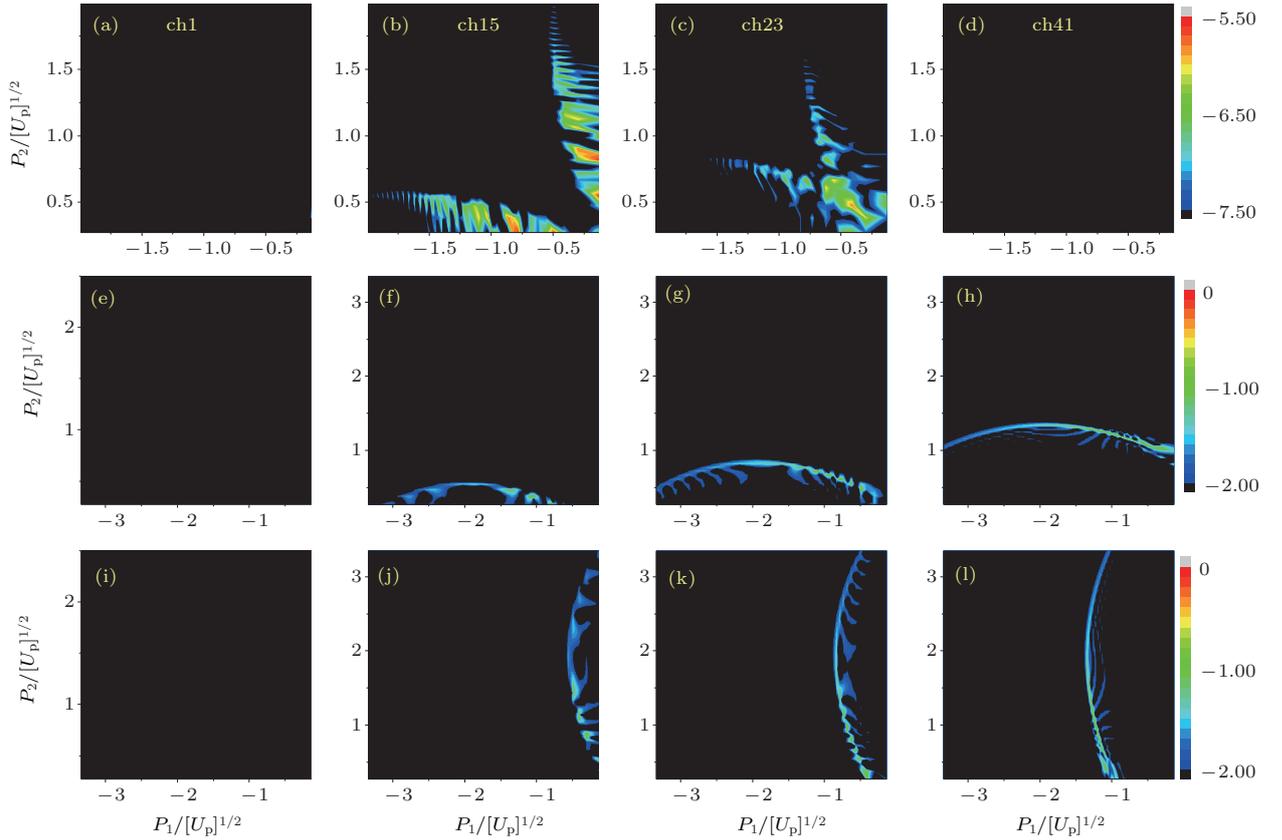


图4 (a)–(d) 两电子沿着相反方向出射时不同通道的贡献; (e)–(h) 不同通道在背向碰撞时 $|J_{q_1+q_2-s}(\zeta_1 + \zeta_2 - \zeta'_1, \eta)|^2$ 的动量谱分布; (i)–(l) 在前向碰撞时 $|J_{q_1+q_2-s}(\zeta_1 + \zeta_2 - \zeta'_1, \eta)|^2$ 的动量谱分布; 通道阶数 k 为 1 [(a), (e) 和 (i)], 15 [(b), (f) 和 (j)], 23 [(c), (g) 和 (k)] 和 41 [(d), (h) 和 (l)]; 该图采用对数标度 [46]

Fig. 4. (a)–(d) Channel contributions of NSDI momentum spectra with the final momenta of the two ionized electrons along the opposite directions; (e)–(h) present $|J_{q_1+q_2-s}(\zeta_1 + \zeta_2 - \zeta'_1, \eta)|^2$ for the backward collision; (i)–(l) present $|J_{q_1+q_2-s}(\zeta_1 + \zeta_2 - \zeta'_1, \eta)|^2$ for the forward collision. The orders of these channels are 1 [(a), (e) and (i)], 15 [(b), (f) and (j)], 23 [(c), (g) and (k)] and 41 [(d), (h) and (l)], respectively. In a logarithmic scale (reprinted with permission from Ref. [46]).

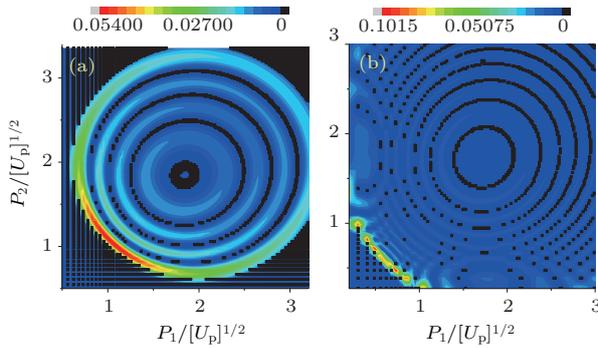


图5 通道 1 (a) 和 (b) 的干涉条纹 黑点表示函数 $\cos \Theta = 0$ 的位置 [46]

Fig. 5. Interference fringes on the NSDI momentum distributions for (a) channel 1 and (b) channel 5. The solid squares show the positions where the function $\cos \Theta = 0$ (reprinted with permission from Ref. [46]).

3.1.2 双色激光场中由CI机理引起的NSDI过程

现在考虑氦原子在IR+XUV双色激光场下由CI机理引起的NSDI过程. 选取的激光参数为: 激

光强度为 $I_1 = I_2 = 3.6 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, 频率为 $\omega_1 = 1.165 \text{ eV}$ 和 $\omega_2 = 75\omega_1$, 并且两束激光场的极化方向相同, 初始相位为0. 图6给出了两电离电子沿着激光极化方向出射时的动量谱. 从图6可见: 1) 动量谱呈现出两个平台结构, 其中第一个平台的电离概率比第二个平台的电离概率高约5个量级; 2) IR+XUV双色激光场下的动量谱与IR单色激光场下的结果完全不同. 下面, 我们将讨论动量谱的形成过程.

基于前面的研究发现, XUV激光场在一定程度上可以提高NSDI的电离概率, 这说明XUV激光在电离过程中扮演了关键的角色 [58–61]. 为了解释NSDI的动量谱, 我们定义了通道 (s_2, q_2) , 其中 s_2 和 q_2 分别表示电子在ATI和LAC过程中吸收XUV光子的数目. 通过通道分析, 我们发现图6所示的动量谱的第一和第二个平台分别来自于通道 $(1, 0)$ 和 $(1, 1)$ 的贡献 [47]. 通过对通道 $(1, 0)$

和(1, 1)分析表明: 若电子在LAC过程中不吸收XUV光子, 则该过程对应动量谱的第一个平台; 若电子在LAC过程中吸收1个XUV光子, 则对应动量谱的第二个平台. 另外, 从图6还可以看到: 两电离电子因出射方向不同会形成不同的动量谱.

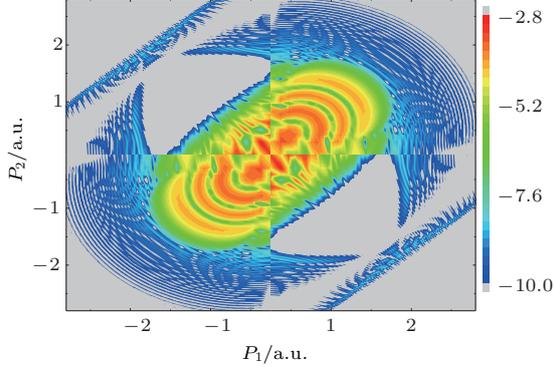


图6 两电离电子沿着激光极化方向出射时由CI机理引起的NSDI动量谱, 该图采用对数标度^[47]

Fig. 6. The NSDI momentum spectra of two ionized electrons with their momenta along the lasers polarization direction, where the NSDI is caused by the CI mechanism in IR+XUV two-color laser fields. In a logarithmic scale (reprinted with permission from Ref. [47]).

为了进一步解释动量谱中干涉条纹的形成原因, 我们定义了子通道($s_2|s_1, q_2$), 其中 s_1 表示电子在ATI过程中吸收($s_1 > 0$)或者放出($s_1 < 0$)的IR光子数目. 首先考虑当两电离电子沿着相同方向出射时第一个平台的动量谱(在图6中第一和第三象限的第一个平台). 以子通道 $(1|-20, 0)$, $(1|0, 0)$, $(1|20, 0)$ 和 $(1|40, 0)$ 为例, 图7(a)—(d)给出了两电离电子沿着相同方向出射时的通道贡献. 从图可见: 电子在ATI过程中吸收的IR光子越多, 碰撞后获得的能量越大, 但对应通道的电离概率越低. 为了更详细地研究这些动量谱的干涉条纹, 图7(e)—(h)和图7(i)—(l)分别给出了对应通道下的前向碰撞和背向碰撞的动量谱. 通过图7的比较发现: 当 s_1 较小时, 背向碰撞对NSDI过程起主要贡献, 而当 s_1 较大时, 前向碰撞对NSDI过程起主导作用; 另一方面, 背向碰撞的贡献随着 s_1 的增加而迅速降低. 这是由于电子在ATI过程中吸收IR光子越多, 它越有足够的能量通过前向碰撞使得另一个束缚电子电离. 比较图6和图7(a)—(d)可

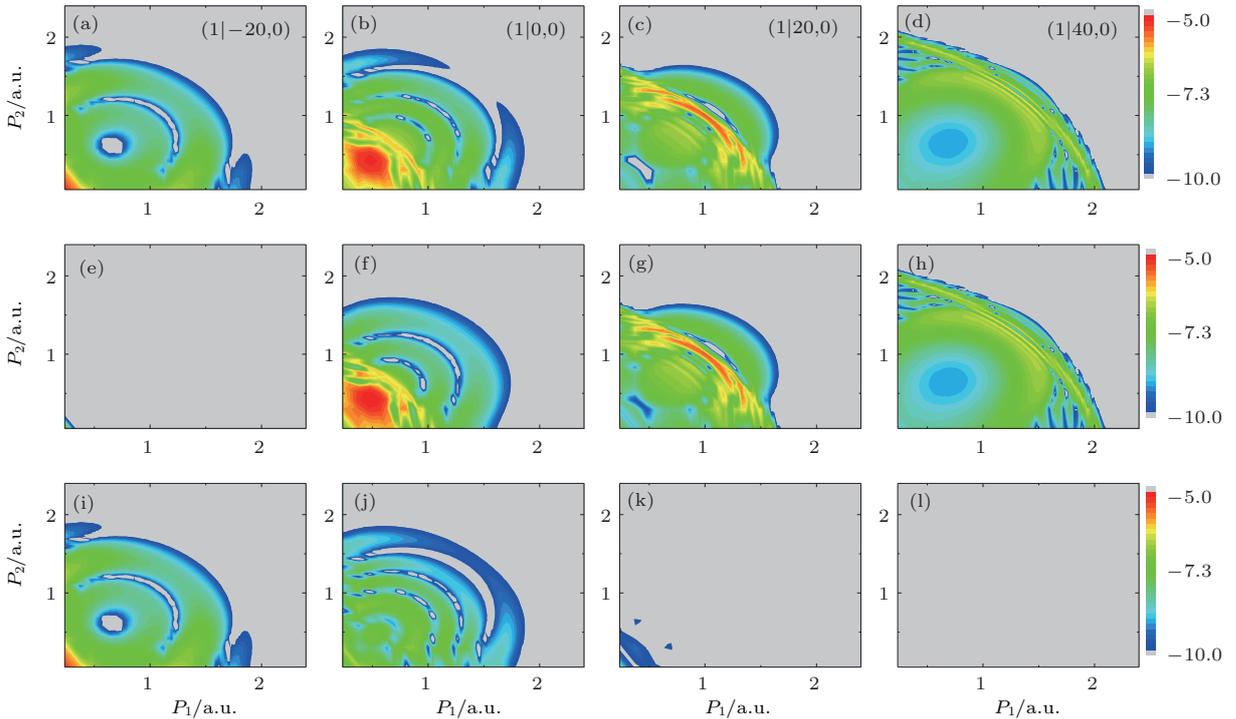


图7 (a)—(d) 两电离电子沿着相同方向出射时的通道贡献; (e)—(h) 前向碰撞对NSDI过程的贡献; (i)—(l) 背向碰撞对NSDI过程的贡献; 通道为 $(1|-20, 0)$ [(a), (e)和(i)], $(1|0, 0)$ [(b), (f)和(j)], $(1|20, 0)$ [(c), (g)和(k)]和 $(1|40, 0)$ [(d), (h)和(l)]; 该上图采用对数标度^[47]

Fig. 7. (a)—(d) Channel contributions of NSDI momentum spectra with the final momenta of the two ionized electrons along the same direction; (e)—(h) present the contribution of forward collision to the NSDI; (i)—(l) present the contribution of backward collision to the NSDI. These channels are $(1|-20, 0)$ [(a), (e) and (i)], $(1|0, 0)$ [(b), (f) and (j)], $(1|20, 0)$ [(c), (g) and (k)] and $(1|40, 0)$ [(d), (h) and (l)], respectively. In a logarithmic scale (reprinted with permission from Ref. [47]).

以看到: 当两电离电子沿着相同方向出射时第一个平台的动量谱来自于所有子通道共同贡献的结果.

同样地, 我们对两电离电子沿着相同方向出射时的第二个平台的动量谱做了分析^[47]. 通过对子通道的分析发现: 随着电子在 ATI 过程中吸收 IR 光子的增加, 电子的动能随之增加, 但 NSDI 的概率迅速降低. 另外, 前向碰撞在 NSDI 过程中起主导作用, 但背向碰撞的贡献几乎可以忽略. 相比第一个平台而言: 由于电离电子在碰撞束缚电子时吸收了另一个 XUV 光子, 所以第二个平台的能量区域远大于第一个平台的能量区域.

另一方面, 图 8 给出了两电离电子沿着相反方向出射时的子通道 $(1|-20, 0)$, $(1|0, 0)$, $(1|20, 0)$ 和 $(1|40, 0)$ 的贡献, 其中图 8 (e)—(h) 表示前向碰撞的贡献和图 8 (i)—(l) 表示背向碰撞的贡献. 从图 8 (e)—(h) 和图 8 (i)—(l) 可以看出, 随着电子在 ATI 过程中吸收 IR 光子的增加, 电子的能量随之增加, 但电离概率随之降低, 另外, 前向碰撞和背向

碰撞对 NSDI 过程的贡献是相等的, 这与图 7 的情况完全不同. 这是由于两电子的不可分辨性引起的. 进一步比较图 6 和图 8 可以发现: 在图 6 中两电离电子沿着相反方向出射时的动量谱的第一个平台来自于图 8 (a)—(d) 这些子通道的干涉结果.

通过分析两电离电子沿着相反方向出射时的第二个平台, 我们同样地看到: 前向碰撞和背向碰撞对 NSDI 过程具有相等的贡献^[47]. 通过与图 8 比较发现, 在相同 s_1 的情况下, 两电离电子在子通道 $(1|s_1, 1)$ 下的能量远大于在子通道 $(1|s_1, 0)$ 下的能量, 但子通道 $(1|s_1, 1)$ 的电离概率远小于相应子通道 $(1|s_1, 0)$ 的概率. 这是由于电子在碰撞过程中吸收了 1 个 XUV 光子.

为了进一步理解子通道的干涉条纹, 我们利用鞍点近似来分析 (21) 式中的贝塞尔函数 $N_{q_1 q_2}(\zeta_1 + \zeta_2 - \zeta'_1)$. 该贝塞尔函数简化为

$$N_{q_1 q_2}(\zeta_1 + \zeta_2 - \zeta'_1) \approx J_{-q_1}(\zeta_{s1}, \zeta_{s3}) J_{-q_2}(\zeta_{s2}), \quad (32)$$

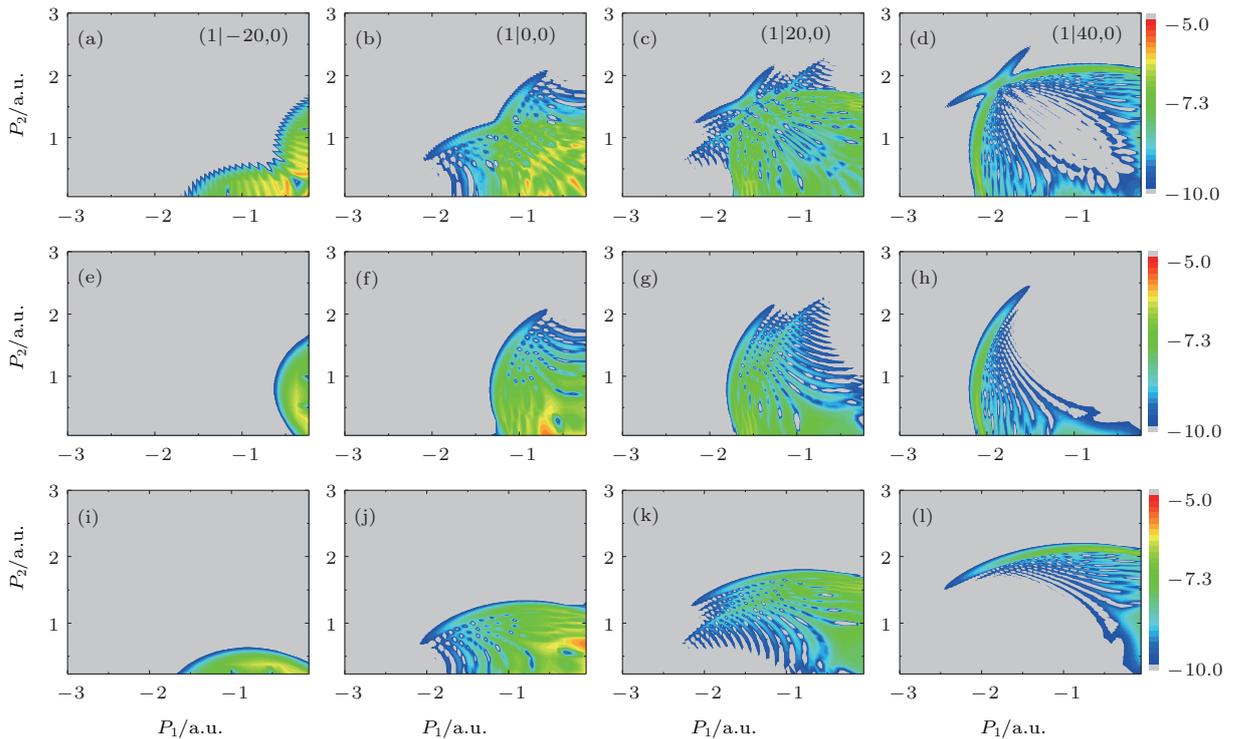


图 8 (a)—(d) 两电离电子沿着相反方向出射时的通道贡献; (e)—(h) 前向碰撞对 NSDI 过程的贡献; (i)—(l) 背向碰撞对 NSDI 过程的贡献. 通道为 $(1|-20, 0)$ [(a), (e) 和 (i)], $(1|0, 0)$ [(b), (f) 和 (j)], $(1|20, 0)$ [(c), (g) 和 (k)] 和 $(1|40, 0)$ [(d), (h) 和 (l)]; 该图采用对数标度^[47]

Fig. 8. (a)–(d) Channel contributions of NSDI momentum spectra with the final momenta of the two ionized electrons along the opposite direction; (e)–(h) present the contribution of forward collision to the NSDI; (i)–(l) present the contribution of backward collision to the NSDI. These channels are $(1|-20, 0)$ [(a), (e) and (i)], $(1|0, 0)$ [(b), (f) and (j)], $(1|20, 0)$ [(c), (g) and (k)] and $(1|40, 0)$ [(d), (h) and (l)], respectively. In a logarithmic scale (reprinted with permission from Ref. [47]).

其中

$$\begin{aligned}\zeta_{s1} &= 2\sqrt{\frac{u_{p1}}{\omega_1}} |\mathbf{p}_1 \cdot \hat{\boldsymbol{\epsilon}}_1 + \mathbf{p}_2 \cdot \hat{\boldsymbol{\epsilon}}_1 - \mathbf{p}'_1 \cdot \hat{\boldsymbol{\epsilon}}_1|, \\ \zeta_{s2} &= 2\sqrt{\frac{u_{p2}}{\omega_2}} |\mathbf{p}_1 \cdot \hat{\boldsymbol{\epsilon}}_2 + \mathbf{p}_2 \cdot \hat{\boldsymbol{\epsilon}}_2 - \mathbf{p}'_1 \cdot \hat{\boldsymbol{\epsilon}}_2|, \\ \zeta_{s3} &= \frac{1}{2}u_{p1}.\end{aligned}\quad (33)$$

这个贝塞尔函数 $J_{-q_1}(\zeta_{s1}, \zeta_{s3})$ 可以写成积分形式为

$$\begin{aligned}J_{-q_1}(\zeta_{s1}, \zeta_{s3}) &= \frac{1}{T_1} \int_{-T_1/2}^{T_1/2} dt \exp\{i[\zeta_{s1} \sin(\omega_1 t) \\ &+ \zeta_{s3} \sin(2\omega_1 t) + q_1 \omega_1 t]\}.\end{aligned}\quad (34)$$

另一方面, 利用电子在 IR 激光场中的经典作用量, 该贝塞尔函数变为

$$\begin{aligned}J_{-q_1}(\zeta_{s1}, \zeta_{s3}) &= \frac{1}{T_1} \int_{-T_1/2}^{T_1/2} dt \exp\{i[\Delta S_{CI} - (q_2 \omega_2 - I_{p2})t]\}.\end{aligned}\quad (35)$$

利用鞍点近似, (35) 式进一步写成

$$\begin{aligned}J_{-q_1}(\zeta_{s1}, \zeta_{s3}) &= 4\sqrt{\pi}/[T_1 \sqrt{f''(t_0)}] \cos[f(t_0) - \pi/4],\end{aligned}\quad (36)$$

其中 $f(t) = \Delta S_{CI} - (q_2 \omega_2 - I_{p2})t$. 鞍点 t_0 满足 $f'(t_0) = 0$, 这导致了能量守恒方程

$$\begin{aligned}\frac{1}{2}\{[\mathbf{p}_1 + \mathbf{A}_1(t_0)]^2 + [\mathbf{p}_2 + \mathbf{A}_1(t_0)]^2 \\ - [\mathbf{p}'_1 + \mathbf{A}_1(t_0)]^2\} = q_2 \omega_2 - I_{p2},\end{aligned}\quad (37)$$

则两电离电子满足的轨道方程为

$$\begin{aligned}[\mathbf{p}_1 + \hat{\boldsymbol{\epsilon}}_1 2\sqrt{U_{p1}} \cos(\omega_1 t_0)]^2 \\ + [\mathbf{p}_2 + \hat{\boldsymbol{\epsilon}}_1 2\sqrt{U_{p1}} \cos(\omega_1 t_0)]^2 \\ = [\mathbf{p}'_1 + \hat{\boldsymbol{\epsilon}}_1 2\sqrt{U_{p1}} \cos(\omega_1 t_0)]^2 \\ + 2(q_2 \omega_2 - I_{p2}).\end{aligned}\quad (38)$$

该方程被看成是圆的方程, 其中圆心为 $[-2\sqrt{U_{p1}} \cos(\omega_1 t_0), -2\sqrt{U_{p1}} \cos(\omega_1 t_0)]$, 半径为 $R = \sqrt{[\mathbf{p}'_1 + \hat{\boldsymbol{\epsilon}}_1 2\sqrt{U_{p1}} \cos(\omega_1 t_0)]^2 + 2(q_2 \omega_2 - I_{p2})}$. 在特定的动量 \mathbf{p}'_1 和鞍点 t_0 下, 两电离电子满足 (38) 式所示的能量轨道方程. 此时, LAC 可以看成这样一个过程: ATI 过程电离的且具有特定动量的电子 \mathbf{p}'_1 , 在 IR 和 XUV 激光场的作用下碰撞母核, 使得原子发生 NSDI 过程, 其中 \mathbf{p}'_1 的大小可表

示为 $|\mathbf{p}'_1| = \sqrt{2[(s_1 \omega_1 + s_2 \omega_2) - I_{p1} - U_{p1} - U_{p2}]}$, 这里 I_{p1} 为氦原子的第一电离势. 图 9 给出了动量 \mathbf{p}'_1 沿着与激光极化相同方向时的能量轨道, 其中 $s_1 = 0$, $s_2 = 1$ 和 $q_2 = 0$. 从图 9 可以看出, 这些经典能量轨道很好地预言了量子计算的结果. 该结果表明 NSDI 动量谱来自于所有不同 \mathbf{p}'_1 贡献的相干叠加. 当 \mathbf{p}_1 和 \mathbf{p}_2 沿着相同方向出射时, 从 (38) 式知道, 随着半径 R 的增加, 圆心沿着直线 $\mathbf{p}_1 = \mathbf{p}_2$ 移动. 这导致了前向碰撞的轨道被限制在相对低能区域, 而背向碰撞的轨道被扩展到高能区域, 正如图 9(b) 和图 9(c) 所示. 这说明电子在背向碰撞过程中比在前向碰撞过程中吸收了更多的 IR 光子, 所以前向碰撞对 NSDI 过程的贡献大于背向碰撞的贡献. 另一方面, 当 \mathbf{p}_1 和 \mathbf{p}_2 沿着相反方向出射时, 如图 9(a) 和图 9(d) 所示, 由于电子的不可分辨性, 前向碰撞和背向碰撞对 NSDI 过程的贡献是相同的. 另外, 我们看到 (38) 式把前向碰撞和背向碰撞联结在一起, 这为我们理解第一个平台的形成过程提供了新的图像: 一个电子首先吸收 1 个 XUV 光子和许多 IR 光子发生电离, 然后在 IR 激光场的协助下与另一个束缚电子碰撞并发生双电离, 其中 IR 激光场在碰撞的过程中提供了能量轨道的圆心和半径.

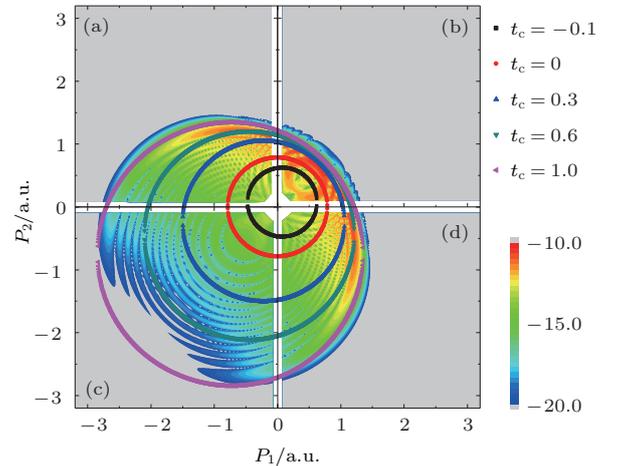


图 9 动量 \mathbf{p}'_1 沿着与激光极化相同的方向时的能量轨道, 其中 $s_1 = 0$, $s_2 = 1$, $q_2 = 0$ 和 $t_c = \cos(\omega_1 t_0)$; (a), (c) 背向碰撞; (b), (d) 前向碰撞; 该图采用对数标度 [47].
Fig. 9. The energy circles for \mathbf{p}'_1 along the same direction of the laser's electric polarization and for $s_1 = 0$, $s_2 = 1$, $q_2 = 0$ and $t_c = \cos(\omega_1 t_0)$, which indicates that (a) and (c) are backward collisions and (b) and (d) are forward collisions. In a logarithmic scale (reprinted with permission from Ref. [47]).

图 10 给出了动量 \mathbf{p}'_1 沿着与激光极化相同方向时的能量轨道, 其中 $s_1 = 0$, $s_2 = 1$ 和 $q_2 = 1$. 从图 10 可见, 这些经典能量轨道与量子分布相一致. 这说明 NSDI 的动量谱来自于所有这些轨道的干涉结果. 通过图 10 和图 9 的比较, 表明通道 (1, 1) 主导着高能区域并形成了第二个平台, 这是由于电离电子在碰撞过程中吸收了 1 个 XUV 光子.

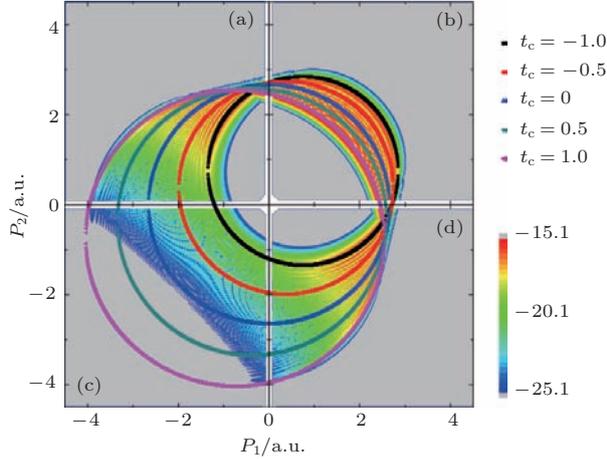


图 10 动量 \mathbf{p}'_1 沿着与激光极化相同方向时的能量轨道, 其中 $s_1 = 0$, $s_2 = 1$, $q_2 = 1$ 和 $t_c = \cos(\omega_1 t_0)$; (a), (c) 背向碰撞; (b), (d) 前向碰撞; 该图采用对数标度 [47]

Fig. 10. The energy circles for \mathbf{p}'_1 along the same direction of the laser's electric polarization and for $s_1 = 0$, $s_2 = 1$, $q_2 = 1$ and $t_c = \cos(\omega_1 t_0)$, which indicates that (a) and (c) are backward collisions and (b) and (d) are forward collisions. In a logarithmic scale (reprinted with permission from Ref. [47]).

通过前面的通道分析表明, 图 10 中的动量谱来自于每个 ATI 通道中的电离电子通过碰撞另一个束缚电子的干涉结果. 另外, (36) 式表明干涉来自于函数 $\cos[f(t_0) - \pi/4]$, 即来自于不同时刻 t_0 和 $2\pi/\omega_1 - t_0$ 碰撞的结果. 当 $\cos[f(t_0) - \pi/4] = 0$ 时, 动量谱出现干涉相消, 正如图 11 所示的黑点的位置. 从图 11 可以看出, 黑点的分布与干涉相消的位置是一致的, 这说明动量谱来自于两电子在 t_0 和 $2\pi/\omega_1 - t_0$ 碰撞后干涉的结果.

通过比较原子在 IR 单色激光场下和在 IR+XUV 双色激光场下的 NSDI 动量谱, 我们看到: 两种情况下的动量谱有着明显的差异, 正如图 2 和图 6 所示. 这表明 XUV 激光场在 NSDI 过程中有很重要的作用. 进一步通过通道分析发现, 当两电离电子沿着相同方向出射时, 在 IR 单色激光场的情况下, 背向碰撞对 NSDI 过程起主导作用; 但在 IR+XUV 双色激光场的情况下, 若 ATI 过程电离的电子能量较低时, 背向碰撞起主要贡献, 若电子能量较高时, 前向碰撞起主要贡献, 正如

图 3 和图 7 所示. 通过利用鞍点近似, 我们发现: 无论原子在 IR 单色激光场下还是 IR+XUV 双色激光场下, 动量谱的干涉条纹都来自于两电子在 t_0 和 $2\pi/\omega_1 - t_0$ 碰撞后干涉的结果. 到目前为止, IR+XUV 双色激光场下的 NSDI 的研究工作还较少, 将来在实验上可以通过控制两束激光场的强度、相位差等条件来研究它们对 NSDI 过程的影响, 以此来加深人们对 NSDI 过程的理解.

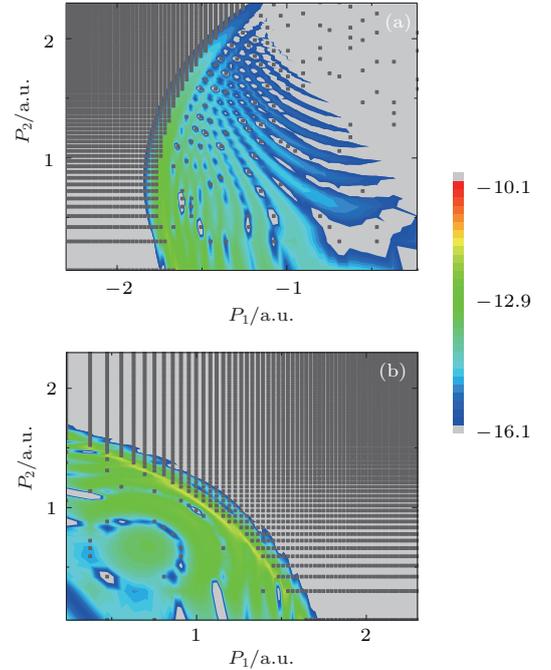


图 11 子通道 (1|20, 0) 在前向碰撞贡献下的干涉条纹, 黑点表示 $\cos[f(t_0) - \pi/4] = 0$ 的位置; 该图采用对数标度 [47]

Fig. 11. Interference patterns on the NSDI momentum distributions of subchannel (1|20, 0) for the forward collision. The solid squares show the positions where the function $\cos[f(t_0) - \pi/4] = 0$. In a logarithmic scale (reprinted with permission from Ref. [47]).

3.2 CEI 过程

3.2.1 单色激光场中由 CEI 机理引起的 NSDI 过程

现在讨论由 CEI 机理引起的 NSDI 过程. 选取的激光强度为 $I_1 = 2.2 \times 10^{14}$ W/cm², 波长为 $\lambda_1 = 800$ nm. 图 12 给出了由 CEI 机理引起的 NSDI 的动量谱. 从图 12 可见, 两电离电子沿着相同方向出射时的概率与它们沿着相反方向出射时的概率相当. 为了理解这个现象, (24) 式写成

$$T_{\text{CEI}}^k = \Gamma_{\text{ATI}2}^k \Gamma_{\text{LACE}}^k \Gamma_{\text{ATI}1}^k \propto I'(P) J_{q_1-s}(\zeta'_1 - \zeta_1) \Gamma_{\text{ATI}2}^k \Gamma_{\text{ATI}1}^k, \quad (39)$$

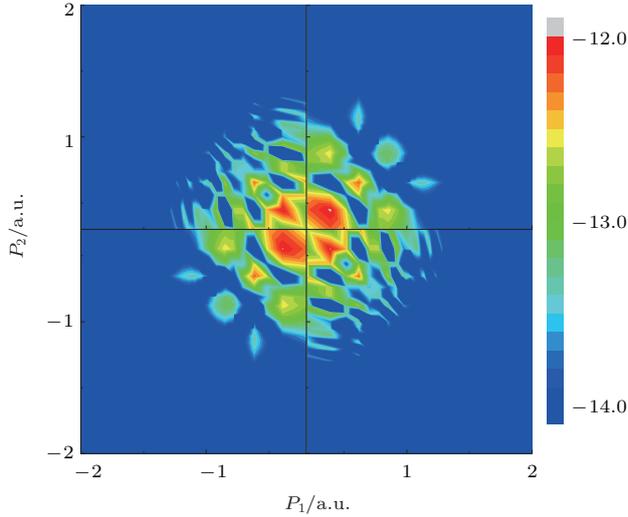


图 12 两电离电子沿着激光极化方向出射时由 CEI 机理引起的 NSDI 动量谱; 该图采用对数标度 [46]

Fig. 12. The NSDI momentum spectra of two ionized electrons with their momenta along the lasers polarization direction, where the NSDI is caused by the CEI mechanism in an IR laser field. In a logarithmic scale (reprinted with permission from Ref. [46]).

其中 Γ_{ATI1}^k 和 Γ_{ATI2}^k 表示两电子的 ATI 过程, $\Gamma_{\text{LACE}}^k \propto I'(P)J_{q_1-s}(\zeta'_1 - \zeta_1)$ 表示电子的 LACE 过程,

$$I'(P) = \iint d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \exp[-i(\mathbf{p}_1 - \mathbf{p}'_1) \cdot \mathbf{r}_1] \times U_{12}\Phi_1(\mathbf{r}_2)\Phi_2(\mathbf{r}_2).$$

在 LACE 过程中, 跃迁概率仅仅依赖于电子在碰撞

前后的动量, 并不依赖于从激发态电离的电子. 另外, ATI1 和 ATI2 是两个相互独立的电离过程. 因此, 动量谱呈现出对称分布, 并且在四个象限中都有分布.

图 13 (a)–(d) 给出了两电子在不同通道下的动量谱, 图 13 (e)–(h) 给出了对应通道下的背向碰撞的贡献. 从图 13 可以看出, 每个通道的背向碰撞的贡献几乎与对应的总的动量谱一致. 这表明背向碰撞对 NSDI 过程起了主要的贡献, 而前向碰撞的贡献几乎可以忽略. 该现象可以通过分析 (24) 式中的贝塞尔函数 $J_{q_1-s}(\zeta_1 - \zeta'_1)$ 而获得进一步的解释:

$$\begin{aligned} & J_{q_1-s}(\zeta_1 - \zeta'_1) \\ &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\pi}^{\pi} d\theta \exp\{-i[(\zeta_1 - \zeta'_1) \\ & \quad \times \sin\theta - (q_1 - s)\theta]\} \\ &= \frac{\omega_1}{2\pi} \int_0^T dt \exp\{-i[\Delta S_{\text{CEI}}(t) + \Delta E_2 t]\}, \end{aligned} \quad (40)$$

其中 $\Delta S_{\text{CEI}}(t) = S_c(t, \mathbf{p}_1) - S_c(t, \mathbf{p}'_1)$, ΔE_2 是 He^+ 离子的基态与第一激发态的能量差. 利用鞍点近似, 贝塞尔函数进一步表示为

$$\begin{aligned} & J_{q_1-s}(\zeta_1 - \zeta'_1) \\ &= \frac{\omega_1}{2\pi} \sum_{t_0} \sqrt{\frac{2\pi}{i\Delta S''_{\text{CEI}}(t_0)}} \\ & \quad \times \exp\{-i[\Delta S_{\text{CEI}}(t_0) + \Delta E_2 t_0]\}, \end{aligned} \quad (41)$$

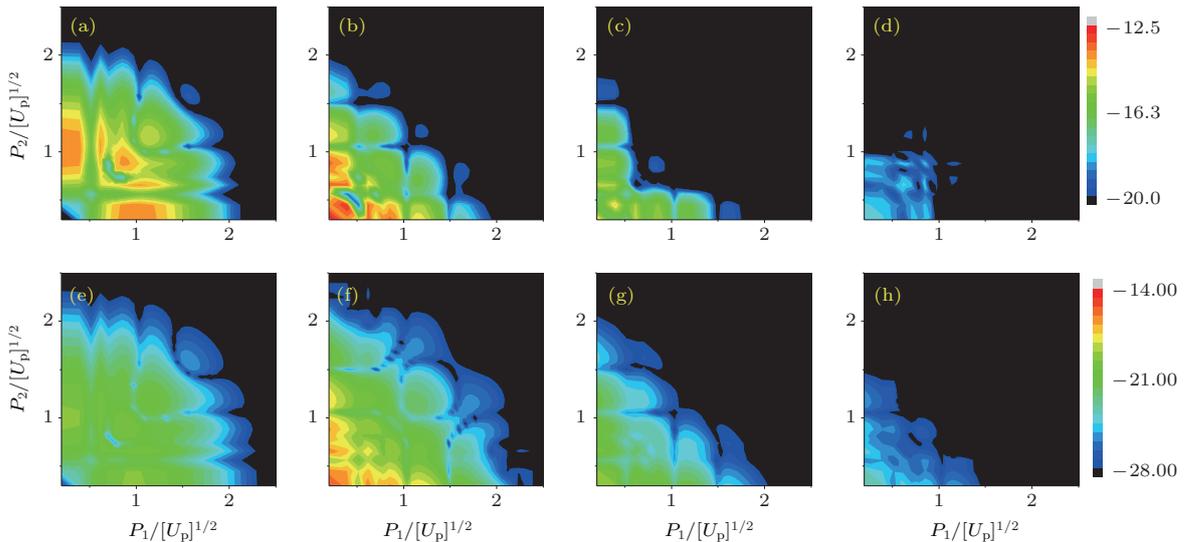


图 13 (a)–(d) 两电子在不同通道下的动量谱; (e)–(h) 背向碰撞. 通道的阶数 k 为 1 [(a), (e)], 5 [(b), (f)], 12 [(c), (g)] 和 20 [(d), (h)]; 该图采用对数标度 [46]

Fig. 13. (a)–(d) represent the momentum spectra of two electrons for different channels; (e)–(h) represent the backward collisions. The orders of these channels are 1 [(a), (e)], 5 [(b), (f)], 12 [(c), (g)] and 20 [(d), (h)], respectively. In a logarithmic scale (reprinted with permission from Ref. [46]).

其中鞍点 t_0 现在满足的方程为

$$\frac{[\mathbf{p}'_1 - \mathbf{A}_1(t_0)]^2}{2} - \frac{[\mathbf{p}_1 - \mathbf{A}_1(t_0)]^2}{2} = \Delta E_2. \quad (42)$$

(42) 式表明在 LACE 过程中该碰撞是非弹性碰撞, 其中损失的能量为 ΔE_2 . 在本文中, 由于能量差 ΔE_2 较大, NSDI 的主要贡献来自于量子轨道而不是经典轨道, 其中碰撞时刻 $t = (i/\omega_1) \cosh^{-1}(q_1 - s)/(\zeta_1 - \zeta'_1)$. 此时, 贝塞尔函数写为

$$\begin{aligned} & J_L(\zeta_1 - \zeta'_1) \\ &= \frac{\omega_1}{2\pi} \sum_{t_0} \sqrt{\frac{2\pi}{\omega_1^2 [L^2 - (\zeta_1 - \zeta'_1)^2]^{1/2}}} \\ & \times \exp\{-i[(\zeta_1 - \zeta'_1) \sin(\omega_1 t_0) - L\omega_1 t_0]\}, \quad (43) \end{aligned}$$

其中 $L = q_1 - s$ 为电子在碰撞过程中光子数目的变化. 类似于 CI 的情况, CEI 机理下的跃迁矩阵元表示为 $T_{\text{CEI}}^k \propto f^{1/4}$, 其中 $f = L^2 - |\zeta_1|^2 - |\zeta'_1|^2 + |\zeta_1 \zeta'_1| \cos \theta$, θ 表示在宗量 ζ_1 和 ζ'_1 中电子动量方向的夹角. 如果 $\theta = 0^\circ$, 该碰撞过程被称为前向碰撞; 如果 $\theta = 180^\circ$, 该碰撞过程被称为背向碰撞. 由于 L 较大, f 的值在背向碰撞的情况下更小. 因此, 背向碰撞对 NSDI 过程起了主导作用. 假设 ΔE_2 较小, 鞍点 t_0 时刻的轨道将对 NSDI 过程有重要的贡献. 此时, 前向碰撞将对 NSDI 过程起主导作用.

3.2.2 双色激光场中由 CEI 机理引起的 NSDI 过程

现在考虑氦原子在 IR+XUV 双色激光场下由 CEI 机理引起的 NSDI 过程. 选取的激光参数为: 激光强度 $I_1 = 1.0 \times 10^{12}$ W/cm² 和 $I_2 = 5.0 \times 10^{12}$ W/cm², 频率为 $\omega_1 = 1.165$ eV 和 $\omega_2 = 41\omega_1$, 两束激光场的极化方向相同, 初始相位为 0.

图 14 给出了两电离电子沿着激光极化方向出射时的动量谱. 从图 14 可见, 无论两电离电子出射方向相同还是相反, NSDI 动量谱在四个象限中都是相同的. 这是由于: 第二个电子从 He⁺ 离子的激发态上电离与第一个电子的电离没有直接关系, 从而导致动量谱的对称结构. 该结果与 IR 激光场下由 CEI 机理引起的动量谱 (图 12 所示) 不同. 由于 XUV 激光场在 NSDI 过程中起了关键作用, 根据能量守恒有: $\mathbf{p}'_1/2 + \mathbf{p}'_2/2 = n\omega_2 - I_p$, 其中 n 表示原子在 NSDI 过程中吸收总的 XUV 光子的数目. 根据该能量守恒公式发现: 图 14 中电离概率高的动

量谱来自于原子吸收 3 个 XUV 光子的贡献, 而电离概率低的动量谱来自于原子吸收 4 个 XUV 光子的贡献. 这说明吸收的 XUV 光子数越多, 对应的电离概率越低.

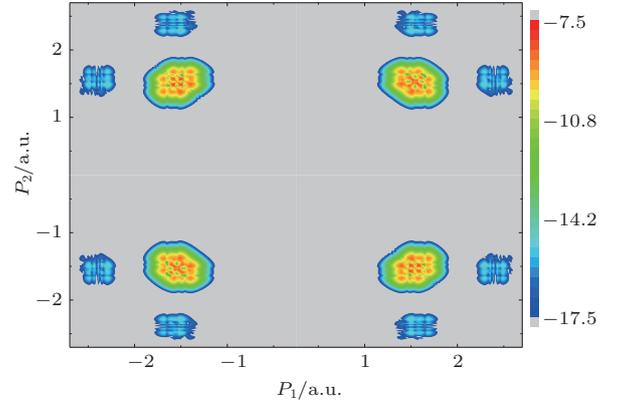


图 14 两电离电子沿着激光极化方向出射时由 CEI 机理引起的 NSDI 动量谱, 采用对数标度
Fig. 14. The NSDI momentum spectra of two ionized electrons with their momenta along the lasers polarization direction, where the NSDI is caused by the CEI mechanism in IR+XUV two-color laser fields. In a logarithmic scale.

根据频域理论, CEI 可以看成三步过程: 第一个电子首先发生 ATI1 过程, 然后在 IR 和 XUV 激光场的作用下碰撞第二个电子后离开母核, 并使得第二个电子处在 He⁺ 离子的第一激发态 (LACE), 最后第二个电子从该激发态上发生 ATI2 过程. 电子在 ATI1, LACE 和 ATI2 过程都有可能吸收 XUV 光子. 因此, 我们定义通道 (q_2, d_2, s_2) , 其中 q_2, d_2 和 s_2 分别表示电子在 ATI1, LACE 和 ATI2 中吸收的 XUV 光子数目. 首先, 图 15 给出了原子在电离过程中吸收 3 个 XUV 光子情况下对应的通道贡献, 其中原子在 ATI (包括 ATI1 和 ATI2) 过程中吸收 0 个 XUV 光子的通道贡献特别小 (图中没有给出). 从图 15 可以看出, 电离概率较高的动量谱来自于两个通道 (1, 1, 1) 和 (2, 0, 1) 的贡献. 这说明第一个电子在电离和碰撞过程中需要吸收 2 个 XUV 光子, 第二个电子的电离只需要吸收 1 个 XUV 光子. 通过分析该电离过程可以知道: 第一个电子被电离和第二个电子从 He⁺ 离子的基态被激发到其第一激发态总共需要的能量至少为 65.28 eV, 第二个电子从 He⁺ 离子的第一激发态被电离需要的能量至少为 13.63 eV. 因此, 只有通道 (1, 1, 1) 和 (2, 0, 1) 对 NSDI 过程有贡献.

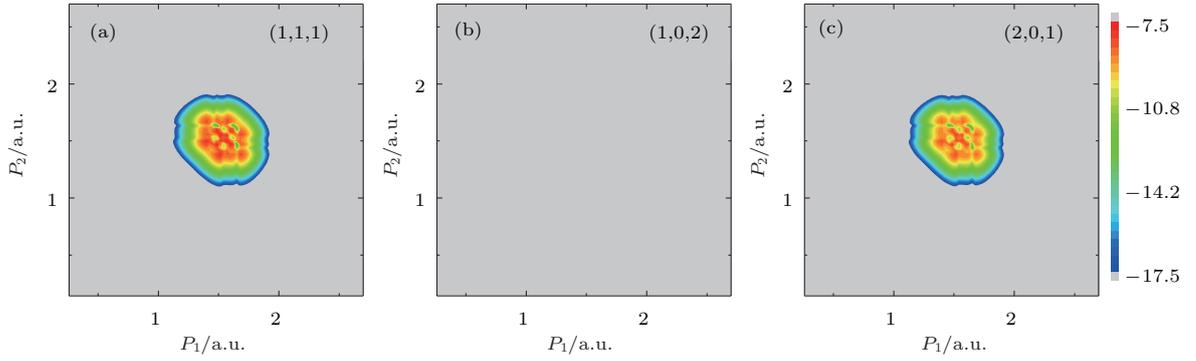


图 15 原子在电离过程中吸收 3 个 XUV 光子情况下对应的通道贡献, 采用对数标度

Fig. 15. The channel contributions of atom absorbing three XUV photons in the NSDI process for (1, 1, 1) (a), (1, 0, 2) (b) and (2, 0, 1) (c). In a logarithmic scale.

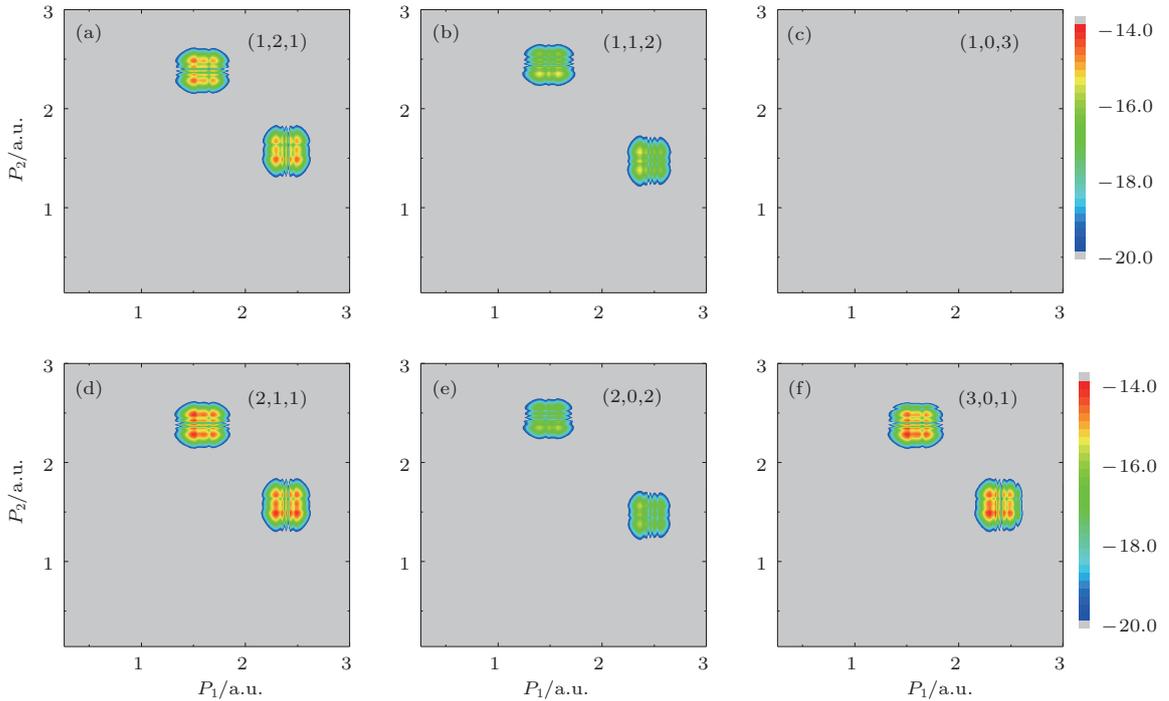


图 16 原子在电离过程中吸收 4 个 XUV 光子情况下对应的通道贡献, 采用对数标度

Fig. 16. The channel contributions of atom absorbing four XUV photons in the NSDI process for (1, 2, 1) (a), (1, 1, 2) (b), (1, 0, 3) (c), (2, 1, 1) (d), (2, 0, 2) (e) and (3, 0, 1) (f). In a logarithmic scale.

类似地, 图 16 给出了原子在电离过程中吸收 4 个 XUV 光子情况下对应的通道贡献. 从图 16 可以看出, 共有五个通道对 NSDI 过程有贡献, 其中通道 (2, 1, 1), (3, 0, 1) 和 (1, 2, 1) 的贡献较强, 而通道 (1, 1, 2) 和 (2, 0, 2) 的贡献较弱. 这说明电子在 ATI1+LACE 过程中吸收 3 个 XUV 光子和在 ATI2 过程中吸收 1 个 XUV 光子的概率较大. 从图 16 还可以看到, 贡献较强通道的干涉条纹与贡献较弱通道的干涉条纹不同.

通过上面的分析可以看出: 在 CEI 机理引起的 NSDI 过程中, 原子在 IR+XUV 双色激光场下的动

量谱与 IR 单色激光场下的动量谱呈现出不同的动量谱. 相比 IR 单色激光场的情况, 双色激光场下的 NSDI 过程有更多的干涉通道参与, 并且干涉条纹更为丰富. 另外, 在上述的工作中, 我们只考虑了 He⁺ 离子的第一激发态的情况, 而在今后的工作中将研究更多激发态对 NSDI 的贡献, 从而更加全面地理解 NSDI 过程. 在 NSDI 过程中, IR 单色激光场下背向碰撞的贡献起主要作用, 而在 IR+XUV 双色激光场下, 前向碰撞起主要贡献, 这些原因还有待进一步分析.

4 结 论

本文综述了利用频域理论研究氢原子在强激光场中非序列电离的过程, 比较了在IR单色激光场及IR+XUV双色激光场中非序列电离的动量谱分布. 对于碰撞-电离和碰撞-激发-电离两种非序列电离机理, 我们分析了不同量子跃迁通道相干所形成的电离谱相干条纹, 并解释了不同激光场中前向碰撞和背向碰撞对非序列电离的不同贡献. 通过以上研究结果, 我们更深入地了解高频激光场对多电子电离过程的影响——高频光子不仅能够提高第一个电子的电离概率, 而且能够加速电离电子使得它在与第二个束缚电子碰撞时能够将更多的能量传递给第二个电子, 从而使其电离概率提高. 基于这些研究, 我们将进一步考察分子在激光场中的非序列双电子电离过程.

参考文献

- [1] Becker W, Liu X, Ho P J, Eberly J H 2012 *Rev. Mod. Phys.* **84** 1011
- [2] Schafer K J, Yang B, DiMauro L F, Kulander K C 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 1599
- [3] Liu C, Nakajima T 2008 *Phys. Rev. A* **78** 063424
- [4] Wang C, Okunishi M, Hao X, Ito Y, Chen J, Yang Y, Lucchese R R, Zhang M, Yan B, Li W D, Ding D, Ueda K 2016 *Phys. Rev. A* **93** 043422
- [5] Wang P Y, Jia X Y, Fan D H, Chen J 2015 *Acta Phys Sin.* **64** 143201 (in Chinese) [王品懿, 贾欣燕, 樊代和, 陈京 2015 物理学报 **64** 143201]
- [6] Liu M, Guo Y C, Wang B B 2015 *Chin. Phys. B* **24** 073201
- [7] Tian Y Y, Li S Y, Wei S S, Guo F M, Zeng S L, Chen J G, Yang Y J 2014 *Chin. Phys. B* **23** 053202
- [8] Hu Z, Lai X, Liu X, Chen J 2014 *Phys. Rev. A* **89** 043401
- [9] L' Huillier A, Schafer K J, Kulander K C 1991 *Phys. Rev. Lett.* **66** 2200
- [10] Watanabe S, Kondo K, Nabekawa Y, Sagisaka A, Kobayashi Y 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 2692
- [11] Yuan Z, Guo Y C, Wang B B 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 114205 (in Chinese) [袁仲, 郭迎春, 王兵兵 2016 物理学报 **65** 114205]
- [12] Xiong W H, Xiao X R, Peng L Y, Gong Q 2016 *Phys. Rev. A* **94** 013417
- [13] Li W, Wang G L, Zhou X X 2016 *Chin. Phys. B* **25** 053203
- [14] Zhang J, Liu H F, Pan X F, Du H, Guo J, Liu X S 2016 *Chin. Phys. B* **25** 053202
- [15] Guan Z, Zhou X X, Bian X B 2016 *Phys. Rev. A* **93** 033852
- [16] Liu C, Zheng Y, Zeng Z, Li R 2016 *Phys. Rev. A* **93** 043806
- [17] Wang F, He L, Zhai C, Shi W, Zhang Q, Lan P, Lu P 2015 *Phys. Rev. A* **92** 063839
- [18] Zhao S F, Jin C, Lucchese R R, Le A T, Lin C D 2011 *Phys. Rev. A* **83** 033409
- [19] Walker B, Sheehy B, DiMauro L F, Agostini P, Schafer K J, Kulander K C 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 1227
- [20] Becker A, Faisal F H 1999 *Phys. Rev. A* **59** R1742
- [21] Watson J B, Sanpera A, Lappas D G, Knight P L, Burnett K 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 1884
- [22] Yuan Z, Ye D, Xia Q, Liu J, Fu L 2015 *Phys. Rev. A* **91** 063417
- [23] Ma X, Zhou Y, Lu P 2016 *Phys. Rev. A* **93** 013425
- [24] Chen Y, Zhou Y, Li Y, Li M, Lan P, Lu P 2016 *J. Chem. Phys.* **144** 024304
- [25] Ye D, Li M, Fu L, Liu J, Gong Q, Liu Y, Ullrich J 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 123001
- [26] Hao X, Chen J, Li W, Wang B, Wang X, Becke W 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 073002
- [27] Becker W, Liu X, Ho P J, Eberly J H 2012 *Rev. Mod. Phys.* **84** 1011
- [28] Chen J, Liu J, Fu L B, Zheng W M 2000 *Phys. Rev. A* **63** 011404
- [29] Chen J, Liu J, Zheng W M 2002 *Phys. Rev. A* **66** 043410
- [30] Chen J, Nam C H 2002 *Phys. Rev. A* **66** 053415
- [31] van der Zwan E V, Lein M 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 043004
- [32] Vampa G, Hammond T J, Thiré N, Schmidt B E, Légaré F, McDonald C R, Brabec T, Corkum P B 2015 *Nature* **522** 462
- [33] Li Y, Zhu X, Lan P, Zhang Q, Qin M, Lu P 2014 *Phys. Rev. A* **89** 045401
- [34] Hadas I, Bahabad A 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 253902
- [35] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [36] Chang Z, Rundquist A, Wang H, Murnane M M, Kapteyn H C 1997 *Phys. Rev. Lett.* **79** 2967
- [37] McNeil B W J, Thompson N R 2010 *Nat. Phot.* **4** 814
- [38] Gallmann L, Cirelli C, Keller U 2012 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **63** 447
- [39] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [40] Guo D S, Åberg T, Crasemann B 1989 *Phys. Rev. A* **40** 4997
- [41] Gao L, Li X, Fu P, Freeman R R, Guo D S 2000 *Phys. Rev. A* **61** 063407
- [42] Fu P, Wang B, Li X, Gao L 2001 *Phys. Rev. A* **64** 063401
- [43] Wang B, Gao L, Li X, Guo D S, Fu P 2007 *Phys. Rev. A* **75** 063419
- [44] Guo Y, Fu P, Yan Z C, Gong J, Wang B 2009 *Phys. Rev. A* **80** 063408
- [45] Wang B, Guo Y, Zhang B, Zhao Z, Yan Z C, Fu P 2010 *Phys. Rev. A* **82** 043402
- [46] Wang B, Guo Y, Chen J, Yan Z C, Fu P 2012 *Phys. Rev. A* **85** 023402
- [47] Jin F, Tian Y, Chen J, Yang Y, Liu X, Yan Z C, Wang B 2016 *Phys. Rev. A* **93** 043417
- [48] Keldysh L V 1964 *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **47** 1945
- [49] Keldysh L V 1965 *Sov. Phys. JETP* **20** 1307
- [50] Faisal F H M 1973 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **6** L89
- [51] Reiss H R 1980 *Phys. Rev. A* **22** 1786

- [52] Guo D S, Åberg T 1988 *J. Phys. A* **21** 4577
- [53] Guo D S, Drake G W F 1992 *J. Phys. A* **25** 3383
- [54] Guo D S, Drake G W F 1992 *J. Phys. A* **25** 5377
- [55] Liu M 2015 *M. S. Thesis* (Beijing: University of Chinese Academy of Sciences) (in Chinese) [刘敏 2015 硕士学位论文 (北京: 中国科学院大学)]
- [56] Volkov D M 1935 *Z. Phys.* **94** 250
- [57] Eremina E, Liu X, Rottke H, Sandner W, Dreischuh A, Lindner F, Grasbon F, Paulus G G, Walther H, Moshhammer R, Feuerstein B, Ullrich J 2003 *J. Phys. B* **36** 3269
- [58] Zhang K, Chen J, Hao X L, Fu P, Yan Z C, Wang B 2013 *Phys. Rev. A* **88** 043435
- [59] Radcliffe P, Arbeiter M, Li W B, Düsterer S, Redlin H, Hayden P, Hough P, Richardson V, Costello J T, Fennel T, Meyer M 2012 *New J. Phys.* **14** 043008
- [60] Liu A, Thumm U 2014 *Phys. Rev. A* **89** 063423
- [61] Jin F, Chen J, Yang Y, Yan Z C, Wang B 2016 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **49** 195602

SPECIAL TOPIC — Atomic and molecular processes driven by ultrafast intense laser fields

Frequency-domain view of nonsequential double ionization in intense laser fields*

Jin Fa-Cheng¹⁾²⁾ Wang Bing-Bing^{1)2)†}

1) (*Laboratory of Optical Physics, Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

2) (*School of Physics, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

(Received 18 September 2016; revised manuscript received 6 November 2016)

Abstract

The research of laser-matter interaction has become a major direction in the field of laser physics since the invention of laser in 1960. Based on the development of the laser technique in the recent several decades, the ranges of the laser's frequency, intensity and pulse width have been explored widely. Therefore, the excitation, emission and ionization dynamic processes of a complex system in intense laser fields have been studied deeply. Especially, the nonsequential double ionization (NSDI) process has continuously attracted much attention from both experimental and theoretical sides. So far, the recollision picture is widely accepted as a dominating mechanism accounting for the NSDI process under an infrared (IR) laser field condition. This recollision picture can be classified into two mechanisms: the collision-ionization (CI) mechanism and the collision-excitation-ionization (CEI) mechanism. Recently, it is found that the NSDI process can take place in an extreme ultraviolet (XUV) laser field, and thus few-photon double ionization has been extensively studied by solving the full-dimensional time-dependent Schrödinger equation (TDSE) and the conventional nonstationary perturbation theory. This article reviews the frequency-domain theory of the NSDI processes of an atom in a monochromatic IR and IR+XUV two-color laser fields. In contrast with other approaches, such as the TDSE calculation and S-matrix method, the frequency-domain theory based on the nonperturbative quantum electrodynamics is involved in some advantages: (i) all the recollision processes, including high-order above-threshold ionization (HATI), high-order harmonic generation (HHG) and NSDI, can be dealt under the unified theoretical frame and can be decoupled into two processes—a direct above-threshold ionization (ATI) followed by a laser-assisted collision (LAC) or by a laser-assisted recombination process, where these subprocesses can be investigated separately; (ii) the approach can save a lot of computation time because of its nature of time-independent. In this review, we show the different momentum

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61275128, 11474348).

† Corresponding author. E-mail: wbb@aphy.iphy.ac.cn

spectral distributions under the CI and CEI mechanisms in the IR and IR+XUV laser fields. With the help of the channel analysis, we compare the contributions of the forward and backward collisions to the NSDI under two conditions of the monochromic IR and IR+XUV two-color laser fields. It is found that, in the CI mechanism, the backward collision makes major contribution to the NSDI in the IR laser field, while the forward collision plays a crucial role in the NSDI when the energy of the recolliding electron is very large in the IR+XUV two-color laser fields. Furthermore, by employing the saddle-point approximation, it is found that the momentum spectrum, whether in the monochromic IR or the IR+XUV two-color laser fields, is attributed to the interference between two trajectories at different saddle-point t_0 and $2\pi/\omega_1 - t_0$ (ω_1 is the frequency of an IR laser field) when the collision happens in each channel. On the other hand, in the CEI mechanism, the momentum spectra in the monochromic IR or the IR+XUV two-color laser fields present a distinct difference. It is further found that the momentum spectrum in the IR+XUV two-color laser fields is involved in the much more channels than that in the monochromic IR laser field, and thus the complex interference patterns in the momentum spectrum in the two-color laser fields are shown. Moreover, it is found that, in both the CI and CEI mechanisms, the XUV laser field in the NSDI not only can enhance the ionization probability of the first electron, but also can accelerate the first ionized electron so that the bound electron can gain much energy by collision, which is in favor of significant boost of the NSDI probability. This work can help people understand more deeply about the NSDI, and also may pave a way for us to continue investigating the NSDI process of complex system in intense laser fields.

Keywords: frequency-domain, strong laser field, nonsequential double ionization, multielectron atom

PACS: 42.50.Ct, 34.50.Fa, 33.20.Xx

DOI: [10.7498/aps.65.224205](https://doi.org/10.7498/aps.65.224205)

吸收多个远紫外光子生成的高次谐波的多重截止结构

俞祖卿 何峰

Multiple cutoffs in high harmonic generation via multi-XUV-photon absorption

Yu Zu-Qing He Feng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 224206 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.224206

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.224206>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I22>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

离轴涡旋光束弱走离条件下的倍频效应

Frequency doubling effect of off-axial vortex beam in the case of weak walk-off

物理学报.2015, 64(24): 244204 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.244204>

高次谐波 Guo-Åberg-Crasemann 理论及其截断定律

Guo-Åberg-Crasemann theory for high harmonic generation and its cutoff law

物理学报.2015, 64(12): 124207 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.124207>

KTP 倍频器件温度适应性扩展研究

Study on temperature adaptability extension of KTP frequency-doubling device

物理学报.2015, 64(9): 094205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.094205>

空气中等离子光栅诱导探测光丝三次谐波辐射放大的实验研究

Efficient generation of third harmonic radiation of air filament induced by plasma grating

物理学报.2014, 63(18): 184206 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.184206>

利用椭圆高斯光束产生 266nm 紫外连续激光

Generation of 266 nm continuous-wave with elliptical Gaussian beams

物理学报.2014, 63(5): 054204 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.054204>

专题: 超快强激光驱动的原于分子过程

吸收多个远紫外光子生成的高次谐波的 多重截止结构*

俞祖卿 何峰†

(激光等离子体教育部重点实验室, IFSA 协同创新中心, 上海交通大学物理与天文系, 上海 200240)

(2016年10月18日收到; 2016年11月8日收到修改稿)

本文通过数值求解含时薛定谔方程研究 He^+ 在远紫外和红外激光场作用下产生高次谐波的过程. 在电子隧穿并从红外激光场获得能量后, 其在与母离子碰撞过程中可能吸收额外的远紫外光子, 并导致高次谐波中出现以远紫外光子能量为间隔的多重截止结构. 我们进一步通过傅里叶频谱分析的方法证实了这一结构产生的物理机制; 并分析了高次谐波的多重截止频率强度和远紫外强度的关系. 我们的研究为产生高能量谐波提供了一种方案.

关键词: 高次谐波, 多重截止, 多远紫外光子吸收

PACS: 42.65.Ky, 32.80.Rm, 32.30.Jc, 34.80.Qb

DOI: 10.7498/aps.65.224206

1 引言

高次谐波是强激光场与原于分子相互作用中最基础的过程之一^[1-3]. 由于其具有例如原于分子轨道成像^[4,5]、化学反应可视化^[6,7]、合成单个阿秒激光脉冲^[8-12]等广泛应用, 高次谐波在理论和实验研究上都得到了广泛的关注. 高次谐波的产生可由著名的三步模型^[13,14]解释: 首先激光场调制库仑势使得电子隧穿电离, 随后电子在激光场中被加速并获得动能, 最后高能电子与母离子碰撞. 在碰撞过程中电子的动能以及电离能转化为高能光子, 即产生高次谐波. 这三步可以简单地分为电离、加速、碰撞. 高次谐波光谱呈现出一种普遍的结构, 即在高强度的低阶谐波部分后接着一段强度相当的谐波平台, 在平台的能量最高处强度急剧下降. 这个平台的能量最高点即对应了高次谐波的截止频率. 大量的实验和理论计算表明, 截止频率的光子能量为 $3.17U_p + I_p$, 其中 I_p 为电离势, U_p 为有质动力能, 即一个自由电子在单色激光场中振动的平

均动能. 最近有研究表明, 在低于电离能的区域高次谐波仍有可能产生^[15], 这对应于束缚态之间的跃迁辐射.

目前, 最先进的激光技术能够控制高次谐波产生的三个步骤中的任何一个步骤. 例如, 理论预计可以利用红外与远紫外脉冲结合作为驱动场控制电离的过程^[16,17], 这一方案后来在实验上^[18,19]成功实现. 还可以使用双色激光场操控电子的长短轨道从而控制阿秒激光脉冲的形状与宽度^[20-25]. 此外, 散射能量与截面也可被优化^[26,27].

结合远紫外和红外脉冲与原于分子共同作用产生高次谐波的工作取得了很大的成功^[28]. Kohler等^[29]提出使用远紫外和整形红外场调制高次谐波的相位. Fleischer^[30]发现利用远紫外和红外场与原于相互作用, 远紫外作用下的交流 Stark 振荡会生成新的远紫外谐波. Buth等^[31,32]发展了包含两个电子动力学的理论, 并用来描述内壳层电子激发在高次谐波中的作用. 最近, Buth等^[33]提出了使用硬紫外射线和少周期红外脉冲与氖原子中被紧密束缚的 $1s$ 态电子作用, 理论预计可

* 国家自然科学基金 (批准号: 11104180, 11175120, 11121504, 11322438, 11574205) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: fhe@sjtu.edu.cn

以获得具有 keV 级光子能量的单个阿秒激光脉冲.

在本文中, 我们模拟了 He⁺ 在少周期钛宝石红外飞秒激光脉冲与远紫外激光脉冲的共同作用下产生高次谐波的过程. 高次谐波光谱中出现了多重截止结构, 这些截止结构对应的频率可表示为 $I_p + 3.17U_p + n\omega_x$, 其中 ω_x 是远紫外脉冲的频率, n 为非负整数. 这些截止频率的强度随着 n 增加而减弱 2 至 3 个数量级. 通过时频分析, 我们发现 He⁺ 首先吸收一个远紫外光子, 由 1s 态跃迁至 2p 态, 随后在红外激光场的协助下隧穿电离. 处于自由态的电子最多可以获得 $3.17U_p$ 的动能. 然后, 高能电子在返回母核附近时会额外吸收多个远紫外光子. 附加的多个远紫外光子能量将与 $I_p + 3.17U_p$ 一起释放, 并由此导致多重截止结构的出现.

2 数值模型

在我们的模拟计算中, 远紫外和红外组合后的激光场表示为

$$E(t) = E_{x0} \cos(\omega_x t) \exp[-32 \ln 2 [(t - \Delta t)/\tau_x]^6] + E_{L0} \cos(\omega_L t) \exp[-2 \ln 2 (t/\tau_L)^2], \quad (1)$$

其中, Δt 为远紫外脉冲和红外脉冲之间的时间延迟, $\tau_L = 2T_L$, $\tau_x = 40T_x$, 其中 T_L , ω_L , E_{L0} 和 T_x , ω_x , E_{x0} 分别表示红外激光和远紫外激光的周期、频率和振幅. 图 1 (a) 和图 1 (b) 分别描绘了红外激光场和远紫外激光场. 我们出于如下考虑选择此远紫外脉冲形状: 首先, 数值上这种脉冲的光强可以迅速地增大或者减小且变化过程仍保持足够光滑; 其次, 远紫外脉冲主要部分的强度几乎保持不变, 这就能最大程度地排除因远紫外强度变化而对数值模拟结果可能带来的影响. 不过, 我们在测试了数种脉冲轮廓后得出, 物理机制不依赖于任何特定的脉冲形状. 在模拟中, 我们设定红外激光强度为 5×10^{14} W/cm², 远紫外脉冲波长为 30 nm (对应光子能量 1.52 a.u.).

根据经典解释, 在红外电场波峰过后 17° 出射的电子, 会在大约 2/3 周期后与母离子发生碰撞, 这一碰撞产生的高能光子对应于高次谐波光谱中的截止频率. 图 1 (a) 展示了电子多个可能的电离和碰撞时刻, 分别由红色实心圆点和蓝色方块标记, 简计为 b_i 和 r_i . 在激光场的起始和结尾部分, 由于光强太弱, 那个区域导致的电离可以忽略不计. 在

我们的计算中, 远紫外脉冲的主要部分可以覆盖红外激光脉冲的一个完整周期. 为了定量地研究高次谐波, 我们用数值模拟如下的含时薛定谔方程 (除声明外, 均使用原子单位制 (a.u.) $e = m = \hbar = 1$):

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\rho, z; t) = \left[H_0 + iA(t) \frac{\partial}{\partial z} \right] \Psi(\rho, z; t), \quad (2)$$

其中 $A(t) = - \int_{-\infty}^t E(t') dt'$, 无外场时的哈密顿量 H_0 写为

$$H_0 = -\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{1}{2} \left[\frac{\partial^2}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} \right] - \frac{2}{\sqrt{z^2 + \rho^2}}. \quad (3)$$

在模拟计算中, 我们取空间间隔 $\Delta x = \Delta \rho = 0.2$, 时间步长 $\delta t = 0.05$, 在 z 和 ρ 维度的网格数分别为 2000 和 500. 此模型给出的 He⁺ 在 1s 态的电离势 I_p 为 2 a.u.. 在模拟空间的边界我们使用衰减函数 [34] 以抑制非物理的反射. 我们计算电子受力的期望值 $F(t)$, 并对其做傅里叶变换即可以得到高次谐波的波谱 [35].

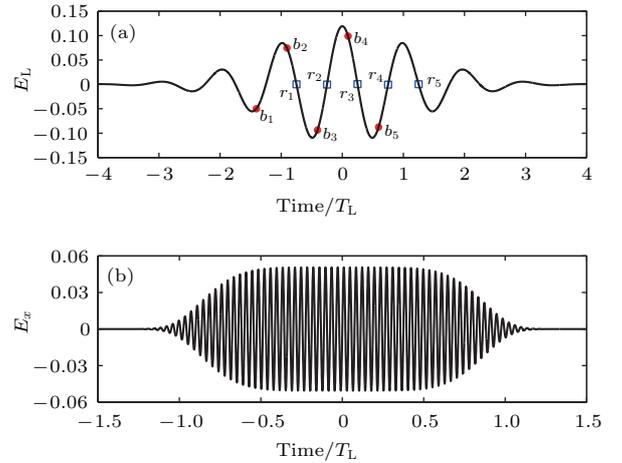


图 1 红外激光场 (a) 与远紫外激光场 (b) b_i ($i = 1, 2, \dots, 5$) (图中红色实圆点) 与 r_i ($i = 1, 2, \dots, 5$) (图中蓝色方块) 分别表示电子隧穿电离以及碰撞时刻

Fig. 1. The IR laser field (a) and the XUV laser field (b). The b_i ($i = 1, 2, \dots, 5$) (red solid circles) and r_i ($i = 1, 2, \dots, 5$) (blue squares) are the electron born and rescattering time, associating with the cutoff in the HHG spectrum.

3 模拟结果

图 2 所示的是不同激光条件下的高次谐波, 分别为: 只有红外场 (蓝色细虚线); 有远紫外场和红外场且时间延迟 $\Delta t = -2.5T_L$ (红色细实线) 或者

$\Delta t = 0$ (黑色粗线). 比较两条细线可以发现远紫外脉冲的出现把高次谐波的强度增加了5到6个数量级, 这与文献[17, 36]相一致. 更有趣的是当远紫外和红外场的时间延迟为 $\Delta t = 0$ 时, 高次谐波谱呈现了数个截止频率, 且相邻截止频率间的能量差为 ω_x . 我们把这些截止频率从左至右记为 c_1, c_2, c_3 . 这些截止频率的强度各自比前一个弱三个数量级左右. 本文接下来将主要讨论导致这一多重截止结构的机理.

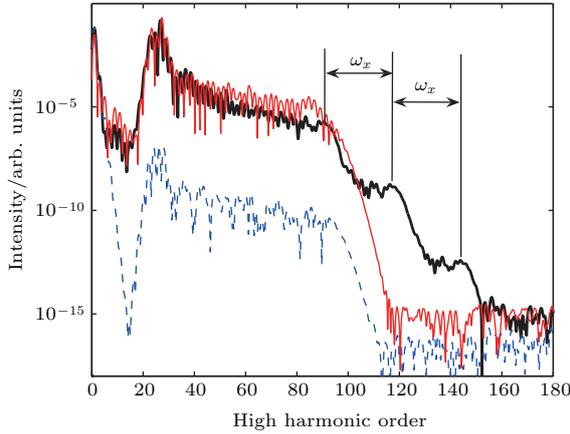


图2 (网刊彩色) 不同激光条件下产生高次谐波的光谱. 蓝色虚线对应只有红外场; 黑色粗实线对应红外场与远紫外场时间且延迟为 $\Delta t = 0$; 红色细实线对应红外场与远紫外场且时间延迟为 $\Delta t = -2.5T_L$. 远紫外与红外激光强度分别为 10^{14} W/cm^2 和 $5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 波长分别为 30 nm 和 800 nm

Fig. 2. (color online) The spectrum of HHG when only the IR laser pulse is used (blue dashed curve), when both XUV and IR fields are used at the time delay $\Delta t = 0$ (black thick solid curve), $\Delta t = -2.5T_L$ (red thin solid curve). The XUV and IR laser intensities are 10^{14} W/cm^2 and $5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, respectively. The XUV and IR pulses have the wavelengths 30 nm and 800 nm, respectively.

出现在 $I_p + 3.17U_p$ 处的 c_1 有很直观的解释: 电子通过吸收一个远紫外光子从 $1s$ 态跃迁至 $2p$ 态, 随后在红外激光场的帮助下在 b_i 时刻隧穿, 并且在 r_i 时刻与母离子再碰撞 (如图 1 (a) 所示), 释放出结合能 I_p 以及电子从红外场中获得的不超过 $3.17U_p$ 的动能. 由于 c_2 与 c_3 分别是由 c_1 延伸 ω_x 和 $2\omega_x$ 而来, 并且截止附近的细致结构也相似, 很自然的我们认为红外激光对不同平台的影响是相同的, 并推断出 c_2 和 c_3 分别是电子在 $I_p + 3.17U_p$ 之外多吸收一个和两个远紫外光子而得到的. 吸收越多远紫外光子的几率越小, c_2 和 c_3 的强度也因此比 c_1 小. 增加远紫外强度, 电子就有更大几率吸收更多远紫外光子. 我们的测试计算给出: 当远紫外强度增加

到 $5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ 时, 第四个截止结构也清晰可见 (此数值结果此处未展示).

截止强度与远紫外强度变化的定标率可以揭示有几个远紫外光子参与高次谐波的产生这一过程. 图 3 在对数-对数坐标下描述了截止强度随远紫外脉冲强度的变化关系. 此处, 截止频率的强度已经由远紫外强度为 10^{13} W/cm^2 时得到的相应的截止频率强度作了归一化. 这几条曲线的斜率为 1,2,3, 这清晰地表明了一个、两个和三个远紫外光子参与了这些截止频率的产生 [37]. 作为参考, 我们也作出了归一化后电离几率随远紫外强度的变化关系, 如带菱形标志的实线所示. 这条线的斜率为 1, 也即表明电离的过程只有一个远紫外光子参与.

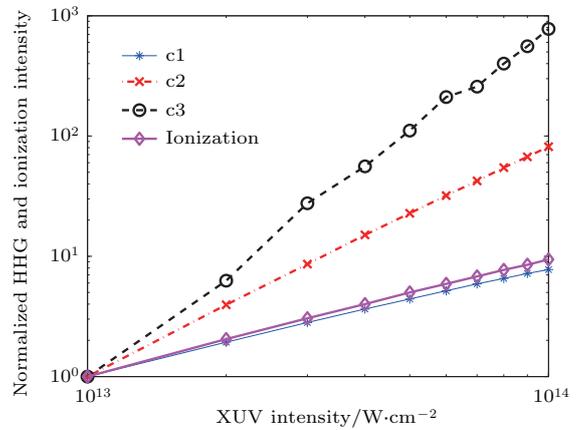


图3 归一化后的 c_1, c_2, c_3 强度随远紫外脉冲强度变化的定标曲线, 以及电离几率随远紫外强度的变化关系

Fig. 3. (color online) Power scaling of the normalized intensities of c_1, c_2 , and c_3 as a function of the XUV intensity. For reference, the dependence of the ionization probability on the XUV intensity is also shown.

接下来我们讨论多个远紫外光子吸收发生在三步模型中的哪一步. 在第一步中, 电子可以吸收一个远紫外光子然后隧穿电离, 或直接吸收多个远紫外光子逃逸. 就后者而言, 电离的电子具有的初速度为 $v_0(n) = \sqrt{2(n\omega_x - I_p)}$, ($n \geq 2$ 且 n 为吸收光子数). 根据牛顿方程, 和原子核碰撞时电子的碰撞能量可以计算如下 (此处库仑势对电子的运动影响忽略不计):

$$K(t_r) = \frac{1}{2} \left[v_0(n) - \int_{t_i}^{t_r} dt E(t) \right]^2 \quad n \geq 2, \quad (4)$$

其中 t_i 和 t_r 对应于电子电离和碰撞时刻. 当 $n = 2$ 和 3 时, 最大碰撞能量分别为 $2.68U_p$ 和 $1.45U_p$. 如果 $n \geq 3$, 逃逸速度将会大到红外场无法将如此快的电子送回原子核, 从而碰撞过程不能发生, 导致

高次谐波不再发生. 一般而言, 如果电子在第一次返回原子核时不发生碰撞而继续运动, 电子还有可能第二次甚至第三次返回原子核, 但是第二次或者第三次甚至更多的返回时电子的碰撞能量不会超过 $3.17U_p$ [38,39]. 在我们的模拟中, 若电子在电离过程中吸收一个、两个或者三个远紫外光子时, 第二次碰撞时的最大动能分别为 $1.9U_p$, $2.8U_p$ 和 $1.4U_p$. 为此, 我们得出在电离过程中的多个远紫外光子吸收不会导致图 2 所示的多重截止结构, 这一结论也与图 3 给出的只有一个远紫外光子参与电离过程的结论相一致.

在三步模型的第二步中, 电子在红外场和远紫外场中传播且远离母离子. 受限于动量守恒 [40,41], 这一过程中电子无法再吸收远紫外光子. 因此, 根据三步模型, 额外的远紫外光子只能在其与母离子碰撞的过程中被吸收.

为了证实额外的远紫外光子在第三步被吸收, 我们对高次谐波做了时频分析:

$$S(\Omega, \eta) = \int dt F(t) g(\eta, t) e^{-i\Omega t}, \quad (5)$$

其中窗口函数 $g(\eta, t) = \exp\left[-\frac{(t-\eta)^2}{2\eta_L^2}\right]$, $\eta_L = 5$ a.u.. 图 4 表示在不同时间延迟下的 $|S(\Omega, \eta)|^2$ (以对数标度). 作为比较, 由解牛顿方程得出的辐射谐波与碰撞时刻的关系以点线叠加在时频分析的结果上. 在经典计算中, 电子的初速度和初始位置均为零. 从上到下的四条曲线分别对应辐射能量 $2\omega_x + I_p + K(t_r)$, $\omega_x + I_p + K(t_r)$, $I_p + K(t_r)$ 和 $0.5 + K(t_r)$. 此处, $K(t_r)$ 由解 $n=1$, $v_0(1) = 0$ 时的方程 (4) 得到. 能量为 $0.5 + K(t_r)$ 的曲线描述了自由电子和原子核复合至 $2p$ 态而非 $1s$ 态的结果. 顺便指出, $2p$ 态 He^+ 的电离势为 0.5 .

当时间延迟为 0 时 (图 4(a)), 电离时刻 b_2, b_3, b_4 与碰撞时刻 r_2, r_3, r_4 都被远紫外脉冲的主要部分所覆盖 (参见图 1). 因此, 远紫外脉冲不仅把电子从 $1s$ 态激发至 np 态从而大大提高电离率, 且还在碰撞时刻提供远紫外光子. 当电子在 r_2, r_3 或 r_4 时刻与原子核碰撞时, 电子有几率吸收一个或多个远紫外光子. 在 $-0.5T_L < t < T_L$ 范围内, 三个截止区域清晰可见, 且经典结果与量子结果精确相符. 在 r_5 这一碰撞时刻, 由于远紫外脉冲的消失, c_2 和 c_3 同时消失. 在 r_1 时刻, 由于缺少用来把电子从 $1s$ 态激发至 np 态以促进大量电离的远紫外脉冲, 量子的计算结果没有在此处出现清晰的截止区域.

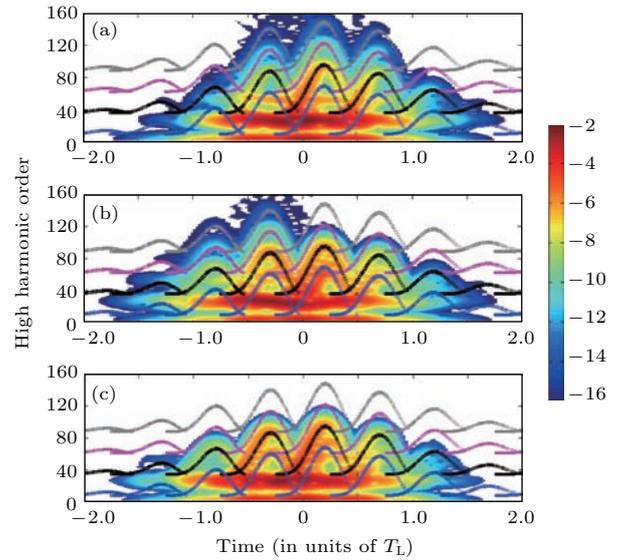


图 4 不同时间延迟下 ($\Delta t = 0$ (a), $\Delta t = -1.15T_L$ (b), $\Delta t = -2.27T_L$ (c)) 高次谐波的时频分析, 每幅图中由上至下的四条点线分别对应碰撞能量为 $I_p + K(t_r) + 2\omega_x$, $I_p + K(t_r) + \omega_x$, $I_p + K(t_r)$, 和 $0.5 + K(t_r)$

Fig. 4. (color online) The time-frequency analyses for HHG when the time delays are $\Delta t = 0$ (a), $\Delta t = -1.15T_L$ (b), $\Delta t = -2.27T_L$ (c). The four dotted curves from top to bottom in each panel correspond to the rescattering energy $I_p + K(t_r) + 2\omega_x$, $I_p + K(t_r) + \omega_x$, $I_p + K(t_r)$, and $0.5 + K(t_r)$, respectively.

当时间延迟 $\Delta t = -1.15T_L$ 时 (图 4(b)), 碰撞时刻 r_3 和 r_4 位于远紫外脉冲作用范围之外. 当电子返回并与母离子在 r_3 或 r_4 时刻碰撞时, 远紫外场已经消失, 故额外吸收一或两个远紫外光子已不再可能. 因此, 在 r_3 和 r_4 处, c_2 和 c_3 截止结构双双消失, 但由于先行的远紫外脉冲已把 He^+ 抽运至 $2p$ 态且由红外场诱发的三步过程仍然存在, c_1 截止结构仍十分清晰. 与图 4(a) 中多重截止结构在 r_1 处消失不同, b_1 与 r_1 现在被远紫外光所覆盖, 从而 b_1 时刻的电离几率大幅增强, 在 r_1 时刻额外吸收光子也变得可能, 从而同时产生了多个截止结构. 比较 $\Delta t = 0$ 和 $\Delta t = -1.15T_L$ 的情况, 在 b_2 与 r_2 时刻远紫外和红外激光条件都保持不变, 因此在 r_2 处的时频分析几乎相同.

当时间延迟为 $\Delta t = -2.27T_L$ 时 (图 4(c)), 远紫外和红外场无重叠部分. 先行的远紫外脉冲仅仅把 He^+ 激发, 随后延迟的红外激光场使激发的 He^+ 电离. 在任何碰撞时刻都没有远紫外光子提供, 因此只得到 c_1 这一截止区域 (注: 图 4(c) 顶层部分是 c_1 截止高次谐波的边缘, 而非 c_2 截止).

碰撞过程中吸收额外远紫外光子的这一现象也可在再散射电子的能谱中得到印证. 事实上, Smirnova 等^[42]通过在阿秒时间尺度对碰撞过程直接探测观测到了这一现象. 在他们的实验中只有一个远紫外光子参与了反应. 根据我们的计算, 有理由期待能够在碰撞后电子能谱中观测到多个远紫外光子的吸收.

如果远紫外光子的能量与 $1s$ 态和 np 态间的共振跃迁相差悬殊, 在电离步骤中通过吸收远紫外光子增强电离的现象将消失. 然而, 电子仍可能在碰撞过程中吸收一个或多个远紫外光子. 对于氢原子在相同激光参数下的模拟也证实了 n 重截止与 n 个远紫外光子的吸收一一对应.

4 结 论

综上所述, 我们发现电子会在与母离子的碰撞过程中额外吸收多个远紫外光子. 这些多个远紫外光子能量与电子从红外激光场中获得的动能一起释放, 由此大幅延伸高次谐波的阶次并形成多重截止解构. 如使用更高强度的远紫外场, 预期将观察到更多的截止结构. 通过改变远紫外和红外脉冲间的时间延迟, 我们能够控制电子与母离子碰撞过程中对远紫外光子的吸收.

参考文献

- [1] Babrec T, Krausz F 2000 *Rev. Mod. Phys.* **72** 545
- [2] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [3] Kohler M C, Pfeifer T, Hatsagortsyan K Z, Keitel C H 2012 *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **61** 159
- [4] Itatani J, Levesque J, Zeidler D, Niikura H, Pepin H, Kieffer J C, Corkum P B, Villeneuve D M 2004 *Nature* **432** 867
- [5] Haessler S, Caillat J, Boutu W, Giovanetti-Teixeira C, Ruchon T, Auguste T, Diveki Z, Breger P, Maquet A, Carre B, Taieb R, Salieres P 2010 *Nature Physics* **6** 200
- [6] Smirnova O, Mairesse Y, Patchkovskii S, Dudovich N, Villeneuve D, Corkum P, Ivanov M Y 2009 *Nature* **460** 972
- [7] Wöner H J, Bertrand J B, Kartashov D V, Corkum P B, Villeneuve D M 2010 *Nature* **466** 604
- [8] Sansone G, Benedetti E, Calegari F, Vozzi C, Avaldi L, Flammini R, Poletto L, Villoresi P, Altucci C, Velotta R, Stagira S, Silvestri S D, Nisoli M 2006 *Science* **314** 443
- [9] Pfeifer T, Jullien A, Abel M J, Nagel P M, Gallmann L, Neumark D M, Leone S R 2007 *Optics Express* **15** 17120
- [10] 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
- [11] Mashiko H, Gilbertson S, Li S, Khan S D, Shakya M M, Moon E, Chang Z 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 103906
- [12] Ferrari F, Calegari F, Lucchini M, Vozzi C, Stagira S, Sansone G, Nisoli M 2010 *Nature Photonics* **4** 875
- [13] Krause J L, Schafer K J, Kulander K C 1992 *Phys. Rev. Lett.* **68** 3535
- [14] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [15] Liu J C, Kohler M C, Keitel C H, Hatsagortsyan K Z 2011 *Phys. Rev. A* **84** 063817
- [16] Zeng Z, Li R, Cheng Y, Yu W, Xu Z 2002 *Physica Scripta* **66** 321
- [17] Ishikawa K 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 043002
- [18] Heinrich A, Kornelis W, Ancombe M P, Hauri C P, Schlup P, Biegert J, Keller U 2006 *J. Phys. B* **39** S275
- [19] Takahashi E J, Kanai T, Ishikawa K L, Nabekawa Y, Midorikawa K 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 053904
- [20] Kim I J, Kim C M, Kim H T, Lee G H, Lee Y S, Park J Y, Cho D J, Nam C H 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 243901
- [21] Lan P, Lu P, Cao W, Li Y, Wang X 2007 *Phys. Rev. A* **76** 051801
- [22] Zeng Z, Cheng Y, Song X, Li R, Xu Z 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 203901
- [23] Chipperfield L E, Robinson J S, Tisch J W G, Marangos J P 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 063003
- [24] Wu J, Zhang G T, Xia C L, Liu X S 2010 *Phys. Rev. A* **82** 013411
- [25] Kohler M, Hatsagortsyan K Z 2013 *JOSA B* **30** 57
- [26] Dudovich N, Smirnova O, Levesque J, Mairesse Y, Ivanov M Y, Villeneuve D M, Corkum P B 2006 *Nature Physics* **2** 781
- [27] Klaiber M, Kohler M C, Hatsagortsyan K Z, Keitel C H 2012 *Phys. Rev. A* **85** 063829
- [28] Adams B W, Buth C, Cavaletto S M, Evers J, Harman Z, Keitel C H, Palffy A, Picon A, Röhlberger R, Ros-tovtsev Y, Kenji Y 2013 *J. Mod. Opt.* **60** 2
- [29] Kohler M C, Keitel C H, Hatsagortsyan K Z 2011 *Optics Express* **19** 4411
- [30] Fleischer A 2008 *Phys. Rev. A* **78** 053413
- [31] Buth C, Kohler M, Ullrich J, Keitel C H 2011 *Opt. Lett.* **36** 3530
- [32] Buth C 2015 *Eur. Phys. J. D* **69** 234
- [33] Buth C, He F, Ullrich J, Keitel C H, Hatsagortsyan K Z 2013 *Phys. Rev. A* **88** 033848
- [34] He F 2012 *Phys. Rev. A* **86** 063415
- [35] Kohler M C, Ott C, Raith P, Heck R, Schlegel I, Keitel C H, Pfeifer T 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 203902
- [36] Popruzhenko S V, Zaretsky D F, Becker W 2010 *Phys. Rev. A* **81** 063417
- [37] Bertrand J B, Wörner H J, Bandulet H C, Bisson E, Spanner M, Kieffer J C, Villeneuve D M, Corkum P B 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 023001

- [38] Hickstein D D, Ranitovic P, Witte S, Tong X M, Huismans Y, Arpin P, Zhou X, Keister K E, Hogle C W, Zhang B, Ding C, Johnsson P, Toshima N, Vrakking M J J, Murnane M M, Kapteyn H C 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 073004
- [39] Tong X M, Ranitovic P, Hickstein D D, Murnane M M, Kapteyn H C, Toshima N 2013 *Phys. Rev. A* **88** 013410
- [40] Sarachik E S, Schappert G T 1970 *Phys. Rev. D* **1** 2738
- [41] He F, Yu W, Lu P, Xu H, Qian L, Shen B, Yuan X, Li R, Xu Z 2003 *Phys. Rev. E* **68** 046407
- [42] Smirnova O, Patchkovskii S, Spanner M 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 123001

SPECIAL TOPIC — Atomic and molecular processes driven by ultrafast intense laser fields

Multiple cutoffs in high harmonic generation via multi-XUV-photon absorption*

Yu Zu-Qing He Feng[†]

1) (Key Laboratory for Laser Plasmas (Ministry of Education), Department of Physics and Astronomy, Collaborative innovation center of IFSA, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China)

(Received 18 October 2016; revised manuscript received 8 November 2016)

Abstract

High harmonic generation (HHG) is one of the most fundamental processes in the interaction of strong laser fields with atoms and molecules. Because of wide applications of HHG, for example, imaging atomic or molecular orbitals, visualizing chemical reactions, synthesizing a single attosecond pulse, the HHG attracts huge attentions in both theories and experiments. The HHG can be explained by the famous three-step model: first, the laser field bends the Coulomb potential and the electron tunnels out; second, the electron is accelerated in the laser field and gains kinetic energy; Third, the energetic electron recombines with the parent ion and release its energy as high energetic photons. The HHG can be tailored by controlling the each step. In this paper, we conceive a strategy to control the third step. We simulate the HHG when He⁺ is exposed to the combined few-cycle Ti-Sapphire (800 nm) IR femtosecond laser pulse and XUV laser pulse by numerically solving the time dependent Schrödinger equation. The simulation shows that after the electron tunnels out and gains energies from the infrared laser field, extra XUV photons may be absorbed during the electron and parent ion recombination, contributing multiple cutoffs separated by XUV photon energies in the high harmonic spectrum. This scenario is confirmed by time-delay-dependent HHG in the time-frequency representation, and by the power scaling of the cutoffs' intensities as a function of the XUV intensity.

Keywords: high harmonic generation, multiple cutoffs, multi-XUV-photon absorption

PACS: 42.65.Ky, 32.80.Rm, 32.30.Jc, 34.80.Qb

DOI: 10.7498/aps.65.224206

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11104180, 11175120, 11121504, 11322438, 11574205).

† Corresponding author. E-mail: fhe@sjtu.edu.cn

分子轨道高时空分辨成像

祝晓松 张庆斌 兰鹏飞 陆培祥

Molecular orbital imaging with high spatial and temporal resolutions

Zhu Xiao-Song Zhang Qing-Bin Lan Peng-Fei Lu Pei-Xiang

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 224207 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.224207

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.224207>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I22>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

不同核轴取向的 O₂ 的高次谐波

High-order harmonic generation of O₂ molecules with different nuclear axis orientations

物理学报.2016, 65(11): 114205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.114205>

掺铒光纤中方波信号高次谐波的快慢光特性

Superluminal and slow light of high-order harmonic for rectangle signal in erbium-doped fiber

物理学报.2015, 64(24): 244205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.244205>

高次谐波的 Guo-Åberg-Crasemann 理论及其截断定律

Guo-Åberg-Crasemann theory for high harmonic generation and its cutoff law

物理学报.2015, 64(12): 124207 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.124207>

KTP 倍频器件温度适应性扩展研究

Study on temperature adaptability extension of KTP frequency-doubling device

物理学报.2015, 64(9): 094205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.094205>

空气中等离子光栅诱导探测光丝三次谐波辐射放大的实验研究

Efficient generation of third harmonic radiation of air filament induced by plasma grating

物理学报.2014, 63(18): 184206 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.184206>

专题: 超快强激光驱动的原于分子过程

分子轨道高时空分辨成像*

祝晓松¹⁾ 张庆斌¹⁾ 兰鹏飞^{1)†} 陆培祥^{1)2)‡}

1)(华中科技大学物理学院, 武汉光电国家实验室, 武汉 430074)

2)(武汉工程大学, 光学信息技术实验室, 武汉 430205)

(2016年9月18日收到; 2016年10月21日收到修改稿)

在超短激光脉冲的激发下, 原子分子会发生强场阈上电离、高次谐波辐射等高阶非线性的强场物理过程. 通过对这些过程中产生的光、电子信号的分析, 可以实现对原子分子结构及其超快动力学过程同时具有埃量级空间分辨和亚飞秒量级时间分辨的探测, 为人们在极端条件下研究微观世界的物质结构和基本物理过程提供了强大的工具. 自2004年发展起来的基于分子高次谐波的分子轨道层析成像方法, 可以实现对分子轨道波函数本身的高时空分辨层析成像. 这将帮助人们更加深刻地认识化学反应过程的物理本质. 本文介绍了分子轨道层析成像的理论方法, 并综述了十余年来分子轨道层析成像理论的新进展.

关键词: 飞秒激光, 分子高次谐波, 分子轨道, 层析成像

PACS: 42.65.Ky, 33.20.Xx, 31.15.at

DOI: 10.7498/aps.65.224207

1 引言

自从1960年第一台激光器问世以来, 激光技术的发展带来了现代科学许多突破性和革命性的进展, 新的现象和规律不断被发现, 新的应用也在科研和生产领域中不断涌现. 其中, 超短激光脉冲的出现为人们实现对化学反应的实时观测、深入研究化学中的原子分子超快动力学过程提供了可能. 20世纪80年代以来, 伴随超短激光脉冲技术发展起来的光学抽运探测法^[1, 2], 首次使得人们对物质世界的研究进入到飞秒(fs, 10^{-15} s)时间尺度. 然而, 传统的抽运探测方法缺乏空间分辨能力. 20世纪末, 人们利用X射线衍射以及电子衍射的方法成功实现了分子尺度(埃量级)空间分辨的探测技术^[3]. 然而其时间分辨能力受限于X射线和电子射线的脉冲宽度. 目前, 飞秒级X射线脉冲只能通过自由电子激光器获得, 研究成本极高. 而超快电子衍射目前最高的时间分辨能力为百飞秒量

级^[2-5], 尽管其已经在材料内部超快动力学过程的研究上取得了重要成果, 然而离分子轨道研究所需的数十飞秒乃至数飞秒时间分辨的要求仍有很远距离.

近年来, 超快激光技术的发展和强场物理的研究为高时空分辨探测提供了新的手段. 超强超快激光与原子、分子相互作用会发生强场物理过程并发射出光、电子信号, 这些信号中包含了目标原子、分子外层轨道的信息, 对光、电子信号进行分析可以提取出原子、分子结构^[6-8]及其超快动力学^[9,10]的信息. 相较于传统的探测手段, 基于超短激光脉冲驱动下的原子、分子强场物理过程的探测手段可以同时实现埃空间尺度和亚飞秒时间尺度的分辨. 由于基于强场物理过程的高时空分辨探测具有极大的学术价值和应用潜力, 国际上众多小组已在这一领域开展了研究和探索^[11,12]. 2004年, 加拿大国家研究委员会的Itatani等^[13]首次提出了基于分子高次谐波辐射的分子轨道层析成像

* 国家自然科学基金(批准号: 11404123, 11234004, 61275126, 11422435, 11574101)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: pengfeilan@mail.hust.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: lupeixiang@mail.hust.edu.cn

(molecular orbital tomography, MOT) 方法, 并重构成了 N_2 分子最高占据分子轨道 (highest occupied molecular orbital, HOMO) 的图像. 不同于诸如 X 射线衍射、电子散射等方法只能得到分子 (总的) 电子密度分布, MOT 方法利用了强场物理过程中特有的“自探测”机理并结合了医学计算机断层扫描 (computed tomography, CT) 中的重构思想, 实现了对单个最高占据分子轨道的重构 (即同时包含波函数振幅和相位). 2010 年, 在法国原子能委员会的 Haessler 等^[14] 的实验中同时实现了对 N_2 分子最高占据分子轨道和次最高占据分子轨道的重构. 由于 MOT 重构具有高的时空分辨率, 同时也预示着 MOT 具有对分子轨道演化过程进行实时观测的重要应用前景. 因此, 当 MOT 方法提出之后, 便激发了相关领域研究人员的广泛的研究兴趣. 同时, 由于最初提出的 MOT 理论中仍存一些有待讨论的问题^[15–18], 因而也引起了激烈的争论. 在过去的 12 年里, 人们也不断地发展新的理论和方法来克服 MOT 中存在的问题、简化实验难度、改进成像效果、拓展其应用范围.

本文首先介绍 MOT 的基本原理, 并进一步详细介绍人们为发展 MOT 方法做出的各种努力及取得的成果. 全文安排如下: 第二部分简要介绍超短激光脉冲驱动下的强场物理过程, 讨论其特点; 在此基础上, 第三部分介绍 MOT 的理论和方法; 第四部分着重讨论实现不对称分子轨道进行成像的相关问题和方法; 第五部分介绍突破平面波近似的 MOT 新方法. 在本文中如无特别说明, 则采用原子单位 (atomic units, a.u.).

2 超短激光脉冲驱动下的强场物理过程

2.1 强场过程及半经典再碰撞模型

自 1960 年 Maiman 制造出了第一台激光器, 脉冲激光技术就朝着脉宽更窄、峰值功率更高的目标不断前进. 激光技术的出现引发了现代光学的飞速发展, 与此同时, 新的激光技术也不断涌现. 调 Q ^[19] 和锁模技术^[20] 使激光脉宽达到了皮秒量级. 经过 20 世纪 70 到 80 年代的瓶颈期, 随着钛宝石激光增益介质的发现, 以及克尔透镜锁模技术 (Kerr-lens modelocking, KLM)^[21] 和啁啾脉冲放大技术 (chirped pulse amplification, CPA)^[22]

的出现, 超快激光技术迎来了飞速的发展. Yaman 等^[23] 实现了 3.4 fs 的激光脉冲输出, 随后进一步将脉宽压缩至 2.6 fs^[24], 这接近于 800 nm 红外激光的单光周期极限. 目前激光的峰值功率密度能达到 10^{21} W/cm², 其产生的局部库仑场为 10^{11} V/cm, 相当于氢原子第一玻尔轨道上所受到的库仑场强度的 170 倍^[25]. 可见, 飞秒激光作用于原子分子的光强已经超过了其内部库仑场对应的光强. 因此, 当超快飞秒激光与原子或分子相互作用时会出现一系列高阶非线性的非微扰过程, 例如高次谐波辐射、非线性汤姆孙散射、强场阈上电离、非次序双电离^[26,27] 等.

阈上电离 (above-threshold ionization, ATI) 指的是在超快激光的作用下原子分子吸收了多于电离所必需的光子发生电离的现象^[28]. Agostini 等^[29] 在 Xe 原子电离实验中首次观测到“ATI 峰”结构: 在得到的光电子能谱上出现等间距的峰, 这些峰与峰间距等于驱动激光的光子能量. 一开始人们曾试图用高阶的非微扰理论对这一现象加以解释, 然而, 大量的实验观测表明这种 ATI 峰的结构比微扰图像要复杂得多^[30–33]. 如图 1 (a) 所示, 一个典型的 ATI 的光电子能谱通常分为两部分: 一个快速衰减的低能部分和紧随其后的高能平台区^[34]. 这个平台区的截止能量高达 $10U_p$, 其中,

$$U_p = \frac{e^2 E_0^2}{4m\omega_0^2}, \quad (1)$$

为有质动力能, 它等于自由电子在激光场的驱动下运动时具有的平均动能. 式中, e 和 m 分别表示电子的电荷与质量, E_0 和 ω_0 为电场的振幅及角频率.

当超快激光与原子分子相互作用时, 也会发生高次谐波辐射 (high-order harmonic generation, HHG) 的现象. 在高次谐波光谱中也呈现出类似的频率为驱动激光频率整数倍的谐波的峰. 所产生的高次谐波的频率可以达到驱动光频率的数十倍甚至上百倍, 其截止频率为 $3.17U_p + I_p$, 其中 I_p 是目标原子分子的第一电离能. 如图 1 (b) 所示, 典型的高次谐波谱由三个部分组成: 在低阶微扰区谐波强度随着阶次的增加快速减小, 随后在平台区的谐波强度保持相对稳定, 最后在截止区谐波强度迅速衰减. 这个现象无法用微扰论进行解释.

此外, 人们发现当测量强场电离过程中离子产率和光强的关系时, 单电离的离子产率可以很好地利用 Ammosov-Delone-Krainov (ADK) 理论^[38] 进

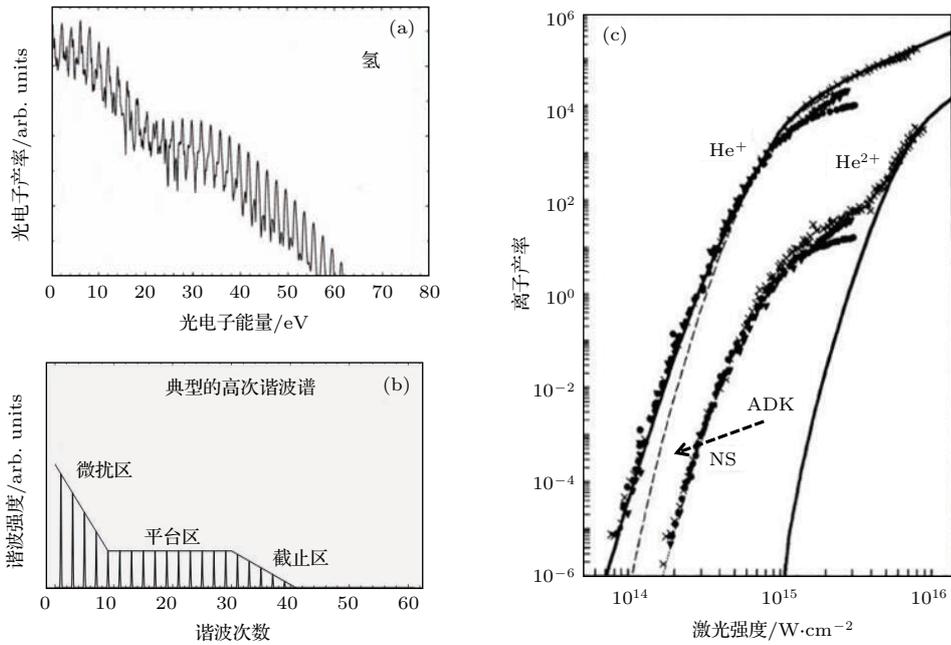


图1 (a) 典型的 ATI 谱 [35]; (b) 典型的高次谐波光谱 [36]; (c) 单电离和双电离产率随光强的依赖关系, 在双电离产率曲线中可以看到明显的膝盖结构 [37].
 Fig. 1. (a) Typical ATI spectrum [35]; (b) typical HHG spectrum [36]; (c) single and double ionization yield as a function of laser intensity. Prominent knee structure can be seen in the yield of double ionization [37].

行解释, 但是双电离的离子产率比 ADK 理论的预测高几个量级 [39,40]. 图 1 (c) 所示为对氦气的实验结果, 由于双电离的产率得到了大幅提高, 离子产率与光强的关系曲线呈现膝盖状结构. 导致这种双电离产率大幅提高的过程被称为非次序双电离 (nonsequential double ionization, NSDI). NSDI 同样无法用微扰论进行解释, 需要建立相关的强场理论.

强场物理现象的核心过程可以由半经典再碰撞模型解释 [41,42]. 如图 2 所示, 其包含三个主要阶段: 1) 目标原子分子中的电子在强激光场的作用下被电离到连续态; 2) 在连续态的电子会在激光场的作用下继续被加速, 当激光场反向的时候电子被拉回母核附近; 3) 返回的电子以特定的动能与母核离子发生再碰撞过程. 因此, 这一模型也常被称作“三步模型”.

在再碰撞过程中, 如果电子与母核发生弹性碰撞形成一个再散射电子, 这个再散射电子在激光场的作用下继续被加速并获得很高的能量, 最终以高能光电子的形式被探测到. 这一过程解释了高阶 ATI 信号是如何产生的, 如果再碰撞电子回碰时发生的是非弹性碰撞, 回碰的电子会把一部分能量传递给母核中的其他电子并导致该电子被电离, 从而产生双电离信号, 这就是 NSDI 过程 [43-46]. 而如

果再碰撞的电子回到母核附近时与母核发生复合, 连续电子回到基态, 会将电离和加速过程中积累的额外的能量以高能光子的形式释放出来, 这就产生了高次谐波信号. 如果采用多光周期的驱动脉冲, HHG 过程具有周期性. 对于在激光偏振方向上具有空间对称性的目标原子分子而言, 频率为驱动激光频率 ω_0 奇数倍的谐波会得到干涉增强, 而频率为驱动光频率 ω_0 偶数倍的谐波会干涉相消, 从而导致谐波谱中只能观测到奇次谐波. 当目标分子不

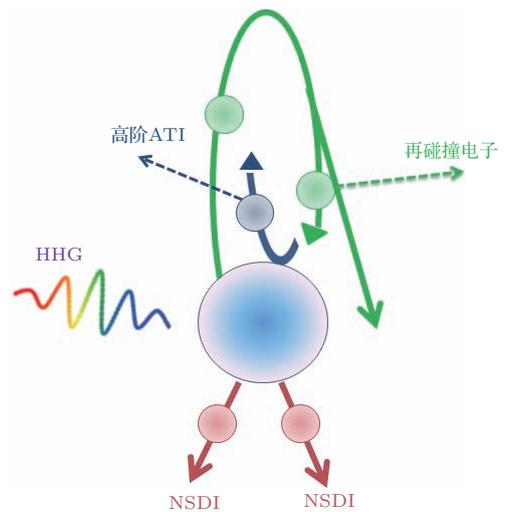


图2 强场再碰撞过程示意图

Fig. 2. Illustration of the strong-field recollision processes.

具备空间对称性时, 奇偶次谐波会同时出现. 基于高次谐波谱的特点, HHG 是目前突破阿秒壁垒产生阿秒脉冲极具竞争力的方案^[47,48]. 通过各种手段操控 HHG 过程中的电离^[49-54]、加速^[55-58]、回复^[59,60]三个步骤可以有效实现单阿秒脉冲的产生.

2.2 强场“自探测”机理

半经典再碰撞模型不仅很好地解释了这些强场物理现象是如何产生的, 准确地预测了 ATI, HHG 等强场现象的性质, 这一模型还给了人们一个重要的启示: 在超快激光的驱动下原子分子发生强场物理现象中, 连续电子返回与母核发生碰撞并发射出光、电子信号的过程, 实际上是一次对原子分子母核的“自探测”过程. 为了了解微观物质世界的结构, 人们最常用的手段就是用高速的粒子, 比如电子, 去碰撞研究目标. 通过探测和分析碰撞发生之后产生的散射信号, 人们可以获取关于未知微观结构的信息. 这一思想可以追溯到 100 多年前的卢瑟福 α 粒子散射实验. 然而传统的电子散射实验中, 入射的电子与被探测的目标之间没有确定的相位关系, 是一种非相干的探测方法. 因而传统的散射方案只能获得研究目标的“强度”信息(比如电子概率密度分布等), 并不能获得目标的“相位”信息.

而在强场现象中, 连续电子返回与母核发生碰撞也是一次探测过程. 所不同的是, 这里入射的电子是在先前的电离过程中从母核逃逸出去的. 与此同时, 再碰撞之前连续电子在激光场驱动下的加速过程也是确定的. 因此, 在强场再碰撞过程中, 入射的连续电子波包与母核的束缚态波函数之间具有确定的相位关系. 也就是说, 强场自探测机理是一种“相干”探测机理. 通过对强场光、电子信号的解析, 人们可以同时获得研究对象的振幅和相位信息. 这也正是为什么基于 HHG 的分子轨道层析成像方法可以对分子轨道的波函数本身(而不是电子密度分布)实现成像的理论基础.

强场自探测机理的另一个优势是具有更高的时间分辨率. 在通常的电子散射实验中, 时间分辨率取决于电子脉冲的宽度, 而这一宽度很难做到百飞秒量级以下. 而在强场自探测机理中则完全不同, 其时间分辨率由再碰撞电子的动能/动量与再碰撞时间之间的色散关系决定. 图 3 是通过求解经

典牛顿方程计算得到的在 \sin 形式单色激光场驱动下, 电子在发生再碰撞时所具有的动能与电离、再碰撞时间的对应关系. 从中可以看到, 在一个驱动光的光周期内, 具有特定动能的电子与母核在特定的时刻发生两次再碰撞. 这两组不同的再碰撞时刻分别对应了两组不同的连续电子轨迹, 根据其加速过程所需时间的长短分别被称为短轨道和长轨道. 对于短轨道而言, 再碰撞电子的动能随时间的增加而单调增加; 对长轨道而言, 再碰撞电子的动能随时间的增加而减小.

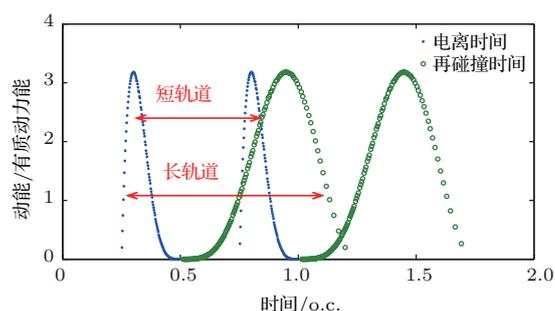


图 3 再碰撞电子的动能与电离、再碰撞时间的对应关系
Fig. 3. Relation between the kinetic energy and the ionization/recollision times of the recolliding electron.

值得注意的是, 在强场过程中以不同动能(即动量)入射的电子发生再碰撞之后发射出的光子、电子具有不同的能量、动量, 从而贡献在高次谐波谱、光电子动量谱上的不同位置. 这就意味着在不同时刻进行“自探测”发出的光、电子信息映射到了谐波光谱、光电子谱上的不同频率、动量上. 因此, 采用强场自探测机理的时间分辨率由探测谐波光谱、光电子谱的频率、电子动量的分辨率决定, 可以很容易地达到亚光周期量级. 对于常用的 800 nm 钛宝石飞秒驱动激光而言, 时间分辨率达到亚飞秒量级.

图 4 以 HHG 为例更加具体地描述时间分辨与频率分辨之间的关系. 根据强场再碰撞模型(三步模型), 电子在激光场达到峰值后电离到连续态, 经由激光场的加速, 最终在激光场反向后被拉回到母核附近与母核发生复合并辐射高次谐波. 如图 4 所示, 这些回复的轨道可以分成长轨道和短轨道. 大量的研究工作已经表明, 通过控制高次谐波产生时的相位匹配条件, 可以滤除长轨道(或者短轨道)的贡献^[61-63]. 当只有短轨道贡献产生高次谐波时, 回复电子动能与回复时刻(即进行“自探测”并发射谐波信号的时刻)一一对应.

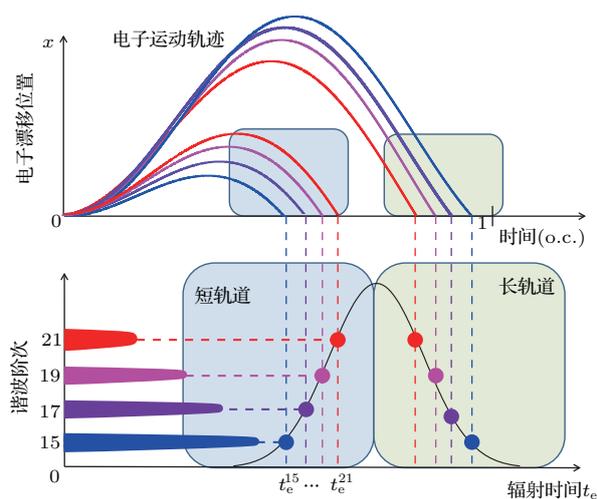


图4 利用HHG实现高时间分辨的示意图

Fig. 4. Illustration for the high temporal resolution in HHG.

根据能量守恒定律, 当 t_e 时刻具有动能 $E_k[t_e]$ 的连续电子向母核回复产生高次谐波辐射, 所释放的光子能量满足 $\omega' = E_k[t_e] + I_p$. 这意味着探测到的频率为 ω 的谐波信号中包含有母核在 t_e 时刻的信息. 而母核在另一个时刻 t'_e 的信息则包含在另一个频率 $\omega' = E_k[t'_e] + I_p$ 谐波信号中. 前面已经说明, 考虑到激光场的周期性和对称性, 对称分子所产生的高次谐波谱中只有奇次谐波的信号. 比如对于探测到的第 15, 17, 19, 21 阶谐波信号, 相邻的信号之间的频率间隔为两倍的驱动光频率 ω_0 , 即对谐波谱探测的频率分辨率为 $2\omega_0$. 对于常用的 800 nm 驱动激光, 光强为 $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 其对应的时间分辨率为 100 as (as, 10^{-18} s) 左右 [7]. 因此, 通过收集和解析 15, 17, 19, 21 阶谐波信号, 人们就可以实现在 $t_e^{15}, t_e^{17}, t_e^{19}, t_e^{21}$ 等间隔仅为 100 as 时刻目标原子、分子结构和动力学过程的实时探测.

实际上, 强场自探测的过程也可以视作是一次抽运-探测的过程. 与传统的抽运探测不同的是, 在强场过程中电离即是“抽运”过程, 而再碰撞是“探测”过程. 抽运-探测间的时间间隔为特定回碰能量电子在加速过程中所需要的时间. 这一时间由激光场驱动下的连续电子的轨迹所决定, 并且可以通过调控驱动激光场的形式进行精确控制 [64].

2.3 强场过程在高时空分辨探测中的应用

强场物理过程已广泛地在原子、分子结构及其超快动力学探测中得到应用, 这些方法的原理可以大致概括为两种机理: 一种是“自探测”机理, 另外

一种称作“超快激光隧穿扫描机理”.

前面已经介绍, 在强场再碰撞过程中, 连续电子波包向母核进行再碰撞的过程就是一次“自探测”过程, 回碰的连续电子波包本身即是对原子分子结构及超快过程进行高时空分辨探测的有力工具. 2002年, Lein 等 [6,65] 指出当连续电子波包向双核的 H_2^+ , H_2 分子回复产生高次谐波时, 由于其波前分别到达两个核的距离不同, 导致从两个核贡献的高次谐波信号之间存在一定的相位差. 当这个相位差为 π 时, 就会导致谐波信号干涉相消, 在谐波谱的特定频率处表现出一个干涉极小. 这一现象相当于分子世界的杨氏双缝干涉实验, 被称为 HHG 的双中心干涉现象, 并于 2005 年被日本和意大利的实验小组在 CO_2 分子的 HHG 中观测到 [66,67]. 除了双中心的分子, 多中心的分子 HHG 中也同样存在这样的干涉现象 [68,69]. 通过探测谐波谱中的干涉极小的位置, 可以提取分子核间距等结构信息. 进一步, 利用自探测现象的时间分辨本领, 可以实现对分子核运动过程的探测 [7,70]. 对于异核的双原子分子, 双中心干涉极小携带有更加丰富的结构信息 [71,72]. HHG 的偏振特性和目标分子轨道的结构有密切的关系 [73,74], 因此通过考察分子 HHG 的偏振特性也可以从中获取关于分子轨道结构的信息 [75,76]. 另外, 从高次谐波谱的结构特征中, 可以获取驱动激光脉冲的参数信息 [77].

此外, 回碰电子与母核碰撞时产生的再散射电子中同样携带有分子结构的信息, 探测再散射电子也是一种获取分子结构信息的有效途径. 比如, 2008年, Meckel 等 [8,78] 指出通过探测高能区域的散射光电电子动量谱并分析其中的双中心干涉, 可以获取分子的核间距信息. 这种方法被称作激光诱导电子衍射 (laser-induced electron diffraction, LIED). 由于这一方法也是利用的自探测过程, 因此同样也可以实现对核运动过程的高时间分辨 [79,80]. Huisman 等 [81] 提出了利用隧穿电离的电子波包作为参考波、再散射电子波包作为干涉波对外层轨道进行全息成像的方法, 从直接电子波包和散射电子波包的干涉图样中获取目标原子分子的信息 [82-84]. 基于自探测机理的另一个典型例子就是本文接下来将要着重介绍的分子轨道层析成像. 对于自探测机理而言, 其时间分辨率由回碰能量-时间的对应关系以及对频率、动量分辨率决定, 可以达到百阿秒量级. 空间分辨率由回碰电子波包

的德布罗意波长决定, 在典型的强场实验中, 可以达到亚埃量级.

“超快激光隧穿扫描机理”则是利用了分子隧穿电离率与分子轨道结构之间密切的依赖关系 [85,86], 通过扫描分子在不同方向上的电离率来获取分子轨道电荷密度分布信息. 这一原理和隧道扫描显微镜的原理十分类似, 因此可以形象地将采用该机理的方法也称作“激光扫描隧道显微镜” (laser scanning tunneling microscope) 方法 [87].

基于超快激光隧穿扫描机理, Kamta 和 Bandrauk [88] 提出了一种通过探测电离率实现对分子轨道结构探测的办法. 首先利用线偏激光驱动排列的目标分子发生电离, 并改变驱动激光场的偏振方向探测分子在不同方向上的电离率. 由于分子的电离率角分布与其分子轨道的形状具有十分密切的关系, 因此可以从分子电离率的角度依赖关系中获得分子轨道的结构. 采用这种方法, 在实验中每次排列测量只能取得一个角度下的电离率, 需要进行多次测量才能得出完整的分子轨道电离率角分布, 实现上比较繁琐, 而且多次测量会引入实验条件波动产生的误差. 针对这一问题, 可以利用圆偏振光不断旋转的电场矢量进行扫描, 通过探测圆偏光驱动下得到的分子光电子动量分布, 可以实现对分子轨道的单发成像 [89,90]. 此外采用圆偏驱动光可以实现对不对称分子的结构探测, 而采用线偏光却不能探测分子的不对称结构 [91]. 在文献 [8] 中, 从低能区域的直接电子的光电子动量分布中可以提取目标分子轨道的结构信息, 这也基于隧穿电离扫描机理. 最近的研究还发现, 原子在圆偏光驱动下的电离概率以及光电子动量分布和原子轨道的角动量有关 [92,93], 因此探测原子分子在圆偏光场激发下的光电子动量谱也将有助于人们了解原子分子体系中的环形电流等更加丰富的信息 [94,95].

3 分子轨道层析成像

3.1 计算机断层扫描的基本原理

MOT 的主要思想和医学上的 CT 是类似的, 了解 CT 的基本原理有助于更好地理解 MOT 的基本思想. 如图 5 所示, 一束光以 I_0 的强度以角度 θ 入射某不均匀介质 (该介质的内部密度函数为 $f(x, y)$), 光在介质中传播时会发生衰减, 衰减系数为 $\mu(x, y)$, 该系数是一个与介质的内部密度函数

$f(x, y)$ 有关的量. 光束光强的衰减可以描述为

$$I = I_0 e^{-\mu s}, \quad (2)$$

其中, I_0 表示输入射光的光强, I 表示透射光的光强, s 是光传播方向上的距离. 对于上式积分可以得到

$$\int \mu(x, y) ds = -\ln \left(\frac{I}{I_0} \right). \quad (3)$$

因此在测得了入射光和透射光强度的情况下, 有可能得到光在介质中传播的衰减系数 $\mu(x, y)$, 从而由此得到了介质的内部密度函数 $f(x, y)$. 值得注意的是 (3) 式左边是沿着光入射方向的积分, 由此得到的是 μ 的分布函数在入射方向 θ 上的投影. 要得到完整的介质的内部密度函数 $f(x, y)$, 可以通过改变光束的入射角度以获得衰减系数在各个方向上的投影信息.

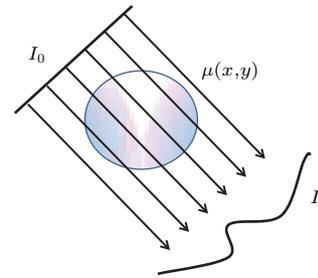


图 5 计算机断层扫描平行束扫描模式示意图
Fig. 5. Illustration for the principle of CT with parallel beam scanning mode.

得到了 $f(x, y)$ 在各个方向上的投影后, 要完成对于介质的断层扫描成像还需要用到傅里叶切片定理 (projection-slice theorem) [96]. 傅里叶切片定理描述的是对于一个坐标空间的函数 $f(x, y)$, 先对它在某个给定方向进行投影运算, 再对其投影进行一维傅里叶变换的结果, 等于先对它进行二维傅里叶变换再对傅里叶空间的分布取该给定方向上的切片的结果 (如图 6 所示). 这一定理可以表示成 $F_1 P_m = S_m F_2$, F 代表傅里叶变换运算, S 表示切片操作, P 表示投影操作. 也就是说将我们从上述过程中得到的物体在各个方向的投影进行一维傅里叶变换, 这个傅里叶变换的结果就是该物体的二维傅里叶变换的切片. 将所有这些切片组合在一起就得到了对这个物体傅里叶空间的二维采样, 记作 $F(u, v)$.

最后对于得到的物体在傅里叶空间的图像进行逆傅里叶变换, 就可以得到这个物体在坐标空间的图像.

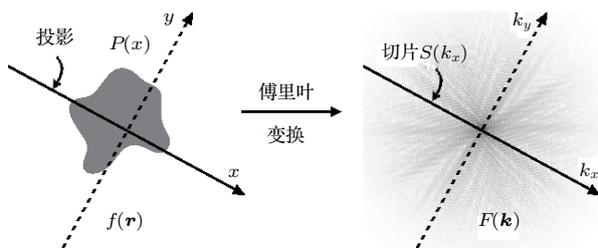


图6 傅里叶切片定理示意图 对坐标空间的函数 $f(\mathbf{r})$, 先求它在给定方向上的投影 $p(x)$ 再进行一维傅里叶变换的结果, 等于先对它进行二维傅里叶变换再对傅里叶空间分布 $F(\mathbf{k})$ 取该特定方向上的切片 $s(k_x)$ 的结果: 其中 F 表示傅里叶变换运算, S 表示切片操作, P 表示投影操作^[97]

Fig. 6. Schematic for projection-slice theorem. The one-dimensional Fourier transform of the projection of $f(\mathbf{r})$ on particular direction equals to the slice in the same direction in the two-dimensional Fourier transform $F(\mathbf{k})$. F stands for the Fourier transform, S stands for the slice, P stands for the projection^[97].

$$f(x, y) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} F(u, v) e^{j2\pi(u x + v y)} du dv. \quad (4)$$

由于要进行不同角度的扫描, 使用极坐标系可以使计算更加简化. 令

$$u = \omega \cos \theta, \quad v = \omega \sin \theta, \quad (5)$$

于是有

$$f(x, y) = \int_0^{2\pi} \int_0^{\infty} F(\omega, \theta) e^{j2\pi(x \cos \theta + y \sin \theta)} \omega d\omega d\theta. \quad (6)$$

根据对称性 $F(\omega, \theta + 180) = F(-\omega, \theta)$, 进一步得到

$$f(x, y) = \int_0^{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} F(\omega, \theta) e^{j2\pi(x \cos \theta + y \sin \theta)} |\omega| d\omega d\theta. \quad (7)$$

将测量可得各个方向的投影的一维傅里叶变换的结果 $S_{\theta}(\omega)$ 代入(7)式得到CT成像公式:

$$f(x, y) = \int_0^{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} S_{\theta}(\omega) e^{j2\pi(x \cos \theta + y \sin \theta)} \omega d\omega d\theta. \quad (8)$$

由于MOT的思想与CT十分类似, 因此后面我们可以看到上述公式与MOT的公式具有很大的相似性.

3.2 分子轨道层析成像原理

MOT是利用高次谐波产生过程中的“自探测”现象来实现对于分子轨道的探测. 在高次谐波产生

过程中, 连续态电子回到母核附近向基态跃迁时, 会将多余的能量以高次谐波的形式释放出来, 释放出的高次谐波信号中包含有被探测分子的轨道信息. MOT的理论首先由Itatani等在2004年提出. 在他们提出的成像理论中, 近似地将连续态电子波函数作为平面波处理. 后面将看到巧妙地利用这一近似, 可以在目标分子轨道与实验上得到的跃迁偶极矩之间建立简单的数学关系. 在这一关系的基础上, 结合与CT重构算法类似的重构算法即可实现对分子轨道的重构. 本节将解释MOT的原理, 说明如何从探测到的高次谐波信号中提取所需的跃迁偶极矩信息并实现对目标分子轨道的重构.

3.2.1 平面波近似

根据半经典三步模型, 高次谐波是连续电子在激光场的作用下回到母核附近并向母核回复时产生的. 因此高次谐波辐射的性质主要取决于电子从连续态向基态的辐射跃迁过程. 其中的基态正是所要成像的目标, 因而对连续电子波包的描述显得至关重要. 对连续电子波包的描述决定了人们是否可以准确地描述高次谐波的辐射特性, 以及反过来是否可以准确地从高次谐波信号中重构出基态波函数.

在Itatani最初所提出的理论中(以及随后大多数的研究工作中)都将连续电子波包视作平面波, 即

$$\Psi_C(\mathbf{r}, t) = \sum_{\mathbf{k}} W(\mathbf{k}) \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \times \exp\left(-i\frac{k^2}{2}t\right), \quad (9)$$

其中 W 表示连续电子波包的复振幅.

对于连续电子波包采用平面波近似具有一定的物理依据. 如图7所示, 电子波包在800 nm的激光场作用下运动半个光周期, 由于横向扩散效应导致的电子波包展宽 ($1/e$ 宽度) 经过计算已达到10 Å左右. 这个宽度比所研究的分子的空间尺度(1 Å左右, 如图7中一对黑色平行线所示) 要大得多. 因此在回复过程中, 从分子角度回复电子波包可以视为平面波.

在平面波近似下, 回复偶极矩可以表示为

$$d_{\alpha} = \langle \Psi_0 | \alpha | \Psi_C \rangle \quad (10)$$

$$= \iint dx dy \Psi_0^{2D} \alpha \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \quad (11)$$

$$= \underset{\substack{x \rightarrow k_x, \\ y \rightarrow k_y}}{Ft} [\Psi_G \alpha]_{\parallel \mathbf{k}}, \quad (12)$$

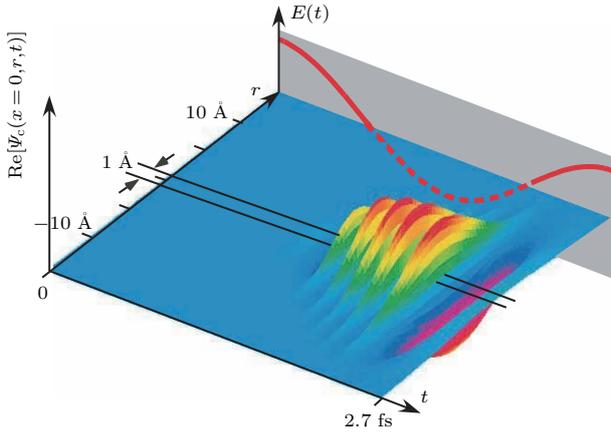


图7 在激光场驱动下连续电子波包随时间的演化 [13]

Fig. 7. Evolution of the continuum wavepacket in time driven by laser field [13].

其中, α 为特定偏振方向上的坐标 (如 $\alpha = x$ 或 y),

$$\psi_0^{2D}(x, y) = \int \psi_0(x, y, z) dz.$$

从 (11) 式可以看出回复偶极矩实际上可以看作分子轨道与坐标的乘积函数 $\psi_0^{2D}\alpha$ 在 k 方向上的投影的一维傅里叶变换. 从 (12) 式可以看到, 它又等于 $\psi_0^{2D}\alpha$ 二维傅里叶变换的切片. 因此通过探测分子在各个方向上的回复偶极矩, 再将这些偶极矩组合起来, 就可以得到与分子轨道相关函数的二维傅里叶变换. 之后通过傅里叶逆变换可以得到目标分子轨道. 从 (11) 式到 (12) 式的推导实际上就是对傅里叶切片定理的推导.

在连续态平面波近似的基础上, 可以看到跃迁偶极矩和目标分子轨道之间可以建立起十分简洁的傅里叶变换关系. 这也是 MOT 方法的巧妙之处. 然而, 作为最初 MOT 方法的基础, 平面波近似的采用也受到了很多的质疑, 关于 MOT 的理论基础是否牢固自其提出以来就存在很多争议. 这一点我们将在 3.4 节讨论, 并介绍克服平面波近似的新方法.

3.2.2 从高次谐波谱中提取回复偶极矩

由于回复偶极矩在 MOT 理论中扮演了重要的角色, 因此如何从高次谐波中提取出回复偶极矩也就显得尤其重要. 如图 8 所示, 设驱动激光沿 z' 轴传播, 其偏振方向 x' 与 x 轴的夹角为 θ (即 θ 为分子的排列角). (x', y', z') 为实验室坐标系, (x, y, z) 为分子坐标系. 分子高次谐波电场 E_{HHG} 由连续态和基态之间的含时跃迁偶极矩 $\mathbf{D}(t, \theta)$ 决定:

$$\mathbf{D}(t, \theta) = \langle \psi_0(\mathbf{r}', t; \theta) | \mathbf{r}' | \psi_c(\mathbf{r}', t) \rangle + \text{c.c.} \quad (13)$$

将其变换到频域上可以得到

$$\mathbf{D}(\omega, \theta) = \int_{-\infty}^{\infty} W(k) \langle \psi_0(\mathbf{r}', t; \theta) | \mathbf{r}' | e^{ikx'} \rangle \times \delta\left(\omega - I_p - \frac{k^2}{2}\right) dk. \quad (14)$$

又因为

$$E_{\text{HHG}}(\omega, \theta) \propto \mathbf{D}(\omega, \theta), \quad (15)$$

所以

$$E_{\text{HHG}}(\omega, \theta)$$

$$\propto W[k(\omega, \theta)]\mathbf{d}(\omega, \theta) + W[-k(\omega, \theta)]\mathbf{d}^*(\omega, \theta), \quad (16)$$

其中 $\omega = k^2/2 + I_p$. $\mathbf{d}(\omega, \theta) = \langle \psi_0(\mathbf{r}, t; \theta) | \mathbf{r}' | e^{ikx'} \rangle$.

结合 HHG 的半经典再碰撞模型, (16) 式具有明确的物理意义: $W(\omega, \theta)$ 反映了电离和加速过程对发生回复之前的连续电子波包复振幅的贡献, 而回复偶极矩 $\mathbf{d}(\omega, \theta)$ 则描述了第三步回复跃迁的过程. (16) 式包含有 k 取正值和负值的两项, 这是由于在激光场的作用下, 具有特定能量 $E_k = k^2/2$ 的电子可以从 $+k$ 和 $-k$ 两个反的方向回复贡献频率为的高次谐波. 值得注意的是, 此处的 \mathbf{k} 表示的是自由电子在激光场下加速所获得的动量. 很多研究表明, 在计算跃迁偶极矩 $\mathbf{d}(\mathbf{k}')$ 时, 所代入的 \mathbf{k}' 还应该包括电子进入势阱时库仑势的吸引对电子的加速作用, 即 $k'^2/2 = k^2/2 + I_p$, 从而 $\omega = k^2/2$ [6,98,99,100].

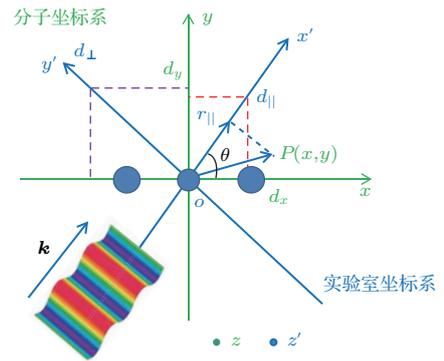


图8 MOT 重构算法中坐标系的定义 (x', y', z') 表示实验室坐标系, (x, y, z) 表示分子坐标系, θ 为 x 轴与 x' 轴的夹角; 电子在线偏振激光场的驱动下沿着 x' 轴运动, 并最终动量 \mathbf{k} 回复 [101]

Fig. 8. Definitions of frames for MOT reconstruction algorithm. (x, y, z) represents the molecular frame, (x', y', z') represents the laboratory frame. θ is the angle between the x axis and the x' axis. The electron moves along the x' axis driven by the linearly polarized laser field, and finally return with momentum \mathbf{k} [101].

这里先考虑研究的目标分子为对称分子(关于不对称目标分子将在第4部分专门讨论). 由于分子轨道的对称性, 偶极矩满足 $\mathbf{d}^*(\omega) = \pm \mathbf{d}(\omega)$, 其中+与-分别对应了分子轨道为反对称和对称的情况. 因此 $\mathbf{d}(\omega)$ 可以提取公因式得到 $E_{\text{HHG}}(\omega, \theta) \propto [W(k(\omega, \theta)) \pm W(-k(\omega, \theta))]\mathbf{d}(\omega, \theta)$. 进一步地, 由于激光场的对称性, 上式可以进一步合并, 最终得到两项相乘的形式^[12,102,103]:

$$E_{\text{HHG}}(\omega, \theta) \propto W(\omega, \theta)\mathbf{d}(\omega, \theta), \quad (17)$$

$W(\omega, \theta)$ 表示高次谐波产生的三步模型中电离和加速过程对于连续电子波包复振幅的贡献. 根据隧穿电离的理论, 原子分子的隧穿电离率只与电离能 I_p 有关, 与其轨道的具体结构无关(除了一个与 ω 无关的角度因子 $\eta(\theta)$, 这一项将被单独考虑). 所以对于具有相同电离能的原子分子, 电离过程对这一项的贡献是一样的. 而加速过程大多发生在距离核较远的区域, 因此在加速过程中核的库仑势对于电子波包的影响可以忽略不计. 综上, 对于电离能相同的原子分子 $W(\omega, \theta)$ 可以看作是一样的.

而(17)式的第二项 $\mathbf{d}(\omega, \theta)$ 是回复偶极矩, 其中包含有分子的轨道结构信息. 因此需要从谐波谱中将这一项提取出来, 利用这一项实现对于分子轨道结构的重构. 由于 $W(\omega, \theta)$ 对于具有相同电离能的原子分子是一样的, 因此可以选择一个和被探测分子具有相同电离能的参考原子. 这个参考原子的偶极矩是已知的. 这样在探测了这个原子所发射出的高次谐波信号后, 可以利用以下关系消掉 $W(\omega, \theta)$ 项得到分子的回复偶极矩

$$\frac{E_{\text{HHG}}^{\text{mol}}(\omega, \theta)}{E_{\text{HHG}}^{\text{ref}}(\omega, \theta)} = \eta(\theta) \frac{\mathbf{d}^{\text{mol}}(\omega, \theta)}{\mathbf{d}^{\text{ref}}(\omega, \theta)}. \quad (18)$$

在实验上, 需要分别探测分子和参考原子在相同驱动激光场下产生高次谐波的振幅 $A(\omega, \theta)$ 和相位 $\phi(\omega, \theta)$ 以获得分子的回复偶极矩:

$$\begin{aligned} & \mathbf{d}^{\text{mol}}(\omega, \theta) \\ &= \frac{1}{\eta(\theta)} \frac{A^{\text{mol}}(\omega, \theta)}{A^{\text{ref}}(\omega)} \exp[i\varphi^{\text{mol}}(\omega, \theta) - i\varphi^{\text{ref}}(\omega)]\mathbf{d}(\omega). \end{aligned} \quad (19)$$

此外, van der Zwan等^[104]还提出了一种通过联合测量HHG谱和ATI谱获取回复偶极矩的方法.

以上理论中用到的测量量都是假设分子在完全排列的情况下得到的, 即认为是单体分子的响

应. 然而, 在实验中只可能实现对分子气体的部分排列, 而这种非完全排列效应也会导致探测到的谐波谱发生变化^[105-107](反过来也提供了一种实时探测分子转动动力学的方法^[108]), 从而对分子重构结果造成影响^[109]. Vozzi等^[110]提出了一种利用迭代算法从不完整排列分子的谐波信号中提取分子的单体响应信息以实现分子轨道的重构方法.

3.3 重构算法

以上讨论介绍了利用高次谐波中的“自探测”现象实现MOT的具体方法. 首先探测目标分子和参考原子的高次谐波谱, 由于回复电子波包的振幅 $W(\omega, \theta)$ 是只与电离能有关的, 可以通过(19)式得到包含有分子轨道信息的回复偶极矩 $\mathbf{d}(\omega, \theta)$, 而回复偶极矩 $\mathbf{d}(\omega, \theta)$ 事实上和分子轨道结构的二维傅里叶变换的切片是相等的. 在实验上通过探测各个排列角下的谐波谱得到各个排列角下的回复偶极矩, 也就得到了分子轨道结构的二维傅里叶变换在各个方向的切片. 最后将各个方向的切片组合起来, 再对于组合的结果进行傅里叶逆变换就可以得到分子的轨道结构.

分子轨道重构的运算通常在分子坐标系下进行, 即

$$\Psi(x, y) = \frac{1}{\alpha} Ft^{-1}[d_{\alpha}(\omega, \theta)] \quad (\alpha = x, y). \quad (20)$$

在实验中测量得到的是在实验室坐标系下的谐波谱, 由此计算出的回复偶极矩也是在实验室坐标系下的 d_{\parallel} 和 d_{\perp} . 因此需要将 d_{\parallel} 和 d_{\perp} 分量投影到分子坐标系的 x, y 方向上以得到分子坐标系下的数据. 进一步, 可以得到离散化后的公式:

$$\begin{aligned} \Psi_x(x, y) &= \frac{1}{x} \sum_q \sum_j 2\omega_L \Delta \theta d_x(\theta_j, k_q) \\ &\quad \times \exp[ik_q(x \cos \theta_j + y \sin \theta_j)], \end{aligned} \quad (21)$$

$$\begin{aligned} \Psi_y(x, y) &= \frac{1}{y} \sum_q \sum_j 2\omega_L \Delta \theta d_y(\theta_j, k_q) \\ &\quad \times \exp[ik_q(x \cos \theta_j + y \sin \theta_j)], \end{aligned} \quad (22)$$

其中

$$\begin{aligned} d_x(\omega, \theta) &= d_{x'}(\omega, \theta) \cos(\theta) - d_{y'}(\omega, \theta) \sin(\theta), \\ d_y(\omega, \theta) &= d_{x'}(\omega, \theta) \sin(\theta) + d_{y'}(\omega, \theta) \cos(\theta). \end{aligned} \quad (23)$$

以上就是MOT的重构算法, 该公式是基于偶极矩与分子轨道的关系, 因此被称为长度形式

(length form) 的重构算法. 同理也可以基于偶极速度和分子轨道结构的关系得到速度形式 (velocity form) 的分子轨道重构算法. 分子的回复偶极速度定义为

$$d_{\alpha}^V(\omega; \theta) \propto -i \langle \Psi_G | \frac{\partial}{\partial \alpha} | \Psi_C(\theta) \rangle$$

$$= k_{\alpha} \iint dx dy \Psi_G \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) = k_{\alpha} \underset{y \rightarrow k_y}{\overset{x \rightarrow k_x}{Ft}} [\Psi_G]_{||\mathbf{k}},$$

可得

$$\Psi(x, y) = Ft^{-1} \left[\frac{d_{\alpha}(\omega, \theta)}{k_{\alpha}} \right] (\alpha = x, y). \quad (24)$$

按照同样的方法将实验测得的数据投影的分子坐标系离散化后可以得到:

$$\Psi_x(x, y) = \sum_q \sum_j 2\omega_L \Delta\theta \frac{d_x^V(\theta_j, k_q)}{k_q(\omega) \cos \theta} \times \exp[ik_q(x \cos \theta_j + y \sin \theta_j)], \quad (25)$$

$$\Psi_y(x, y) = \sum_q \sum_j 2\omega_L \Delta\theta \frac{d_y^V(\theta_j, k_q)}{k_q(\omega) \sin \theta} \times \exp[ik_q(x \cos \theta_j + y \sin \theta_j)], \quad (26)$$

其中

$$d_x^V(\omega, \theta) = d_{x'}^V(\omega, \theta) \cos(\theta) - d_{y'}^V(\omega, \theta) \sin(\theta), \quad (27)$$

$$d_y^V(\omega, \theta) = d_{x'}^V(\omega, \theta) \sin(\theta) + d_{y'}^V(\omega, \theta) \cos(\theta). \quad (28)$$

最后, 理论上重构得到的 Ψ_x 和 Ψ_y 是一致的, 但是由于在实际实验中得到的是离散的采样数据并且所探测的谐波频谱范围有限, 因此这两个结果并不一样. 通常对两个结果取平均来抵消误差以得到更好的结果. 最终的重构结果为

$$\Psi(x, y) = \frac{1}{2} [\Psi_x(x, y) + \Psi_y(x, y)]. \quad (29)$$

图 9(a) 是 2004 年 Itatani 等 [13] 最初的工作中基于长度形式重构算法得到的 N_2 的 HOMO, 图 9(b) 所示是“真实”的 N_2 的 HOMO, 通过已经成熟的从头计算方法计算得到. 对比图 9(a) 和图 9(b) 可以看出, MOT 方法在实验上很好地再现了 N_2 分子 HOMO 的振幅和相位. 在 2010 年, Haessler 等 [14] 利用 N_2 的 HOMO 和次高占据轨道具有相反的对称性的特点, 分别提取了偶极矩的实部和虚部从而实现的对于 N_2 的 HOMO 和次高占据轨道的同时成像. 2011 年, Vozzi 等 [110] 发展了 MOT 的方法, 并基于修正的速度形式重构算法的实现了对于 CO_2 分子轨道的成像.

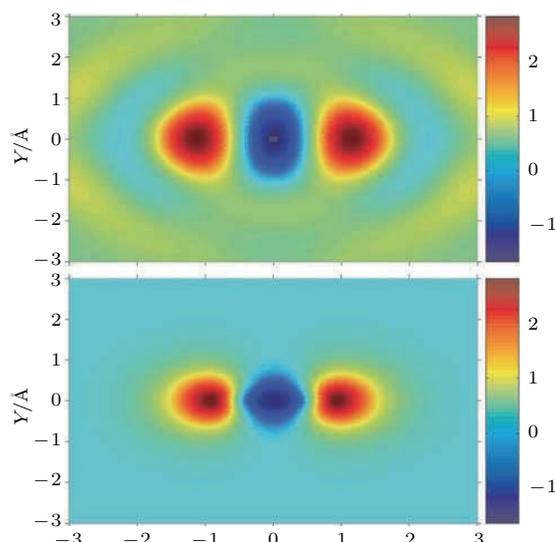


图 9 (a) 在 Itatani 等 [13] 的工作中实际得到的 N_2 HOMO 的重构结果; (b) 基于量子化学从头计算方法计算的 N_2 HOMO

Fig. 9. (a) The reconstructed HOMO of N_2 in the Itatani *et al.*'s work [13]; (b) the HOMO of N_2 obtained with the quantum chemistry *ab initio* method.

3.4 节面问题

3.4.1 重构算法中的节面问题

同样由于对傅里叶空间的采样限制, 长度形式的重构算法和速度形式的重构算法在结果上存在一定的差异, 如何在这两种形式中做出选择至今尚没有定论. 在实际应用中, 一般依据具体问题来进行选择. 例如当分子轨道具有节面(波函数值始终为 0 的面)且节面与坐标轴重合时, 使用长度形式的重构算法在 $x, y = 0$ 处就会发散(见 (21) 式和 (22) 式), 这被称为节面问题.

以乙炔分子为例, 图 10(a) 所示为利用高斯软件 [111] Hartree-Fork 方法得到的乙炔的 HOMO, 可以看出其在 x 轴方向上存在一个节面. 图 10(b) 和图 10(c) 分别是采用长度形式按照 (21) 式和 (22) 式选取在 x, y 方向上的偶极矩进行重构的结果. 可以看到当选取 y 方向上的偶极矩时, 不能得到正确的重构结果, 而当选取在 x 方向上的偶极矩时则可以得到正确的结果.

由于长度形式存在节面问题, 也可以选择采用速度形式的重构算法, 图 10(d) 是速度形式重构算法重构的结果. 可以看出采用速度形式避免了节面问题, 可是得到的轨道也出现了一定的畸变(在原有的结构上多出了两瓣的重复结构). 这是由于探测谐波频谱宽度的有限导致的, 这一限制导致的

畸变在速度形式中比在长度形式中更加显著. 这样的畸变导致无法利用 MOT 方法对未知分子轨道的结构进行正确的判断.

对于乙炔这样的分子轨道只有一个节面的分子而言, 如果按照长度形式选取平行于节面的偶

极矩分量也可以避免节面问题. 但是对于分子轨道同时存在两个节面的分子, 节面问题就无法通过选取某一个分量得以避免. 图 11 (a) 所示为利用 Hartree-Fork 方法得到的 CO_2 分子的 HOMO, 其具有相互垂直的一对节面. 这对节面构成了一个

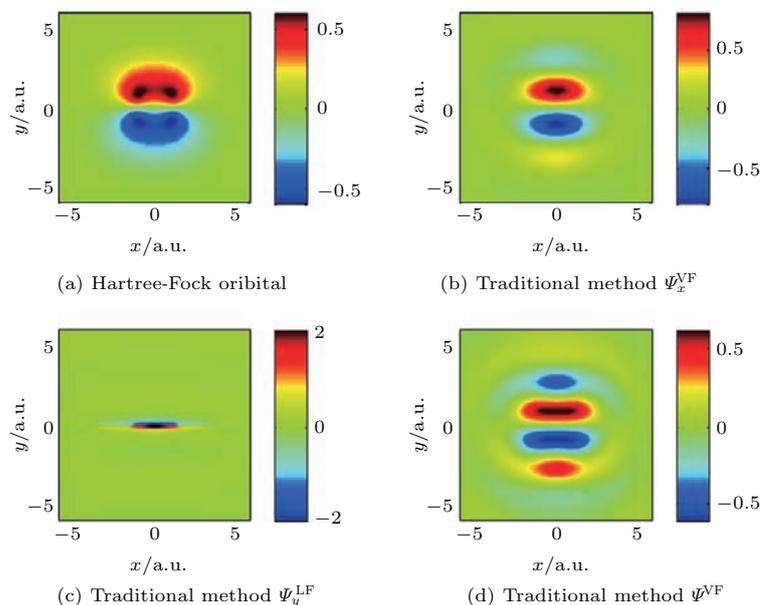


图 10 乙炔 HOMO 重构 (a) 利用 Hartree-Fork 方法得到的乙炔的 HOMO; (b) 长度形式重构算法得到的结果, 选取与节面平行的偶极矩; (c) 长度形式重构算法得到的结果, 选取与节面垂直的偶极矩; (d) 速度形式重构算法得到的结果 [101]
Fig. 10. Reconstruction of the HOMO of acetylene: (a) HOMO obtained with Hartree-Fork method; (b) reconstructed result with the dipole component parallel to the nodal plane and the length-form reconstruction algorithm; (c) reconstructed result with the dipole component perpendicular to the nodal plane and the length-form reconstruction algorithm; (d) reconstructed result with the velocity-form reconstruction algorithm [101].

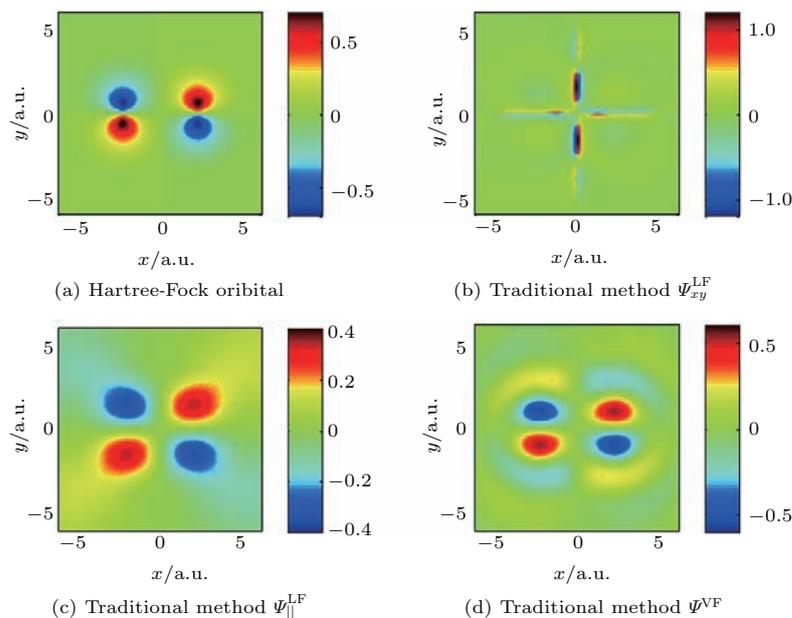


图 11 CO_2 HOMO 的重构 (a) 利用 Hartree-Fork 方法得到的 CO_2 的 HOMO; (b) 长度形式的传统重构算法得到的结果; (c) 长度形式新算法重构得到的结果; (d) 速度形式重构得到的结果 [101]
Fig. 11. Reconstruction of the HOMO of CO_2 : (a) HOMO obtained with Hartree-Fork method; (b) reconstructed result with the traditional length-form reconstruction algorithm; (c) reconstructed result with the new length-form reconstruction algorithm; (d) reconstructed result with the velocity-form reconstruction algorithm [101].

十字形的结构, 并将分子轨道分成了四瓣. 分子轨道的四个瓣形成了二重镜面反对称的图像^[101]. 对于这样的分子轨道如果基于长度形式进行重构, 将会得到如图 11 (b) 所示的不正确的结果. 即使只选用某一个分量进行重构, 也不可避免地会产生节面问题. 而如果采用速度形式的重构算法在结果中同样会出现严重的重复结构, 如图 11 (d) 所示.

3.4.2 节面问题出现的原因

若从现象上看, 节面问题的出现与分子轨道的节面密切相关, 它也因此被习惯上称作“节面问题”. 简单来讲, 从 (20) 式可以看出在进行重构运算时需要除以坐标 x, y . 在坐标轴上, x 或 y 的值等于 0, 这就会导致运算的结果趋于无穷大:

$$\lim_{x/y \rightarrow 0} \frac{Ft^{-1}(d_x/y)}{x/y} = \infty. \quad (30)$$

但是这并不能解释为什么对于不具备节面的分子轨道, 在坐标轴上就不存在运算结果趋于无穷大的问题了. 根源在于节面问题是由于分子轨道的对称性和傅里叶变换的有限频谱宽度这两个因素共同导致的.

通过前面的介绍已经知道, 比如 x 方向的回反偶极矩 d_x 在数值上等于分子轨道与 x 乘积的函

数 Ψ_x 的二维傅里叶变换. 以 CO_2 分子 HOMO 为例, 它存在与 y 轴重合的节面, 其波函数关于 y 轴反对称. 而其乘以 x 的函数 Ψ_x 则关于 y 轴对称, 如图 12 (a) 所示. 并且函数 Ψ_x 在 y 轴上的值收敛于 0. 根据 (20) 式, $Ft^{-1}[d_x]$ 应该再现 Ψ_x . 但是由于高次谐波谱的频谱宽度范围有限, 虽然傅里叶逆变换得到的结果和 Ψ_x 的对称性是一致的 (关于 y 轴对称), 由于丢失了一些频率成分, $Ft^{-1}[d_x]$ 在 y 轴上的值不能收敛到 0, 这就导致了一个非 0 值除以 0 的情况, 从而出现了一个无穷大的结果.

由以上的分析可知, 如果在频谱上选取足够宽的谐波谱探测范围, 那么节面问题就有可能避免. 图 12 (b) 和图 12 (c) 分别是选择了不同的频谱范围后对于 d_x 做逆傅里叶变换的结果, 可以看出选择的频谱范围越宽, 所得到的变换结果就越好. 可是在实际应用中不可能探测特别宽的频谱范围, 因此发展其他的可以克服节面问题的方法就尤其重要了.

而对于乙炔分子, 如图 12 (d) 所示, 它的分子轨道关于 y 轴对称, 因而 Ψ_x 关于 y 轴反对称. 考虑到一个函数与其傅里叶变换运算的结果对称性是相同的, 对于反对称的 Ψ_x 而言, $Ft^{-1}[d_x]$ 得到的结

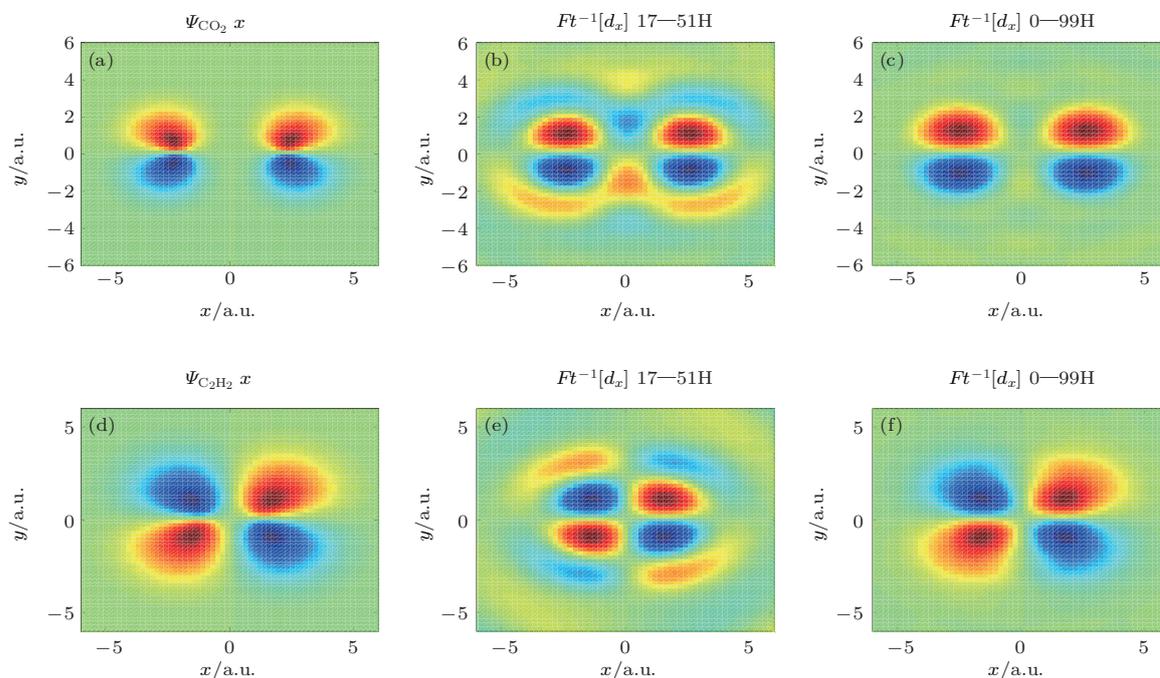


图 12 (a) CO_2 分子轨道与坐标 x 乘积的函数; (b), (c) 对于 CO_2 分子 x 方向偶极矩 d_x 的逆傅里叶变换, 分别截取 14—51 阶和 0—99 阶谐波对应的频谱范围; (d)—(f) 对于乙炔分子, 同 (a)—(c)

Fig. 12. (a) HOMO of CO_2 multiplied by x ; (b), (c) inverse Fourier transform of d_x for CO_2 ; the applied spectral width for d_x is 14th—51st harmonics and 0—99th harmonics, respectively; (d)—(f) the same as (a)—(c) for acetylene.

果也要具有反对称性,因此在 y 轴上的值一定是收敛于0的,这保证了不会出现非0值除以0的情况,也就不存在节面问题了(如图12(e)和图12(f)所示).

3.4.3 克服节面问题的重构算法

经过前面的讨论已经清楚,基于长度形式的算法不能正确地重构存在十字节面结构的分子轨道.而采用速度形式的算法进行重构由于受到傅里叶空间采样的限制会存在较大的畸变,也无法反映出正确的分子轨道结构.

2013年,一种新的重构算法被提出用来克服节面问题^[101].在传统的重构算法中,需要先将实验中得到的偶极矩投影到分子坐标系,然后在分子坐标系下进行重构.在这种情况下就会出现除以 $x=0, y=0$ 时的发散问题.而在新的重构算法中则直接在实验室坐标系下,选取与回复电子动量 \mathbf{k} 平行的方向进行重构.在这样的情况下可以避免重构算法中的节面问题.具体来讲,根据回复偶极矩与分子轨道的数学关系

$$d_{\parallel}(k, \theta) = \langle \Psi | \mathbf{r}_{\parallel, \theta} | e^{i\mathbf{k}\theta \cdot \mathbf{r}} \rangle, \quad (31)$$

可以得到重构公式

$$\Psi_{\parallel}^{\text{LF}}(x, y) = \sum_{\theta} \frac{Ft_{k \rightarrow r}[d_{\parallel, \theta}(k_x, k_y)]}{r_{\parallel, \theta}(x, y)}, \quad (32)$$

其中 $d_{\parallel, \theta}$ 表示分子排列为 θ 角时平行于激光偏振方向的回复偶极矩分量, $r_{\parallel, \theta}$ 是对于空间中的任意一点 $P(x, y)$, \mathbf{OP} 在 x' 轴上的投影(如图8所示).在该坐标系下,(32)式的傅里叶逆变换可以表示为

$$\begin{aligned} Ft_{k \rightarrow r}[d_{\parallel, \theta}] &= \int d_{\parallel, \theta} \exp[ik(x \cos \theta + y \sin \theta)] dk \\ &= \int d_{\parallel, \theta} \cos(kr_{\parallel, \theta}) dk \\ &\quad + i \int d_{\parallel, \theta} \sin(kr_{\parallel, \theta}) dk. \end{aligned} \quad (33)$$

为了简洁地说明在该坐标系下重构能够克服节面问题的原因,这里设分子轨道的值是纯实数(对于分子轨道,可以通过乘以一个全局相位的方式,将分子轨道的相位设置为0而并不影响讨论结果^[112]),如果分子轨道 Ψ 是一个关于原点对称的函数,那么根据对称性分析偶极矩 $d_{\parallel, \theta}$ 将会是纯虚数.最终成像的结果应该是的 $\Psi_{\parallel}^{\text{LF}}$ 的实部:

$$\text{Re}[\Psi_{\parallel}^{\text{LF}}] = \sum_{\theta} \frac{\text{Re}[Ft_{k \rightarrow r}(d_{\parallel, \theta})]}{r_{\parallel, \theta}}$$

$$\propto \sum_{\theta} \sum_k \frac{id_{\parallel, \theta, k} \sin(kr_{\parallel, \theta})}{r_{\parallel, \theta}}, \quad (34)$$

当 $r_{\parallel, \theta}$ 趋于0时,上式的极限

$$\lim_{r_{\parallel, \theta} \rightarrow 0} \frac{id_{\parallel, \theta, k} \sin(kr_{\parallel, \theta})}{r_{\parallel, \theta}} = ikd_{\parallel, \theta, k}. \quad (35)$$

可以看到,当 $r_{\parallel, \theta}$ 趋于0时,这一重构算法得到的仍然是一个有限值,从而避免了节面问题.

采用这种新算法对于 CO_2 HOMO的重构结果如图11(c)所示.该算法可以有效地避免节面问题并正确地再现出具有十字形节面的分子轨道的结构.同样地,该方法也有自身的问题:在重构的结果中可以看到波函数向径向发散的现象.该现象同样源自实际探测的谐波谱的频谱宽度受限这一事实.如果进一步拓展探测谐波谱的频谱宽度,这一问题会得到明显改善.

该算法适用于具有中心对称性的分子轨道.对于不具备中心对称性的分子轨道而言,在(32)式的运算中同样在分母为0处还是会出现计算结果发散的问题.对于存在十字节面结构的分子轨道而言,它一定是满足中心对称的条件的,因此该新算法是可以实现对于这种分子轨道的重构的.

4 不对称分子的分子轨道层析成像

4.1 单向回复条件

第三部分以对称分子为例介绍了分子轨道层析成像的原理和方法,其中重要的一点是利用分子的对称性,得到高次谐波的电场可以写成与分子轨道无关的 $W(\omega, \theta)$ 项和与分子轨道相关的跃迁偶极矩 $\mathbf{d}(\omega, \theta)$ 的乘积的形式,即

$$\mathbf{E}_{\text{HHG}}(\omega, \theta) \propto W(\omega, \theta) \mathbf{d}(\omega, \theta), \quad (36)$$

在得到了这种乘积关系的基础上,才能通过对比参考原子的谐波信号消掉 $W(\omega, \theta)$ 而提取出成像所需的跃迁偶极矩 $\mathbf{d}(\omega, \theta)$.然而,对于不对称分子,由于其分子轨道不具备对称性,因此只能得到

$$\begin{aligned} E_{\text{HHG}}(\omega, \theta) \\ \propto W[k(\omega, \theta)] \mathbf{d}(\omega, \theta) + W[-k(\omega, \theta)] \mathbf{d}^*(\omega, \theta), \end{aligned} \quad (37)$$

而不能进一步地将两项合并成一项.基于HHG半经典再碰撞过程可以直观地理解这一结果:在多光周期线偏振激光场的驱动下,特定能量 $\omega = k^2/2 + I_p$ 的谐波辐射可以由从 $+k$ 和 $-k$ 两个方向的回碰电子贡献.当目标分子为对称分子时,

从两个方向返回的电子产生的谐波信号是相同的,因此可以直接从它们叠加的谐波信号中提取出分子轨道的结构信息.而当目标分子为不对称分子时,从两个方向返回的电子产生的谐波信号不相同.为了从中提取出跃迁偶极矩进行重构,就需要先将从相反方向返回的电子贡献的谐波信号区分开,然而这是比较困难的.解决这一困难的一个思路是设法控制电子只从一个方向回复并产生高次谐波,从而保证所探测到的信号都是由同一个方向回复的电子产生的相同的信号.这也相当于消去了(37)式两项中其中一项的贡献,从而再次得到了 $E_{\text{HHG}} \propto W(\omega, \theta) d(\omega, \theta)$ 的形式.这个需要控制电子从一个方向回复产生 HHG 的条件被称作“单向回复条件”.

4.2 利用少光周期脉冲实现电子的单向回复

van der Zwan 等 [112] 提出利用少光周期脉冲来驱动不对称分子产生高次谐波,并且实现电子的单向回复.如图 13 所示,插图中是所采用的少光周期脉冲的电场形式,其波长为 780 nm,脉冲全宽仅为三个光周期.在这个激光脉冲的驱动下,由于 A 点附近的电场幅值最大、电离率最高,高次谐波辐射将主要由图中 A 点附近电离并经过加速后在 B 点附近回复的电子贡献.这就意味着高次谐波的信号仅由从正方向回复的电子贡献,电子单向回复条件得到满足.通过理论计算可以证明上述结论.

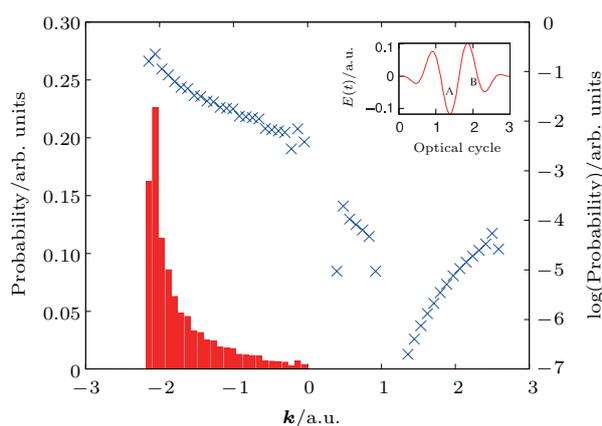


图 13 半经典计算得到在少光周期激光场驱动下以不同动量 k 回复的电子的概率分布 [112]

Fig. 13. Probabilities of electrons with different return momentum k driven by the few-cycle laser field. The probabilities are obtained the semiclassical calculation [112].

图 14 中统计了通过半经典计算 [113–115] 得到的以不同动量 k 回复的电子的概率,结果表明 $k < 0$ 的回复电子远远多于 $k > 0$ 的回复电子.当电子单向回复条件得到满足之后,就可以依照第 3 部分介绍的方法实现对不对称分子轨道的成像.在文献 [112] 中, van der Zwan 等通过数值模拟证明了采用这种方法利用速度形式的重构算法可以实现不对称分子 HeH^{2+} 分子轨道的成像.

这一方法的不足在于需要波形稳定(即载波包络相位稳定)的少光周期脉冲,对实验条件的要求比较苛刻.目前这种激光脉冲仅在世界上少数几个实验室可以获得,因而限制了不对称分子成像方法的适用性.

4.3 多光周期共线双色光场实现电子的单向回复

为了克服采用少光周期激光脉冲进行不对称分子轨道层析成像方法的不足,秦梅艳等提出了一种基于多光周期共线双色光场实现对电子单向回复控制的方法.所谓双色光场,即将频率不同的两个激光场叠加在一起形成的组合激光场.如图 14 所示就是一个典型的双色光场,将光强比为 25 : 1 的 800 nm 基频光(蓝色曲线)和 400 nm(绿色曲线)倍频光相叠加,得到特定形式的合成双色光场.通过调控两个激光场的相对相位、相对强度、频率比等参数,可以实现对连续电子轨迹的精确操控.由于双色光场具有这一优势,已经在强场物理的研究中得到了广泛的应用 [55, 116–122]. 利用这一特性也可以控制绝大多数电子从一个方向回复产生高次谐波.

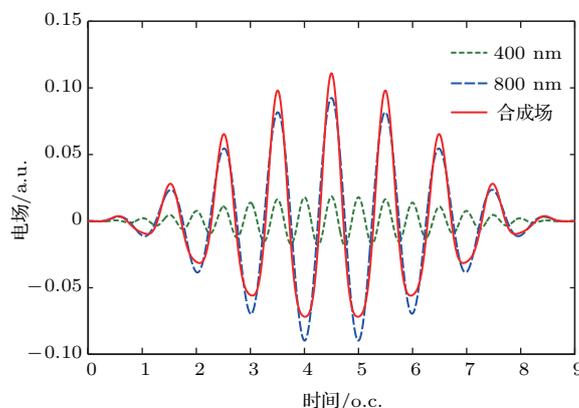


图 14 典型的共线双色光场

Fig. 14. Typical co-linear two-color laser field.

下面以CO分子为例,通过数值计算证明这一点,具体计算细节可见文献[123].所采用的双色光场由一束20 fs载波波长为1600 nm的线偏光和一束20 fs波长800 nm的线偏光组成,其电场的表达形式为 $E(t) = E_0 f(t) \cos(\omega_0 t) + E_1 f(t) \cos(2\omega_0 t + \varphi)$. E_0 , E_1 和 ω_0 , $2\omega_0$ 分别对应峰值强度为 1.0×10^{14} W/cm²的1600 nm激光场及峰值强度为 9.0×10^{12} W/cm²的800 nm的激光场的幅值和角频率, φ 是双色场的相对相位,脉冲的包络 $f(t)$ 是正弦平方包络.

图15给出了当双色激光场(红色虚线)的相对相位取 $\varphi = 0\pi$ 和 $\varphi = 0.9\pi$,CO分子的取向为 0° 时的相互作用情况.图中第一列蓝色曲线为

HOMO的电子隧穿电离速率,图中第二列为电子回复动量为 \mathbf{k} 的概率分布.如第一行所示,在相对相位 $\varphi = 0\pi$ 的双色场作用下,电场在正方向的峰值要大于负方向的峰值,电场的对称性被打破.因此电场指向正方向时发生电离的电子远远多于电场指向负方向时.于是,大多数电子都从负方向以正的动量回复产生谐波(如图15(b)所示).然而,当双色激光场分量的相对相位为 $\varphi = 0.9\pi$ 时,电子的隧穿电离几乎都在负方向的电场峰值附近发生,并且最终都以负的动量回复产生谐波(如图15(d)所示).综上所述可以看出,这两种双色激光电场作用下,所有回复电子都从同一个方向与母离子发生再碰撞.

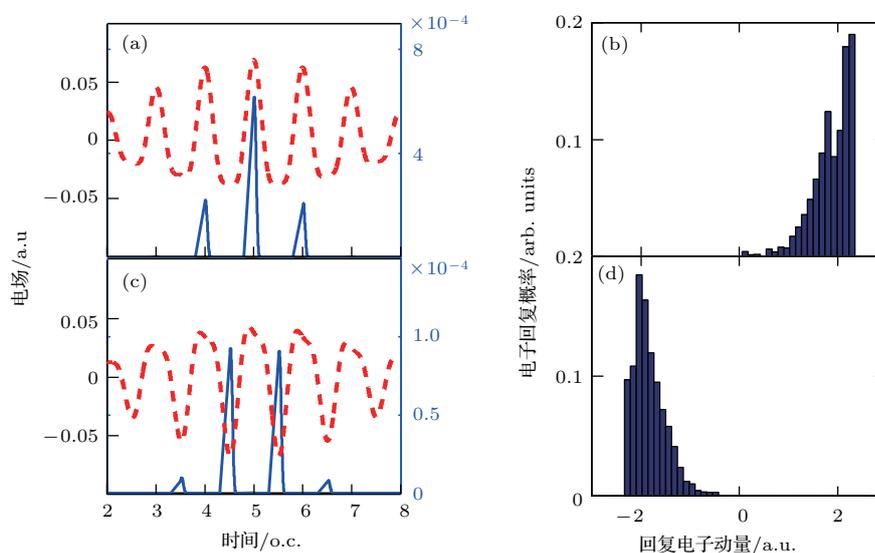


图15 相对相位为(a) $\varphi = 0\pi$ 和(c) $\varphi = 0.9\pi$ 的双色激光场(红色曲线所示)作用下, 0° 取向的CO分子的隧穿电离速率(蓝色曲线);(b) $\varphi = 0\pi$ 和(d) $\varphi = 0.9\pi$ 下电子以动量 \mathbf{k} 回复的概率[123].

Fig. 15. Ionization rate as a function of the ionization time (blue solid curve) for the two-color field with (a) $\varphi = 0\pi$ and (c) $\varphi = 0.9\pi$ for CO molecule orientated at 0° , the corresponding electric fields are also depicted by the red-dashed curve; the probability that an electron returns with momentum \mathbf{k} for (b) $\varphi = 0\pi$ and (d) $\varphi = 0.9\pi$ [123].

选取 $\varphi = 0.9\pi$ 激光场,利用产生的11—101阶谐波信号进行重构的结果如图16所示.图16(a)是利用高斯软件得到的CO HOMO,图16(b)是重构得到的HOMO.重构结果表明CO的HOMO很好地得到了再现.重构轨道与真实轨道都由不对称分布且符号正负交替的三瓣组成,两个节面隔离开三瓣结构.为了进行细致的对比,在图16(c)中给出了重构轨道以及真实轨道沿分子轴的截线,分别以红色实线和蓝色虚线画出.对比重构轨道和真实轨道可以发现,二者的两个极大值分别相等(见黑色箭头所示).但是,重构轨道与真实轨道的结构仍有

一些差异.比如,重构轨道左边原子核附近的细节结构丢失.同时,观察重构轨道与真实轨道波函数的极小值的绝对值可以发现,前者的比后者的大一些.为了说明上述偏差产生的原因,可以对真实轨道进行傅里叶变换,滤出与重构时所用的频谱范围相同的频率成分之后,再次通过傅里叶逆变换得过滤的分子轨道,经过这种处理后的分子轨道的波函数沿分子轴的截线由图16(c)中的绿色点虚线给出.对比后发现,类似的偏差在傅里叶变换过滤后的轨道波函数也出现了.由此可见,频谱取样范围有限是上述偏差产生的主要原因.

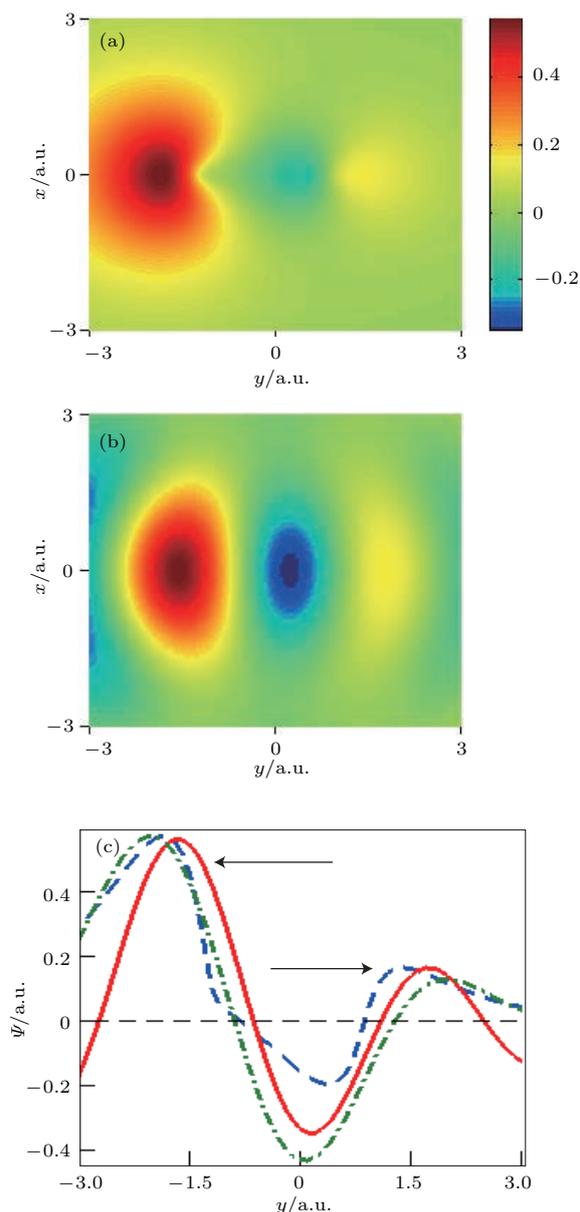


图 16 (a) 0° 取向的 CO 分子 HOMO; (b) 采用 $\varphi = 0.9\pi$ 多光周期双色光场对 CO 分子 HOMO 的重构结果; (c) 重构轨道 (红色实线), 真实轨道 (蓝色虚线) 和经过傅里叶变换过滤的 CO 分子 HOMO (绿色点虚线) 沿分子轴的截面
Fig. 16. (a) HOMO of CO oriented at 0° ; (b) reconstructed result for the HOMO of CO with $\varphi = 0.9\pi$ two-color multi-cycle laser field; (c) slices along the molecular axis for the reconstructed orbital (red curve), the real orbital (blue curve), and the corresponding Fourier-filtered orbital (green curve).

相对于对称分子而言, 不对称分子具有的另一个特点是, 在强激光场的作用下分子轨道的能级会发生一阶斯塔克漂移^[124-126]. 这是因为不对称分子的电荷密度分布不对称使其存在固有偶极矩. 当固有偶极矩足够大时, 斯塔克漂移带来的影响就不可忽略. 一阶斯塔克效应造成的能级的漂移为

$$\Delta E = -\boldsymbol{\mu} \cdot \boldsymbol{F}. \quad (38)$$

其中 $\boldsymbol{\mu}$ 为固有偶极矩, \boldsymbol{F} 表示外电场. 当固有偶极矩的方向与电场的方向相同时, 会造成分子能级向下移动, 电离能增大, 电子被电离的难度增加, 从而抑制了电离. 反之, 当固有偶极矩的方向与电场的方向相反时, 会造成分子能级的上移, 电离能减小使得电子更加容易被电离, 从而促进了电离的发生. 可以看到, 斯塔克效应有可能会抵消不对称电场带来的电离的不对称性, 从而对电子回复方向的约束效果产生影响. 后续的研究工作表明, 选择合适的双色光场形式, 可以有效地克服斯塔克效应的影响, 保证电子的单向回复以及对不对称分子轨道的成像^[100].

4.4 多光周期正交双色光场实现电子的单向回复

共线双色光场实现不对称分子轨道成像的基础是利用不对称的激光场来控制分子在相反方向具有不同的电离率. 对于固有偶极矩很大的极性分子, 由于斯塔克效应的影响, 设计合适的电场来控制电子单向回复就会变得更加困难, 从而会使得该方法的适用性受到一定的限制.

当双色光场两个不同频率成分的偏振方向不共线时, 就形成了非共线双色光场. 非共线双色光场相较于共线双色光场具有更加丰富的自由度, 可以更好地操控连续电子的行为. 非共线双色光场在强场物理中已经得到了广泛的应用, 其中最广泛采用的形式是正交双色光场^[127,128].

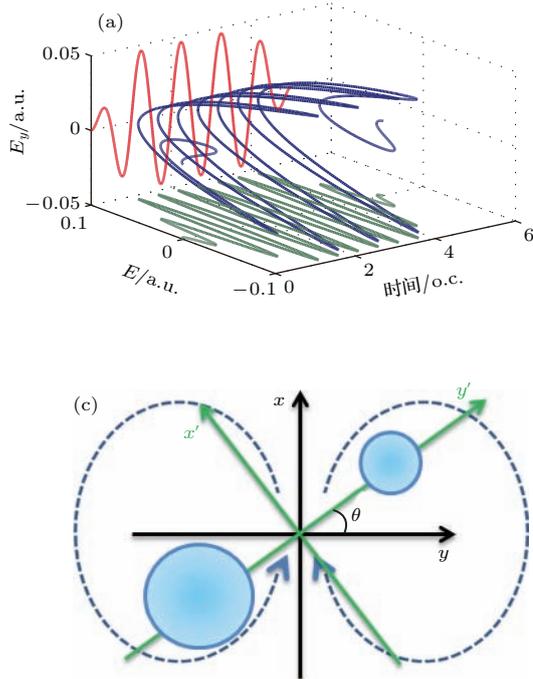
图 17 (a) 所示是一个典型的正交双色光场的形式, 由偏振方向相互垂直的 800 nm 基频激光场和 400 nm 倍频激光场以相对相位 $\varphi = 0\pi$ 叠加得到. 各个成分的电场强度分别为 $I_x = 3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $I_y = 3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. 可以看到, 正交双色光场可以实现对电子轨迹的二维操控, 从而更好地控制电子的回复方向. 图 17 (b) 所示为半经典计算得到的在该正交双色光场驱动下具有不同动能的回复电子的回复角度分布 (回复动量与 $-x$ 轴的夹角 α), 可以看到大部分的电子都集中在 $\pm 100^\circ$ 附近回复. 这个回复角度的集中分布是由于正交双色光场操控电子运动而实现的, 与分子的排列角度和电离率是无关的. 图 17 (c) 为典型的电子轨迹的示意图, 有助于更好地理解正交双色光场对电子轨迹的二

维操控: 在实验室坐标系 (x, y) 下, 当分子被排列到任意角度 θ (θ 为实验室坐标系与分子坐标系的夹角), 电子始终是在一个基频光周期内分别从相反的方向绕一圈之后从第三象限和第四象限回复.

在这种回复条件下, 利用公式

$$\begin{aligned} d_{-\alpha} \cos \alpha + d_{\alpha} \cos \alpha &= d_x, \\ d_{-\alpha} \sin \alpha - d_{\alpha} \sin \alpha &= d_y, \end{aligned} \quad (39)$$

可以得到电子沿单一方向 α 回复的回复偶极矩, 从



而实现电子的单向回复. 在前面已经提到, 在正交双色光场驱动下, 电子的单向回复条件是通过电场对电子轨迹的二维控制实现的, 并不依赖对电离率的控制, 因此并不会受到极性分子斯塔克效应的影响. 图 17(d) 为利用正交双色场驱动 CO 分子的高次谐波信号进行重构得到的 CO HOMO, 可以看到 CO 分子轨道的主要结构特征得到了很好的再现. 具体的计算细节以及结果讨论可见文献 [129].

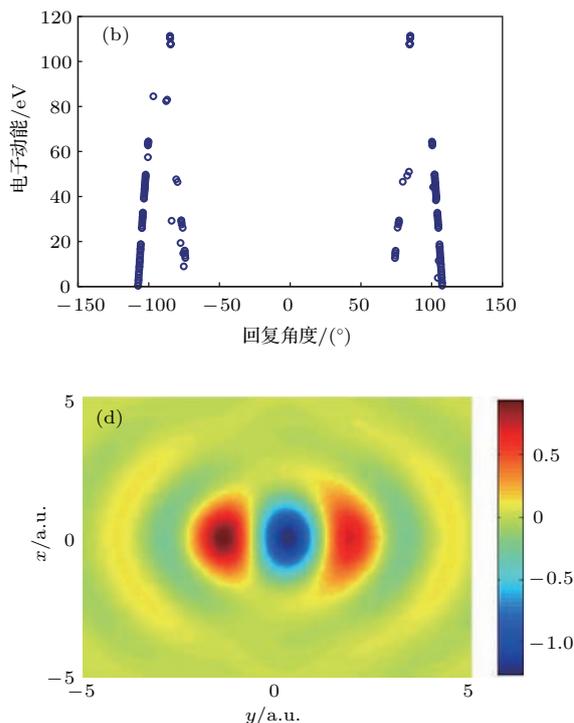


图 17 (a) 正交双色光场的电场形式; (b) 半经典计算得到的回复电子的回复方向分布; (c) 正交双色光场驱动下电子轨迹示意图; (d) 利用正交双色场驱动下 CO 分子高次谐波进行重构得到的轨道

Fig. 17. (a) Electric field of the orthogonal two-color laser field; (b) distributions of the recombining directions of the return electrons obtained with semiclassical calculation; (c) illustration of the electron trajectory under the orthogonal two-color laser field; (d) reconstructed result for CO with the HHG driven by orthogonal two-color laser field.

4.5 不依赖单向回复条件的不对称分子轨道重构算法

以上介绍的各种实现不对称分子轨道层析成像的方法的基本思想都是利用特定的激光场控制实现电子单向回复条件. 2013年, Chen 等 [130] 提出了一种不依赖于电子单向回复条件实现对不对称分子轨道层析成像的方法.

这一方法的基本思想是: 对于任意一个不对称分子轨道 $\psi_0(r)$, 都可以写成偶宇称 $\psi_0^g(r)$ 和奇宇称 $\psi_0^u(r)$ 两部分之和, 即 $\psi_0(r) = \psi_0^g(r) + \psi_0^u(r)$. 其中 $\psi_0^{g(u)}(r) = [\psi_0(r) \pm (-r)]/2$. 不对称分子在多光周

期线偏激光场的驱动下既会产生奇次谐波, 也会产生偶次谐波. 其中, 奇次谐波主要由偶宇称部分贡献, 而偶次谐波主要由奇宇称部分贡献 [130,131]. 因此, 可以基于 MOT 的方法, 通过奇次谐波信号重构出 $\psi_0^g(r)$, 并通过偶次谐波信号重构出 $\psi_0^u(r)$. 最后将 $\psi_0^g(r)$ 和 $\psi_0^u(r)$ 相加得到目标分子轨道 $\psi_0(r)$.

图 18 的第一列为准确的目标分子轨道的偶宇称成分 $\psi_0^g(r)$ 、奇宇称成分 $\psi_0^u(r)$ 以及总的分子轨道 $\psi_0(r)$. 第二列中图 18(d) 和图 18(e) 分别为重构得到的 $\psi_0^g(r)$ 和 $\psi_0^u(r)$. 将两个成分相加得到总的重构分子轨道, 可以看到目标分子轨道的主要结构特

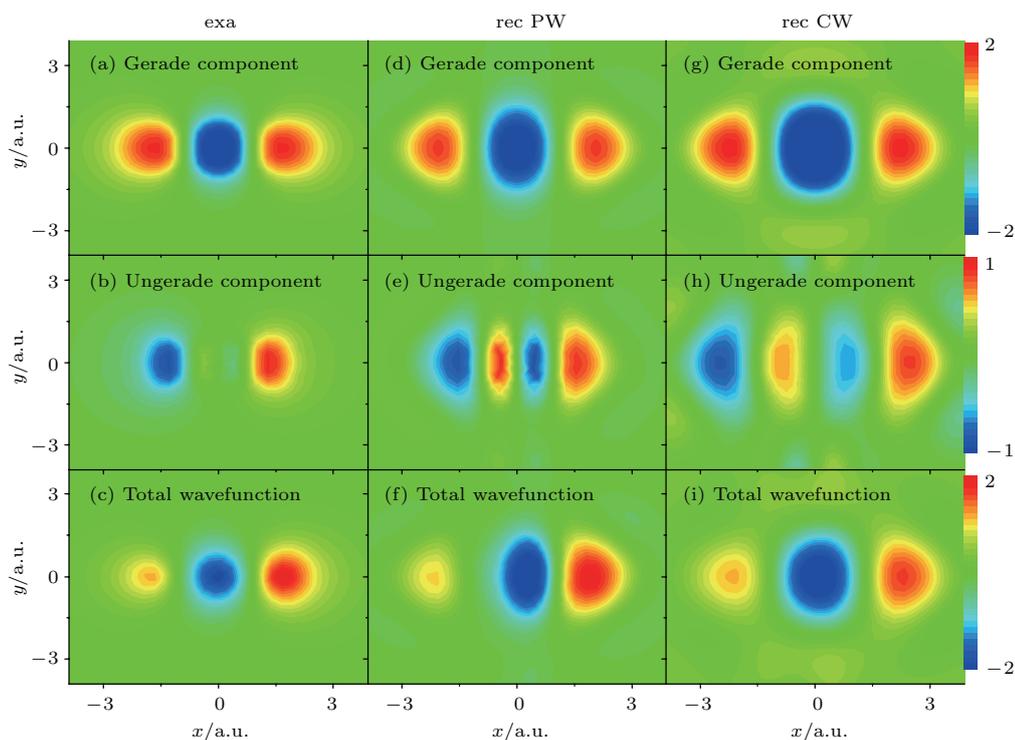


图 18 ψ_0^g (第一行)、 ψ_0^u (第二行)、 ψ_0 (第三行) 的精确结果 (左列) 与基于平面波重构结果 (中列)、库仑修正重构结果 (右列) 的比较 [130]

Fig. 18. Comparison of the exact results (left column), the reconstructions with plane waves (middle column), and Coulomb waves (right column) for ψ_0^g (first row), ψ_0^u (second row), and ψ_0 (third row) [130].

点都得到了很好的再现 (如图 18 (f) 所示). 第三列为利用这一算法并引入库仑修正的重构结果. 关于对平面波近似的修正, 将在第 5 部分重点讨论.

5 突破平面波近似的分子轨道层析成像研究

5.1 关于平面波近似的讨论

当电子从基态电离后, 假设其只受到激光场的作用, 不再受母核的库仑势影响, 连续态电子波包被当作平面波来处理. 这种近似称之为平面波近似, 传统的 MOT 理论就是基于这种近似建立起来的. 在平面波近似下, 回复偶极矩等价于分子轨道与坐标乘积函数的傅里叶变换. 偶极矩可以从实验观测中提取出来, 通过对实验获得的偶极矩进行逆傅里叶变换, 便可以重构出分子轨道. 然而, 用平面波来表示连续态电子波包做了极大的简化, 尤其是在高次谐波产生过程对应的低能范围. 在这一能量范围内, 很多效应的影响是不可忽略的, 但却在平面波近似中没有得到考虑. 例如, 在电子回复等过程中, 平面波近似并没有考虑母核的库仑势

对连续态电子波包的作用. 最近的一些研究已经表明, 库仑势会对回复电子波包产生影响, 高次谐波谱的很多性质都与库仑效应有关 [12,132-134]. 因此, 基于平面波近似重构出来的分子轨道相较于真实的分子轨道存在一定的差异. 这使得 MOT 理论及其方法自提出以来就在强场物理学界引发了诸多的争议 [16,135]. 文献 [110, 130] 针对这一问题各自提出了库仑修正的方法, 然而这些修正仍具有一定的局限性, 比如采用一阶微扰方法, 主要只考虑了对连续电子波包相位的修正.

5.2 非平面波近似下的分子轨道层析成像算法

为了解决 MOT 理论中平面波近似的带来的问题, Li 等 [136] 提出了一种具有一般性的超越平面波近似的分子轨道重构算法. 从根本上讲, 分子轨道重构算法取决于如何建立回复偶极矩 $\mathbf{d}(\mathbf{k})$ 与目标分子轨道之间的数学关系. 已知

$$\mathbf{d}(\mathbf{k}) = \int d^3\mathbf{r} \psi_C(\mathbf{r}) \mathbf{r} \psi_0(\mathbf{r}), \quad (40)$$

在传统的成像方案中, 连续态波函数表示为平面波的形式

$$\psi_c^{\text{PW}}(\mathbf{r}) = (2\pi)^{-3/2} \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}). \quad (41)$$

此时分子轨道可以直接通过对 $\mathbf{d}(\mathbf{k})$ 的傅里叶逆变换得到:

$$\mathbf{r}\psi_0(\mathbf{r}) = (2\pi)^{-3/2} \int d^3\mathbf{k} \mathbf{d}(\mathbf{k}) \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}). \quad (42)$$

而在非平面波近似的成像方案中, 首先定义

$$\phi_{\mathbf{k}}(\mathbf{k}') = (2\pi)^{-3/2} \int d^3\mathbf{r} \psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \exp(-i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r}), \quad (43)$$

满足条件

$$\psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = (2\pi)^{-3/2} \int d^3\mathbf{k}' \phi_{\mathbf{k}}(\mathbf{k}') \exp(i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r}), \quad (44)$$

其中 $\phi_{\mathbf{k}}(\mathbf{k}')$ 是连续态波函数在动量空间的表示. 将 (44) 式代入 (40) 式, 得到

$$\begin{aligned} \mathbf{d}(\mathbf{k}) &= (2\pi)^{-3/2} \int d^3\mathbf{k}' \phi_{\mathbf{k}}(\mathbf{k}') \\ &\quad \times \int d^3\mathbf{r} \psi_0(\mathbf{r}) \mathbf{r} \exp(i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r}), \end{aligned} \quad (45)$$

$\int d^3\mathbf{r} \psi_0(\mathbf{r}) \mathbf{r} \exp(i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r})$ 是分子轨道与 \mathbf{r} 乘积的傅里叶变换. 在 (45) 式中, $\phi_{\mathbf{k}}(\mathbf{k}')$ 定义了从 $\int d^3\mathbf{r} \psi_0(\mathbf{r}) \mathbf{r} \exp(i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r})$ 到 $\mathbf{d}(\mathbf{k})$ 的映射. 一般来讲, 如果不采用平面波近似, 这种映射不是对角化的, 因为其在 $\mathbf{k}' \neq \mathbf{k}$ 处有非零的值. 所以如果不知道精确的分子连续态, 这种映射就是不可逆的, 从而无法利用回复偶极矩重构分子轨道. 因此在实际运用中, 需要采用某种近似的连续态波函数 $\psi_{\mathbf{k}}^{\text{app}}(\mathbf{r})$ 来代替精确的连续态. 需要指出的是, $\psi_{\mathbf{k}}^{\text{app}}(\mathbf{r})$ 中包含了母核库仑势对连续态的作用, 相较于平面波而言更为精确. 采用近似连续态波函数 $\psi_{\mathbf{k}}^{\text{app}}(\mathbf{r})$, (45) 式改写成

$$\begin{aligned} \mathbf{d}(\mathbf{k}) &= (2\pi)^{-3/2} \int d^3\mathbf{k}' \phi_{\mathbf{k}}^{\text{app}}(\mathbf{k}') \\ &\quad \times \int d^3\mathbf{r} \psi_0(\mathbf{r}) \mathbf{r} \exp(i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r}), \end{aligned} \quad (46)$$

其中

$$\phi_{\mathbf{k}}^{\text{app}}(\mathbf{k}') = (2\pi)^{-3/2} \int d^3\mathbf{r} \psi_{\mathbf{k}}^{\text{app}}(\mathbf{r}) \exp(-i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r}) \quad (47)$$

为 $\psi_{\mathbf{k}}^{\text{app}}(\mathbf{r})$ 在动量空间的表示. 于是可以定义映射矩阵

$$\mathbf{S} = \begin{pmatrix} \phi_{\mathbf{k}_1}^{\text{app}}(\mathbf{k}'_1) & \phi_{\mathbf{k}_2}^{\text{app}}(\mathbf{k}'_1) & \cdots & \phi_{\mathbf{k}_n}^{\text{app}}(\mathbf{k}'_1) \\ \phi_{\mathbf{k}_1}^{\text{app}}(\mathbf{k}'_2) & \phi_{\mathbf{k}_2}^{\text{app}}(\mathbf{k}'_2) & \cdots & \phi_{\mathbf{k}_n}^{\text{app}}(\mathbf{k}'_2) \\ \cdots & \cdots & \cdots & \cdots \\ \phi_{\mathbf{k}_1}^{\text{app}}(\mathbf{k}'_n) & \phi_{\mathbf{k}_2}^{\text{app}}(\mathbf{k}'_n) & \cdots & \phi_{\mathbf{k}_n}^{\text{app}}(\mathbf{k}'_n) \end{pmatrix}, \quad (48)$$

其中, $\phi_{\mathbf{k}}^{\text{app}}(\mathbf{k}') \propto \langle \exp(i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r}) | \psi_{\mathbf{k}}^{\text{app}}(\mathbf{r}) \rangle$ 是 $\psi_{\mathbf{k}}^{\text{app}}(\mathbf{r})$ 在平面波基矢上的投影系数. 映射矩阵 \mathbf{S} 的计算过程如图 19 所示. 得到 \mathbf{S} 后, 偶极矩可以重新表示为

$$\mathbf{d}(\mathbf{k}) = (2\pi)^{-3/2} \mathbf{S} \left[\int d^3\mathbf{r} \psi_0(\mathbf{r}) \mathbf{r} \exp(-i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r}) \right]. \quad (49)$$

在非平面波近似下, 跃迁偶极矩与分子轨道的关系再一次被建立起来. 同样地, 通过傅里叶逆变换可以重构目标分子轨道:

$$\psi_0(\mathbf{r}) = \frac{Ft^{-1}[\mathbf{S}^{-1}\mathbf{d}(\mathbf{k})]}{\mathbf{r}}. \quad (50)$$

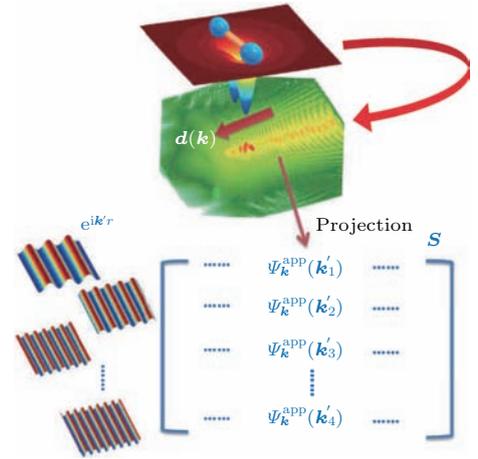


图 19 非平面波近似下分子轨道层析成像的算法示意图. 通过将不同动量的分子连续态波函数投影到一组完备正交的平面波基组上, 得到映射矩阵 \mathbf{S} [136]

Fig. 19. Illustration for the MOT reconstruction algorithm beyond plane wave approximation. By projecting the continuum-wave function with momentum \mathbf{k} onto a set of complete bases composed of plane waves, the transformation matrix \mathbf{S} can be obtained [136].

5.3 近似连续态的选取

以上所述的重构算法中, 原则上没有做任何近似. 但是对于未知的分子来说, 因为它的连续态电子波包也不可能完全确定, 所以需要引入近似连续态波函数. 对于待测分子轨道预先已知的知识越多, 引入的连续态波函数越精确, 则成像结果将会

越接近真实. 值得注意的是, 成像结果中会包含比预先已知知识更多的信息, 这些新的信息就是在成像过程中从高次谐波信号中提取得到的.

以 N_2 分子为例, 假设已知它是一个双原子分子, 并且通过前面介绍的强场自探测方法探知其核间距, 便可以选择库仑双中心连续态^[132,137]来描述连续电子波函数. 库仑双中心连续态是双中心库仑问题的连续态本征函数, 其有效地包含了库仑效应的影响. 双中心库仑波函数的形式为

$$\psi_{\mathbf{k}}^{\text{TCC}}(\mathbf{r}) = (2\pi)^{-3/2} \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \times M(\mathbf{k}, \mathbf{r}_1)M(\mathbf{k}, \mathbf{r}_2), \quad (51)$$

其中

$$M(\mathbf{k}, \mathbf{r}) = \exp\left(\frac{\pi\nu}{2}\right) \Gamma(1 - i\nu) \times F_1[i\nu, 1, i(kr - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})], \quad (52)$$

这里, $\mathbf{r}_1 = \mathbf{r} + \mathbf{R}/2$, $\mathbf{r}_2 = \mathbf{r} - \mathbf{R}/2$, \mathbf{R} 表示分子核间距; F_1 是合流超几何函数; $\nu = Z/k$ 是索末菲尔德参数; Z 是核的效电荷数. 考虑到 N_2 的一价正离子带有一个单位的正电荷而具有两个核, 这里取

$Z = 0.5$. 此外, 如果目标分子的核的结构也未知, 可以采用更加近似的单中心库仑连续态^[138], 这一连续态的选取比平面波近似要更加准确. 在实际运用中, 任何合理的连续态都可以被采用. 下面将以选取双中心连续态为例, 讨论该重构算法的效果.

5.4 结果与比较

该重构算法的有效性已经得到了实验的验证. 在实验中采用的驱动激光脉冲中心波长 800 nm、脉宽 30 fs、强度为 2×10^{14} W/cm². 探测了排列角从 0° 到 90° 的 N_2 分子高次谐波谱, 其中每 5° 测量一组数据, 其他角度的谐波根据分子轨道的对称性补充. 实验测量的高次谐波频谱范围从第 17 次到 31 次. 更多的实验细节可见文献^[139].

图 20 (b) 给出了利用实验测得的谐波强度和相位^[14]基于平面波近似方法重构的结果. 鉴于实验中探测的谐波频谱有限, 可以对通过对高斯软件计算得到的 N_2 分子“真实”轨道进行傅里叶变换并在动量空间进行过滤, 其过滤窗口与实验中所探测到的频谱范围相同. 图 20 (a) 给出了与实验探测频

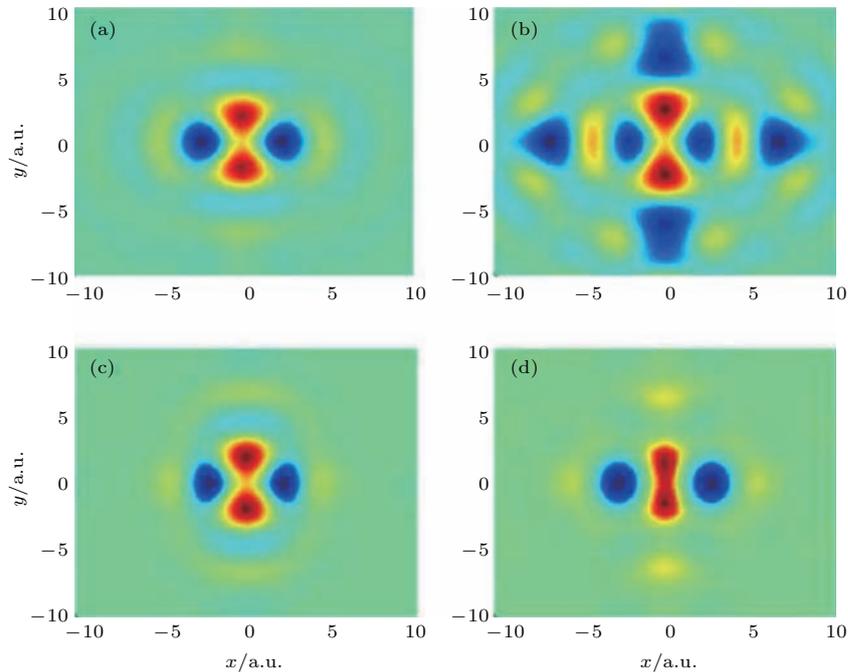


图 20 利用实验结果重构的 N_2 分子的 HOMO 比较 (a) 在与实验探测频谱范围相同的条件下, 经过傅里叶变换过滤的结果; (b) 将文献^[14]实验结果通过平面波近似方法重构的结果; (c) 将实验测得的谐波强度和理论计算的谐波相位通过非平面波近似方法重构的结果; (d) 将实验测得的谐波强度和谐波相位通过非平面波近似方法重构的结果^[139]

Fig. 20. Comparison among the reconstructed HOMOs of N_2 with experimental data: (a) Fourier-filtered result with the same width of spectra window as that in the measurement; (b) reconstructed results with the experimental data in Ref. [14] with plane wave approximation; (c) reconstructed result with the experimental harmonic intensity and theoretical phase with the algorithm beyond plane wave approximation; (d) reconstructed result with experimental harmonic intensity and experimental phase with the algorithm beyond plane wave approximation^[139].

谱范围相同条件下, 经过傅里叶变换过滤的 N_2 分子轨道, 所有的重构结果以这个过滤的轨道为参考进行对比. 可以看到, 平面波近似重构的结果除了具有 N_2 分子轨道本身所具有的结构以外, 还在外围出现了十分明显的额外的重复结构. 图 20(c) 和图 20(d) 给出了非平面波近似方法重构的结果. 其中图 20(c) 是利用实验测得的谐波强度, 以及在

与实验参数相同条件下用 QRS 理论^[102] 计算的谐波相位重构的结果; 图 20(d) 是利用实验测得的谐波强度和谐波相位通过非平面波近似方法重构的结果. 可以看到, 无论是利用实验测量的谐波相位还是理论计算的谐波相位, 通过非平面波近似方法重构的结果质量均明显优于平面波近似的结果.

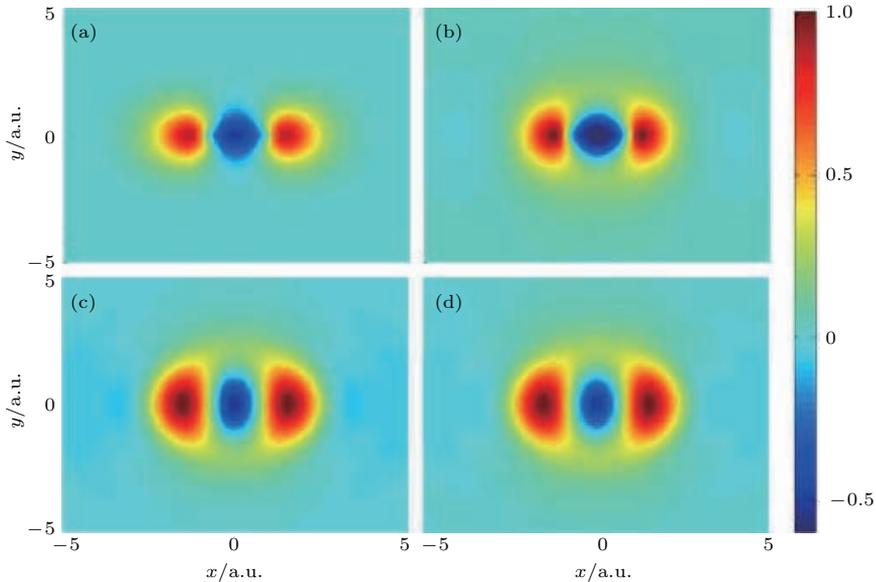


图 21 利用理论计算结果重构的 N_2 分子的 HOMO 结果比较^[136] (a) 为高斯软件计算的结果; (b) 利用非平面波近似下的层析成像算法计算的结果; (c) 平面波近似的结果; (d) 文献 [110] 中的方法计算的结果

Fig. 21. Comparison among the reconstructed HOMOs of N_2 with theoretical simulation^[136]: (a) HOMO obtained with Gaussian; (b) reconstructed orbital with reconstruction algorithm beyond plane wave approximation; (c) reconstructed orbital with reconstruction algorithm with plane wave approximation; (d) reconstructed orbital following Ref. [110].

从图 20(a) 可以看到, 实验中重构的结果与真实分子轨道存在的差异主要来自于对谐波谱探测频率范围的限制, 考察理论计算中选取更宽的谐波频率范围进行重构的结果可以更好地讨论该重构算法的效果. 计算中采用宽度为 10 个光周期的线偏驱动脉冲. 选取梯形包络为驱动激光场的包络, 由 3 个光周期的上升沿、4 个光周期的平台区和 3 个光周期的下降沿组成. 驱动激光中心波长为 1200 nm, 光强为 1.0×10^{14} W/cm². 对于分子 HHG 而言, 使用中红外的优点在于一方面可以降低驱动激光强度以避免电离饱和以及分子解离, 同时可以有效地拓展谐波的频谱宽度^[140–142]. 更多的计算细节可见文献 [136]. 重构结果如图 21(b) 所示. 作为参考, 图 21(a) 所示为利用高斯软件 Hartree-Fock 方法得到的真实 N_2 HOMO. 图 21(c) 和图 21(d) 给出了采用传统基于平面波近似算法重

构的结果和采用文献 [110] 中方法重构的结果. 从图中可以看到, 所有结果都再现了 N_2 分子轨道的主要特征, 正负交替的波瓣, 以及沿着 y 方向的两个截面. 分子核间距可以由两个节面与 x 轴的交点之间的距离估算, 约为 1.02 a.u., 与真实分子的核间距一致. 非平面波近似重构的分子轨道相比于平面波近似的结果, 外围的额外结构更小, 在垂直于分子轴方向的分布更接近真实轨道, 其重构质量明显优于另外两种方法.

6 结 论

在超短激光脉冲激发下原子分子的强场过程中存在特有的“自探测”机理, 基于这一机理可以实现对原子分子结构、超快动力学过程同时具备埃量级空间分辨率及亚飞秒量级时间分辨率的探测, 为

人们更加深入地研究微观世界的物质结构及其物理过程提供了前所未有的有力工具. 基于分子高次谐波的MOT方法就是基于强场自探测机理的一个重要应用. 本文介绍了MOT的原理和方法, 并综述了十余年来MOT理论取得的最新进展. 针对最初MOT基本理论中存在的问题, 改进的MOT方法和新的重构算法不断被提出, 以提高分子轨道重构的质量、简化MOT的实验难度、拓展MOT的适用范围等. 此外, 突破平面波近似的MOT理论的提出, 克服了传统MOT重构算法依赖平面波近似的问题, 从而解决了对其长期存在的争议, 巩固了MOT的理论基础. 今后的研究工作, 除了继续发展MOT的成像理论, 朝着成像质量更好、成像方案更易于实现并不断拓展到结构更加复杂的分子以外, 还要进一步实现分子内电子波包演化的实时观测. 这对于物理学、化学、材料和生命科学等学科的发展都将具有重要的促进作用.

参考文献

- [1] Downer M C, Shank C V 1986 *Phys. Rev. Lett.* **56** 761
- [2] Shank C V, Yen R, Hirliemann C 1983 *Phys. Rev. Lett.* **50** 454
- [3] Rischel C, Rousse A, Uschmann I, Albouy P A, Geindre J P, Audebert P, Gauthier J C, Froster E, Martin J L, Antonetti A 1997 *Nature* **390** 490
- [4] Ihee H, Lobastov V A, Gomez U M, Goodson B M, Srinivasan R, Ruan C Y, Zewail A H 2001 *Science* **291** 458
- [5] Nie S, Wang X, Park H, Clinite R, Cao J 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 025901
- [6] Lein M, Hay N, Velotta R, Marangos J P, Knight P L 2002 *Phys. Rev. A* **66** 023805
- [7] Baker S, Robinson J S, Haworth C A, Teng H, Smith R A, Chirila C C, Lein M, Tisch J W, Marangos J P 2006 *Science* **312** 424
- [8] Meckel M, Comtois D, Zeidler D, Staudte A, Pavicic D, Bandulet H C, Pepin H, Kieffer J C, Dorner R, Villeneuve D M, Corkum P B 2008 *Science* **320** 1478
- [9] Li W, Zhou X, Lock R, Patchkovskii S, Stolow A, Kapteyn H C, Murnane M M 2008 *Science* **322** 1207
- [10] Smirnova O, Mairesse Y, Patchkovskii S, Dudovich N, Villeneuve D, Corkum P, Ivanov M Y 2009 *Nature* **460** 972
- [11] Lein M 2007 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **40** R135
- [12] Lin C D, Le A T, Chen Z, Morishita T, Lucchese R 2010 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **43** 122001
- [13] Itatani J, Levesque J, Zeidler D, Niikura H, Pepin H, Kieffer J C, Corkum P B, Villeneuve D M 2004 *Nature* **432** 867
- [14] Haessler S, Caillat J, Boutu W, Giovanetti-Teixeira C, Ruchon T, Auguste T, Diveki Z, Breger P, Maquet A, Carre B, Taieb R, Salières P 2010 *Nat. Phys.* **6** 200
- [15] Schwarz W H E 2006 *Angew. Chem.-Int. Edit.* **45** 1508
- [16] Le V H, Le A T, Xie R H, Lin C 2007 *Phys. Rev. A* **76** 013414
- [17] Patchkovskii S, Zhao Z, Brabec T, Villeneuve D 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 123003
- [18] Patchkovskii S, Zhao Z, Brabec T, Villeneuve D M 2007 *J. Chem. Phys.* **126** 114306
- [19] Marconi M C, Martinez O E, Diodati F P 1985 *Opt. Lett.* **10** 402
- [20] Fork R L, Greene B I, Shank C V 1981 *Appl. Phys. Lett.* **38** 671
- [21] Spence D E, Kean P N, Sibbett W 1991 *Opt. Lett.* **16** 42
- [22] Strickland D, Mourou G 1985 *Opt. Commun.* **55** 447
- [23] Yamane K, Zhang Z, Oka K, Morita R, Yamashita M, Suguro A 2003 *Opt. Lett.* **28** 2258
- [24] Matsubara E, Yamane K, Sekikawa T, Yamashita M 2007 *J. Opt. Soc. Am. B* **24** 985
- [25] Tajima T, Mourou G 2002 *Phys. Rev. Spec. Top-Ac.* **5** 031301
- [26] Lan P, Lu P, Cao W, Wang X 2005 *Phys. Rev. E: Stat. Nonlin. Soft. Matter Phys.* **72** 066501
- [27] Lan P, Lu P, Cao W 2006 *Phys. Plasmas* **13** 013106
- [28] Becker W, Grasbon F, Kopold R, Milošević D B, Paulus G G, Walther H 2002 *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **48** 35
- [29] Agostini P, Fabre F, Mainfray G, Petite G, Rahman N K 1979 *Phys. Rev. Lett.* **42** 1127
- [30] Kruit P, Kimman J, Muller H G, van der Wiel M J 1983 *Phys. Rev. A* **28** 248
- [31] Agostini P, Kupersztych J, Lompré L A, Petite G, Yergeau F 1987 *Phys. Rev. A* **36** 4111
- [32] Quan W, Lin Z, Wu M, Kang H, Liu H, Liu X, Chen J, Liu J, He X T, Chen S G, Xiong H, Guo L, Xu H, Fu Y, Cheng Y, Xu Z Z 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 093001
- [33] Li M, Zhang P, Luo S, Zhou Y, Zhang Q, Lan P, Lu P, 2015 *Phys. Rev. A* **92** 063404
- [34] Paulus G G, Nicklich W, Xu H, Lambropoulos P, Walther H 1994 *Phys. Rev. Lett.* **72** 2851
- [35] Paulus G G, Nicklich W, Zacher F, Lambropoulos P, Walther H 1996 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **29** 249
- [36] Winterfeldt C, Spielmann C, Gerber G 2008 *Rev. Mod. Phys.* **80** 117
- [37] Walker B, Sheehy B, Dimauro L F, Agostini P, Schafer K J, Kulander K C 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 1227
- [38] Ammosov M V, Delone N B, Krainov V P 1986 *Soviet Phys. JETP* **64** 1191
- [39] Walker B, Mevel E, Yang B, Breger P, Chambaret J P, Antonetti A, DiMauro L F, Agostini P 1993 *Phys. Rev. A* **48** R894
- [40] Fittinghoff D N, Bolton P R, Chang B, Kulander K C 1994 *Phys. Rev. A* **49** 2174
- [41] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [42] Schafer K, Yang B, DiMauro L, Kulander K 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 1599

- [43] Lein M, Gross E K U, Engel V 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 4707
- [44] Tong A, Zhou Y, Lu P 2015 *Opt. Express* **23** 15774
- [45] Chen Y, Zhou Y, Li Y, Li M, Lan P, Lu P 2016 *J. Chem. Phys.* **144** 024304
- [46] Ma X, Zhou Y, Lu P 2016 *Phys. Rev. A* **93** 013425
- [47] 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
- [48] Zhao K, Zhang Q, Chini M, Wu Y, Wang X, Chang Z 2012 *Opt. Lett.* **37** 3891
- [49] Cao W, Lu P, Lan P, Wang X, Yang G 2006 *Phys. Rev. A* **74** 063821
- [50] Lan P, Lu P, Cao W, Li Y, Wang X 2007 *Phys. Rev. A* **76** 051801
- [51] Lan P, Lu P, Cao W, Li Y, Wang X 2007 *Phys. Rev. A* **76** 021801
- [52] Lan P, Lu P, Cao W, Wang X 2007 *Phys. Rev. A* **76** 043808
- [53] Lan P, Lu P, Cao W, Wang X, Hong W 2007 *Opt. Lett.* **32** 1186
- [54] Hong W, Li Y, Lu P, Lan P, Zhang Q, Wang X 2008 *J. Opt. Soc. Am. B* **25** 1684
- [55] Lan P, Lu P, Cao W, Li Y, Wang X 2007 *Phys. Rev. A* **76** 011402
- [56] Lan P, Lu P, Li Q, Li F, Hong W, Zhang Q 2009 *Phys. Rev. A* **79** 043413
- [57] Lan P, Lu P, Cao W, Wang X, Yang G 2006 *Phys. Rev. A* **74** 063411
- [58] Luo J H, Li Y, Wang Z, Zhang Q B, Lu P X 2013 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **46** 145602
- [59] Chang Z 2004 *Phys. Rev. A* **70** 043802
- [60] Zhang Q, Lu P, Lan P, Hong W, Yang Z 2008 *Opt. Express* **16** 9795
- [61] Gaarde M B, Tate J L, Schafer K J 2008 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **41** 132001
- [62] He L, Lan P, Zhang Q, Zhai C, Wang F, Shi W, Lu P 2015 *Phys. Rev. A* **92** 043403
- [63] Wang F, Li F, Wang Z 2016 *J. Opt. Soc. Am. B* **33** 1688
- [64] Cao W, Lu P, Lan P, Wang X, Li Y 2007 *Phys. Rev. A* **75** 063423
- [65] Lein M, Hay N, Velotta R, Marangos J, Knight P 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 183903
- [66] Kanai T, Minemoto S, Sakai H 2005 *Nature* **435** 470
- [67] Vozzi C, Calegari F, Benedetti E, Caumes J P, Sansone G, Stagira S, Nisoli M, Torres R, Heesel E, Kajumba N, Marangos J, Altucci C, Velotta R 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 153902
- [68] Wong M C H, Brichta J P, Bhardwaj V R 2010 *Phys. Rev. A* **81** 061402
- [69] Ciappina M F, Becker A, Jaroń-Becker A 2008 *Phys. Rev. A* **78** 063405
- [70] Lein M 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 053004
- [71] Zhu X, Zhang Q, Hong W, Lan P, Lu P 2011 *Opt. Express* **19** 436
- [72] Etches A, Gaarde M B, Madsen L B 2011 *Phys. Rev. A* **84** 023418
- [73] Qin M, Zhu X, Zhang Q, Hong W, Lu P 2011 *Opt. Express* **19** 25084
- [74] Zhang X, Li Y, Zhu X, Zhang Q, Lan P, Lu P 2016 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **49** 015602
- [75] Hijano E, Serrat C, Gibson G N, Biegert J 2010 *Phys. Rev. A* **81** 041401
- [76] Qin M Y, Zhu X S, Liu K L, Zhang Q B, Lu P X 2012 *Opt. Express* **20** 20181
- [77] Lan P, Lu P, Li F, Li Y, Yang Z 2008 *Opt. Express* **16** 5868
- [78] Li Y, Qin M, Zhu X, Zhang Q, Lan P, Lu P 2015 *Opt. Express* **23** 10687
- [79] Blaga C I, Xu J L, DiChiara A D, Sistrunk E, Zhang K K, Agostini P, Miller T A, DiMauro L F, Lin C D 2012 *Nature* **483** 194
- [80] Pullen M G, Wolter B, Le A T, Baudisch M, Hemmer M, Sentfleben A, Schroter C D, Ullrich J, Moshhammer R, Lin C D, Biegert J 2015 *Nat. Commun.* **6** 7262
- [81] Huismans Y, Rouzée A, Gijsbertsen A, Jungmann J H, Smolkowska A S, Logman P S W M, Lépine F, Cauchy C, Zamith S, Marchenko T, Bakker J M, Berden G, Redlich B, van der Meer A F G, Muller H G, Vermin W, Schafer K J, Spanner M, Ivanov M Y, Smirnova O, Bauer D, Popruzhenko S V, Vrakking M J J 2011 *Science* **331** 61
- [82] Zhou Y, Tolstikhin O I, Morishita T 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 173001
- [83] Chen L, Huang C, Zhu X, Lan P, Lu P 2014 *Opt. Express* **22** 20421
- [84] He M, Li Y, Zhou Y, Li M, Lu P 2016 *Phys. Rev. A* **93** 033406
- [85] Tong X M, Zhao Z X, Lin C D 2002 *Phys. Rev. A* **66** 033402
- [86] Lin C D, Tong X M, Zhao Z X 2006 *J. Mod. Opt.* **53** 21
- [87] Corkum P B 2011 *Phys. Today* **64** 36
- [88] Kamta G, Bandrauk A 2006 *Phys. Rev. A* **74** 033415
- [89] Zhu X, Zhang Q, Hong W, Lu P, Xu Z 2011 *Opt. Express* **19** 13722
- [90] Petersen I, Henkel J, Lein M 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 103004
- [91] Zhu X, Zhang Q, Hong W, Lu P, Xu Z 2011 *Opt. Express* **19** 24198
- [92] Barth I, Smirnova O 2011 *Phys. Rev. A* **84** 063415
- [93] Herath T, Yan L, Lee S K, Li W 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 043004
- [94] Zhu X, Lan P, Liu K, Li Y, Liu X, Zhang Q, Barth I, Lu P 2016 *Opt. Express* **24** 4196
- [95] Kaushal J, Morales F, Smirnova O 2015 *Phys. Rev. A* **92** 063405
- [96] Ng R 2005 *ACM Trans. Graph.* **4** 735
- [97] https://en.wikipedia.org/wiki/Projection-slice_theorem
- [98] Kanai T, Minemoto S, Sakai H 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 053002
- [99] Chen Y J, Liu J, Hu B 2009 *J. Chem. Phys.* **130** 044311

- [100] Zhu X, Qin M, Zhang Q, Li Y, Xu Z, Lu P 2013 *Opt. Express* **21** 5255
- [101] Zhu X, Qin M, Li Y, Zhang Q, Xu Z, Lu P 2013 *Phys. Rev. A* **87** 045402
- [102] Le A T, Lucchese R R, Tonzani S, Morishita T, Lin C D 2009 *Phys. Rev. A* **80** 013401
- [103] Zhu X, Liu X, Lan P, Wang D, Zhang Q, Li W, Lu P 2016 *Opt. Express* **24** 24824
- [104] van der Zwan E, Lein M 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 043004
- [105] Jin C, Le A T, Lin C D 2011 *Phys. Rev. A* **83** 053409
- [106] Rupenyan A, Kraus P M, Schneider J, Wörner H J 2013 *Phys. Rev. A* **87** 031401
- [107] Qin M, Zhu X, Li Y, Zhang Q, Lan P, Lu P 2014 *Phys. Rev. A* **89** 013410
- [108] Qin M, Zhu X, Li Y, Zhang Q, Lan P, Lu P 2014 *Opt. Express* **22** 6362
- [109] Qin M, Zhu X 2017 *Opt. Laser Technol.* **87** 79
- [110] Vozzi C, Negro M, Calegari F, Sansone G, Nisoli M, De Silvestri S, Stagira S 2011 *Nat. Phys.* **7** 822
- [111] Frisch M J, Trucks G W, Schlegel H B, Scuseria G E, Robb M A, Cheeseman J R, Nakatsuji H 2009 *Gaussian 09*; Gaussian, Inc: Wallingford, CT
- [112] van der Zwan E V, Chirilă C C, Lein M 2008 *Phys. Rev. A* **78** 033410
- [113] Wu M, Wang Y, Liu X, Li W, Hao X, Chen J 2013 *Phys. Rev. A* **87** 013431
- [114] Fu L B, Liu J, Chen J, Chen S G 2001 *Phys. Rev. A* **63** 043416
- [115] Zhu X, Liu X, Li Y, Qin M, Zhang Q, Lan P, Lu P 2015 *Phys. Rev. A* **91** 043418
- [116] Zeng Z, Cheng Y, Song X, Li R, Xu Z 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 203901
- [117] Hong W, Lu P, Li Q, Zhang Q 2009 *Opt. Lett.* **34** 2102
- [118] Hong W, Lu P, Lan P, Yang Z, Li Y, Liao Q 2008 *Phys. Rev. A* **77** 033410
- [119] Weiyi H, Peixiang L, Wei C, Pengfei L, Xinlin W 2007 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **40** 2321
- [120] Cao W, Lu P, Lan P, Wang X, Yang G 2007 *Opt. Express* **15** 530
- [121] Hong W, Lu P, Lan P, Zhang Q, Wang X 2009 *Opt. Express* **17** 5139
- [122] Wei C, Peixiang L, Pengfei L, Weiyi H, Xinlin W 2007 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **40** 869
- [123] Qin M, Zhu X, Zhang Q, Lu P 2012 *Opt. Lett.* **37** 5208
- [124] Holmegaard L, Hansen J L, Kalhoj L, Louise Kragh S, Stapelfeldt H, Filsinger F, Kupper J, Meijer G, Dimitrovski D, Abu-samha M, Martiny C P J, Bojer Madsen L 2010 *Nat. Phys.* **6** 428
- [125] Etches A, Madsen L B 2010 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **43** 155602
- [126] Wang Z, Li M, Zhou Y, Li Y, Lan P, Lu P 2016 *Phys. Rev. A* **93** 013418
- [127] Shafir D, Mairesse Y, Wörner H J, Rupnik K, Villeneuve D M, Corkum P B, Dudovich N 2010 *New J. Phys.* **12** 073032
- [128] Niikura H, Dudovich N, Villeneuve D, Corkum P 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 053003
- [129] Wang B C, Zhang Q B, Zhu X S, Lan P F, Lu P X 2016 *Asymmetric molecular orbital tomography with a two-color orthogonally polarized multicycle laser field* (submitted to *Opt. Lett.*)
- [130] Chen Y J, Fu L B, Liu J 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 073902
- [131] Chen Y, Zhang B 2011 *Phys. Rev. A* **84** 053402
- [132] Meckel M, Staudte A, Patchkovskii S, Villeneuve D M, Corkum P B, Dörner R, Spanner M 2014 *Nat. Phys.* **10** 594
- [133] Ciappina M, Chirilă C, Lein M 2007 *Phys. Rev. A* **75** 043405
- [134] Zhu X, Qin M, Zhang Q, Hong W, Xu Z, Lu P 2012 *Opt. Express* **20** 16275
- [135] Salières P, Maquet A, Haessler S, Caillat J, Taïeb R 2012 *Rep. Prog. Phys.* **75** 062401
- [136] Li Y, Zhu X, Lan P, Zhang Q, Qin M, Lu P 2014 *Phys. Rev. A* **89** 045401
- [137] Chuluunbaatar O, Joulakian B B, Tsookhuu K, Vinitsky S I 2004 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **37** 2607
- [138] Peng L Y, Gong Q 2010 *Comput. Phys. Commun.* **181** 2098
- [139] Zhai C, He L, Lan P, Zhu X, Li Y, Wang F, Shi W, Zhang Q, Lu P 2016 *Sci. Rep.* **6** 23236
- [140] Torres R, Siegel T, Brugnera L, Procino I, Underwood J G, Altucci C, Velotta R, Springate E, Froud C, Turcu I C, Ivanov M Y, Smirnova O, Marangos J P 2010 *Opt. Express* **18** 3174
- [141] Torres R, Siegel T, Brugnera L, Procino I, Underwood J G, Altucci C, Velotta R, Springate E, Froud C, Turcu I C E, Patchkovskii S, Ivanov M Y, Smirnova O, Marangos J P 2010 *Phys. Rev. A* **81** 051802
- [142] Zhu X, Wang Z 2016 *Opt. Commun.* **365** 125

SPECIAL TOPIC — Atomic and molecular processes driven by ultrafast intense laser fields

Molecular orbital imaging with high spatial and temporal resolutions*

Zhu Xiao-Song¹⁾ Zhang Qing-Bin¹⁾ Lan Peng-Fei^{1)†} Lu Pei-Xiang^{1)2)‡}

1) (*School of Physics and Wuhan National Laboratory for Optoelectronics, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China*)

2) (*Laboratory of Optical Information Technology, Wuhan Institute of Technology, Wuhan 430205, China*)

(Received 18 September 2016; revised manuscript received 21 October 2016)

Abstract

When atoms and molecules are excited by ultrashort laser pulses, highly nonlinear strong-field processes like above-threshold ionization and high harmonic generation occur. By analyzing the emitted light and electron signals, the atomic and molecular structures and ultrafast dynamics can be detected with a combination of Angstrom spatial resolution and sub-femtosecond temporal resolution, which provides a powerful tool to study the basic structures and physical processes in the microscopic world. The molecular orbital tomography (MOT) developed since 2004 enables one to image the wavefunction of the molecular orbital itself, which will help people gain deeper insight into the chemical reactions. In this paper, the theory of MOT will be introduced, and the progresses of MOT in the past ten years will be reviewed.

Keywords: femtosecond laser, molecular high harmonic generation, molecular orbital, tomographic imaging

PACS: 42.65.Ky, 33.20.Xx, 31.15.at

DOI: [10.7498/aps.65.224207](https://doi.org/10.7498/aps.65.224207)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11404123, 11234004, 61275126, 11422435, 11574101).

† Corresponding author. E-mail: pengfeilan@mail.hust.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: lupeixiang@mail.hust.edu.cn

中红外飞秒激光场中氮分子高次谐波的多轨道干涉特性研究

李贵花 谢红强 姚金平 储蔚 程亚 柳晓军 陈京 谢新华

Signature of multi-channel interference in high-order harmonic generation from N_2 driven by intense mid-infrared pulses

Li Gui-Hua Xie Hong-Qiang Yao Jin-Ping Chu Wei Cheng Ya Liu Xiao-Jun Chen Jing Xie Xin-Hua

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 224208 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.224208

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.224208>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I22>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

不同核轴取向的 O_2 的高次谐波

High-order harmonic generation of O_2 molecules with different nuclear axis orientations

物理学报.2016, 65(11): 114205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.114205>

离轴涡旋光束弱走离条件下的倍频效应

Frequency doubling effect of off-axial vortex beam in the case of weak walk-off

物理学报.2015, 64(24): 244204 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.244204>

掺铒光纤中方波信号高次谐波的快慢光特性

Superluminal and slow light of high-order harmonic for rectangle signal in erbium-doped fiber

物理学报.2015, 64(24): 244205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.244205>

高次谐波的 Guo-Åberg-Crasemann 理论及其截断定律

Guo-Åberg-Crasemann theory for high harmonic generation and its cutoff law

物理学报.2015, 64(12): 124207 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.124207>

KTP 倍频器件温度适应性扩展研究

Study on temperature adaptability extension of KTP frequency-doubling device

物理学报.2015, 64(9): 094205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.094205>

专题: 超快强激光驱动原子分子过程

中红外飞秒激光场中氮分子高次谐波的多轨道干涉特性研究*

李贵花¹⁾ 谢红强²⁾ 姚金平³⁾ 储蔚³⁾ 程亚^{3)†} 柳晓军⁴⁾
陈京⁵⁾ 谢新华⁶⁾

1)(华东交通大学理学院, 南昌 330013)

2)(东华理工大学理学院, 南昌 330013)

3)(中国科学院上海光学精密机械研究所, 强场激光物理国家重点实验室, 上海 201800)

4)(中国科学院武汉物理与数学研究所, 波谱与原子分子物理国家重点实验室, 武汉 430071)

5)(北京应用物理与计算数学研究所, 北京 100088)

6)(维也纳技术大学光子学研究所, 奥地利维也纳 A-1040)

(2016年8月30日收到; 2016年10月13日收到修改稿)

通过系统研究氮分子高次谐波产生过程中的电子超快动力学过程, 实验上发现在中红外飞秒强激光场驱动下高次谐波谱的截止区附近存在清晰的谐波谱极小值. 进一步研究表明谐波谱极小值对应的光子能量强烈依赖于驱动激光脉冲的光强和波长, 而与分子取向角无关, 由此推断该极小值来源于氮分子最高占据分子轨道和次最高占据分子轨道产生的高次谐波之间的相消干涉. 本研究结果将对极端强场条件下多轨道电子超快动力学研究起到积极推动作用.

关键词: 中红外飞秒激光, 高次谐波, 分子多轨道干涉

PACS: 42.65.Ky, 42.65.Sf

DOI: 10.7498/aps.65.224208

1 引言

强场激光驱动原子分子产生高次谐波 (High-order harmonic generation, HHG) 自从1987年被发现以来一直是国际物理研究的前沿和热点^[1,2]. 高次谐波产生过程可由Corkum^[3,4]提出的半经典模型(三步模型)来直观描述. 根据该模型, 高次谐波产生包括三个过程: 1) 电离过程, 当强激光场作用于原子分子, 原子分子的势阱会发生明显形变, 被束缚的电子通过隧穿电离方式从形变的势阱中

逃逸出来, 变成连续态的自由电子; 2) 加速过程, 逃逸的自由电子沿着强激光场偏振方向运动, 获得一定的动能; 3) 回碰过程, 一部分自由电子在特定时刻可以被强激光场拉回到母离子附近并与母离子复合发射出高能光子, 即产生高次谐波辐射. 由于高次谐波内在的高度非线性特性, 高次谐波的产生为实现台式化相干X射线源以及产生阿秒脉冲提供了一种有效途径^[5-7]. 此外, 高次谐波产生过程也是“自探测”的过程, 即不同级次的高次谐波信号(包括振幅与相位信息)内含丰富的分子轨道信息, 为分子结构探测、超快动力学追踪与操控提供了一

* 国家重点基础研究发展计划(973计划)(批准号: 2014CB921300, 2013CB922201)、国家自然科学基金(批准号: 11127901, 11134010, 61575211, 11304330, 11404357, 61405220, 11274050, 11334009, 61605227)和上海市扬帆计划(批准号: 14YF1406100, 16YF1412700)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: ya.cheng@siom.ac.cn

种极具前景的手段^[8-14].

由于隧穿电离概率与分子轨道电离势能呈负指数依赖关系,在强场分子物理研究的初期,人们普遍认为最高占据分子轨道(HOMO)对阈上电离、高次谐波等强场物理现象的贡献起决定性作用,而忽略了分子内层轨道的贡献.近几年,不断有研究结果表明分子内层轨道的电子也在强激光与分子相互作用过程中发挥着不可忽略的作用,这与分子的轨道结构、最高占据轨道与低能占据轨道之间的能量差异较小直接相关^[15-17].特别值得指出的是,由于高次谐波产生是一种相干辐射过程,不同分子轨道贡献的高次谐波之间相互干涉会导致高次谐波谱出现相应的干涉极大值(尖峰)或极小值(低谷)^[12,18,19].

目前,高次谐波光谱极小值主要分为三类,第一类极小值为“类库珀极小值”(Cooper-like minimum),以氮分子高次谐波谱为例,该类极小值位于光子能量为 ~ 40 eV的谐波谱附近,且不随驱动光场的参数(如光强、波长、偏振方向等)、分子取向角变化而改变^[20-22].第二类极小值来源于组成分子的不同原子辐射的高次谐波之间的相消干涉,即“双中心干涉极小值”,该类极小值不会随着驱动光场的参数进行变化,但是却强烈依赖于分子取向角^[23,24].第三类极小值被称为“多轨道干涉极小值”,来源于分子不同分子轨道辐射的高次谐波之间的相消干涉,该类极小值的位置强烈依赖于驱动光场的参数条件,且对分子取向不敏感^[25-28].辨明高次谐波谱极小值的类型对于解析分子轨道结构或者追踪分子内部的超快动力学过程具有至关重要的作用,这也是目前阿秒物理研究中的一个非常重要的课题.

在本工作中,我们重点研究在不同驱动激光波长条件下氮分子多轨道干涉对高次谐波的影响.在以往的工作中,氮分子高次谐波谱极小值的研究由于受到驱动波长(多为800 nm左右的近红外波段)的限制主要出现在光子能量为 ~ 40 eV附近的谐波谱^[9,16,20,28,29].在较低光子能量的高次谐波谱范围内,不同类型高次谐波谱极小值的光子能量十分接近,例如,当驱动激光场波长设定为 ~ 800 nm的近红外波段,氮分子高次谐波的库珀极小值与氮分子双中心干涉极小值都位于40 eV附近,难以分辨.此外,氮分子谐波的能谱范围有限且相邻谐波级次之间能量间隔大、级次稀疏,不利于多轨道干涉极

小值的观察与研究.为解决上述问题,我们采用中红外波段的强场激光脉冲驱动氮分子产生高次谐波,一方面,由于高次谐波的截止能量与驱动波长的平方成正比^[30],采用长波长的激光脉冲能极大拓展高次谐波谱范围^[31];另一方面,谐波谱相邻级次之间能量间隔会减小(反比于波长).这为观察氮分子高次谐波的多轨道干涉极小值研究提供了有力的实验保障.实验上,我们采用波长可调谐的中红外飞秒激光脉冲驱动氮分子产生高次谐波,系统研究了氮分子高次谐波中的多轨道干涉效应.

2 实验装置

图1为实验装置简图.钛宝石激光系统(Legend Elite-Duo, Coherent, Inc.)输出中心波长 ~ 800 nm、脉冲宽度 ~ 40 fs、单脉冲能量6 mJ、重复频率1 kHz的激光脉冲,通过分束比为1:19的分束镜分为两束.低能量的激光束作为抽运光,用于将氮气分子排列.高能量的激光束用于抽运光学参量放大系统(OPA, HE-TOPAS, Light Conversion, Ltd),输出波长可调谐(1150—2500 nm)的中红外波段飞秒脉冲作为探测光,驱动氮分子产生高次谐波.当不需要对氮分子排列时,我们用挡板将抽运光挡住.为了有效地排列氮分子,实验中我们将抽运光的脉冲宽度展宽至 ~ 70 fs,并将光斑直径通过一个倒置的望远系统缩小到原来的一半,同时抽运脉冲聚焦光强通过控制光路中的光阑大小实现连续可调.抽运光与探测光之间的延时设定为 ~ 4.1 ps(氮分子转动周期 $T_{\text{rot}} = 8.2$ ps),此时氮分子为最佳排列状态,氮分子轴平行于抽运激光的偏振方向.初始时抽运光与探测光的偏振方向设为一致,抽运光光路中插入一片半波片用于调节分子的取向角.抽运光与探测光通过双色镜合束后被透镜聚焦到真空腔的靶气体中,靶气体是由直径为0.5 mm、气压为3 bar、三维位置可调的气体喷嘴喷出的氮分子气体.氮分子产生的高次谐波信号通过自主设计的光谱仪后最终由软X射线CCD进行采集^[32].实验中探测光的光强可通过改变探测光光路中的光阑大小或转动两块很薄的石英玻璃片实现连续调节^[33].实验中通过调节透镜、气体喷嘴位置以及光阑大小优化高次谐波的产率和截止能量.

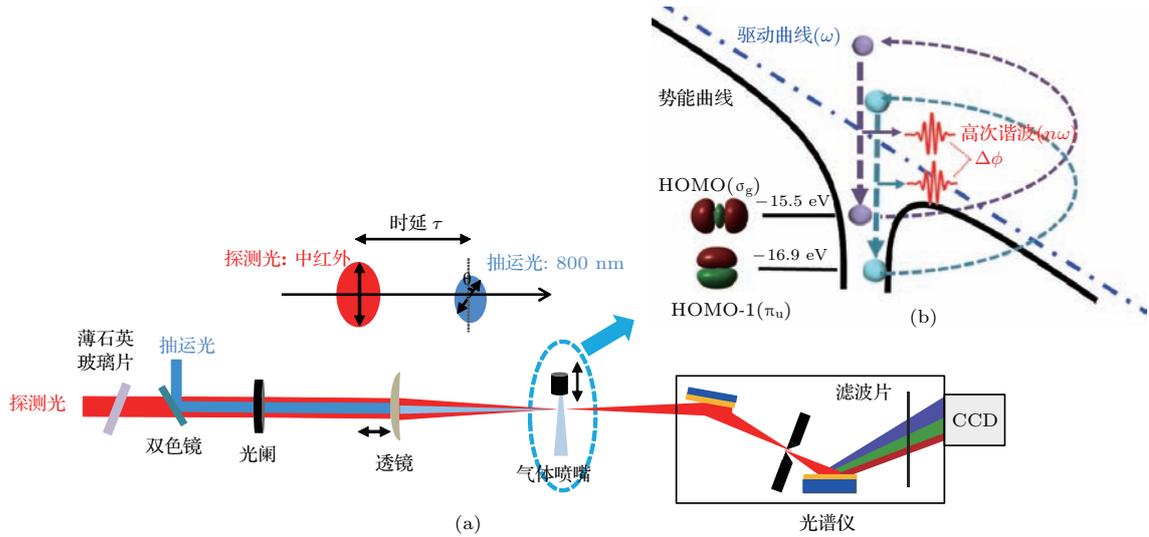


图1 (a) 实验装置简图; (b) 氮分子的最高占据分子轨道 (HOMO) 与次最高占据分子轨道 (HOMO-1) 产生的高次谐波相互干涉示意图, 其中 $\Delta\phi$ 为两分子轨道对应的高次谐波信号之间的相位差

Fig. 1. (a) Schematic diagram of the pump-probe experimental setup; (b) the interference process between two different channels of HHG from HOMO and HOMO-1 in N_2 molecules.

3 实验结果

图2是在不同激光光强条件下随机取向氮分子产生的高次谐波信号. 在改变激光光强时, 激光的中心波长固定为1500 nm, 激光焦点位于气体喷嘴后1.5 cm处, 此时相位匹配条件有利于长轨道高次谐波的产生^[34]. 图2结果表明: 当激光光强为 $1.97 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时, 极小值出现在 $\sim 101 \text{ eV}$, 极小值光子能量与谐波谱的截止能量 $\sim 116 \text{ eV}$ 十分接近, 如图2(a)所示; 当光强降低到 $1.80 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 和 $1.63 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 谐波谱极小值对应的光子能量相应地减小到 $\sim 92 \text{ eV}$ 与 85 eV , 如图2(b)和图2(c)所示, 极小值光子能量仍与相应谐波谱截止能量相近; 当驱动激光的光强下降到 $\sim 1.44 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时, 高次谐波谱上的极小值消失, 如图2(d)所示. 值得指出的是, 考虑到相位匹配条件, 激光场光强的标定均是基于高次谐波截止能量公式 $E_{\text{cutoff_exp}} \propto I\lambda^{1.7}$ ^[35-38], 其中 $E_{\text{cutoff_exp}}$ 为观察到的谐波截止能量, I 为标定的光强, λ 为激光波长.

我们进一步研究了氮分子谐波谱极小值与分子取向角(即分子轴与探测光偏振方向的夹角)的关系, 结果如图3所示. 在该实验中, 我们将抽运光与探测光的延时设为 $\sim 4.1 \text{ ps}$, 是氮分子 $1/2$ 转动周期附近氮分子取向最佳的时刻, 其取向度估算

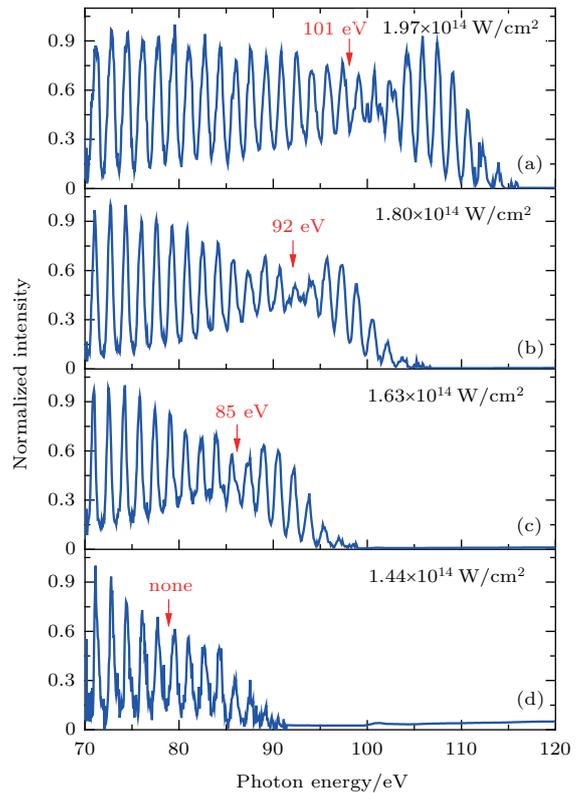


图2 中心波长为1500 nm, 光强为(a) $1.97 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, (b) $1.80 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, (c) $1.63 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 和 (d) $1.44 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 的飞秒激光脉冲在随机取向的氮气分子中产生的高次谐波谱

Fig. 2. Typical HHG spectra recorded with 1500 nm pulses from unaligned N_2 molecules at the laser intensities of (a) $1.97 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, (b) $1.80 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, (c) $1.63 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ and (d) $1.44 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

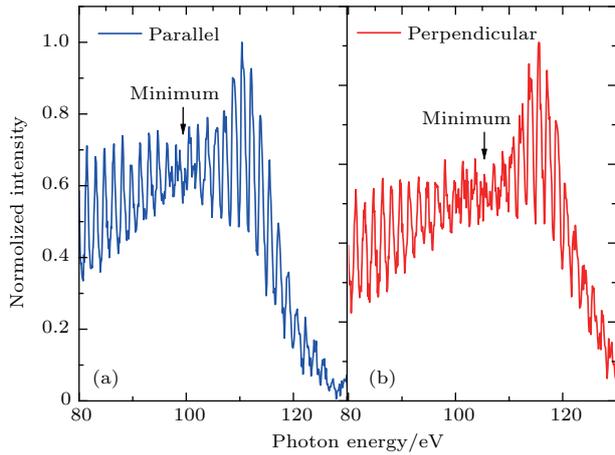


图3 氮分子 (a) 分子轴平行于探测光偏振方向和 (b) 分子轴垂直于探测光偏振方向时获得的高次谐波谱, 其中抽运光为 800 nm 的近红外激光脉冲, 探测光是中心波长为 1500 nm、光强为 $2.16 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 的中红外激光脉冲, 两种取向条件下测得的谐波谱分别进行了归一化处理

Fig. 3. Normalized HHG spectra recorded with 1500 nm laser pulses at a peak intensity of $\sim 2.16 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ when N_2 molecules are aligned (a) parallel and (b) perpendicular to the polarization of probe pulses.

为 $\langle \cos^2 \theta \rangle = 0.6$ [39,40], 探测光光强为 $2.16 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. 如图 3(a) 所示, 当分子轴平行于探测光的偏振方向时, 谐波谱上出现明显的极小值, 该极小值位于 $\sim 103 \text{ eV}$, 与谐波的截止能量相近, 这与在非取向条件下观察的谐波谱是相似的 [图 2(a)]. 通过转动半波片将取向角转动 90° , 即分子轴方向转为与探测光偏振方向垂直, 产生的高次谐波谱如图 3(b), 该结果与分子轴平行于探测光方向十分相似, 但谐波谱的极小值变得更为明显, 极小值能量依然在 $\sim 103 \text{ eV}$ 附近. 实验结果表明, 我们观察到的谐波谱极小值位置与分子的取向是无关的.

最后, 我们研究了谐波谱极小值与驱动波长的关系, 实验中选取了 1500 nm, 1400 nm, 1300 nm 三个不同波长, 得到的谐波谱如图 4 所示. 为了更好地比较三种不同驱动波长下产生的高次谐波谱, 我们调整探测光光强以保证不同波长条件下谐波谱拥有接近的谐波截止能量 (约为 110 eV). 当驱动波长为 1500 nm 时 (图 4(a)), 谐波谱出现明显的极小值 $\sim 92 \text{ eV}$. 将波长切换到 1400 nm (图 4(b)), 谐波谱的极小值位置向低能区移动到 $\sim 86 \text{ eV}$. 再将驱动波长继续减小到 1300 nm, 谐波谱的极小值仍清晰可见, 并再次向高能区移动到 $\sim 93 \text{ eV}$. 由此证明, 实验中观察到的谐波谱极小值强烈依赖于激光的波长. 值得一提的是, 当驱动波长为 1400 nm、

1300 nm 时, 为获得清晰的谐波谱极小值, 实验中需要调整聚焦透镜的前后位置使激光聚焦至气体喷嘴前, 此时相位匹配条件有利于短轨道高次谐波的产生 [34], 这与驱动波长为 1500 nm 时的相位匹配条件不同.

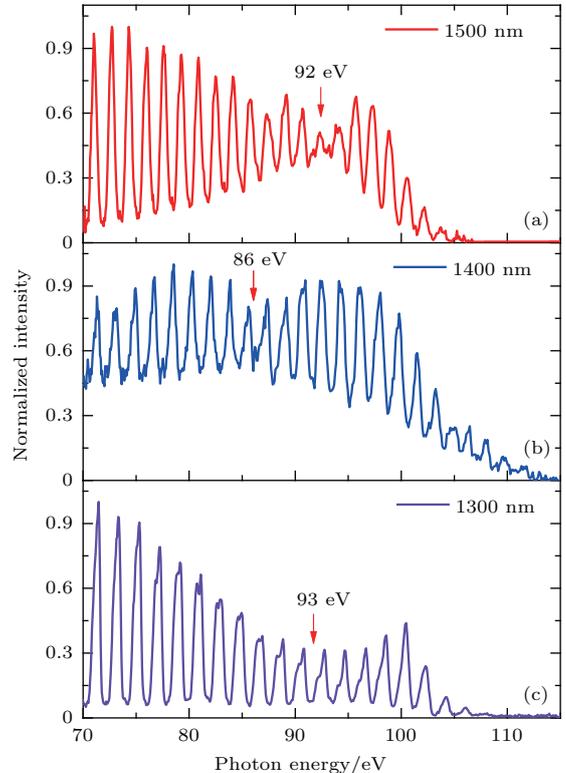


图4 中心波长为 (a) 1500 nm, (b) 1400 nm 和 (c) 1300 nm 的中红外激光脉冲在非取向的氮分子中产生的高次谐波谱. 为了保证谐波谱截止能量一致, (a)–(c) 的驱动光场强度分别为 $1.80 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $2.01 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 与 $2.30 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$

Fig. 4. Spectra of high-order harmonics driven by (a) 1500 nm, (b) 1400 nm and (c) 1300 nm laser pulses from randomly aligned N_2 molecules. The laser peak intensities at these three wavelengths are 1.80×10^{14} , 2.01×10^{14} and $2.30 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, respectively.

4 分析与讨论

实验中采用中红外波段的飞秒激光驱动氮分子产生高次谐波, 我们观察到了清晰的谐波谱极小值, 如图 2—图 4 所示. 目前, 实验上已观察到三类分子高次谐波谱极小值 (库珀极小值、双中心干涉极小值、多轨道干涉极小值), 辨明谐波谱极小值的来源对于分子高次谐波的分析以及分子轨道重构等具有至关重要的作用. 三类分子高次谐波谱极小值对实验参数 (激光光强、驱动波长、取向角等) 的不同依赖关系为我们澄清高次谐波谱极小值的

来源提供了重要的实验依据, 例如: 高次谐波多轨道干涉极小值对激光光强、激光波长十分敏感, 而库珀极小值、双中心干涉极小值不依赖于这两个参数; 双中心干涉极小值强烈依赖于分子的取向角, 而多轨道干涉极小值和库珀极小值的位置与取向角无关. 我们的实验结果表明观察到的高次谐波谱极小值随驱动光场的光强与波长变化强烈, 且与取向角无明显关系. 这些特性与多轨道干涉极小值的特点符合, 可排除双中心干涉和库珀极小值的可能性, 因此实验中观测到的高次谐波谱极小值可能来源于氮分子多轨道干涉极小值. 此外, 因为氮分子 HOMO 与 HOMO-1 轨道对高次谐波贡献的比例依赖于分子的取向角 [9,16], 造成氮分子高次谐波多轨道干涉极小值的凹陷深度(即干涉强度)也随取向角变化, 而库珀极小值与双中心干涉极小值的凹陷深度与取向角无显著关系. 如图 3 所示, 抽运-探测实验中当分子轴垂直于探测光偏振方向时谐波谱极小值凹陷程度相较于平行情况更为明显, 这也为确认谐波谱极小值来源于分子多轨道的相消干涉提供了新的证据.

细致分析高次谐波谱极小值位置与驱动光场强度关系, 我们发现在三种不同驱动波长条件下(1500 nm, 1400 nm, 1300 nm)谐波谱极小值的光子能量随驱动光场光强的增加呈线性增加关系, 如图 5 所示. 下面我们从理论上分析这种线性关系背后深层的物理含义.

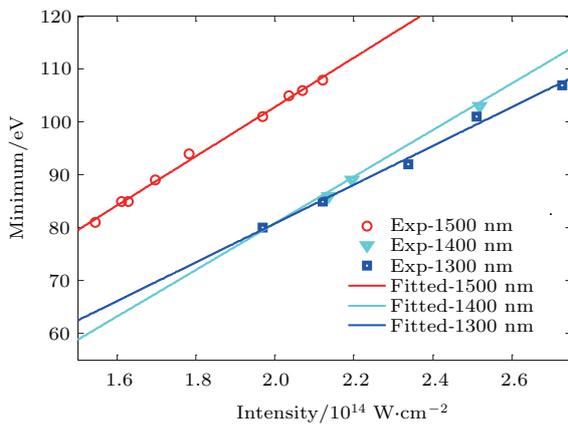


图 5 氮分子高次谐波谱极小值对应的光子能量随驱动激光光强的变化关系, 其中, 数据点为实验测量数据, 曲线为最佳线性拟合

Fig. 5. Measured positions of the spectral minima as a function of laser peak intensities for three wavelengths (1500, 1400 and 1300 nm). Three solid lines are linear fitting to the measured data, respectively.

对于简单的高次谐波模型, 高次谐波谱多轨道干涉极小值的位置(即光子能量)可以由不同分子

轨道辐射的高次谐波之间的相位差 $\Delta\phi$ 的关系式表示 [9,12,27,41]:

$$\Delta\phi = \Delta I_p \times \tau + \varphi = (2n + 1)\pi, \quad n = 0, 1, 2, 3, \dots, \quad (1)$$

其中 $\Delta\phi$ 是两个轨道(即氮分子的 HOMO 轨道与 HOMO-1 轨道)对应谐波信号之间的相位差, τ 表示电离出射的自由电子在激光场中的运行时间, ΔI_p 表示两分子轨道之间的电离势能差, 即 $\Delta I_p = I_{p(\text{HOMO-1})} - I_{p(\text{HOMO})} = 1.4 \text{ eV}$, φ 表示为了获得最好的拟合结果附加的相位. 基于 (1) 式, 我们可以通过经典三步模型 [3] 计算出对应的谐波谱极小值的位置. 通过分析, 对于 1300 nm 和 1400 nm 驱动波长, 实验观察到的谐波谱极小值十分符合公式 $\Delta\phi = \Delta I_p \times \tau - 0.5\pi = \pi$, 其中 $n = 0$, $\varphi = -0.5\pi$, $\tau = 2.23 \text{ fs} \approx 0.48 \times T_{1400 \text{ nm}} \approx 0.51 \times T_{1300 \text{ nm}}$. $\tau < 0.65T$ 与实验中短轨道高次谐波起主导作用符合 [42]. 当驱动波长为 1500 nm 时, 高次谐波的极小值满足公式: $\Delta\phi = \Delta I_p \times \tau + 0.5\pi = 3\pi$, 其中 $n = 1$, $\varphi = 0.5\pi$, $\tau = 3.83 \text{ fs} \approx 0.77 \times T_{1500 \text{ nm}}$. $\tau > 0.65T$ 与实验中长轨道高次谐波起主导作用符合 [42]. 作为对比, 我们将实验测量的谐波谱极小值与根据拟合公式计算的理论结果进行对比, 描绘出谐波谱极小值与谐波截止能量之间的关系, 如图 6 所示. 研究结果表明所有的实验数据均能与理论计算保持高度一致.

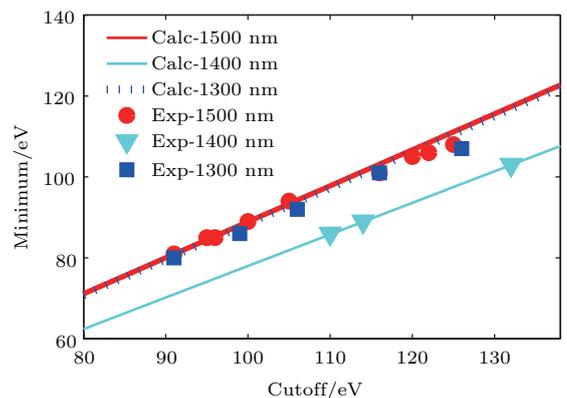


图 6 谐波谱极小值的光子能量随高次谐波截止能量的变化 其中数据点表示实验测量结果, 线条表示理论计算结果

Fig. 6. The measured and calculated minimum positions in harmonic spectra as a function of cutoff energy for three different laser wavelengths.

值得注意的是, 为获得最佳的拟合结果, 拟合公式中附加相位 $\varphi = \pm 0.5\pi$ 是不可或缺的. 附加相位来源于高次谐波产生过程中的电离或者回碰价

段. 一方面, 因为在我们的实验条件下电离已经进入深隧穿区域(Keldysh 参数 $\gamma < 1$ [43]), 隧穿电离过程造成的不同分子轨道相位差可忽略 [11]; 另一方面, 不同分子轨道的宇称对称性不同会在回碰阶段引入 $\pm 0.5\pi$ 的相位差 [9,12,27]. 最近, Diveki 等 [29] 报道了不同分子轨道电离的电子由于受到核运动的影响会引入另外一种相位差. 在我们以后的工作中, 将进一步探讨研究在中红外长波长激光驱动下的附加相位差对高次谐波多轨道干涉极小值的影响.

5 结 论

综上所述, 我们利用中红外波段超强飞秒激光脉冲驱动氮分子产生高次谐波, 实验中观察到在谐波谱截止区附近出现清晰的多轨道干涉极小值, 并通过系统研究澄清了谐波谱极小值的来源. 实验中我们发现谐波谱极小值与驱动光场光强呈线性关系, 并强烈依赖于激光波长, 却不随取向角变化而变化. 所有实验结果均有力支持了谐波谱极小值的多轨道干涉理论, 有效排除了库珀极小值与双中心干涉极小值的可能性. 需要强调的是, 实验结果表明利用中红外波段强场激光研究高次谐波谱多轨道干涉极小值具有以下明显优势: 1) 长波长激光脉冲可极大提高高次谐波谱的截止能量, 为极小值的产生、观察提供了更宽的谐波谱范围; 2) 长波长激光光源可产生更密集的谐波级次, 从而更精确地测量谐波谱极小值的光子能量; 3) 由参量放大器提供的中红外激光光源的波长可连续调节, 为谐波谱极小值的研究提供了更大的参量空间与更多的灵活性, 例如, 可通过调节激光波长使得谐波谱极小值出现在高次谐波谱的平台区或截止区; 4) 根据 Keldysh 参数的公式, 长波长激光光源可确保高次谐波产生中的电离过程发生在深隧穿区, 有利于将相关强场物理的研究对象推广到更低电离势的复杂分子中去. 因此, 长波长激光光源不仅在相干 XUV 光源和阿秒脉冲产生方面具有诱人的前景, 而且在研究强场分子的超精细结构与超快动力学过程具有独特优势.

参考文献

[1] 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

[2] Chen Z Y, Pukhov A 2016 *Nat. Commun.* **7** 12515
 [3] Corkum P 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
 [4] Santra R, Gordon A 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 073906
 [5] Gibson E A, Paul A, Wagner N, Tobey R, Gaudiosi D, Backus S, Christov I P, Aquila A, Gullikson E M, Attwood D T, Murnane M M, Kapteyn H C 2003 *Science* **302** 95
 [6] Corkum P B, Burnett N H, Ivanov M Y 1994 *Opt. Lett.* **19** 1870
 [7] Zeng B, Chu W, Li G, Yao J, Ni J, Zhang H, Cheng Y, Xu Z, Wu Y, Chang Z 2012 *Phys. Rev. A* **85** 033839
 [8] Itatani J, Levesque J, Zeidler D, Niikura H, Pepin H, Kieffer J C, Corkum P B, Villeneuve D M 2004 *Nature* **432** 867
 [9] Haessler S, Caillat J, Boutu W, Giovanetti-Teixeira C, Ruchon T, Auguste T, Diveki Z, Breger P, Maquet A, Carre B, Taieb R, Salieres P 2010 *Nat. Phys.* **6** 200
 [10] Vozzi C, Negro M, Calegari F, Sansone G, Nisoli M, De Silvestri S, Stagira S 2011 *Nat. Phys.* **7** 822
 [11] Uiberacker M, Uphues T, Schultze M, Verhoef A J, Yakovlev V, Kling M F, Rauschenberger J, Kabachnik N M, Schroder H, Lezius M, Kompa K L, Muller H G, Vrakking M J, Hendel S, Kleineberg U, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2007 *Nature* **446** 627
 [12] Smirnova O, Mairesse Y, Patchkovskii S, Dudovich N, Villeneuve D, Corkum P, Ivanov M Y 2009 *Nature* **460** 972
 [13] Dudovich N, Smirnova O, Levesque J, Mairesse Y, Ivanov M Y, Villeneuve D M, Corkum P B 2006 *Nat. Phys.* **2** 781
 [14] Xu H, Xiong H, Zeng B, Chu W, Fu Y, Yao J, Chen J, Liu X, Cheng Y, Xu Z 2010 *Opt. Lett.* **35** 472
 [15] Li W, Zhou X, Lock R, Patchkovskii S, Stolow A, Kapteyn H C, Murnane M M 2008 *Science* **322** 1207
 [16] McFarland B K, Farrell J P, Bucksbaum P H, Gühr M 2008 *Science* **322** 1232
 [17] Yao J, Li G, Jia X, Hao X, Zeng B, Jing C, Chu W, Ni J, Zhang H, Xie H, Zhang C, Zhao Z, Chen J, Liu X, Cheng Y, Xu Z 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 133001
 [18] Wörner H J, Bertrand J B, Hockett P, Corkum P B, Villeneuve D M 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 233904
 [19] Torres R, Siegel T, Brugnera L, Procino I, Underwood J G, Altucci C, Velotta R, Springate E, Froud C, Turcu I C E, Patchkovskii S, Ivanov M Y, Smirnova O, Marangos J P 2010 *Phys. Rev. A* **81** 051802
 [20] Bertrand J B, Wörner H J, Hockett P, Villeneuve D M, Corkum P B 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 143001
 [21] Higuier J, Ruf H, Thiré N, Cireasa R, Constant E, Cormier E, Descamps D, Mével E, Petit S, Pons B, Mairesse Y, Fabre B 2011 *Phys. Rev. A* **83** 053401
 [22] Wahlström C G, Larsson J, Persson A, Starczewski T, Svanberg S, Salières P, Balcou P, L' Huillier A 1993 *Phys. Rev. A* **48** 4709
 [23] Lein M, Hay N, Velotta R, Marangos J, Knight P 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 183903
 [24] Lein M, Hay N, Velotta R, Marangos J, Knight P 2002 *Phys. Rev. A* **66** 023805

- [25] Le A T, Tong X M, Lin C 2006 *Phys. Rev. A* **73** 041402
- [26] Kanai T, Minemoto S, Sakai H 2005 *Nature* **435** 470
- [27] Kato K, Minemoto S, Sakai H 2011 *Phys. Rev. A* **84** 021403
- [28] Vozzi C, Calegari F, Benedetti E, Caumes J P, Sansone G, Stagira S, Nisoli M, Torres R, Heesel E, Kajumba N, Marangos J, Altucci C, Velotta R 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 153902
- [29] Diveki Z, Camper A, Haessler S, Auguste T, Ruchon T, Carré B, Salières P, Guichard R, Caillat J, Maquet A, Taïeb R 2012 *New J. Phys.* **14** 023062
- [30] Krause J, Schafer K, Kulander K 1992 *Phys. Rev. Lett.* **68** 3535
- [31] Xiong H, Xu H, Fu Y, Yao J, Zeng B, Chu W, Cheng Y, Xu Z, Takahashi E J, Midorikawa K, Liu X, Chen J 2009 *Opt. Lett.* **34** 1747
- [32] Xu H, Xiong H, Zeng Z, Fu Y, Yao J, Li R, Cheng Y, Xu Z 2008 *Phys. Rev. A* **78** 033841
- [33] Ni J, Yao J, Zeng B, Chu W, Li G, Zhang H, Jing C, Chin S L, Cheng Y, Xu Z 2011 *Phys. Rev. A* **84** 063846
- [34] Antoine P, L'Huillier A, Lewenstein M 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 1234
- [35] Popmintchev T, Chen M C, Bahabad A, Gerrity M, Sidorenko P, Cohen O, Christov I P, Murnane M M, Kapteyn H C 2009 *PNAS* **106** 10516
- [36] Popmintchev T, Chen M C, Cohen O, Grisham M E, Rocca J J, Murnane M M, Kapteyn H C 2008 *Opt. Lett.* **33** 2128
- [37] Cirmi G, Lai C J, Granados E, Huang S W, Sell A, Hong K H, Moses J, Keathley P, Kärtner F X 2012 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **45** 205601
- [38] Chen M C, Arpin P, Popmintchev T, Gerrity M, Zhang B, Seaberg M, Popmintchev D, Murnane M M, Kapteyn H C 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 173901
- [39] Seideman T 1995 *J. Chem. Phys.* **103** 7887
- [40] Ortigoso J, Rodríguez M, Gupta M, Friedrich B 1999 *J. Chem. Phys.* **110** 3870
- [41] Kanai T, Takahashi E, Nabekawa Y, Midorikawa K 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 153904
- [42] Lewenstein M, Salières P, L'Huillier A 1995 *Phys. Rev. A* **52** 4747
- [43] Keldysh L V 1965 *Sov. Phys. JETP* **20** 1307

Signature of multi-channel interference in high-order harmonic generation from N₂ driven by intense mid-infrared pulses*

Li Gui-Hua¹⁾ Xie Hong-Qiang²⁾ Yao Jin-Ping³⁾ Chu Wei³⁾ Cheng Ya³⁾†
Liu Xiao-Jun⁴⁾ Chen Jing⁵⁾ Xie Xin-Hua⁶⁾

1) (School of Science, East China Jiatong University, Nanchang 330013, China)

2) (School of Science, East China University of Technology, Nanchang 330013, China)

3) (State Key Laboratory of High Field Laser Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

4) (State Key Laboratory of Magnetic Resonance and Atomic and Molecular Physics, Wuhan Institute of Physics and Mathematics, Chinese Academy of Sciences, Wuhan 430071, China)

5) (Institute of Applied Physics and Computational Mathematics, Beijing 100088, China)

6) (Photonics Institute, Vienna University of Technology, A-1040 Vienna, Austria, EU)

(Received 30 August 2016; revised manuscript received 13 October 2016)

Abstract

Recently, three major types of minima (i.e., Cooper-like minimum, two-center interference minimum and multi-channel interference minimum) have been observed in high-order harmonic generation (HHG) spectra. Identification of the origin of the minimum in a HHG spectrum is critical for self-probing of the molecular structures and dynamics, which has been an important subject in attosecond physics. In this paper, we report the investigation of the multi-electron dynamics in HHG from N₂ molecules driven by intense mid-infrared laser pulses. Based on a pump-probe experimental setup, clear spectral minima in the cutoff region of high harmonic spectra from N₂ molecules are observed in measurements with mid-infrared laser pulses at three wavelengths (i.e., 1300, 1400 and 1500 nm). A systematic investigation has been carried out for clarifying the origin of these minima. We carefully measured the spectral minima under three different experimental conditions: 1) different alignment angles of molecules; 2) various peak laser intensities; 3) tunable driving laser wavelengths. Experimental results show that the positions of the spectral minima do not depend on the alignment angles of molecules. In addition, the measured spectral minima shift almost linearly with the laser intensity for all three wavelengths, and the positions of the spectral minima strongly depend on the wavelengths of the driven field. These findings are in conflict with the Cooper-like and two-center interference minima predictions, providing strong evidences on the dynamic multi-channel interference origin of these minima. Besides, we theoretically calculated the positions of multi-channel interference minima by using a classical three-step model and found out perfect agreements between the

* Project supported by National Basic Research Program of China (Grant Nos. 2014CB921300, 2013CB922201), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11127901, 11134010, 61575211, 11304330, 11404357, 61405220, 11274050, 11334009, 61605227), and the Shanghai Sailing Program, China (Grant Nos. 14YF1406100, 16YF1412700).

† Corresponding author. E-mail: ya.cheng@siom.ac.cn

experimental results and theoretical calculations, which again strongly support the multi-channel interference picture. Moreover, the advantages of the observed dynamic multi-channel interference based on HHG driven by long wavelength lasers are discussed. The long wavelength driver lasers are attractive for not only generating coherent XUV radiation and attosecond pulses, but also investigating structures and dynamics of molecules in strong laser fields.

Keywords: mid-infrared femtosecond laser pulses, high-order harmonic generation, multi-channel interference of molecules

PACS: 42.65.Ky, 42.65.Sf

DOI: [10.7498/aps.65.224208](https://doi.org/10.7498/aps.65.224208)

双色圆偏振飞秒脉冲驱动 CO 分子不对称解离

林康 宫晓春 宋其迎 季琴颖 马俊杨 张文斌 陆培芬 曾和平 吴健

Directional bond breaking of CO molecules by counter-rotating circularly polarized two-color laser fields

Lin Kang Gong Xiao-Chun Song Qi-Ying Ji Qin-Ying Ma Jun-Yang Zhang Wen-Bin Lu Pei-Fen
Zeng He-Ping Wu Jian

引用信息 Citation: [Acta Physica Sinica](#), 65, 224209 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.224209

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.224209>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphys.ac.cn/CN/Y2016/V65/I22>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于耗散孤子种子的啁啾脉冲光纤放大系统输出特性

Output pulse compressibility of the chirped pulse fiber amplification based on the dissipative solitons

物理学报.2016, 65(8): 084203 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.084203>

超短脉冲激光烧蚀石墨产生的喷射物的时间分辨发射光谱研究

Study of the time-resolved emission spectra of the ejected plume generated by ultrashort laser ablation of graphite

物理学报.2015, 64(21): 214201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.214201>

全啁啾镜色散补偿的亚 8 fs 钛宝石激光器

All chirped mirrors long-term stable sub-8 fs Ti:sapphire oscillator

物理学报.2015, 64(14): 144204 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.144204>

基于单个 BBO 晶体载波包络相位稳定的高效率光参量放大器

High efficient CEP-stabilized infrared optical parametric amplifier made from a BBO single crystal

物理学报.2014, 63(21): 214203 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.214203>

基于多光子脉冲内干涉相位扫描法对飞秒激光脉冲进行相位测量和补偿的研究

Spectral phase measurement and compensation of femtosecond laser pulse based on multi-photon intra-pulse interference phase scan

物理学报.2014, 63(16): 164207 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.164207>

专题: 超快强激光驱动的原于分子过程

双色圆偏振飞秒脉冲驱动CO分子不对称解离*

林康 官晓春 宋其迎 季琴颖 马俊杨 张文斌 陆培芬†
曾和平 吴健

(华东师范大学, 精密光谱科学与技术国家重点实验室, 上海 200062)

(2016年9月26日收到; 2016年11月4日收到修改稿)

利用反旋圆偏振双色飞秒激光脉冲, 结合电子-离子三维动量符合测量, 实验研究了CO分子的单电离和双电离解离过程. 在激光偏振平面内观测到碳离子 C^+ 三叶草状的不对称动量分布. 通过调节双色场中基频光和倍频光的相对相位, 可以控制 C^+ 的出射方向, 实现CO分子的二维不对称解离.

关键词: 超短激光脉冲, 电离解离, 双色光场

PACS: 42.65.Re, 82.37.Np, 87.15.mk, 87.15.mn

DOI: 10.7498/aps.65.224209

1 引言

自Zewail^[1]提出飞秒化学概念以来, 利用超短激光脉冲控制化学反应过程的研究引起了科学家的广泛关注^[2,3]. 化学反应的本质是化学键的断裂和重构, 其中价电子扮演着至关重要的角色. 物质内电子的超快运动发生在阿秒($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$)时间尺度, 利用超短激光脉冲操控电子的运动已经成为控制分子化学反应的重要手段. 2006年, Kling等^[4]利用载波包络相位(carrier envelope phase, CEP)稳定的周期量级超短激光脉冲, 第一次在 D_2 分子中实现了电子的局域化控制, 进而诱导 D_2^+ 解离过程中化学键的定向断裂.

光场的不对称性是导致电子局域的重要因素之一. 目前, 利用飞秒激光脉冲获得不对称光场的方法主要有两种. 第一种是通过调节CEP改变周期量级飞秒脉冲^[4-10]光场的不对称性. 对于多周期飞秒激光脉冲, 由基频光(fundamental wave, FW)和倍频光(second harmonic, SH)叠加而成的双色场具有很强的不对称性, 并且可以通过改变双色场的相对相位进行调节^[11-22]. 除了不对称光场, 利用一束极紫外阿秒脉冲和一束近红外飞秒脉冲,

通过改变两束光与分子相互作用的时间延迟, 同样可以实现电子局域的操作^[23-26]. 最近的研究发现, H_2 单电离解离过程中化学键断裂的方向由电离时刻的光场相位决定, 对称的圆偏振光也能实现 H_2 的不对称解离^[27]. 回顾之前的研究^[4-19], 我们发现大部分工作都局限于沿激光偏振方向的一维激发. 通过调节线偏光的CEP或者平行双色场的相对相位, 只能控制分子化学键向上或向下断裂. 最近, 我们分别利用正交和圆偏振双色场实现了二维平面内的电子局域操控^[20,22].

反旋圆偏振双色场由圆偏基频光(ω)和与其旋性相反的倍频光(2ω)组成. 与单色圆偏光不同, 反旋圆偏双色场电离产生的自由电子经激光场加速后可能返回母核一次甚至多次^[28]. 返回电子具有很大的动能, 可能被母核非弹性散射同时撞击出另一个电子使母核发生非序列双电离^[29,30], 也有可能被母核重新俘获并以发射一个高能光子的形式释放获得的能量^[31-33], 这对于阿秒脉冲的产生具有重要意义. 而被弹性散射的高能电子会携带母核的结构信息, 可以用于分子成像相关的应用^[34]. 反旋圆偏双色场还可以用来直接产生圆偏振的高次谐波^[35]、多个方向同时取向分子^[36]、区分重散射电子和直接电离电子^[37]、研究分子的对称性^[38]等.

* 上海市青年科技英才扬帆计划(批准号: 16YF1402900)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: pflu@lps.ecnu.edu.cn

本文以CO分子为例, 利用反旋圆偏双色场将二维电子局域推广到多电子分子体系, 在激光偏振平面内实现CO⁺的不对称解离. 通过改变基频光和倍频光的相位差, 控制C⁺在激光偏振平面内的出射方向, 即分子解离过程中化学键的断裂方向. CO分子的最高占据轨道(highest-occupied molecular orbital, HOMO)本身具有不对称性, 因此, 选择性电离是导致其不对称解离的主要因素之一 [39–42].

2 实验方法

我们采用非共线方案产生反旋圆偏振双色场. 一束中心波长为790 nm、脉宽为25 fs的线偏振光以10 kHz的重复频率从多通放大器输出, 经过一片厚度为150 μm的硼酸钡(β -barium borate, β -BBO)晶体后产生中心波长为395 nm的倍频光, 随后经由一片二向色镜分开. 在两束光路中分别放置一片相应波段的四分之一波片, 将基频光和倍频光从线偏调整为圆偏, 最后再通过一片二向色镜将两束光进行合束. 两束飞秒脉冲通过基频光一路的电机平移台进行时间同步. 为了精确调节基频光和倍频光的相位差, 同时消除气流扰动和机械振动对相位差的影响, 我们引入一束波长为532 nm的单纵模连续光作为参考光经同一片分束片入射, 分别经过与基频光和倍频光相同的光路后从同一片合束片射出 [43,44]. 用CCD摄像机对参考光在合束后形成的干涉条纹进行实时采集, 从条纹的偏移量便可以计算出基频光和倍频光的光程差, 然后通过倍频光一路的压电陶瓷进行补偿和调节, 形成相位差可调的闭环反馈系统. 反旋圆偏双色场在一个周期内有三个极大值, 电场随时间的演化及其在偏振平面内的投影如图1插图所示.

反旋圆偏双色场入射到超高真空冷靶反冲离子动量谱仪 [45,46] (cold target recoil ion momentum spectroscopy, COLTRIMS)后, 经过一面焦距为7.5 cm的凹面银镜聚焦到CO超声分子束上. 作用区域处基频光和倍频光的光强分别为 $I_{FW} \sim 5.7 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 和 $I_{SH} \sim 3.8 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$. 通过扫描两束光单电离产率的互相关信号, 测得作用区域处两束光的脉宽约为60 fs. COLTRIMS装置原理如图1所示, 分子与激光相互作用产生的电子和离子经腔内匀强静电场($\sim 7 \text{ V/cm}$)和磁场($\sim 8 \text{ Gauss}$)加速和引导后分别向上和向下飞行, 最终被谱仪上下两端的多通道板采集到, 经过倍增后

被阳极延迟线探测器俘获. 根据落点位置和飞行时间, 便可以恢复出电子和离子的初始三维动量. 考虑到反旋圆偏双色场的偏振面为Y-Z平面, 接下来的结果和讨论都限于Y-Z平面内.

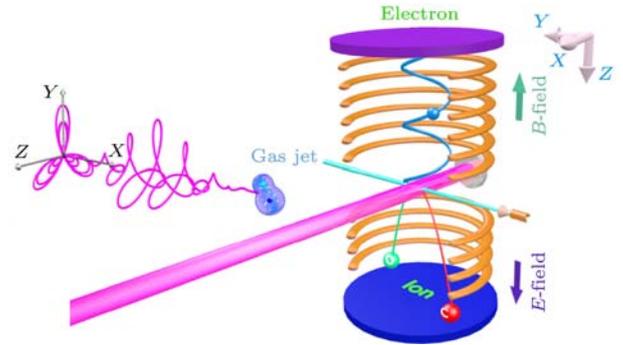


图1 实验装置原理图 左上角插图为时变三叶草光场形状及其在偏振平面内的投影, 光场沿着X轴传播, 偏振面为Y-Z平面

Fig. 1. Schematic diagram of the experimental apparatus. The inset on the upper-left depicts the electric vector of the trefoil laser field and its projection in the polarization plane. The trefoil laser pulse propagates along the X-axis and is polarized in the Y-Z plane.

3 结果与讨论

为了定量表征CO分子单电离解离过程中CO⁺化学键的断裂方向, 即C⁺的出射方向, 我们定义不对称参数 $A(p_y, p_z, \phi_L) = [N(p_y, p_z, \phi_L) - N(p_y, p_z, \phi_L + \pi)] / [N(p_y, p_z, \phi_L) + N(p_y, p_z, \phi_L + \pi)]$, 其中 $N(p_y, p_z, \phi_L)$ 表示动量为 $p = (p_y, p_z)$ 的C⁺在三叶草光场相位为 ϕ_L 时的产率. 这里约定, 当三叶草激光场的某一极大值沿Y轴方向时相位 $\phi_L = 0$, 如图1所示. 三叶草光场相位 $\phi_L = 0$ 时, C⁺在Y-Z平面内的不对称动量分布如图2(a)所示. 可以发现, 不同于CEP稳定的线偏振光或平行双色场激发的一维不对称解离, 三叶草光场诱导的产物离子C⁺在Y-Z平面内也呈现出与光场形状相似的三瓣状分布, 这意味着CO⁺在激光偏振平面内发生了二维不对称解离. 当三叶草光场相位 ϕ_L 改变 π 时, 如图2(b)所示, C⁺的出射方向转动 $\pi/3$, 呈现出与 $\phi_L = 0$ 时完全反向的不对称动量分布. 连续改变相位 ϕ_L 可以控制C⁺在偏振平面内的不对称动量分布像风扇一样转动起来, 从而实现CO分子单电离解离过程中化学键断裂方向的操控. 根据分子Ammosov-Delone-Krainov (MO-ADK)理论和强场近似理论, 对于具有不对称轨道的异核双原子分子, 选择性电离是导致其解离

过程中化学键不对称断裂的主要原因^[39–42]. 相对于激光电场方向沿着氧原子指向碳原子时, CO 分子在激光电场方向沿着碳原子指向氧原子时更容易被电离^[39–42]. 在激光场作用下, CO 分子首先发生隧穿电离, 被电离的自由电子经剩余激光场加速后最终被探测器俘获. 利用角条纹技术 (angular streaking), 根据测得的自由电子的动量分布, 我们可以确定电离时刻三叶草激光场的绝对相位.

为进一步探索单电离解离过程中 C⁺ 的不对称性随能量 E_{C^+} 和三叶草激光场相位 ϕ_L 的依赖关系, 我们选取出射方向在 $90^\circ < \phi_{C^+} < 150^\circ$ 范围内的 C⁺, 得到结果如图 3(a) 所示. 分别选取白色虚线内低能区 ($0.6 \text{ eV} < E_{C^+} < 0.7 \text{ eV}$) 和高能区

($1.3 \text{ eV} < E_{C^+} < 1.4 \text{ eV}$) 进行积分, 得到不对称参数随着三叶草激光场相位 ϕ_L 变化的曲线如图 3(b) 所示. 利用公式 $A = A_0 \sin(\phi_L + \phi_{A_0})$ 对曲线进行拟合, 其中, A_0 为不对称幅值, ϕ_{A_0} 为不对称相位. 我们发现 C⁺ 的高能区和低能区的不对称参数随激光场相位变化的曲线近似同相, 而之前 H₂ 单电离解离的实验^[22] 发现对 H⁺ 的高能区和低能区拟合得到的相位 ϕ_{A_0} 相差几乎为 π , 这是由于 H₂ 和 CO 的不对称解离机理不同导致. 同核双原子分子 H₂ 具有对称的 HOMO, 因此电离过程不具有方向性. H₂⁺ 的基态 $1s \sigma_g^+$ 和第一激发态 $2p \sigma_u^+$ 具有相反的宇称, 这两个态上的解离波包通过光场耦合发生干

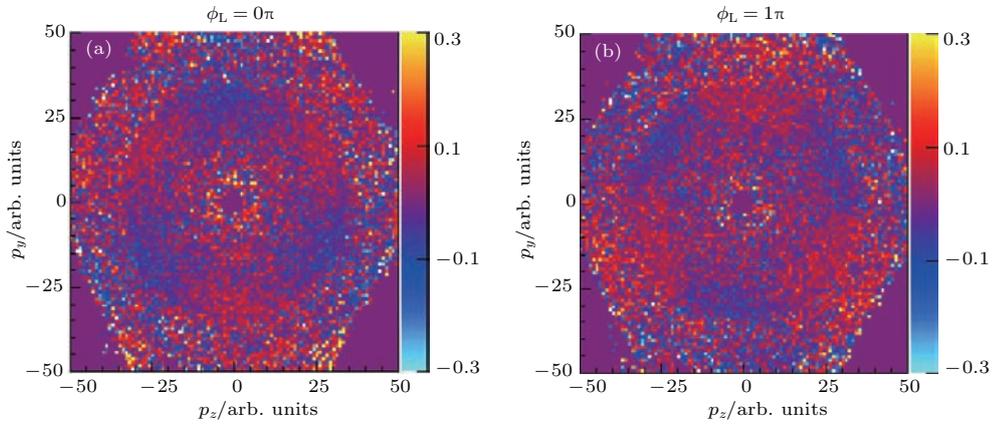


图 2 符合测量得到的 C⁺ 在三叶草光场相位分别为 (a) $\phi_L = 0$ 和 (b) $\phi_L = \pi$ 时的不对称动量分布
Fig. 2. Asymmetric momentum distributions of C⁺ in the polarization plane for (a) $\phi_L = 0$ and (b) $\phi_L = \pi$, respectively.

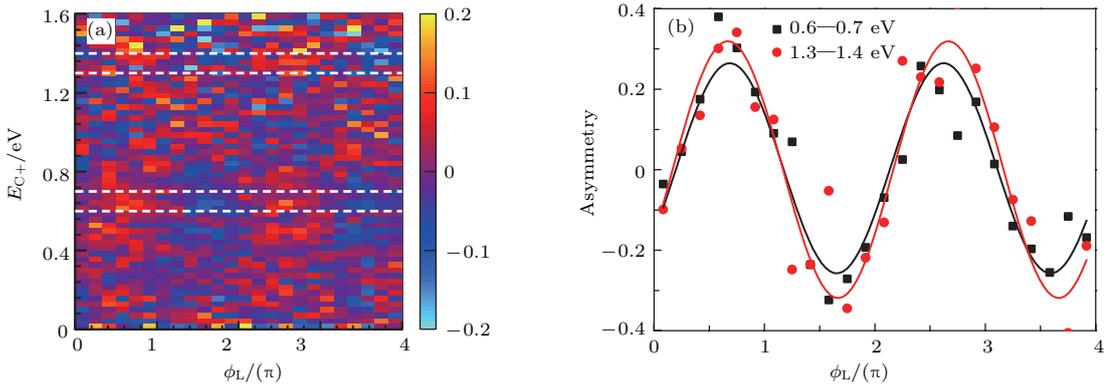


图 3 (a) 出射方向在 $90^\circ < \phi_{C^+} < 150^\circ$ 范围内的产物离子 C⁺ 的不对称参数与三叶草激光场相位 ϕ_L 以及能量 E_{C^+} 的依赖关系, (b) 为对 (a) 图中白色虚线内低能区 ($0.6 \text{ eV} < E_{C^+} < 0.7 \text{ eV}$) 和高能区 ($1.3 \text{ eV} < E_{C^+} < 1.4 \text{ eV}$) 分别进行积分得到的不对称参数随三叶草激光场相位 ϕ_L 的变化曲线, 实线为拟合曲线

Fig. 3. (a) Measured asymmetries as functions of the phase ϕ_L of the trefoil laser field and the kinetic energy E_{C^+} of C⁺ emitted in the range of $90^\circ < \phi_{C^+} < 150^\circ$; (b) asymmetry parameter of the directional emission of C⁺ versus ϕ_L at the low- E_{C^+} ($0.6 \text{ eV} < E_{C^+} < 0.7 \text{ eV}$) and the high- E_{C^+} ($1.3 \text{ eV} < E_{C^+} < 1.4 \text{ eV}$) as indicated between the white dashed lines in (a), the solid curves are the numerical fits of the measured data.

涉相长或相消, 导致电子相应地被局域在其中一个原子核附近, 最终导致 H_2 分子的不对称解离, 具体讨论见参考文献 [22]. CO 分子的 HOMO 本身具有不对称性, 当光场沿 C 指向 O 时, CO 分子更容易被电离, 导致解离产物 C^+ 更倾向于沿着光场相反方向出射.

除了单电解除离, 我们还对 CO 分子的双电解除离通道 $\text{CO} + n\hbar\omega \rightarrow \text{C}^+ + \text{O}^+ + 2e$ 进行了研究. 为提高双电离产率, 我们将总光强增加到 $\sim 6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 此时电子的产率过高, 因此不适合进行电子-离子符合测量. 该光强下双电解除离主要来自于顺序电离的贡献 [47], CO 分子在强激光场中被迅速移除两个电子后发生库仑爆炸. 考虑到分子的转动周期 (皮秒量级) 远大于解离过程 (飞秒量级) 所需的时间, 因此可以忽略解离过程中分子的转动. 根据动量守恒定律, 我们可以筛选出来自同一分子的 C^+ 和 O^+ , 进而还原出库仑爆炸前分子轴的空间取向. 此时, 分子轴的取向信息直接反映了激光场的相位. 我们定义方位角 θ 为 CO 分子轴在 Y - Z 平面内的投影与 Y 轴的夹角. 为去除背景噪声, 将任意相位时刻测得的分子轴取向分布归一化并减去相位 $\phi_L = 0$ 时的分布, 得到分子轴的角度分布随三叶草激光场相位的变化如图 4 所示. 连续改变三叶草激光场相位, 可以在激光偏振平面内控制双电解除离过程中 CO 分子轴的断裂方向.

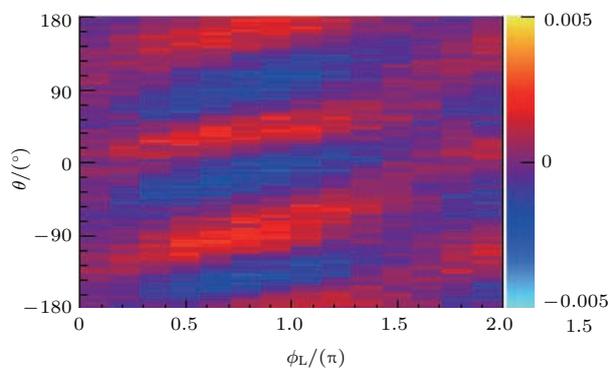


图 4 归一化的分子轴取向分布随三叶草激光场相位的变化

Fig. 4. Normalized molecular axis distribution of the fragmented molecules evolves with the phase of the trefoil laser field.

4 结 论

本文实验研究了 CO 分子在反旋圆偏振双色飞秒激光脉冲作用下的单电离和双电解除离过程. 利用三叶草激光场实现了对 CO 分子在激光偏振平面内不对称解离的控制, 观测到了产物离子 C^+ 三瓣

形的不对称动量分布. 通过改变双色场的相对相位, 可以控制 C^+ 的出射方向. 目前反旋圆偏振双色场是非序列双电离以及产生圆偏振高次谐波等相关方向的研究热点, 本文为其在分子超快动力学操控方面的应用提供了新思路.

参考文献

- [1] Zewail A H 1988 *Science* **242** 1645
- [2] Assion A, Baumert T, Bergt M, Brixner T, Kiefer B, Seyfried V, Strehle M, Gerber G 1998 *Science* **282** 919
- [3] Shapiro M, Brumer P 2012 *Quantum Control of Molecular Processes* (New York: Wiley-VCH)
- [4] Kling M F, Siedschlag C, Verhoef A J, Khan J I, Schultze M, Uphues T, Ni Y, Uiberacker M, Drescher M, Krausz F, Vrakking M J J 2006 *Science* **312** 246
- [5] Kremer M, Fischer B, Feuerstein B, de Jesus V L B, Sharma V, Hofrichter C, Rudenko A, Thumm U, Schröter C D, Moshhammer R, Ullrich J 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 213003
- [6] Fischer B, Kremer M, Pfeifer T, Feuerstein B, Sharma V, Thumm U, Schröter C D, Moshhammer R, Ullrich J 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 223001
- [7] McKenna J, Anis F, Sayler A M, Gaire B, Johnson N G, Parke E, Carnes K D, Esry B D, Ben-Itzhak I 2012 *Phys. Rev. A* **85** 023405
- [8] Xu H, Xu T Y, He F, Kielpinski D, Sang R T, Litvinyuk I V 2014 *Phys. Rev. A* **89** 041403
- [9] Rathje T, Sayler A M, Zeng S, Wustelt P, Figger H, Esry B D, Paulus G G 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 093002
- [10] Kling N G, Betsch K J, Zohrabi M, Zeng S, Anis F, Ablikim U, Jochim B, Wang Z, Kübel M, Kling M F, Carnes K D, Esry B D, Ben-Itzhak I 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 163004
- [11] Charron E, Giusti-Suzor A, Mies F H 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 692
- [12] Ohmura H, Saito N, Tachiya M 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 173001
- [13] Wu J, Vredenburg A, Schmidt L P H, Jahnke T, Czasch A, Dörner R 2013 *Phys. Rev. A* **87** 023406
- [14] Sheehy B, Walker B, DiMauro L F 1995 *Phys. Rev. Lett.* **74** 4799
- [15] Ray D, He F, De S, Cao W, Mashiko H, Ranitovic P, Singh K P, Znakovskaya I, Thumm U, Paulus G G, Kling M F, Litvinyuk I V, Cocke C L 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 223201
- [16] Betsch K J, Pinkham D W, Jones R R 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 223002
- [17] Kotsina N, Kaziannis S, Danakas S, Kosmidisa C 2013 *J. Chem. Phys.* **139** 104313
- [18] Kaziannis S, Kotsina N, Kosmidis C 2014 *J. Chem. Phys.* **141** 104319
- [19] Ohmura H, Saito N 2014 *J. Phys. B* **47** 204007
- [20] Gong X C, He P L, Song Q Y, Ji Q Y, Pan H F, Ding J X, He F, Zeng H P, Wu J 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 203001

- [21] Song Q Y, Gong X C, Ji Q Y, Lin K, Pan H F, Ding J X, Zeng H P, Wu J 2015 *J. Phys. B* **48** 094007
- [22] Lin K, Gong X C, Song Q Y, Ji Q Y, Zhang W B, Ma J Y, Lu P F, Pan H F, Ding J X, Zeng H P, Wu J 2016 *J. Phys. B* **49** 025603
- [23] He F, Ruiz C, Becker A 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 083002
- [24] He F, Ruiz C, Becker A 2008 *J. Phys. B* **41** 081003
- [25] Singh K P, He F, Ranitovic P, Cao W, De S, Ray D, Chen S, Thumm U, Becker A, Murnane M M, Kapteyn H C, Litvinyuk I V, Cocke C L 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 023001
- [26] Sansone G, Kelkensberg F, Pérez-Torres J F, Morales F, Kling M F, Siu W, Ghafur O, Johnsson P, Swoboda M, Benedetti E, Ferrari F, Lépine F, Sanz-Vicario J L, Zherebtsov S, Znakovskaya I, L'Huillier A, Ivanov M Y, Nisoli M, Martín F, Vrakking M J J 2010 *Nature* **465** 763
- [27] Wu J, Magrakvelidze M, Schmidt L P H, Kunitski M, Pfeifer T, Schöffler M, Pitzer M, Richter M, Voss S, Sann H, Kim H, Lower J, Jahnke T, Czasch A, Thumm U, Dörner R 2013 *Nat. Commun.* **4** 3177
- [28] Chaloupka J L, Hickstein D D 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 143005
- [29] Mancuso C A, Dorney K M, Hickstein D D, Chaloupka J L, Ellis J L, Dollar F J, Knut R, Grychtol P, Zusin D, Gentry C, Gopalakrishnan M, Kapteyn H C, Murnane M M 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 133201
- [30] Eckart S, Richter M, Kunitski M, Hartung A, Rist J, Henrichs K, Schlott N, Kang H, Bauer T, Sann H, Schmidt L Ph H, Schöffler M, Jahnke T, Dörner R 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 133202
- [31] Bandrauk A D, Lu H Z 2003 *Phys. Rev. A* **68** 043408
- [32] Pisanty E, Sukiasyan S, Ivanov M 2014 *Phys. Rev. A* **90** 043829
- [33] Yuan K J, Bandrauk A D 2015 *Phys. Rev. A* **92** 063401
- [34] Blaga C I, Xu J, DiChiara A D, Sistrunk E, Zhang K, Agostini P, Miller T A, DiMauro L F, Lin C D 2012 *Nature* **483** 194
- [35] Kfir O, Grychtol P, Turgut E, Knut R, Zusin D, Popmintchev D, Popmintchev T, Nembach H, Shaw J M, Fleischer A, Kapteyn H, Murnane M, Cohen O 2015 *Nat. Photon.* **9** 99
- [36] Chen C, Wu J, Zeng H P 2010 *Phys. Rev. A* **82** 033409
- [37] Mancuso C A, Hickstein D D, Grychtol P, Knut R, Kfir O, Tong X M, Dollar F, Zusin D, Gopalakrishnan M, Gentry C, Turgut E, Ellis J L, Chen M C, Fleischer A, Cohen O, Kapteyn H C, Murnane M M 2015 *Phys. Rev. A* **91** 031402
- [38] Baykusheva D, Ahsan M S, Lin N, Wörner H J 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 123001
- [39] Betsch K J, Pinkham D W, Jones R R 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 223002
- [40] Li H, Ray D, De S, Znakovskaya I, Cao W, Laurent G, Wang Z, Kling M F, Le A T, Cocke C L 2011 *Phys. Rev. A* **84** 043429
- [41] Wu J, Schmidt L Ph H, Kunitski M, Meckel M, Voss S, Sann H, Kim H, Jahnke T, Czasch A, Dörner R 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 183001
- [42] Wu J, Vredenburg A, Schmidt L P H, Jahnke T, Czasch A, Dörner R 2013 *Phys. Rev. A* **87** 023406
- [43] Mashiko H, Gilbertson S, Li C Q, Khan S D, Shakya M M, Moon E, Chang Z 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 103906
- [44] Chini M, Mashiko H, Wang H, Chen S, Yun C, Scott S, Gilbertson S, Chang Z 2009 *Opt. Express* **17** 21459
- [45] Dörner R, Mergel V, Jagutzki O, Spielberger L, Ullrich J, Moshhammer R, Schmidt-Böcking H 2000 *Phys. Rep.* **330** 95
- [46] Ullrich J, Moshhammer R, Dorn A, Dörner R, Schmidt L Ph H, Schmidt-Böcking H 2003 *Rep. Prog. Phys.* **66** 1463
- [47] Guo C 2006 *Phys. Rev. A* **73** 041401

SPECIAL TOPIC — Atomic and molecular processes driven by ultrafast intense laser fields

Directional bond breaking of CO molecules by counter-rotating circularly polarized two-color laser fields*

Lin Kang Gong Xiao-Chun Song Qi-Ying Ji Qin-Ying Ma Jun-Yang
Zhang Wen-Bin Lu Pei-Fen[†] Zeng He-Ping Wu Jian

(State Key Laboratory of Precision Spectroscopy, East China Normal University, Shanghai 200062, China)

(Received 26 September 2016; revised manuscript received 4 November 2016)

Abstract

We experimentally studied the dissociative single and double ionization of CO molecules by counter-rotating circularly polarized two-color (CRTC) laser fields. By coincidentally measuring the electrons and the fragmented ions, trefoil asymmetric momentum distributions of C^+ in the polarization plane were observed, which are mainly determined by the selective ionization of CO with asymmetric orbitals. The threefold pattern could rotate continuously in the two-dimensional space by finely tuning the relative phase of the CRTC fields, providing a new method to manipulate the directional bond breaking of molecules by strong laser fields.

Keywords: ultrashort laser pulse, dissociative ionization, two-color fields

PACS: 42.65.Re, 82.37.Np, 87.15.mk, 87.15.mn

DOI: 10.7498/aps.65.224209

* Project supported by the Shanghai Sailing Program, China (Grant No. 16YF1402900).

[†] Corresponding author. E-mail: pflu@lps.ecnu.edu.cn