

激光诱导自电离及其光电子能谱

赵力耕 徐至展

(中国科学院上海光学精密机械研究所)

1986年5月22日收到

提 要

在 Fano 自电离理论基础上,用预解算子方法研究了激光诱导自电离共振及光电子的能量分布,得到了光电子能谱上四个峰值的位置和宽度的严格表达式,推导了某一峰消失时光场参数(光强、频率)和原子参数(自电离宽度、Fano 参量 q) 之间应满足的关系,详细讨论了光场稳定自电离态的问题。

一、引 言

近年来,许多作者研究了激光诱导自电离的问题^[1-3]。主要结论是:在强光场下,自电离能级产生 Stark 分裂,与此相应,在光电子能谱上,对应于自电离态附近有两个高度和宽度都不相同的峰;由于直接光电离跃迁 2 和自电离跃迁 1 的强烈干涉(见图 1),在一定条件下(光强、失谐量等),其中的一个峰可以消失,即该峰的宽度为零。也就是说,光场可以稳定自电离态。这些现象无疑对激光多光子电离、激光同位素分离有一定影响。

文献 [1, 2] 没有考虑处于自电离态 a 上的原子的光电离跃迁 3。但该跃迁与跃迁 2 具有相同量级。而且,在强光场时,原子经常进行这种处于电离限之上的跃迁而电离。在碱土金属原子的多光子电离中,这种跃迁已愈来愈为人们所注意^[4]。我们曾用半经典理论研究了这一跃迁的影响^[5]。由于受所选择的模型的限制,某些重要现象没能清楚地显示出来。本文用全量子理论的预解算子方法^[6]重新进行了研究,得到了这一问题的严格

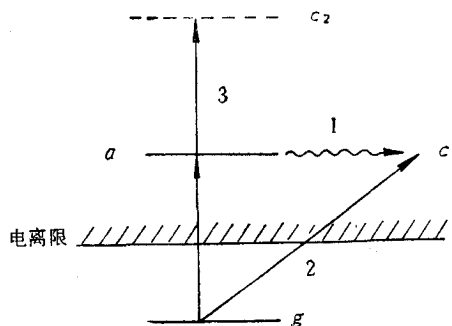


图1 本文考虑的三种电离跃迁

1. 为自电离跃迁; 2. 为 g 态原子的光电离跃迁; 3. 为 a 态原子的光电离跃迁

解,指出在这种一般情况下,光电子能谱上应有四个峰值,得到了这四个峰值的位置、宽度的解析表达式,并且推导了使某一峰值消失时光场参数(光强、失谐量)和原子参数(无外场时自电离宽度, Fano 参量 q) 之间应满足的关系,详细分析了光场参数对峰值位置、宽度的影响.

二、理论推导

预解算子方法的数学原理在二十多年前就由 Schönberg 提出,随后被成功地应用于各种类型的问题中. Lambropoulos 把它应用于多光子电离问题^[1],显示出了许多优点.

设光场和原子体系的总哈密顿量为

$$H = H_a + H + V + D, \quad (1)$$

其中 H_a 为原子的哈密顿量, H 为光场的哈密顿量, V 代表自电离态与连续态的相互作用算符, D 为光场与物质相互作用哈密顿量,

$$D = \frac{e}{mc} \mathbf{A} \cdot \mathbf{P} + \frac{e^2}{2mc^2} \mathbf{A}^2.$$

为明确起见,我们略去 D 中代表无中间态双光子跃迁的 $\mathbf{A}^2$ 项,只考虑电偶极跃迁,即

$$D = -\boldsymbol{\mu} \cdot \boldsymbol{\epsilon}$$

我们用圆括号书写的态代表系统(原子+光场)的缀饰态, $|g\rangle = |g; 2\omega\rangle$, $|a\rangle = |a; \omega\rangle$, $|c_1\rangle = |c; \omega\rangle$, $|c_2\rangle = |c_2\rangle$, ω 为光场频率. 总哈密顿量的矩阵元为

$$\begin{aligned} (g|H|g) &= E'_g, \quad (a|H|a) = E'_a, \\ (c_1|H|c_1) &= E_c, \quad (c_2|H|c_2) = E_{c_2}, \\ (g|H|a) &= D_{ga}, \quad (g|H|c_1) = D_{gc_1}, \\ (a|H|c_2) &= D_{ac_2}, \quad (a|H|c_1) = V_{ac_1}, \end{aligned} \quad (2)$$

其中 $E'_g = E_g + 2\omega$, $E'_a = E_a + \omega$, $E_{c_1} = E_c + \omega$, $E_{c_2} = E_c$.

设初始时刻原子处于态 g 上,则时刻 t 系统的总波函数为(本文中令 $\hbar = 1$)

$$\Psi(t) = e^{-iHt} |g\rangle \equiv U(t) |g\rangle, \quad (3)$$

$U(t)$ 为演化矩阵,矩阵元 U_{ag} , U_{c_1g} , U_{c_2g} 分别代表从态 $|g\rangle$ 跃迁至态 $|a\rangle$, $|c_1\rangle$ 及 $|c_2\rangle$ 的几率振幅. 定义预解算子

$$G(z) = 1/(z - H), \quad (4)$$

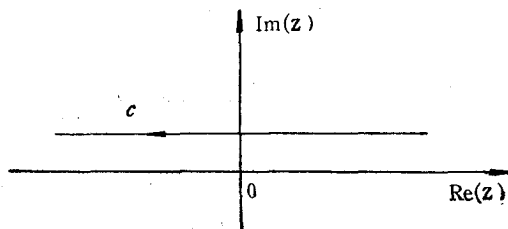


图2 求演化矩阵的积分路线

z 为复数. 则演化矩阵 $U(t)$ 用预解算子表示为

$$U(t) = \frac{1}{2\pi i} \int_c e^{-izt} G(z) dz, \quad (5)$$

积分路线如图 2 所示. 这样, 求 $U(t)$ 的问题归结为求预解算子 $G(z)$.

为了得到 $G(z)$ 的矩阵元, 我们引入量子力学中广泛使用的投影算符

$$\begin{aligned} P &\equiv |g\rangle\langle g|, \\ Q &\equiv |a\rangle\langle a| + \int dE_{c_1} |c_1\rangle\langle c_1| + \int dE_{c_2} |c_2\rangle\langle c_2|, \\ P + Q &\equiv 1. \end{aligned} \quad (6)$$

利用投影算符, (4) 式改写成

$$(z - H)(P + Q)GP = P, \quad (7)$$

再利用 (2) 式就可得到预解算子满足的方程

$$\begin{aligned} (z - E'_g)G_{gg} - D_{Eg}G_{ag} - \int dE_{c_1} D_{gc_1} G_{c_1g} &= 1, \\ -D_{ag}G_{gg} + (z - E'_a)G_{ag} - \int dE_{c_1} V_{ac_1} G_{c_1g} - \int dE_{c_2} D_{ac_2} G_{c_2g} &= 0, \\ -D_{c_1g}G_{gg} - V_{c_1a}G_{ag} + (z - E_{c_1})G_{c_1g} &= 0, \\ -D_{c_2g}G_{ag} + (z - E_{c_2})G_{c_2g} &= 0. \end{aligned} \quad (8)$$

在推导方程 (8) 时我们忽略了连续态至连续态的跃迁. 方程 (8) 是关于 G 的矩阵元的代数方程, 不难得到其解为

$$\begin{aligned} G_{gg} &= \frac{x + \Delta + i(\Gamma_a + \gamma_a)/2}{L(x)}, \\ G_{ag} &= \frac{D_{Eg}(1 - i/q)}{L(x)}, \\ G_{c_1g} &= \frac{D_{c_1g}[x + \Delta + i((\Gamma_a + \gamma_a)/2) + \Gamma_a(q - i)]}{(E_g + S_g + \omega + x - E_{c_1})L(x)}, \\ G_{c_2g} &= \frac{D_{c_2g}D_{Eg}(1 - i/q)}{(E_g + S_g + 2\omega + x - E_{c_2})L(x)}, \\ L(x) &= \left(x + i\frac{\gamma_g}{2}\right)[x + \Delta + i(\Gamma_a + \gamma_a)/2] - |D_{Eg}|^2(1 - i/q)^2, \end{aligned}$$

其中 $x = z - (E_g + S_g + 2\omega)$, $\Delta = \omega - [(E_a + F_a + S_a) - (E_g + S_g)]$, $S_g, \gamma_g(S_a, \gamma_a)$ 为光场导致的态 g 的 Stark 移位和展宽, Γ_a 为无光场时的自电离宽度, F_a 为由于态 a 与连续态 c 的相互作用 V_{ac} 所导致的自电离态能量 E_a 的移动^[8], q 为 Fano 参量^[3], D_{Eg} 为 Fano 跃迁矩阵元^[8]. 它们的定义如下:

$$\begin{aligned} P \int dE_{c_1} \frac{|D_{c_1g}|^2}{E_g + \omega - E_{c_1}} &= S_g, \quad \pi |D_{c_1g}(E_g + \omega)|^2 = \frac{\gamma_g}{2}, \\ P \int dE_{c_2} \frac{|D_{ac_2}|^2}{E_g + 2\omega - E_{c_2}} &= S_a, \quad \pi |D_{ac}(E_g + 2\omega)|^2 = \frac{\gamma_a}{2}, \\ P \int dE_{c_1} \frac{|V_{ac_1}|^2}{E_g + \omega - E_{c_1}} &= F_a, \quad \pi |V_{ac_1}(E_g + \omega)|^2 = \frac{\Gamma_a}{2}, \end{aligned}$$

$$q = \frac{D_{ag}}{\pi V_{a_1} D_{c_1g}}, D_{Eg} = \frac{(q + \eta) D_{c_1g}}{(1 + \eta^2)^{1/2}}.$$

在 D_{Eg} 的定义式中, $\eta = \frac{E_c - E_a - F_a}{\frac{1}{2} \Gamma_a}$.

设 $L(x)$ 的两个根为 x_+ , x_- , 则由 (5) 式得到演化矩阵元

$$|U_{gg}(t)|^2 = \frac{1}{|x_+ - x_-|^2} \left| [x_+ + \Delta + i(\Gamma_a + \gamma_a)/2] e^{-ix_+t} - [x_- + \Delta + i(\Gamma_a + \gamma_a)/2] e^{-ix_-t} \right|^2, \quad (9a)$$

$$|U_{ag}(t)|^2 = \frac{Q^2 |1 - i/q|^2}{4 |x_+ - x_-|^2} |e^{-ix_+t} - e^{-ix_-t}|^2, \quad (9b)$$

$$|U_{c_1g}(t)|^2 = \frac{D_{cg}^2}{|x_+ - x_-|^2} \left| [x_+ + \Delta + i(\Gamma_a + \gamma_a)/2 + \Gamma_a(q - i)] \frac{e^{-i(E_+ - E_c)t} - 1}{(E_+ - E_c)} - [x_- + \Delta + i(\Gamma_a + \gamma_a)/2 + \Gamma_a(q - i)] \frac{e^{-i(E_- - E_c)t} - 1}{(E_- - E_c)} \right|^2, \quad (9c)$$

$$|U_{c_2g}(t)|^2 = \frac{D_{ca}^2 |1 - i/q|^2 Q^2}{4 |x_+ - x_-|^2} \left| \frac{e^{-i(E'_+ - E_c)t} - 1}{(E'_+ - E_c)} - \frac{e^{-i(E'_- - E_c)t} - 1}{(E'_- - E_c)} \right|^2. \quad (9d)$$

这四个方程分别代表原子处于态 $|g\rangle$, $|a\rangle$, $|c_1\rangle$ 及 $|c_2\rangle$ 上的几率. 上式中我们用 D_{cg} , D_{ca} 代表 D_{c_1g} 和 D_{c_2g} , 不会引起混淆. $Q = 2D_{Eg}$ 是 $|g\rangle$ 态和 Fano 态 $|E\rangle^{[8]}$ 之间的 Rabi 频率. $E_{\pm} = E_g + S_g + \omega + x_{\pm}$, $E'_{\pm} = E_g + S_g + 2\omega + x_{\pm}$.

若给定 Q 和 Γ_a 之间的关系 (如 $Q = 5\Gamma_a$) 及参量 q , 就可由 $L(x)$ 求得 $x_{\pm}$. 由 (9a), (9b) 式及 $P(t) = 1 - |U_{gg}(t)|^2 - |U_{ag}(t)|^2$ 就得到了原子处于态 g 和态 a 的几率以及总电离几率随时间的演化图. 我们曾给出了 $\Delta^1 = 0$, $q = 5$ 时它们的演化图 ($Q = 5\Gamma_a$, $10\Gamma_a$)^[9]. 注意 Δ^1 与本文中定义的 Δ 不同, $\Delta^1 = \omega - (E_a + F_a - E_g)$, 没有包含 Stark 移位 γ_a , γ_g . 这也正是 $P(t)$ 在 $Q = 10\Gamma_a$ 时在 $t < \frac{1}{\Gamma_a}$ 就急剧趋于 1 的原因. $|U_{gg}(t)|^2$, $|U_{ag}(t)|^2$ 呈现出振荡形式, 这暗示了跃迁的 Stark 分裂. 下面, 我们将从光电子能谱的角度详细讨论这一现象.

三、激光诱导自电离的光电子能谱

光电子能谱由 $|U_{c_1g}(t)|^2$, $|U_{c_2g}(t)|^2$ 给出. 从他们的表达式中可看到有四个峰值, 分别位于 $E_c = E_g + S_g + 2\omega + \text{Re}(x_{\pm})$ 及 $E_c = E_g + S_g + \omega + \text{Re}(x_{\pm})$ 附近. 这是由于在强场下自电离态 a 产生 Stark 分裂, 而自电离态 a 的光电离跃迁导致了连续态 $E_c = E_g + S_g + 2\omega$ 的 Stark 分裂. 图 3 给出了光电离的光电子能谱的示意图.

先看一个特例. 假定态 a 是束缚态 ($\Gamma_a = 0$), 则 $U_{c_1g}(t) = 0$. 从 $U_{c_2g}(t)$ 的表达式中看到, 光电子能谱上只有两个峰, 位于 $E_c = E_g + S_g + 2\omega$ 附近, 间隔为 Rabi 频

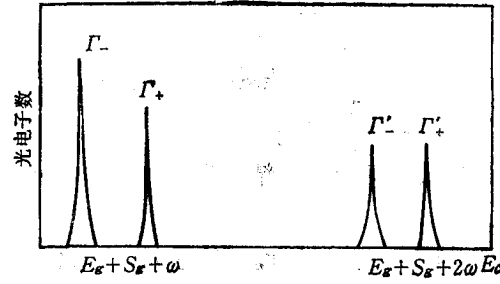


图 3

率, 每个峰的高度相等, 宽度均为 $\gamma_a/2$.

一般情况下 ($\Gamma_a \neq 0$) 有四个峰. 前两个峰的高度不同 (这一点与熟知的分立态的 Stark 分裂不同, 分立态的 Stark 分裂仅在 $\Delta \approx 0$ 时才不对称), 后两个峰的高度相等. 由图 1 我们看到, 前两个峰的形成是由自电离跃迁和 g 态原子的光电离跃迁共同作用所导致的, 而后两个峰的形成则是 a 态原子的光电离跃迁的结果. 因此, 自电离跃迁和直接光电离跃迁的干涉造成了前两个峰高度的不相等.

四个峰的位置由 $x_{\pm}$ 的实部决定, 宽度由 $x_{\pm}$ 的虚部决定. 由 $L(x)$ 的表达式可知, 当 $\Omega^2 + \Delta^2 < \Gamma_a^2/4$ 时, $\text{Re}(x_{\pm}) = 0$, 此时观察不到 Stark 分裂, 光电子能谱上只有两个峰值, 分别位于 $E_c = E_g + S_g + \omega$ 及 $E_c = E_g + S_g + 2\omega$ 附近, 光场仅导致能峰的增宽(功率加宽). 当 $\Omega^2 + \Delta^2 > \Gamma_a^2/4$ 时, $x_{\pm}$ 的实部和虚部由下式给出:

$$\begin{aligned} \text{Re}(x_{\pm}) &= -\frac{1}{2} \Delta \pm \frac{1}{2} \left[\Omega^2 + \Delta^2 + \gamma_g \gamma_a - \frac{(\Gamma_a + \gamma_g + \gamma_a)^2}{4} \right]^{1/2} \\ &= -\frac{1}{2} \Delta \pm \frac{1}{2} \tilde{Q}, \end{aligned} \quad (10a)$$

$$-\text{Im}(x_{\pm}) = \frac{1}{4} (\Gamma_a + \gamma_a + \gamma_g) \pm \frac{(\Omega^2/2q) + (\Delta\gamma_g/8) - (\Gamma_a + \gamma_a + \gamma_g)\Delta/4}{\left[\Omega^2 + \Delta^2 + \gamma_g \gamma_a - \frac{(\Gamma_a + \gamma_a + \gamma_g)^2}{4} \right]^{1/2}}. \quad (10b)$$

在 $E_g + S_g + \omega$ 和 $E_g + S_g + 2\omega$ 附近的 Stark 分裂间隔都是 $\tilde{Q}$, 能峰的宽度为

$$\Gamma_{\pm}(\Gamma'_{\pm}) = -2\text{Im}(x_{\pm}).$$

在 (10b) 式等号右边第二项中, 由于 $|\Omega^2/2q| \gg |(\Delta\gamma_g/8) - (\Gamma_a + \gamma_a + \gamma_g)\Delta/4|$, 所以 q 的符号决定了整个分子的符号. 当 $q > 0$ 时, Γ_+ 和 Γ'_+ 可能有一零点; 当 $q < 0$ 时, Γ_- 和 Γ'_- 可能有一零点. 宽度为零意味着该峰的消失, 也就是没有电子或离子生成, 即光场稳定了自电离态. 无论 q 的符号如何, 我们从 (10) 式都能得到使某两个峰消失时 Ω 的值

$$\begin{aligned} \Omega_0^2 &= \frac{1}{8} [4\Delta|q|(\Gamma_a + \gamma_a + \gamma_g) + q^2(\Gamma_a + \gamma_a + \gamma_g)^2 + |q|(\Gamma_a + \gamma_a + \gamma_g) \\ &\quad \sqrt{32\Delta^2 + 8\Delta|q|(\Gamma_a + \gamma_a + \gamma_g) + (\Gamma_a + \gamma_a + \gamma_g)^2(q^2 - 4)}]. \end{aligned} \quad (11)$$

从 (11) 式我们得到使某两个峰消失的必要条件为

$$32\Delta^2 + 8\Delta|q|(\Gamma_a + \gamma_a + \gamma_g) + (\Gamma_a + \gamma_a + \gamma_g)^2(q^2 - 4) \geq 0, \quad (12)$$

若略去小量 γ_a, γ_g ,

$$32\Delta^2 + 8\Delta|q|\Gamma_a + \Gamma_a^2(q^2 - 4) \geq 0, \quad (13)$$

例如,在 $\Delta = 0$ 时,只有对 $q \geq 2$ 的原子才能观察到光场对自电离能级的稳定.

在 (11) 式中令 $\Delta = 0, q = 5$, 得到 $\Omega_0 = \sqrt{6}(\Gamma_a + \gamma_g + \gamma_a) \simeq \sqrt{6}\Gamma_a$. 这与文献 [1] 中 Lambropoulos 等人的数值计算精确吻合(注意本文中的 Ω 是文献 [1] 中定义的 Ω 的二分之一).

以上没有考虑自电离态 a 的自然宽度 γ_a . 考虑 γ_a 后, 自电离态 a 的宽度不会为零, 但自电离态 a 的自电离宽度仍然可能为零. 也就是说, 考虑自电离态 a 的自然宽度并不影响我们对自电离态附近的两个峰值分析所得的结果. 但考虑 γ_a 对另外两个峰确实有影响. γ_a 的计入使得 $E_c = E_g + S_g + 2\omega$ 附近的两个峰不再可能消失. 当 Γ_+ (或 Γ_-) 等于零时, Γ'_+ (或 Γ'_-) 等于 γ_a .

本文没有考虑激光场的有质动力对光电子能谱的影响. 这种影响起源于激光场的空间非均匀性所产生的有质动力对电子的加速. 这是一个较复杂的问题^[4], 需要另行研究. 但只要光束的空间均匀性较好, 光强不太强, 这一影响就可忽略.

感谢王之江教授对本文的有价值的建议与讨论.

参 考 文 献

- [1] P. Lambropoulos and P. Zoller, *Phys. Rev.*, **A24**(1981), 379.
- [2] J. H. Eberly and K. Rzazewski, *Phys. Rev. Lett.*, **47**(1981), 408.
- [3] A. I. Andryushin and A. E. Kazakov, *J. Phys. B*, **18**(1985), 1501.
- [4] P. Aogostini *et al.*, *Multiphoton Processes*, Springer Series on Atoms and Plasmas, (1984), Vol. 2, p. 13.
- [5] 赵力耕、徐至展、张文琦, 物理学报, 待发表.
- [6] M. L. Goldberger and K. M. Watson, *Collision theory*, Wiley, New York, (1964).
- [7] P. Lambropoulos, *Phys. Rev.*, **A9**(1974), 1992.
- [8] U. Fano, *Phys. Rev.*, **A124**(1961), 1866.

LASER- INDUCED AUTOIONIZATION AND PHOTOELECTRON SPECTRUM

ZHAO LI-GENG XU ZHI-ZHAN

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica)

Abstract

In this paper, laser-induced autoionization and the photoelectron spectrum are studied theoretically by using resolvent operator method. Our calculations show that there are four peaks in the photoelectron energy distribution. The widths and positions of these peaks are derived analytically. We also discuss the condition of stabilization of autoionizing state by laser field.