



基于极紫外光的Ne, Xe原子电离

雷建廷 余璇 史国强 闫顺成 孙少华 王全军 丁宝卫 马新文 张少锋 丁晶洁

Photoionization of Ne and Xe atoms induced by extreme ultraviolet photons

Lei Jian-Ting Yu Xuan Shi Guo-Qiang Yan Shun-Cheng Sun Shao-Hua Wang Quan-Jun Ding Bao-Wei Ma Xin-Wen Zhang Shao-Feng Ding Jing-Jie

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 143201 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20220341

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220341>

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

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

Ar原子和K⁺离子序列双光双电离光电子角分布的非偶极效应

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

物理学报. 2022, 71(6): 063201 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211905>

Ar原子序列双光双电离产生光电子角分布的理论计算

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

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

桌面飞秒极紫外光原子超快动力学实验装置

A tabletop experimental system for investigating ultrafast atomic dynamics based on femtosecond extreme ultraviolet photons

物理学报. 2020, 69(23): 234208 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20201035>

基于高次谐波产生的极紫外偏振涡旋光

Extreme ultraviolet polarization vortex beam based on high harmonic generation

物理学报. 2020, 69(4): 044203 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20190834>

双激光脉冲打靶形成Gd等离子体的极紫外光谱辐射

Characteristics of extreme ultraviolet emission from Gd plasma produced by dual pulse laser

物理学报. 2022, 71(3): 035202 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211450>

EAST等离子体Mo V–Mo XVIII极紫外光谱的识别

Line identification of extreme ultraviolet spectra of Mo V to Mo XVIII in EAST tokamak

物理学报. 2022, 71(11): 115203 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212383>

基于极紫外光的 Ne, Xe 原子电离*

雷建廷¹⁾²⁾ 余璇¹⁾²⁾ 史国强¹⁾ 闫顺成²⁾³⁾ 孙少华¹⁾ 王全军¹⁾
丁宝卫¹⁾ 马新文²⁾³⁾ 张少锋²⁾³⁾ 丁晶洁^{1)†}

1) (兰州大学核科学与技术学院, 兰州 730000)

2) (中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000)

3) (中国科学院大学, 北京 100049)

(2022 年 2 月 25 日收到; 2022 年 3 月 23 日收到修改稿)

极紫外 (extreme ultraviolet, XUV) 光与物质相互作用是探索微观粒子内部结构的重要方式. 本文利用反应显微成像谱仪测量了 Ne, Xe 原子在 XUV 光作用下单电离与双电离的电子角分布, 提取了 Ne 原子 2p 电子和 Xe 原子 5p, 5s 电子电离的 β 不对称参数, 并结合前人已发表的实验数据与不同的理论模型进行对比. 结果表明 Ne 原子 2p 壳层电子电离受电子关联效应影响较弱; Xe 原子 5p 电子电离受电子关联效应影响强, 且不受相对论效应的影响, 但这两种效应在 Xe 原子 5s 电子电离过程中都发挥了重要作用. 此外, 研究还发现 Xe 原子双电离存在直接双电离和间接双电离两种机制, 并给出了间接双电离第一步与第二步光电子角分布与 β 不对称参数信息.

关键词: 光电子角分布, 极紫外光, β 不对称参数**PACS:** 32.30.-r, 32.80.-t, 41.50.+h**DOI:** 10.7498/aps.71.20220341

1 引言

电子-电子关联是自然界中最普遍的物理过程之一, 是许多现象 (如化学反应、超导现象、凝聚态材料性质等) 的本质原因. 光与物质相互作用是研究原子、分子中电子关联效应的重要途径, 能帮助人们从根本上了解物质微观层面的结构与演变. 飞秒激光迅速发展, 为研究原子超快动力学提供了有力工具, 其与物质相互作用时会产生许多有趣的物理过程, 如多光子电离^[1,2]、非次序双电离^[3]、隧穿电离等. 这些物理过程促进了人们对微观世界中粒子运动规律的认识. 飞秒激光一般处于近红外波段, 主要通过多光子吸收等方式使原子分子电离或激发, 电离效率随电离势增加而指数下降, 因此强

场电离通常是将原子分子中束缚较弱的外壳层电子电离. 通常需要将光子能量提高至极紫外光波段来探究原子内壳层电子动力学过程. 相比于外壳层电子来说, 内壳层电子与电子之间的关联更加强烈. 多电子体系高激发态往往由原子内壳层电子电离形成, 与自然界中发生的动力学演化直接相关, 例如行星大气中的太阳诱导辐射等过程^[4,5]. 因此利用超快极紫外 (extreme ultraviolet, XUV) 光脉冲研究多电子体系高激发态是理解电子关联效应的主要途径之一.

早在 20 世纪 50 年代, 人们就在实验中发现单光子电离的同时伴随着离子激发现象^[6,7], 并认识到电子关联效应在该过程中有不可忽视的作用. 随着同步辐射等光源的发展, 光子能量和场强得到了有效的提高, 另外大量的实验研究了原子的电离、激发过程. Wuilleumier 等^[8] 通过研究 Ne 原子与

* 国家自然科学基金 (批准号: 11905083, U1932133) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: dingjj@lzu.edu.cn

100—2000 eV 的光子相互作用, 确定了各种电离激发过程的相对截面, 验证了相应理论的可靠性. Becker 等^[9]发现通道间的强耦合关联会引起 Ar 原子激发态数量的显著增加. 利用光强 10^{13} W/cm² 的 XUV 光, Richter 等^[10]证明了内部原子非线性行为会影响 Xe 原子的光电离激发过程. 另外, 多电子体系吸收光子发生多电离, 出射的电子通过库仑相互作用进行能量交换, 因此多电离过程也是研究电子关联效应一种重要途径. Bolognesi 等^[11]利用 33.0—54.5 eV 的 XUV 光首次发现了 Xe²⁺离子的 $5s^25p^4(^3P, ^1D, ^1S)$ 和 $5s5p^5(^3P, ^1P)$ 电子能级以及 Xe²⁺激发态 $5s^25p^3nl$ 能态. 在研究惰性气体双电离的相对截面时, 人们发现自电离是导致双电离的主要方式^[12]. 同时, 大量的研究表明相对论效应在光电离反应过程中的影响也尤为重要. 即使在低原子序数原子中, 这些效应同样显得非常重要. 如碱金属原子 s 态电子和 $^2P_{3/2}$ 与 $^2P_{1/2}$ 态电子的偶极矩阵元略有不同, 导致了非零的库珀极小值^[13]的存在. 自旋轨道耦合是人们研究最多的一种相对论效应, Wuilleumier 等^[14]用 21—107 eV 的 XUV 光研究了 Xe 原子 $^2P_{3/2}$ 与 $^2P_{1/2}$ 态电子电离的分支比, 并发现其分支比与能量相关. 目前, 很多实验发现光电子的角分布偏离非相对论理论的预测, 特别是 s 壳层电子电离. 在非相对论条件近似下, 对于 s 态电子角动量转移为 0, 光电子的轨道角动量 l 具有唯一的取值+1, 此时 β 不对称参数为定值 2. 但是在库珀极小值范围内, 相对论效应的影响将被放大从而使得 β 值偏离 2^[15], 因此, 精确测量库珀极小值附近 s 壳层电子电离的 β 取值, 可以为电子关联和相对论效应等相关理论的发展提供参考.

早期的实验工作大都只关注于光电子能谱信息, 而光电子角分布的相关研究鲜有报道. 这是由于早期的实验装置对光电子的收集立体角范围一般在几度左右, 只能测量特定角度出射的光电子. 而要想得到光电子的角分布信息, 就需要用多个探测器或可旋转的探测设备来实现多角度的测量^[16]. 利用 99 eV 的光子, Schwarzkopf 等^[17]通过两个电子谱仪研究 He 原子直接双电离过程, 发现携带相同能量的两个出射电子更倾向于背对背出射. Ueda 等^[18]用多个独立谱仪研究了 Kr 原子 $3d_{5/2}^{-1}5p$ 共振态和 Xe 原子 $4d_{5/2}^{-1}6p$ 共振态级联衰变后两个俄歇电子的关联角分布信息. 从相关研究可以发现, 以上方法虽然实现了对光电子角分布的测量, 但是由于各角度的测量相互独立, 测量效率存在差

别, 需要进行复杂的校准归一, 这样会带来多种系统误差, 因此光电子角分布的研究受到很大的影响. 反应显微成像技术实现了对光电子的 4π 立体角全方位收集, 进而可以得到更准确的光电子角分布信息. 目前用反应显微成像谱仪研究原子的单光子电离激发, 主要集中在简单的 He 原子体系^[19–21], 而较重的原子在电离过程中的光电子角分布的相关报道较少. 由于缺少可以对比的实验数据, 大原子序数原子电离的相关理论计算的适用性需要进一步验证.

本文使用 XUV 光源结合反应显微成像谱仪技术研究了 Ne 原子、Xe 原子不同电离通道的光电子角分布以及对应的 β 不对称参数, 通过与不同理论模型比较, 得到与实验数据符合较好的理论模型. 此外实验研究了 Xe 原子双电离过程, 提取了间接电离通道以及角分布信息, 补充了该过程中光电子角分布数据的空白, 为相关理论的发展提供了参考, 对深入理解电子关联效应具有重要的意义.

2 实验装置

实验装置示意图如图 1 所示, 系统由反应显微成像谱仪和桌面化 XUV 光源组成, 其工作原理详细介绍见文献^[22, 23], 这里只做简要描述. 装置以近红外飞秒激光作为产生驱动高次谐波 (HHG) 的基频光. 飞秒激光系统产生中心波长约为 800 nm, 重复频率为 3 kHz, 最大单脉冲能量可达 3 mJ, 脉冲宽度约为 25 fs 的近红外飞秒激光. 飞秒激光脉冲聚焦到中空波导管内, 使其与管内的惰性气体 Ar 反应产生 HHG. 波导管内径约为 150 μ m, 长度为 5 cm. HHG 的转化效率由两个因素决定: 微观生成过程 (如三步模型) 和宏观传播效应 (飞秒驱动激光场和 XUV 光子之间的相位匹配)^[24]. 波导管内的气压用于调整最佳的相位匹配, 具体取决于近红外激光脉冲强度和持续时间, 以及需要优化的谐波阶次 (本次实验气压为 60 Torr, 1 Torr = 133.32 Pa). 铝膜可将近红外光过滤, 只允许 XUV 光子通过. 该光源产生 XUV 光子的能量范围在 20—45 eV 之间. XUV 光子通过掠入射的方式入射到镀金环面聚焦镜和镀金光栅上, 这里采用光栅的圆锥衍射方式, 既能保证 XUV 光的反射率, 还能限制脉冲的展宽效应. 经过光栅衍射之后, 不同能量的光子以不同的衍射角出射, 然后在特定的位置

加装小孔, 通过调节光栅角度选出特定能量的光子. 选出的单能 XUV 光被另一个镀金环面镜重新聚焦到反应显微成像谱仪中的超音速气体靶上. 超音速冷靶是在气体绝热膨胀过程中提取, 室温下的高压 (10 bar 左右, 1 bar = 10^5 Pa) 气体, 通过直径 30 μm 的小孔, 发生绝热膨胀形成超音速静寂区. 为进一步减小气体束的发散度, 我们使用了直径分别为 180, 300 μm 两级锥形过滤器 (skimmer) 提取分散度最小的冷靶, 同时在三级差分上增加 3 组由刀片组成的狭缝. 通过以上设计, 气体靶的横向动量和纵向动量分布被限制在一个很窄的范围内. 最终冷靶到达反应腔中心并与 XUV 光子相互作用. 反应产生的离子和电子在均匀电场 (3.5 V/cm) 的作用下被分别引出到两端的探测器上. 对电子而言, 仅靠电场很难实现完全收集. 为了提高电子的收集效率, 我们用亥姆霍兹线圈产生 10 Gs (1 Gs = 10^{-4} T) 的匀强磁场来进一步约束电子横向运动, 实现对 40 eV 以内电子的完全收集. 为了提高电场方向上带电粒子的动量分辨, 飞行时间谱仪在结构上设计成加速区和漂移区的长度比为 1:2, 满足一维时间聚焦条件^[25]. 根据实验测得的时间信息和位置信息就可以重构所有碎片离子的三维动量. 为了方便讨论, 这里定义加速电场的方向为 x 轴, 超音速气体冷靶的方向为 y 轴, XUV 光的传播方向为 z 轴, 且偏振方向沿着 y 方向.

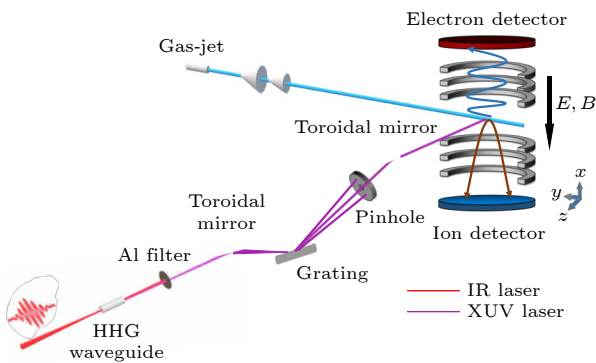


图 1 实验装置示意图

Fig. 1. Schematic diagram of the experimental setup.

3 结果分析与讨论

3.1 Ne 原子单光子单电离

Ne 原子的第一电离能为 21.5 eV, Ne^+ 的第一激发态电离所需要的能量为 48.5 eV. 在能量约 40 eV 光子的作用下, Ne 原子仅能发生单光子单

电离. 之前我们利用 Ar 原子电离的电子能谱和 β 不对称参数完成了实验设备的标定, 保证了后续实验电子能谱等信息的准确性^[23]. 图 2(a) 是 Ne 原子光电电子能谱图, 可知电子的动能为 14.6 eV. 取动量 $|P_x| < 0.1$ 的事件, 图 2(b) 所示结果为统计 Ne 原子单电离过程中出射电子在探测器平面的二维动量分布, 其中红色箭头为 XUV 光的偏振方向, 光电子的动量分布展示出完整的偶极分布特征. 图 2(c) 所示结果为通过二维动量分布提取的出射电子角分布, 图中的角度为出射电子与 XUV 光子偏振方向的夹角. 实验测量结果和理论计算已进行归一化处理, 带有误差棒的黑色实心点是本次实验结果.

采用 Hartree-Fock (H-F) 理论来计算 2p 电子的角分布, 结果如图 2(c) 中蓝色虚线所示. 红色曲线为拟合结果, 拟合公式为

$$\frac{d\sigma(E, \theta)}{d\Omega} = \frac{\sigma(E)}{4\pi} [1 + \beta(E) P_2(\cos\theta)], \quad (1)$$

其中, E 为光子能量, $\sigma(E)$ 是光电离的总截面, θ 为电子出射方向与激光偏振方向的夹角, $P_2(\cos\theta)$ 为二阶勒让德多项式, $P_2(\cos\theta) = \frac{1}{2}(3\cos^2\theta - 1)$. β 被称为电子角分布不对称参数, 由于 $\frac{d\sigma(E, \theta)}{d\Omega}$ 必须为正值, 因此 β 的取值范围为 $-1 \ll \beta \ll 2$. 当 β 为正时, 电子沿着光子偏振方向出射; β 为负时, 电子倾向于垂直光子偏振方向出射; 当 $\beta = 0$ 时, 电子呈各向同性出射. 实验得到的 Ne 原子 2p 电子电离的 β 不对称参数为 0.665 ± 0.011 , 电子沿着 XUV 光偏振方向出射. 图 2(d) 给出了 Ne 原子 2p 电子的 β 值随入射光子能量的变化, 其中蓝色虚线和黑色实线分别对应 H-F 理论和随机相位近似 (random phase approximation, RPA) 理论的计算结果; 红色实点、空心三角、空心圆和正方形分别为本实验、Codling 等^[26]、Dehmer 等^[27]以及 Schmidt^[28]的测量结果. H-F 理论为单电子近似模型, 认为电子运动相互独立, 并构造中心场来引入电子间的平均库仑作用, 将电子-电子相互作用等效成一个平均值, 电子是在一个平均场中运动, 因此模型中没有考虑电子-电子关联效应. 而 RPA 理论模型的初末态波函数增加了不同壳层电子的耦合关联, 将电子关联效应纳入到了模型中^[29]. 从图 2(d) 中发现 RPA 理论与实验值符合地很好, 而 H-F 理论结果在低能光子低能部分与实验值符

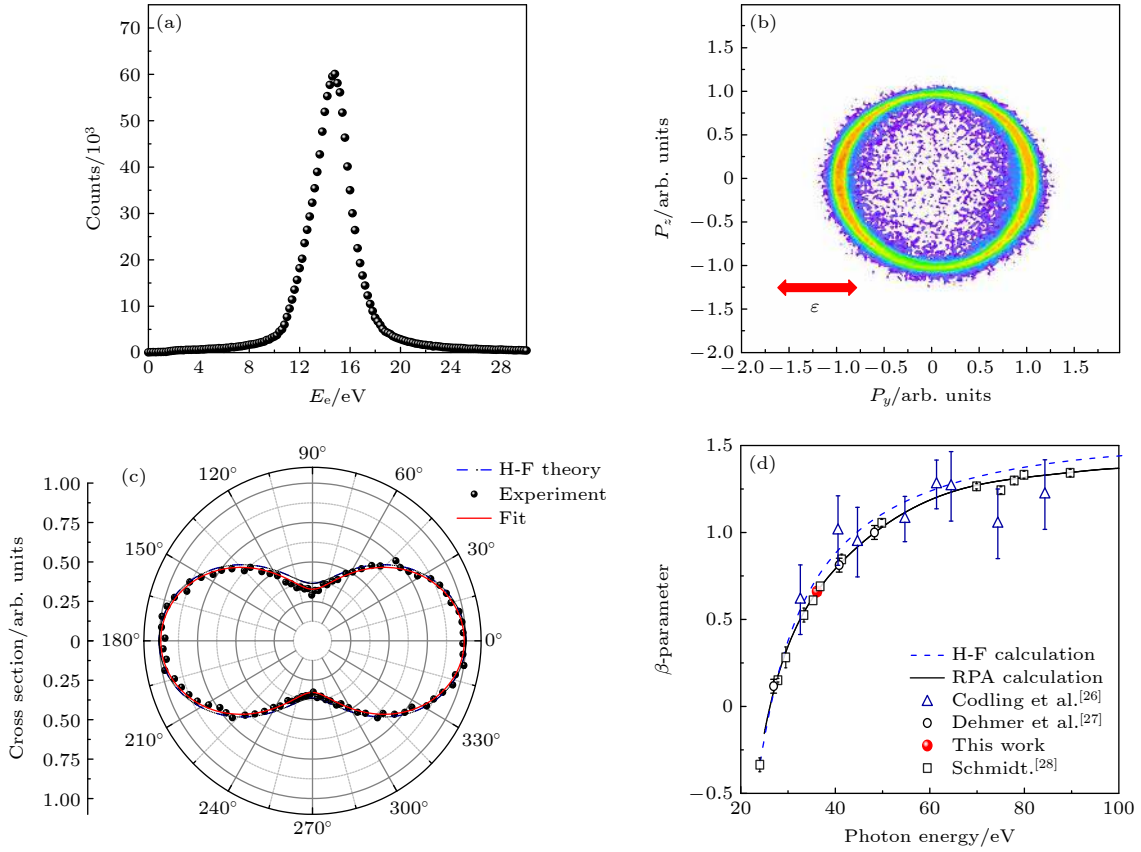


图 2 (a) Ne 原子光电子的能谱; (b) 光电子动量在 y - z 平面内的二维动量分布图, 统计动量 $|P_x| < 0.1$ 的事件; (c) 2p 电子的角分布; (d) 2p 电子的 β 不对称参数随光子能量的变化关系

Fig. 2. (a) Energy spectrum of the photoelectron from Ne; (b) density plots of the momentum distribution of the photoelectron on the y - z plane for events with transverse momentum $|P_x| < 0.1$; (c) angular distribution of 2p electrons; (d) the β -asymmetric parameter for 2p photoionization as a function of the photon energy.

合好, 在光子能量高能部分与实验值有较小的偏差. 表明 Ne 原子 2p 壳层电子的电子关联效应较弱, 随着光子能量升高, 2p 电子电离才受到一定的电子关联效应的影响. 本实验中测量的 Ne 原子 2p 电子 β 值与已发表的实验值及理论结果符合地很好, 进一步证明了实验测量的可靠性.

3.2 Xe 原子单光子单电离

Xe 原子外层电子排布为 $5s^25p^6$, 其第一电离能为 12.1 eV, Xe^+ 的第一激发态电子电离所需要的能量为 23.3 eV. 当 Xe 原子吸收光子的能量大于 Xe^+ 的第一激发能时, Xe 原子在电离的同时伴随着其他电子的激发. XUV 光子的一部分能量被用于激发离子, 导致光电子的动能减小, 在光电子能谱上形成不同能量的峰, 每个能峰对应 Xe^+ 离子的一种激发态. 表 1 给出 Xe 原子的不同能级及其对应的结合能, 可以看出 $P_{3/2}$ 态与 $P_{1/2}$ 态的能级差仅为 1.3 eV, 而实验中 XUV 光的频谱范围宽,

因此难以区分两个态的电子能谱. 图 3(a) 为入射光子能量为 38.8 eV 时, Xe 原子单电离光电子能谱, 带有误差棒的黑点为实验值, 其他不同颜色的实线为拟合曲线. 图中电子谱主峰 (紫色区域 I) 对应 Xe 原子 5p 壳层 $P_{3/2}$, $P_{1/2}$ 态电子电离. Xe 原子内壳层能级较密, 平台区能谱峰对应 5s 电离以及其他电离激发的组态电离. 通过文献 [30] 可知,

表 1 Xe 原子不同电子组态及结合能

Table 1. Different electronic configurations and binding energies of Xe atoms.

Xe^+ 电子组态	总角动量 J	能量/eV	能峰序号
$5p^5$	$P_{3/2}$	12.10	(1)
	$P_{1/2}$	13.40	(2)
$5s5p^6$	$S_{1/2}$	23.30	(3)
$5s^25p^4 (^3P)6p$	$^2D_{3/2}$	27.54	(4)
$5s^25p^4 (^3P)5d$	$^2D_{5/2}$		
$5s^25p^4 (^1D)5d$	$^2P_{1/2}$	27.88	
$5s^25p^4 (^1D)5d$	$^2D_{3/2}$	27.97	
$5s^25p^4 (^1S)6s$	$^2S_{1/2}$	28.16	

在 40 eV 光子作用下反应截面最大的激发态能级为 $5p^4(^3P)6p$, $5s^25p^4(^3P)5d$ 和 $5s^25p^4(^1S)6s$. 这些离子态的结合能可见表 1, 对应的光电子能谱互相叠加不能区分. 综上分析, 平台区仅利用双峰拟合提取 5s 态以及其他叠加激发态对应的电子能谱, 主峰 (紫色区域 I) 利用双峰拟合 5p 壳层 $P_{3/2}$ 态与 $P_{1/2}$ 态的电子能谱. 拟合得到的峰值分别为 26.7, 25.4, 15.6, 10.9 eV, 其中峰 1、峰 2 对应 5p 壳层 $P_{3/2}$ 态与 $P_{1/2}$ 态电子电离, 峰 3 对应 5s 电子电离, 峰 4 对应 $5p^4(^3P)6p$, $5s^25p^4(^3P)5d$ 和 $5s^25p^4(^1S)6s$ 态电子的电离. 根据能量守恒公式 $E_{\text{pho}} = E_{\text{ion}}(12.1 \text{ eV}) + E_e + E_{\text{excit}}$, 其中 E_{pho} , E_{ion} , E_e 和 E_{excit} 分别代表入射光子能量、Xe 原子电离能、光电子动能和离子激发能. 我们得到光子能量是 Xe 原子电离能、光电子动能以及离子激发所需要的能量之和. 因此本次实验单光子能量为 38.8 eV (对应第 25 阶 HHG). Xe 原子在该能量下电离的

总截面为 2.24 Mb ($1 \text{ b} = 10^{-28} \text{ m}^2$)^[31,32], 5s 电子在该能量下的电离截面占总截面的 6%^[33,34]. 在本次实验中, 3 号峰面积占总峰面积的 $7.0\% \pm 1.2\%$, 即 5s 电离截面占比为 $7.0\% \pm 1.2\%$, 与之前的实验和理论结果基本符合, 验证了拟合的准确性.

图 3(b) 为 Xe 原子单电离电子在探测器 y - z 平面内的二维动量分布 (激光偏振方向沿着 y , 传播方向为 z), 这里仅提取电场方向动量 $|P_x| < 0.1$ 的事件. 图 3(b) 中不同的同心圆环对应不同能量的出射电子, 即代表不同的电离反应通道, 其中最外层圆环为 5p 电子电离, 对应图 3(a) 中的主峰 (紫色区域 I). 内部的圆环依次为 5s 电子电离以及其他激发态电离. 对电子能谱施加限制条件选择特定的反应通道事例, 本次实验选择能量范围为 22—32 eV (I), 15.5—19.5 eV (II), 7—11 eV (III).

统计区间 I 内的事件, 得到 Xe 原子 5p 壳层电子的角分布, 如图 4(a) 所示. 其中黑色带有误差棒的点为实验值, 红色曲线为采用 (1) 式得到的拟合曲线, 本次实验得到 5p 电子的 β 不对称参数为 1.00 ± 0.04 . 图 4(b) 为不同光子能量下 5p 电子的 β 参数实验值及理论计算结果, 其中红色点为本次实验值, 实心三角和空心三角为电离 $P_{3/2}$ 态与 $P_{1/2}$ 态电子的 β 不对称参数的实验数据^[35]. 理论计算方面, RPA 模型只考虑不同壳层电子关联, 并没有引入相对论效应. 相对论随机相位近似 (relativistic random phase approximation, RRPA) 理论基于 Dirac 方程发展, 其中包括以从头算为基础的相对论效应, 同时在初态和末态波函数中考虑了电子关联相互作用; 因此 RRPA 模型不仅考虑了壳层电子与电子的关联, 还考虑了自旋轨道耦合等相对论效应^[36]. 图 4(b) 中蓝色虚线和绿色实线分别为 RRPA 模型考虑 5s, 5p, 4d 壳层电子关联耦合计算得到的 5p ($^2P_{1/2}$) 态和 5p ($^2P_{3/2}$) 态电子电离的 β 不对称参数随光子能量变化的结果^[36], 黑色实线和黄色虚线分别为 RRPA 理论^[37] 与 RPA 模型考虑到 5s, 5p, 4d 电子壳层关联得到的 5p 电子电离的不对称参数结果, 红色虚线为 RRPA 理论仅考虑 5s, 5p 两个壳层电子关联耦合得到的 β 不对称参数结果. 将该结果结合前人的实验数据与理论模型对比发现, 红色虚线偏离实验值较大 (尤其光子能量大于 35 eV), 黑色实线与实验数据更吻合. 这说明同时考虑 5s, 5p, 4d 壳层 (尤

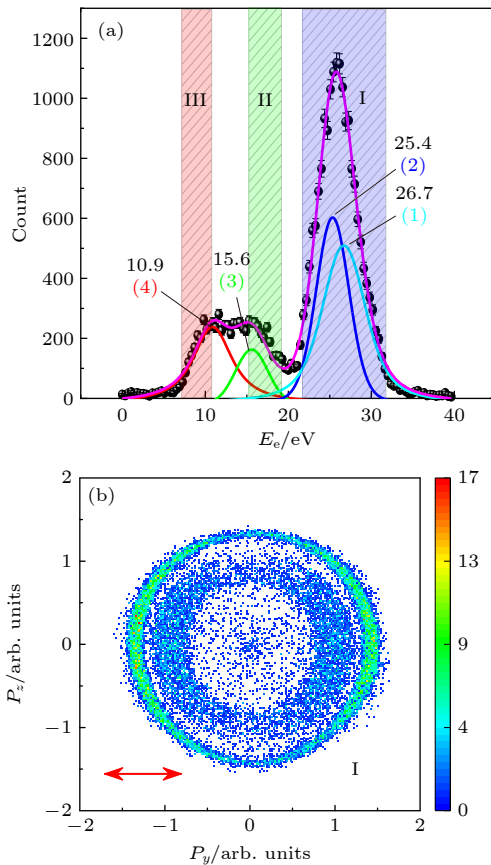


图 3 (a) 入射光子能量为 38.8 eV 时, Xe 原子单电离的出射光电子能谱; (b) Xe 原子单电离出射光电子在 y - z 平面内的二维动量分布

Fig. 3. (a) Photoelectron energy spectrum for Xe with 38.8 eV XUV photon; (b) photoelectron momentum distribution of Xe on the y - z plane defined by the XUV polarization.

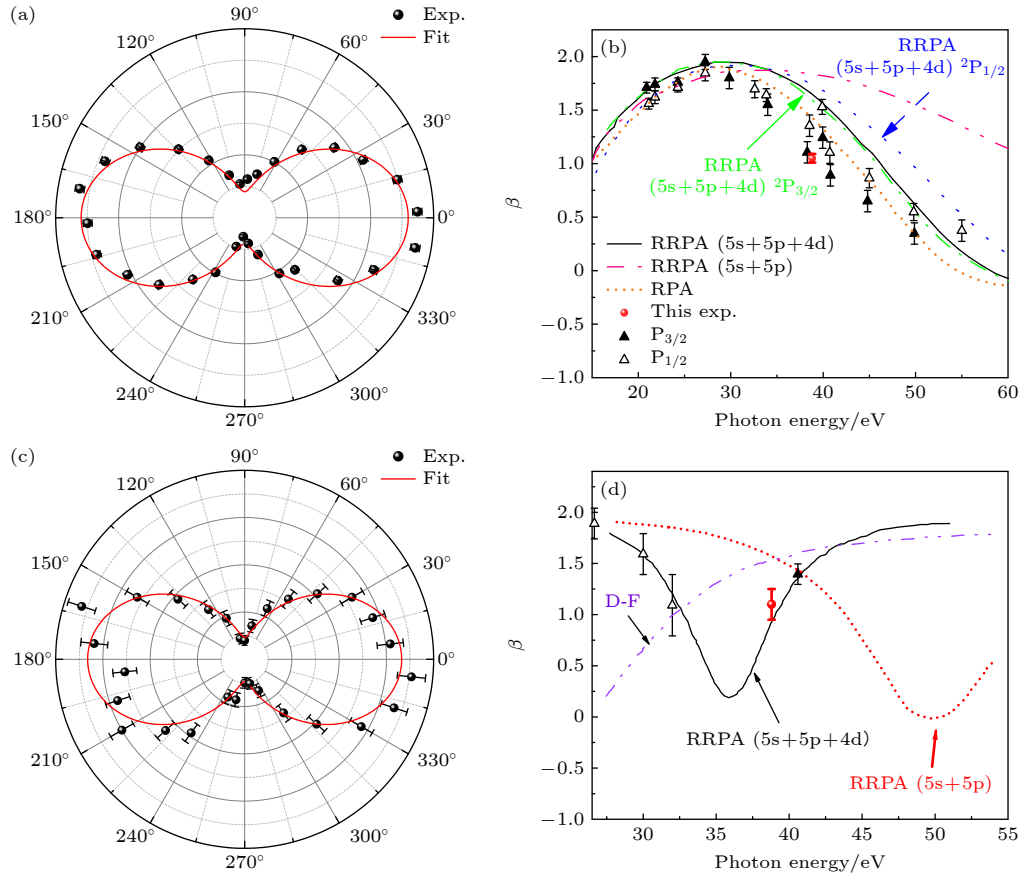


图 4 (a), (c) 分别为 Xe 原子 5p 电子与 5s 电子电离的角分布图; (b), (d) 分别为 5p 电子与 5s 电子对应的 β 不对称参数随入射光子能量的变化

Fig. 4. (a), (c) Angular distribution of the 5p and 5s photoelectrons of Xe, respectively; (b), (d) β -asymmetric parameter of 5p and 5s electron varies with the photon energy, respectively.

其是 4d 壳层) 的关联相互作用对理论的准确性起重要作用. 由图 4(b) 可知, RPA 模型比 RRPA 模型与实验数据符合更好, 说明在 40 eV 左右光子作用下, Xe 原子 p 壳层电子电离基本不受相对论效应的影响. 通过比较图 4(b) 与图 2(d) 发现, Ne 原子 p 壳层电子电离不考虑电子关联效应的理论值与实验值的偏差, 相比于 Xe 原子理论值与实验值的偏差要小, 说明 Xe 原子 p 壳层电子比 Ne 原子 p 壳层电子关联效应更强.

5s 电离通道角分布以及 β 参数的实验测量较少, 尤其在本实验中所使用的光子能量范围附近. 这主要是因为光子在 34—35 eV 能量内, Xe 原子 5s 电离的截面处在一个极小值, 称为库珀极小值. 当光子能量处于该值附近时, 5s 电离概率低. 早期的电子角分布测量受探测手段的影响很难进行有效测量, 使用反应显微成像谱仪测量具有显著的优势. 选择区域 II 中的事件, 得到 Xe 原子 5s 电子角分布信息, 如图 4(c) 所示. 红色曲线是采用 (1) 式

所得的拟合曲线, 黑色点为本实验数据. 本实验得到 $\beta = 1.10 \pm 0.15$, 结合其他实验数据与对应的理论比较, 如图 4(d) 所示. 其中红色点为本实验数据点, 误差为拟合误差, 白色三角和黑色三角的实验数据来自文献 [38, 39]. 红色虚线和黑色实线分别为 RRPA 理论考虑了 5s, 5p 壳层相互作用与 5s, 5p, 4d 壳层电子耦合关联的计算结果. 紫色曲线为 Dirac-Fock (D-F) 理论结果, 该模型仅考虑了自旋轨道耦合等相对论效应, 没有考虑电子关联效应. 结果表明考虑相对论效应和电子关联的 RRPA 理论与实验符合较好, 且考虑不同轨道电子耦合越多, 理论结果与实验值吻合越好. 选取电子能量 III 范围的事件, 得到其激发态的平均不对称参数 $\beta = 0.50 \pm 0.04$. 由于激发能级较密, 实验难以有效区分; 电离激发过程的相关理论目前也无法准确计算, 因此需要更高分辨的实验测量和更准确的理论来帮助人们进一步理解高激发态背后的物理机制.

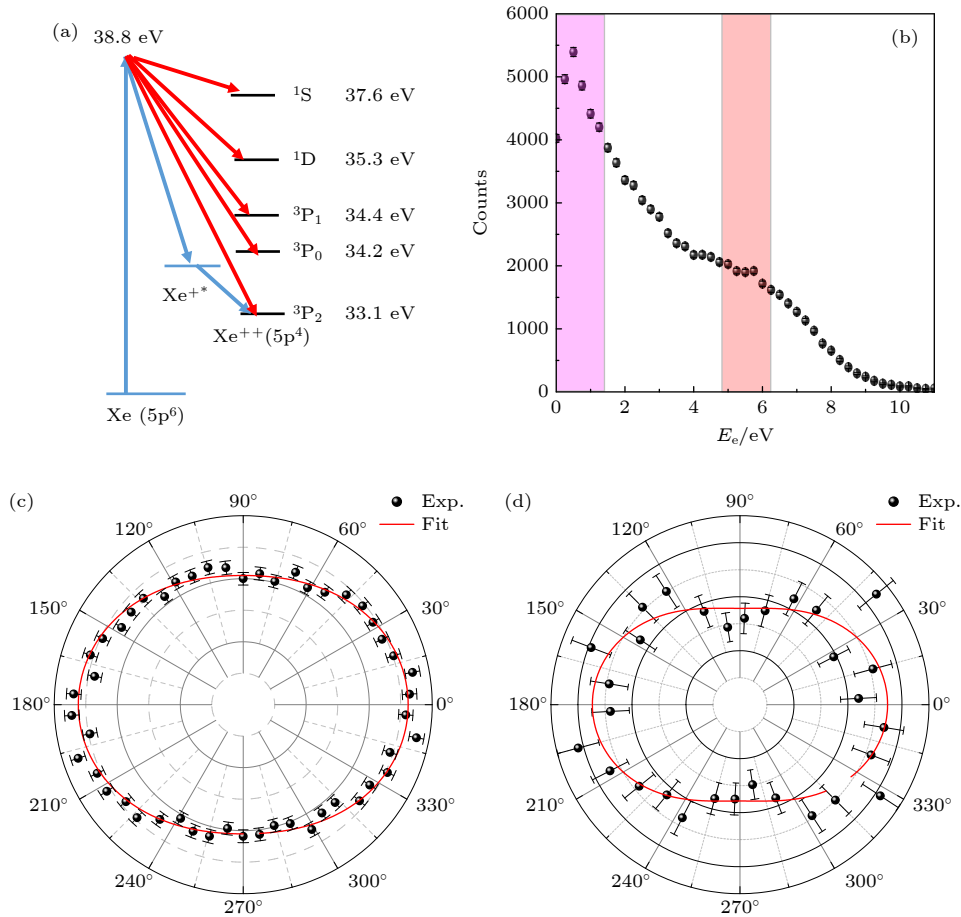


图 5 (a) 在 38.8 eV XUV 光的作用下, Xe 原子双电离对应的反应路径; (b) Xe 原子单光子双电离的电子能谱; (c) 光电子能量在 0—1.5 eV 内的电子角分布; (d) 5.5—7.0 eV 能量的光电子角分布

Fig. 5. (a) Typical routes to double ionization of Xe interacting with 38.8 eV XUV photon; (b) kinetic energy distribution of photoelectrons from double ionization of Xe; (c) angular distributions of the photoelectrons energy in the range of 0–1.5 eV; (d) angular distributions of the photoelectrons energy in the range of 5.5–7.0 eV.

3.3 Xe 原子单光子双电离

Xe 原子的第一电离能和第二电离能分别为 12.13, 33.10 eV, 因此在 38.8 eV 光子作用下, Xe 原子会发生单光子双电离反应 (图 5(a)). 通过分析 1 个光电子能谱与 Xe 原子能级, 可判断出双电离有直接途径和间接途径. 直接双电离途径是 Xe 原子的 1 个核外电子吸收 XUV 光子后出射, 出射电子通过库仑相互作用使第 2 个电子电离, 两个电子以高度相关的方式同时发射. 而间接双电离途径是第 1 个电子吸收 XUV 光子后出射, 第 2 个电子同时被激发到 Xe^+ 的激发态, 其能量高于 Xe 原子双电离阈值, 然后通过自电离衰减为 Xe^{2+} 基态 ($\text{Xe} + \gamma \rightarrow \text{Xe}^{+*} + e$, $\text{Xe}^{+*} \rightarrow \text{Xe}^{2+} + e$), 因此在电子能谱上会出现两个孤立的共振峰结构. 图 5(b) 为 Xe 原子双电离电子能谱, 在 1 eV 附近存在明显的共振峰结构, 同时在 5 eV 附近似乎也

存在共振峰现象, 所以判断出存在间接双电离反应机制. 对于双电离的详细过程, 需要利用 Xe 原子的能级进一步解释. 如图 5(a) 所示, 红色箭头为直接双电离, 蓝色箭头为间接双电离. Xe 原子在 38.8 eV 光子的作用下发生直接双电离会产生 5 种 Xe^{2+} 末态: $^3\text{P}_2$, $^3\text{P}_0$, $^3\text{P}_1$, ^1D , ^1S ; 其能量分别为 33.1, 34.2, 34.4, 35.3, 37.6 eV^[40]; 间接双电离形成 Xe^+ 的中间态主要集中在 $\text{Xe}^+(5\text{p}^4)^1\text{S } 7\text{d}$, $\text{Xe}^+(5\text{p}^4)^1\text{D } nd$ ($n = 8, 9$) 这 3 个态布局, 能量分别为 33.90, 33.64, 34.10 eV. 对于直接双电离, 两个电子的能量总和与 XUV 光子能量和 Xe^{2+} 末态之间的能量差相等. 至于间接双电离, 它主要涉及两步: $\text{Xe} + \gamma \rightarrow \text{Xe}^{+*} + e$, $\text{Xe}^{+*} \rightarrow \text{Xe}^{2+} + e$. 第一步的光电子动能取决于 Xe^+ 里德伯态和 XUV 光子能量之差, 第二步自电离电子的能量仅取决于 Xe^+ 里德伯态和最终 Xe^{2+} 末态之间的能量差. 因此, 由

图 5(a) 能级可知, 间接双电离第一步的光电子主要贡献了图 5(b) 中 5 eV 左右的能谱, 而间接电离的第二步的电子贡献了 1 eV 附近的能谱. 光电子能谱在 5 eV 附近有较长的拖尾, 这是由 XUV 频谱较宽造成的.

根据图 5(b) 能量分布可以确定 2 个能量范围: [0, 1.5] eV 和 [5.5, 7.0] eV, 并做出对应的光电子角分布. 图 5(c) 对应能量在 [0, 1.5] eV 范围的光电子角分布, 通过 (1) 式拟合得到不对称参数 $\beta = 0.16 \pm 0.02$. 结果发现角分布基本呈各向同性, 仅在沿着激光偏振方向的计数略多. 这是由于高激发态 $\text{Xe}^{1+}(1\text{D})nd$ ($n = 8, 9$) 和 $\text{Xe}^{1+}(1\text{S})7d$ 退激到最终的 $\text{Xe}^{2+}(3\text{P}_2)$ 基态的过程为自电离过程, 不受激光的影响. 表明能量在 [0, 1.5] eV 范围的电子来自间接电离的第二步, 而角分布出现倾向激光偏振方向出射的原因主要是在该能区存在直接双电离的贡献. 而能量范围 [5.5, 7.0] eV 中的电子角分布为图 5(d), 其对应的 β 不对称参数为 0.32 ± 0.12 . 不同能量区间 β 参数是所涉及通道的加权平均值, 由于该里德伯态处于内壳层激发, 目前并没有相关理论能对其进行精确计算.

4 结 论

本文利用反应显微成像谱仪进行了 Ne 原子、Xe 原子在 XUV 光作用下的电离实验, 分析了 Ne 原子与 36.1 eV XUV 光反应的单电离电子角分布及 β 不对称参数, 以及 Xe 原子在 38.8 eV 光子作用下单电离与双电离的电子角分布及 β 参数特征. Ne 原子 2p 壳层电子电离的 β 不对称参数为 0.665 ± 0.011 , 实验值与考虑到电子关联效应的 RPA 模型符合较好, 同时与没有考虑电子关联效应的 H-F 模型相差不大, 说明 Ne 原子 2p 壳层电子在电离过程中受电子关联效应较弱. Xe 原子 5p 电子在其能量下电离的不对称参数 $\beta = 1.00 \pm 0.04$, 通过与 RPA、RRPA 理论不同壳层关联的计算结果对比, 结果发现实验值与考虑 5s, 5p, 4d 壳层耦合的 RPA 理论符合较好, 表明 5p 壳层电子电离基本不受相对论效应的影响, 电子-电子关联效应对其起重要作用. 将 Xe 原子与 Ne 原子 p 壳层的 β 参数进行比较, 发现 Ne 原子不考虑电子关联效应的理论值与实验值偏差比 Xe 原子要小, 说明 Xe 原子 p 壳层电子比 Ne 原子的电子关联效应

更强. 同时测得 Xe 原子 5s 电子在该能量下的 $\beta = 1.10 \pm 0.15$, 与考虑到自旋轨道耦合等相对论效应和电子关联效应的 RRPA 理论模型更符合. 此外, 通过电子能谱和角分布判断出 Xe 原子双电离存在直接双电离与间接双电离机制, 确定出间接双电离第一步到达的亚稳态是 $\text{Xe}^{1+}(1\text{D})nd$ ($n = 8, 9$) 和 $\text{Xe}^{1+}(1\text{S})7d$, 并测量了间接电离第一步与第二步的光电子角分布以及对应 β 不对称参数分别为 0.32 ± 0.12 和 0.16 ± 0.02 .

参考文献

- [1] Leuchs G 1984 *Multiphoton Processes* Berlin, Heidelberg, September 5–12, 1984 pp48–57
- [2] L'Huillier A, Lompre L A, Mainfray G, Manus C 1983 *Phys. Rev. A* **27** 2503
- [3] Weber T, Giessen H, Weckenbrock M, Urbasch G, Staudte A 2000 *Nature* **405** 658
- [4] Imanaka H, Smith M A 2007 *Geophys. Res. Lett.* **34** L02204
- [5] Hell N, Brown G V, Wilms J, Grinberg V, Clementson J, Liedahl D, Porter F S, Kelley R L, Kilbourne C A, Beiersdorfer P 2016 *Astrophys. J.* **830** 26
- [6] Cooper J W, Fano U, Prats F 1963 *Phys. Rev. Lett.* **10** 518
- [7] Madden R P, Codling K 1963 *Phys. Rev. Lett.* **10** 516
- [8] Wuilleumier F, Krause M O 1974 *Phys. Rev. A* **10** 242
- [9] Becker U, Langer B, Kerkhoff H G, Kupsch M, Szostak D, Wehlitz R, Heimann P A, Liu S H, Lindle D W, Ferrett T A, Shirley D A 1988 *Phys. Rev. Lett.* **60** 1490
- [10] Richter M, Bobashev S V, Sorokin A A, Tiedtke K 2010 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **43** 194005
- [11] Bolognesi P, Cavanagh S J, Avaldi L, Camilloni R, Zitnik M, Stuhec M, King G C 2000 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **33** 4723
- [12] Hall R I, Ellis K, Mcconkey A, Dawber G, Avaldi L, Macdonald M A, King G C 1992 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **23** 377
- [13] Fano U, Cooper J W 1968 *Rev. Mod. Phys.* **40** 441
- [14] Wuilleumier F, Adam M Y, Dhez P, Sandner N, Schmidt V, Mehlhorn W 1977 *Phys. Rev. A* **16** 646
- [15] Johnson W R, Cheng K T 1978 *Phys. Rev. Lett.* **40** 1167
- [16] Hemmers O, Whitfield S B, Glans P, Wang H, Lindle D W, Wehlitz R, Sellin I A 1998 *Rev. Sci. Instrum.* **69** 3809
- [17] Schwarzkopf O, Krässig B, Elmiger J, Schmidt V 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 3008
- [18] Ueda K, Shimizu Y, Chiba H, Kitajima M, Okamoto M, Hoshino M, Tanaka H, Hayaishi T, Fritzsche S, Sazhina I P, Kabachnik N M 2003 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **36** 319
- [19] Dörner R, Vogt T, Mergel V, et al. 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 2654
- [20] Czasch A, Schöffler M, Hattass M, et al. 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 243003
- [21] Weber T, Weckenbrock M, Staudte A, Hattass M, Spielberger L, Jagutzki O, Mergel V, Böcking H S, Urbasch G, Giessen H, Bräuning H, Cocks C L, Prior M H, Dörner R 2001 *Opt. Express* **8** 368
- [22] Dörner R, Mergel V, Jagutzki O, Spielberger L, Ullrich J, Moshhammer R, Schmidt Böcking H 2000 *Phys. Rep.* **330** 95
- [23] Hai B, Zhang S F, Zhang M, Najjari B, Dong D P, Lei J T,

- Zhao D M, Ma X 2020 *Phys. Rev. A* **101** 052706
- [24] Gagnon E, Sandhu A S, Paul A, Hagen K, Czasch A, Jahnke T, Ranitovic P, Lewis Cocke C, Walker B, Murnane M M, Kapteyn H C 2008 *Rev. Sci. Instrum.* **79** 063102
- [25] Wiley W C, McLaren I H 1955 *Rev. Sci. Instrum.* **26** 1150
- [26] Codling K, Houlgate R G, West J B, Woodruff P R 1976 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **9** L83
- [27] Dehmer J L, Chupka W A, Berkowitz J, Jivry W T 1975 *Phys. Rev. A* **12** 1966
- [28] Schmidt V 1986 *Photoionization in Rare Gases with Synchrotron Radiation: Some Basic Aspects for Critical Tests with Theory* (Vol. 2) pp275–283
- [29] Amusia M Y, Cherepkov N A, Chernysheva L V 1972 *Phys. Rev. A* **40** 15
- [30] Lagutin B M, Petrov I D, Sukhorukov V L, Whitfield S B, Langer B, Viefhaus J, Wehlitz R, Berrah N, Mahler W, Becker U 1996 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **29** 937
- [31] Samson J, Stolte W C 2002 *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **123** 265
- [32] Qiao C K, Chi H C, Hsu M C, Zheng X G, Jiang G, Lin S T, Tang C J, Huang K N 2019 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **52** 075001
- [33] Fahlman A, Carlson T A, Krause M O 1983 *Phys. Rev. Lett.* **50** 1114
- [34] Samson J A R, Gardner J L 1974 *Phys. Rev. Lett.* **33** 671
- [35] Krause M O, Carlson T A, Woodruff P R 1981 *Phys. Rev. A* **24** 1374
- [36] Johnson W R, Cheng K T 1979 *Phys. Rev. A* **20** 978
- [37] Johnson W R, Cheng K T 2001 *Phys. Rev. A* **63** 022504
- [38] White M G, Southworth S H, Kobrin P, Poliakov E D, Rosenberg R A, Shirley D A 1979 *Phys. Rev. Lett.* **43** 1661
- [39] Dehmer J L, Dill D 1976 *Phys. Rev. Lett.* **37** 1049
- [40] Eland J H D, Vieuxmaire O, Kinugawa T, Lablanquie P, Hall R I, Penent F 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 053003

Photoionization of Ne and Xe atoms induced by extreme ultraviolet photons^{*}

Lei Jian-Ting¹⁾²⁾ Yu Xuan¹⁾²⁾ Shi Guo-Qiang¹⁾ Yan Shun-Cheng²⁾³⁾
 Sun Shao-Hua¹⁾ Wang Quan-Jun¹⁾ Ding Bao-Wei¹⁾ Ma Xin-Wen²⁾³⁾
 Zhang Shao-Feng²⁾³⁾ Ding Jing-Jie^{1)†}

1) (*School of Nuclear Science and Technology, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China*)

2) (*Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China*)

3) (*University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

(Received 25 February 2022; revised manuscript received 23 March 2022)

Abstract

The interaction of extreme ultraviolet (XUV) photon with matter is a meaningful way to understand the electronic structure of microscopic particles. In this paper, the electron angular distributions of single ionization and double ionization of Ne and Xe atoms interacting with XUV photons are investigated by utilizing a reaction microscope. The β -asymmetric parameters of 2p electrons of Ne atom, and 5p, 5s electrons of Xe atom combined with the reported experimental data are compared with those from different theoretical models. The result shows that the electron correlation effect can be ignored in the ionization of 2p electron of Ne atom. While the ionization of 5p electron of Xe atom is strongly influenced by the electron correlation effect, but not by the relativistic effect. These two effects play an important role in ionizing the 5s shell of Xe atom. In addition, this study finds that both direct double ionization and indirect double ionization exist simultaneously during the ionization of Xe atom, and gives the photoelectron angular distributions and the β -asymmetric parameters of the first step and the second step of indirect double ionization.

Keywords: photoelectron angular distribution, extreme ultraviolet photon, β -asymmetric parameter

PACS: 32.30.-r, 32.80.-t, 41.50.+h

DOI: 10.7498/aps.71.20220341

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11905083, U1932133).

[†] Corresponding author. E-mail: dingjj@lzu.edu.cn