

文章编号: 0258-7025(2009)11-2865-04

电离光电子的干涉效应与空间角分布

李永放 刘娟 樊荣 任立庆 马瑞琼

(陕西师范大学物理学与信息技术学院, 陕西 西安 710062)

摘要 基于光电子角分布成像光谱技术的基本原理, 讨论了单光子共振三光子电离方法获得的光电子成像图, 同时也分析了光电子角分布的物理含义。着重研究了多通道电离过程中光电子的干涉作用对成像光谱的影响; 分析了光电子空间角分布以及光电成像光谱与原子能态信息的关系。

关键词 光谱学; 光电离谱; 光电子空间角分布; 多光子电离; 光电子空间干涉效应

中图分类号 O562.4; O562.3 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/CJL20093611.2865

Interference Effect and Space Angular Distribution of the Ionization Photoelectron

Li Yongfang Liu Juan Fan Rong Ren Liqing Ma Ruiqiong

(School of Physics and Information Technology, Shaanxi Normal University, Xi'an, Shaanxi 710062, China)

Abstract Based on the principle of the photoelectron angular distribution imaging spectrometry, the photoelectron image is investigated by using single-photon resonance and three-photo ionization. The physics sense of the angular distribution of the photoelectron is analyzed. The impact of the photoelectron interference effect in the process of multi-channel ionization on imaging spectrometry is emphasized, the relation between the information of the atomic states and the photoelectron angular distributions is discussed in detail.

Key words spectroscopy; photoelectric ionizing spectrometry; photoelectron angular distribution; multi-photon ionization; photoelectron interference effect

1 引 言

多光子电离过程是探求原子分子内部能级结构等特征的主要途径之一。Dixit 等^[1]提出共振多光子电离过程中的光电子角分布理论。H. Helm 等^[2]利用新颖的数字成像技术发展了新型的光电子角分布成像光谱技术。Christian Bordas^[3]对这种光谱仪做过分析, C. Bordas 等^[4~6]对这种技术的原理做出了更为细致的描述。利用这种技术研究原子、分子电离的光电子, 不仅可以获得其能量信息, 还可以获得光子的空间分布情况。

光电子角分布是一种反映电离光电子波函数信息的干涉图, 分析解读其干涉图谱对于了解和探索原子分子结构及电子在各个能级的分布状态是十分重要的。本文以钾原子为例, 分析了电离光电子按

空间角分布的几率特征; 研究了从双能级电离后所产生的光电子角分布干涉情况及各部分物理意义。解析地分析、讨论了双通道电离过程中所产生的光电子角分布干涉图形。这种干涉图形清楚地描绘出光电子的能量和空间角分布状态。

2 物理模型

根据如图 1 所示的原子能级系统, 研究单光子共振双光子电离的物理过程。即以单光子激发原子从基态到激发态, 同时又以双光子激发, 使得激发态上的电子电离, 产生光电子。利用钛宝石飞秒激光可以在钾原子能级系统中实现上述激发过程。以 $|0\rangle$ 表示基态(钾原子的 $3s_{1/2}$), $|1\rangle$ 和 $|2\rangle$ (分别对应于钾原子的 $4p_{1/2}$, $4p_{2/3}$) 为激发态。 $|3\rangle$ 表示电离连

收稿日期: 2008-10-15; 收到修改稿日期: 2009-02-25

基金项目: 陕西省自然科学基金(2007A04)资助课题。

作者简介: 李永放(1958—), 男, 教授, 博士, 主要从事激光光谱、量子光学和非线性光学等方面的研究。

E-mail: yfli@snnu.edu.cn

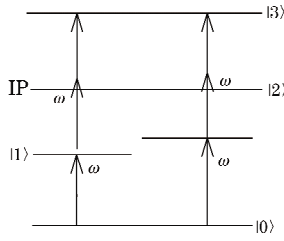


图 1 单光子激发双光子电离示意图
Fig. 1 Sketch-diagram of the single-photon excitation and two-photon ionization

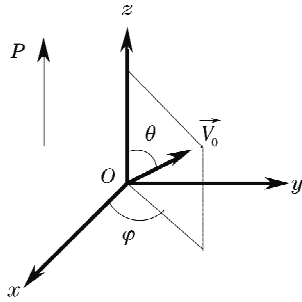


图 2 光电子取向示意图
Fig. 2 Sketch-diagram of the photoelectron alignment

续态, ω 为光场所携带的频率。辐射场与系统作用后,电子逃离束缚态,光电子相对 z 轴(电离场的偏振方向)以实验室坐标(θ, φ)电离,如图 2 所示,电离的几率 $P_{\pm}(\theta, \varphi)$ 为^[1]

$$P_{\pm}(\theta) = \left| \Gamma_{\pm}^{\pm}(\theta, \varphi) \int_0^t \rho_{11} dt + \Gamma_{\pm}^{\pm}(\theta, \varphi) \int_0^t \rho_{22} dt + \Omega_{\pm 12}^{\pm} \int_0^t 2\text{Re} \rho_{12} dt \right|, \quad (1)$$

其中±对应着自旋相对于光场的取向,同向为正,反方向为负,其自旋角动量为 $\mu_f = 1/2$, $\Gamma_{\pm}^{\pm}(\theta, \varphi)$, $\Gamma_{\pm}^{\pm}(\theta, \varphi)$ 分别对应着两个激发态电离的速率;而 $\int_0^t \rho_{11} dt$ 和 $\int_0^t \rho_{22} dt$ 是激发态上的电子布居在观测时间内的累积过程。 $\Omega_{\pm 12}^{\pm}(\theta, \varphi)$ 为两个电离通道之间的相互作用项, $\int_0^t 2\text{Re} \rho_{12} dt$ 则体现了两个激发态上电子布居的相干性对时间的累积过程。显然(1)式中光电子的电离几率与激发态的粒子布居有着密切关系。因此,可以通过调整激发场的作用来实现对电离过程的控制,从而实

现对光电子间的相互作用或干涉结果的调制。且从(1)式中发现,这是一个类似于光场干涉的表示,前两项为本底项,是由两个激发态独立贡献的结果,后一项则是由两个激发态电离通道间的相互作用所导致的干涉项,而这种光电子间由不同通道间所产生的干涉影响是本文研究的重点。

根据 $\Gamma_{\pm 1,2}^{\pm}(\theta, \varphi)$ 和 $\Omega_{\pm 12}^{\pm}(\theta, \varphi)$ 的定义^[1],可得

$$\Gamma_{\pm 1,2}^{\pm}(\theta, \varphi) = \langle 1, 2 | \mathbf{r} \cdot \mathbf{e}^* | f_k, \mu_f \rangle \times \langle f_k, \mu_f | \mathbf{r} \cdot \mathbf{e} | 1, 2 \rangle = | A_{nl'j'm_j'}^{kl'q} A_{n'l'j'm_j'}^{kl'q} |^2, \quad (2)$$

$$\Omega_{\pm 12}^{\pm}(\theta, \varphi) = \langle 2 | \mathbf{r} \cdot \mathbf{e}^* | f_k, \mu_f \rangle \langle f_k, \mu_f | \mathbf{r} \cdot \mathbf{e} | 1 \rangle = A_{nl'j'm_j'}^{kl'q} A_{n'l'j'm_j'}^{kl'q}, \quad (3)$$

式中 $\langle f_k, \mu_f |$ 表示电离态波函数。电离态和束缚态间跃迁的矩阵元可写为

$$\left. \begin{aligned} A_{nl'j'm_j'}^{kl'q} &= \langle f_k, \mu_f | r^{\chi} \left(\frac{4\pi}{2\chi+1} \right)^{1/2} Y_{\chi l} | R_{nl} l 1/2 j m_j \rangle \\ A_{n'l'j'm_j'}^{kl'q} &= \langle f_k, \mu_f | r^{\chi} \left(\frac{4\pi}{2\chi+1} \right)^{1/2} Y_{\chi l'} | R_{n'l'} l' 1/2 j' m_j' \rangle \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

其中 $| R_{nl} l 1/2 j m_j \rangle$, $| R_{n'l'} l' 1/2 j' m_j' \rangle$ 分别表示不同激发态上的波函数。 $R_{nl, n'l'}$ 为波函数的径向部分, l, j, m_j 分别为轨道角动量、总角动量及其投影量子数。 $q = \pm 1, \chi = 2$, 表示电离光场沿 z 方向的线偏振光、双光子作用的电四极跃迁。

依据原子角动量理论,从钾原子简并的 p 态经双光子电离过程如图 3 所示,实线对应 Γ_{\pm}^{\pm} 电离通道,虚线对应 Γ_{\pm}^{\pm} 电离通道。因为电子自旋向上或向下是不可分辨的,电离的几率是相等的,所以仅考虑自旋与光场取向一致的情况。

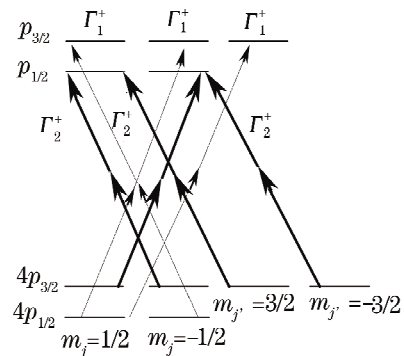


图 3 双通道双光子电离示意图
Fig. 3 Sketch-diagram of the dual-passage ionization
将激发态和电离态的量子状态参数代入(2)~(4)式可分别得到 $\Gamma_1^{\pm}, \Gamma_2^{\pm}, \Omega_{\pm 12}^{\pm}$, 将之代入方程(1)可得

$$P_{\pm}(\theta) = \left| T^{\pm} \left\{ \frac{3 + 3\cos^2\theta}{100\pi} \int_0^t \rho_{11} dt + \frac{1}{25\pi} \int_0^t \rho_{22} dt - \left[\frac{\sqrt{2}}{40\pi} \left(1 + \frac{1}{\sqrt{3}} \right) + \frac{3\sqrt{2}}{200\pi} \cos^2\theta \left(1 + \frac{1}{\sqrt{3}} \right) \right] \int_0^t 2\text{Re} \rho_{12} dt \right\} \right|, \quad (5)$$

3 光电子角分布图像

适当地选取激发光场强度以控制 Rabi 频率 $\Omega_{1,2}$ 时,可使得两个激发态的粒子数各布居一半,实现两个激发态间的最大相干,即 $\int_0^t 2\text{Re}\rho_{12} dt$ 最大。钾原子经过通道 $4p_{1/2} \rightarrow p_{3/2}, 4p_{3/2} \rightarrow p_{1/2}$ 电离后,可从公式(5)中得到光电子的原始角分布几率状态。这是一个双通道电离过程,几率分布如图 4 所示。图 4(a)为两个电离通道没有相互作用时的光电子角分布;而考虑两个通道间的相互作用后,光电子的角分布则完全不同,如图 4(b)所示。分析(5)式可知,当 $\theta = k\pi, k = 0, 1, 2, \dots$ 时,原始分布的电离几率有最大值。从图中也可看出, $\theta = k\pi, k = 0, 1, 2, \dots$ 时电离几率最大,与计算结果一致。

根据光电子的成像光谱学技术,以 (θ, φ) 方向

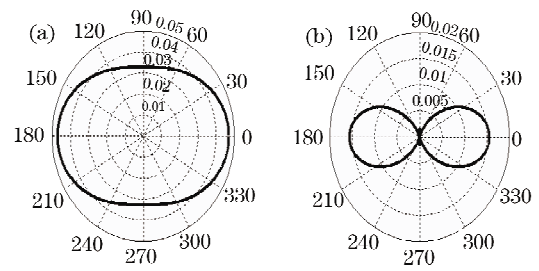


图 4 (a) 两个电离通道没有相互作用时的光电子角分布;(b)两个电离通道有相互作用时的光电子角分布
Fig. 4 (a) Photoelectron angular distributions imaging without interaction between dual-passage ionization; (b) Photoelectron angular distributions imaging considering interaction

出射的光电子,它的角分布是以极化方向为轴的对称圆柱体,大量的光电子到达探测器时满足玻尔兹曼的高斯分布,是按统计规律分布。因此(5)式变为

$$P_+(\theta) = \left| \begin{aligned} & T^2 \left\{ \frac{3 + 3\cos^2\theta}{100\pi} \times \exp[-(\nu - \nu_{10})^2 / \Delta\nu^2] \int_0^t \rho_{11} dt + \frac{1}{25\pi} \times \exp[-(\nu - \nu_{20})^2 / \Delta\nu^2] \int_0^t \rho_{22} dt - \right. \\ & \left. \left\{ \left[\frac{\sqrt{2}}{40\pi} \left(1 + \frac{1}{\sqrt{3}} \right) + \frac{3\sqrt{2}}{200\pi} \cos^2\theta \left(1 + \frac{1}{\sqrt{3}} \right) \right] \times \exp[-(\nu - \nu_0')^2 / \Delta\nu'^2] \int_0^t 2\text{Re}\rho_{12} dt \right\} \right|, \quad (6) \end{aligned} \right.$$

其中 ν_{10}, ν_{20} 分别为各个电离通道跃迁的相对中心速率, $\nu_0' = (\nu_{01} + \nu_{02})/2, \Delta\nu$ 表示在中心速率附近可被探测器接收到的一定速度范围的值;被电离的大量电子主要来源于两个激发态,能级裂距较大,造成两个激发态电离速度不同,因而光电子的分布距离探测器中心的半径不同,图形出现两个环。速度越大逃离电离限越远,则被电离的光电子具有较大速度的分布在外环。由(6)式知,当仅考虑两个电离通道作用时,分布见图 5(a)。此时外环仅为球谐 Y_{00} 的函数 $\Gamma_{\frac{1}{2}}^{\frac{1}{2}}$ 造成,因此外环是一个均匀的圆环;而内环

是由既是 Y_{00} 又是 Y_{20} 的函数 $\Gamma_{\frac{1}{2}}^{\frac{1}{2}}$ 造成,所以内环两侧光电子分布较集中;若考虑干涉项 $\Omega_{12}^{\frac{1}{2}}$ 作用后,得到图 5(b) 的分布。分析(6)式, $\Omega_{12} > \Gamma_{\frac{1}{2}}^{\frac{1}{2}} > \Gamma_{\frac{1}{2}}^{\frac{1}{2}}$, $\int_0^t 2\text{Re}\rho_{12} dt > \int_0^t \rho_{11} dt = \int_0^t \rho_{22} dt$, 则图 5(b) 中最亮的环就是 $\Omega_{12}^{\frac{1}{2}}$ 作用的结果,这一结果是光电子不同电离通道间干涉的结果;通常实验中所得到的结果正是大量的光电子干涉结果。而图 5(a), (b) 的中央分布状态是由部分小角度偏转的光电子所致,遵循原始分布规律,与图 4(a), (b) 相对应。图 5 中的横坐

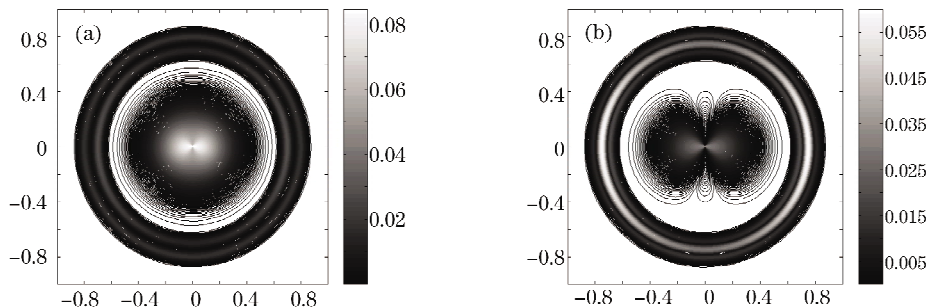


图 5 (a)两个电离通道没有相互作用时的光电子图像;(b)两个电离通道有相互作用时的光电子图像
Fig. 5 (a)Photoelectron imaging without interaction between dual-passage ionization; (b)Photoelectron imaging considering interaction

标与纵坐标表示的是光电子在探测器上的相对位置。参量选取 1): $\nu_{10} = 0.7, \nu_{20} = 0.8, \Delta\nu = 0.001, \Delta\nu' = 0.0015$; 2): $\nu_{10} = \nu_{20} = 0, \Delta\nu = \Delta\nu' = 0.05$ 。

当考虑碰撞增宽作用时,大量的光电子不再遵循简单的高斯分布,即(6)式中的电离速率遵循综合线型分布即 Voight^[7]分布。与分析图 5(a),(b)光电子角分布情况类似,当仅考虑各个电离通道单独作用时,与图 5(a)比较,不同的是由于碰撞作用的存在,大

量光电子速度加快,大角度散射的光电子几率变大,表现为环上光电子分布加强;而相应的发生小角度散射的光电子几率变小,导致的中央干涉分布由图 5 的面干涉变为线干涉,如图 6(a),(b)所示,图中的横坐标与纵坐标表示与图 5 相同。这样由于碰撞增宽的存在,得到的图形更为清晰地呈现干涉效应对光电子空间分布的影响。图 5,图 6 的结果对于分析光电子的空间角分布具有重要的意义。

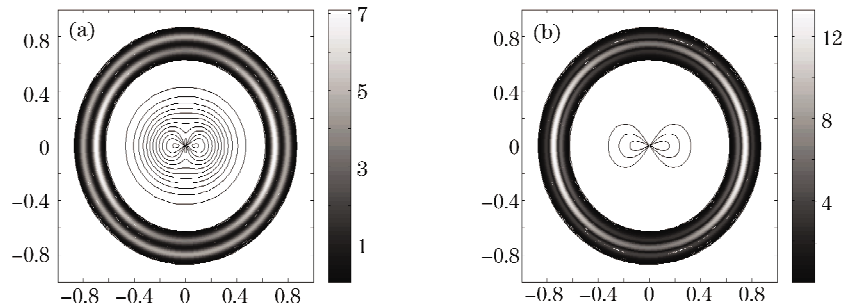


图 6 考虑碰撞增宽作用时,双电离通道(a)没有相互作用时的光电子图像;(b)有相互作用时的光电子图像

Fig. 6 (a)Photoelectron imaging without interaction between dual-pass ionization under considering the collisional broadening;(b)Photoelectron imaging considering interaction

4 结 论

基于光电子角分布成像光谱技术的基本原理,利用单光子共振双光子电离方法研究了从钾原子的 4P 态双能级电离后所产生的光电子的几种分布状态,通过对比得出光电子的空间分布中各部分的物理意义。从(6)式可见,光电子的空间分布是和球谐函数 $Y_{lm}^*(\theta, \varphi)$ 密切相关的。正是这个函数的分布状态主导了探测器上光电子的空间分布。而由于干涉项作用的存在会导致光电子角分布图谱较复杂。但可以通过激发场对激发态粒子分布的调制实现对光电子空间分布状态的简化,实现对光电子图谱的清晰解读。另外关于光电子电离的研究是多方面的,人们将在更多的领域中探索和研究^[8~12]。

参 考 文 献

- 1 S. N. Dixit, P. Lambropoulos. Theory of photoelectron angular distributions in resonant multiphoton ionization[J]. *Phys. Rev. A*, 1983, **27**(2): 861~871
- 2 H. Helm, N. Bjerre, M. J. Dyer *et al.*. Images of photoelectrons formed in intense laser fields[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, **70**(21): 3221~3224
- 3 Christian Bordas. Classical motion of a photoelectron interacting with its ionic core; slow photoelectron imaging[J]. *Phys. Rev.*

- A, 1998, **58**(1): 400~410
- 4 C. Bordas, F. Paulig, H. Helm *et al.*. Photoelectron imaging spectrometry: principle and inversion method[J]. *Rev. Sci. Instrum.*, 1996, **67**(6): 2257~2263
- 5 J. C. Hansen, J. A. Duncanson, Jr. R. L. Chen, *et al.*. Angular distributions of photoelectrons from resonant two-photon ionization of sodium through the $3p\ 0^2P_{3/2}$ intermediate state[J]. *Phys. Rev. A*, 1980, **21**(1): 222~233
- 6 H. Kaminski, J. Kessler, R. J. Kollath. Photoionization of the 7^2P excited states of cesium[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1980, **45**(14): 1161~1164
- 7 W. Demtröder, R. Gomer, V. Goldanskii. *Laser Spectroscopy* [M]. New York; Springer-Verlin Heidelberg, 1981. 87~95
- 8 A. Wetzels, A. Guörtler, F. Rosca-Pruna *et al.*. Two-dimensional momentum imaging of Rydberg states using half-cycle pulse ionization and velocity map imaging[J]. *Phys. Rev. A*, 2003, **68**: 041401
- 9 F. Lépine, Ch. Bordas, C. Nicole *et al.*. Atomic photoionization processes under magnification [J]. *Phys. Rev. A*, 2004, **70**: 033417
- 10 Christian Bracher, Tobias Kramer, John B. Delos. Electron dynamics in parallel electric and magnetic fields[J]. *Phys. Rev. A*, 2006, **73**: 062114
- 11 Qing-Tian Meng, Guang-Hui Yang, Hai-Lin Sun *et al.*. Theoretical study of the femtosecond-resolved photoelectron spectrum of the NO molecule [J]. *Phys. Rev. A*, 2003, **67**: 063202
- 12 Jie Hu, Ke-Li Han, Guo-Zhong He. Correlation quantum dynamics between an electron and D_2^+ molecule with attosecond resolution[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2005, **95**: 123001