

产生于双色脉冲与原子相互作用的光电子的时间相关谱

屈卫星 徐至展

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

提 要

本文研究了双色激光脉冲与原子相互作用的过程, 计算了光电子的时间相关谱, 并对光电子的时间相关谱的特性以及脉冲强度对该谱的影响进行了讨论。

关键词 自电离, 光电子谱, 时间相关谱。

1 引 言

在绝大多数的原子中都存在着一些能级位于电离限之上的束缚态, 这些态由于镶嵌在连续态之中, 所以对于增强那些包括连续态的多光子过程(如真空紫外辐射^[1,2]和多光子电离的产生^[3,4]等)有着特殊的作用。由于这些束缚态中的有些态的能级可以很高, 甚至可用来产生极紫外或软X射线辐射^[5]。

近年来出现了许多关于原子系统的强激光诱导自电离(LIA)的理论文章^[6~9], 对其中的一些奇特的现象进行了研究, 如光电子谱中的“相干汇集”的出现^[6], 发射光子谱的增强^[7]和粒子俘获^[8]。所有这些现象都是在研究连续激光场与原子长时间相互作用之后发现的, 而对激光与原子相互作用的过程中原子行为的变化(如在相互作用的最初一段时间内光电子谱如何随时间的变化等)却研究的很少。

本文在文献[10]的双色激光脉冲与原子相互作用模型的基础上, 对双色激光诱导自电离过程进行了研究, 计算了光电子谱随时间的变化, 并对两种激光脉冲的强度对光电子谱的影响以及光电子谱随时间变化的特性进行了讨论。

2 理论处理

图1为原子能级示意图, 其中 $|0\rangle$ 和 $|a\rangle$ 分别为原子的基态(偶宇称态)和能级远远高于电离限之上的共振激发态(奇宇称态), 它们的能量分别为 $-E_0$ 和 E_a ; 将原子的所有连续态也按其宇称的奇偶性分为偶宇称连续态 $|\omega, +\rangle$ 和奇宇称连续态 $|\omega, -\rangle$, 两种不同波长的激光脉冲分别与处于不同能态上的原子发生耦合, 短波长 λ_S 脉冲将 $|0\rangle$ 态的原子共振激发到 $|a\rangle$ 态或通过偶极相互作用直接从 $|0\rangle$ 态电离到 $|\omega, -\rangle$ 态; 长波长 λ_L 脉冲再将 $|a\rangle$ 态的原子电离到 $|\omega, +\rangle$ 态或在两连续态 $|\omega, -\rangle$ 和 $|\omega, +\rangle$ 之间进行耦合。我们将短波长和长

波长脉冲分别称为电离脉冲和分布脉冲. 另外, 处于 $|a\rangle$ 态上的原子还可通过结构相互作用 V (主要是电子之间的库仑相互作用) 自发地电离到 $|\omega, -\rangle$ 态.

设 $\lambda_S \ll \lambda_L$, 并以 $-E_0 + (ct/\lambda_0)$ 为原子+激光场系统的能量零点 ($\lambda_S = \lambda_S/2\pi$), 用圆括弧表示系统相应的基本态, 则系统的总哈密顿为 (取 $\hbar = c = 1$)

$$\begin{aligned} \hat{H} &= \hat{H}_0 + \hat{V} + \hat{V}_E, \\ \hat{H}_0 &= \frac{1}{\lambda_S} |0\rangle \langle 0| + \int \omega [|\omega, -\rangle \langle -, \omega| + |\omega, +\rangle \langle +, \omega|] d\omega, \\ \hat{V} &= \int V |a\rangle \langle -, \omega| d\omega + H.O., \\ \hat{V}_E &= \left\{ \left[D_{0a} A_0(t) |0\rangle \langle a| + \int D_{0-}(\omega) A_0(t) |0\rangle \langle -, \omega| d\omega \right] \exp\left\{i \frac{t}{\lambda_S}\right\} \right. \\ &\quad \left. + \int D_+(\omega) A_1(t) \cos \frac{t}{\lambda_L} |a\rangle \langle +, \omega| d\omega + \iint D(\omega - \omega') A_1(t) \cos \frac{t}{\lambda_L} \right. \\ &\quad \left. |\omega, -\rangle \langle -, \omega'| d\omega d\omega' \right\} + H.O., \end{aligned} \quad (1)$$

在式中 \hat{H}_0 为本征哈密顿, \hat{V} 为原子的结构相互作用, \hat{V}_E 为原子与激光的偶极相互作用, $A_0(t)$ 和 $A_1(t)$ 分别为短波长和长波长脉冲的轮廓函数 $\lambda_i = (\lambda_i/2\pi)$, ($i = S, L$), 由于 $\lambda_S \ll \lambda_L$, 在 (1) 式中我们对短波长激光场采用了旋转波近似.

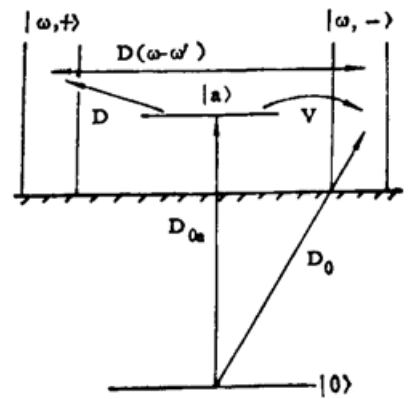


Fig. 1 Schematic diagram of atom levels

任意 t 时刻系统的状态函数 $|\psi(t)\rangle$ 可按系统的基本态展开

$$|\psi(t)\rangle = C_0(t) \exp(i\hat{H}_0 t/\lambda_S) |0\rangle + a_a(t) |a\rangle + \int c_1(\omega, t) |\omega, -\rangle d\omega + \int c_2(\omega, t) |\omega, +\rangle d\omega, \quad (2)$$

设在脉冲加入之前 ($t \leq 0$), 原子处于基态 $|0\rangle$, 由薛定谔方程、为了便于进行计算 引入自电离速率 $\nu_0 = \pi V^2$ 和无量纲光强^[6,8]

$I_0 = (D_{0-}^2/\nu_0)$, $I_1 = (D_+^2/\nu_0)$, 经化简整理, 最后得到 $C_0(t)$ 和 $C_a(t)$ 满足的微分方程^[11]

$$\left. \begin{aligned} \frac{dC_0(t)}{dt} &= -\nu_0 \pi I_0 A_0^2(t) C_0(t) - i \sqrt{\pi I_0} \nu_0 A_0(t) (q - i) C_a(t), \\ \frac{dC_a(t)}{dt} &= -\nu_0 \left[\pi I_1 A_1^2(t) \cos^2 \frac{t}{\lambda_L} + 1 \right] C_a(t) - i \sqrt{\pi I_0} \nu_0 (q - i) C_0(t), \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

$$\left. \begin{aligned} C_1(\omega, t) \pm C_2(\omega, t) &= -i \sqrt{\frac{\nu_0}{\pi}} \int_0^t \left\{ \sqrt{\pi I_0} A_0(t-x) C_0(t-x) \right. \\ &\quad \left. + \left[1 \pm \sqrt{\pi I_1} A_0(t-x) \cos \frac{t-x}{\lambda_L} \right] C_a(t-x) \right. \\ &\quad \left. \cdot \exp\{-i[\omega x \pm F(x, t)]\} dx, \right. \\ F(x, t) &= \int_0^x \hat{D}(s) A_1(s+t-x) \cos[(s+t-x)/\lambda_L] ds, \\ \hat{D}(x) &= \int D(\omega) \exp(i\omega x) d\omega, \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

$\hat{D}(\omega)$ 为 $D(\omega)$ 的傅里叶变换. $q = \frac{D_{0a}}{\pi D_{0-} V}$ 为 Fano 参量^[8], (3) 式和 (4) 式就是所需要的方程和解的形式.

若 $V = 0$, 则不能用上述的方法定义无量纲光强, 由于原子与激光场的相互作用采用的

是偶极近似, 所以矩阵元 D_{0-} 、 D_{+} 、 D_{0a} 和 D 均与电场强度成正比, 不仿令

$$D_{0-} = \alpha_0 \sqrt{I_0}, \quad D_{+} = \alpha_2 \sqrt{I_1}, \quad D_{0a} = \alpha_3 \sqrt{I_0} \quad \text{和} \quad D = \alpha_4 \sqrt{I_1},$$

I_0 和 I_1 定义为无量纲光强, 所以比例系数 $\alpha_i (i=1, 2, 3, 4)$ 具有与其相应的矩阵元相同的量纲. 由于 D_{0-} 和 D_{+} 都是束缚态向连续态的偶极跃迁矩阵元, 所以可认为 $\alpha_1 \approx \alpha_2$, 令 $\alpha_1 = \alpha_2 = \alpha$, (3) 式和 (4) 式可写成

$$\left. \begin{aligned} \frac{dC_0(t)}{dt} &= -\pi\alpha^2 I_0 A_0^2(t) C_0(t) - i\alpha^2 \beta \sqrt{I_0} A_0(t) C_a(t), \\ \frac{dD_a(t)}{dt} &= -\pi\alpha^2 I_1 A_1^2(t) C_a(t) - i\alpha^2 \beta \sqrt{I_0} A_0(t) C_0(t), \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

$$C_1(\omega, t) \pm C_2(\omega, t) = -i\alpha \int_0^t \left\{ \sqrt{I_0} A_0(t-x) C_0(t-x) \pm \sqrt{I_1} A_1(t-x) \right. \\ \left. \cdot \cos[(t-x)/\lambda_L] C_a(t-x) \right\} \exp\{i[\omega x \pm F(x, t)]\} dx, \quad (6)$$

其中 $\beta = \alpha_3/\alpha^2$ 为无量纲数. 另外, 在 (4) 式 (包括 (6) 式) 都用到 $F(x, t)$, 而在计算 $F(x, t)$ 时需要 $C-C$ 耦合矩阵元 $D(\omega)$ 的傅氏变换, 所以必须先给出 $D(\omega)$ 的具体形式. 无论 V 是否等于零, $D(\omega)$ 总可以写成 $D(\omega) = \alpha_4(\omega) \sqrt{I_1}$ 的形式 ($V \neq 0$ 时 $\alpha_4(\omega) = D(\omega) D_+/\nu_0$) I_1 为无量纲光强, $\alpha_4(\omega)$ 与能量 ω 的关系为^[12]

$$\alpha_4(\omega) = \frac{D}{\sqrt{2\pi}} \left[\frac{1}{(\omega + i\theta)} + C \cdot C \right]. \quad (7)$$

3 计算结果及其讨论

在本节中我们分别对由 $|\omega, -\rangle$ 和 $|\omega, +\rangle$ 态产生的光电子谱 $|C_1(\omega, t)|^2$ 和 $|C_2(\omega, t)|^2$ 随时间的变化进行了计算, 由于 $|\omega, -\rangle$ 态和 $|\omega, +\rangle$ 态上的电子需要一定的时间 τ (约 10^{-17} sec) 才可脱离原子变为可探测到的光电子. 所以严格地说 $|C_1(\omega, t)|^2$ 和 $|C_2(\omega, t)|^2$ 应为单位能量间隔内的粒子数密度. 由于在计算过程中我们是以自电离速率的倒数 ν_0^{-1} 作为时间单位, 而通常 $\nu_0^{-1} \gg \tau$, 所以我们可以将 $|C_1(\omega, t)|^2$ 和 $|C_2(\omega, t)|^2$ 视为光电子谱.

在进行数值计算之前必须先给出两种激光脉冲的函数形式, 假设两种脉冲为在 $t=0$ 时刻同时加入的方脉冲, 即

$$A_0(t) = \begin{cases} 1, & 0 < t \leq T_0 \\ 0, & t \leq 0 \text{ 或 } t > T_0 \end{cases} \quad A_1(t) = \begin{cases} 1, & 0 < t \leq T_1 \\ 0, & t \leq 0 \text{ 或 } t > T_1 \end{cases} \quad (8)$$

将上式代入 (3) 式求解出 $C_0(t)$ 和 $C_a(t)$, 再把解出的 $C_0(t)$ 和 $C_a(t)$ 代入 (4) 式便可数值解出 $C_1(\omega, t)$ 和 $C_2(\omega, t)$. 其中的函数 $F(x, t)$ 可通过将 (4) 式代入计算出. 计算结果分别由图 2~图 5 给出, 图中的各条垂直于时间轴的计算出的曲线就是等间距的, 其时间间隔为 $0.1 \nu_0^{-1}$.

3.1 电离脉冲强度 I_0 对光电子谱的影响

图 2 和图 3 是分别对 $|C_1(\omega, t)|^2$ 和 $|C_2(\omega, t)|^2$ 进行计算的结果. 由计算结果可以看出: 在光脉冲作用之后, 当光强 I_0 较弱的情况下, $|C_1(\omega, t)|^2$ 基本上为 Fano 线型的自电离谱 (图 2(a)). 随着 I_1 的增加, $|C_1(\omega, t)|^2$ 也相应增加, 特别是左边的低能峰增长的比较明显 (图 2(b)). 当 I_0 再进一步增加时, 谱的宽度增加, 出现了右边的高能峰, 而且中间的峰

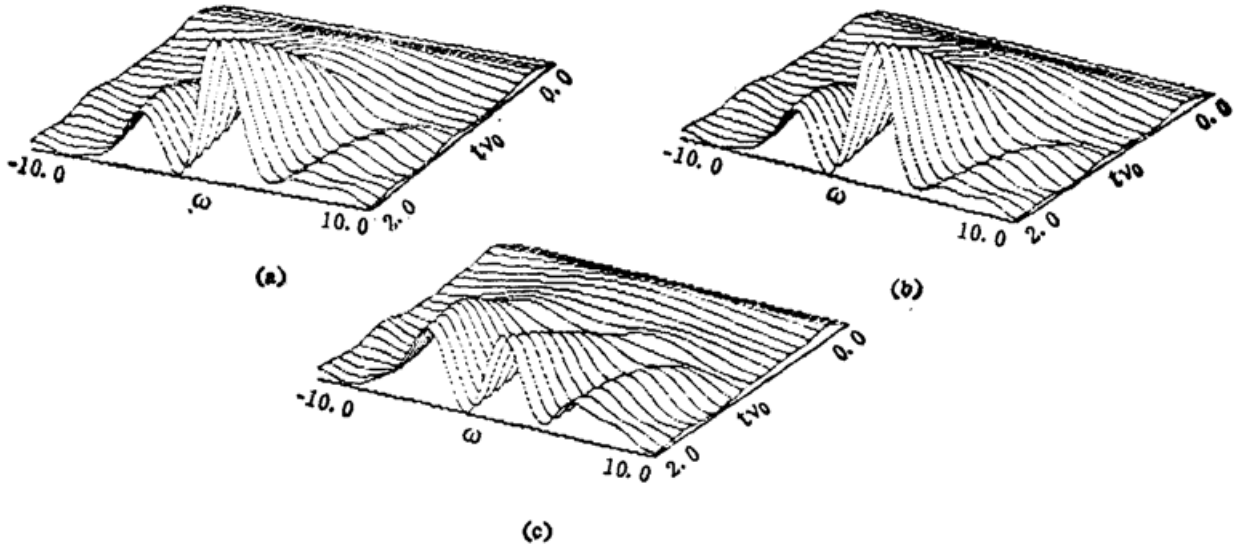


Fig. 2 The time-dependent spectra of photoelectron $|C_1(\omega, t)|^2$ from $|\omega, -\rangle$ under various intensity of ionizing pulse I_0 . parameters: $(I_1, q, D, T_0, T_1, \lambda_L) = (0.0, 1.0, 0.5, 1.0, 1.0, 0.4)$.

(a) $I_0=0.1, \max\{|C_1|^2\}=0.11, \min\{|C_1|^2\}=1.54 \times 10^{-6}$;

(b) $I_0=0.5, \max\{|C_1|^2\}=0.16, \min\{|C_1|^2\}=4.75 \times 10^{-5}$;

(c) $I_0=1.0, \max\{|C_1|^2\}=9.3 \times 10^{-2}, \min\{|C_1|^2\}=9.2 \times 10^{-5}$

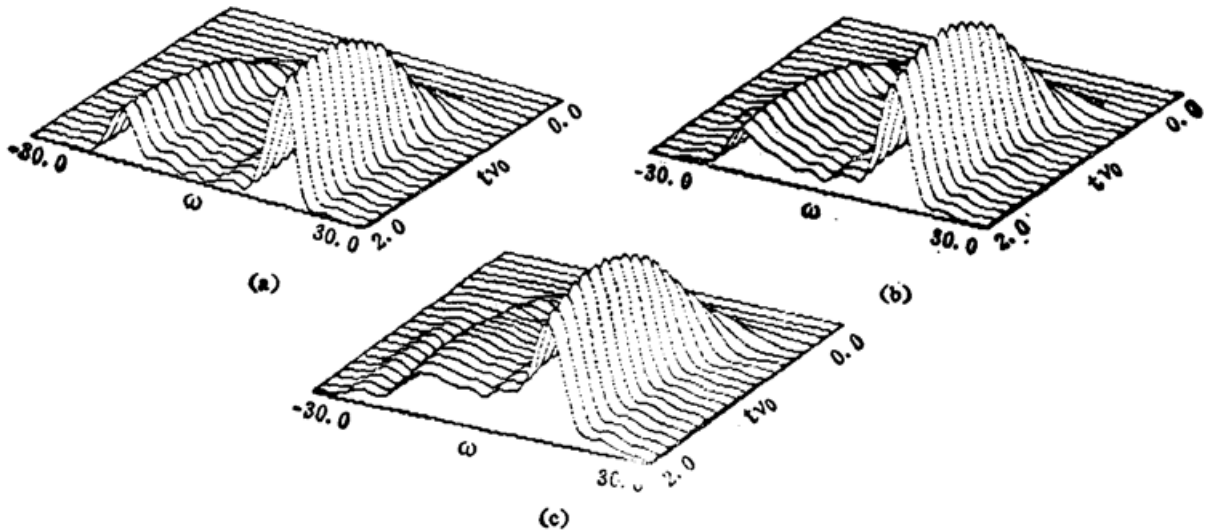


Fig. 3 The time-dependent spectra of photoelectron $|C_2(\omega, t)|^2$ from $|\omega, +\rangle$ under various intensity of ionizing pulse intensity I_0 parameters:

$(I_1, q, D, T_0, T_1, \lambda_c) = (2.0, 1.0, 0.5, 1.0, 1.0, 0.4)$.

(a) $I_0=0.5, \max\{|C_2|^2\}=5.53 \times 10^{-2}, \min\{|C_2|^2\}=5.93 \times 10^{-8}$; (b) $I_0=1.0, \max\{|C_2|^2\}=4.67 \times 10^{-2}, \min\{|C_2|^2\}=1.17 \times 10^{-7}$; (c) $I_0=2.0, \max\{|C_2|^2\}=3.03 \times 10^{-2}, \min\{|C_2|^2\}=2.26 \times 10^{-7}$

(The scales Fig(b) and Fig (c) are 0.75 and 0.5 times one of Fig (a) respectively)

有所下降. 对于 $|C_2(\omega, t)|^2$ 的计算结果表明: 光强 I_0 的增加, 使 $|C_2(\omega, t)|^2$ 谱的强度相应减弱, 而且左边的峰展宽并渐渐消失.

上述结果表明: 电离脉冲较弱时, 自电离在 $|C_1(\omega, t)|^2$ 谱中起主要贡献. 随着电离脉冲强度的增加, 光电离在 $|C_1(\omega, t)|^2$ 中的贡献增加, 导致谱强度的相应增强, 当电离脉冲强度进一步增强时, 由于对 Dressed 态的能级和宽度都产生了较大的影响, 使 $|C_1(\omega, t)|^2$ 谱的结构和强度都有相应的变化. 对于 $|C_2(\omega, t)|^2$ 谱, 由于电离脉冲强度的增加, 通过改变 Dressed 态能级和宽度间接地影响着谱的结构, 同时对谱有着较强的抑制作用 (在图 3(b) 和图 3(c) 中的定标分别为图 3(a) 定标的 0.75 倍和 0.5 倍).

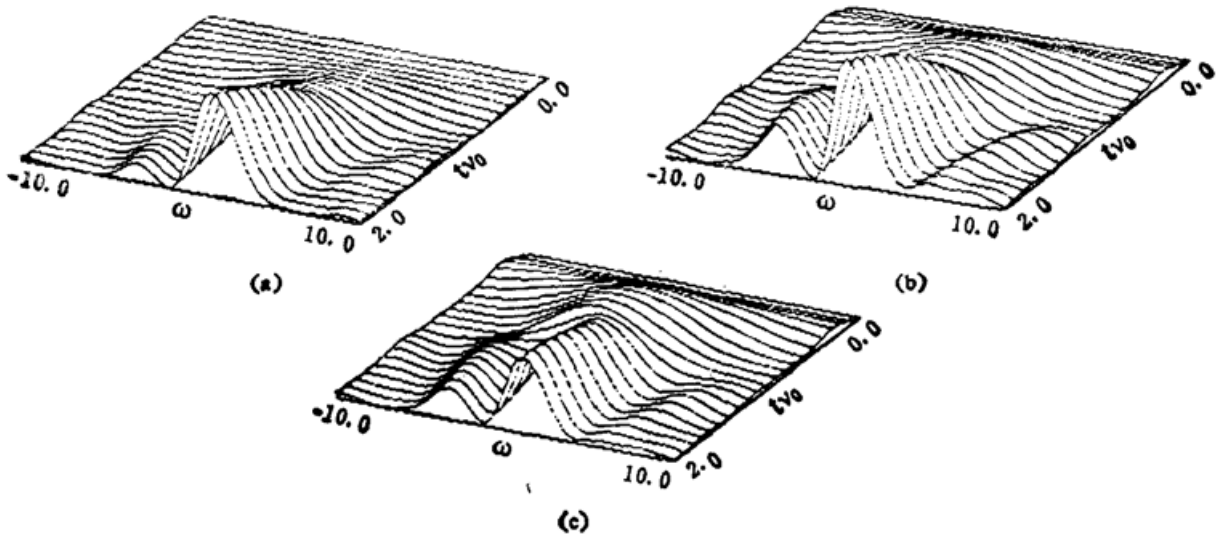


Fig. 4 The time-dependent spectra of photoelectron $|C_1(\omega, t)|^2$ from $|\omega, -\rangle$ under various intensity of redistributing pulse I_1 . parameters

$$(I_0, q, D, T_0, T_1, \lambda_L) = (0.5, 1.0, 0.5, 1.0, 1.0, 0.4)$$

$$(a) I_1=0.02, \max\{|C_1|^2\}=0.15, \min\{|C_1|^2\}=4.75 \times 10^{-5},$$

$$(b) I_1=0.1, \max\{|C_1|^2\}=0.14, \min\{|C_1|^2\}=4.75 \times 10^{-5};$$

$$(c) I_1=0.5, \max\{|C_1|^2\}=8.17 \times 10^{-2}, \min\{|C_1|^2\}=4.74 \times 10^{-5}.$$

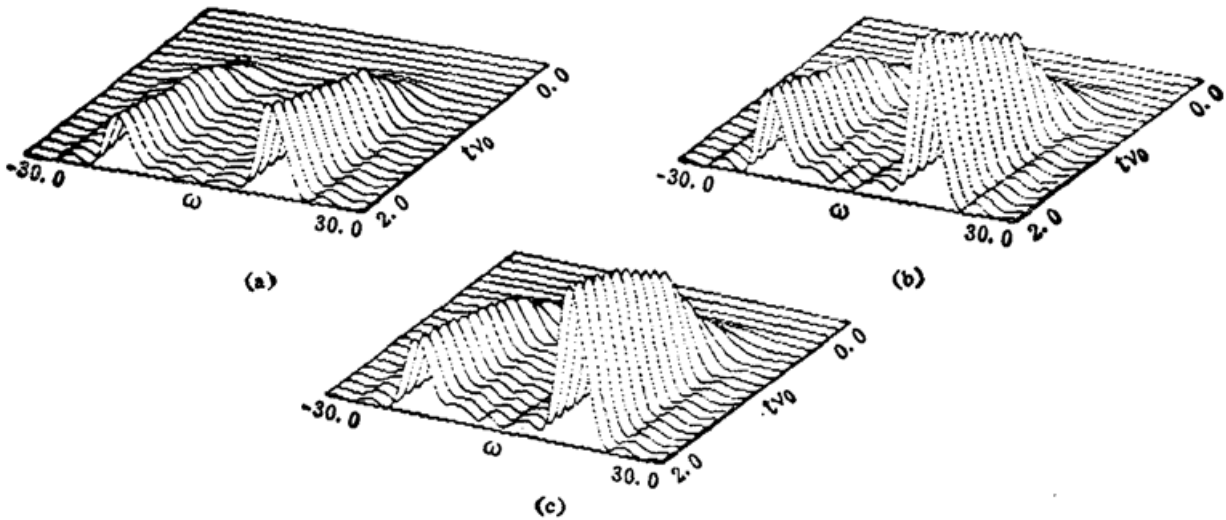


Fig. 5 The time-dependent spectra of photoelectron $|C_2(\omega, t)|^2$ from $|\omega, +\rangle$ under various intensity of redistributing pulse I_1 . parameter:

$$(I_0, q, D, T_0, T_1, \lambda_L) = (0.5, 1.0, 0.5, 1.0, 1.0, 0.4) \quad (a) I_1=0.1, \max\{|C_2|^2\} =$$

$$9.90 \times 10^{-3}, \min\{|C_2|^2\} = 3.06 \times 10^{-9}; \quad (b) I_1=0.5, \max\{|C_2|^2\} = 3.65 \times 10^{-2}, \min\{|C_2|^2\} = 1.52 \times 10^{-9}$$

$$(c) I_1=1.0, \max\{|C_2|^2\} = 5.05 \times 10^{-2}, \min\{|C_2|^2\} = 3.01 \times 10^{-8}$$

(The scales of Fig (b) and Fig (c) are 2.0 and 3.0 times one of Fig (a) respectively)

3.2 分布脉冲强度 I_1 对光电子谱的影响

图 4 和图 5 分别给出了在不同分布脉冲强度 I_1 情况下的 $|C_1(\omega, t)|^2$ 谱和 $|C_2(\omega, t)|^2$ 谱随时间的变化。由计算的结构不难看出：光强 I_1 的增加对两种光电子谱的结构基本上没有影响，只是对谱的强度有着不同的影响：光强 I_1 越强， $|C_1(\omega, t)|^2$ 谱越弱，而 $|C_2(\omega, t)|^2$ 谱却越强（在图 5 中，(a) 图的定标分别为 (b) 图和 (c) 图定标的 1/2 和 1/3），这是因为光强 I_1 增加，分别增强了 $|a\rangle$ 态和 $|\omega, -\rangle$ 态向 $|\omega, +\rangle$ 态的耦合，因此降低了 $|a\rangle$ 态和 $|\omega, -\rangle$ 态上的粒子数密度，而使 $|\omega, +\rangle$ 态上的粒子数密度得到了加强。

3.3 光电子谱随时间的变化特性

我们先讨论 $|C_1(\omega, t)|^2$ 谱随时间的变化特点。由图 2 和图 4 可以看出: 光电子谱的峰结构并不是在光脉冲与原子相互作用开始的一瞬间就出现, 而是要滞后一段时间。这段时间的长度大约为 $0.2\nu_0^{-1}$, 在这段时间内, 光电子的能量是不确定的, 这与测不准原理是一致的; 在峰出现的初期 ($0.2 \sim 1.0\nu_0^{-1}$), 谱基本上都是单峰结构的, 而且位于 $\omega=0$ 处, 这是因为在脉冲与原子相互作用的初期, $|a\rangle$ 态上的电子还来不及通过自电离的途径被电离到 $|\omega, -\rangle$ 态, $|\omega, -\rangle$ 态上的电子主要是从 $|0\rangle$ 态共振激发上去的, 在 $t > \nu_0^{-1}$ 时, $|a\rangle$ 态上的电子自由离到 $|\omega, -\rangle$ 态, 而且这时脉冲也已关闭。 $|C_1(\omega, t)|^2$ 谱也由单峰结构变为自电离谱的 Fano 线型。

对于 $|C_2(\omega, t)|^2$ 谱, 由图 3 和图 5 可以看出, 其峰出现的时间比 $|C_1(\omega, t)|^2$ 谱还要滞后 (约为 $0.4\nu_0^{-1}$), 而且一出现就是双峰结构, 这是因为 $|\omega, +\rangle$ 态上的电子不是直接从 $|0\rangle$ 态耦合上来的, 而是先通过电离脉冲先耦合到 $|a\rangle$ 态和 $|\omega, -\rangle$ 态, 然后再通过分布脉冲耦合到 $|\omega, +\rangle$ 态上的, 所以必须在 $|a\rangle$ 态和 $|\omega, -\rangle$ 态上居集了一定的电子后, 向 $|\omega, +\rangle$ 态的耦合才会变的较明显。

4 结 论

本文研究了双色激光脉冲诱导自电离的过程, 计算了在激光脉冲与原子相互作用初期产生的随时间变化的光电子谱。在本文所采用的模型的基础上, 由计算结果可得到以下结论:

- 1) 电离脉冲强度的提高对从两种不同宇称的连续态产生的光电子谱的结构有明显的影响, 并对从偶宇称态产生的光电子谱强度有较强的抑制作用。
- 2) 分布脉冲强度的增强对由两种连续态产生的光电子谱的结构基本上没有影响, 但从偶宇称连续态产生的光电子谱的强度有较大的提高。而从奇宇称态产生的谱的强度却稍有下降。
- 3) 两种光电子谱的峰结构并不是在光场与原子相互作用的瞬间就出现的, 而是要滞后一段时间。对于从奇宇称态和偶宇称态产生的光电子谱, 滞后的时间分别约为 $0.2\nu_0^{-1}$ 和 $0.4\nu_0^{-1}$ (ν_0 为自电离速率), 在作用时间小于滞后时间的情况下, 产生的光电子的能量是不确定的。

参 考 文 献

- [1] R. T. Hodgson, P. P. Sorokin, J. J. Wynne, Tunable coherent vacuum-ultraviolet generation in atomic vapor. *Phys. Rev. Lett.*, 1974, **32**(7): 343~346
- [2] J. A. Armstrong, J. J. Wynne, Autoionizing states of Sr studied by the generation of Tunable UV radiation. *Phys. Rev. Lett.*, 1974, **33**(20): 1183~1185
- [3] J. A. Armstrong, P. Esherick, J. J. Wynne, Bound even-parity $J=0$ and 2 spectra of Ca: A multichannel quantum-defect theory analysis. *Phys. Rev. A*, 1977, **15**(1): 180~184
- [4] W. E. Cooke, T. F. Gallagher, S. A. Edelstein *et al.*, Doubly Excited Autoionizing Rydberg states Of Sr, *Phys. Rev. Lett.*, 1978, **40**(3): 178~181
- [5] S. E. Harris, J. F. Young, Core-excited metastable levels: Application to spectroscopy, to the generation of picosecond extremeultraviolet pulses, and to lasers. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1987, **4**(4): 547

~562

- [6] K. Rzażewski, J. H. Eberly, Confluence of bound-free coherences in laser-induced autoionization. *Phys. Rev. Lett.*, 1981, **47**(6): 408~412
- [7] G. S. Agarwal, S. L. Hann, K. Burnett *et al.*, Photoemission spectra in intense laser field induced autoionization. *Phys. Rev. A*, 1982, **26**(4): 2277~2280
- [8] P. Lambropoulos, P. Zoller, Autoionizing states in strong laser fields. *Phys. Rev. A*, 1981, **24**(1): 379~397
- [9] G. S. Agarwal, S. L. Hann, K. Burnett *et al.*, Influence of spontaneous emission on laser-induced autoionization. *Phys. Rev. Lett.*, 1982, **48**(17): 1134~1167
- [10] K. Rzażewski, L. Wang, J. W. Haus, Predictions from a two-color above-threshold ionization model. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1990, **7**(4): 481~487
- [11] 屈卫星, 徐至展, 张文琦. 双色脉冲激光与原子相互作用过程的研究. *光学学报*, 1992, **12**(6): 481~486
- [12] M. Trippenbach, K. Rzażewski, M. V. Fedorov *et al.*, Semiclassical matrix elements, essential-state models and Perturbation theory of above-threshold ionization. *J. Phys. B*, 1989, **27**(8): 1193~1205

Time-dependent spectra of the photoelectron from interaction of two-color pulse with atom

QU WEIXING XU HIZHAN

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Shanghai 201800)

(Received 13 September 1991; revised 4 November 1991)

Abstract

A theoretical study on the process of interaction of two-color laser pulse with atoms is present in this paper. The time-dependent spectra of photoelectron are calculated. The characteristics of time-dependent spectra of photoelectron and the effect of pulse intensity on the spectra are discussed.

Key words autoionization, photoelectron spectrum, time-dependent spectrum.