少光周期的椭圆偏振激光脉冲驱动的氙原子 非次序双电离

余本海 李盈傧 李方涛

(信阳师范学院物理电子工程学院,河南 信阳 464000)

摘要 利用经典系综模型,研究了少光周期的椭圆偏振激光脉冲驱动下的 Xe 原子非次序双电离(NSDI),使用的 激光强度为 2.5×10¹⁴ W/cm²,波长为 780 nm。计算结果显示,在不同的载波包络相位(CEP)下,NSDI 中得到的末 态关联电子对沿激光偏振平面长轴方向的动量谱主要分布在一、三象限,呈现出强烈的正关联行为。关联电子对 末态动量分布于一、三象限的总数量之比随 CEP 呈现先减小后增大的趋势。轨迹分析表明,在激光脉冲驱动下, NSDI 是由于再碰撞而发生的,并且此过程以直接碰撞电离机制为主;另外,计算结果显示,再碰撞时刻对应的激光 场相位强烈地依赖于 CEP。

关键词 原子与分子物理学;非次序双电离;少光周期的椭圆偏振激光脉冲;再碰撞;时间延迟 中图分类号 O562.4; O562.5 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS201333.0602001

Nonsequential Double Ionization of Xe Atoms by Elliptically Polarized Few-Cycle Laser Pulses

Yu Benhai Li Yingbin Li Fangtao

(College of Physics and Electronic Engineering, Xinyang Normal University, Xinyang, Henan 464000, China)

Abstract With the classical ensemble model, the nonsequential double ionization (NSDI) of Xe atoms is investigated by the elliptically polarized few-cycle laser pulses at the laser intensity of 2.5×10^{14} W/cm² and the laser wavelength of 780 nm. The results show that the momentum spectra of the final-state correlated electron pairs from NSDI along the long axis of the polarization plane are mainly distributed in the first and third quadrants, showing strongly correlated behavior at the various carrier-envelop phases (CEPs). The rate of the total number for the final-state correlated electron pairs whose momentum spectra are distributed in the first and third quadrants shows decrease firstly then increase as CEP decreases. By analyzing the trajectories, the events of NSDI are due to the recollision at this laser pulse and the processes of NSDI are dominated by (e, 2e) ionization. In addition, the laser phase at the recollision also strongly depends on CEP.

Key words atomic and molecular physics; nonsequential double ionization; elliptically polarized few-cycle laser pulse; recollision; time delay

OCIS codes 020.1335; 020.2070; 020.2649

1 引 言

近年来,激光技术得到了很大的发展^[1~3],这为 原子和分子在强激光场作用下的一些非线性现象, 如阈值上电离^[4]、高次谐波的辐射^[5~7]、次序双电 离^[8]和非次序双电离(NSDI)^[9~16],提供了更为有效 的研究手段。非次序双电离过程显示出较强的电子 关联行为^[12,15],而电子关联行为是自然界中最普遍的现象之一,在诸多领域均有体现,如化学反应、超导现象、量子通信等。因此,NSDI成为了众多课题组研究的热点。目前,被大家所认同的 NSDI 的电离机制能够用 Corkum^[17]提出的准经典三步再碰撞模型理论来解释。依据该理论,第一个电子在激光

收稿日期: 2013-01-05; 收到修改稿日期: 2013-02-14

基金项目:国家自然科学基金(11005088,11047145)、河南省科技计划(102300410241,112300410021)和河南省教育厅自 然科学研究计划(2011B140018,13A140774)资助课题。

作者简介:余本海(1970—),男,博士,教授,主要从事激光与物质相互作用方面的研究。E-mail: hnyubenhai@163.com

场峰值附近电离,然后在激光场的作用下加速。当 激光场改变方向时,若第一个电子返回到母核离子附 近,并与母核离子发生非弹性碰撞,其能量则传递给 第二个电子。若第二个电子立即电离,将此过程称为 (e,2e)电离,即直接碰撞电离。若第二个电子没有立 即电离,而是被激发到激发态,并在下一个激光场峰 值附近电离,则此过程称为碰撞激发场致电离。

依据三步再碰撞理论,原子和分子在椭偏光或 圆偏光脉冲驱动下几乎不可能发生 NSDI 过程,因 为第一个电子电离之后很难返回到核区域并发生有 效碰撞^[13]。这一结论在 Dietrich 等^[18]的实验中被 证实,因为他们没有观测到典型的"膝盖"结构。但 这一结论却与随后的实验结果相矛盾,Gillen 等^[19] 在圆偏光脉冲驱动下实验观测到 Mg²⁺离子的产率 对激光强度的依赖呈现一个明显的"膝盖"结构,这 说明存在 NSDI 过程。基于半经典模型理论,Hao 等^[20]在光强为 1.0×10¹⁵ W/cm² 的条件下研究了 不同椭偏率下 Ne²⁺与 Ne⁺的比值随波长的变化;基 于经典系综模型理论,Wang 等^[13]研究得出椭偏光 脉冲驱动下原子 NSDI 过程仍然可以用再碰撞理论 做出很好的解释。

本文利用经典系综模型,研究了少光周期的椭圆偏振激光脉冲驱动下 Xe 原子的 NSDI,其中激光 强度为 2.5×10¹⁴ W/cm²,波长为 780 nm,椭偏率为 0.3。计算结果显示, NSDI 中得到的末态电子对沿 激光偏振平面长轴方向的动量谱主要分布在一、三 象限,即大多数电子对在末态发射到了相同的方向。 关联电子对的动量谱分布于一、三象限的总数量之 比随载波包络相位(CEP)的增加呈现出先减小后增 大的趋势。追踪分析 NSDI 的轨迹显示,在该激光 脉冲驱动下,碰撞和双电离之间的时间延迟小于 0.25*T*(*T* 为光周期),由此说明 NSDI 过程是以直 接碰撞电离机制为主,因此大多数的关联电子对发 射到相同的方向。另外,由于碰撞时刻对应的激光 场的相位强烈依赖于 CEP,导致关联电子对的发射 方向随 CEP 的变化而变化。

2 理论方法

Haan 等^[21]对经典系综模型做了详细的描述, 该模型已经被广泛地用来研究 NSDI 过 程^[12~15,22,23]。在经典系综模型中,每一对电子在空 间中的运动由牛顿运动方程描述[本文除非有另外 的规定,均采用原子单位制(a.u.)]:

 $\mathrm{d}^{2}\boldsymbol{r}_{i}/\mathrm{d}t^{2} = -\nabla\left[V_{\mathrm{ne}}(\boldsymbol{r}_{i}) + V_{\mathrm{ee}}(\boldsymbol{r}_{1},\boldsymbol{r}_{2})\right] - \boldsymbol{E}(t),$

式中*i*取1或2,*r*表示二维空间中电子的坐标, *E*(*t*)表示椭圆偏振激光场的场强,其表达式为

$$\mathbf{E}(t) = (E_0 / \sqrt{\varepsilon^2 + 1}) f(t) [\mathbf{e}_x \sin(\omega t + \Phi) + \mathbf{e}_y \varepsilon \cos(\omega t + \Phi)], \qquad (2)$$

式中 E_0 为激光场峰值, ϵ 为椭偏率, ω 为激光频率, σ 为 CEP。 e_x 代表激光偏振平面长轴方向, e_y 代表激光 偏振平面短轴方向。图 1 给出了少光周期的椭圆偏 振激光场电场强度随时间的变化曲线, 黑色曲线和 灰色曲线分别代表沿 x 方向和 y 方向的电场强度, 其中 $\phi = 0$ 。 $V_{ne}(\mathbf{r}_i)$ 和 $V_{ee}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$ 采用软核库仑势, 可分别表示为

$$\begin{cases} V_{\rm ne}(\mathbf{r}_i) = -2/\sqrt{|\mathbf{r}_i|^2 + a^2} \\ V_{\rm ee}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = 1/\sqrt{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|^2 + b^2}, \end{cases} (3)$$

式中 *a* 和 *b* 分别代表母核与电子以及电子与电子之间的软核参数,为避免非物理奇点和自电离^[21~23],计算中 *a* 取 2.0 a. u.,*b* 取 0.02 a. u.。



图 1 沿激光偏振平面长轴方向(黑色曲线)和短轴方向 (灰色曲线)的激光场

Fig. 1 Laser fields along the long axis (the black curve) and short axis (the gray curve) of the laser polarization

为了获得每一对电子的初始状态,先将电子对 放在距核较近的位置,在该位置 Xe 原子的动能和 势能之和等于量子计算中对应的基态能量,即 -1.23 a.u.。电子对的初始速度和方向随机给定, 使电子对仅在库仑场的作用下自由运动,并让其运 动足够长的时间(200 a.u.),直到系综内(包括 2.0×10⁶ 个 Xe 原子)所有的电子对均达到一个稳 定的状态分布,即系综的初始位置(电子对在 *x* 方 向的坐标)分布满足高斯分布^[22,23],如图 2 所示。 在系综处于稳定状态后加入少光周期的椭圆偏振激 光脉冲,此时,每个电子对都在库仑场和激光场的共 同作用下运动,其运动仍然由牛顿运动方程来描述。 当激光场结束之后,检验每对电子的能量,如果两个 电子的总能量(电子的动能、母核离子与电子之间的 库仑势能以及电子与电子之间的相互作用势能)均



图 2 系综的初始分布 Fig. 2 Initial distribution of the ensemble

3 结果和讨论

线偏振激光脉冲驱动下原子 NSDI 对 CEP 的依赖已得到广泛的研究,但椭圆偏振激光脉冲驱动情况下的研究较少,因此本文主要研究椭偏光。图 3 给出了不同 CEP 下关联电子对沿 x 方向的末态动量分布。图 3(a)、(b)和(c)对应的 CEP 分别为 0、0.5π、0.75π。另外,由图 3 可以看出,在不同的 CEP 下,关联电子对的末态动量主要分布在第一、三象限,呈现出强烈的正关联行为,即大多数电子对在末态发射到了相同的方向。因此,该激光脉冲驱动下 Xe 原子 NSDI 中得到的关联电子对所显示出的正关联行为不依赖于 CEP。而这种正关联行为可以通过碰撞与 DI 之间的时间延迟来解释。



图 3 不同载波包络相位下关联电子对沿 x 方向的末态动量分布。(a) $\Phi=0$; (b) $\Phi=0.5\pi$; (c) $\Phi=0.75\pi$ Fig. 3 Final-state momentum distributions of the correlated electron pairs along the x axis for the various carrier-envelop phases. (a) $\Phi=0$; (b) $\Phi=0.5\pi$; (c) $\Phi=0.75\pi$

图 4 给出了不同 CEP 下,碰撞和 DI 之间的时间延迟分布。其中点线、灰色和黑色曲线分别代表 CEP 为 0、0.5π 和 0.75π。图 4 显示,对于不同的 CEP,时间延迟图像上均呈现出 7 个峰,最高峰 (图 4中第一个峰)对应的峰值均小于 0.25 个光周 期,这说明再碰撞之后两个电子几乎同时电离,在末 态将发射到相同的方向^[22]。这主要是由于在高的 激光强度下,第一个电子返回母核离子附近时具有 较高的能量,再碰撞过程中能够传递给第二个电子 较多的能量,使其直接电离^[24],两电子在电离之后 的运动中将具有相似的动力学行为。因此,图 3 中 关联电子对所呈现出的正关联行为不依赖于 CEP, 而是由激光强度决定的。

图 5 给出了 CEP 在 0~π 的范围内,关联电子 对动量分布于一、三象限的总数量之比。关联电子 对末态动量分布于第一象限,说明电子对发射到了 *x* 轴正方向。关联电子对末态动量分布于第三象





限,说明关联电子对发射到了 *x* 轴负方向。图 5 显 示随着 CEP 的增大,关联电子对动量分布于一、三 象限的数量之比呈现出先减小后增大的变化趋势。 说明沿 *x* 轴方向,末态电子对发射到负方向的数量 先增多后减少。因此,电子对沿 *x* 轴的发射方向强 烈依赖于 CEP。为了解释电子对的这种行为,追踪 分析了 NSDI 的轨迹。



图 5 关联电子对的动量分布于一、三象限的总数量 之比随 CEP 的变化曲线

Fig. 5 Rate of the total number for the correlated electron pairs that come from the first and third quadrants in Fig. 1 at various CEPs

由于发生再碰撞之后,电子主要在激光场的作 用下运动,因此其速度可近似为^[13]

$$V'_{x_i} = V_{x_i} + A_{t_i}, (4)$$

式中 V_{x_i} 为电离时刻的初始速度, t_i 为电离时刻, A_{t_i}

为电离时刻对应的矢势, $A_{t_i} = -\int_{t_i}^{t_i} E(t) dt$ 。轨迹分

析显示, V_{x_i} 往往比 A_{t_i} 小得多,因此,电子对的末态 速度是由电离时刻对应的矢势决定的。图 6 给出了 再碰撞时刻对应的激光场相位分布(点线)以及不同 时刻对应的矢势分布(黑色曲线)。其中灰色曲线代 表沿 x 方向的激光场。图 6(a)、(b)和(c)中两条灰 色竖直直线之间的时间间隔 $\Delta t_1 = \Delta t_2 = 0.25T$ 。由 图 6 可知,碰撞时间主要分布在两个位置,即 P_1 和 P_2 。当 $\Phi = 0$ 时,如图 6(a)所示, P_1 和 P_2 的峰值对 应的激光场大小均近似为 0, Δt_1 对应的矢势为正 值, Δt_2 对应的矢势为负值,由于 P_2 的高度大于 P_1 的高度,因此负值部分所占的比例比正值多。因此, 大多数电子对在末态获得的动量为负值,即以发射 到 x 轴负半轴为主。当 $\Phi = 0.5\pi$ 时,如图 6(b)所 示,与图 6(a)相比, P_1 的峰值向左移动,而 P_2 的峰 值对应的激光场大小仍然为0,此时 Δt_1 对应的矢 势出现了一部分负值「图 6(b)黑色曲线所示],导致 更多的电子对在末态获得的动量为负,即发射到 x 轴负半轴的电子对增多,因此关联电子对分布于一、 三象限的比值减小。当 ϕ 增大到 0.75 π 时,如 图 6(c)所示, P_1 的高度大于 P_2 的高度, 与图 6(b)相比,末态电子对获得的动量为正值的数量增多,即 发射到 x 轴正半轴的电子对数量增多,因此关联电 子对分布于一、三象限的比值增大。当 CEP 增大到 一定值时,电离时刻大多数电子对对应的矢势为正 值,导致电子对获得的动量为正,因此大多数的电子 对将发射到 x 轴正半轴。因此,当激光场的相位变 化时,由(2)式知,电场随之变化,相应时刻对应的矢 势也发生变化,由图6可知,电离时刻对应的矢势强 烈依赖于相位,因此,第一、三象限的数量之比随着 相位增加会呈现出先减小后增加的变化趋势,如 图 5所示。



图 6 不同 CEP 下碰撞时间分布。(a) Φ=0;
(b) Φ=0.5π; (c) Φ=0.75π

Fig. 6 Recollision time distributions at various CEPs.

(a) $\Phi = 0$; (b) $\Phi = 0.5\pi$; (c) $\Phi = 0.75\pi$

由上述分析可知,沿椭偏光长轴方向的电场对 电子对沿 x 轴的发射方向起到了决定性的作用;但 沿椭偏光短轴方向的电场对 NSDI 的微观动力学也 起到了关键性的作用。因为椭偏光驱动下,电子可 以通过椭圆轨迹与母核离子发生有效碰撞^[13],而椭 圆轨迹能否发生,强烈依赖于短轴方向的初始速度, 该速度是由电离时刻对应的沿短轴方向的激光场决定,所以沿短轴方向的电场对 NSDI 的发生起到了 决定性的作用。

4 结 论

利用经典系综模型,研究了少光周期的椭圆偏 振激光脉冲驱动下 Xe 原子的 NSDI。结果显示,在 不同的 CEP 下,关联电子对末态动量沿 x 轴主要分 布在一、三象限,均呈现出强烈的正关联行为,这是 由于激光强度较高,NSDI 过程主要是直接碰撞电 离,导致关联电子对以发射到相同的方向为主。另 外,关联电子对的动量分布于一、三象限的比值随 CEP 的增大呈现出先减小后增大的趋势,说明关联 电子对沿 x 轴的发射方向强烈依赖于 CEP。轨迹 分析显示,这是由于 CEP 不同时,碰撞时刻对应的 激光场相位不同,使得双电离时刻对应的矢势发生 变化。

参考文献

 Xi Kun, Ding Shuanghong, Zhang Jun *et al.*. External resonator PbWO₄ Raman laser excited by 1064 nm nanosecond laser pulses [J]. Acta Optica Sinica, 2012, **32**(9): 0914003 奚 坤,丁双红,张 骏等. 1064 nm 纳秒激光脉冲激发的外腔

式 PbWO4 拉曼激光器[J]. 光学学报, 2012, **32**(9): 0914003

- 2 Zhao Zhigang, Dong Yantao, Pan Sunqiang et al.. 50 W class double-end-pumped Nd: YVO4 TEM₀₀ mode solid state laser oscillator[J]. Chinese J. Lasers, 2011, 38(9): 0902001 赵智刚, 董延涛, 潘孙强等. 50 W 量级双端抽运 Nd: YVO4 基模 固体激光振荡器[J]. 中国激光, 2011, 38(9): 0902001
- 3 Yu Xiaochen, Hu Jiasheng, Wang Lianbao. Laser beam shaping based on liquid-crystal spatial light modulator[J]. Acta Optica Sinica, 2012, **32**(5): 0514001

于晓晨,胡家升,王连宝.基于液晶空间光调制器的激光束整形 [J].光学学报,2012,**32**(5):0514001

- 4 G. G. Paulus, F. Grasbon, A. Dreischuh *et al.*. Abovethreshold ionization by elliptically polarized field: interplay between electronic quantum trajectories [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2000, 84(17): 3791~3794
- 5 W. Cao, P. X. Lu, P. F. Lan *et al.*. Single-attosecond pulse generation with an intense multicycle driving pulse [J]. *Phys. Rev. A*, 2006, 74(6): 063821
- 6 Benhai Yu, Dongling Zhang, Qingbin Tang. Isolated attosecond electron wave packet diffraction [J]. Chin. Phys. B, 2011, 20(8): 083201
- 7 Zhang Qingbin, Lan Pengfei, Hong Weiyi et al.. The effect of controlling laser field on broadband supercontinuum generation [J]. Acta Physica Sinica, 2009, 58(7): 4908~4913

张庆斌, 兰鹏飞, 洪伟毅 等. 控制场对宽带超连续谱产生的影响

[J]. 物理学报, 2009, 58(7): 4908~4913

- 8 Y. M. Zhou, C. Huang, Q. Liao *et al.*. Classical simulations including electrons for sequential double ionization [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2012, **109**(5): 053004
- 9 Q. Liao, Y. M. Zhou, C. Huang *et al.*. Multiphoton Rabi oscillations of correlated electrons in strong-field nonsequential double ionization[J]. *New J. Phys.*, 2012, **14**(1): 013001
- 10 J. Liu, D. F. Ye, J. Chen *et al.*. Complex dynamics of correlated electrons in molecular double ionization by an ultrashort intense laser pulse [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2007, **99**(1): 013003
- 11 X. Liu, C. Figueira de Morisson Faria. Nonsequential double ionization with few-cycle laser pulses [J]. Phys. Rev. Lett., 2004, 92(13): 133006
- 12 Y. M. Zhou, C. Huang, P. X. Lu. Coulomb-tail effect of electron-electron interaction on nonsequential double ionization [J]. Phys. Rev. A, 2011, 84(2): 023405
- 13 X. Wang, J. H. Eberly. Elliptical trajectories in nonsequential double ionization[J]. New J. Phys., 2010, 12(9): 093047
- 14 C. Huang, Y. M. Zhou, A. H. Tong *et al.*. The effect of molecular alignment on correlated electron dynamics in nonsequential double ionization[J]. *Opt. Express*, 2011, 19(6): 5627~5634
- 15 Y. M. Zhou, Q. Liao, P. X. Lu. Mechanism for high-energy electrons in nonsequential double ionization below the recollisionexcitation threshold[J]. *Phys. Rev. A*, 2009, **80**(2): 023412
- 16 Y. Q. Liu, S. Tschuch, A. Rudenko et al.. Strong-field double ionization of Ar below the recollision threshold[J]. Phys. Rev. Lett., 2008, 101(5): 053001
- 17 P. B. Corkum. Plasma perspective on strong-field multiphoton ionization[J]. Phys. Rev. Lett., 1993, 71(13): 1994~1997
- 18 P. Dietrich, N. H. Burenett, M. Ivanov et al.. High-harmonic generation and correlated two-electron multiphoton ionization with elliptically polarized light[J]. Phys. Rev. A, 1994, 50(5): R3585~R3588
- 19 G. D. Gillen, M. A. Walker, L. D. Van Woerkom. Enhanced double ionization with circularly polarized light[J]. *Phys. Rev.* A, 2001, 64(4): 043413
- 20 X. L. Hao, G. Q. Wang, X. Y. Jia *et al.*. Nonsequential double ionization of Ne in an elliptically polarized intense laser field[J]. *Phys. Rev. A*, 2009, **80**(2): 023408
- 21 S. L. Haan, L. Breen, A. Karim *et al.*. Variable time lag and backward ejection in full-dimensional analysis [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2006, 97(10): 103008
- 22 Yu Benhai, Li Yingbin. Laser intensity dependence of nonsequential double ionization of argon atoms by elliptically polarized laser pulses[J]. Acta Physica Sinica, 2012, 61(23): 233202

余本海,李盈傧. 椭圆偏振激光脉冲驱动的氩原子非次序双电离 对激光强度的依赖[J]. 物理学报,2012,**61**(23):233202

- 23 Y. M. Zhou, Q. Liao, Q. B. Zhang et al.. Controlling nonsequential double ionization via two-color few-cycle pulses[J]. Opt. Express, 2010, 18(2): 632~638
- 24 B. Feuerstein, R. Moshammer, D. Fischer *et al.*. Separation of recollision mechanisms in nonsequential strong field double ionization of Ar: the role of excitation tunneling[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2001, 87(4): 043003

栏目编辑: 王晓琰