

波长和偏振依赖的 O₂ 分子强激光场单电离

林志阳*, 林宝卿, 蒲继雄

华侨大学信息科学与工程学院, 福建省光传输与变换重点实验室, 福建 厦门 361021

摘要 实验上,在线偏振和圆偏振强激光场中测得同核双原子分子 O₂ 在两个不同波长(800 nm 和 1500 nm)下的离子产量随光强变化曲线,发现其呈现出有趣的波长和偏振依赖关系:O₂⁺ 产量在长波长下比短波长下更低,且不同波长间 O₂⁺ 产量的差距在圆偏振光下相较线偏振下变得更大。利用散射矩阵(S-Matrix)理论模型定性地重复出实验结果,并从电子动量分布方面进一步确认了分子轨道效应对 O₂ 强场单电离的影响。

关键词 原子与分子物理学; 单电离; O₂ 分子; 强激光场; 波长和偏振依赖

中图分类号 O561.1; O561.4

文献标志码 A

doi: 10.3788/AOS202040.0802001

Wavelength- and Polarization-Dependent Single Ionization of O₂ in Strong Laser Fields

Lin Zhiyang*, Lin Baoqing, Pu Jixiong

*Fujian Provincial Key Laboratory of Optical Beam Transmission and Transformation,
College of Information Science and Engineering, Huaqiao University, Xiamen, Fujian 361021, China*

Abstract In this study, the ion yields of homonuclear diatomic molecules (O₂) were experimentally measured as a function of the laser intensity at two different wavelengths (800 and 1500 nm) in the linearly polarized (LP) and circularly polarized (CP) strong laser fields, exhibiting a peculiar dependence on wavelength and polarization. The O₂⁺ yields were reduced at long wavelengths, and the yield difference between 800 and 1500 nm was larger in the CP field when compared with that in the LP field. The experimental results were qualitatively reproduced using the S-matrix model. Furthermore, the calculated electron-momentum distributions confirm the effect of the molecular orbitals on the strong-field single ionization of O₂.

Key words atomic and molecular physics; single ionization; O₂; strong laser fields; wavelength- and polarization-dependence

OCIS codes 020.2649; 270.6620; 260.3230

1 引 言

原子分子与强激光场相互作用过程会出现一系列高度非线性现象,如高阶阈上电离^[1]、高次谐波产生^[2]、非顺序双电离^[3-4]和库仑爆炸^[5]等。研究原子分子强场电离是理解这些强场物理现象的基础。相对于结构比较简单且电离物理图像已比较清晰的原子^[6-7],分子由于有多个核中心、多种分子轴取向,以及多个转动和振动自由度的复杂结构,其电离行为展现出很多独特的性质^[8],故可应用于多个前沿领域,如对分子内层轨道成像^[9-12]、以阿秒时间尺度操

控原子分子内部电子行为^[13-15]以及发展阿秒钟干涉技术^[16]等。

分子复杂结构对其电离行为影响最直接的体现就是 O₂ 分子(电离势 $I_p = 12.21$ eV)与其对照原子 Xe($I_p = 12.07$ eV)相比出现了“电离抑制”现象^[17-18]。多种理论模型被提出以解释电离抑制现象背后的物理机制,包括基于 Keldysh-Faisal-Reiss (KFR) 理论的 S-matrix 模型^[19]、多电子屏蔽模型^[20]和分子 Ammosov-Delone-Krainov (ADK) 模型^[21]等。其中,S-matrix 模型成功地将电离抑制归结为分子基态波函数对称性对其电离行为的影

收稿日期: 2019-09-16; **修回日期:** 2019-12-16; **录用日期:** 2020-01-06

基金项目: 国家自然科学基金(11504116,11447188)、福建省自然科学基金(2015J05009)、华侨大学高层次引进人才科研启动项目(13BS407)

* **E-mail:** suthing@hqu.edu.cn

响^[19,22-26]: O_2 最高占据分子轨道(HOMO)为反对称的 $1\pi_g$ 态(g 表示对称的基态波函数),因此从不同氧原子核中心电离出的电子波包间发生相消干涉效应(即双中心干涉效应)而出现电离抑制。包含于 S-matrix 模型的双中心干涉效应也成功地解释了人们在中红外波段强激光场中发现的不同偏振下 O_2 分子电离抑制对激光波长的依赖关系^[27-28],以及在最新 COLTRIMS(Cold-Target Recoil-Ion Momentum Spectroscopy)实验中发现的 O_2 分子相对于 Xe 原子出现的电离电子动量分布变窄的现象^[29]。

然而,通过电离抑制研究分子与原子电离行为的差异,使人们偏向于研究双中心干涉效应的作用而可能忽略其他效应的影响。事实上,原子分子电离过程中还可能会出现偏振依赖的双电离^[30]、电子自旋极化效应^[31]、多光子电离共振效应^[32]和共振增加电离效应^[33-34]。而在线偏振光中,原子分子的电离行为也会受到“重散射”效应的影响^[1,35-36]。此外,在分子准直实验中人们也发现分子电离行为会呈现出受偏振影响的分子轴取向的依赖关系^[37-38]。这些实验表明,仍需进一步研究分子电离行为所呈现的激光偏振依赖关系以澄清不同效应对分子复杂电离行为的影响。

因此,本文首先在线偏振光下比较两个不同波长(800 nm 和 1500 nm)下 O_2^+ 产量随光强变化曲线。选取这两个波长(800 nm 和 1500 nm)来对比研究,可消除短波长下可能出现的多光子电离共振效应的影响^[32-33],以便更直接有效地研究 O_2 所具有的特殊分子结构对其电离行为的影响。进一步地,在圆偏振光下测得不同波长的 O_2^+ 产量随光强变化曲线。利用圆偏振光可消除“重散射”效应^[1,27,35-36]的影响,也有助于更直接地研究分子结构效应。在这些实验结果中发现 O_2^+ 产量呈现出有趣的波长和偏振依赖关系。理论上,利用 S-matrix 模型定性地重复出实验结果,并确认了 O_2 分子波长和偏振依赖的电离行为背后的物理机制。

2 实验装置

实验中,测量光电子能谱和离子产量所用的飞行时间谱仪、激光系统及相关光路示意图如图 1 所示。用钛宝石激光系统(Legend, Coherent, Inc.)输出的中心波长 800 nm、脉宽 40 fs、重复频率为 1 kHz 的激光脉冲泵浦光参量放大(OPA)系统(TOPAS-C, Light Conversion, Inc.),输出波长连续可调的中红外波段(1100~2400 nm)激光脉冲^[39]。

其中,波长为 1500 nm 的脉冲,单脉冲最大能量为 0.5 mJ、脉宽为 30 fs、品质因子 M^2 值为 1.2。实验中,利用直径为 150 mm 的圆形中性衰减片调节脉冲能量。而圆偏振光是通过在衰减片后增加一个四分之一波片获得。最后,用平凸透镜将光聚焦到真空腔体内。基于三级泵系统(前级为干泵,中间级为分子泵和后级为低温泵)可获得低于 10^{-6} Pa 的腔内背景真空。充入腔内的气体气压由精密微调阀精确调节。

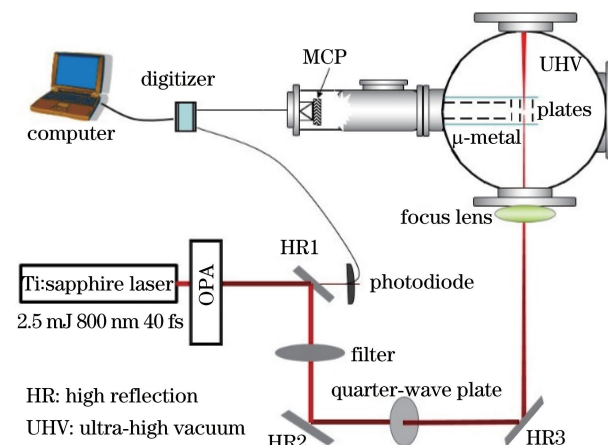


图 1 实验装置及光路示意图

Fig. 1 Schematic diagram for the experimental setup and the optical path

聚焦进腔内的激光脉冲与目标气体在作用区相互作用产生光电子和离子。光电子在飞行时间谱仪内自由飞行一段距离到达微通道板(MCP),并由 MCP 放大后转化为电压信号后被嵌入在计算机内的模数转化卡采集;而离子则需先由高导电率电场板加速后再自由飞行到 MCP 后被采集。为了避免饱和效应和过高计数影响数据的准确性,在实验过程中根据不同激光功率下离子产量的不同调节腔内气压,并合理控制数据采集时间。同时,采用多次重复测量以保证数据的重复性和准确性。

最终,本套飞行时间谱仪对光电子的测量分辨率可达 1 meV,且获得的离子信号稳定可靠。为了方便比较不同波长下的离子产量,将测得的离子计数值除以激光脉冲数和气压值,即每 shot 的产量以 counts/Pa 为单位。测量气压时,考虑了分子泵对不同气体的抽运速度不同和真空规管对不同气体探测效率的差异。详细的实验装置和测量过程请参见文献^[27-28,40]。

3 理论模型

本文理论计算基于 S-matrix 模型。该模型在

计算 O₂ 分子电离概率方面的准确性已通过直接求解含时薛定谔方程法得以验证^[26,41], 是研究分子结构对其电离行为影响的有效模型^[19, 27-28]。关于该模型的详细描述可参见文献^[26-28]。简单来说, 原子或者分子在激光场中的总单电离概率为(除了特别说明, 本文都采用原子单位, 即 a.u.):

$$W = 2\pi N_e \sum_{N=N_0} k_N (U_p - N\omega)^2 \int d\mathbf{k}_N J_N^2(a, b, \chi) \times |\langle \varphi_{k_N}(\mathbf{r}) | \psi_i(\mathbf{r}) \rangle|^2, \quad (1)$$

式中: N_e 表示等价电子的数目; N_0 表示电离目标气体所需的最少光子数目; I_p 和 U_p ($U_p = I/4\omega^2 \propto I\lambda^2$) 分别代表电离势和有质动力势, 其中 ω 、 I 和 λ 分别为激光场圆频率、光强和波长; \mathbf{k}_N 为电离电子动量, 其大小 $k_N = \sqrt{2(N\omega - I_p - U_p)}$; $\varphi_{k_N}(\mathbf{r})$ 表示平面波函数; $\psi_i(\mathbf{r})$ 表示原子或者分子的基态波函数; $J_N(a, b, \chi)$ 为广义贝塞尔 (Bessel) 函数^[42], 表达式为

$$J_N(a, b, \chi) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} J_{N+2m}(a) J_m(b) \exp[i(N+2m)\chi], \quad (2)$$

其所包含三个变量分别为

$$a = \alpha_0 \sqrt{\left[\boldsymbol{\varepsilon}_1 \cdot \mathbf{k}_N \cos\left(\frac{\xi}{2}\right) \right]^2 + \left[\boldsymbol{\varepsilon}_2 \cdot \mathbf{k}_N \sin\left(\frac{\xi}{2}\right) \right]^2}, \quad (3)$$

$$b = \frac{U_p}{2\omega} \cos \xi, \quad (4)$$

$$\chi = \arctan \left[\frac{\boldsymbol{\varepsilon}_2 \cdot \mathbf{k}_N}{\boldsymbol{\varepsilon}_1 \cdot \mathbf{k}_N} \tan\left(\frac{\xi}{2}\right) \right], \quad (5)$$

式中: $\alpha_0 = A_0/(\omega c)$ 为所谓的振动半径, A_0 为激光场矢势 \mathbf{A}_0 峰值, c 为真空中光速; $\boldsymbol{\varepsilon}_1$ 和 $\boldsymbol{\varepsilon}_2$ 是正交的单位方向矢量(其与动量 \mathbf{k}_N 的夹角设为 θ_k); ξ 为激光场偏振度。一般椭圆偏振光的电场矢势为

$$\mathbf{A}(t) = \mathbf{A}_0 \left[\boldsymbol{\varepsilon}_1 \cos\left(\frac{\xi}{2}\right) \cos(\omega t) + \boldsymbol{\varepsilon}_2 \sin\left(\frac{\xi}{2}\right) \sin(\omega t) \right]. \quad (6)$$

对于线偏振光, $\xi=0$, 而对于圆偏振光, $\xi=\frac{\pi}{2}$ 或者 $\xi=-\frac{\pi}{2}$ 。将 $\xi=0$ 和 $\xi=\frac{\pi}{2}$ 及在 x - y 平面的 $\boldsymbol{\varepsilon}_1$ 和 $\boldsymbol{\varepsilon}_2$ 分别代入(2)式, 可得线偏振光和圆偏振光下的贝塞尔函数^[42]:

$$J_N(a, b, \chi) = \begin{cases} J_N(\alpha_0 k_N \sin \theta_k), & \text{for LP} \\ J_N(\alpha_0 k_N \sin \theta_k / \sqrt{2}) \exp(iN\chi), & \text{for CP} \end{cases} \quad (7)$$

在计算中, 采用基于原子 Slater 轨道组合成的 Hartree-Fock 波函数来描述原子的基态波函数^[41]:

$$\psi_a(\mathbf{r}) = \frac{(2\xi_a)^{n_a+1/2}}{\sqrt{(2n_z)!}} \mathbf{r}^{n_a-1} \exp(-\xi_a \mathbf{r}) Y_{l_a}^{m_a}(\theta, \varphi). \quad (8)$$

而分子的 HOMO 则采用原子轨道组合成的 Hartree-Fock-Roothaan 波函数表示为^[41]

$$\psi_0(\mathbf{r}) = \sum_a c_a [\psi_a(\mathbf{r} + \mathbf{R}/2) + (-1)^{l_a - m_a + \lambda_a} \psi_a(\mathbf{r} - \mathbf{R}/2)], \quad (9)$$

式中: \mathbf{R} 为分子核相对位移(下文称核间距); l_a 为轨道量子数; m_a 为磁量子数。对于 O₂ 分子, 系数 ξ_a , c_a , n_a , l_a 和 m_a 可从文献^[43]获得。 $\lambda_a = m_a$ 和 $\lambda_a = m_a + 1$ 分别对应对称 (g) 和反对称 (u) 的基态波函数。

将(9)式作傅里叶变换, 则得到分子波函数 $\psi_0(\mathbf{r})$ 在动量空间的表达式, 即

$$\Phi(\mathbf{k}_N, \mathbf{R}) = \sum_a 2c_a \Phi_a(\mathbf{k}_N) \times \begin{cases} i \sin\left(\mathbf{k}_N \cdot \frac{\mathbf{R}}{2}\right), & \text{for odd } l_a - m_a + \lambda_a \\ \cos\left(\mathbf{k}_N \cdot \frac{\mathbf{R}}{2}\right), & \text{for even } l_a - m_a + \lambda_a \end{cases}, \quad (10)$$

式中: $\Phi_a(\mathbf{k}_N)$ 为原子波函数 $\psi_a(\mathbf{r})$ 的傅里叶变换式。考虑到在 O₂ 分子电离过程中起主导作用的 HOMO 为反对称的 $1\pi_g$ ^[44], 对应的 $l_a - m_a + \lambda_a$ 为奇数, (10)式可以直观地表述为

$$\Phi(\mathbf{k}_N, \mathbf{R}) = C \Phi_a(\mathbf{k}_N) \sin\left(\mathbf{k}_N \cdot \frac{\mathbf{R}}{2}\right), \quad (11)$$

式中: C 为归一化因子。对于 O₂ 分子, 类原子波函数部分 $\Phi_a(\mathbf{k}_N)$ 主要由组成分子轨道的 $2p_x$ 原子轨道决定, 这体现了分子轨道效应对总电离概率的贡献。而三角函数部分 $\sin(\mathbf{k}_N \cdot \mathbf{R}/2)$ 不仅与分子结构(如核间距和分子轴取向)有关, 也与基态波函数对称性有关, 是双中心干涉效应引起 O₂ 分子电离抑制的体现^[19, 27-29]。特别地, 三角函数部分 $\sin(\mathbf{k}_N \cdot \mathbf{R}/2)$ 与电离电子动量 \mathbf{k}_N 有关, 而通过调谐激光波长可以改变 \mathbf{k}_N 。此外, 改变激光偏振可以调节 \mathbf{k}_N 与分子核间距 \mathbf{R} 之间的夹角(即调控分子结构的影响)。因此, 研究不同波长和不同偏振下 O₂ 分子的电离行为, 将有助于理解强激光场分子电离的分子轨道效应和分子结构效应。

4 结果与讨论

在一定的激光功率下, 利用线偏振光测得 Xe

在 800 nm 和 1500 nm 下的光电子能谱,如图 2 所示。为了方便比较,对 1500 nm 的能谱在垂直方向作一定程度的平移(不影响能谱整体形状)。整体来看,不同波长下的能谱表现为光电子产量随着能量的增加而快速下降,且自第一个拐点处至 $10U_p$ 范围内产量基本不再随着能量的增加而变化,即形成了一个平台结构。从能谱中可以看出 800 nm 和 1500 nm 的 $10U_p$ 截止能量分别为 58 eV 和 213 eV。进一步地,利用公式 $U_p = I/4\omega^2 \propto I\lambda^2$ 可获得这一功率对应的激光光强 I 。最后,利用功率与光强的一一对应关系,调节激光功率并用功率计直接读取,即可获得所需光强。

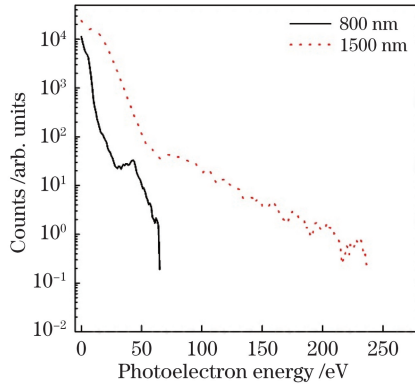


图 2 实验测得线偏振光下不同波长(800 nm 和 1500 nm)的 Xe 电离光电子能谱

Fig. 2 Experimental photoelectron spectra of Xe ionized by the linearly polarized laser field at the two wavelengths of 800 nm and 1500 nm

光强标定后,在线偏振光下测得不同波长(800 nm 和 1500 nm)下 O_2^+ 产量随光强变化曲线,如图 3(a)所示。可以看出,在双对数坐标下,两个波长的 O_2^+ 产量在低光强部分都随着光强上升而快速上升。其中,800 nm 的 O_2^+ 产量与光强呈接近于 $I^{3/2}$ 的指数关系,类似于之前实验结果^[17-18]。随着光强达到饱和光强之后^[45-46],离子产量基本不再随光强变化,且两个波长间的离子产量接近一致。但是,在饱和光强(约为 60 TW/cm^2)以下,800 nm 的 O_2^+ 产量均高于 1500 nm 的,且两者之间的产量差距随着光强上升而变小。

进一步地,在圆偏振光下,测得不同波长(800 nm 和 1500 nm)下 O_2^+ 产量随光强变化曲线,如图 3(b)所示。与线偏振光下的结果类似,在双对数坐标下,圆偏振光下两个波长的 O_2^+ 产量都随着光强先快速上升,之后上升趋势变缓。在 800 nm 下,圆偏振光下高光强部分的 O_2^+ 产量随光强上升

速度比线偏振光的要快,这说明在所测量的高光强区间,圆偏振光的光强还未达到饱和光强。在波长为 1500 nm 时,线偏振光和圆偏振光在高光强部分的产量变化趋势都与 800 nm 的类似。然而,对比圆偏振光下不同波长的产量曲线,可以看到在整个光强区间 800 nm 的 O_2^+ 产量都比 1500 nm 的高,且两者之间的产量差距随着光强上升而变小。这与线偏振光下不同波长间 O_2^+ 产量的差距及其随光强的变化趋势类似。

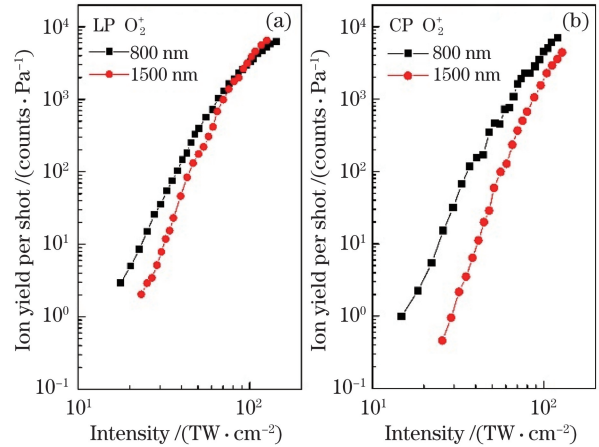


图 3 实验测得不同偏振下两个不同波长(800 nm 和 1500 nm)的 O_2^+ 产量随光强变化曲线。(a)线偏振光;(b)圆偏振光

Fig. 3 Experimental yield of O_2^+ as a function of the laser intensity at the two different wavelengths of 800 nm and 1500 nm for different polarizations. (a) LP; (b) CP

仔细对比线偏振光[图 3(a)]和圆偏振光[图 3(b)]下两个波长间的 O_2^+ 产量差距,可以发现,在整个光强区间,圆偏振光下 800 nm 和 1500 nm 的 O_2^+ 产量差距都要大于线偏振光下两者间的差距。也就是说,不同波长间的 O_2^+ 产量差距呈现出偏振依赖关系:随着偏振从线偏振光变化为圆偏振光, O_2^+ 产量在长波长下降低得更加明显。

为了更好地理解实验中发现的 O_2^+ 产量所呈现出的波长和偏振依赖关系,选取与实验一致的相关参数,借助前述 S-matrix 理论模型在不同偏振下计算两个不同波长的 O_2^+ 产量随光强变化曲线,如图 4 所示。对比图 4(a)与图 3(a)可以发现,在线偏振光下计算得到不同波长下的结果和实验结果类似: O_2^+ 产量随着光强增加而上升;800 nm 的 O_2^+ 产量要高于 1500 nm 的,且两者之间的差距随光强增加而变小。在高光强部分,计算结果中离子产量依旧随着光强增大而上升,即未达到饱和光强,这与

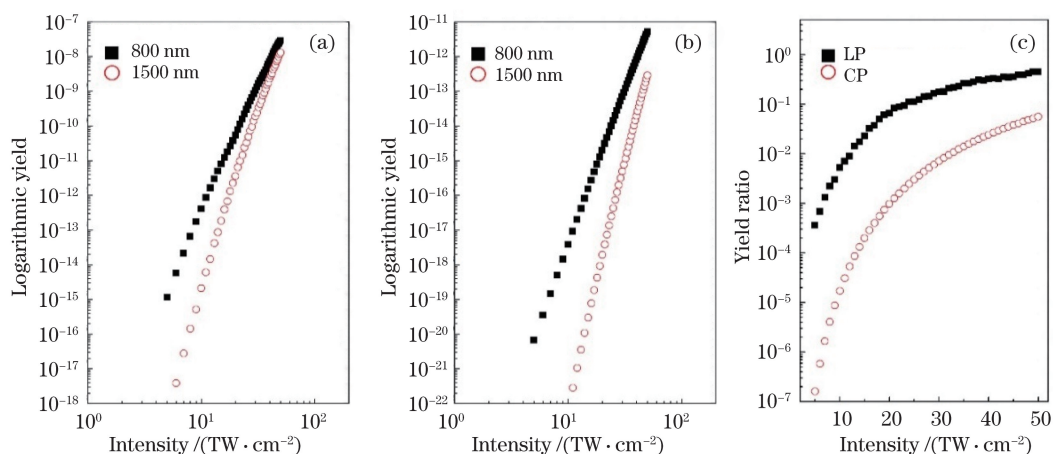


图 4 理论计算得到不同偏振下两个不同波长(800 nm 和 1500 nm)的 O_2^+ 产量及产量比值随光强变化曲线。

(a) 线偏振光下的产量;(b)圆偏振光下的产量;(c)不同偏振下产量比值的变化

Fig. 4 Theoretical yield and its ratio of O_2^+ at the two wavelengths of 800 nm and 1500 nm as a function of the laser intensity for different polarizations. (a) Yield for LP; (b) yield for CP; (c) yield ratio at 800 nm and 1500 nm for different polarizations

实验结果存在差异。该差异可能源于 S-matrix 模型只考虑了分子 HOMO 轨道对电离概率的贡献。高光强时其他轨道的贡献可能不能忽略^[28,47], 这有待进一步深入研究。

另一方面,圆偏振光下计算得到的两个波长下 O_2^+ 产量随光强和波长的变化趋势[图 4(b)]也与实验结果[图 3(b)]类似。特别地,基于相应的计算结果定性地获得了两个波长间 O_2^+ 产量差距的偏振依赖关系:当激光偏振从线偏振变化为圆偏振时, O_2^+ 产量随着波长变长而变得更低,即长波长下的 O_2^+ 产量与短波长下的差距越来越大。请注意,为了方便比较,不同偏振下选取的横坐标范围和纵坐标量级相同。

为了更直观对比,将图 4(a)和图 4(b)中 1500 nm 和 800 nm 的 O_2^+ 产量直接相除,定量地得到不同偏振下两个波长间的 O_2^+ 产量比值随光强变化曲线,如图 4(c)所示。从图 4(c)可以看出,在线偏振光下,两个波长下的 O_2^+ 产量比值随着光强的上升而增加,并逐渐接近于 1。在圆偏振光下, O_2^+ 产量比值随光强的变化趋势与在线偏振光下的结果类似。将两个偏振下不同波长间的 O_2^+ 产量比值对比,可以发现在整个光强范围内圆偏振光下的 O_2^+ 产量比值都小于线偏振光下的 O_2^+ 产量比值,且该比值随着光强下降而变小,即低光强下产量差距更大。

为了进一步理解 O_2^+ 电离行为的激光参数依赖关系,利用 S-matrix 理论模型作进一步分析。利用

该模型得到的分子动量空间波函数[见(11)式]所包含的类原子波函数部分 $\Phi_a(k_N)$ 和三角函数部分 $\sin(k_N \cdot \mathbf{R}/2)$ 均与电离电子动量 k_N 有关。在波长和偏振相同的情况下,光强越大, $\Phi(k_N, \mathbf{R})$ 值越大,因此相应的 O_2^+ 产量也越高,与实验中发现的 O_2^+ 产量随光强增加而上升的结果一致。

另一方面,三角函数部分 $\sin(k_N \cdot \mathbf{R}/2)$ 还与 k_N 和 \mathbf{R} 之间的夹角有关,而分析其对电离概率的贡献,特别对电子动量分布的影响,将有助于理解 O_2 分子电离过程中的分子结构效应。为此,在光强为 20 TW/cm² 时,计算不同偏振下两个波长(800 nm 和 1500 nm)的 O_2 分子电离电子动量分布,如图 5 所示。从图 5(a)可以看出,在线偏振光下,800 nm 和 1500 nm 的电子动量分布都集中于 0.4 a.u.(峰值处)左右。800 nm 的最高电离概率为 2.7×10^{-11} ,而 1500 nm 最高电离概率为 9.5×10^{-13} ,两者之间差近两个量级。两个波长之间的电离概率差随着动量增加而降低,直到动量大于 0.8 a.u.后趋近于一致。动量大于 0.8 a.u.部分的概率非常低,对总电离概率贡献可以忽略。在这里,可以看出波长越长,电离电子动量分布概率越低,这也最终使得同一光强下的总电离概率在长波长下反而降低。电子动量分布概率在长波长降低,符合 k_N 所呈现的波长依赖关系[见(1)式]。这也反映在线偏振光下,包含于动量空间波函数 $\Phi_a(k_N)$ [见(11)式]中的反映分子轨道效应的类原子波函数部分 $\Phi_a(k_N)$ 和反映分子结构效应(即双中心干涉效应)的三角函数部分

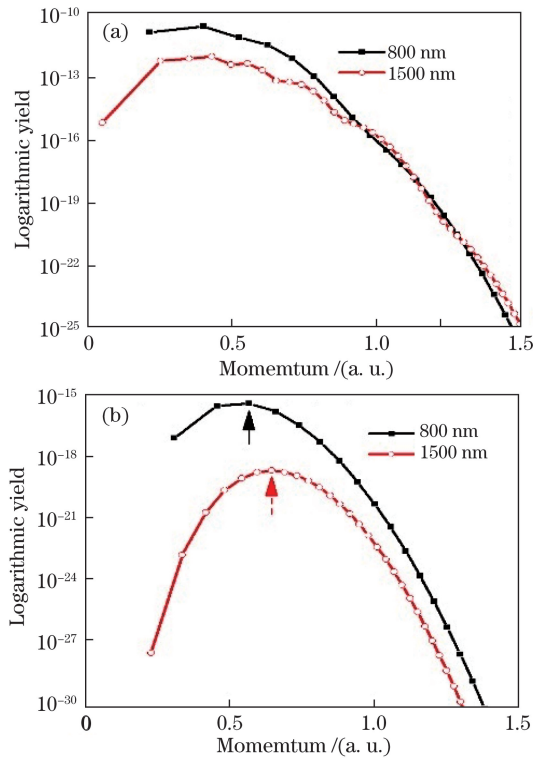


图5 在光强为 20 TW/cm^2 时计算得到不同偏振下两个波长(800 nm and 1500 nm)的 O_2 分子电离电子动量分布。(a) LP; (b) CP

Fig. 5 Calculated momentum distributions of electrons from O_2 at the two wavelengths of 800 nm and 1500 nm for the intensity of 20 TW/cm^2 for different polarizations. (a) LP; (b) CP

$\sin(\mathbf{k}_N \cdot \mathbf{R}/2)$ 在波长变长时降低。总体而言,这两个效应的共同作用使得线偏振光下 O_2^+ 产量在长波长时比短波长时要低[见图 4(a)]。

与线偏振光类似的总电离概率的波长依赖关系也可以从圆偏振光下的电子动量分布看出,如图 5(b)所示,在圆偏振光下,800 nm 的电子动量分布最高概率为 8.0×10^{-16} ,而 1500 nm 最高概率为 4.4×10^{-19} ,两者之间差距接近三个量级。因此,圆偏振光下的 O_2^+ 产量在长波长时比短波长时要小[见图 4(b)],这也与分子轨道效应和双中心干涉效应有关。进一步地,对比图 5(a)和图 5(b),可以发现圆偏振光下不同波长间的电子动量分布概率的差距大于线偏振光下的电子动量分布概率差距:由线偏振光下两个数量级的差距扩大到圆偏振光下接近于三个数量级的差距。这使得不同波长间圆偏振光下的 O_2^+ 产量比值小于线偏振光下的产量比值[见图 4(c)],同时也表明可通过改变激光偏振来调节上述两个效应进而控制 O_2 分子的电离行为。

仔细对比,在圆偏振光下[图 5(b)]800 nm 的

电子动量分布峰值位于 0.57 a.u. 处(图中实箭头所示),而 1500 nm 的电子动量分布峰值位于 0.65 a.u. 处(图中虚箭头所示)。这也说明当偏振从线偏振变为圆偏振时,电子动量分布峰值发生移动,且波长越长移动量越大:800 nm 的电子动量分布峰值从 0.4 a.u. 移动到 0.57 a.u.;1500 nm 的电子动量分布峰值从 0.4 a.u. 移动到 0.65 a.u.。整体上, O_2 分子电离电子动量分布随着激光偏振度增加向动量较大的方向移动,且移动量在长波长处更大。考虑到 O_2 分子总电离概率来自于反映分子轨道效应的 $\Phi_a(\mathbf{k}_N)$ 和反映双中心干涉效应的 $\sin(\mathbf{k}_N \cdot \mathbf{R}/2)$ 的共同作用[见(11)式],在圆偏振光下波长越长动量越往较大值处分布,但总电离概率变低,这说明虽然动量变大, $\sin(\mathbf{k}_N \cdot \mathbf{R}/2)$ 值变大,但是 $\Phi_a(\mathbf{k}_N)$ 随动量增加反而变小,导致相应总电离概率变低。此外,总电离概率随动量增加而变低也说明:与 $\sin(\mathbf{k}_N \cdot \mathbf{R}/2)$ 相比, $\Phi_a(\mathbf{k}_N)$ 对总电离概率的贡献占比大,即分子轨道效应在圆偏振光下的 O_2 分子电离过程中起主导作用。

另一方面,包含于三角函数部分 $\sin(\mathbf{k}_N \cdot \mathbf{R}/2)$ 的双中心干涉相消效应是 O_2 分子电离抑制产生的原因^[19]。因此,从电子动量分布可以直接验证以下结论:在圆偏振光下波长越长,其动量往较大值位置分布,相应的 $\sin(\mathbf{k}_N \cdot \mathbf{R}/2)$ 值越大,最终使 O_2 电离概率与原子的差距随波长变长而变小,即导致长波长下电离抑制变弱。这与文献[28]中发现的 O_2 相对 Xe 的电离抑制随波长变长而变弱的实验结果一致。

5 结 论

实验上,利用光电子能谱标定出不同波长激光脉冲的绝对光强后,在线偏振光下测量了两个不同波长(800 nm 和 1500 nm)下 O_2^+ 产量随光强变化曲线,发现 O_2^+ 产量随光强上升而增加,但长波长下的产量要低于短波长下的产量。与线偏振光实验中类似的 O_2^+ 产量对光强和波长的依赖关系在圆偏振光实验结果中同样可以发现。特别地,圆偏振光下两个波长间 O_2^+ 产量的差距要大于线偏振光下的两个波长间 O_2^+ 产量的差距。基于 S-matrix 理论模型定性地重复出实验结果,并从电子动量分布可以确认 O_2 分子波长和偏振依赖的电离行为主要源于分子轨道效应的作用。相关研究结果表明可以通过调节激光偏振和波长来控制具有基态波函数反对称的 O_2 分子的强场电离行为,并可以拓展到其他双原

分子乃至多原子分子,以获得分子结构对电离行为影响的信息。

致谢 感谢中国科学院武汉物理与数学研究所柳晓军研究员小组和中国科学院上海光学精密机械研究所程亚研究员小组提供实验平台用于测量相关实验数据,感谢中国科学院武汉物理与数学研究所康会鹏副研究员在理论计算方面提供的宝贵意见。

参 考 文 献

- [1] Paulus G G, Nicklich W, Xu H L, et al. Plateau in above threshold ionization spectra[J]. *Physical Review Letters*, 1994, 72(18): 2851-2854.
- [2] Macklin J J, Kmetec J D, Gordon C L. High-order harmonic generation using intense femtosecond pulses[J]. *Physical Review Letters*, 1993, 70(6): 766-769.
- [3] Fittinghoff D N, Bolton P R, Chang B, et al. Observation of nonsequential double ionization of helium with optical tunneling[J]. *Physical Review Letters*, 1992, 69(18): 2642-2645.
- [4] Feng F Z, Bai L H, Zheng X X. Nonsequential double ionization of Mg atoms below threshold laser power density[J]. *Acta Optica Sinica*, 2018, 38(7): 0702003.
冯凤珍, 白丽华, 郑晓晓. 低于阈值激光功率密度下 Mg 原子的非序列双电离[J]. *光学学报*, 2018, 38(7): 0702003.
- [5] Stapelfeldt H, Constant E, Corkum P B. Wave packet structure and dynamics measured by coulomb explosion[J]. *Physical Review Letters*, 1995, 74(19): 3780-3783.
- [6] Agostini P, DiMauro L F. Atoms in high intensity mid-infrared pulses[J]. *Contemporary Physics*, 2008, 49(3): 179-197.
- [7] Becker W, Liu X J, Ho P J, et al. Theories of photoelectron correlation in laser-driven multiple atomic ionization[J]. *Reviews of Modern Physics*, 2012, 84(3): 1011-1043.
- [8] Posthumus J H. The dynamics of small molecules in intense laser fields[J]. *Reports on Progress in Physics*, 2004, 67(5): 623-665.
- [9] Itatani J, Levesque J, Zeidler D, et al. Tomographic imaging of molecular orbitals[J]. *Nature*, 2004, 432(7019): 867-871.
- [10] Meckel M, Comtois D, Zeidler D, et al. Laser-induced electron tunneling and diffraction[J]. *Science*, 2008, 320(5882): 1478-1482.
- [11] Pullen M G, Wolter B, Le A T, et al. Imaging an aligned polyatomic molecule with laser-induced electron diffraction[J]. *Nature Communications*, 2015, 6: 7262.
- [12] Petersen I, Henkel J, Lein M. Signatures of molecular orbital structure in lateral electron momentum distributions from strong-field ionization[J]. *Physical Review Letters*, 2015, 114(10): 103004.
- [13] Baker S, Robinson J S, Haworth C A, et al. Probing proton dynamics in molecules on an attosecond time scale[J]. *Science*, 2006, 312(5772): 424-427.
- [14] Nisoli M, Decleva P, Calegari F, et al. Attosecond electron dynamics in molecules[J]. *Chemical Reviews*, 2017, 117(16): 10760-10825.
- [15] Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics[J]. *Reviews of Modern Physics*, 2009, 81(1): 163-234.
- [16] Guo Z N, Ma X Y, Han M, et al. Tunneling ionization of atoms and molecules in femtosecond-laser fields and its applications[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2019, 46(5): 0508017.
郭振宁, 马雪岩, 韩猛, 等. 飞秒激光场中原子/分子的隧道电离及应用[J]. *中国激光*, 2019, 46(5): 0508017.
- [17] Talebpour A, Chien C Y, Chin S L. The effects of dissociative recombination in multiphoton ionization of O₂[J]. *Journal of Physics B-Atomic Molecular and Optical Physics*, 1996, 29(18): L677-L680.
- [18] Guo C, Li M, Nibarger J P, et al. Single and double ionization of diatomic molecules in strong laser fields[J]. *Physical Review A*, 1998, 58(6): R4271-R4274.
- [19] Muth-Böhm J, Becker A, Faisal F H M. Suppressed molecular ionization for a class of diatomics in intense femtosecond laser fields[J]. *Physical Review Letters*, 2000, 85(11): 2280-2283.
- [20] Guo C L. Multielectron effects on single-electron strong field ionization[J]. *Physical Review Letters*, 2000, 85(11): 2276-2279.
- [21] Tong X M, Zhao Z X, Lin C D. Theory of molecular tunneling ionization[J]. *Physical Review A*, 2002, 66(3): 033402.
- [22] Jaroń-Becker A, Becker A, Faisal F H M. Ionization of N₂, O₂, and linear carbon clusters in a strong laser pulse[J]. *Physical Review A*, 2004, 69(2): 023410.
- [23] Kjeldsen T K, Madsen L B. Strong-field ionization of diatomic molecules and companion atoms: strong-field approximation and tunneling theory including nuclear motion[J]. *Physical Review A*, 2005, 71(2): 023411.
- [24] Usachenko V I, Chu S I. Strong-field ionization of laser-irradiated light homonuclear diatomic molecules: a generalized strong-field approximation-linear combination of atomic orbitals model[J]. *Physical Review A*,

- 2005, 71(6): 063410.
- [25] Okunishi M, Itaya R, Shimada K, et al. Two-source double-slit interference in angle-resolved high-energy above-threshold ionization spectra of diatoms[J]. *Physical Review Letters*, 2009, 103(4): 043001.
- [26] Becker A, Faisal F H M. Intense-field many-body S-matrix theory [J]. *Journal of Physics B-Atomic Molecular and Optical Physics*, 2005, 38(3): R1-R56.
- [27] Lin Z Y, Jia X Y, Wang C L, et al. Ionization suppression of diatomic molecules in an intense midinfrared laser field[J]. *Physical Review Letters*, 2012, 108(22): 223001.
- [28] Kang H P, Lin Z Y, Xu S P, et al. Wavelength-dependent ionization suppression of diatomic molecules in intense circularly polarized laser fields[J]. *Physical Review A*, 2014, 90(6): 063426.
- [29] Wei M Z, Quan W, Sun R P, et al. Two-center interference effect in ionization of diatomic molecules subject to close-to-circularly-polarized femtosecond laser fields[J]. *Physical Review A*, 2018, 98(6): 063418.
- [30] Tong A H, Feng G Q. Laser polarization dependence of double ionization of molecules [J]. *Acta Physica Sinica*, 2014, 63(2): 023303.
童爱红, 冯国强. 分子双电离对激光偏振性的依赖关系[J]. *物理学报*, 2014, 63(2): 023303.
- [31] Hartung A, Morales F, Kunitski M, et al. Electron spin polarization in strong-field ionization of xenon atoms[J]. *Nature Photonics*, 2016, 10(8): 526-528.
- [32] Hansch P, Walker M A, van Woerkom L D. Eight- and nine-photon resonances in multiphoton ionization of xenon[J]. *Physical Review A*, 1998, 57(2): R709-R712.
- [33] Wu J, Zeng H P, Guo C L. Comparison study of atomic and molecular single ionization in the multiphoton ionization regime [J]. *Physical Review Letters*, 2006, 96(24): 243002.
- [34] Lin K, Jia X Y, Yu Z Q, et al. Comparison study of strong-field ionization of molecules and atoms by bicircular two-color femtosecond laser pulses[J]. *Physical Review Letters*, 2017, 119(20): 203202.
- [35] Blaga C I, Catoire F, Colosimo P, et al. Strong-field photoionization revisited[J]. *Nature Physics*, 2009, 5(5): 335-338.
- [36] Quan W, Lin Z, Wu M, et al. Classical aspects in above-threshold ionization with a midinfrared strong laser field[J]. *Physical Review Letters*, 2009, 103(9): 093001.
- [37] Pavičić D, Lee K F, Rayner D M, et al. Direct measurement of the angular dependence of ionization for N_2 , O_2 , and CO_2 in intense laser fields [J]. *Physical Review Letters*, 2007, 98(24): 243001.
- [38] Sun R P, Lai X Y, Yu S G, et al. Tomographic extraction of the internuclear separation based on two-center interference with aligned diatomic molecules[J]. *Physical Review Letters*, 2019, 122(19): 193202.
- [39] Fu Y X, Xiong H, Xu H, et al. Phase-matched high-order harmonic generation in a gas cell with midinfrared femtosecond pulses[J]. *Physical Review A*, 2009, 79(1): 013802.
- [40] Lin Z Y, Lin B Q, Chen Z X. Single ionization of atoms driven by ultrafast intense mid-infrared laser fields[J]. *Acta Optica Sinica*, 2018, 38(6): 0602001.
林志阳, 林宝卿, 陈志心. 中红外波段超快强激光场驱动的原子的单电离[J]. *光学学报*, 2018, 38(6): 0602001.
- [41] Becker A, Faisal F H M. Correlated Keldysh-Faisal-Reiss theory of above-threshold double ionization of He in intense laser fields [J]. *Physical Review A*, 1994, 50(4): 3256-3264.
- [42] Milošević D B. Strong-field approximation for ionization of a diatomic molecule by a strong laser field[J]. *Physical Review A*, 2006, 74(6): 063404.
- [43] Cade P E, Wahl A C. Hartree-Fock-Roothaan wave functions for diatomic molecules: II. First-row homonuclear systems A_2 , A_2^+ , and A_2^* [J]. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 1974, 13(4): 339-389.
- [44] Telnov D A, Chu S I. Effects of electron structure and multielectron dynamical response on strong-field multiphoton ionization of diatomic molecules with arbitrary orientation: an all-electron time-dependent density-functional-theory approach[J]. *Physical Review A*, 2009, 79(4): 041401.
- [45] Walker B, Sheehy B, DiMauro L F, et al. Precision measurement of strong field double ionization of helium[J]. *Physical Review Letters*, 1994, 73(9): 1227-1230.
- [46] Hankin S M, Villeneuve D M, Corkum P B, et al. Intense-field laser ionization rates in atoms and molecules [J]. *Physical Review A*, 2001, 64(1): 013405.
- [47] Becker A, Plaja L, Moreno P, et al. Total ionization rates and ion yields of atoms at nonperturbative laser intensities [J]. *Physical Review A*, 2001, 64(2): 023408.