

强飞秒激光场中双原子分子 N_2 和 O_2 波长依赖的非顺序双电离

林志阳*, 陈优

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 在近红外波段强飞秒激光场中从实验上系统地研究了稀有气体原子[氙(Xe)和氩(Ar)]和双原子分子[具有不同分子结构对称性的氧气(O_2)和氮气(N_2)]在不同波长(800 nm、1250 nm 和 1500 nm)下的单电离和非顺序双电离(NSDI)。分析发现,与Xe、Ar和 N_2 相比, O_2 的NSDI产率随光强变化的曲线中平坦区的斜率增加更明显,而所有气体平坦区的NSDI产率的波长标定律与半经典“三步”模型所预测的结果存在差异。进一步的研究发现 O_2 的NSDI产率及其对照原子Xe相比在所有波长下都被抑制了,且抑制程度随波长的增加而变得更明显;而 N_2 的NSDI产率在短波长(800 nm)下和Ar的基本一样,但在长波长下也被抑制。这些实验结果可用于完善分子NSDI的波长标定律和研究分子结构对其NSDI行为的影响,表明可以通过从宏观上调控波长来实现对涉及多电子关联效应的分子NSDI的超快控制。

关键词 原子与分子物理学; 强飞秒激光场; 双原子分子; 波长依赖; 非顺序双电离

中图分类号 O561.1; O561.4

文献标志码 A

DOI: 10.3788/AOS202242.1302001

Wavelength-Dependent Non-Sequential Double Ionization of Diatomic Molecules N_2 and O_2 in Intense Femtosecond Laser Fields

Lin Zhiyang*, Chen You

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

Abstract Experiments are conducted to systematically study the single ionization and non-sequential double ionization (NSDI) of rare gas atoms (Xe and Ar) and diatomic molecules (O_2 and N_2 with different symmetry of molecular structure) in near-infrared intense femtosecond fields with various wavelengths of 800 nm, 1250 nm, and 1500 nm. It is found that, compared with Xe, Ar, and N_2 , O_2 has a higher yield of NSDI as the slope of the flat region in the changing curve of light intensity increases. The wavelength scaling of the yield of NSDI in the flat region for all gases deviates from the prediction of the semiclassical "three-step" model of ionization. Furthermore, we find that the yield of NSDI of O_2 is significantly suppressed compared with that of its companion atom Xe in all wavelengths, and the suppression becomes more pronounced as the wavelength increases. For the yield of NSDI of N_2 , however, it is almost the same as that of its companion atom Ar at a short wavelength of 800 nm, but it is also suppressed at long wavelengths. These experimental findings can be used to improve the wavelength scaling of molecular NSDI and identify the influence of molecular structure on NSDI of molecules, which indicates that the ultrafast control of molecular NSDI involving multi-electron correlation effects can be achieved by macroscopically tuning the wavelength.

Key words atomic and molecular physics; intense femtosecond laser field; diatomic molecules; wavelength dependence; non-sequential double ionization

1 引言

原子的非顺序双电离(NSDI)涉及丰富的电子-电

子关联效应,是强场物理领域的研究热点之一^[1]。原子(包括所有的稀有气体原子^[2-6]和碱土金属原子^[7-10])的NSDI在实验和理论方面都得到了深入研究。与原

收稿日期: 2022-01-24; 修回日期: 2022-02-27; 录用日期: 2022-03-07

基金项目: 国家自然科学基金(11504116)

通信作者: *suthing@hqu.edu.cn

子相比,分子具有核中心、分子轴、转动和振动等多自由度的复杂结构,在强激光场中呈现出丰富的电离动力学^[11-12],可用于多个前沿研究领域,包括对分子内层轨道成像^[13-15]和阿秒时间尺度操控电子行为^[16-17]等。分子 NSDI 自然也成为了一个值得研究的重要问题^[18-30]。目前,被普遍接受的分子 NSDI 的物理机制是半经典“三步”模型所描述的“重碰撞”过程^[31]:第一个电子从被激光场扭曲的势垒中隧穿后,在激光场中被加速并可能返回母核附近与之发生非弹性碰撞,导致第二个电子被电离。

分子结构对其电离行为影响最直接的体现是氧气(O_2)分子与其电离势相近的对照原子[氙(Xe)]相比出现的单电离(SI)抑制现象,而该现象并未在氮气(N_2)分子与其对照原子[氩(Ar)]中出现^[4,18,32],其物理机制被归结为分子结构和基态波函数对称性的影响^[32-34]: O_2 最高占据分子轨道(HOMO)为反键对称的,从不同氧原子核中心电离出的电子波包发生相消干涉效应而出现电离抑制;而 N_2 分子基态波函数是成键对称的,不会发生电离抑制。进一步地,人们在中红外波段激光场中发现 O_2 分子单电离抑制现象呈现明显的波长依赖特性,这表明可以通过调谐波长来控制分子结构效应的影响^[35-37]。

事实上,调谐波长也可以有效地控制 NSDI 过程。根据“重碰撞”物理图像,第一个电子在激光场中传播的时间正比于波长,因此“重碰撞”概率随波长的上升而降低^[31]。另一方面,电子在激光场中获得的能量随波长的增加而增加,这将增加碰撞直接电离(IDI)概率,从而导致 NSDI 概率也降低^[38-39]。总体上来看,NSDI 概率将会随波长的增大而降低,这在最近中红外波段稀有气体原子和碱土金属原子 NSDI 实验中都得到了证实^[9,10,38,40-41]。进一步的研究表明,相关实验所得到的原子 NSDI 产率随波长的变化关系与“三步”模型预测的结果存在差异,这被认为是由多次重散射的“库仑”散焦作用^[41]以及 IDI 和原子重碰撞激发截面^[9,10,25,38-40]对 NSDI 的影响导致的。这些研究使得原子 NSDI 对波长的依赖关系及其物理机制逐渐清晰。然而,对双原子分子 NSDI 的研究一般都只在同一波长(如 800 nm)下进行且重点关注与分子结构有关的双中心干涉效应的影响^[18,24-26,42-44],而波长如何影响具有不同结构分子的 NSDI 仍不明确,也鲜见相关实验报道。因此,对不同分子 NSDI 的波长依赖关系进行详细的实验研究显得十分必要,这也将有助于实现对分子电子关联效应的超快控制,并完善相关物理图像。

本文工作借助波长可调谐的光参量放大系统,从实验上系统地研究了具有不同对称性结构的双原子分子 O_2 和 N_2 与其对照原子 Xe 和 Ar 在近红外波段激光场中的 NSDI。根据所测得的不同波长下 NSDI 和 SI 产量及二者之间比值(简称 NSDI 产率)随光强的变化曲线,Xe、Ar 和 N_2 的 NSDI 产率随光强和波长的变化是类似的,但是 O_2 分子 NSDI 曲线中平坦区的斜率变大,即代表典型 NSDI 特征的“膝盖”结构变模糊了。

进一步的对比分析发现,与 Xe 相比,在不同波长下 O_2 的 NSDI 产率受到了抑制且随波长的增加被抑制得更明显;而 N_2 的 NSDI 产率在短波长时与 Ar 的相当,但在长波下也呈现出随波长的增加而更明显的抑制现象。

2 实验装置

图 1 是本实验用于测量离子产量所用的飞行时间谱仪和激光系统及相关光路示意图。用钛宝石激光系统(Legend, Coherent Inc., 美国)输出的中心波长为 800 nm、脉宽为 40 fs、质量因子 M^2 值为 1.1、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 Ltd., 立陶宛),使其输出波长连续可调的中红外波段(1100~2400 nm)激光脉冲。波长为 1250 nm 的单脉冲的最大能量为 0.5 mJ,脉宽为 90 fs, M^2 值为 1.3;而 1500 nm 的立陶宛单脉冲的最大能量为 0.5 mJ,脉宽为 90 fs, M^2 值为 1.2。实验中,利用直径为 150 mm 的圆形中性渐变衰减片调节脉冲能量,再用平凸透镜将光聚焦到真空腔内。腔内背景真空气压在三级系统作用下优于 10^{-6} Pa,这可有效避免背景气体的影响。相应地,目标气体经精密微调阀充入腔内,并由其精确调节气压。在具体实验过程中,每次只充入一种目标气体,并由高分辨真空规管准确测得其气压值。同时,通过优化控制使激光功率误差小于 5%,这不会影响实验结果和相应的对比分析。

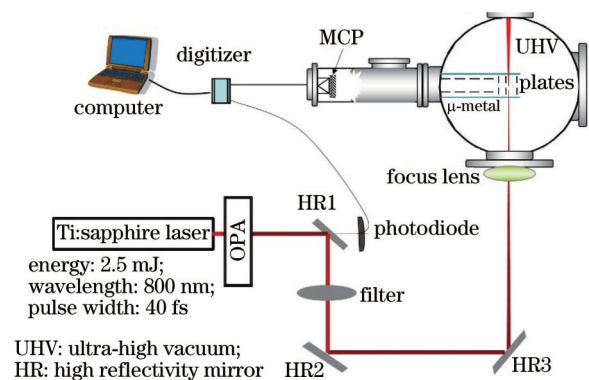


图 1 实验装置及光路示意图

Fig. 1 Schematic diagram for experimental setup and light path

聚焦进腔内的激光脉冲在作用区与目标气体发生相互作用,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),并由其放大后转化为电信号,电信号由嵌入在计算机内的模数转换卡采集到;而离子则需先由高电导率电场板加速后再自由飞行到 MCP,之后被采集到。所用的电场板材质为铜,其具有较高电导率,可及时将聚集在其上面的电子导入地里。为了避免饱和效应和过高计数影响数据的准确性,根据不同光强下所得离子信号大小调节相应的气压。在考虑了分子泵对不同气体的抽速和真空规管对不同气体的探测效率后,对所测得气体

气压进行校准以获得其真实气压值。为了方便比较不同波长下的离子产量,利用测得的离子计数值对相应的激光脉冲数和气压值进行平均。在实验过程中,根据离子产量的高低调整相应的数据采集时间,并采用多次重复测量,以保证数据的重复性和准确性。

总体上,本套实验系统对离子飞行时间的测量分辨率可达 1 ns,能很好地分辨不同价态的离子以及不同同位素的离子且离子信号稳定可靠。通过对比实验所测得的 Xe 原子单电离饱和光强和 ADK 理论模型(由 Ammosov、Delone 和 Krainov 建立)^[45]计算的结果,标定不同波长激光脉冲的光强^[46]。详细的实验装置和测量过程可参见文献[9-10, 35-37]。

3 结果和讨论

图 2(a)~(c)给出的是不同波长下 Xe^+ 和 Xe^{2+} 产量随光强的变化曲线。可以看出,在所有波长中, Xe^+ 产量随光强的增大而快速上升,与光强 I 接近满足 $I^{3/2}$ 的指数关系,之后上升趋势变缓,到达饱和光强^[3,46]区域后基本不再随光强的变化而变化。而从图 2(a)可以看到,波长为 800 nm 时, Xe^{2+} 产量在光强小于单电离饱和光强(约为 $200 \text{ TW}/\text{cm}^2$)时随光强的增大急剧

上升;当光强介于单电离饱和光强和双电离饱和光强之间(即所谓的平坦区)时, Xe^{2+} 产量随光强的增大而上升的趋势变缓;当光强接近双电离饱和强度时, Xe^{2+} 产量又急剧增加;最后,随着光强继续增大, Xe^{2+} 和 Xe^+ 的产量相当。整体来看, Xe^{2+} 产量随光强的变化曲线出现了 NSDI 的典型特征——“膝盖”结构^[2]。该特征在波长为 1250 nm 和 1500 nm 时都被测量到,如图 2(b)、(c)所示。仔细对比不同波长下的 Xe^{2+} 与 Xe^+ 产量,可以发现 Xe^{2+} 与 Xe^+ 的产量差额随着波长的增加而明显增加。为了直观对比,在整个光强范围内将两种离子的产量直接相除,即获得不同波长下相应的 NSDI 产率随光强的变化曲线,如图 2(d)所示。图 2(d)插图展示的是放大后的平坦区。可以看出,平坦区内各波长下的 Xe 原子 NSDI 产率基本不随光强的变化而改变。与之不同,平坦区 Xe 原子 NSDI 产率随着波长的增加而下降了,这与“三步”模型预测的结果相符。但是,在平坦区同一 U_p (U_p 为有质动力势,与光强和波长的平方成正比)对应的光强处, Xe 原子的 NSDI 产率与波长的定量关系与“三步”模型所预测的反比于波长的结果有所不同,这被认为是源于多次重碰撞引起的散焦作用的结果^[41]。

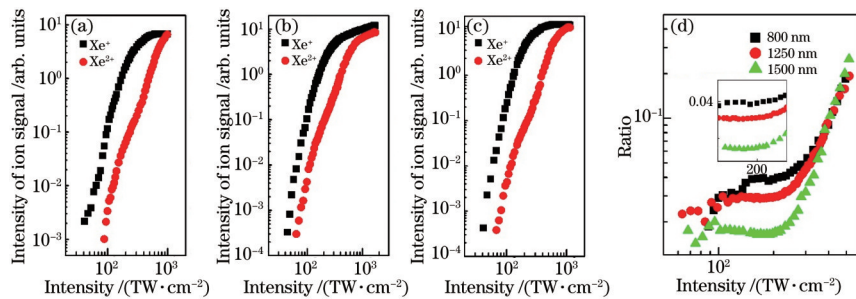


图 2 不同波长下 Xe^+ 和 Xe^{2+} 产量随光强的变化曲线以及不同波长下 Xe 的 NSDI 产率随光强的变化。(a) 800 nm、(b) 1250 nm 和 (c) 1500 nm 下 Xe^+ 和 Xe^{2+} 产量随光强的变化;(d) 不同波长下 Xe 的 NSDI 产率(即 Xe^{2+} 与 Xe^+ 产量比)随光强的变化曲线(插图为放大的平坦区)

Fig. 2 Yields of Xe^+ and Xe^{2+} as functions of laser intensity for various wavelengths, and ratio of NSDI field as a function of laser intensity of Xe for various wavelengths. Yields of Xe^+ and Xe^{2+} as functions of laser intensity for (a) 800 nm, (b) 1250 nm, and (c) 1500 nm; (d) ratio of NSDI field (i. e., ratio of Xe^{2+} yield to Xe^+ yield) as a function of laser intensity of Xe for various wavelengths (inset is enlarged flat region)

为了与 Xe 对比,选取电离势更高的 Ar 来开展类似的研究,所得到的实验结果如图 3 所示。图 3(a)给出了波长 800 nm 下 Ar^+ 产量随光强的变化曲线,可以得到其单电离饱和光强约为 $400 \text{ TW}/\text{cm}^2$,高于 Xe,这表明饱和光强随电离势的增大而变大了。但电离势的增大不影响 Ar^{2+} 产量随光强的变化曲线,其也出现与 Xe 一样代表 NSDI 典型特征的“膝盖”结构。类似地,该结构也在其他波长(1250 nm 和 1500 nm)下的 Ar 双电离曲线中出现,表明不同种类原子 NSDI“膝盖”结构的出现不依赖于波长是一个普遍现象。另一方面,从图 3(a)~(c)可以看出, Ar^{2+} 和 Ar^+ 的产量差额也随着波长的增加而发生改变。这可以从图 3(d)(特别是其中的插图)给出的不同波长下 Ar 的 NSDI 产率随光强的变化曲线中直观对比看出。很明显地,平坦区 Ar

的 NSDI 产率随着波长的增加而下降,其随波长的定量变化关系与 Xe 原子的一样。这是除 Xe 原子外^[41],将多次重碰撞引起的散焦作用考虑进“三步”模型以更好描述原子 NSDI 的又一有力实验证据。总体上来看,具有闭壳层结构的稀有气体原子的 NSDI 呈现明显的波长依赖关系,这为宏观上实现对原子的电子-电子关联效应的超快调控提供了一种简单有效的方法。

为对原子进行对比,将相关研究进一步推进到具有复杂结构的分子。首先,选择了 Xe 原子的对照分子 O_2 。图 4(a)~(c)给出的是不同波长下 O_2^+ 和 O_2^{2+} 产量随光强的变化曲线。从图 4(a)可以看出,波长为 800 nm 时 O_2^+ 产量在低光强部分都随着光强的上升而快速上升,随着光强达到饱和光强,其产量上升趋势变缓,之后基本不再随光强的变化而上升,这与原子中出

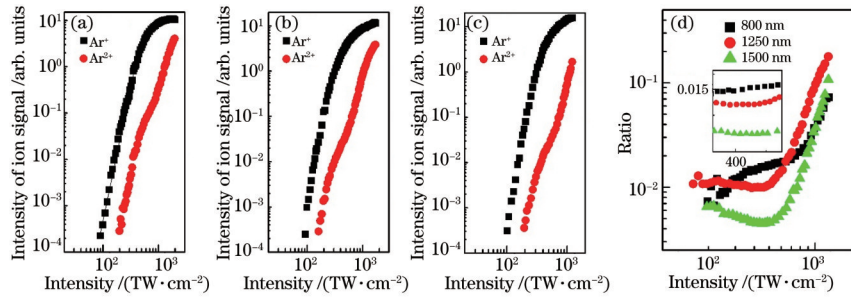


图 3 不同波长下 Ar⁺和 Ar²⁺产量随光强的变化曲线以及不同波长下 Ar 的 NSDI 产率随光强的变化曲线。(a) 800 nm、(b) 1250 nm 和 (c) 1500 nm 下 Ar⁺和 Ar²⁺产量随光强的变化曲线;(d)不同波长下 Ar 的 NSDI 产率随光强的变化曲线(插图为放大的平坦区)
Fig. 3 Yields of Ar⁺ and Ar²⁺ as functions of laser intensity for various wavelengths and ratio of NSDI field for Ar as a function of laser intensity for various wavelengths. Yields of Ar⁺ and Ar²⁺ as functions of laser intensity for (a) 800 nm, (b) 1250 nm, and (c) 1500 nm; (d) ratio of NSDI field for Ar as a function of laser intensity for various wavelengths (inset is enlarged flat region)

现的情况类似;而 O₂²⁺ 产量在到达饱和之前,其随光强的变化曲线基本与 O₂⁺ 的平行,很显然地其“膝盖”结构不如 Xe 中的明显了。这可以从图 4(d) 中 800 nm 的 O₂ 的 NSDI 产率随光强的变化曲线中直观地看出:与 Xe 原子相比[图 2(d)],平坦区 O₂ 的 NSDI 产率曲线的斜率变大了。这可以从图 4(d) 插图所示的放大后的平坦区更明显地看出:在 800 nm 下 O₂ 分子平坦区的 NSDI 产率随着光强的增大而增加。这里需要说明一下解离过程产生的与亚稳态 O₂²⁺ 具有相同荷质比的 O⁺ 对实验结果的影响。在实际过程中, O₂⁺ 可能解离形成 O⁺+O[标记为 O(1,0)],而 O₂²⁺ 可能解离形成 O⁺+O⁺[标记为 O(1,1)]^[11,47]。O(1,0) 产生的概率非

常小,基本不影响实验所测的 O₂²⁺ 产量,而 O(1,1) 的产量较大,使得所测的 O₂²⁺ 产量可能包含 O(1,1)。然而,考虑到人们利用符合测量技术测得 O(1,1) 与 O₂⁺ 的产量比值随光强的增大而增大^[47],而实验所得到 O₂²⁺ 与 O₂⁺ 的产量比值也呈现类似的光强依赖关系。因此,可以认为实验所测得的平坦区 O₂ 的 NSDI 产率曲线斜率变大不受解离过程的影响。此外,实验中没有测到其他解离通道[如 O(2,0)]以及库仑爆炸产生的相关离子,因此这些过程也不会影响测量结果。当然,O(1,1) 和 O₂²⁺ 与 O₂⁺ 的产量比值随光强的变化曲线斜率的定量差异,还需利用符合测量技术来细分。

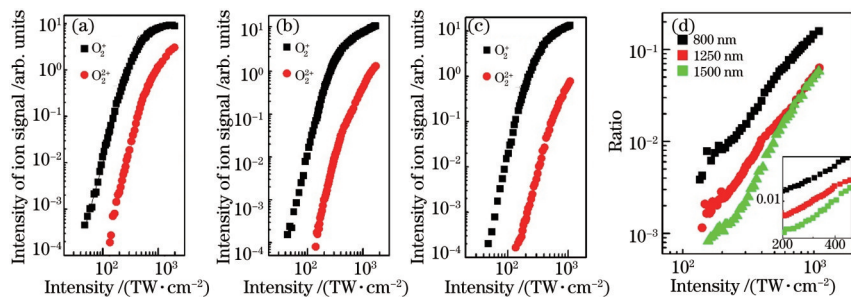


图 4 不同波长下 O₂⁺和 O₂²⁺产量随光强的变化曲线以及不同波长下 O₂ 的 NSDI 产率随光强的变化曲线。(a) 800 nm、(b) 1250 nm 和 (c) 1500 nm 下 O₂⁺和 O₂²⁺产量随光强的变化曲线;(d)不同波长下 O₂ 的 NSDI 产率随光强的变化曲线(插图为放大的平坦区)
Fig. 4 Yields of O₂⁺ and O₂²⁺ as functions of laser intensity for various wavelengths and ratio of NSDI for O₂ as a function of laser intensity for various wavelengths. Yields of O₂⁺ and O₂²⁺ as functions of laser intensity for (a) 800 nm, (b) 1250 nm, and (c) 1500 nm; (d) ratio of NSDI for O₂ as a function of laser intensity for various wavelengths (inset is enlarged flat region)

进一步地,从图 4(b) 和 (c) 给出的其他波长 (1250 nm 和 1500 nm) 下的结果可以看出,长波长下 O₂⁺ 产量随光强的变化曲线呈现出的趋势与 800 nm 下的类似,但是 O₂⁺ 和 O₂²⁺ 产量差额随着波长的增加却逐渐增大了。同样地,从图 4(d) 可以直观地得到 O₂ 分子 NSDI 产率随波长的增加而下降了,这表明 O₂ 分子的 NSDI 与 Xe 原子的类似,也定性地符合“三步”模型所预测的结果。更重要的是,在 1250 nm 和 1500 nm 下的平坦区的 NSDI 产率随光强的变化曲线与 800 nm 的基本平行[参见图 4(d) 插图],表明与 Xe 或者 Ar 相比 O₂ 的 NSDI 的平坦区斜率变大的现象在所有波长中都

出现[图 4(d) 插图和图 2(d)、3(d) 插图],这是一个普遍现象。

为了研究不同分子结构对其 NSDI 的影响,选择具有与 O₂ 相反基态波函数对称性的 N₂ 来进行研究,相关结果如图 5 所示。N₂ 的基态波函数是成键对称的,其单电离概率与其对照原子 Ar 的接近,即其单电离不会被抑制,表现出类原子特性^[32,35-36]。从图 5(a)~(c) 可以看出,N₂ 分子在所有波长下的单电离概率随光强的变化趋势与其对照原子 Ar 以及 Xe 和 O₂ 的类似。考虑到 N₂ 的电离势比 O₂ 的高,其单电离饱和光强也相应地比 O₂ 的强,这可以从相应的单电离曲线看出。通过

对比双电离曲线,可以发现在单电离饱和光强前后 N_2^+ 和 N_2^{2+} 的产量差额随波长的增加也变大了,且其 NSDI 曲线出现明显的“膝盖”结构,呈现出类原子 NSDI 特征。这可以从图 5(d) (特别是其中的插图) 给出的不同波长下 N_2 的 NSDI 产率随光强的变化曲线中直观地看出:在平坦区内,不同波长下的 N_2 分子 NSDI 产率基本不随光强的变化而改变,这与 Xe 和 Ar 的类似[图 2(d) 和图 3(d) 插图]。与 O_2^{2+} 类似, N_2^{2+} 可能会解离成 $N^+ + N^+$ [标记为 $N(1,1)$], 进而影响实验所测得的 N_2^{2+} 产量。但是, $N(1,1)$ 和亚稳态 N_2^+ 与 N_2^+ 的产量比值都基本不随光强的变化而变化,因此 $N(1,1)$ 和 N_2^+ 被认为源于同一分子复合物且其电离机制是一样的^[18,47], 即解离过程不会影响 N_2 分子的 NSDI。因此,实验所测得的平坦区 N_2 分子 NSDI 产率与光强的依赖关系不会受解离过程的影响。进一步地,从

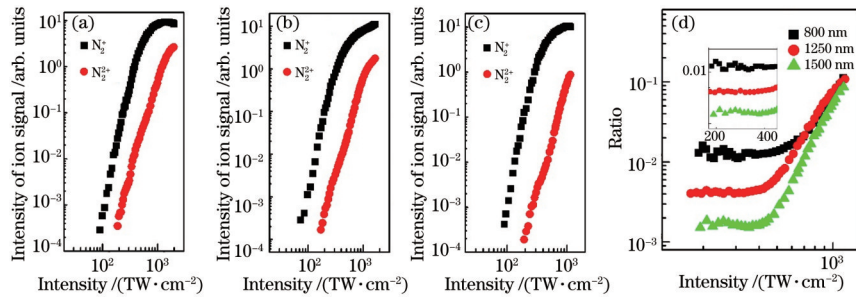


图 5 不同波长下 N_2^+ 和 N_2^{2+} 产量随光强的变化曲线以及不同波长下 N_2 的 NSDI 产率随光强的变化曲线。(a) 800 nm、(b) 1250 nm 和 (c) 1500 nm 下 N_2^+ 和 N_2^{2+} 产量随光强的变化曲线; (d) 不同波长下 N_2 的 NSDI 产率随光强的变化曲线 (插图为放大的平坦区)

Fig. 5 Yields of N_2^+ and N_2^{2+} as functions of laser intensity for various wavelengths and ratio of NSDI for N_2 as a function of laser intensity for various wavelengths. Yields of N_2^+ and N_2^{2+} as functions of laser intensity for (a) 800 nm, (b) 1250 nm, and (c) 1500 nm; (d) ratio of NSDI for N_2 as a function of laser intensity for various wavelengths (inset is enlarged flat region)

另一方面,图 5(d) 中给出的平坦区 N_2 的 NSDI 产率曲线的斜率与原子 (包括 Xe 和 Ar) 的类似,但与 O_2 的差异明显。后者的斜率明显变大且在所有波长下都是如此。考虑到 N_2 的基态波函数是成键对称的,而 O_2 的基态波函数是反键对称的,因此,可以认为平坦区 O_2 的 NSDI 产率曲线的斜率变大与分子结构对称性有关。 O_2 反键对称的基态波函数使得从不同氧核中心电离的电子波包之间会发生相消干涉,从而降低了单电离概率^[32,35-36],但是在单电离饱和区域, O_2 的 NSDI 还是主要由返回电子与母核的单次重碰撞甚至多次重碰撞引起^[41],而光强越强,返回电子的动能越大,因而电子与非对称分布的 O_2 的双核中心碰撞概率上升,从而使 NSDI 产率随光强的变强而上升。另一方面,考虑到分子结构和能态的复杂性,其双电离也可能受共振增强电离^[27,48]、分子取向^[23]、库仑作用对称性^[49] 以及前面所述分子解离过程^[4,11,18,21,47] 的影响,而各种机制对平坦区 O_2 的 NSDI 产率曲线斜率的影响程度如何以及其随波长的变化呈现出什么样的规律,还有待理论方面的进一步细化研究。

为了进一步研究原子和分子 NSDI 的差异,直接对比 $O_2(N_2)$ 与其对照原子 Xe(Ar) 的 NSDI 产率,如图 6 所示。图 6(a) 给出的是波长为 800 nm 时 O_2 和 Xe 的

图 5(d) 中也可以看出,平坦区 N_2 的 NSDI 产率随波长的增加而下降了,这也定性地符合“三步”模型的预测结果。但是,不同波长下平坦区 N_2 的 NSDI 产率之间的差额与 Xe [图 2(d)] 和 Ar [图 3(d)] 的相比变大了,即 N_2 分子的 NSDI 呈现出与原子不一样的波长依赖关系,这表明有其他机制影响着 N_2 的 NSDI,其形成原因可能来源于 N_2 具有对称的双核中心且基态波函数也是反键对称的,其 IDI 随波长的增加而增加的程度比原子的更大,导致其 NSDI 产量下降得更快^[38-39]。此外,解离通道 $N(1,1)$ 可能呈现出与亚稳态 N_2^+ 不一样的波长依赖关系,从而使得 NSDI 产率随波长的变化关系与原子不一样。这些还有待从理论上系统地研究 N_2 的 NSDI 波长标定律,进而与相关实验结果进行对比,以解释其形成机制,相关研究工作正在开展中。

NSDI 产率随光强的变化曲线,可以看出在整个光强范围内 O_2 的 NSDI 产率明显低于 Xe 的,表明 O_2 的 NSDI 产率被抑制了,这与早期的实验结果一致^[18],也符合相关的理论预测^[24,42]。仔细对比可以看出二者产率差额呈现出明显的光强依赖关系:在低光强区域,二者的差额随着光强的增强而变小,到平坦区截止时达到最小值,之后随着光强的增强而变大。当波长上升至 1250 nm 时,如图 6(b) 所示, O_2 与 Xe 的 NSDI 产率差额呈现出与 800 nm 类似的光强依赖关系,但是很明显,该差额与 800 nm 的相比变得更大了,即 O_2 的 NSDI 在长波长时被抑制的程度更大。这可以从图 6(c) 给出的波长为 1500 nm 时 O_2 和 Xe 的 NSDI 产率曲线进一步看出,二者之间的差额比前二个波长更大了。因此,从整体上来看, O_2 的 NSDI 呈现出与光强和波长有关的抑制现象。这主要源于 O_2 双中心干涉效应和重碰撞过程对其 NSDI 的共同影响:前者会随着光强的增加而使 O_2 单电离被抑制的程度降低^[35],导致其与 Xe 的 NSDI 产率之间的差额随光强的增强而变小;后者则表现为波长上升导致 O_2 的“重碰撞”概率下降得比 Xe 的更明显^[24]。另一方面,考虑到随着波长上升, O_2 单电离抑制减弱^[35],但 O_2 与 Xe 的 NSDI 差额随波长的增加却增加了,因此可以认为重碰撞过程主导着 O_2

的 NSDI,使其呈现相应的光强和波长的依赖关系。

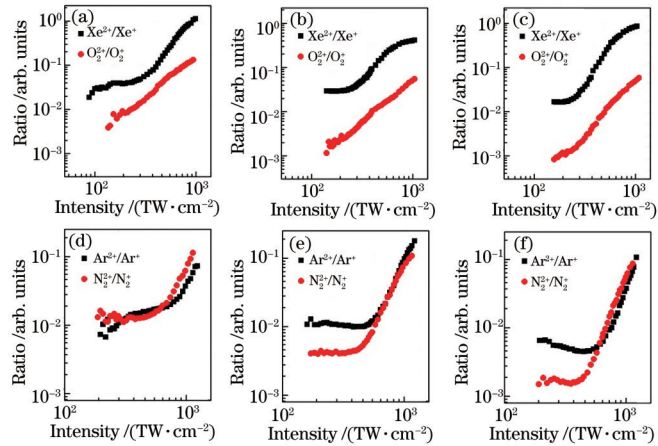


图 6 不同波长下 Xe 和 O₂ 的 NSDI 产率随光强的变化曲线以及 Ar 和 N₂ 的 NSDI 产率随光强的变化曲线。(a) 800 nm、(b) 1250 nm 和 (c) 1500 nm 下实验测得的 Xe 和 O₂ 的 NSDI 产率随光强的变化曲线;(d) 800 nm、(e) 1250 nm 和 (f) 1500 nm 时实验测得的 Ar 和 N₂ 的 NSDI 产率随光强的变化曲线

Fig. 6 Ratios of NSDI fields of Xe and O₂ as functions of laser intensity and ratios of NSDI field of Ar and N₂ as functions of laser intensity for different wavelengths. Ratios of NSDI fields of Xe and O₂ as functions of laser intensity for (a) 800 nm, (b) 1250 nm, and (c) 1500 nm; ratios of NSDI fields of Ar and N₂ as functions of laser intensity for (d) 800 nm, (e) 1250 nm, and (f) 1500 nm

特别地,与 O₂ 不同, N₂ 分子在 800 nm 波长下的 NSDI 产率与其对照原子 Ar 相比差额较小,如图 6(d) 所示。在平坦区,二者的 NSDI 产率基本一致。在高光强部分, N₂ 的 NSDI 产率超过 Ar 的,这可能源于光强较强时,除了 N₂⁺ 的 HOMO 轨道,其内价轨道电子也开始被电离并对 NSDI 产率有贡献了^[43],并且光强较大时分子的共振对电离效应的增强较为明显^[27,48]。另一方面,当波长增加到 1250 nm 时,如图 6(e) 所示,在平坦区, N₂ 的 NSDI 产率低于 Ar 的,且二者的差额基本不随光强的变化而变化,但在平坦区之后,二者的产率却基本一致。类似地,在 1500 nm 时,如图 6(f) 所示,在平坦区, N₂ 的 NSDI 产率也低于 Ar 的,且两者之间的差额比 1250 nm 时的要大,而在高光强部分的差异较小。总体来看, N₂ 的平坦区 NSDI 产率在长波长下也出现被抑制的现象。这是首次实验测得的结果,其可能源于 N₂ 的电离机制随波长的增加由多光子电离变为隧穿电离^[50],导致共振对电离效应的增强在长波长下变弱。另一方面, N₂ 的 IDI 和重碰撞激发截面随波长的增加而增加的趋势较显著^[9-10,38-40],这使得其 NSDI 产率随波长的增加而减少得更多。特别地,在文献^[10]中,重碰撞激发电离和电子波包扩散效应被认为共同影响着碱土金属原子 Mg 的波长依赖的 NSDI。显然地,前者同样也会影响具有更丰富能级的 N₂ 和 O₂ 的 NSDI,而与后者则不同,从双原子分子不同核中心电离的电子波包之间的干涉效应是影响分子 NSDI 的另一关键效应。因此,总体而言,可以认为在重碰撞激发电离和分子结构效应的共同作用下, N₂ 和 O₂ 的 NSDI 呈现光强和波长的依赖关系。当然,对这些机制贡献程度大小的定量分析还有待理论方面的进一步研究。

4 结 论

在近红外波段强激光场中从实验上系统地研究了稀有气体原子 Xe 和 Ar 以及双原子分子 O₂ 和 N₂ 在不同波长(800 nm、1250 nm 和 1500 nm)下的单电离和非顺序双电离的离子产量随光强的变化关系,发现在所有波长中, Xe、Ar 和 N₂ 的双电离曲线都出现明显的“膝盖”结构,但 O₂ 双电离曲线的“膝盖”结构较不明显,即平坦区 O₂ 的 NSDI 产率曲线的斜率变大了。通过比较不同波长下平坦区的 NSDI 产率,发现所有气体的 NSDI 产率都随波长的增加而下降,这定性符合“三步”模型的预测结果,但其定量的波长标定律与理论上存在差异。进一步对比分子与其对照原子的 NSDI 产率,发现 O₂ 的 NSDI 产率和 Xe 的相比被抑制了,且被抑制的程度随波长的增加而增大;而 N₂ 的 NSDI 产率在短波长下和 Ar 的基本一样,但在长波长下也被抑制。这些实验发现可作为研究分子 NSDI 波长标定律的重要参考数据,也是分子结构对称性对其 NSDI 影响的有力实验证据,表明可以通过宏观上调控波长来实现对涉及多电子关联效应的分子 NSDI 过程的超快控制。

致谢 感谢中国科学院精密测量科学与技术创新研究院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的技术支持。

参 考 文 献

- [1] 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.

- [2] 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.
- [3] 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.
- [4] Talebpour A, Chien C Y, Chin S L. The effects of dissociative recombination in multiphoton ionization of O_2 [J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 1996, 29(18): L677-L680.
- [5] Larochelle S, Talebpour A, Chin S L. Non-sequential multiple ionization of rare gas atoms in a Ti: Sapphire laser field[J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 1998, 31(6): 1201-1214.
- [6] Goreslavskii S P, Popruzhenko S V, Kopold R, et al. Electron-electron correlation in laser-induced nonsequential double ionization[J]. *Physical Review A*, 2001, 64(5): 053402.
- [7] Li N, Zhou Y M, Ma X M, et al. Correlated electron dynamics in strong-field nonsequential double ionization of Mg[J]. *The Journal of Chemical Physics*, 2017, 147(17): 174302.
- [8] 郑晓晓, 白丽华, 冯凤珍. 椭圆偏振强激光场中 Mg 原子的非次序双电离[J]. *激光与光电子学进展*, 2017, 54(8): 080201.
Zheng X X, Bai L H, Feng F Z. Non-sequential double ionization of magnesium atom in elliptically polarized strong laser field[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2017, 54(8): 080201.
- [9] Kang H P, Chen S, Wang Y L, et al. Wavelength-dependent nonsequential double ionization of magnesium by intense femtosecond laser pulses[J]. *Physical Review A*, 2019, 100(3): 033403.
- [10] Kang H P, Chen S, Chu W, et al. Nonsequential double ionization of alkaline-earth metal atoms by intense mid-infrared femtosecond pulses[J]. *Optics Express*, 2020, 28(13): 19325-19333.
- [11] Posthumus J H. The dynamics of small molecules in intense laser fields[J]. *Reports on Progress in Physics*, 2004, 67(5): 623-665.
- [12] 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.
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.
- [13] Itatani J, Levesque J, Zeidler D, et al. Tomographic imaging of molecular orbitals[J]. *Nature*, 2004, 432(7019): 867-871.
- [14] Meckel M, Comtois D, Zeidler D, et al. Laser-induced electron tunneling and diffraction[J]. *Science*, 2008, 320(5882): 1478-1482.
- [15] 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.
- [16] 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.
- [17] Nisoli M, Decleva P, Calegari F, et al. Attosecond electron dynamics in molecules[J]. *Chemical Reviews*, 2017, 117(16): 10760-10825.
- [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] Cornaggia C, Hering P. Nonsequential double ionization of small molecules induced by a femtosecond laser field [J]. *Physical Review A*, 2000, 62(2): 023403.
- [20] Guo C L, Gibson G N. Ellipticity effects on single and double ionization of diatomic molecules in strong laser fields[J]. *Physical Review A*, 2001, 63(4): 040701.
- [21] Prauzner-Bechcicki J S, Sacha K, Eckhardt B, et al. Nonsequential double ionization of molecules[J]. *Physical Review A*, 2005, 71(3): 033407.
- [22] Zeidler D, Staudte A, Bardon A B, et al. Controlling attosecond double ionization dynamics via molecular alignment[J]. *Physical Review Letters*, 2005, 95(20): 203003.
- [23] Li Y, Chen J, Yang S P, et al. Alignment effect in nonsequential double ionization of diatomic molecules in strong laser fields[J]. *Physical Review A*, 2007, 76(2): 023401.
- [24] Jia X Y, Fan D H, Li W D, et al. Nonsequential double ionization of nonaligned diatomic molecules N_2 and O_2 [J]. *Chinese Physics B*, 2013, 22(1): 013303.
- [25] Kübel M, Kling N G, Betsch K J, et al. Nonsequential double ionization of N_2 in a near-single-cycle laser pulse [J]. *Physical Review A*, 2013, 88(2): 023418.
- [26] Li Y, Yang S P, Chen J, et al. Non-sequential double ionization of diatomic molecules: alignment dependence of electron correlation[J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2014, 47(4): 045601.
- [27] 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.
- [28] Liu M M, Han M, Ge P P, et al. Strong-field ionization of diatomic molecules in orthogonally polarized two-color fields[J]. *Physical Review A*, 2018, 97(6): 063416.
- [29] Li S, Sierra-Costa D, Michie M J, et al. Control of electron recollision and molecular nonsequential double ionization[J]. *Communications Physics*, 2020, 3: 35.
- [30] Xu Q Y, Ben S, Sun Y, et al. Non-sequential double ionization of triatomic molecules OCS in intense laser fields[J]. *Chemical Physics Letters*, 2020, 747: 137326.
- [31] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization[J]. *Physical Review Letters*, 1993, 71(13): 1994-1997.
- [32] Muth-Bohm 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.
- [33] 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.
- [34] 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.
- [35] 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.
- [36] 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.
- [37] 林志阳, 林宝卿, 蒲继雄. 波长和偏振依赖的 O₂ 分子强激光场单电离[J]. *光学学报*, 2020, 40(8): 0802001.
Lin Z Y, Lin B Q, Pu J X. Wavelength- and polarization-dependent single ionization of O₂ in strong laser fields[J]. *Acta Optica Sinica*, 2020, 40(8): 0802001.
- [38] Gingras G, Tripathi A, Witzel B. Wavelength and intensity dependence of short pulse laser xenon double ionization between 500 and 2300 nm[J]. *Physical Review Letters*, 2009, 103(17): 173001.
- [39] Hao X L, Chen J, Li W D, et al. Quantum effects in double ionization of argon below the threshold intensity [J]. *Physical Review Letters*, 2014, 112(7): 073002.
- [40] DiChiara A D, Sistrunk E, Blaga C I, et al. Inelastic scattering of broadband electron wave packets driven by an intense midinfrared laser field[J]. *Physical Review Letters*, 2012, 108(3): 033002.
- [41] Wang Y L, Xu S P, Chen Y J, et al. Wavelength scaling of atomic nonsequential double ionization in intense laser fields[J]. *Physical Review A*, 2017, 95(6): 063415.
- [42] Jia X Y, Li W D, Fan J, et al. Suppression effect in the nonsequential double ionization of molecules by an intense laser field[J]. *Physical Review A*, 2008, 77(6): 063407.
- [43] Jia X Y, Li W D, Liu J, et al. Alignment-dependent nonsequential double ionization of N₂ in intense laser fields: the role of different valence orbitals[J]. *Physical Review A*, 2009, 80(5): 053405.
- [44] 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.
- [45] Ammosov M V, Delone N B, Krainov V P. Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field[J]. *Soviet Physics JETP*, 1986, 64(6): 1191-1194.
- [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] Guo C L, Li M, Nibarger J P, et al. Nonsequential double ionization of molecular fragments[J]. *Physical Review A*, 2000, 61(3): 033413.
- [48] 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.
- [49] Wu J, Meckel M, Voss S, et al. Coulomb asymmetry in strong field multielectron ionization of diatomic molecules [J]. *Physical Review Letters*, 2012, 108(4): 043002.
- [50] Keldysh L V. Ionization in field of a strong electromagnetic wave[J]. *Soviet Physics JETP*, 1965, 20(5): 1307-1314.