

## 原子强场双电离的关联电子动力学

周月明 and 陆培祥

Citation: 中国科学: 物理学 力学 天文学 **47**, 033005 (2017); doi: 10.1360/SSPMA2016-00365

View online: <http://engine.scichina.com/doi/10.1360/SSPMA2016-00365>

View Table of Contents: <http://engine.scichina.com/publisher/scp/journal/SSPMA/47/3>

Published by the [《中国科学》杂志社](#)

---

### Articles you may be interested in

[强激光场氦原子非序列双电离过程中光子动量分配](#)

中国科学: 物理学 力学 天文学 **44**, 1356 (2014);

[双电子原子系统内电子云的变化](#)

中国科学A辑: 数学 物理学 天文学 技术科学 **21**, 720 (1991);

[高阶过程对强场自电离的影响](#)

中国科学A辑: 数学 物理学 天文学 技术科学 **22**, 101 (1992);

[强场原子分子物理实验研究中的符合测量技术及其应用](#)

中国科学: 物理学 力学 天文学 **43**, 1206 (2013);

[强激光驱动的多阱系统动力学研究](#)

中国科学A辑: 数学 **27**, 1050 (1997);



# 原子强场双电离的关联电子动力学

周月明<sup>1</sup>, 陆培祥<sup>1,2\*</sup>

1. 华中科技大学物理学院, 武汉 430074

2. 武汉工程大学光学信息技术实验室, 武汉 430205

\*联系人, E-mail: [lupeixiang@hust.edu.cn](mailto:lupeixiang@hust.edu.cn)

收稿日期: 2016-08-22; 接受日期: 2016-10-08; 网络出版日期: 2016-12-27

国家自然科学基金资助项目(编号: 61405064, 11234004)

**摘要** 强激光与原子分子相互作用时,有许多由电子关联效应导致的新现象.强激光场驱动下的原子分子双电离,特别是非次序双电离,是一种典型的由电子关联作用引起的物理过程,为人们研究电子关联效应提供了一种重要途径.本文介绍了基于冷靶反冲离子动量成像谱仪技术对强场双电离关联电子微观动力学的研究现状,总结了不同激光强度下非次序双电离的微观动力学过程,进一步介绍了基于双色场对非次序双电离关联电子动力学过程控制的理论及实验研究.最近强场次序双电离实验观察到了许多与以前的理论模型预言相悖的物理现象,本文介绍了最近发展起来的次序双电离模型对这些现象的解释,以及此理论模型预言的次序双电离的有趣现象.

**关键词** 强场双电离, 电子关联, 飞秒激光, 超快动力学过程

**PACS:** 32.80.Rm, 31.90.+s, 32.80.Fb

## 1 引言

电子关联是自然界的一种普遍现象,它是诸多现象,如化学反应、超导现象等的本质原因.在原子分子层面研究电子关联,能够让人们从本质上认识物质世界.在强场激光作用下,原子分子的许多现象体现了显著的电子关联效应.强激光驱动的原子分子双电离,特别是非次序双电离,是一种典型的由电子关联效应导致的物理过程.对此过程的研究已经成为人们研究原子分子电子关联效应的重要途径.

在强激光场中,原子中的电子能够通过隧穿效应

电离.由于第一个电子的电离能比第二个电子低.因此,在激光脉冲的作用下第一个电子首先电离,第二个电子接着电离,这样的电离过程叫做强场次序双电离(Sequential Double Ionization, SDI).在强场次序双电离中,通常认为两个电离的电子没有关联作用,因而每一个电子的电离都可以用非常成熟的隧穿电离理论描述.实验测量发现,对于单电离,隧穿电离理论能够很好地重现实验观测到的电离产率与激光强度的关系,但是,对于线偏强激光驱动的双电离,基于次序双电离图像的隧穿理论计算得到的双电离产率比实验测量的结果低了几个数量级<sup>[1-3]</sup>.如图1(a)所示:实验测

**引用格式:** 周月明, 陆培祥. 原子强场双电离的关联电子动力学. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2017, 47: 033005  
Zhou Y M, Lu P X. Correlated electron dynamics in strong-field double ionization (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2017, 47: 033005,  
doi: [10.1360/SSPMA2016-00365](https://doi.org/10.1360/SSPMA2016-00365)

量的双电离产率与激光强度的关系曲线呈现“膝盖状”的双电离增强现象. 这种与次序双电离理论预言相悖的双电离被称作非次序双电离(Nonsequential Double Ionization, NSDI). 对于非次序双电离的机制, 最初主要有3种不同的解释: 抖动电离(Shake-Off Ionization)<sup>[2]</sup>、集体隧穿电离(Collective Tunneling Ionization)<sup>[4]</sup>以及再散射(Rescattering)<sup>[5,6]</sup>. 这3种电离机制在一定程度上都能解释双电离增强现象. 为了确定非次序双电离的机制, 人们测量了圆偏振激光驱动的双电离, 发现双电离增强现象消失<sup>[7]</sup>, 如图1(b)所示. 再散射的双电离机制对驱动激光的偏振特性非常敏感<sup>[5,6]</sup>: 再散射电离机制中, 第一个电子通过隧穿效应电离后, 在激光场的驱动下做震荡运动, 部分电子能够返回母离子, 与母离子发生非弹性碰撞, 将第二个电子碰撞电离, 或者碰撞激发, 然后再在激光场的作用下电离. 在圆偏光中, 隧穿电离的电子不能返回母离子, 从而不会出现双电离增强现象. 因此, 再散射的电离机制能够很好地解释双电离产率对驱动激光偏振特性的依赖关系. 而抖动以及集体隧穿电离不依赖于驱动激光的偏振特性. 因此, 此实验结果排除了抖动以及集体隧穿电离机制, 确定再散射过程为非次序双电离的物理机制. 利用冷靶反冲离子动量成像谱仪(Cold Target Recoil-Ion Momentum Spectroscopy, COLTRIMS)<sup>[8]</sup>, 测量了非次序双电离的离子动量谱, 发现沿激光偏振方向的动量分布呈现双峰状的结构<sup>[9,10]</sup>, 如图2(a)所示. 这种结构能够用再散射机制很好地解释. COLTRIMS还可以测量非次序双电离电子对的全维动量. 结果显示两电子沿激光偏振方向的末动量趋向于具有相同的方向, 体现强烈的关联现象<sup>[11]</sup>, 如图2(b)所示, 这种关联现象能够用再散射机制解释, 从而进一步确定了非次序双电离的再散射物理机制. 人们对非次序双电离研究的主要兴趣在于这种关联现象. 与束缚态原子分子的电子关联不同, 非次序双电离强烈的电子关联主要来源于再散射过程. 人们对非次序双电离电子关联动力学的研究, 主要集中在碰撞过程, 以及碰撞之后的关联电子动力学过程, 如碰撞过程中电子是如何交换能量的、交换了多少能量、碰撞后两电子是如何电离的等. 激光技术及COLTRIMS技术的发展, 可以高精度地测量电子对的全维动量<sup>[12]</sup>, 使得这些研究成为可能. 本文将介绍近期基于COLTRIMS实验, 强场双电离(包括次序、非次序双电离)关联电子微观动力学过程方面的

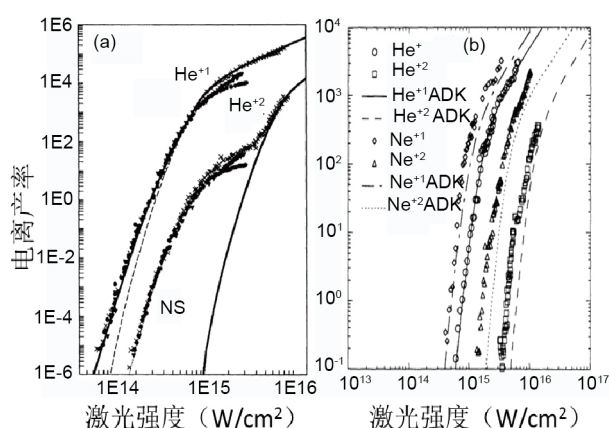


图1 (a) 线偏激光驱动的 $\text{He}^+$ ,  $\text{He}^{2+}$ 产率与激光强度的关系<sup>[3]</sup>; (b) 圆偏激光驱动的 $\text{He}^+$ ,  $\text{He}^{2+}$ ,  $\text{Ne}^+$ ,  $\text{Ne}^{2+}$ 产率与激光强度的关系<sup>[7]</sup>

Figure 1 (a) The yields of  $\text{He}^+$ ,  $\text{He}^{2+}$  as a function of intensity of the linearly polarized laser pulses<sup>[3]</sup>; (b) the yields of  $\text{He}^+$ ,  $\text{He}^{2+}$ ,  $\text{Ne}^+$ ,  $\text{Ne}^{2+}$  as a function of intensity of the circularly polarized laser pulses<sup>[7]</sup>.

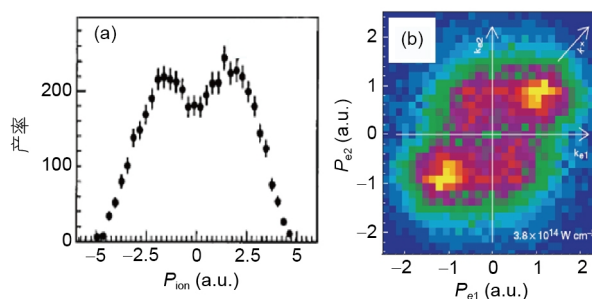


图2 (网络版彩图)(a) 氦原子强场双电离正二价离子沿激光偏振方向的动量分布<sup>[9]</sup>; (b) 氩原子强场双电离电子关联动量分布<sup>[11]</sup>,  $P_{e1}$ ,  $P_{e2}$ 分别表示两个电子沿激光偏振方向的动量  
Figure 2 (Color online) (a) Momentum distribution of  $\text{He}^{2+}$  along the laser polarized direction of the linear laser pulses<sup>[9]</sup>; (b) correlated electron momentum distribution for NSDI of Ar by linear laser pulses<sup>[11]</sup>,  $P_{e1}$ ,  $P_{e2}$  represent the momenta of the two electrons along the laser polarization direction.

研究进展.

## 2 强场非次序双电离的微观动力学过程

在非次序双电离的再散射过程中<sup>[6]</sup>, 第一个电子的最大碰撞能量约为 $3.2U_p$ , 其中 $U_p \propto I\lambda^2$ 为有质振动势能(Ponderomotive Energy),  $I$ 和 $\lambda$ 分别为激光强度和波长. 可以推断, 碰撞之后两电子的电离过程依赖于碰撞能量: 当第一个电子的碰撞能量大于第二个电子的电离能时, 第二个电子能够通过碰撞直接电离; 当第

一个电子的最大碰撞能量 $3.2U_p$ 小于第二个电子的电离能时, 碰撞不足以使第二个电子直接电离, 而只能使其激发, 激发的电子再在激光场的作用下电离. 因此, 非次序双电离的微观动力学过程对激光强度有很强的依赖. 根据第一个电子的碰撞能量与第二个电子的激发能、电离能的大小, 本文将激光强度分为低、中等和高激光强度3个区域. 第一个电子的碰撞能量小于第二个电子的激发能对应的激光强度为低激光强度; 约等于第二个电子的电离能对应的激光强度为中等激光强度; 远大于第二个电子的电离能对应的激光强度为高激光强度.

## 2.1 低激光强度下的非次序双电离

对于直接碰撞电离的非次序双电离, 实验测量到的电子关联动量谱呈现明显的正关联现象<sup>[11,12]</sup>, 即两个电子在激光偏振方向同向发射. 低激光强度下的双电离, 因为电离产率太低, 很难测量到足够多的非次序双电离事件来研究电子关联行为. 2008年, Liu等人<sup>[13]</sup>通过改进激光系统, 利用高重复频率(MHz)的激光测量了低激光强度下氩原子的非次序双电离, 发现了关联电子呈现背向发射现象(图3(a)). 这与高激光强度下的非次序双电离完全不同. 另外, 他们还发现关联电子对的总能量谱呈现一个约为 $5.3U_p$ 的高截止能量(图3(b)). 为了揭示关联电子的这种背向发射现象、高截止能量对应的微观动力学过程, 人们开展了理论研究.

研究强场非次序双电离的理论模型主要有数值求解含时薛定谔方程<sup>[14,15]</sup>、S-矩阵<sup>[16,17]</sup>、半经典<sup>[18,19]</sup>以及经典系综模型<sup>[20,21]</sup>. 原理上, 数值求解双电子的含时薛定谔方程最精确, 但计算量大, 并且很难从中获取动力学过程的信息. 因此, 人们往往倾向于后3种理论模型, 特别是经典及半经典系综模型. 在经典及半经典系综模型中, 原子中的电子被当作经典的带电粒子、激光场被当作经典的电磁波处理. 在经典系综模型中, 整个双电离过程, 从激光脉冲开始到结束, 系统的动力学过程都由牛顿运动方程决定<sup>[21]</sup>. 在半经典系综模型中, 第一个电子的电离由隧穿理论描述, 隧穿电离后系统的运动由牛顿方程决定<sup>[18]</sup>. 由于经典、半经典系综模型能够直观地给出双电离的过程, 并且得到的结果与实验符合得非常完美, 因此在双电离的研究中应用得非常广泛<sup>[18,22-24]</sup>.

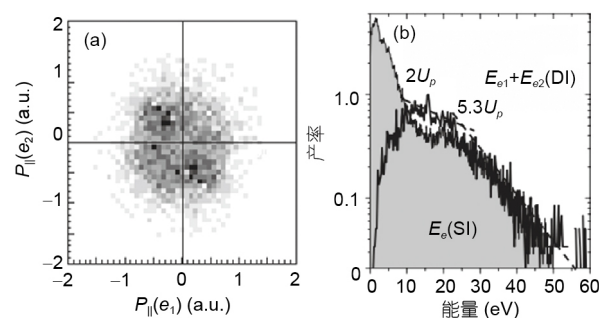
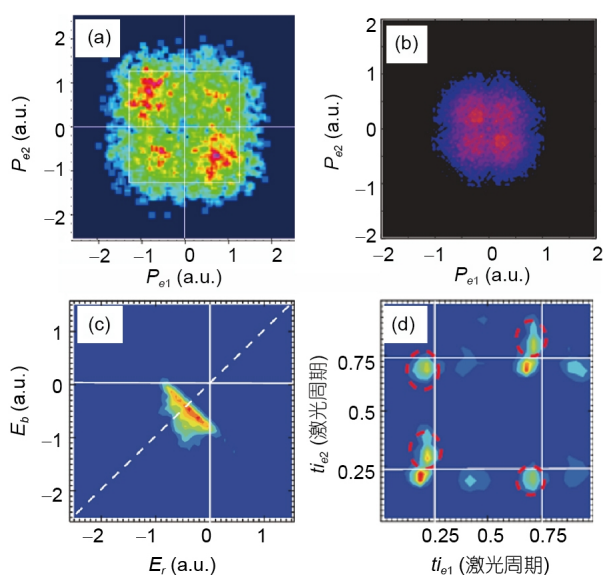


图3 低激光强度下氩原子非次序双电离<sup>[13]</sup>. (a) 关联电子动量谱; (b) 关联电子对的总能量谱. 激光波长为800 nm, 强度为 $7 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>

Figure 3 NSDI of Ar at the low laser intensity<sup>[13]</sup>. (a) The correlated electron momentum distribution; (b) total energy spectrum of the electron pairs. The laser wavelength is 800 nm and the laser intensity is  $7 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>.

针对低激光强度下非次序双电离电子背向发射的反关联现象, 人们利用经典、半经典系综模型进行了深入的分析, 模拟计算的结果都观测到了实验测量到的反关联现象<sup>[25,26]</sup>, 如图4(a)和(b)所示. 通过跟踪双电离碰撞时间以及碰撞后两个电子的电离时间, 经典及半经典系综模型给出的反关联现象的原因: 在低激光强度下, 碰撞形成双激发态(图4(c))<sup>[27]</sup>. 处于双激发态的两个电子在激光场的作用下一个接着一个电离, 其中一个电子在碰撞之后激光脉冲的第一个电场峰值之前电离, 另一个电子在峰值之后电离, 如图4(d)所示. 这样的双电离事件, 电子对的末态动量呈现背向发射现象. 部分双激发态的两个电子, 电离时间差大于半个甚至一个激光周期, 对于这些双电离, 电子对的末动量失去关联特性, 在关联动量谱中表现为均匀分布. 经典计算表明, 非次序双电离电子末态动量分布关联性的强弱与激光强度有关. 在高激光强度下, 电子对表现为正关联; 随着激光强度降低, 动量分布逐渐变为反关联; 当激光强度进一步降低时, 此反关联现象先增强, 然后逐渐趋向均匀分布, 最终失去关联特性<sup>[28]</sup>.

经典系综模型计算还发现, 在低激光强度下, 当碰撞发生在激光电场峰值附近时, 部分双电离也能够通过碰撞直接电离. 在这种情况下, 激光电场将原子势垒压低, 因而碰撞形成的双激发态的两个电子能够作为一个整体, 几乎同时越过势垒而电离, 因而电子之间会存在很强的库仑排斥作用, 使得电子对的末态动量分布呈现反关联现象<sup>[29]</sup>.



**图 4** (网络版彩图)(a) 经典系综模型计算的氩原子非次序双电离关联电子动量谱<sup>[25]</sup>, 激光波长为483 nm, 激光强度为 $5 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>; (b) 半经典系综模型计算的氩原子非次序双电离关联电子动量谱<sup>[26]</sup>, 激光波长为800 nm, 激光强度为 $4 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>; (c) 碰撞结束后, 碰撞电子 $E_a$ 与被碰电子 $E_b$ 的能量; (d) 碰撞后, 两电子的电离时间<sup>[27]</sup>, 图中的白色实线对应于激光电场峰值

**Figure 4** (Color online) (a) Correlated electron momentum distribution for NSDI of Ar calculated by the classical ensemble model [25], the laser wavelength is 483 nm and the intensity is  $5 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>; (b) correlated electron momentum distribution for NSDI of Ar calculated by the semi-classical ensemble model [26], the laser wavelength is 800 nm and the intensity is  $4 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>; (c) energy distribution of the two electrons just after recollision; (d) ionization time distribution of the two electrons after recollision [27], the white lines indicate the peaks of the electric field.

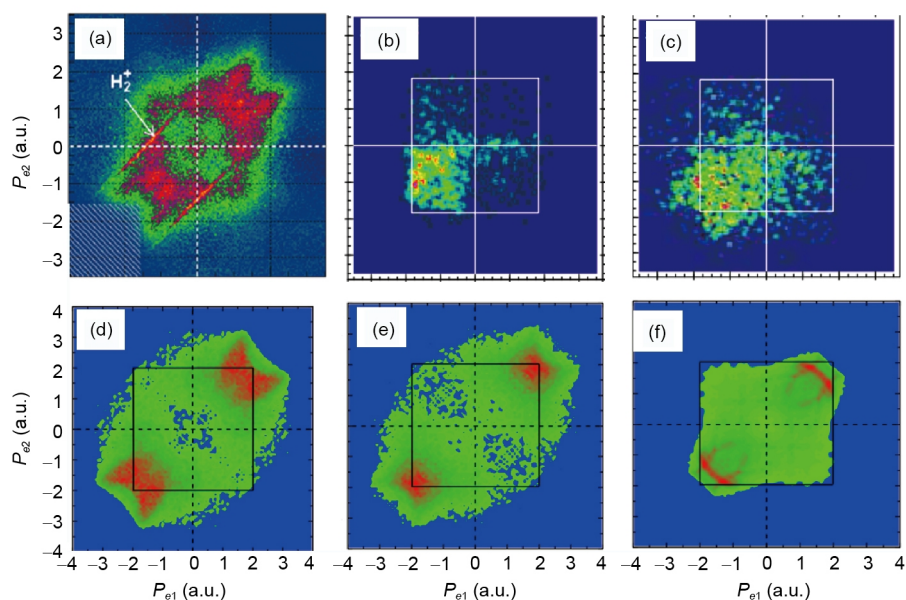
利用S-矩阵理论研究低激光强度下的非次序双电离, 对电子对反关联现象给出了不同的解释<sup>[30,31]</sup>. S-矩阵理论的计算指出, 碰撞能够形成多个激发态, 这些激发态的电离会发生干涉. 干涉效应能够使得电子的末态动量谱呈现反关联现象. S-矩阵理论在考虑干涉效应后, 能够定性地重复实验观测到的不同脉宽、不同激光强度下的电子关联特性. 但是, 在考虑干涉时, 需要通过与实验结果比较, 给不同激发态的电离人为地赋予相位. 这种赋予相位的方式没有坚实的理论依据. 因此, 关于低激光强度下非次序双电离电子对的反关联现象的物理原因尚未定论.

低激光强度下的另一个备受关注的现象是电子对能量谱中的高能截止区现象. 通过碰撞激发电离的电子, 电离时刻电子的初始动量约为零, 所以电子在

激光场中能够获得的最大末动能约为 $2.0U_p$ , 因而两个电子总能量的最大值约为 $4.0U_p$ . 但是实验观测到的双电子总能量谱却呈现 $5.3U_p$ 的高能截止区<sup>[13]</sup>. 其实, 在实验之前, 数值求解全维双电子含时薛定谔方程的理论计算就演示了低激光强度下双电子能量谱 $5.3U_p$ 截止区现象<sup>[14]</sup>. 但是, 电子获得高能微观动力学过程当时还不清楚. 利用经典系综模型计算的非次序双电离也呈现高的能量截止区<sup>[32]</sup>. 通过经典轨迹分析, 高能电子形成的原因被揭示: 碰撞形成激发态后, 在第一个激光电场峰值时刻电子被激光电场拉向远离核的方向运动, 但并未被电离. 当激光脉冲的电场反向时, 电子又被拉回到母离子, 穿过核所在的区域, 最终电离. 在此过程中, 核与电子的库仑作用能够对电子有“弹射”的作用, 最终使得电子获得大于 $2U_p$ 的末态能量. 后来的三体符合测量实验进一步证实了低激光强度下非次序双电离的高能电子<sup>[33]</sup>, 并且通过半经典系综模型模拟, 得到了与经典系综模型相同的结论, 即碰撞形成激发态后, 激发态的电子在激光电场和核的库仑势的共同作用下, 获得大于 $2U_p$ 的末态能量. 经典及半经典的理论模型计算发现, 当激光强度更低时多次碰撞在双电离中有非常重要的贡献<sup>[34,35]</sup>. 计算表明, 多次碰撞也能够使双电离的电子对获得很高的能量.

## 2.2 中等激光强度下的非次序双电离

在较高的激光强度下, 第一个电子的碰撞能量大于原子的第二电离能, 非次序双电离的主要过程为碰撞直接电离. 2007年Staudte等人<sup>[36]</sup>和Rudenko等人<sup>[37]</sup>分别测量了激光强度为 $0.45$  PW/cm<sup>2</sup>,  $1.5$  PW/cm<sup>2</sup>时氩原子非次序双电离的关联电子动量谱. 结果显示, 激光偏振方向的关联动量分布在对角线上有强烈的排斥现象, 呈现明显的V型结构(或被称为手指状结构), 如图5(a)和6(a)所示<sup>[36-40]</sup>. 为了揭示这种排斥现象的物理原因, 人们进行了深入的理论研究. Haan等人<sup>[38]</sup>利用经典系综模型计算了强度为 $0.45$  PW/cm<sup>2</sup>时氩原子的非次序双电离. 在他们的计算中, 当电子-核之间的作用势能采用软核势时, 得到的关联动量分布没有出现关于对角线排斥的现象, 只有当软核势的软核参数小到接近零时, 实验观测到的排斥现象才出现(图5(b)和(c)). 因而证明了这种排斥现象是由于电子与核之间的库仑作用造成的. Ye和Liu等人<sup>[39]</sup>利用半经典系综模型更仔细地研究了此激光强度下的氩原子非次序



**图 5** (网络版彩图)激光强度为 $0.45 \text{ PW/cm}^2$ 、波长为 $780 \text{ nm}$ 的激光驱动的氦原子非次序双电离关联电子动量谱. (a)为实验结果<sup>[36]</sup>,  $2U_p$  能量对应的动量约为 $2.0 \text{ a.u.}$ ; (b)和(c)为经典系综模型计算的结果<sup>[38]</sup>, 电子-核之间的作用势能为软核势 $V_{ie}(r) = -2 / \sqrt{r_2^2 + a^2}$ , (b)中软核参数 $a=0.825$ , (c)中软核参数 $a=0.01$ ; (d)–(f)为半经典系综模型计算的结果<sup>[39]</sup>, (d)中电子-电子及电子-核的作用势能都为库仑势, (e)中电子-核之间的作用势为软核势, 软核参数 $a=1.0$ , (f)中碰撞之后, 电子-电子之间的作用势能为汤川势

**Figure 5** (Color online) Correlated electron momentum distributions for NSDI of He by laser pulses with intensity of  $0.45 \text{ PW/cm}^2$  and wavelength of  $780 \text{ nm}$ . (a) Experimental result<sup>[36]</sup>, the energy of  $2U_p$  corresponds to the momentum of  $2 \text{ a.u.}$ ; (b), (c) numerical results by the classical ensemble model<sup>[38]</sup>, the ion-electron potential is  $V_{ie}(r) = -2 / \sqrt{r_2^2 + a^2}$ , the soft parameter  $a=0.825$  (b) and  $a=0.01$  (c), respectively; (d)–(f) numerical results by the semiclassical ensemble model<sup>[39]</sup>, both the electron-electron and ion-electron interaction potentials are the Coulomb potential in (d), the ion-electron interaction potential is the soft potential with  $a=1.0$  in (e); the electron-electron interaction potential after recollision is the Yukawa potential in (f).

双电离. 他们首先分别计算了电子-核之间的作用势能为库仑势和软核势情况下的双电离, 发现只有库仑势的情况才会出现实验观测到的排斥现象(图5(d)和(e)). 进一步, 他们改变电子-电子之间的作用势能, 分别计算了库仑势和汤川势的双电离, 发现只有库仑势的情况才会出现实验观测到的排斥现象(图5(f)). 这些计算证明了电子-电子以及电子-核之间的库仑作用都是导致末态电子关联动量谱中排斥现象的原因. 通过跟踪经典轨迹, 他们指出了此排斥现象对应的非次序双电离微观动力学过程. 如图7所示, 碰撞之后两电子立即电离, 但是两电子的初始速度不一样, 其中一个电子的初速度与碰撞电子入射方向相同, 另一个电子初速度与碰撞电子的入射方向相反. 由于两电子几乎同时电离, 因而激光电场给予电子的速度相同. 电离时刻的初始速度不同, 导致电子的末动量不同, 从而使得电子的末态动量呈现相对于对角线的排斥现象, 这个过程相当于核使得电子发生了背向散射. 在软核

势作用下, 电子发生背向散射的概率很低, 因而动量谱中的排斥现象消失. 电离之后, 电离态的电子之间长程库仑排斥进一步加强末态动量谱的排斥效应. 后来, Chen等人<sup>[41]</sup>利用定量的散射模型也证实末态电子之间的库仑排斥是导致实验观测到的关联电子动量谱V型结构的重要原因.

### 2.3 高激光强度下的非次序双电离

上述的理论研究都是针对激光强度为 $0.45 \text{ PW/cm}^2$ 的实验. 在此激光强度下, 第一个电子的碰撞能量与氦原子的第二电离能相当, 即碰撞恰好能够使第二个电子直接电离. 在激光强度为 $1.5 \text{ PW/cm}^2$ 的实验中, 第一个电子的碰撞能量远大于氦原子的第二电离能. 对于这个实验观测到的关联电子动量谱的V型结构, 理论研究关注的比较少, 人们默认它对应的物理机制与较低激光强度相似. 但是, 仔细比较两个实验可以发现, 较低激光强度下的V型结构延伸到 $2U_p$ 能量对应的

动量范围之外, 而对于高激光强度下的情况, V型结构出现在 $2U_p$ 能量边界内(图6(a)). 为了揭示这种差异, Zhou等人<sup>[40]</sup>利用经典系综模型, 研究了高激光强度下的氦原子非次序双电离. 他们发现, 在高激光强度下, 即使利用软核势描述电子-核之间的作用, 或利用汤川势描述电子-电子之间的相互作用, 关联电子谱的V型结构同样存在, 如图6(b)所示. 这与较低激光强度下的情况完全不同. 此结果说明在极高的激光强度下, 氦原子非次序双电离关联电子动量谱中的排斥现象不是由于电子-核、电子-电子之间的库仑作用造成. 进一步的研究发现, 如果根据碰撞结束瞬间两电子的能量差, 将双电离事件分类, 相应的关联电子动量谱很不相同. 图6(c)和(d)分别给出能量差大于2 a.u.和小于2.0 a.u.双电离事件的关联电子末态动量分布. 对于碰撞后电子能量差大于2 a.u.的双电离事件, 动量分布呈现明显的V型结构, 而对于能量差小于2 a.u.的双电离事件, 动量分布集中在对角线上, 说明碰撞过程中两电子的不均匀能量分配是导致动量谱V型结构的原因. 不均匀能量分配导致动量谱出现V型结构的物理原因非常明确: 电子末态动量由电离时间以及电离时刻的初始速度决定. 电离时间决定电子从激光场中获得的漂移动量(Drift Momentum). 在高激光强度下, 碰撞之后两电子立即电离, 因此两电子从激光场中获取的漂移速度几乎是一样的. 碰撞过程中不均匀的能量分配使得电子电离时刻的初始速度不一样, 因此两电子末速度不一样, 从而使得动量谱呈现排斥现象.

在高激光强度下, 碰撞之后具有较高能量电子的末速度通常较小. 因为对于高能量的碰撞, 电子的背向散射几率很小, 高能电子的电离时刻初速度方向通常与漂移速度相反, 两者相消, 使得较大初始速度的电子末态动量很小, 这与较低激光强度下不同. 在较低的激光强度下, 电子能够发生背向散射, 从而电子电离时刻的初始速度与漂移速度相同, 使得电子末动能大于最大漂移速度对应的 $2U_p$ 能量. 因此, 在较低的激光强度下, V型结构能够延伸到大于 $2U_p$ 的范围, 而在高激光强度下, V型结构只出现在能量小于 $2U_p$ 的范围.

高激光强度下的非次序双电离碰撞过程中的能量不均匀分配现象是非常普遍的. 因为在高激光强度下, 回复电子的碰撞很大, 电子很快穿过原子核区域, 电子-电子作用时间很短, 因此碰撞电子只能传递很小一部分能量给第二个电子, 使得电子对的能量分配不

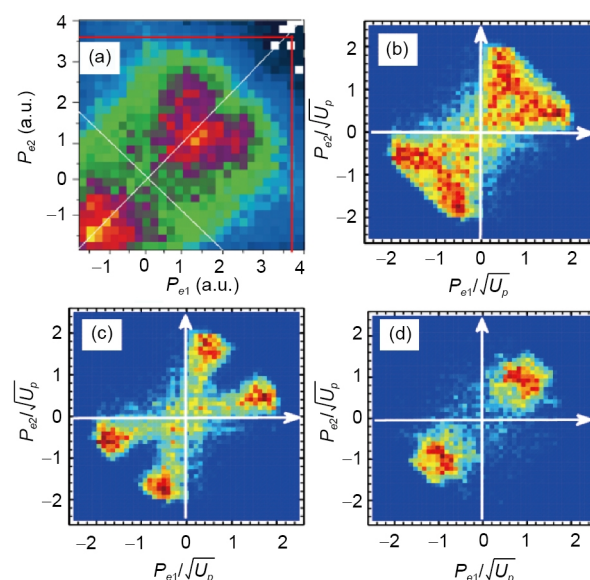
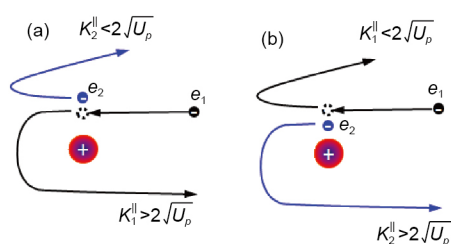


图6 (网络版彩图)波长为780 nm的激光驱动的氦原子非次序双电离关联电子动量谱. (a)为实验结果<sup>[37]</sup>, 图中的红色实线表示 $2U_p$ 能量对应的动量, 激光强度为 $1.5 \text{ PW/cm}^2$ ; (b)为经典系综模型计算得到的结果<sup>[40]</sup>, 所用的激光强度为 $2.0 \text{ PW/cm}^2$ , 电子-核之间的作用为软核势, 软核参数为0.86; (c)和(d)为根据碰撞完成瞬间两电子的能量差分类得到的关联电子动量谱, (c)中碰撞完成瞬间两电子的能量差大于2.0 a.u., (d)中碰撞完成瞬间两电子的能量差小于2.0 a.u. **Figure 6** (Color online) Correlated electron momentum distribution along the laser polarization direction for NSDI of He by 780 nm laser pulses. (a) Experimental results <sup>[37]</sup>, the solid red lines indicate the momentum corresponding to the energy of  $2U_p$ , the laser intensity is  $1.5 \text{ PW/cm}^2$ ; (b) numerical result from the classical ensemble model <sup>[40]</sup>, in the calculation, the laser intensity is  $2.0 \text{ PW/cm}^2$ , the soft parameter is  $\alpha=0.86$ ; (c) and (d) separately show the distributions based on the energy difference of the two electrons just after recollision, the energy difference just after recollision is larger than 2 a.u. (c) and less than 2 a.u. (d).

均匀. 这种不均匀的能量分配对原子分子种类的依赖较弱. 因此, 高激光强度下不同原子分子的非次序双电离都存在不均匀能量分配, 从而电子末态关联动量分布都会出现关于对角线排斥的现象. 这种推测很快被实验证实. 2012年德国的研究小组<sup>[42,43]</sup>实验测量了高激光强度的周期量级激光脉冲驱动的氦原子及氮气分子非次序双电离. 实验发现, 氦原子和氮气分子的双电离关联电子动量谱都呈现关于主对角线排斥的现象, 并且这种排斥现象比早期的氦原子实验观测到的现象更明显, 表现为“十字架”结构, 如图8(a)和(b)所示. 理论研究表明, 这种“十字架”结构也是由于碰撞过程中两电子不均匀的能量分配造成: 在碰撞过程中, 第一个电子传递给第二个电子的能量只能使第二



**图 7** (网络版彩图)中等激光强度下,关联电子动量谱V型结构对应的微观动力学过程示意图<sup>[39]</sup>. (a)碰撞电子碰后速度反向,末动量大于 $2\sqrt{U_p}$ ,被碰电子沿着碰撞电子入碰速度方向电离,末动量小于 $2\sqrt{U_p}$ ; (b)碰撞电子碰后沿着入碰速度方向电离,末动量小于 $2\sqrt{U_p}$ ,被碰电子向入碰速度相反的方向电离,末动量大于 $2\sqrt{U_p}$

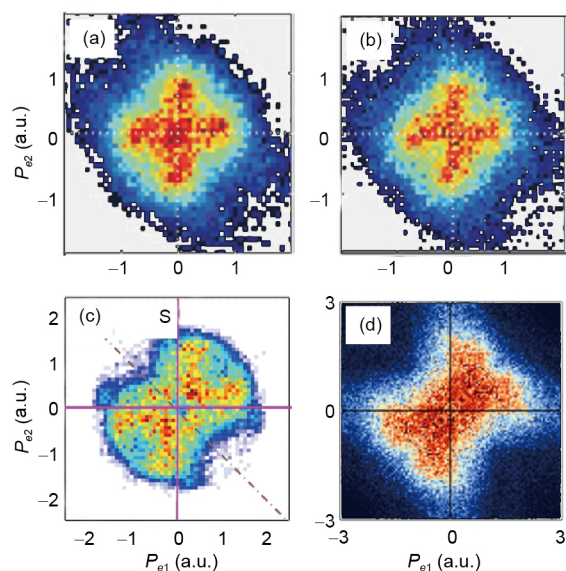
**Figure 7** (Color online) The sketch of the responsible microscopic electron dynamics for the V-like structure in the correlated electron momentum spectrum [39]. (a) The recollision electron changed its direction after recollision and achieved a final momentum larger than  $2\sqrt{U_p}$ , the bounded electron ionized along the direction of recollision velocity and achieved a final momentum less than  $2\sqrt{U_p}$ ; (b) the recollision electron ionized along the direction of recollision and achieved a final momentum less than  $2\sqrt{U_p}$  while the bounded electron ionized with a velocity opposite to the recollision direction and achieve a final momentum larger than  $2\sqrt{U_p}$ .

个电子激发,再在激光场的作用下电离.高激光强度下的碰撞激发电离的原因就是不均匀的能量分配.需要指出的是,在此实验条件下,也存在直接碰撞电离.对于直接碰撞电离,碰撞之后两个电子的初始速度不一样,导致两电子的末动量不一样,呈现相对于主对角线的排斥现象<sup>[44]</sup>.

可以预测,当碰撞能量增加时,不均匀能量分配现象会越来越明显.因此,激光强度增加,非次序双电离关联电子动量谱的排斥现象会越来越明显.但是,当激光强度增加时,双电离的主要过程转变为次序双电离.因此,很难在更高激光强度下研究非次序双电离的不均匀能量分配现象,但是,可以通过增加激光波长,研究更高能碰撞过程中电子不均匀能量分配.最近,西班牙的研究小组<sup>[45]</sup>利用中红外的激光脉冲研究了Xe原子的非次序双电离,观测到了关联电子动量谱关于主对角线非常明显的排斥现象(图8(d)).

这些实验及理论研究说明在高碰撞能量下,非次序双电离碰撞过程倾向于不均匀的能量分配,并且这种不均匀的能量分配现象不依赖于原子分子种类,普遍存在.

总之,非次序双电离的物理过程是再散射.再散射过程中关联电子微观动力学依赖于激光强度.当激



**图 8** (网络版彩图)激光强度为 $3.2\times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>、波长为750 nm的周期量级激光驱动的氩原子(a)、氮气分子(b)非次序双电离关联电子动量谱的实验结果<sup>[43]</sup>; (c)经典系综模型计算的氩原子非次序双电离关联电子动量分布<sup>[44]</sup>,激光参数与(a)相同; (d)激光强度为 $4\times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>、波长为3100 nm激光驱动的氙原子非次序双电离关联电子动量分布<sup>[45]</sup>

**Figure 8** (Color online) Correlated electron momentum distribution for NSDI of Ar (a) and N<sub>2</sub> (b) by the 750 nm,  $3.2\times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> few-cycle laser pulses [43], (a) and (b) are the experimental results; (c) numerical results for NSDI of Ar calculated by the classical ensemble model [44], the laser parameters are the same as those in (a); (d) experimental result for NSDI of Xe by the 3100 nm,  $4\times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> laser pulse [45].

光强度很低时,碰撞能量很小,不足以电离,甚至激发第二个电子.因而,非次序双电离只能通过双激发态发生.处于双激发态的电子对通常在激光场的作用下接一个接一个电离,从而使得电子对的末态动量呈反关联现象.同时在电离过程中,由于核对电子有很强的作用,电子最终可以获得很高的末态动能.当激光强度增强时,碰撞能量增加.因而碰撞能够直接将第二个电子电离.当激光强度进一步增强时,碰撞电子通常只传递小部分能量使第二个电子电离,而其自身携带了大部分的能量.从而电子对体现了强烈的不均匀能量分配现象.

## 2.4 非次序双电离关联电子动力学过程的控制

对非次序双电离研究更重要的意义在于实现对关联电子动力学过程的控制.在对非次序双电离的动力学过程有了深入的认识后,人们开始尝试控制非次



序双电离电子的关联特性.

周期量级(Few-Cycle)的激光脉冲是控制强场物理过程的重要手段,它被广泛应用于控制强场阈上电离及高次谐波产生. 2004年Liu等人<sup>[46]</sup>首次在实验上利用它控制非次序双电离过程. 最近, Kling研究组<sup>[47]</sup>研究了周期量级激光驱动的非次序双电离. 实验发现当改变周期量级激光脉冲的载波包络相位(Carrier Envelope Phase, CEP)时,非次序双电离的正二价离子动量分布发生明显变化,这说明非次序双电离两电子的电离方向可以通过周期量级脉冲的CEP来控制. 理论分析指出<sup>[48]</sup>,周期量级脉冲的CEP能够有效地控制非次序双电离过程中第一个电子在不同半光周期内的电离概率和对应的碰撞能量,这两个因素的共同作用,使得关联电子电离方向依赖于CEP.

在多光周期的长脉冲中,非次序双电离的碰撞每半个光周期发生一次,最后测量到的双电离信号是激光脉冲中所有碰撞诱导的双电离信号的叠加. 因而,长脉冲驱动的非次序双电离的关联电子对的来源较复杂. 在周期量级脉冲中,导致双电离的碰撞能够被有效地限制在半个光周期内. 因而,实验测量到的信号相对单一,使得我们能够研究亚光周期(Sub-Cycle)的微观动力学过程. 所以,周期量级激光脉冲驱动的非次序双电离研究,一方面能够实现对非次序双电离的控制,另一方面能够让人们更好地认识非次序双电离的微观过程. 近几年,已经有许多实验利用周期量级的激光脉冲研究非次序双电离过程. 例如,2012年的实验利用周期量级的激光脉冲研究了低激光强度下氩原子的非次序双电离,通过分析关联电子动量谱,他们证实了双电离确实经历了双激发态,并且推算出双激发态两个电子的电离时间差约为数百阿秒<sup>[49]</sup>.

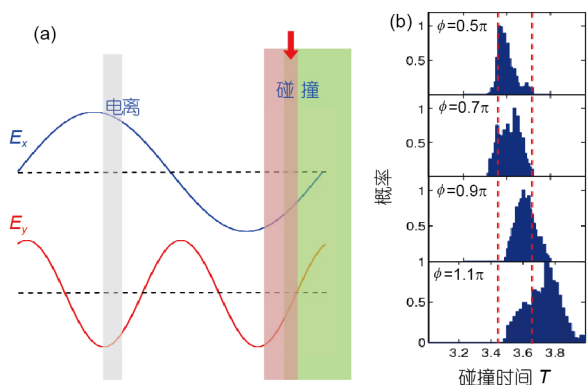
双色场是控制非次序双电离的另一重要手段. 在双色场方案中,通过控制两束光的相对相位、强度等,可以实现在亚光周期对激光整形,从而控制非次序双电离第一个电子的隧穿过程、碰撞时间、碰撞能量等,进而控制非次序双电离的关联特性. 利用偏振方向平行的周期量级脉冲组成的双色场, Zhou等人<sup>[50]</sup>计算了氩原子的非次序双电离. 结果显示,相比于单色场情况,双色场中电子碰撞时间被限制在更短的时间窗口,并且此窗口的位置能够被精确控制. 因为电子的碰撞能量与时间是关联的,因此碰撞能量也能被精确控制,使得电子对的关联特性被精确控制. 理论模

拟结果显示,在这样的双色场中,电子对的末态关联动量谱呈现一个新颖的弧状(Arc-Like)结构,并且此结构的位置可以通过双色场的相对相位精确控制.

对非次序双电离微观过程的研究中,人们认识到非次序双电离的电子关联特性强烈地依赖于碰撞时间. 在高激光强度下,若碰撞之后两个电子直接电离,电子的末动量为 $v_f=v_0+A(t_c)$ ,其中 $v_0$ 是碰撞之后电离的初始速度, $A(t_c)$ 为电离时刻 $t_c$ 的电场矢势. 对于碰撞直接电离,电离时刻约等于碰撞时刻. 因此,控制碰撞时间就能控制电子末态动量的关联特性. Zhou等人提出利用正交双色场方案来精确控制非次序双电离的碰撞时间. 正交双色场控制碰撞的原理如图9(a)所示. 第一个电子的电离发生在灰色区域. 在 $x$ 方向的电场驱动下,电子的返回发生在绿色区域,在 $y$ 方向的电场驱动下,电子的返回发生在红色区域. 因而电子的有效碰撞只能发生在红色和绿色的重叠区域. 通过改变正交双色场的相对相位,能够改变重叠区域的宽度和位置,从而控制非次序双电离的碰撞时间. 图9(b)给出了在800和400 nm激光组成的正交双色场驱动下,双电离的碰撞时间随相对相位的变化<sup>[51]</sup>. 可以看出,碰撞时间随着相对相位缓慢变化. 相对相位改变 $0.1\pi$ ,碰撞时间移动约200 as,这说明可以利用正交双色场在阿秒时间尺度控制碰撞过程.

图10给出了由经典系综模型计算得到的正交双色场驱动下氩原子的非次序双电离的关联电子动量谱<sup>[52]</sup>. 在800 nm的单色线偏光驱动下,电子动量分布主要集中在第一、三象限. 在正交双色场驱动下,当相对相位为 $0.9\pi$ 时,关联电子动量分布同样主要集中在第一、三象限,体现正关联现象. 当相对相位为 $0.5\pi$ 时,电子主要集中在第二、四象限,体现强烈的反关联. 图10(b)给出了相位为 $0.9\pi$ ,  $0.5\pi$ 的正交双色场驱动非次序双电离的碰撞时间. 在这种激光强度下,碰撞之后两电子立即电离,电子的末动量 $v_f=v_0+A(t_c)$ . 当相对相位为 $0.5\pi$ 时,碰撞时刻对应的矢势 $A(t_c)$ 很大,并且对于两个电子是相同的. 因此电子对的末动量方向相同,关联动量分布集中在第一、三象限. 当相对相位为 $0.9\pi$ 时,碰撞发生在电场峰值附近,这时 $A(t_c)$ 很小. 因此电子的末态动量方向由 $v_0$ 决定. 在碰撞过程中,由于电子排斥,通常两个电子的初始速度 $v_0$ 是相反的,因此,两个电子的末态动量分布呈现反关联现象.

正交双色场中的非次序双电离,对于800 nm的激

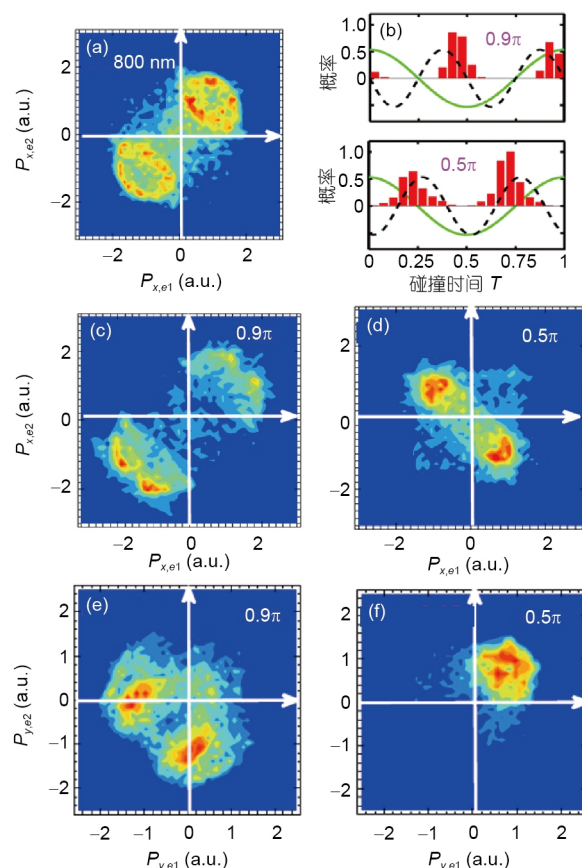


**图9** (网络版彩图)(a) 正交双色场控制非次序双电离碰撞时间原理图, 碰撞发生在红色、绿色交叠区域; (b) 非次序双电离碰撞时间分布随(800+400) nm正交双色场相对相位的变化<sup>[51]</sup>,  $T$ 为800 nm激光周期

**Figure 9** (Color online) (a) Schematic diagram for controlling recollision time in NSDI by the orthogonal two-color fields, effective recollision occurs at the overlap of the red and green areas; (b) distributions of the recollision time in NSDI by the orthogonal two-color fields (800+400) nm for different relative phases<sup>[51]</sup>,  $T$  is the laser period of the 800 nm laser field.

光场而言, 碰撞每半个光周期发生一次. 因此, 沿800 nm激光偏振方向的关联电子动量分布关于负对角线是对称的. 相对于400 nm的激光场, 碰撞每光周期发生一次, 因而, 沿400 nm激光偏振方向的关联电子动量分布关于负对角线是不对称的, 如图10(e)和(f)所示.

根据上述理论结果, 最近有研究小组开展了正交双色场控制非次序双电离的实验研究<sup>[53]</sup>. 实验研究的对象为氦原子. 由于正交双色场的双电离产率相对较低, 所以在实验中只测量了双电离的产率及离子的动量谱, 而没有测量电子的动量谱. 图11(a)给出了双电离产率随激光正交双色场相对相位的变化, 图中也给出了利用次序双电离理论、半经典系综模型计算的双电离产率. 可以看出, 次序双电离理论计算的结果与实验完全相反, 而半经典系综模型计算的结果与实验符合很好. 图11(d)和(e)给出了相对相位为 $0.7\pi$ ,  $1.7\pi$ 时离子的二维动量分布. 此分布沿800 nm激光偏振方向的动量关于零点对称, 而沿400 nm激光偏振方向关于零点对称, 此结果与上述理论预言一致. 图11(b)和(c)分别给出沿400和800 nm激光偏振方向离子动量分布随相对相位的变化关系. 400 nm激光偏振方向离子动量关于零动量的对称性随相对相位周期性地变化. 800 nm激光偏振方向离子动量关于零动量对称,

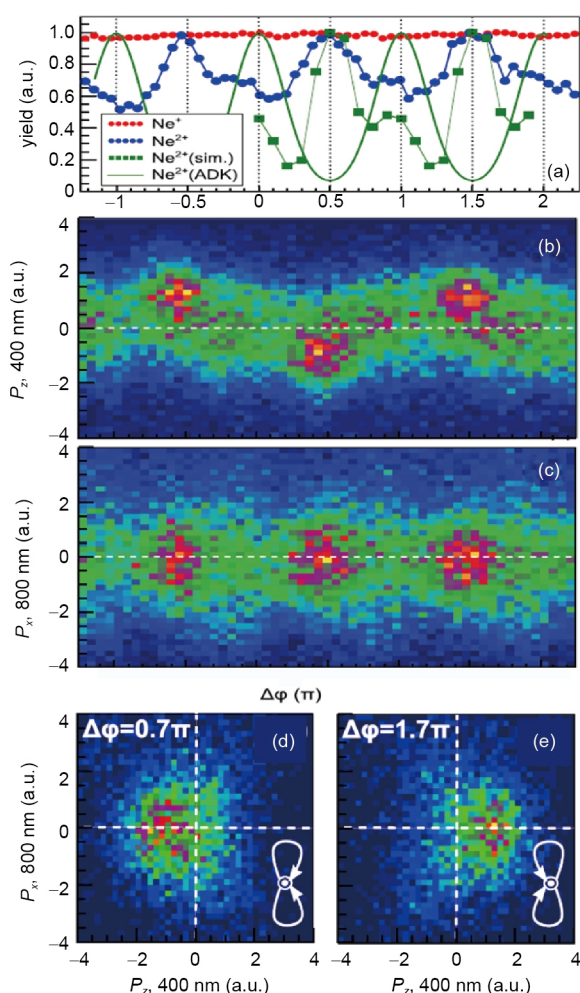


**图10** (网络版彩图)经典系综模型计算的氦原子非次序双电离关联电子动量分布<sup>[52]</sup>. (a) 800 nm激光驱动的双电离的动量分布; (b) 不同相对相位下正交双色场驱动的非次序双电离碰撞时间分布; (c)–(f) 800和400 nm正交双色场驱动的双电离. (c)和(d)为800 nm激光偏振方向的关联动量分布, (e)和(f)为400 nm激光偏振方向的关联动量分布, 激光强度都为 $4 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, 相对相位在图中已标出

**Figure 10** (Color online) Numerical results of the correlated electron momentum distribution for NSDI Helium<sup>[52]</sup>. (a) The momentum distribution for the 800 nm field; (b) the recollision time distribution in the orthogonal two-color field with two different relative phases; (c)–(f) the distribution for the 800 and 400 nm orthogonal two-color field. (c) and (d) show the momentum along the polarized direction of the 800 nm field. (e) and (f) show the momentum along the polarized direction of the 400 nm field, the laser intensities for both fields are  $4 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, the relative phases were indicated in the figure.

但是其宽度随相对相位周期性地变化. 这种周期性变化反应的就是电子关联特性正反关联的周期性变化, 这些结果都证明了上述的理论预言.

这些理论及实验研究证实了正交双色场是控制非次序双电离的一种有效手段, 对人们深入认识及控制原子分子的电子关联具有重要意义.



**图 11** (网络版彩图)正交双色场驱动的Ne原子非次序双电离实验结果<sup>[53]</sup>. (a) 红色圆点为单电离产率随相对相位的变化. 蓝色圆点、绿色方点分别为实验测量、半经典系综模型计算的双电离产率随相对相位的变化. 绿色实线为基于隧穿电离理论计算的双电离产率随相对相位的变化; (b)和(c)分别为Ne<sup>2+</sup>在400, 800 nm激光偏振方向的动量分布随相对相位的变化; (d)和(e)分别为相对相位为0.7 $\pi$ 和1.7 $\pi$ 时Ne<sup>2+</sup>在激光偏振平面的动量分布, 激光强度均为 $1.5 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. **Figure 11** (Color online) Experimental results for NSDI of Ne by the orthogonal two-color fields [53]. (a) The red and blue circles respectively represent the yield of Ne<sup>+</sup> and Ne<sup>2+</sup> as a function of relative phase. The solid green line shows the yield of Ne<sup>2+</sup> calculated by the ADK formula. The green squares represent the yield of Ne<sup>2+</sup> calculated by the semiclassical ensemble model; (b) and (c) are the momentum distributions of Ne<sup>2+</sup> along the polarized direction of the 400 and 800 nm laser field, respectively, as a function of relative phase; (d), (e) Momentum distributions of Ne<sup>2+</sup> in the laser polarized plane at 0.7 $\pi$  and 1.7 $\pi$ , the laser intensities for both field are  $1.5 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>.

### 3 强场次序双电离

强场次序双电离的过程相对简单. 在圆偏或椭圆

光中, 第一个电子隧穿电离之后不能返回到母离子处, 所以第二个电子只能在激光场的作用下隧穿电离或越垒电离. 因而在次序双电离中两电子的电离过程是独立的、没有关联的. 但是, 最近的实验发现了与独立电子近似相悖的一些新现象. 例如, 实验发现在稀有气体的次序双电离中, 电离的两个电子的角分布呈现一定的关联性: 第二个电子的电离方向倾向于垂直第一个电子的电离方向<sup>[53]</sup>.

在圆偏光或椭圆偏光中, 如果激光强度足够强, 两个电子能够在激光脉冲峰值之前电离. 在这种情况下, 电子的末态动量是电离时间的单值函数. 因而通过测量电子动量谱可以获得隧穿电离时间的信息<sup>[54-56]</sup>. 瑞士的一个研究小组<sup>[57]</sup>最近测量了椭圆偏光驱动下氩原子的次序双电离, 发现了与普遍认同的次序双电离理论预言相悖的现象. 在椭圆偏光驱动的次序双电离中, 如果两个电子的电离是没有关联的, 第一个电子电离之后, 第二个电子的电离方向与第一个电子相同或相反的概率是一样的. 因而同方向电离和反方向电离的双电离事件概率应该一样, 但是实验却发现, 它们的比值依赖于激光强度<sup>[58]</sup>. 另外, 实验通过测量两电子的动量, 得到了次序双电离两电子的电离时间. 他们发现, 次序双电离第一个电子的电离时间与基于独立电子近似的隧穿理论模型计算的结果符合得很好, 而测量到的第二个电子的电离时间却比理论预言的时间早了很多<sup>[57]</sup>. 这些现象促使人们重新审视强场次序双电离过程, 特别是其中的电子关联作用.

计算次序双电离, 并考虑电子关联作用, 最精确的理论模型是数值求解双电离的含时薛定谔方程. 但是数值求解含时薛定谔方程计算量非常大, 特别是对于高激光强度的椭圆偏光场, 目前的计算能力无法完成. 然而, 在高激光强度下, 电子通常通过越垒电离. 越垒电离是经典力学允许的过程, 因而利用经典力学的方法来研究高激光强度下的次序双电离也许是可行的. 为此, Zhou等人建立经典系综模型来研究强场次序双电离.

在经典力学中, 双电子原子体系是不稳定的, 因为一个电子很容易掉到离子库仑势阱深处, 使另一电子发生自电离. 为了避免自电离, 经典双电子原子模型通常引入软核势<sup>[20,21]</sup>. 但是, 其缺点是: 在软核势的双电子原子中, 两电子的电离能与真实原子相差较大. 在隧穿电离或者越垒电离中, 电离率对电离能非常敏

感. 因而, 软核势经典系综模型不能精确描述强场次序双电离. 另外一种势能, 海森堡势, 不仅能很好地解决双电子自电离的问题, 还能使得模型原子各个电子的电离能与真实原子相匹配. 因此, Zhou等人<sup>[59,60]</sup>建立了海森堡势经典系综模型, 模拟了上述实验条件的次序双电离, 得到的离子动量谱与实验符合得非常完美. 例如, 在椭偏激光短轴方向, 离子的动量谱呈现多峰状结构. 在较低激光强度时呈现三峰结构, 在很高的激光强度下呈现四峰状结构, 如图12所示. 这与实验符合得很好. 在这些峰状结构中, 外面的两个峰对应的双电离事件, 两电子向相同的方向电离, 而中间的两个或一个峰, 两电子向相反的方向发射. 利用海森堡势经典系综模型, 还计算了同向发射和反向发射的双电离事件的比值与激光强度的关系, 也呈现震荡现象, 并且在高激光强度下, 此比值小于1, 与实验符合很好.

利用海森堡势经典系综模型计算得到的电子动量谱可以推算电子的电离时间<sup>[59]</sup>, 结果如图13所示. 可以看出, 海森堡势经典系综模型得到的电离时间与实验结果定量符合, 而以前的基于独立电子近似的理论模型得到的第二个电子电离时间相差甚远. 这些结果证实了海森堡势经典系综模型的准确性. 因为目前还

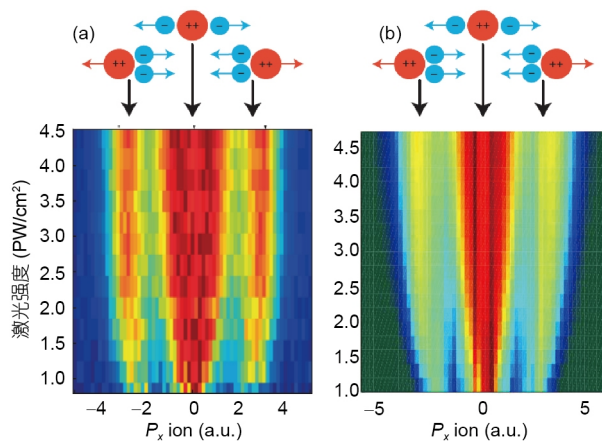


图12 (网络版彩图) 氩原子在椭偏光驱动下的次序双电离得到的 $\text{Ar}^{2+}$ 沿激光偏振面短轴方向的动量分布与激光强度的关系. (a) 实验结果<sup>[57]</sup>; (b) 海森堡势经典模型的理论计算结果<sup>[60]</sup>. 上图表示电子电离出射方向示意图

Figure 12 (Color online) Momentum distribution along the minor axis of the elliptical laser pulses from SDI of  $\text{Ar}^{2+}$ , as a function of laser intensity. (a) and (b) are the experimental results and numerical results from the Heisenberg-potential classical model, respectively. The upper diagrams illustrated the emission direction of the electrons and ion. (a) and (b) are adopted from refs. [57] and [60], respectively.

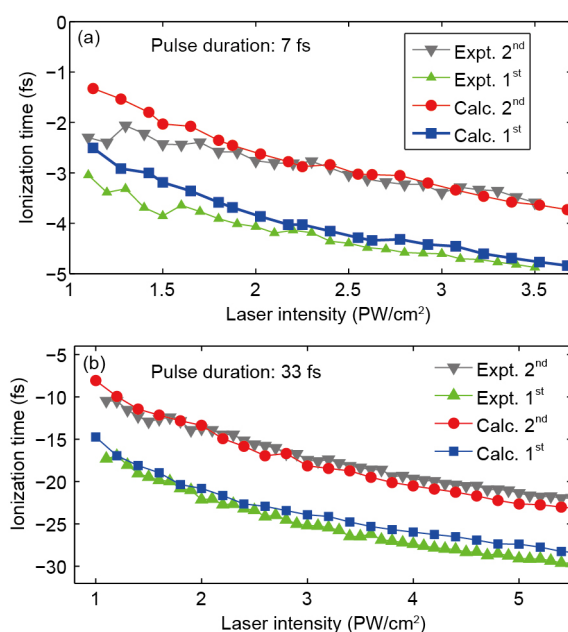


图13 (网络版彩图) 氩原子在椭偏光驱动下次序双电离过程中两电子的电离时间<sup>[59,60]</sup>. (a)和(b)的激光脉冲的脉宽分别为7和33 fs

Figure 13 (Color online) Ionization times of the two electrons in SDI of Ar by the elliptical laser pulses [59,60]. The pulse durations for the upper and lower plots are 7 (a) and 33 fs (b), respectively.

没有其他能有效描述强场次序双电离的理论模型, 海森堡模型是人们研究高激光强度下次序双电离多电子过程的重要理论工具.

在海森堡势经典系综模型中, 强场次序双电离的整个过程都包含了电子关联作用, 在现有的隧穿理论模型中, 没有考虑电子关联, 隧穿理论与实验结果的偏差, 到底是来自于电子关联, 还是由于现有隧穿理论在高激光强度下计算的电离率不准确, 还是一个争论的问题.

在椭偏光驱动的次序双电离中, 当椭偏光的瞬时电场指向椭偏光主轴方向时有一个电离脉冲发生. 因而, 每半个光周期有一个电离脉冲. 通常次序电离中每一个电子电离的持续时间大于1个光周期, 因此, 对于每一个电子, 有多个亚光周期的电离脉冲, 电子和离子的动量谱会呈现多峰状结构. 但是在已有的实验中每一个电子只观测到一个电离峰. 可以推测, 这些实验中, 电子的电离峰应该包含了多个子峰, 每一子峰对应于一个亚光周期的电离脉冲. 这种亚光周期的电子发射现象还从未被观测到. 利用上述海森堡势经典系综模型, Tong等人<sup>[61]</sup>预言了观测次序双电离亚光

周期电离脉冲的实验条件. 图14出了不同脉宽激光驱动的次序双电离的离子二维动量谱. 当激光脉宽增加时, 逐渐由双峰结构向四峰结构转变, 再变成六峰结构, 这些峰对应了两个电子的亚光周期的电离脉冲. 当激光脉冲继续增加时, 动量分布又演化成四峰结构, 以前实验观测到的四峰结构就对应这种情况. 此结果指出, 长脉冲的四峰结构中其实包含了多个子峰, 这些子峰之间的距离太小, 以至于无法分辨. 要观测次序双电离亚光周期的电离, 需要选择合适的脉宽. 最近的实验利用周期量级的激光脉冲, 已经成功观测到氩原子次序双电离离子动量谱的六峰结构, 这种多峰结构直接反应了亚光周期的电离现象<sup>[62]</sup>. 利用波长更长的激光脉冲, 这种亚光周期的电子现象更容易被观测.

#### 4 总结

本文回顾了近年来强场非次序双电离和次序双电离的研究进展. 结合冷靶反冲离子动量成像谱仪的双电离实验和相关的理论模型, 强场次序双电离、非次序双电离微观动力学过程不断被揭示. 本文简单总结了不同激光强度的近红外激光驱动的非次序双电离的实验及理论研究, 以及这些研究所揭示的关联电子再散射的微观动力学过程. 需要指出的是, 再散射也是许多其他强场现象的原因<sup>[63-68]</sup>, 如高次谐波、高阶阈上电离等. 本文还介绍了周期量级激光脉冲、特

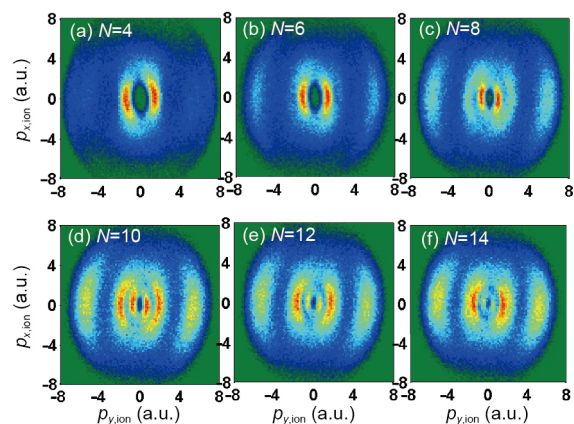


图14 (网络版彩图)不同脉宽的椭偏激光驱动的氩原子次序双电离离子在激光偏振平面的动量谱<sup>[61]</sup>.  $N$ 为激光脉冲所包含的激光周期数

Figure 14 (Color online) Momentum distributions of  $\text{Ar}^{2+}$  in the laser polarized plane [61].  $N$  indicates the numbers of optical cycles of the pulses.

别是正交双色场对非次序双电离电子对关联特性控制的研究. 以往人们对次序双电离的关注较少, 但是近几年的实验发现了一些与人们现有认识相悖的新现象而被重视. 本文介绍了相关的次序双电离的实验研究以及为解释这些新现象而发展起来的理论. 这些研究对人们深入认识原子分子内部的电子关联、进而从根本上认识自然界的关联电子相互作用过程具有重要意义.

#### 参考文献

- 1 L'Huillier A, Lompre L A, Mainfray G, et al. Multiply charged ions induced by multiphoton absorption in rare gases at 0.53  $\mu\text{m}$ . *Phys Rev A*, 1983, 27: 2503-2512
- 2 Fittinghoff D N, Bolton P R, Chang B, et al. Observation of nonsequential double ionization of helium with optical tunneling. *Phys Rev Lett*, 1992, 69: 2642-2645
- 3 Walker B, Sheehy B, Dimauro L F, et al. Precision measurement of strong field double ionization of helium. *Phys Rev Lett*, 1994, 73: 1227-1230
- 4 Eichmann U, Dörr M, Maeda H, et al. Collective multielectron tunneling ionization in strong fields. *Phys Rev Lett*, 2000, 84: 3550-3553
- 5 Schafer K J, Yang B, Dimauro L F, et al. Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff. *Phys Rev Lett*, 1993, 70: 1599-1602
- 6 Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Phys Rev Lett*, 1993, 71: 1994-1997
- 7 Fittinghoff D N, Bolton P R, Chang B, et al. Polarization dependence of tunneling ionization of helium and neon by 120-fs pulses at 614 nm. *Phys Rev A*, 1994, 49: 2174-2177
- 8 Ullrich J, Moshhammer R, Dorn A, et al. Recoil-ion and electron momentum spectroscopy: Reaction-microscopes. *Rep Prog Phys*, 2003, 66: 1463-1545
- 9 Weber T, Weckenbrock M, Staudte A, et al. Recoil-ion momentum distributions for single and double ionization of helium in strong laser fields. *Phys Rev Lett*, 2000, 84: 443-446
- 10 Moshhammer R, Feuerstein B, Schmitt W, et al. Momentum distributions of  $\text{Ne}^{m+}$  ions created by an intense ultrashort laser pulse. *Phys Rev Lett*, 2000, 84: 447-450

- 11 Weber T, Giessen H, Weckenbrock M, et al. Correlated electron emission in multiphoton double ionization. *Nature*, 2000, 405: 658–661
- 12 Weckenbrock M, Zeidler D, Staudte A, et al. Fully differential rates for femtosecond multiphoton double ionization of neon. *Phys Rev Lett*, 2004, 92: 213002
- 13 Liu Y, Tschuch S, Rudenko A, et al. Strong-field double ionization of Ar below the recollision threshold. *Phys Rev Lett*, 2008, 101: 053001
- 14 Parker J S, Doherty B J S, Taylor K T, et al. High-energy cutoff in the spectrum of strong-field nonsequential double ionization. *Phys Rev Lett*, 2006, 96: 133001
- 15 Hu S X. Boosting photoabsorption by attosecond control of electron correlation. *Phys Rev Lett*, 2013, 111: 123003
- 16 Becker A, Faisal F H M. Interpretation of momentum distribution of recoil ions from laser induced nonsequential double ionization. *Phys Rev Lett*, 2000, 84: 3546–3549
- 17 Kopold R, Becker W, Rottke H, et al. Routes to nonsequential double ionization. *Phys Rev Lett*, 2000, 85: 3781–3784
- 18 Chen J, Liu J, Fu L B, et al. Interpretation of momentum distribution of recoil ions from laser-induced nonsequential double ionization by semi-classical rescattering model. *Phys Rev A*, 2000, 63: 011404
- 19 Fu L B, Liu J, Chen S G. Correlated electron emission in laser-induced nonsequence double ionization of helium. *Phys Rev A*, 2002, 65: 021406
- 20 Panfili R, Haan S L, Eberly J H. Slow-down collisions and nonsequential double ionization in classical simulations. *Phys Rev Lett*, 2002, 89: 113001
- 21 Haan S L, Breen L, Karim A, et al. Variable time lag and backward ejection in full-dimensional analysis of strong-field double ionization. *Phys Rev Lett*, 2006, 97: 103008
- 22 Chen Y, Zhou Y, Li Y, et al. The contribution of the delayed ionization in strong-field nonsequential double ionization. *J Chem Phys*, 2016, 144: 024304
- 23 Xu T T, Ben S, Wang T, et al. Exploration of the nonsequential double-ionization process of a Mg atom with different delay time in few-cycle circularly polarized laser fields. *Phys Rev A*, 2015, 92: 033405
- 24 Dong S, Zhang Z, Bai L, et al. Scaling law of nonsequential double ionization. *Phys Rev A*, 2015, 92: 033409
- 25 Haan S L, Smith Z S, Shomsky K N, et al. Anticorrelated electrons from weak recollisions in nonsequential double ionization. *J Phys B-At Mol Opt Phys*, 2008, 41: 211002
- 26 Ye D F, Liu J. Strong-field double ionization at the transition to below the recollision threshold. *Phys Rev A*, 2010, 81: 043402
- 27 Zhou Y, Huang C, Lu P. Coulomb-tail effect of electron-electron interaction on nonsequential double ionization. *Phys Rev A*, 2011, 84: 023405
- 28 Yu B, Zhang D, Li Y, et al. Electron correlations in nonsequential double ionization of helium at intensity below the recollision threshold. *J Modern Optics*, 2012, 59: 679–685
- 29 Zhang Z, Bai L, Zhang J. Double ionization of Ar below the recollision threshold intensity. *Phys Rev A*, 2014, 90: 023410
- 30 Hao X L, Chen J, Li W D, et al. Quantum effects in double ionization of argon below the threshold intensity. *Phys Rev Lett*, 2014, 112: 073002
- 31 Maxwell A S, Faria C F M. Controlling below-threshold nonsequential double ionization via quantum interference. *Phys Rev Lett*, 2016, 116: 143001, arXiv: [1507.06825](https://arxiv.org/abs/1507.06825)
- 32 Zhou Y, Liao Q, Lu P. Mechanism for high-energy electrons in nonsequential double ionization below the recollision-excitation threshold. *Phys Rev A*, 2009, 80: 023412
- 33 Liu Y, Fu L, Ye D, et al. Strong-field double ionization through sequential release from double excitation with subsequent coulomb scattering. *Phys Rev Lett*, 2014, 112: 013003
- 34 Ye D, Li M, Fu L, et al. Scaling laws of the two-electron sum-energy spectrum in strong-field double ionization. *Phys Rev Lett*, 2015, 115: 123001
- 35 Ma X, Zhou Y, Lu P. Multiple recollisions in strong-field nonsequential double ionization. *Phys Rev A*, 2016, 93: 013425
- 36 Staudte A, Ruiz C, Schöffler M, et al. Binary and recoil collisions in strong field double ionization of helium. *Phys Rev Lett*, 2007, 99: 263002
- 37 Rudenko A, De Jesus V L B, Ergler T, et al. Correlated two-electron momentum spectra for strong-field nonsequential double ionization of He at 800 nm. *Phys Rev Lett*, 2007, 99: 263003
- 38 Haan S L, Van Dyke J S, Smith Z S. Recollision excitation, electron correlation, and the production of high-momentum electrons in double ionization. *Phys Rev Lett*, 2008, 101: 113001
- 39 Ye D F, Liu X, Liu J. Classical trajectory diagnosis of a fingerlike pattern in the correlated electron momentum distribution in strong field double ionization of helium. *Phys Rev Lett*, 2008, 101: 233003, arXiv: [0802.0041](https://arxiv.org/abs/0802.0041)
- 40 Zhou Y, Liao Q, Lu P. Asymmetric electron energy sharing in strong-field double ionization of helium. *Phys Rev A*, 2010, 82: 053402, arXiv: [1007.5420](https://arxiv.org/abs/1007.5420)
- 41 Chen Z, Liang Y, Lin C D. Quantum theory of recollisional (e, 2e) process in strong field nonsequential double ionization of helium. *Phys Rev*

- [Lett](#), 2010, 104: 253201
- 42 Bergues B, Kübel M, Johnson N G, et al. Attosecond tracing of correlated electron-emission in non-sequential double ionization. [Nat Commun](#), 2012, 3: 813
- 43 Kübel M, Kling N G, Betsch K J, et al. Nonsequential double ionization of N<sub>2</sub> in a near-single-cycle laser pulse. [Phys Rev A](#), 2013, 88: 023418
- 44 Huang C, Zhou Y, Zhang Q, et al. Contribution of recollision ionization to the cross-shaped structure in nonsequential double ionization. [Opt Express](#), 2013, 21: 11382–11390
- 45 Wolter B, Pullen M G, Baudisch M, et al. Strong-field physics with mid-IR fields. [Phys Rev X](#), 2015, 5: 021034, arXiv: [1506.03636](#)
- 46 Liu X, Rottke H, Eremina E, et al. Nonsequential double ionization at the single-optical-cycle limit. [Phys Rev Lett](#), 2004, 93: 263001
- 47 Johnson N G, Herrwerth O, Wirth A, et al. Single-shot carrier-envelope-phase-tagged ion-momentum imaging of nonsequential double ionization of argon in intense 4-fs laser fields. [Phys Rev A](#), 2011, 83: 013412
- 48 Li H, Chen J, Jiang H, et al. Carrier-envelope phase dependence of non-sequential double ionization in few-cycle pulses. [Opt Express](#), 2008, 16: 20562–20570
- 49 Camus N, Fischer B, Kremer M, et al. Attosecond correlated dynamics of two electrons passing through a transition state. [Phys Rev Lett](#), 2012, 108: 073003
- 50 Zhou Y, Liao Q, Zhang Q, et al. Controlling nonsequential double ionization via two-color few-cycle pulses. [Opt Express](#), 2010, 18: 632–638
- 51 Zhou Y, Huang C, Liao Q, et al. Control the revisit time of the electron wave packet. [Opt Lett](#), 2011, 36: 2758–2760
- 52 Zhou Y, Huang C, Tong A, et al. Correlated electron dynamics in nonsequential double ionization by orthogonal two-color laser pulses. [Opt Express](#), 2011, 19: 2301–2308
- 53 Zhang L, Xie X, Roither S, et al. Subcycle control of electron-electron correlation in double ionization. [Phys Rev Lett](#), 2014, 112: 193002
- 54 Fleischer A, Wörner H J, Arissian L, et al. Probing angular correlations in sequential double ionization. [Phys Rev Lett](#), 2011, 107: 113003
- 55 Maharjan C M, Alnaser A S, Tong X M, et al. Momentum imaging of doubly charged ions of Ne and Ar in the sequential ionization region. [Phys Rev A](#), 2005, 72: 041403
- 56 Wang X, Eberly J H. Effects of elliptical polarization on strong-field short-pulse double ionization. [Phys Rev Lett](#), 2009, 103: 103007, arXiv: [0907.0481](#)
- 57 Pfeiffer A N, Cirelli C, Smolarski M, et al. Timing the release in sequential double ionization. [Nat Phys](#), 2011, 7: 428–433
- 58 Pfeiffer A N, Cirelli C, Smolarski M, et al. Breakdown of the independent electron approximation in sequential double ionization. [New J Phys](#), 2011, 13: 093008
- 59 Zhou Y, Huang C, Liao Q, et al. Classical simulations including electron correlations for sequential double ionization. [Phys Rev Lett](#), 2012, 109: 053004, arXiv: [1204.3956](#)
- 60 Zhou Y, Zhang Q, Huang C, et al. Classical description of strong-field double ionization by elliptical laser pulses. [Phys Rev A](#), 2012, 86: 043427
- 61 Tong A, Zhou Y, Lu P. Resolving subcycle electron emission in strong-field sequential double ionization. [Opt Express](#), 2015, 23: 15774–15783
- 62 Schöffler M S, Xie X, Wustelt P, et al. Laser-subcycle control of sequential double-ionization dynamics of helium. [Phys Rev A](#), 2016, 93: 063421
- 63 Zhou Y, Tolstikhin O I, Morishita T. Near-forward rescattering photoelectron holography in strong-field ionization: Extraction of the phase of the scattering amplitude. [Phys Rev Lett](#), 2016, 116: 173001
- 64 Li M, Zhang P, Luo S, et al. Selective enhancement of resonant multiphoton ionization with strong laser fields. [Phys Rev A](#), 2015, 92: 063404, arXiv: [1510.05327](#)
- 65 Zhu X, Lan P, Liu K, et al. Helicity sensitive enhancement of strong-field ionization in circularly polarized laser fields. [Opt Express](#), 2016, 24: 4196–4209
- 66 He L, Lan P, Zhang Q, et al. Spectrally resolved spatiotemporal features of quantum paths in high-order-harmonic generation. [Phys Rev A](#), 2015, 92: 043403, arXiv: [1502.07422](#)
- 67 Wang Z, Li M, Zhou Y, et al. Counterintuitive energy shifts in joint electron-nuclear-energy spectra of strong-field fragmentation of H<sup>2+</sup>. [Phys Rev A](#), 2016, 93: 013418
- 68 He M, Li Y, Zhou Y, et al. Temporal and spatial manipulation of the recolliding wave packet in strong-field photoelectron holography. [Phys Rev A](#), 2016, 93: 033406

# Correlated electron dynamics in strong-field double ionization

ZHOU YueMing<sup>1</sup> & LU PeiXiang<sup>1,2\*</sup>

<sup>1</sup> *School of Physics, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China;*

<sup>2</sup> *Laboratory of Optical Information Technology, Wuhan Institute of Technology, Wuhan 430205, China*

In intense laser-atom/molecule interaction, there are many new phenomena involving multielectron effects. As one of the most important strong-field process, strong-field double ionization of atoms and molecules, especially the strong-field nonsequential double ionization (NSDI), exhibits highly correlated behaviors, providing a clean way to study electron correlation in nature. We review the microscopic electron dynamics of NSDI revealed by recent experimental studies based on the COLTRIMS and the related theory contributions. We summarized the laser intensity-dependent microscopic electron dynamics of NSDI. At low laser intensities, NSDI is dominated by the recollision-excitation with subsequent field ionization, and the time delay between the final ionizations of the two electrons could result in the experimentally observed back-to-back emission of the electron pairs. As the laser intensity increases, recollision-induced direct ionization dominates NSDI and two electrons ionized almost simultaneously after recollision. In this process the final-state ion-electron attraction and electron repulsion significantly affect the details of the electron correlation pattern. As the laser intensity further increases, the role of final-state ion-electron and electron-electron interactions becomes less important, and the asymmetric energy sharing at recollision is prevalent which accounts for the strange V-like shape in the correlated electron momentum spectra at very high laser intensity. We also introduced the control of the correlated electron dynamics. It has been theoretically predicted that the electron pairs can be controlled to exhibit correlated or anticorrelated behavior with the two-color field, which has been proved by experiment. We also review the progress on strong-field sequential double ionization (SDI). Recent experiments have observed many phenomena which conflicted with the predictions of the previous theoretical models of SDI. Here we introduced a recently developed model of strong-field SDI, which successfully explained the new experimental results and predicted many interesting results.

**strong-field double ionization, electron correlation, femtosecond laser, ultrafast dynamics**

**PACS:** 32.80.Rm, 31.90.+s, 32.80.Fb

**doi:** [10.1360/SSPMA2016-00365](https://doi.org/10.1360/SSPMA2016-00365)