

文章编号:1005-4642(2021)04-0001-10



强激光场下原子分子量子隧穿实验测量

王济国¹,余晓阳¹,刘运全^{1,2,3}

(1. 北京大学 物理学院 人工微结构与介观物理国家重点实验室,北京 100871;
2. 量子物质协同创新中心,北京 100871;
3. 极端光学协同创新中心,山西 太原 030006)

摘 要:强激光场下原子分子的多光子电离和隧道电离是极端条件下的量子现象,也是强场光物理中基本的动力学过程. 测量原子分子在强激光场中的超快动力学对探索微观粒子内部结构和相互作用有重要意义. 本文简述强场光电离中的基本概念和现象,并介绍强激光与原子分子相互作用研究中的重要仪器——冷靶反冲离子动量成像谱仪(COLT-RIMS),最后展示了基于 COLTRIMS 系统研究电子隧穿过程中势垒下相位对光电子动量谱的影响.

关键词:强场光物理;隧道电离;冷靶反冲离子动量成像谱仪;势垒下相位

中图分类号:O437

文献标识码:A

DOI:10.19655/j.cnki.1005-4642.2021.04.001

1 强场光物理简介

光与物质之间的相互作用是一百多年来物理学研究的重要领域. 自 1960 年 Maiman 发明第 1 台激光器^[1]以来,激光凭借其高光强、高相干性等特点,极大地促进了光与物质相互作用的研究^[2]. 随着调 Q 技术、锁模技术,特别是啁啾脉冲放大(CPA)技术^[3]的出现,激光的脉冲宽度不断被压缩,同时激光的峰值光强也在不断提高. 如今,已经可以较为轻松地获得脉宽在飞秒(fs)量级的超短脉冲激光,聚焦后的峰值强度可以达到甚至超过 10^{15} W/cm²,对应的电场强度达到 10^9 V/cm,可以和原子内部电子受到的库仑场相比较(氢原子中,第一玻尔半径上的电子所受到的库仑电场大小约为 5×10^9 V/cm). 处于这种极端光场下,原子分子的动力学过程已无法用传统的光与物质相互作用的理论来描述,伴随而来的是一系列新奇有趣的非线性现象,如多光子电离^[4-5]、隧道电离^[6-9]、阈上电离^[10-11]、分子解离与库仑爆炸^[12-14]、高次谐波^[15-17]、非序列双(多)电离^[18-20]等. 目前实验室聚焦后的激光光强已经可以达到 10^{22} W/cm²^[21],使用这种超强激光场可以加速电子、质子

等. 这些新现象的出现极大地促进了人们对光与物质相互作用过程的理解,同时也催生了新的领域,即强场超快光物理.

1.1 原子分子在强激光场下的电离

原子分子在强激光场中会以一定的概率发生电离,通常电离行为可通过 Keldysh 参量^[22]进行分类,它的表达式为

$$\gamma = \frac{\omega \sqrt{2m_e I_p}}{eE},$$

其中 ω 是脉冲激光的载波频率, m_e 和 e 分别是电子的质量和电荷, I_p 是原子或分子的电离能, E 是脉冲激光的峰值电场强度. 当 $\gamma \gg 1$ 时,激光强度相对较小,电场振荡较快,原子分子可以同时吸收多个光子从基态跃迁到连续态,发生多光子电离. 当 $\gamma \ll 1$ 时,激光场变化速度较慢,原子分子内部的库仑势在激光场的作用下将被压弯,形成缓变的势垒,电子可以从缓变的势垒隧穿出来,发生隧道电离. 而当 $\gamma \sim 1$ 时,多光子电离和隧穿电离并存,电离处于非绝热区.

1.1.1 多光子电离与阈上电离

根据爱因斯坦对光电效应的解释,原子中的电子可以吸收 1 个光子后电离,而如果单光子能

收稿日期:2020-12-24

基金项目:国家自然科学基金项目(No. 92050201)

作者简介:王济国(1997—),男,山东临沂人,北京大学物理学院 2019 级博士研究生,从事强场光物理方向的研究. E-mail:jiguo_wang@pku.edu.cn

通讯作者:刘运全(1979—),男,安徽宿州人,北京大学物理学院教授,博士,从事强场光物理方向的研究. E-mail:yunquan.liu@pku.edu.cn



量小于电离能,则电离不会发生.在当时的实验条件,光场强度较低,电子吸收多个光子的概率远远小于吸收 1 个光子的概率,在实验上难以观测.但是对于脉冲宽度小于 1 ps,激光峰值强度超过 10^{13} W/cm² 的脉冲激光,可以有上千个光子在极短的时间内通过 1×10^{-2} nm² 的原子截面^[23],原子或分子有很大的概率同时吸收多个光子发生电离,即多光子电离,如图 1(a)所示,该现象在 1979 年被 Agostini 等人的氙原子电离实验所验证^[4].此时激光光强虽然远大于一般条件下的光强(常见的 He-Ne 连续激光光强一般不超过 1 W/cm²),但激光电场依然远小于原子内部的库仑场,因此可以用高阶的微扰论来处理^[24].电子吸收 n 个光子的电离率 ω_n 和光强 I 有如下关系:

$$\omega_n = \sigma_n I^n,$$

其中 σ_n 是吸收 n 个光子的吸收截面,电离后的电子能量 E_n 为

$$E_n = n\hbar\omega - I_p - U_p,$$

其中 $U_p = \frac{e^2 E^2}{4m_e \omega^2}$ 为有质动力能,是自由电子在周期振荡的激光场中获得的平均动能,在激光场的作用下,由于交流-斯塔克(AC-Stark)效应,原子的有效电离能会增加 U_p ,从而导致电离后的电子能量减少.如果在电离过程中电子吸收的光子数 n 大于电离所需的最小光子数,则称为阈上电离(ATI),如图 1(b)所示.

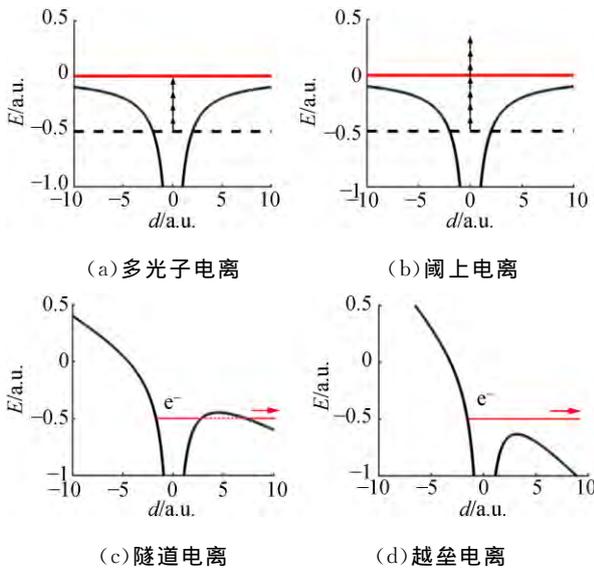


图 1 强激光场下的电离

1.1.2 隧道电离与越垒电离

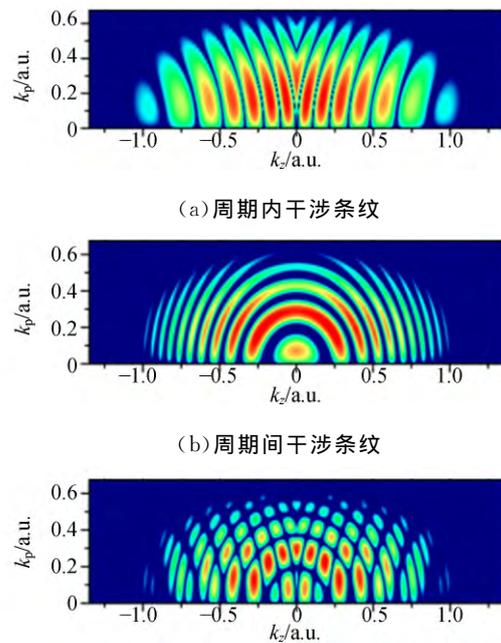
随着激光光强的进一步增加,原子内部的库

仑势将被激光电场压弯形成缓变的势垒,如图 1(c)所示,由量子力学可知,电子可以从这个势垒中隧穿出去进入连续态,即为隧道电离.描述隧道电离概率时最常用的模型为 ADK(Ammosov-Delone-Krainov)理论,其电离概率 W_{ADK} 随电场强度的增加呈指数增加^[25],

$$W_{ADK} = \sqrt{\frac{3n^{*3}E}{\pi Z^3}} \frac{ED^2}{8\pi Z} \exp\left(-\frac{2Z^3}{3n^{*3}E}\right),$$

其中, $n^* = \frac{Z}{\sqrt{2I_p}}$, $D = \left(\frac{4Z^3}{En^{*4}}\right)^{n^*}$, Z 是电离后离子携带的电荷量.如进一步增大激光场强度,势垒高度逐渐下降,当势垒的最高点低于束缚态电子能量时,会发生越垒电离,如图 1(d)所示.

隧穿之后的电子将在激光场和离子库仑场作用下继续传播,如果不同时刻电离的电子最后演化到相同的末态动量上,那么这些电子将在动量空间发生量子干涉效应,形成干涉条纹.例如,同一激光周期内不同时刻电离的电子演化到相同的末态动量上,将会发生周期内干涉,在光电子动量谱上形成径向的干涉条纹,如图 2(a)所示;不同周期内电离的电子演化到相同的末态动量上将发生周期间干涉,形成环状的干涉条纹,如图 2(b)所示.环状结构的电子能量为一定值,在频域上对应着上文讲述的阈上电离.这 2 种干涉结构相互叠加的结果如图 2(c)所示.



(c) 2 种条纹的相干叠加

图 2 动量空间发生量子干涉^[26]

1.2 强场电离实验测量技术

飞秒激光与原子分子相互作用,会发生电离和解离等过程,产生许多电子和离子碎片. 在实验上,可以通过测量这些电子和离子碎片的三维动量谱,来研究强场物理中的超快动力学过程. 目前用于测量粒子动量的实验装置中,较为常用的是速度成像仪(Velocity map imaging, VMI)^[27]和冷靶反冲离子动量成像谱仪(Cold target recoil-ion momentum spectroscopy, COLTRIMS)^[28]. VMI 主要利用切片成像技术,得到光解产物的动量分布和角分布等信息. 该装置可以达到很高的速度分辨率(1%)以及较快的采样速率,但是无法进行全空间立体角下的电子-离子符合测量. 而 COLTRIMS 系统则可以很好地解决这一问题. 本文接下来将主要介绍 COLTRIMS 系统的原理及结构,以及我们课题组利用该系统在对强激光场隧道电离方面的研究.

2 COLTRIMS 系统原理与结构

COLTRIMS 系统可以对靶原子分子电离或解离后产生的电子与离子碎片进行三维动量的高分辨率测量,并可以通过符合测量技术,区分探测到的电子和离子是否来自同一个母体原子(或分子),是研究原子分子超快动力学的有力工具,也被称为反应显微镜(Reaction microscope). 它一般由超高真空系统、探测器、超音速冷靶气体分子束、亥姆霍兹线圈、质谱仪和聚焦镜等部分构成.

2.1 超高真空系统

超高真空系统是 COLTRIMS 系统的重要组成部分,它由主腔、准直腔、扩散腔、喷射腔和多组真空泵构成,具体结构如图 3 所示(部分图片内容来源于文献[29]),实验所必需的超音速冷靶气体分子束、电子探测器、离子探测器以及聚焦镜等都位于真空系统中. COLTRIMS 系统对于真空度有着极高的要求,其主要原因有 2 点:一是电离产生的电子和离子在到达探测器的过程中不能与其他任何粒子发生碰撞,这要求真空腔内气体分子的平均自由程大于激光作用区域到探测器之间的距离;二是为了实现符合测量,需要确保同时探测到的电子和离子来源于同一个母体原子或分子,这意味着聚焦后的激光 1 个脉冲内最多只能电离 1 个原子或分子. 通过计算可知,这需要 10^{-11} mbar(1 bar= 10^5 Pa,约为 1 个大气压)量级的超

高背景真空.

COLTRIMS 系统的主体结构如图 3 所示,它由 4 个彼此连通的腔体组成,根据分子束进气的方向,依次为喷射腔、扩散腔、准直腔以及主腔,其内部的超高真空主要通过多组级联的真空泵组来维系. 腔体之间仅通过小孔和狭缝相连,形成了 1 个气压的差分系统. 如果需要更大的进气量,可以通过增加扩散腔的真空泵组或增加腔体的方式来维持主腔内的真空度,但是随着腔体的增多,超音速分子束的准直难度也将增加.

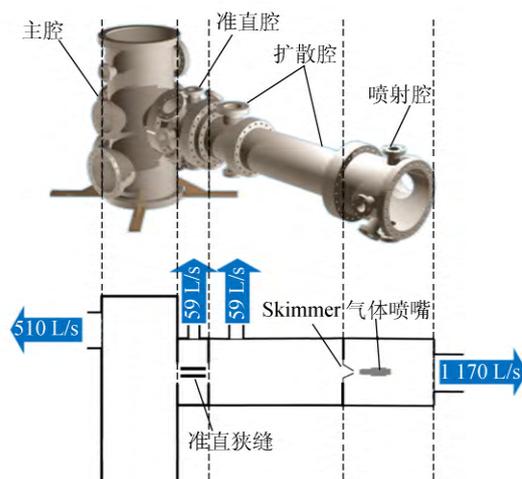


图 3 COLTRIMS 系统真空腔结构示意图

喷射腔是靶分子气体进入处,其中放置有进气喷嘴,由于实验时进气量很大(进气压强为 3 bar 左右),为保证其他腔室的真空度,该腔与扩散腔之间通过漏斗状 Skimmer 相连接. 喷射腔使用抽速为 1 170 L/s 的分子泵和 36 L/s 的超级干泵将腔内气体抽出. 在喷嘴未进气时腔内气压为 8.0×10^{-9} mbar,在喷嘴进气时气压则控制在 $10^{-3} \sim 10^{-4}$ mbar.

从喷嘴喷出的气体中仅有一小部分可以经过 Skimmer 尖端的小孔进入扩散腔. 扩散腔单独使用 1 台抽速为 59 L/s 的分子泵,并与准直腔共用 1 台抽速为 3.5 L/s 的涡旋机械泵. 其真空度在未进气时为 4.3×10^{-10} mbar,进气后约为 1.0×10^{-6} mbar.

准直腔两端各以直径 1 mm 的准直小孔与扩散腔和主腔相连接,它同样单独使用 1 台抽速为 59 L/s 的分子泵,并与扩散腔共用 1 台抽速为 3.5 L/s 的涡旋机械泵. 准直腔真空度在分子束未进气时约为 1.4×10^{-10} mbar,进气后约为

2.0×10^{-9} mbar.

主腔内是激光脉冲和靶分子相互作用,以及探测反应产物处,对真空度的要求也最高,该腔使用抽速为 510 L/s 的分子泵和 210 L/s 的涡旋机械泵抽取气体,在工作时其真空度可以达到 5.0×10^{-11} mbar.

在实际使用过程中,真空腔的内壁通常吸附有大量分子,包括水蒸气、残留的用于清洁的酒精、丙酮等,这些附着的分子在分子泵和机械泵工作时缓慢向腔体内释放,这将极大地影响腔内的真空度,对于有复杂内部结构的腔体,由于其表面积更大,吸附分子更多,影响更为严重.因此,通过对主腔进行加热的方式来促进吸附分子的释放,以达到更高的真空度.加热的温度越高,吸附分子释放得也越快,但是为了防止测量仪器及其电路的损坏,一般将温度控制在 110°C 以下,并连续加热 7~10 d.此外,还要确保升温 and 降温的速度不超过 $10^\circ\text{C}/\text{h}$,防止进光窗片(厚度为 1 mm 的熔融石英片)因为温度变化过快发生形变而毁坏.此外,准直腔和主腔直接相连,其真空度对主腔的真空度会有较大影响,因此也需一同加热.

2.2 超音速气体分子束

为了提高实验测量效率和精度,不仅需要尽可能降低背景气体密度,还要对靶分子气体进行控制,这主要包括 3 点:a. 粒子数密度要合适,既要防止粒子数密度过高无法进行符合测量,也要防止粒子数密度过低影响采集速度,导致信噪比下降;b. 分子束的空间位置,应该尽可能地与激光的焦点位置相重合;c. 要尽可能降低靶分子束的热力学温度.在理想状况下,希望每个靶分子在和激光脉冲相互作用时运动状态都一致,否则,靶分子无规则的热运动,将影响 COLTRIMS 系统的分辨率.普通的热扩散气体靶无法满足上面的要求,因此在实验中采用超音速气体冷靶.

实现超音速气体冷靶的方法是让高压气体(压强为 p_0 ,温度为 T_0)通过直径较小(通常为 $10\sim 100\ \mu\text{m}$)的喷嘴向低压区(接近于真空,压强为 p_b)扩散,气体在此过程将发生绝热膨胀,热力学温度迅速下降的同时形成了复杂结构,如图 4 所示.气体结构可以通过马赫数 M 来进行划分.在经过喷嘴扩散时,由于内外压强差较大,气体加速向外喷射,马赫数迅速增加,形成连续区.在这一过程中,气体数密度迅速下降,在通过退出面之

后会形成超音速静寂区,该区域内,气体分子的纵向运动速度远远超过音速,但是相对热运动速度很小,热力学温度可以降低到十几 K,形成“冷靶”.在超音速静寂区外侧,由于超音速气体分子和背景气体分子之间的相互碰撞,有序分子平动被打破,形成较为混乱的冲击波层.

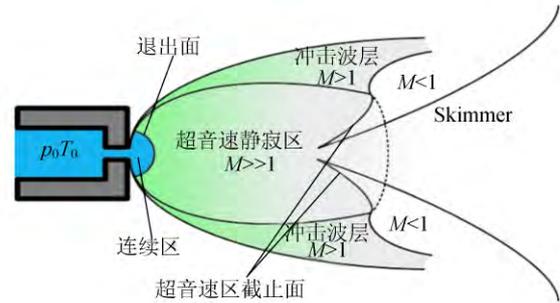


图 4 超音速气体冷靶示意图

根据这种气体的结构,可以使用尖端带有小孔的漏斗状 Skimmer,将其尖端插入超音速静寂区来提取该区域内的气体分子,得到热运动非常小的超音速气体冷靶.该冷靶的冷却效果与高压气体的初始温度 T_0 以及喷嘴前后的气压之比 p_0/p_b 有关,高压气体的初始温度 T_0 越低,喷嘴前后压强之比越大,冷却效果就越好.实验可采用对气体喷嘴进行预冷却提高进气气压,对喷射腔抽真空(降低背景气压)等方法来降低分子束的热力学温度,以提高 COLTRIMS 系统的分辨率.

超音速气体通过 Skimmer 进入扩散腔后,经过一段较长距离的飞行,还要通过准直腔两侧的准直小孔才能进入主腔内,这一过程会筛选掉横向速度较大的原子分子,因此最终通过小孔进入主腔内的,是纵向动量较大而横向动量较小,且彼此之间运动状态高度一致的“冷靶”气体分子束.气体分子的纵向动量虽然很大,但是每个分子的纵向动量近似相同,这意味可以通过后期的数据校准来消除纵向动量的影响,因此,使用这样的冷靶分子束可以达到很高的实验精度.准直腔内还放置二维的准直狭缝,如图 3 所示,用于对分子束空间位置和进气量的大小进行精准控制.

2.3 靶分子电离和解离产物的测量

主腔是 COLTRIMS 系统最重要的部分,脉冲激光与靶分子的相互作用,以及产生的电子、离子碎片的探测均在主腔进行,构造如图 5 所示.

超音速气体通过准直腔的准直小孔后沿 x

方向继续飞行,飞秒激光脉冲沿 y 方向入射,并通过腔内或腔外的聚焦镜聚焦到分子束上(聚焦镜一般安装在五维调节架上,其中三维为聚焦镜的空间位置,两维为镜面的倾斜角,可以精确控制焦点的位置).在焦点位置,飞秒激光脉冲与靶分子相互作用,产生包含着大量超快动力学信息的电子、离子碎片.焦点外由多层平行等间隔分布的空心铜片电极构成,其作用是产生 z 方向的平行电场,从而将反应产物中的电子和离子分开,并使其加速,最终达到位于主腔上下侧的电子和离子探测器上.探测器可以记录电子和离子的飞行时间(time-of-flight)以及到达探测器上的位置,由于这些电子和离子在电场中做经典运动,因此根据探测器记录的数据即可重构激光作用后电子和离子获得的三维动量信息.由于电子初始速度较大,为提高电子的收集效率,在主腔外侧添加亥姆霍兹线圈,在激光与靶分子的作用区域附近产生 z 方向的平行磁场(线圈方向有轻微倾斜,可抵消地磁场的影响).通过选择合适的磁场,可以使大部分电子在栅网内沿 x - y 平面做圆周运动,并始终位于探测器的有效探测范围内,实现电子初始动量的全空间立体角测量.对于离子,因其质量较大,一般不考虑磁场的影响.

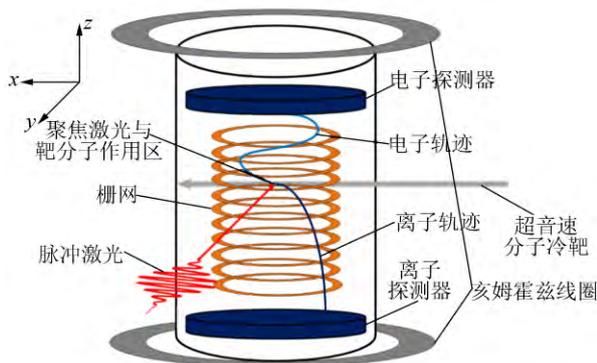


图 5 主腔内部结构示意图

电子和离子探测器主要由微通道板和延迟线探测器 2 部分构成,其中微通道板的主要作用是将电子和离子信号放大并记录达到时间.1 个微通道板由数百万个均匀排列的微通道构成,由于微通道板在工作时前后表面需要施加很高的电压差,故而这些通道中会有很强的电场.当有离子或者电子进入通道内部,会和通道内壁碰撞产生许多次级电子,这些次级电子又会被电场加速,然后继续与微通道内壁碰撞产生更多的次级电子,

形成雪崩效应.这一过程会持续到电子离开微通道板,并最终产生大量的次级电子,放大倍率为 $10^3 \sim 10^4$,而且可以通过串联微通道板的方式进一步提高放大倍率.在我们课题组的 COLT-RIMS 系统中,离子端探测器有 2 个串联的微通道板,总放大率能增加到 $10^6 \sim 10^7$,电子端探测器有 3 个串联的微通道板,放大率可以达到 10^8 .经过微通道板的放大后,单个的电子或离子放大为易于探测到的电子脉冲信号.在向后释放电子的同时,微通道板本身由于正电荷的积累,也会产生信号,从真空中解耦出来并记录此信号的时间,并与激光的触发信号做差,就可以得到电子或离子的飞行时间(激光传播所需的时间和电子器件的响应时间可以在数据较准时消除).离子在 z 方向上为电场作用下的匀加速运动(磁场对离子的作用可以忽略),因此可以通过飞行时间求解其 z 方向上的初始速度 v_{iz} 为

$$v_{iz} = \frac{l_{ia}}{t_i} - \frac{a_i t_i}{2},$$

其中, l_{ia} 和 t_i 分别为离子的加速区长度和飞行时间, $a_i = Eq/m_i$ 为离子的加速度, E 是加速区电场强度, q 和 m_i 则分别是离子的电荷与质量.为更精确测量电子飞行时间,避免初始位置不同导致的误差,一般需在电子的加速区后增加没有电场的漂移区,漂移区长度 l_{ed} 是加速区长度 l_{ea} 的 2 倍,则电子的飞行时间 t_e 可以表示为

$$t_e = \frac{\sqrt{v_{ez}^2 + 2l_{ea}} - v_{ez}}{a_e} + \frac{l_{ed}}{\sqrt{v_{ez}^2 + 2a_e l_{ea}}},$$

其中 $a_e = eE/m_e$ 是电子在加速区中的加速度, E 是加速区电场强度, e 和 m_e 分别是电子的电荷和质量.可以看出,漂移区的存在虽然提高了测量精度,但也增加了计算的难度.一般会近似选取可能的 v_{ez} 计算飞行时间 t_e ,然后通过迭代的方式使 t_e 接近实验测量值,这时选取的 v_{ez} 就是电子在 z 方向上的初始速度.

延迟线探测器在微通道板后,其作用是测量放大后电信号的 x 和 y 坐标.一般的延迟线探测器由 2 层或者 3 层缠绕方向不同的探测线构成,为了更好地收集电子信号,延迟线的电压会比微通道板后表面高 $200 \sim 300$ V.当有电子束打在探测线上时,会产生 1 个电子脉冲信号并向 2 端传导,探测线的 2 端分别会记录脉冲到达的时间,如图 6 所示.以 y 方向为例,1 个沿 y 方向进行缠

绕的探测线,不同 y 坐标的电子信号在探测线 2 端产生的时间差不同,根据时间差可计算 y 的具体数值. 由于电子信号在探测线中传播速度极快,为提高仪器分辨率,选择将探测线进行螺旋缠绕,以减慢电子信号在 y 方向上的速度. 假设电子信号在 y 方向传播的等效速度为 u ,延迟线 2 端记录的时间为 t_1 和 t_2 ,则电子信号的坐标 y (以探测器中心为坐标零点)可表示为

$$y = \frac{u}{2}(t_2 - t_1).$$

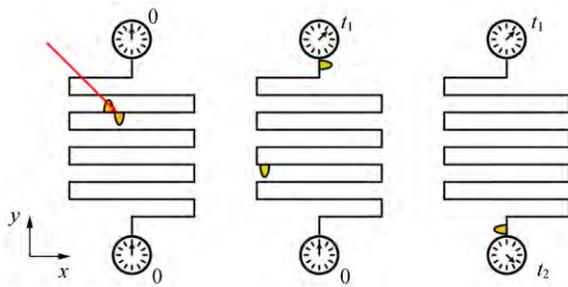


图 6 延迟线探测器工作原理

离子端延迟线由 2 层缠绕方向正交的探测线组成,可以记录产物离子到达探测器的 x 和 y 坐标,而电子端延迟线由 3 层缠绕方向夹角为 120° 的探测线组成,这意味着有 1 个多余的数据可以用于坐标位置的校准,使得测量到的数据更加准确. 由于离子质量较大,可以忽略磁场对其作用,因此它将在 x 和 y 方向上做匀速直线运动. 可以根据飞行时间和离子到达探测器的坐标 x_i 和 y_i 来计算离子在 x 和 y 方向上的初始速度:

$$v_{ix} = \frac{x_i}{t_i}, v_{iy} = \frac{y_i}{t_i}.$$

电子则在洛伦兹力的作用下做圆周运动,其初始速度为

$$v_{ex} = \frac{\omega}{2} \left(x_e \cot \frac{\omega t_e}{2} + y_e \right), v_{ey} = \frac{\omega}{2} \left(-x_e + y_e \cot \frac{\omega t_e}{2} \right),$$

其中, x_e, y_e 和 t_e 分别是电子到达探测器的 x, y 坐标和飞行时间, $\omega = eB/m_e$ 为电子做圆周运动的角速度, e 和 m_e 分别是电子的电荷和质量, B 是亥姆霍兹线圈产生的磁感应强度. 由于离子和电子的质量已知,因此它们的三维初始动量可以通过探测器测量到的数据进行重建.

利用 COLTRIMS 系统,课题组测量了氘气 (D_2) 分子在光强为 $2.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$,脉宽为 25 fs,中心波长为 795 nm 的椭圆偏振光场下电离和解离的离子与电子动量谱,如图 7 所示^[30],

其中(a)和(b)为 D_2 分子解离产生的氘离子(D^+)动量谱,图中左下角标注的是光场的椭圆偏率. 图 7(c)和(d)则是实验室坐标系下, D_2 分子在激光场中电离的电子动量谱. 但是在实验室坐标中,电子的动量分布不仅取决于分子结构和激光条件,还会受到 D_2 分子轴方向的影响,如果能得到固定于分子轴上的分子坐标系中的电子动量分布,就可以更清晰地得到分子结构等信息,而这需要借助 COLTRIMS 系统的符合测量能力. 通过电子和离子之间的符合测量,可以分辨来自于同一个母体分子的离子和电子,在轴向反冲近似^[31]下,可以忽略解离过程中分子轴的转动,同时离子由于其自身质量较大,可以忽略外场的作用,故 D^+ 的电离方向就可以认为是分子轴的方向,而电子动量方向和离子动量方向之间的夹角就是在电子在分子坐标系中的动量方向角. 通过这种方法,将实验数据处理之后得到了分子坐标系下的电子动量谱,如图 7(e)和(f)所示.

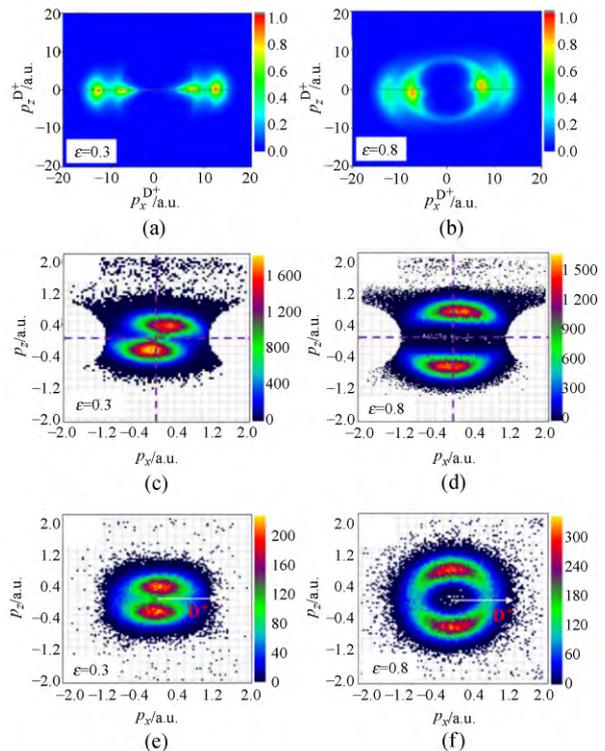


图 7 COLTRIMS 系统测量结果^[28]

3 COLTRIMS 在隧道电离方面应用

基于 COLTRIMS 技术,课题组展开了对强激光场作用下原子隧道电离的实验研究. 在量子力学中,电子的运动需要用波函数来描述,并且在运动过程中伴随着相位的变化. 总体上,激光场

中被电离的电子波包的相位 Φ 可以分成以下几个部分:

$$\Phi = \Phi_{\text{at}} + \Phi_{\text{sub}} + \Phi_{\text{light}} + \Phi_{\text{cc}},$$

其中, Φ_{at} 是束缚态电子轨道的相位, 对于磁量子数为 m 的电子态, $\Phi_{\text{at}} = e^{im\phi}$, 当 $m=0$ 时, 此相位可以忽略^[32]; Φ_{sub} 是电子在隧穿通过势垒时积累的相位, 包含着隧穿的动力学信息^[33]; Φ_{light} 是电子电离之后在激光场中运动时积累的相位; Φ_{cc} 则来源于原子核的库仑势, 由于在激光场和原子库仑势的共同作用下, 电子的波函数没有对应的解析解, 这一项只能通过数值计算得到. 目前, 对于 Φ_{light} 和 Φ_{cc} 已经有了相当多的理论和实验研究^[34-35], 但是隧穿过程中积累的势垒下相位一直没有很好地被实验所证实.

课题组利用 COLTRIMS 系统观察 800 nm 和 400 nm 等强度正交双色场下氩原子的光电子动量谱, 验证了势垒下相位在其中不可忽视的作用^[36]. 等强度正交双色场可以一定程度地避免电子在 x 和 z 方向上的库仑聚焦现象, 由库仑势导致的复杂相位影响减少, 因此可以观察到更为细致的周期内干涉结构^[37-38]. 正交双色光场的电场可以表示为

$$E(t) = e_x \cdot E_{800} \cos(\omega t) + e_z \cdot E_{400} \cos(2\omega t + \varphi),$$

其中, ω 是基频光场(800 nm)的角频率, φ 是基频光和倍频光(400 nm)之间的相对相位, E_{800} 和 E_{400} 分别是基频光和倍频光的电场强度. 实验中, 利用钛蓝宝石激光器产生中心波长为 800 nm 的基频光(脉冲宽度为 25 fs, 重复频率为 3 kHz), 然后通过 BBO 晶体的倍频效应产生 400 nm 的倍频光, 并调节基频光强度为 0.72×10^{14} W/cm², 倍频光强度为 0.87×10^{14} W/cm², 基频光和倍频光之间的相对相位可以通过光路中 1 对楔形镜的相对位置来调节.

借助 COLTRIMS 系统, 课题组精确地测量了不同相对相位时等强度正交双色场与氩原子气体相互作用的光电子动量谱, 如图 8 所示. 光电子动量谱同时具有明显的径向(周期内干涉)和环状结构(周期间干涉), 而且这种结构会受到激光场相对相位的调制. 实验结果表明, 相对相位为 0.5π 时干涉结构最为清晰.

图 9(a) 中给出了电场振幅随时间的变化情况, 黑色曲线是电场振幅的变化, 红色和蓝色则分别表示 800 nm 和 400 nm 激光的负矢势的变化.

可以看到光场在 1 个 800 nm 周期内有 4 个等强度的电场峰值, 由于电离率随电场强度指数增长, 所以 4 个等强度的光电子波包会分别在这 4 个电场峰值处从势垒中隧穿出来. 理论上, 忽略初始动量和库仑势影响, 电离后电子的末动量与电离时刻激光的负矢势相等, 即 $p = -A(t_i)$, 其中 p 是电子的末动量, t_i 是电子的电离时刻, A 是合成光场的矢势. 因此, 根据电离时刻矢势的大小和方向可以判断出: 第 1 个波包(WP1)与第 2 个波包(WP2)会在动量谱的右侧($p_x > 0$)重合并发生相干叠加, 第 3 个波包(WP1)与第 4 个波包(WP2)会在动量谱的左侧($p_x < 0$)重合并发生相干叠加. 这种亚周期干涉会形成清晰的径向条纹, 当它与 ATI 的环形结构相叠加时, 就会形成图 8(c) 红色虚线所标出的斑点结构(共有 8 个斑点). 根据强场近似(strong-field approximation, SFA)模型^[22,39-40]并结合鞍点法^[41-43], 分别计算得到忽略和保留势垒下相位时的周期内干涉条纹, 并在一阶 ATI 峰的位置用红色虚线标出(与实验结果中的红色曲线相对应)如图 9(c) 和图 9(d) 所示, 可以看出, 考虑势垒下相位时, 周期内干涉形成的条纹与 ATI 相交形成 8 个斑点结构, 这与实验结果相符, 而不考虑势垒下相位时只有 6 个斑点.

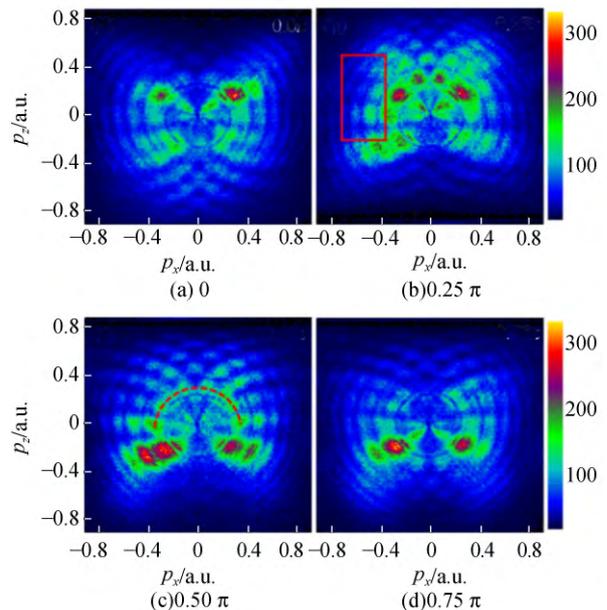


图 8 等强度正交双色场与氩原子气体相互作用的光电子动量谱实验结果(图注是基频光和倍频光的相对相位)^[36]

为了排除库仑势对干涉结构的影响,利用库仑修正的强场近似模型(Coulomb-corrected strong field approximation, CCSFA)^[44-46]进行模拟。CCSFA模型不仅可以计算电子在激光场和库仑势场中运动时获得的相位,而且可以研究隧穿势垒过程中积累的相位对光电子干涉的影响。在图9(e)和图9(f)中给出了利用CCSFA模型计算的结果,并用红色曲线标记了一阶ATI的位置,可以清晰地看到,库仑势不会影响干涉斑点的数目,而且只有在考虑势垒下相位时,才能重复出实验中8个斑点的结构。综上所述,根据一阶ATI环上的斑点结构,并定量地比较不同理论和实验的结果,在实验上证实了电子在隧穿电离过程中会获得势垒下相位。实验结果表明势垒下相位蕴藏着电子的隧穿动力学信息,对光电子干涉和全息有着不可或缺的作用。

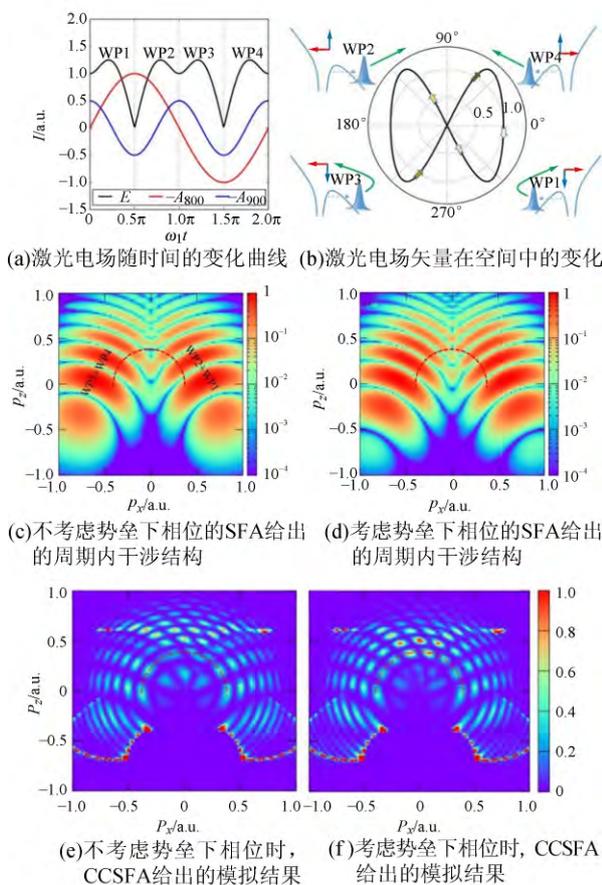


图9 相对相位为 0.5π 时等强度垂直双色场的电子运动动力学^[36]

4 结束语

在量子力学提出之后的很长一段时间,光与

物质的相互作用还停留在低激光强度、低时间精度的水平上,即激光的电场强度远远小于原子内部的库仑场、激光脉冲的时间尺度远大于电子的核外运动周期。随着激光技术和测量水平的不断进步,光与物质之间的相互作用逐渐向高强度(激光电场超过原子内部库仑电场)、短脉冲(飞秒脉冲甚至阿秒脉冲,与基态电子绕核运动周期可比拟)发展,强场超快光物理研究也得到了迅速的发展。本文简要介绍了强场超快光物理的基本现象和概念,详细介绍了强场电离实验中重要的测量仪器——COLTRIMS系统及其基本工作原理,最后介绍了利用该系统在强场隧道电离领域取得的若干实验进展。希望本文可以对相关研究和教学人员的工作有所帮助。

致谢:感谢北京大学人工微结构和介观物理国家重点实验室吴成印教授和邓勇开工程师以及课题组同学的帮助和支持。

参考文献:

- [1] Maiman T H. Stimulated optical radiation in ruby [J]. *Nature*, 1960, 187(4736): 493-494.
- [2] 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.
- [3] Strickland D, Mourou G. Compression of amplified chirped optical pulses [J]. *Optics Communications*, 1985, 56(3): 219-221.
- [4] Agostini P, Fabre F, Mainfray G, et al. Free-free transitions following six-photon ionization of xenon atoms [J]. *Physical Review Letters*, 1979, 42(17): 1127-1130.
- [5] Voronov G S, Delone G A, Delone N B, et al. Multiphoton ionization of the hydrogen molecule in the strong electric field of ruby laser emission [J]. *Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics Letters*, 1965, 2: 377.
- [6] 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 Journal of Experimental and Theoretical Physics*, 1986, 64: 1191.
- [7] Yudin G L, Ivanov M Y. Nonadiabatic tunnel ionization: Looking inside a laser cycle [J]. *Physical Review A*, 2001, 64(1): 013409.
- [8] Teeny N, Yakaboylu E, Bauke H, et al. Ionization

- time and exit momentum in strong-field tunnel ionization [J]. *Physical Review Letters*, 2016,116(6):063003.
- [9] Corkum P B, Burnett N H, Brunel F. Above-threshold ionization in the long-wavelength limit [J]. *Physical review letters*, 1989,62(11):1259-1262.
- [10] 韩猛,刘运全. 双色阿秒钟的原理和应用[J]. *科学通报*,2021,66(8):902-912.
- [11] Becker W, Grasbon F, Kopold R, et al. Above-threshold ionization: from classical features to quantum effects [J]. *Advances in Atomic Molecular & Optical Physics*, 2002,48:35-98.
- [12] Posthumus J H, Giles A J, Thompson M R, et al. Field-ionization, Coulomb explosion of diatomic molecules in intense laser fields [J]. *Journal of Physics B Atomic Molecular & Optical Physics*, 1996,29(23):5811-5829.
- [13] 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.
- [14] Bocharova I, Karimi R, Penka E F, et al. Charge resonance enhanced ionization of CO₂ probed by laser coulomb explosion imaging [J]. *Physical Review Letters*, 2011,107(6):063201.
- [15] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, et al. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields [J]. *Physical Review A*, 1994,49(3):2117-2132.
- [16] Constant E, Garzella D, Breger P, et al. Optimizing high harmonic generation in absorbing gases: Model and experiment [J]. *Physical Review Letters*, 1999,82(8):1668-1671.
- [17] Schafer K J, Kulander K C. High harmonic generation from ultrafast pump lasers [J]. *Physical Review Letters*, 1997,78(4):638-641.
- [18] 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.
- [19] 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.
- [20] 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.
- [21] Yanovsky V, Chvykov V, Kalinchenko G, et al. Ultra-high intensity-300-TW laser at 0.1 Hz repetition rate [J]. *Optics Express*, 2008,16(3):2109-2114.
- [22] Keldysh L V. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave [J]. *Soviet Physics Journal of Experimental and Theoretical Physics*, 1965,20(5):1307-1314.
- [23] Eberly J H, Kulander K C. Atomic stabilization by super-intense lasers [J]. *Science*, 1993,262(5137):1229-1233.
- [24] Fabre F, Petite G, Agostini P, et al. Multiphoton above-threshold ionisation of xenon at 0.53 and 1.06 μm [J]. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, 1982,15(9):1353-1369.
- [25] Ammosov M V, Delone N B, Krainov V P. Tunnel ionization of complex atoms and atomic ions in electromagnetic field [C]// *High intensity laser processes*. International Society for Optics and Photonics, 1986,664:138-141.
- [26] Arbo D G, Ishikawa K L, Persson E, et al. Doubly differential diffraction at a time grating in above-threshold ionization: intracycle and intercycle interferences [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 2012,279:24-30.
- [27] André T J B, Eppink, Parker D H. Velocity map imaging of ions and electrons using electrostatic lenses: application in photoelectron and photofragment ion imaging of molecular oxygen [J]. *Review of Scientific Instruments*, 1998,68(9):3477-3484.
- [28] Dörner R, Mergel V, Jagutzki O, et al. Cold target recoil ion momentum spectroscopy: a 'momentum microscope' to view atomic collision dynamics [J]. *Physics Reports*, 2000,330(2/3):95-192.
- [29] 刘鸿. 隧道电离区的局域电离抑制及分子内层电子的隧道电离[D]. 北京:北京大学,2014.
- [30] Shao Y, He P, Liu M M, et al. Fully differential study on dissociative ionization dynamics of deuterium molecules in strong elliptical laser fields [J]. *Physical Review A*, 2017,95(3):031404.
- [31] Liu M M, Li M, Shao Y, et al. Effects of orbital and Coulomb potential in strong-field nonadiabatic tunneling ionization of atoms [J]. *Physical Review A*, 2017,96(4):043410.
- [32] Misakian M, Zorn J C. Final states in the dissociative excitation of molecular hydrogen [J]. *Physical Review Letters*, 1971,27(4):174-177.

- [33] 刘运全, 韩猛. 强激光场原子隧道电离的研究新进展[J]. 光学学报, 2021, 41(1):0102001.
- [34] Li M, Geng J W, Liu H, et al. Classical-quantum correspondence for above-threshold ionization [J]. Physical Review Letters, 2014, 112(11):113002.
- [35] Shvetsov-Shilovski N I, Lein M, Madsen L B, et al. Semiclassical two-step model for strong-field ionization [J]. Physical Review A, 2016, 94(1):013415.
- [36] Han M, Ge P, Shao Y, et al. Revealing the sub-barrier phase using a spatiotemporal interferometer with orthogonal two-color laser fields of comparable intensity [J]. Physical Review Letters, 2017, 119(7):073201.
- [37] Geng J W, Xiong W H, Xiao X R, et al. Nonadiabatic electron dynamics in orthogonal two-color laser fields with comparable intensities [J]. Physical Review Letters, 2015, 115(19):193001.
- [38] Fang Y Q, He C X, Han M, et al. Strong-field ionization of Ar atoms with a 45° cross-linearly-polarized two-color laser field [J]. Physical Review A, 2019, 100(1):013414.
- [39] Faisal F H M. Multiple absorption of laser photons by atoms [J]. Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics, 1973, 6(4):L89-L92.
- [40] Reiss H R. Effect of an intense electromagnetic field on a weakly bound system [J]. Physical Review A, 1980, 22(5):1786-1813.
- [41] Gribakin G F, Kuchiev M Y. Multiphoton detachment of electrons from negative ions [J]. Physical Review A, 1997, 55(5):3760-3771.
- [42] Bleistein N, Handelsman R A. Asymptotic expansions of integrals [M]. New York: Dover Publications Inc., 1986.
- [43] Salières P, Carré B, Le Déroff L, et al. Feynman's path-integral approach for intense-laser-atom interactions [J]. Science, 2001, 292(5518):902-905.
- [44] Popruzhenko S V, Paulus G G, Bauer D. Coulomb-corrected quantum trajectories in strong-field ionization [J]. Physical Review A, 2008, 77(5):053409.
- [45] Yan T M, Popruzhenko S V, Vrakking M J J, et al. Low-energy structures in strong field ionization revealed by quantum orbits [J]. Physical Review Letters, 2010, 105(25):253002.
- [46] Yan T M, Bauer D. Sub-barrier Coulomb effects on the interference pattern in tunneling-ionization photoelectron spectra [J]. Physical Review A, 2012, 86(5):053403.

Measuring quantum tunneling of atoms and molecules in strong field laser

WANG Ji-guo¹, YU Xiao-yang¹, LIU Yun-quan^{1,2,3}

- (1. State Key Laboratory of Artificial Microstructure and Mesoscopic Physics, Department of Physics, Peking University, Beijing 100871, China;
2. Collaborative Innovation Center of Quantum Matter, Beijing 100871, China;
3. Collaborative Innovation Center of Extreme Optics, Taiyuan 030006, China)

Abstract: The multiphoton ionization and tunneling ionization of atoms and molecules are the quantum phenomenons that under extreme conditions, and also the fundamental dynamic process in strong field physics. It is significant for exploring the inner structure and interaction of microscopic particles that measuring the ultrafast dynamic process of atoms and molecules in strong field with higher accuracy. First, some fundamental concepts and phenomena about photoionization in strong field physics were introduced. Second, the cold target recoil-ion momentum spectroscopy (COLTRIMS), as an important instrument used in experiment about the interaction between strong laser field and molecules, was shown in detail. Finally, the influence of sub-barrier phase in tunneling process on photoelectron momentum spectrum based on COLTRIMS was illustrated.

Key words: strong field physics; tunneling ionization; cold target recoil-ion momentum spectroscopy; sub-barrier phase

[责任编辑:郭 伟]