

doi: 10.3969/j.issn.0490-6756.2017.06.017

# $N_2$ 和 $O_2$ 分子的强场光电离

张科<sup>1</sup>, 余海军<sup>1</sup>, 郑贤锋<sup>2</sup>, 崔执凤<sup>2</sup>

(1. 淮南师范学院电子工程学院, 淮南 232001; 2. 安徽师范大学物理与电子信息学院, 芜湖 241000)

**摘要:** 本研究工作主要采用超声分子束、飞秒激光与飞行时间(TOF)质谱等实验技术相结合的方法研究了  $N_2$  和  $O_2$  分子在飞秒强激光场作用下的光电离. 通过分析  $N_2$  和  $O_2$  分子的飞行时间质谱及碎片离子产额, 得到了离子产额的激光强度依赖关系、激光极化效应和偏振度效应, 并结合强场理论知识对光电离机制进行了细致地分析.

**关键词:** 强场; 光电离; 飞行时间质谱; 氮气; 氧气

**中图分类号:** 0641 **文献标识码:** A **文章编号:** 0490-6756(2017)06-1229-10

## The photoionization of nitrogen and oxygen molecules in intense field

ZHANG Ke<sup>1</sup>, YU Hai-Jun<sup>1</sup>, ZHENG Xian-Feng<sup>2</sup>, CUI Zhi-Feng<sup>2</sup>

(1. School of Electronic Engineering, Huainan Normal University, Huainan 232001, China;

2. College of Physics and Electrical Information, Anhui Normal University, Wuhu 241000, China)

**Abstract:** In this work, the experimental techniques of supersonic molecular beam, femtosecond laser and time-of-flight (TOF) mass spectrometry were applied to investigate the photoionizations of nitrogen and oxygen molecules under intense femtosecond laser field. By way of analyzing the TOF mass spectra and yields of fragment ions, we got the dependence of ions on the laser intensity, laser ellipticity and the laser polarizations. In combination with intense field theory, we analyzed the photoionization mechanism in detail.

**Keywords:** Intense field; Photoionization; Time-of-flight mass spectrometry; Nitrogen; Oxygen

## 1 引言

强场物理主要研究强激光场与原子、分子、团簇等之间的相互作用, 是当今物理学研究最活跃的领域之一<sup>[1]</sup>. 随着超短脉冲激光技术的迅猛发展, 强场中原子分子动力学<sup>[2-3]</sup>研究已成为近年来强场物理学研究的热点. 原子、分子是构成物质结构和性能的最基本单元, 从原子、分子层次上去认识物质结构, 揭示基本物理定律, 能够直接为相关科学发展提供理论依据、实验方法以及其它信息. 超短脉冲激光与原子分子相互作用过程中产生了许多新的现象, 如多光子电离<sup>[4]</sup>, 阈上电离<sup>[5-6]</sup>, 高次谐

波的产生<sup>[7-8]</sup>, 非次序双电离<sup>[9-16]</sup>和库仑爆炸<sup>[17-18]</sup>等. 这些现象的发现将我们对光与原子分子相互作用的认识带到一个新的高度, 对此开展深入系统的研究对于人们了解强场物理的基本过程<sup>[19-20]</sup>, 发现新的物理规律都具有十分重要的意义. 由于飞秒激光场中的电场强度接近甚至超过了原子或分子内部库仑相互作用产生的电场强度<sup>[21-22]</sup>, 经典的量子力学微扰理论已经不再适用, 因此需要建立和发展非微扰理论来解释这些新的现象. 当激光强度的继续增大( $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> 以上), 生成的一价离子来不及解离, 瞬间电离多个电子形成高价母体离子, 组成母体离子的原子离子由于库仑排斥力

收稿日期: 2016-08-25

基金项目: 安徽高校自然科学研究重点项目(KJ2014A236)

作者简介: 张科(1986-), 男, 河南泌阳人, 硕士, 主要从事原子、分子光谱研究. E-mail: zk626217@163.com

而快速解离,这个过程称为库仑爆炸.库仑爆炸的主要特征是产生高价的母体离子和碎片离子,利用飞行时间质谱仪观测到典型的库仑爆炸生成的碎片离子在质谱图上表现为一前一后的双峰结构,分别对应于速度顺着微通道板(MCP)方向的离子和逆着 MCP 方向的离子<sup>[23-25]</sup>.通过计算前后向离子的飞行时间差就能计算出碎片离子的平动能释放<sup>[26-28]</sup>(Kinetic energy release,简称 KER),其公式为:

$$KER = \frac{(U_1 - U_2)^2}{8md^2} q^2 \Delta t^2 = \frac{q^2 \Delta t^2 E^2}{8m} \quad (1)$$

式中, $U_1$  是引出极电压; $U_2$  是加速极电压; $d$  是两极板间间距; $m, q$  分别是碎片离子的质量和所带电荷数; $\Delta t$  是前后离子到达 MCP 的时间差, $E$  为引出极与加速极之间的场强.若将式(1)中的  $\Delta t$  以 ns 为单位,电场强度以 V/cm 为单位,质量  $m$  以质量数  $M$  代替,平动能以 eV 为单位,则式(1)就变为

$$KER(\text{eV}) = 9.65 \times 10^{-7} \frac{\Delta t^2 q^2 E^2}{8M} \quad (2)$$

同时随着激光强度的不断增加,原子、分子的电离机制从多光子电离过渡到隧穿电离,不同激光强度下的电离机制可通过 Keldysh 参数  $\gamma$ <sup>[29-31]</sup> 来划分.其表达式为

$$\gamma = \frac{\sqrt{2m_e I_p}}{eE_0} = \frac{\text{Tunneling time}}{\text{Laser period}} \quad (3)$$

其中, $I_p$  为原子的电离势能, $E_0$  为激光场场强, $e$  是电子所带电荷量.根据激光强度与激光场强的关系

$$I = \frac{\epsilon_0 c E_0^2}{2} \quad (4)$$

在强激光场中随激光频率振荡的电子,其有质动力能(pondermotive energy)为:

$$U_P = \frac{e^2 E_0^2}{4m_e \omega_0^2} = 9.33 \times 10^{-14} I \lambda^2 \quad (5)$$

式中, $E_0$  为激光场强,单位为 V/cm, $I_p$  为原子的电离势能,单位为 eV,波长  $\lambda$  单位为 nm, $I$  为激光光强,单位为  $\text{W}/\text{cm}^2$ .联立以上各式可得:

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_p}{2U_P}} = \left( \frac{I_p}{1.866 \times 10^{-19} I \lambda^2} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (6)$$

当  $\gamma > 1$  时,激光强度远小于原子的库仑场强,多光子电离和阈上电离占主导地位,当  $\gamma < 1$  时隧穿电离时间比激光场周期短,此时激光场可近似为静态场,且激光场强度远大于原子库仑场强度,隧穿电离和越垒电离占主导地位.当  $\gamma \approx 1$  时,两类电离同时存在,二者相互竞争.

尽管前人对于原子、分子的强场光电离研究工作很丰富,但是这些工作主要集中在基于原子、分子

电子基态的定性比较研究方面,而不同激光偏振方向的原子、分子的强场光电离研究则报道很少.且本工作将脉冲分子束应用于强场光电离研究,通过控制分子束宽、前置压力、分子束和激光的相对延时,同前人采用连续溢流束实验相比,在其他实验条件不变的情况下,改善了信号质量,提高了信噪比,离子信号至少增强了一个量级以上.本研究工作主要采用中心波长为 800 nm,脉宽为 35 fs 的飞秒激光和超声脉冲分子束相结合的实验方法,研究了双原子分子  $\text{N}_2$  和  $\text{O}_2$  的强场光电离,得到的光电离产物由飞行时间质谱仪进行甄别.根据所得到的飞行时间质谱从激光偏振度效应、激光极化效应和激光强度依赖关系等方面来研究  $\text{N}_2$  和  $\text{O}_2$  的强场电离.

## 2 实验装置和过程

实验装置如图 1 所示,主要包括真空系统,超声脉冲分子束及进样系统,飞秒激光系统,时序控制系统,信号探测和数据采集系统.

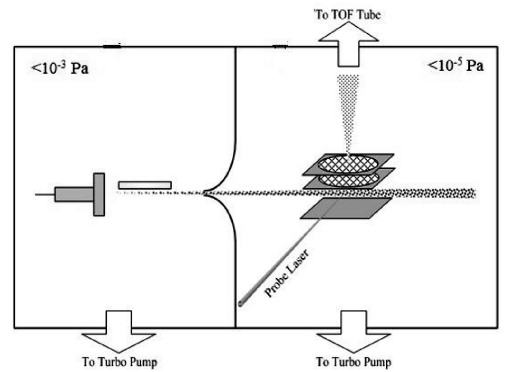


图 1 光电离研究实验装置

Fig. 1 The experiment device of photoionization

本实验组在  $10^{13} \sim 10^{15} \text{ W}/\text{cm}^2$  光强范围内,激光中心波长 800 nm,采用脉冲超声分子束、飞行时间质谱与飞秒激光相结合的实验技术,开展了双原子分子的强场电离研究,与前人强场分子光电离研究相比,我们实验组的工作有了两点改进:(1)自行研制出分频器,该分频器经测量检验技术指标稳定,工作性能良好,实现了 10 Hz 脉冲分子束和 1 KHz 飞秒激光脉冲的同步,通过控制分子束束宽、前置压力、分子束和激光的相对延时,获得高分辨的质谱信号;(2)为了克服聚焦光束强度平均效应,提高质谱时间分辨,我们对 TOF 质谱仪进行了改造,缩小离子的光学入瞳孔径(20 mm 缩小为 2 mm),使得仅激光束腰位置电离解离过程产生的离子被 MCP 接收,减小了由光强平均效应带来的

实验误差.

实验时束源室和电离室的背景真空均为  $10^{-5}$  Pa, 脉冲阀开启后束源室气压维持在  $10^{-4}$  Pa, 电离室气压维持在  $10^{-5}$  Pa. 样品分子经脉冲阀(Series 9, General Valve, USA)喷嘴喷出后, 再经直径为 1 mm 的 skimmer 准直后进入电离室. 实验中的飞秒激光器输出的激光经焦距为 25 cm 的光学透镜聚焦后进入电离区与分子束相互作用, 产生的离子产物经入瞳孔径为 2 mm 的离子光学系统, 自由飞行 100 cm 后, 由 MCP 探测, 并由数字示波器(Tektronix, TDS460A)监测离子流信号. 为了保证激光每次从法兰的同一位置射入与分子束在电离区相互作用, 特意在光学平台上加入了 3 个光阑来固定光路.

实验过程中我们分别研究了  $N_2$ 、 $O_2$  分子在平行线偏振光、垂直线偏振光和圆偏振光作用下的质谱以及激光强度依赖关系. 为了提高信噪比, 采集质谱时都平均了 2000 次. 飞秒激光能量由 3Sigma 激光功率计(Coherent, USA)测量. 通过组合二分之一波片与高透过率的格兰激光棱镜来调节激光能量和偏振方向, 再结合透镜聚焦, 改变光与分子相互作用区光强. 实验中我们规定激光的偏振方向与 TOF 轴方向平行的为平行偏振(Parallel), 与 TOF 轴方向垂直的为垂直偏振(Perpendicular). 脉冲阀、分频器、飞秒激光器、示波器和数据采集系统的时序统一由两台数字延迟发生器(DG535)控制, 实现飞秒激光与分子束在时间上的交叠. 在实验过程中要特别注意母体离子信号, 不要使其饱和造成信号失真. 若出现饱和现象, 就要减小脉冲阀开启时间以减小样品进气量, 如果饱和现象还未改善, 就要对样品气体进行稀释.

### 3 结果和讨论

#### 3.1 $N_2$ 的强场光电离研究

$N_2$  的电离势为  $15.58 \text{ eV}^{[32]}$ , 当飞秒激光波长为 800 nm, 激光强度介于  $1 \times 10^{14} \sim 1.49 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  之间时, 根据公式(6)计算出  $\gamma$  的值介于 0.29 ~ 1.3 之间. 根据计算的  $\gamma$  值, 由 Keldysh 理论知, 在当前实验条件下  $N_2$  的电离处于多光子电离和遂穿电离的过渡区域. 实验中分别采集了  $N_2$  在平行线偏振、垂直线偏振和圆偏振下的飞行时间质谱, 同时作出了  $N_2^+$ 、 $N_2^{2+}$  在线偏振(linearly polarized light, LP)、圆偏振光(circularly polarized light, CP)下离子产额随光强变化关系曲线.

(1) 平行线偏振光(激光偏振方向与 TOF 轴

平行) 图 2 是  $N_2$  在光强为  $1.49 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  下飞行时间质谱. 图中标出了主要的离子谱峰, 主要产物有  $N^{3+}$  ( $m/q=4, 67$ )、 $N^{2+}$  ( $m/q=7$ )、 $N_2^{2+}$  ( $m/q=14$ )、 $N^+$  ( $m/q=14$ )、 $N_2^+$  ( $m/q=28$ ). 为了进一步了解  $N_2$  分子在强场下的电解除离过程, 我们采集了  $N_2$  在平行线偏振光作用下不同激光强度的飞行时间质谱, 如图 3 所示. 从图中可以看出, 在光强为  $0.3 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  时, 只能很清晰地看到母体离子  $N_2^+$  的离子峰, 当激光强度为  $0.5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  时, 出现了  $N_2^{2+}$ 、 $N^{2+}$ , 继续增加激光强度, 到  $0.7 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  时, 出现了  $N^{3+}$ , 同时其它碎片离子产率也在不断增加. 从图 3 中我们还看到  $N^+$ 、 $N^{2+}$ 、 $N^{3+}$  都呈现出双峰结构, 这是由于库仑爆炸过程中同时产生的初速度大小相同、方向相反的碎片离子到达探测器时间不同造成的.

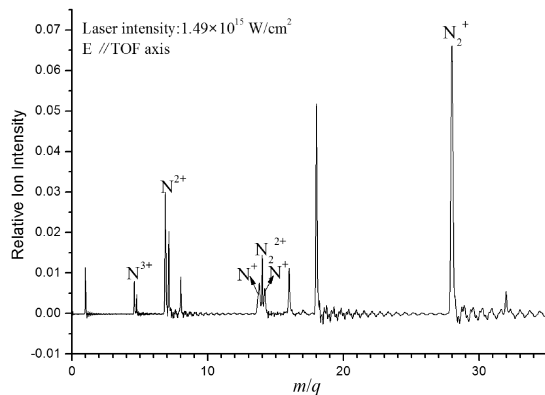


图 2  $N_2$  在平行线偏振光作用下, 激光强度为  $1.49 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  时的飞行时间质谱

Fig. 2 Mass spectra of  $N_2$  irradiated at a laser intensity of  $1.49 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  with laser polarization parallel to the TOF axis

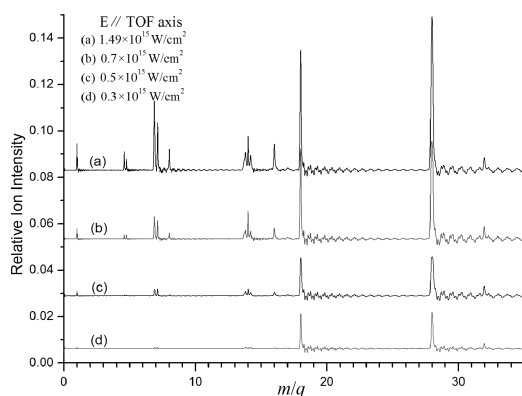


图 3  $N_2$  在平行线偏振光作用下不同激光强度的飞行时间质谱

Fig. 3 Mass spectra of  $N_2$  irradiated at different laser intensities with laser polarization parallel to the TOF axis

根据飞行时间质谱确定离子的飞行时间差,利用式(2)我们对不同光强下发生库仑爆炸产生的碎片离子  $N^+$ 、 $N^{2+}$ 、 $N^{3+}$  的平动能释放进行了计算,并作出了碎片离子释放的平动能随激光强度的变化关系曲线,如图 4 所示.从图 4 可以看出, $N^+$ 、 $N^{2+}$ 、 $N^{3+}$  的平动能都随着光强的增大而逐渐增大,其中  $N^+$  平动能相对  $N^{2+}$ 、 $N^{3+}$  而言增加的较为缓慢,这与前人的实验结果是一致的.

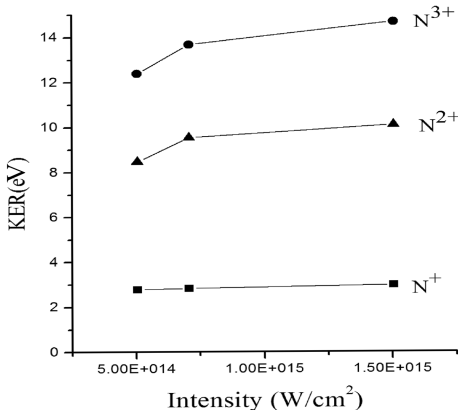


图 4  $N^+$ 、 $N^{2+}$  和  $N^{3+}$  离子的平动能释放与光强关系  
Fig. 4 The relationships between kinetic energy release and laser intensity of  $N^+$ 、 $N^{2+}$  and  $N^{3+}$

(2)垂直线偏振光(激光偏振方向与飞行轴垂直) 图 5 是光强为  $1.47 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  下  $N_2$  的飞行时间质谱,从图中可以看出,垂直线偏振光与  $N_2$  分子相互作用时,主要离子产物为  $N_2^{2+}$  ( $m/q = 14$ ),  $N_2^+$  ( $m/q = 28$ ),而它们的质谱峰都是单峰,这是因为激光偏振方向与飞行轴垂直时,电离产生的离子碎片大小相同,方向相反的速度沿与飞行轴垂直的两个方向飞行,故它们到达探测器时间相同,从而呈现出单峰.图 6 是光强分别为  $1.47 \times 10^{15}$ 、 $0.7 \times 10^{15}$ 、 $0.5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  下的飞行时间质谱,我们可以看到离子信号都是随着光强的增强而不断增大.

(3)圆偏振光 图 7 是光强为  $1.4 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  下  $N_2$  的飞行时间质谱,图 3.1.7 是  $N_2$  分别在激光光强  $1.4 \times 10^{15}$ 、 $0.7 \times 10^{15}$ 、 $0.5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  下的飞行时间质谱.从图 7 可以看出,圆偏振光与  $N_2$  分子相互作用时,主要离子产物为  $N^{3+}$  ( $m/q = 4.67$ )、 $N^{2+}$  ( $m/q = 7$ )、 $N_2^{2+}$  ( $m/q = 14$ ),  $N^+$  ( $m/q = 14$ ),  $N_2^+$  ( $m/q = 28$ ),图 8 显示当激光强度为  $0.5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  时, $N^{2+}$ 、 $N_2^{2+}$ 、 $N^+$  的信号都很弱,随着激光强度的增大,离子信号逐渐增强,同时碎片离子越来越多,当光强增大到  $0.7 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  时,出现了  $N^{3+}$ ,同时我们还可以看到  $N^+$ 、 $N_2^+$ 、 $N^{3+}$  同平行线

偏振光下的情形相似,都出现了双峰结构.

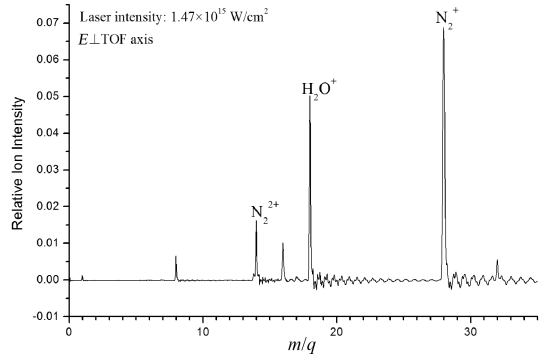


图 5  $N_2$  在垂直线偏振光作用下,激光强度为  $1.47 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  时的飞行时间质谱  
Fig. 5 Mass spectra of  $N_2$  irradiated at a laser intensity of  $1.47 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  with laser polarization perpendicular to the TOF axis

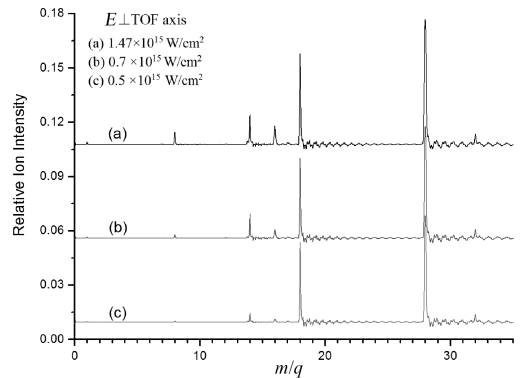


图 6  $N_2$  在垂直线偏振光作用下不同激光强度的飞行时间质谱  
Fig. 6 Mass spectra of  $N_2$  irradiated at different laser intensities with laser polarization perpendicular to the TOF axis

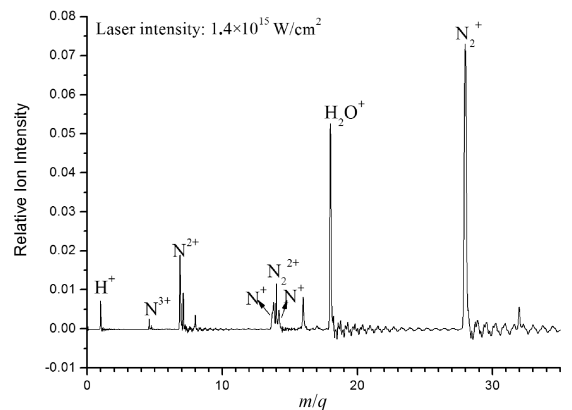


图 7  $N_2$  在圆偏振光作用下,激光强度为  $1.4 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  时的飞行时间质谱  
Fig. 7 Mass spectra of  $N_2$  irradiated at a laser intensity of  $1.4 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  with circularly polarized light

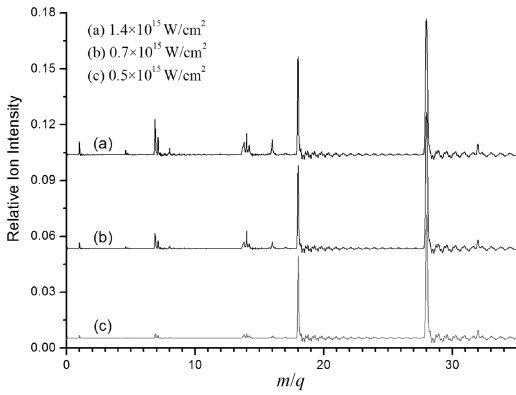


图 8  $N_2$  在圆偏振光作用下不同激光强度的飞行时间质谱

Fig. 8 Mass spectra of  $N_2$  irradiated at different laser intensities with circularly polarized light

为了更好地研究  $N_2$  的强场电离, 我们分别采集了  $N_2$  在相同激光强度作用下的线偏振光和圆偏振光情况下的飞行时间质谱, 如图 9 和图 10 所示. 图 9 是  $N_2$  在平行线偏振、垂直线偏振, 激光强度为  $0.7 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  下的飞行时间质谱. 从图中可以看到,  $N_2$  与平行线偏振光相互作用时,  $N^+$ 、 $N^{2+}$  和  $N^{3+}$  离子都呈现出双峰结构, 这是因为库仑爆炸过程产生的碎片离子分别沿相反方向运动, 从而导致到达 MCP 的时间不同而形成的. 同时从图中还可以发现每个独立的  $N^+$ 、 $N^{2+}$  和  $N^{3+}$  离子又分裂成两个谱峰, 这主要是由于不同通道造成的, 快通道伴随有较高的平动能释放, 慢通道则伴随有较低的平均动能释放. 而采用垂直线偏振光时, 没有观察到这些碎片离子的谱峰, 这是因为垂直线偏振光的电场方向与 TOF 轴垂直, 碎片离子在电场作用下产生的电偶极矩使分子轴向趋向于激光电场 (垂直于 TOF 轴方向), 探测器探测不到, 所以质谱图上观测不到这些碎片离子. 图 10 是  $N_2$  在平行线偏振、圆偏振, 光强均为  $0.7 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  下的飞行时间质谱, 从图中可以看出,  $N_2$  与平行线偏振光、圆偏振光相互作用时的离子产物的种类、峰形基本相同, 不同的是圆偏振光作用时产生的  $N_2^+$ 、 $N^{2+}$  以及  $N^{3+}$  离子信号要比相同激光强度的线偏振光的低, 这符合场致电离模型, 场致电离的关键是要求电子遂穿电离时间要比激光光场周期短, 由于圆偏振光的电场方向是不断改变的, 电子没有足够的时间穿过势垒, 所以与线偏振光相比, 圆偏振光下分子的场致电离几率要低, 产生的离子信号也就小于相同激光强度下线偏振光产生的离子信号.

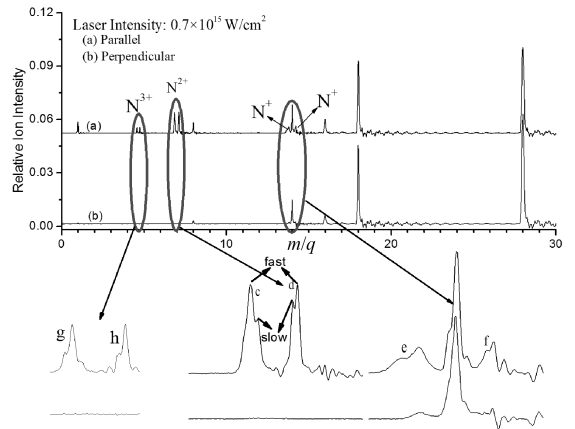


图 9 激光强度为  $0.7 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  时  $N_2$  分子的飞行时间质谱: (a) 平行线偏振光; (b) 垂直线偏振光

Fig. 9 Mass spectra of  $N_2$  irradiated at a laser intensity of  $0.7 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ : (a) parallel; (b) perpendicular

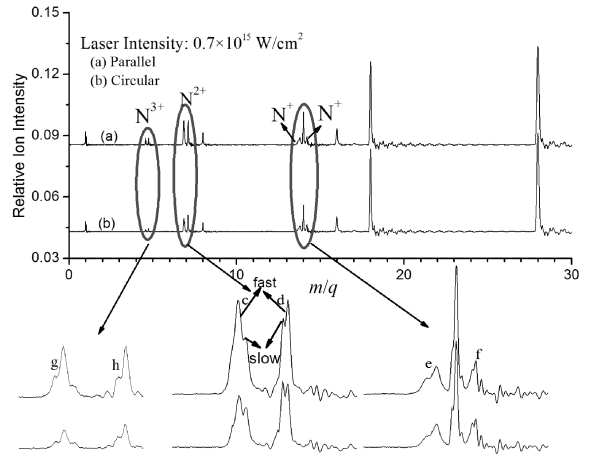


图 10 激光强度为  $0.7 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  时  $N_2$  分子的飞行时间质谱: (a) 平行线偏振光; (b) 圆偏振光

Fig. 10 Mass spectra of  $N_2$  irradiated at a laser intensity of  $0.7 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ : (a) parallel; (b) circular

图 11 分别是  $N_2$  的母体离子及二价离子的离子产额随光强变化关系. 从图 (a) 中我们可以看出, 线偏振光、圆偏振光下母体离子产额随激光强度的变化趋势基本一致, 都是随着光强的增强而增大, 当光强达到  $7 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  时, 母体离子趋于饱和. 从图 (b) 中可以看出在同等激光强度下, 母体的二价离子在线偏振光下的离子产率比在圆偏振光下高, 这主要是由于圆偏振光的电场方向不断变化, 电子没有足够的时间穿过势垒, 所以与线偏振光相比, 圆偏振光下分子的场致电离几率要

低,产生的离子信号也就小于同等激光强度下线偏振光产生的离子信号. 但变化趋势基本一致,都是

随着光强的增强而增大,当光强增大到  $9 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  时,二价离子趋于饱和.

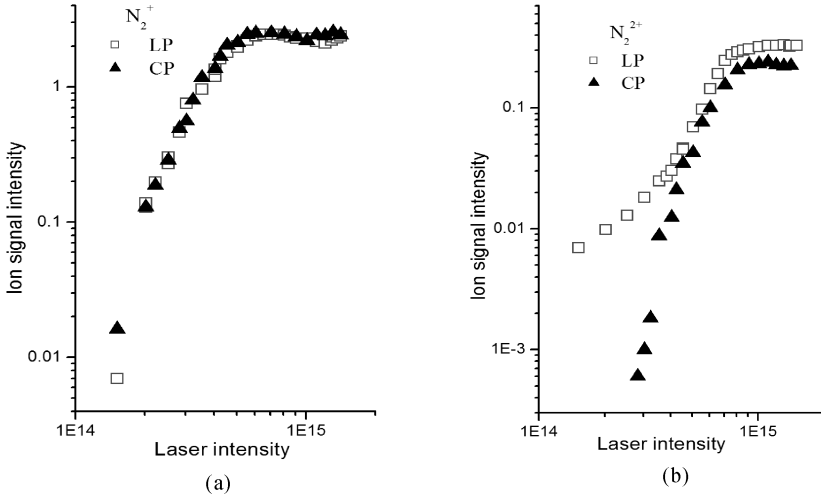


图 11  $\text{O}_2$  分子的离子碎片在线偏振光、圆偏振光下的激光强度依赖关系:(a)  $\text{N}_2^+$ ; (b)  $\text{N}_2^{2+}$   
Fig. 11 Ionization yields of ions fragmentation about  $\text{O}_2$  with LP and CP: (a)  $\text{N}_2^+$ ; (b)  $\text{N}_2^{2+}$

### 3.2 $\text{O}_2$ 的强场光电离研究

在进行  $\text{O}_2$  的强场电离研究实验时,我们发现当喷入高纯度的  $\text{O}_2$  时,即使是气压很低的情况下母体离子仍然饱和,为了更准确的研究  $\text{O}_2$  在强激光场中的电离解离,实验时将样品用高纯氦气进行了稀释.  $\text{O}_2$  的电离势为  $12.06 \text{ eV}^{[32]}$ ,当飞秒激光波长为  $800 \text{ nm}$ ,激光强度介于  $1 \times 10^{14} \sim 1.5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  之间时,根据公式(6)计算出  $\gamma$  的取值范围在  $0.26 \sim 0.82$  间,根据 Keldysh 理论表明遂穿电离在  $\text{O}_2$  的强场电离过程中起主要作用. 实验中分别采集了  $\text{O}_2$  在平行线偏振、垂直线偏振和圆偏振下的飞行时间质谱,同时作出了  $\text{O}_2^+$ 、 $\text{O}_2^{2+}$  在线偏振和圆偏振光下离子产额随光强变化关系曲线.

(1)平行线偏振光(激光偏振方向与 TOF 轴平行) 图 12 是在光强为  $1.5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  下  $\text{O}_2$  的飞行时间质谱,图中对主要离子峰进行了标识,平行线偏振光与  $\text{O}_2$  分子相互作用时主要产物有  $\text{O}_2^+$  ( $m/q=8$ )、 $\text{O}_2^{2+}$  ( $m/q=16$ )、 $\text{O}^+$  ( $m/q=16$ )、 $\text{O}_2^+$  ( $m/q=32$ ). 图 13 分别给出了光强为  $1.5 \times 10^{15}$ 、 $1.2 \times 10^{15}$ 、 $0.9 \times 10^{15}$ 、 $0.7 \times 10^{15}$ 、 $0.5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  下  $\text{O}_2$  的飞行时间质谱. 从图中可以看出,在低能量下,只能看到母体离子峰,当激光强度为  $0.7 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  时,观测到  $\text{O}_2^+$ , 同时还能比较清晰地看到  $\text{O}_2^+$  两侧的  $\text{O}^+$ , 随着激光强度的增强,出现

了越来越多的碎片离子峰,同时碎片离子信号也在增大,因此我们认为激光强度对  $\text{O}_2$  的碎片化程度有很大影响.

根据飞行时间质谱确定离子的飞行时间差,利用式(2)我们计算出了不同光强下发生库仑爆炸产生的碎片离子  $\text{O}^+$ 、 $\text{O}^{2+}$  的平动能,同时作出了碎片离子平动能随光强变化关系曲线,如图 14 所示. 从图中可以看出,  $\text{O}^+$ 、 $\text{O}^{2+}$  的平动能都随着光强的增大而逐渐增大,这与前人的实验结论是一致的.

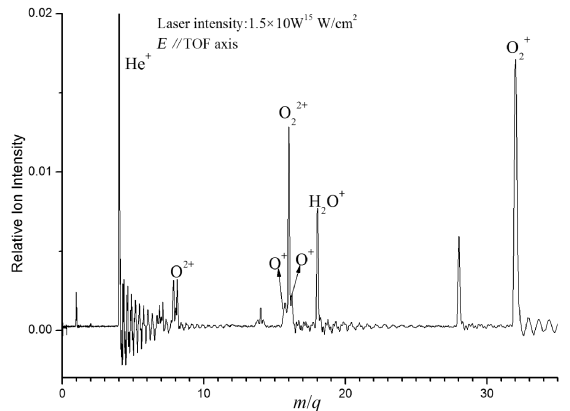


图 12  $\text{O}_2$  在平行线偏振光作用下,激光强度为  $1.5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  时的飞行时间质谱  
Fig. 12 Mass spectra of  $\text{O}_2$  irradiated at a laser intensity of  $1.5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  with laser polarization parallel to the TOF axis

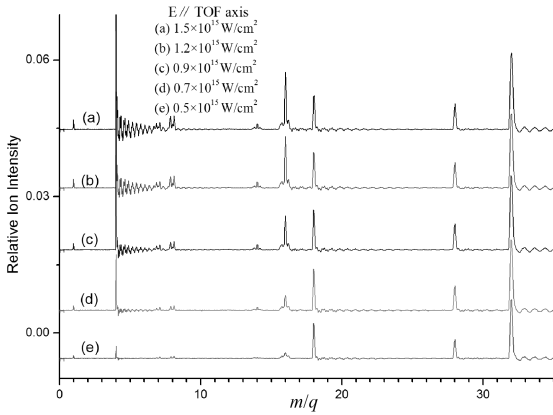


图 13  $O_2$  在平行线偏振光作用下不同激光强度时的飞行时间质谱

Fig. 13 Mass spectra of  $O_2$  irradiated at different laser intensities with laser polarization parallel to the TOF axis

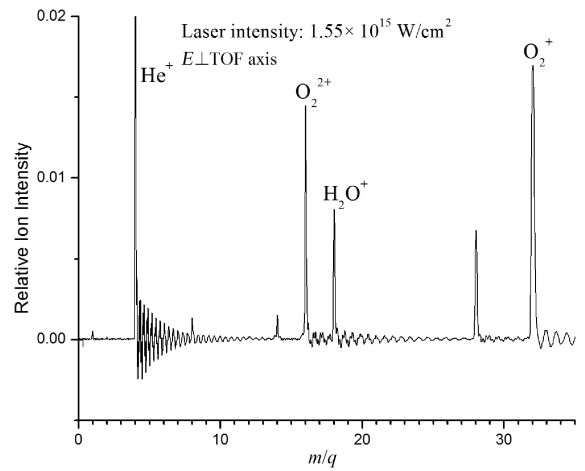


图 15  $O_2$  在垂直线偏振光作用下, 激光强度为  $1.55 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  时的飞行时间质谱

Fig. 15 Mass spectra of  $O_2$  irradiated at a laser intensity of  $1.55 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  with laser polarization perpendicular to the TOF axis

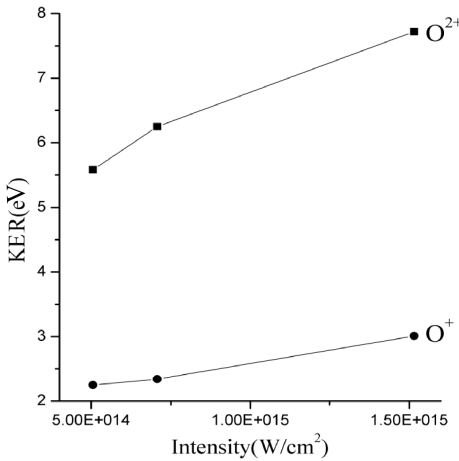


图 14  $O^+$ 、 $O_2^+$  离子的平均动能释放与光强关系

Fig. 14 The relationships between kinetic energy release and laser intensity of  $O^+$  and  $O_2^+$

垂直线偏振光与  $O_2$  分子相互作用时, 主要离子产物为  $O_2^{2+}$  ( $m/q=16$ ),  $O_2^+$  ( $m/q=32$ ), 如图 15 所示。图 16 给出了光强分别为  $1.55 \times 10^{15}$ 、 $1.2 \times 10^{15}$ 、 $0.9 \times 10^{15}$ 、 $0.7 \times 10^{15}$ 、 $0.5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  下  $O_2$  的飞行时间质谱。从图中可以看出, 离子信号强度都随着光强的增强而不断增大, 当光强大于  $0.9 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  时, 母体离子信号基本趋于饱和。

(2) 垂直线偏振光(激光偏振方向与 TOF 轴垂直) 垂直线偏振光与  $O_2$  分子相互作用时, 主要离子产物为  $O_2^{2+}$  ( $m/q=16$ ),  $O_2^+$  ( $m/q=32$ ), 如图 15 所示。图 16 给出了光强分别为  $1.55 \times 10^{15}$ 、 $1.2 \times 10^{15}$ 、 $0.9 \times 10^{15}$ 、 $0.7 \times 10^{15}$ 、 $0.5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  下  $O_2$  的飞行时间质谱。从图中可以看出, 离子信号强度都随着光强的增强而不断增大, 当光强大于  $0.9 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  时, 母体离子信号基本趋于饱和。

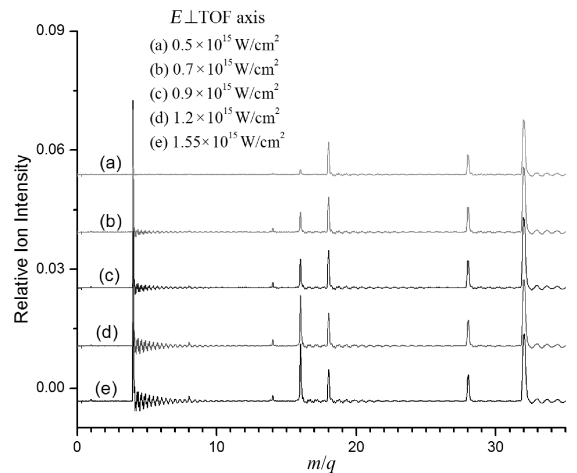


图 16  $O_2$  在垂直线偏振光作用下不同激光强度时的飞行时间质谱

Fig. 16 Mass spectra of  $O_2$  irradiated at different laser intensities with laser polarization perpendicular to the TOF axis

(3) 圆偏振光  $O_2$  在光强为  $1.4 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  的圆偏振光作用下的主要离子产物为  $O^{2+}$  ( $m/q=8$ ),  $O_2^{2+}$  ( $m/q=16$ ),  $O^+$  ( $m/q=16$ ),  $O_2^+$  ( $m/q=32$ ), 如图 17 所示。图 18 给出了光强分别为  $1.4 \times 10^{15}$ 、 $1.2 \times 10^{15}$ 、 $0.9 \times 10^{15}$ 、 $0.7 \times 10^{15}$ 、 $0.5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  下  $O_2$  的飞行时间质谱。当激光强度为  $0.5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  时,  $O_2^{2+}$ 、 $O^+$  的信号都很弱, 当光强增加到  $0.7 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  时, 出现了  $O^{2+}$ , 随着激光强度的增大, 碎片离子信号逐渐增强, 母体离子在光强为  $0.9 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  时达到饱和。

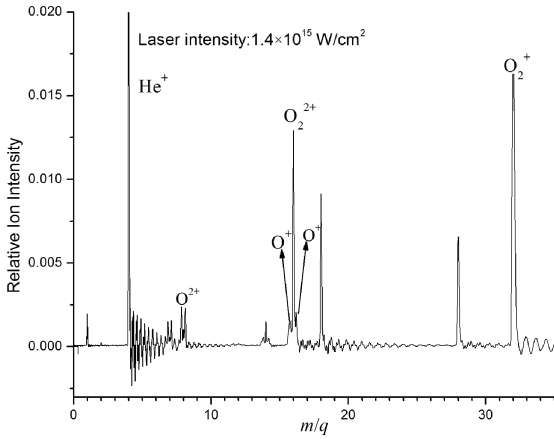


图 17  $O_2$  在圆偏振光作用下, 激光强度为  $1.4 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  时的飞行时间质谱

Fig. 17 Mass spectra of  $O_2$  irradiated at a laser intensity of  $1.4 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  with circularly polarized light

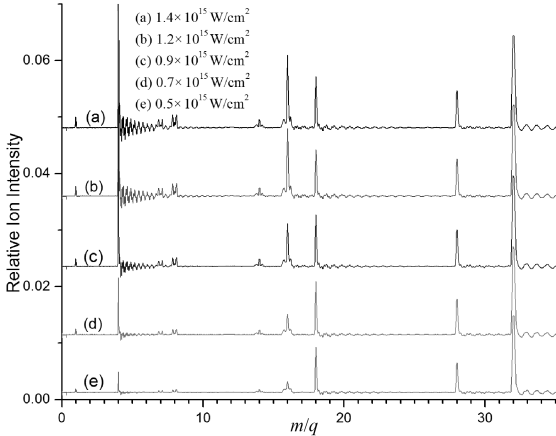


图 18  $O_2$  在圆偏振光作用下不同激光强度时的飞行时间质谱

Fig. 18 Mass spectra of  $O_2$  irradiated at different laser intensities with circularly polarized light

为了更好地研究  $O_2$  的强场电离, 我们分别采集了  $O_2$  在相同激光强度, 线偏振和圆偏振光情况下的飞行时间质谱, 如图 19 和图 20 所示. 图 19 是  $O_2$  分子在平行线偏振、垂直线偏振, 激光强度为  $1.2 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  下的飞行时间质谱. 从图中可以看到,  $O_2$  与平行线偏振光相互作用时,  $O^{2+}$  呈现三峰结构, 中间峰的  $O^{2+}$  是由  $O^+$  直接电离产生, 两侧的  $O^{2+}$  与  $O^+$  相同, 都是由于库仑爆炸产生的离子沿相反方向运动, 一前一后到达 MCP 形成的. 而在垂直线偏振光下,  $O^{2+}$  成单峰结构, 没有观察到  $O^+$  离子的谱峰, 这是因为垂直线偏振光的电场方向与 TOF 轴垂直, 库仑爆炸产生的碎片离子受电场作用产生的电偶矩使分子轴向趋向于激光电场(垂直于 TOF 轴)方向, 探测器探测不到, 所以在质谱图上观测不到.

图 20 是  $O_2$  分子在平行线偏振、圆偏振, 光强均为  $0.7 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  下的飞行时间质谱, 从图中可以看出,  $N_2$  与平行线偏振光、圆偏振光相互作用时的离子产物的种类、峰形基本相同,  $O^{2+}$  呈现三峰结构,  $O^+$  呈现双峰结构, 说明激光的偏振度对  $O_2$  分子强场电离没有太大影响.

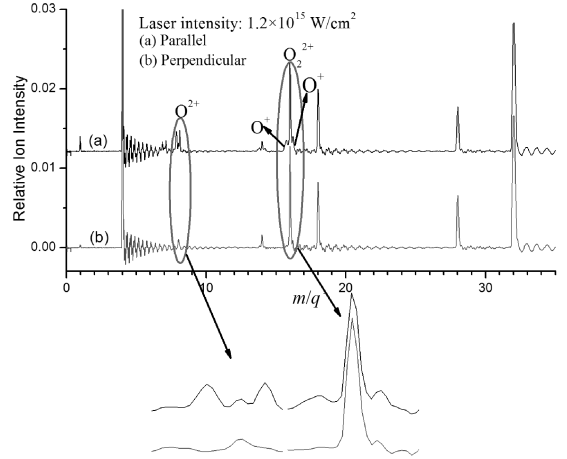


图 19 激光强度为  $1.2 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  时  $O_2$  分子的飞行时间质谱 (a) 平行线偏振光 (b) 垂直线偏振光

Fig. 19 Mass spectra of  $O_2$  irradiated at a laser intensity of  $1.2 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  (a) parallel (b) perpendicular

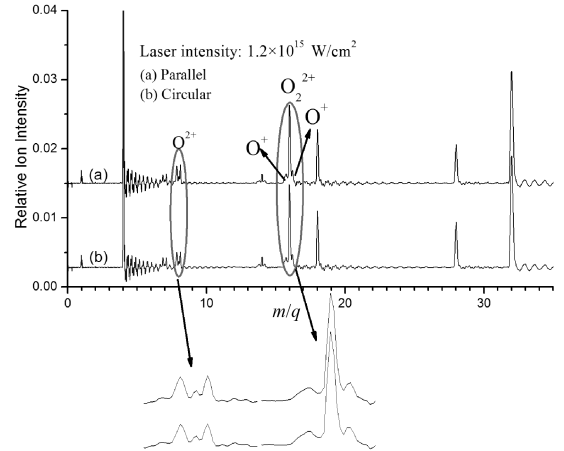


图 20 激光强度为  $0.7 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  时  $O_2$  分子的飞行时间质谱: (a) 平行线偏振光; (b) 圆偏振光

Fig. 20 Mass spectra of  $O_2$  irradiated at a laser intensity of  $0.7 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ : (a) parallel; (b) circular

图 21 分别是  $O_2$  分子的母体离子、二价离子在线偏振、圆偏振光下离子产额随光强的变化关系图. 母体离子  $O_2^+$  在激光的两种不同偏振方向下的变化趋势相同, 都是随着光强的增强而增大, 当



光强增大到  $0.9 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  时,母体离子达到饱和. 而  $O_2^{2+}$  离子的离子产额整体趋势也是随着光强的增加而逐渐增加,当光强增大到一定程度时趋

于饱和. 这与我们从质谱图上得到的结论完全相符.

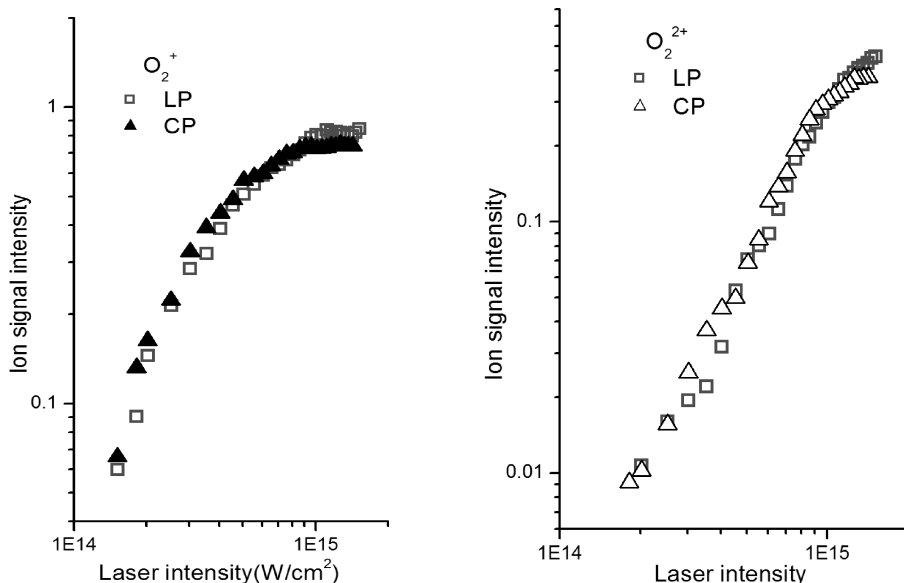


图 21  $O_2$  分子的离子碎片在线偏振光、圆偏振光下的激光强度依赖关系:(a)  $O_2^+$ ; (b)  $O_2^{2+}$   
Fig. 21 Ionization yields of ions fragmentation about  $O_2$  with LP and CP: (a)  $O_2^+$ ; (b)  $O_2^{2+}$

## 4 总 结

研究原子、分子在强激光场中的电理解离机制是人们了解原子、分子内部结构的重要手段,对此开展深入系统的研究对于人们了解强场物理基本过程、发现新的物理规律都具有十分重要的意义. 本实验小组采用脉冲超声分子束、飞秒激光与飞行时间质谱仪相结合的技术研究了双原子分子  $N_2$ 、 $O_2$  在强激光场中的光电离过程. 实验主要从垂直线偏振、水平线偏振以及圆偏振三个不同激光偏振方向采集各个样品的飞行时间质谱,通过比较、分析同一偏振方向不同激光强度、同一激光强度不同偏振方向的飞行时间质谱,使我们对原子、分子在强激光场作用下的电理解离过程有了更进一步的了解.

### 参考文献:

[1] Wang L J, Cai D F. Physics of intense field and its contents of investigation [J]. J Neijiang Normal Univ, 2008, 23: 45.  
[2] Posthumus J H. The dynamics of small molecules in intense laser fields [J]. Rep Prog Phys, 2004, 67: 623.  
[3] Posthumus J H. Molecules and clusters in intense

laser fields [M]. Cambridge: Cambridge University Press, 2001.

- [4] Huillier A L, Lompre L A, Mainfray G, *et al.* Multiply charged ions induced by multiphoton absorption in rare gases at  $0.53 \mu\text{m}$  [J]. Phys Rev A, 1983, 27: 2503.  
[5] Agostini P, Fabre F, Mainfray G, *et al.* Free-free transitions following six photon ionization of xenon atoms [J]. Phys Rev Lett, 1979, 42: 1127.  
[6] Becker W, Grasbon F, Kopold R. Above-threshold ionization from classical features to quantum effects [J]. Adv At Mol Opt Phys, 2002, 48: 35.  
[7] Keldysh L V. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave [J]. Sov Phys Jetp, 1965, 20: 1307.  
[8] Lambropoulos P. Mechanisms for multiple ionization of atoms by strong pulsed lasers [J]. Phys Rev Lett, 1985, 55: 2141.  
[9] Aorner R D, Weber T H, Weckenbrock M. Multiple ionization in strong laser fields [J]. Adv At Mol Opt Phys, 2002, 48: 1.  
[10] Faria C F, Liu X, Sanpera A, *et al.* Classical and quantum mechanical treatments of nonsequential double ionization with few cycle laser pulses [J]. Phys Rev A, 2004, 70: 043406.  
[11] Becker A, Daomer R, Moshhammer R. Multiple frag-

- mentation of atoms in femtosecond laser pulses [J]. *J Phys B*, 2005, 38: 753.
- [12] Gibson G N, Li M, Guo C. Non-sequential double ionization of molecules [J]. *Phys Rev A*, 2004, 71: 309.
- [13] Cornaggia C, Hering P. Nonsequential double ionization of small molecules induced by a femtosecond laser field [J]. *Phys Rev A*, 2000, 62: 578.
- [14] Baier S, Becker A, Plaja L. Nonsequential double ionization of the hydrogen molecule; dependence on molecular alignment [J]. *Phys Rev A*, 2008, 78: 013409.
- [15] Ye D F, Chen J, Liu J. Classical trajectory perspective on double ionization dynamics of diatomic molecules irradiated by ultrashort intense laser pulses [J]. *Phys Rev A*, 2008, 77: 013403.
- [16] Xin G G, Ye D F, Liu J. Dependence of the correlated-momentum patterns in double ionization on the carrier-envelope phase and intensity of a few cycle laser pulse [J]. *Phys Rev A*, 2010, 82: 063423.
- [17] Cornaggia C, Lavancier J, Normand D, *et al.* Multielectron dissociative ionization of diatomic-molecules in an intense femtosecond laser field [J]. *Phys Rev A*, 1991, 44: 4499.
- [18] Codling K, Frasiniski L J. Dissociative ionization of small molecules in intense laser fields [J]. *J Phys B*, 1993, 26: 783.
- [19] Chen J X, Gong Q H. The multielectron dissociative ionization dynamics of  $N_2$  molecule in intense femtosecond laser fields with arbitrary polarization [J]. *Chin Phys*, 2005, 14: 1960.
- [20] Levis R J, Dewitt M J. Photoexcitation ionization and dissociation of molecules using intense near-infrared radiation of femtosecond duration [J]. *J Phys Chem A*, 1999, 103: 6493.
- [21] Salières P, Ditmire T, Perry M D, *et al.* Angular distributions of high-order harmonics generated by a femtosecond laser [J]. *Adv Atom Mol Opt Phys*, 1996, 29: 4771.
- [22] Posthumus J H. The dynamics of small molecules in intense laser fields [J]. *Rep Prog Phys*, 2004, 67: 623.
- [23] Hishikawa A, Iwamae A, Hoshina K, *et al.* Coulomb explosion dynamics of  $N_2$  in intense laser field by mass-resolved momentum imaging [J]. *Chem Phys*, 1998, 231: 315.
- [24] Hishikawa A, Iwamae A, Hoshina K, *et al.* Mass-resolved two-dimensional momentum imaging of the coulomb explosion of  $N_2$  and  $SO_2$  in an intense laser field [J]. *Chem Phys Lett*, 1998, 282: 283.
- [25] Cornaggia C, Lavancier J, Normand D, *et al.* Intensity dependence of the multielectron dissociative ionization of  $N_2$  at 305 and 610 nm [J]. *Phys Rev A*, 1990, 42: 5464.
- [26] Menon S, Nibarger J P, Gibson G N. A framework for understanding molecular ionization in strong laser fields [J]. *J Phys B*, 2002, 35: 2961.
- [27] Codling K, Cornaggia C, Frasiniski L J, *et al.* Charge symmetrical fragmentation of diatomic-molecules in intense picosecond laser fields [J]. *J Phys B*, 1991, 24: 593.
- [28] Spence D E, Kean P N, Sibbett W. 60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti: sapphire laser [J]. *Opt Lett*, 1991, 16: 42.
- [29] Merrick J D, Robert J L. Calculating the Keldysh adiabaticity parameter for atom and diatomic molecules [J]. *Chem Phys*, 1998, 108: 7739.
- [30] Keldysh L V. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave [J]. *Sov Phys Jetp*, 1965, 20: 1307.
- [31] Reiss H R. Unsuitability of the keldysh parameter for laser fields [J]. *Phys Rev A*, 2010, 82: 023418.
- [32] Guo C, Li M, Nibarger J P. Single and double ionization of diatomic molecules in strong laser fields [J]. *Phys Rev A*, 1998, 58: 4271.