

现代物理基础丛书

70

原子分子光电离 物理及实验

汪正民 著



科学出版社

现代物理基础丛书 70

原子分子光电离物理及实验

汪正民 著

科学出版社

北 京

内 容 简 介

本书从基本概念出发论述通过激光光电离研究原子分子激发态结构及动力学的方法、原理与实验,系统讲述原子多光子电离光电子角分布的相关理论与实验,详细介绍探测全空间光电子角分布影像并由此确定原子微观动力学参数的方法及多通道跃迁过程的量子干涉,阐述原子的阈上电离、激发态自电离共振、量子拍及多能级跃迁交叉共振等现象,书中有关内容还包括高分辨激光光谱、原子超精细结构测量及单原子探测等,讨论共振增强多光子电离、零动能光电子谱及态选择光电离产物成像技术等现代分子光电离研究方法,介绍分子红外多光子离解过程中的光选择性同位素分离、分子间振动能量转移以及非统计离解行为等现象,考虑到本书内容所需要的基础知识,又系统而精炼地讲述量子力学的主要内容以及密度矩阵方法。

本书可供从事原子分子物理、光物理、光化学以及激光光谱研究的广大科技工作者阅读,也适合作为相关专业的大学教师、研究生与本科生的参考教材。

图书在版编目(CIP)数据

原子分子光电离物理及实验/汪正民著. —北京:科学出版社,2015

(现代物理基础丛书;70)

ISBN 978-7-03-045484-3

I. ①原… II. ①汪… III. ①光电离-实验 IV. ①0461.1-33

中国版本图书馆 CIP 数据核字(2015)第 200473 号

责任编辑:刘凤娟 / 责任校对:邹慧卿

责任印制:徐晓晨 / 封面设计:陈 敬

科学出版社 出版

北京东黄城根北街 16 号

邮政编码:100717

<http://www.sciencep.com>

北京教图印刷有限公司印刷

科学出版社发行 各地新华书店经销

*

2015 年 10 月第 一 版 开本:720×1000 B5

2015 年 10 月第一次印刷 印张:23 3/4 插页:2

字数:460 000

定价:139.00 元

(如有印装质量问题,我社负责调换)

《现代物理基础丛书》编委会

主 编：杨国桢

副 主 编：阎守胜 聂玉昕

编 委：(按姓氏笔画排序)

王 牧	王鼎盛	朱邦芬	刘寄星
杜东生	邹振隆	宋菲君	张元仲
张守著	张海澜	张焕乔	张维岩
侯建国	侯晓远	夏建白	黄 涛
解思深			

前 言

通过激光光电离研究原子分子激发态结构和动力学已成为现代原子分子物理学研究的重要手段. 本书所涉及的内容涵盖了近 40 年在国际上发展起来的激光光电离研究的大部分专题, 其中包含了作者多年来在原子分子光物理领域所做的主要研究工作. 全书共分成八章. 第 1 章绪论简要说明几个主要研究领域的基本概况及其发展历史. 考虑到各章节所需要的基础知识, 第 2 章系统而精炼地讲述量子力学的主要内容, 以方便需要的读者. 第 3 章讨论原子体系的相干激发与电离, 包括两能级系统相干激发、密度矩阵方法、原子-光场相干相互作用、量子拍频现象、激发态自电离共振、阈上电离、单原子探测, 以及原子超精细结构测量等相关内容.

第 4、5 两章是根据作者前一本书^①中第 1、2 两章英文内容重新组织改写而成. 详细讲述原子多光子电离光电子角分布的相关理论与实验, 包括用光电子成像装置收集光电离过程中向全空间发射的光电子, 重点讨论使用椭圆偏振光激发的光电子角分布影像并由此确定原子微观动力学参数的原理与方法, 讲述在双色激光场中原子分子双通道光电离的量子干涉现象及测量技术, 同时阐明通过量子干涉得到的非对称光电子角分布影像来确定原子奇偶宇称连续波相位差的方法. 这两章不仅对专业人员开展相关的研究课题有着重要参考价值, 而且结合前两章的相关内容更有助于刚踏入物理学研究大门的青年科学工作者、研究生和大学生深入理解量子物理中诸如波函数、电子云、物质波干涉这些基本而又重要的物理概念的真正含义.

第 6 章讲述原子的速度选择光激发光谱, 也就是通过原子速度选择消除多普勒谱线展宽的高分辨激光光谱学方法. 本章从谱线展宽的基本概念出发, 讨论包括饱和吸收光谱, 偏振光谱和双光子吸收光谱的原理及实验方法. 同时还详细阐明多能级跃迁饱和吸收交叉共振量子现象的起因, 并以正反交叉共振峰的实验结果直观地加以说明.

如在第 4 章所讨论的, 通过对电离光电子角分布的研究可以获得原子结构和光电离微观动力学参数等多方面信息. 同样, 对分子光电离或离解后的产物(如电子或离子)的探测可以深入了解分子的电子结构、振动转动动态结构及光电离和离解动力学等. 在第 7 章介绍关于分子的多光子激发、电离与离解过程的研究方法. 这是本书主要内容之一, 为方便各专题的讨论, 本章首先讲述分子电子态的分类和标记, 分子的能级结构、光谱以及弗兰克-康登原理等必要的基础知识, 进而介绍分子的光选择共振激发与电离, 包括共振增强多光子电离, 零动能光电子谱, 以及态选择光电离产物

① 汪正民. 光场中的原子分子及激光技术. 北京: 科学出版社, 2012.

成像等现代分子光电离技术. 最后以相当的篇幅介绍分子红外多光子过程的研究, 阐述红外多光子离解过程中的光选择性同位素分离、分子间振动能量转移, 以及非统计离解行为等现象及相关的实验.

由于第 4~7 章涉及大量的光学与激光实验技术, 所以我们在第 8 章专门讲述有关实验方法. 主要包括光电子角分布成像技术、紫外与可见光束相干匹配条件的定量描述与两光束相位差的测量, 详细讨论光场的不同偏振态及其操控, 以及法布里-珀罗标准具在光波长与光谱线宽测量、激光纵模选择中的原理等. 另外, 为了不影响正文叙述的连贯性, 几个表达式的推导以及补充说明作为附录置于书末, 这不仅有助于读者理解相应章节的有关内容, 而且具有独立的参考价值.

本书读者对象主要是从事原子分子物理、光物理、光化学和激光光谱研究的科研人员, 以及相关专业的大学教师和研究生. 为了帮助读者, 特别是刚步入这些领域的年轻学者或感兴趣的青年教师或大学生便于阅读和理解所论述的专题, 各章节都包括了相关的基础预备知识, 从基本概念出发逐步深入到具体的研究方法及实验细节. 为了保持叙述的严格性, 必要时也从理论上适当地加以说明. 全书使用了较多的插图来说明有关物理概念与实验结果. 考虑到曲线图的精确性, 对实验数据的拟合以及说明关系式的曲线都使用了 MATLAB 软件编程绘制. 某些章节对实验细节和技巧也作了详细描述.

最后要说明的是, 在本书撰写过程中得到清华大学李家明院士的关心与支持; 天津理工大学戴长建教授对自电离探测实验以及速度影像的 Abel 逆变换等进行了有益讨论, 并提供了相关实验结果. 作者在此一并表示感谢.

汪正民

2015 年 4 月

于美国费城宾夕法尼亚大学

目 录

前言

第 1 章 绪论	1
1.1 原子体系的相干激发	1
1.2 多光子电离光电子角分布	2
1.3 多通道激发与光学跃迁量子干涉测量	5
1.4 分子的多光子电离与离解	7
参考文献	9
第 2 章 量子力学基本原理	11
2.1 量子论的起源	11
2.1.1 黑体辐射与普朗克量子化假设	11
2.1.2 光电效应的光量子解释	13
2.1.3 原子的稳定性与线状光谱	14
2.2 波与粒子	15
2.2.1 波粒二象性	15
2.2.2 不确定性原理	16
2.3 物质波的波动方程	17
2.3.1 薛定谔方程	19
2.3.2 波函数的物理意义	20
2.3.3 态叠加原理	22
2.3.4 求解薛定谔方程的两个例子	22
2.3.5 宇称	31
2.4 力学量的算符表示	33
2.4.1 算符的一般概念	33
2.4.2 线性算符与厄米算符	34
2.4.3 表示力学量算符的性质	34
2.4.4 力学量的平均值	37
2.4.5 对易算符与力学量的同时测量问题	38
2.5 波函数的矢量表示	40
2.5.1 狄拉克符号的引入	40
2.5.2 态空间波函数的展开	41
2.5.3 算符的矩阵表示	44

2.6 角动量	45
2.6.1 角动量量子化	45
2.6.2 单电子原子	51
2.6.3 正常塞曼效应	56
2.6.4 电子自旋	58
2.6.5 角动量耦合	59
2.7 量子跃迁	63
2.7.1 跃迁矩阵元	63
2.7.2 含时微扰理论	64
2.7.3 含时微扰近似解法	65
2.7.4 简谐微扰	66
2.7.5 连续态跃迁速率——费米黄金律	68
参考文献	70
第3章 原子体系的相干激发与电离	72
3.1 两能级系统相干激发	72
3.1.1 几率振幅方程	72
3.1.2 跃迁几率随时间的演化	74
3.1.3 拉比振荡	75
3.1.4 考虑弛豫过程的激发	76
3.2 密度矩阵	78
3.2.1 两能级孤立体系密度矩阵	79
3.2.2 混合态密度矩阵	80
3.2.3 密度矩阵随时间的演化——运动方程	82
3.2.4 布洛赫矢量与光学布洛赫方程	82
3.3 原子的相干激发	89
3.3.1 原子-光场相干相互作用	89
3.3.2 量子拍原理与实验	91
3.4 原子的共振激发与电离	97
3.4.1 激发态自电离共振	97
3.4.2 共振光电离与单原子探测	108
3.4.3 原子超精细结构测量	111
3.5 原子的阈上电离	117
3.5.1 基本概念	117
3.5.2 低能量 ATI 峰的场诱导抑制	118
3.5.3 皮秒脉冲激光作用下光电子能谱的红移	121
3.5.4 激光偏振态的影响	123

参考文献	125
第 4 章 原子多光子电离及微观参数的确定	127
4.1 多光子电离的基本概念	127
4.2 线偏振光多光子电离与光电子角分布测量	129
4.2.1 铷原子双光子电离通道	129
4.2.2 极坐标平面内光电子角分布测量	131
4.2.3 原子微观参数与光电子角分布的关系	135
4.2.4 原子微观参数的确定	139
4.3 任意偏振光双光子电离光电子角分布理论	140
4.3.1 光电子角分布的一般表达式	140
4.3.2 椭圆偏振光激发的光电子角分布	144
4.4 全空间光电子角分布成像实验	146
4.4.1 光学系统	146
4.4.2 真空系统及原子束的产生	148
4.4.3 光电子角分布成像装置	150
4.4.4 地球磁场的影响及消除	150
4.5 由光电子角分布影像确定原子微观参数	151
4.5.1 光场偏振态的调整与检测	152
4.5.2 光电子角分布影像的形成	155
4.5.3 不同偏振态激光产生的光电子影像	157
4.5.4 光电子投射轨道分析	159
4.5.5 实验影像与理论计算影像的拟合	163
4.5.6 ϵ^2s 和 ϵ^2d 波的相对电离截面	170
4.5.7 ϵ^2s 和 ϵ^2d 波之间的相对相位	171
参考文献	173
第 5 章 原子分子多通道激发与量子干涉	175
5.1 光学相干与量子干涉	175
5.2 光学跃迁过程的量子干涉	176
5.2.1 Hg 原子双通道跃迁的量子干涉	176
5.2.2 HI 分子双通道跃迁的量子干涉	179
5.3 双通道跃迁量子干涉与非对称光电子角分布	181
5.3.1 光电子角分布的相位控制原理	181
5.3.2 双色激光束匹配及光场相位的控制	184
5.3.3 Rb 原子双通道光电离量子干涉与非对称光电子角分布影像的形成	186
5.4 由非对称光电子角分布影像确定原子奇偶宇称连续波相位差	191
5.4.1 单光子跃迁矩之比 $R_{1/2}/R_{3/2}$ 的确定	191

5.4.2 p波和d波相位差的测定	192
5.5 平行偏振的双色激光场中 Rb 原子电离光电子角分布	193
参考文献	198
第 6 章 原子的速度选择光激发光谱	199
6.1 光谱线的宽度	199
6.1.1 光谱线的自然宽度	199
6.1.2 光谱线的多普勒展宽	201
6.1.3 均匀展宽与非均匀展宽——谱线线型	203
6.2 饱和吸收现象	205
6.2.1 饱和吸收凹陷	205
6.2.2 探测凹陷的几种实验方案	206
6.3 饱和吸收光谱	210
6.4 多能级跃迁交叉共振	212
6.4.1 交叉共振现象及起因	212
6.4.2 正反交叉共振的两个实验	215
6.5 偏振光谱	217
6.6 双光子吸收光谱	221
参考文献	225
第 7 章 分子的多光子激发、电离与离解	226
7.1 分子的能级结构、跃迁及光谱	226
7.1.1 分子电子态的分类和标记	226
7.1.2 势能曲线与振动非谐性	229
7.1.3 弗兰克-康登原理	231
7.1.4 分子的振动-转动跃迁	235
7.1.5 电子跃迁的转动结构	241
7.2 分子的光选择共振激发与电离	243
7.2.1 共振增强多光子电离	245
7.2.2 零动能光电子谱	251
7.2.3 高分辨离子转动谱及分子电离势的测量	255
7.3 态选择光电离产物成像	260
7.3.1 离子成像概述	260
7.3.2 第一个离子成像实验	262
7.3.3 内能态与速度分布的关系	264
7.3.4 双原子分子 DI 的光离解产物成像	264
7.3.5 速度映射成像	268
7.3.6 光电子-光离子符合技术	273

7.4 红外多光子激发与离解	275
7.4.1 分子的光选择激发与同位素分离	275
7.4.2 红外多光子吸收峰的分裂与红移	279
7.4.3 电子激发态 $d^3 \Pi_g C_2^*$ 自由基的形成	282
7.4.4 分子间的 V-V 能量转移	285
7.4.5 红外多光子离解过程中的气相到固相转变	292
参考文献	293
第 8 章 相关技术与实验	296
8.1 光电子成像实验技术	296
8.1.1 微通道板探测器	296
8.1.2 光电子信号模数转换	297
8.1.3 空间电子云的微通道板探测	299
8.2 紫外与可见光束相干匹配条件的定量分析	302
8.3 紫外与可见光相位差的测量	306
8.4 光波偏振态的操控	311
8.4.1 偏振态的描述	311
8.4.2 波片与非涅耳棱镜	315
8.4.3 偏振态的控制	317
8.5 激光纵模选择及模式监测	319
8.5.1 法布里-珀罗标准具	319
8.5.2 波长、线宽测量及模式监测	327
8.5.3 双标准具选模	332
参考文献	337
附录	338
A. 通过偏振器产生的椭圆偏振光强度表达式 $P_1 = P_0 (\epsilon_1 ^2 \sin^2 \vartheta' + \epsilon_3 ^2 \cos^2 \vartheta')$ 的推导	338
B. 椭圆偏振光椭圆率参数 $ \epsilon_1 $ 和 $ \epsilon_3 $ 的确定	339
C. s, p 和 d 分波间库仑相位差的推导	342
D. 量子亏损相位差的推导	343
E. CO_2 激光分子能级图与输出光谱线	344
F. 离子成像三维影像重构基本原理——Abel 逆变换	351
G. 基本物理常数及常用能量单位转换	353
H. 元素的相对原子质量及电离能	356
参考文献	358
索引	359

《现代物理基础丛书》已出版书目

第 1 章 绪 论

原子分子受光辐照释放出电子的现象称为光电离. 光电离是一个物理过程, 本质上与光照使金属表面逸出电子的光电效应相同. 光电离所释放的电子称为光电子, 它携带着原子分子的内部信息, 例如, 一个光电子的动能 E_k 就是入射光子的能量 $h\nu$ 减去原子的电离能 E_i , 即

$$E_k = h\nu - E_i$$

如果用已知波长的光激发原子并测得光电子的动能, 也就得到原子的电离能. 如光子能量小于 E_i , 光子被吸收但不能使原子或分子电离. 上式与描述光电效应的公式是相同的. 1916 年密立根 (Millikan) 利用光电效应直接测定普朗克常数^[1] 与 1925 年 Foote 和 Mohler 的铯原子光电离实验^[2] 是早期光电离研究的两个典型事例. 以后的很多年, 光源的强度与谱线宽度等限制了这方面研究的发展. 随着激光的出现, 20 世纪 60 年代开始利用高功率窄带激光光源的光电离研究迅速展开, 其中最值得注意的是激光多光子电离技术. 通过多光子电离实验, 可以获得原子分子能级结构, 微观动力学参数, 以及与光场相互作用等多方面信息. 通常使用在多光子过程的高功率激光不仅提高了探测信号的信噪比, 而且可以实现量子态的选择性激发. 这些特点已经被广泛应用于激发态光谱, 单原子探测, 自电离态, 以及复杂分子的振动能量再分配的研究等. 共振增强多光子电离 (REMPI) 和零动能 (ZEKE) 光电子探测技术已广泛应用于分子和离子的能级结构, 特别是转动能级和里德伯 (Rydberg) 态的研究. 利用不同跃迁通道的光电离过程之间的量子干涉效应可以获得单通道光电离过程得不到的原子分子结构动力学信息, 并可主动控制化学反应过程.

1.1 原子体系的相干激发

原子分子与激光场相互作用两个最重要特点就是相干性和非线性, 但并不是所有过程都具有这两个特性. 相干性是激光辐射的最重要的性质之一, 包括空间相干性和时间相干性. 波的相干都是与相位相联系的. 对于空间相干性, 我们考虑在 t_0 时刻波前上两个点的相位差 φ_0 . 如在任意时刻 $t > t_0$, 这两点的相位差保持不变, 则称此波在这两点是相干的. 假如在光波波前上的任何两点在不同时刻都保持恒定的相位差, 则称此波具有完全的 (完美的) 空间相干性, 但实际上激光束的空间相干性只限定在一个有限的区域. 对于时间相干性, 考虑在波前上的一个固定

点,如果在任意两个时刻 t 和 $t + \Delta t$ 之间,波在该点的相位差不变,则 Δt 为相干时间,与相干长度的关系是 $L_{\text{coh}} = c\Delta t$,即波前在 Δt 时间内传播的距离.

相干激光束与粒子系综(如原子、分子)的作用过程中,可以将单个粒子看成静止的,因为即使是最快的粒子束,在激光束作用时间内的运动距离只有几微米.在此过程中吸收了光子,激光辐射的相干性转移到粒子.在实验上正是利用这一相干转移来研究原子分子与光场的相干相互作用.如果激发的原子分子在某时刻 t 所有的粒子波函数都具有相同的相位,称为相干激发.但由于系综中的不同粒子波函数相位因子 $\exp(i\omega t)$ 中的频率不同或弛豫过程的差异,相位关系可能会随时间变化引起“相位弥散”,使相干度降低.

脉宽为 Δt 的激光,其频带宽度是 $\Delta\omega \approx 1/\Delta t$,如果粒子激发态能级间隔 $\Delta E < \hbar\Delta\omega$,则多个能级可同时被激发.例如,粒子被同时激发到两个十分接近的能级时,两个能级波函数的相干,使得发射的荧光信号受到调制,调制频率也正好是两能级的差频,也就是说在指数衰减信号上叠加了一个拍频信号.这种现象称为量子拍.

描写原子分子激发态相干和非相干性的一种优美的理论形式就是密度矩阵.为简单起见,考虑一个孤立的两能级体系,假设系综中的每一个粒子的状态可以由下面的波函数所描述:

$$|\Psi\rangle = c_1 e^{-iE_1 t/\hbar} |1\rangle + c_2 e^{-i\phi} e^{-iE_2 t/\hbar} |2\rangle$$

式中, c_1 和 c_2 是与时间有关的振幅; ϕ 是每个粒子两个态波函数之间的相对相位,不同粒子之间可能有差异; $|1\rangle$ 和 $|2\rangle$ 分别表示基态和激发态的本征态矢

$$|1\rangle = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad |2\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}$$

这种情况的密度矩阵 ρ 表示为

$$\rho = |\Psi\rangle\langle\Psi| = \begin{pmatrix} c_1 c_1^* & c_1 c_2^* e^{+i\phi} e^{-i(E_1 - E_2)t/\hbar} \\ c_2 c_1^* e^{-i\phi} e^{+i(E_1 - E_2)t/\hbar} & c_2 c_2^* \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \rho_{11} & \rho_{12} \\ \rho_{21} & \rho_{22} \end{pmatrix}$$

矩阵的两个对角元 ρ_{11}, ρ_{22} 分别表示粒子占据能态 $|1\rangle$ 和 $|2\rangle$ 的几率. 两个非对角元 ρ_{12}, ρ_{21} 描写体系的相干性. 如果系综中不同粒子的相位 ϕ 是随机分布的, 两个非对角元 $\rho_{12} = \rho_{21} = 0$, 相干性消失. 这种情况属于非相干激发. 如粒子波函数之间保持确定的相位关系, 则称该体系处于相干态. 此时两个非对角元 ρ_{12}, ρ_{21} 描写体系的相干度.

1.2 多光子电离光电子角分布

光电离过程产生的光电子流在空间不同方向的强度分布称为光电子角分布. 光电子角分布与原子分子结构、辐照光的频率、光场偏振状态等多种因素密切相关. 通

通过对光电子角分布的研究可以获得原子分子结构和动力学参数等多方面信息。

第一个光电子角分布测量可以追溯到 1924 年. Bothe 用 X 射线使 CHCl_3 和 $\text{C}_2\text{H}_5\text{Br}$ 等分子电离来测量光电子角分布^[3]. X 射线光子的线动量如此之高,以至于与束缚电子的线动量相比不可忽略,动量转移使得光电子角分布产生畸变,但这一实验却开创了光电子角分布研究的先河. Chaffee 在 1931 年报道的用线偏振紫外光对钾蒸气的光电离的光电子角分布实验中^[4],光子的线动量可忽略不计了. 测量结果显示,光电子角分布遵照光场偏振方向与光电子出射方向夹角 θ 的余弦平方($\cos^2\theta$)而变化. 光电子出射几率最大的方向是在电场矢量,即光矢量的偏振方向上.

在角分布的理论研究方面,早在 1948 年杨振宁就详细分析了核反应过程中出射粒子的角分布,得到了几个具有普遍意义的定理^[5]. 事实上后来发展的光电子角分布理论研究的很多结果都包括在这一理论分析中. 对于多光子电离过程可以表述为,吸收 N 个光子的球对称原子体系的光电子角分布是 $\cos\theta$ 偶次幂的多项式,其最高次幂不大于 $2N$. 例如,对于 N 个光子的线偏振光多光子电离光电子角分布可以表示为

$$I(\theta) = \alpha_0(1 + \alpha_2 \cos^2\theta + \cdots + \alpha_{2N} \cos^{2N}\theta) \quad (1.2.1)$$

1964 年, Zernik 最先计算了以波长 $6943\text{\AA}$ 红宝石激光激发的 $2s$ 亚稳态氢原子双光子电离光电子角分布,并由角分布得到了偶极跃迁矩阵元、角分布系数和总电离截面^[6]. 随后, Cooper 和 Zare 导出了线偏振光单光子电离光电子角分布的具体表达式^[7]

$$I(\theta) = \frac{\sigma_{\text{tot}}}{4\pi} [1 + \beta P_2(\cos\theta)] \quad (1.2.2a)$$

式中, σ_{tot} 是总电离截面; θ 是上面已提到的人射光的偏振方向与出射光电子的初始动量方向的夹角; $P_2(\cos\theta) = (3\cos^2\theta - 1)/2$ 是二阶勒让德多项式; β 是表征角分布的一个非对称参数 ($-1 \leq \beta \leq 2$), 该参数包含着决定角分布的全部动力学信息. 式(1.2.2a)可简单地表示为

$$I(\theta) = \alpha_0 + \alpha_2 \cos^2\theta \quad (1.2.2b)$$

这正是方程(1.2.1)中 $N=1$ 的情况. 由此式可以看到,在线偏振光单光子电离的情况下,光电子角分布的最大值出现在 $\theta=0^\circ$ 的方向;而在 $\theta=90^\circ$ 的方向为最小值,与 Chaffee 的实验结果一致.

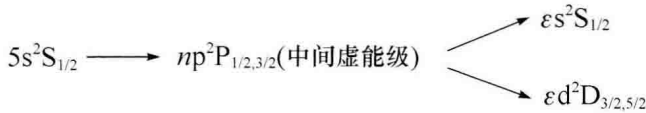
随着激光的出现,特别是高功率可调谐激光器的发展,到了 20 世纪 70 年代开始了大量的多光子电离的光电子角分布理论和实验研究,以揭示光离化动力学过程中原子跃迁的一些细节问题以及分子内的动力学过程. Lambropoulos 等最先系统地研究了多光子过程和多光子电离光电子角分布理论^[8],以及线偏振和圆偏振光作用下的碱金属原子多光子电离过程与激光功率密度的影响^[9]. 多光子电离光电子角分布的实验研究最先由 Edelstein 等完成^[10],他们用脉冲氮分子激光器的

紫外输出($\lambda=3371\text{\AA}$),经方解石偏振棱镜产生的线偏振光激发钛(Ti)原子,产生双光子共振电离.第一个光子将钛原子从基态共振激发到中间态 χ^3G_5 能级,第二个光子将其从 χ^3G_5 能级激发到电离态.实验结果说明了通过双光子共振电离测量光电子角分布技术的可行性,但是由于钛原子结构的复杂性,对角分布的规律难以作出明确解释.他们又将测量对象转向钠原子^[11].首先以可调谐染料激光器输出的线偏振光将钠原子从基态 $3s^2S_{1/2}$ 激发到中间态 $3p^2P_{1/2}$ 或 $3p^2P_{3/2}$,经5ns延迟后再由 $3371\text{\AA}$ 氮分子激光从中间态进一步激发到电离态,获得了理论预期的角分布.这是第一次成功的原子共振双光子电离光电子角分布测量.

自此以后,人们开始了大量的光电离动力学过程的研究.例如,通过光电子角分布研究连续态波函数相位差,自电离态的特性,中间能态的相干弛豫,光电子自旋极化,动态斯塔克效应(a. c. Stark effect)对光电子角分布的影响,量子干涉效应,甚至包括激发态原子的再复合机制等.当时在原子物理学研究的这一领域,其中一个趋势是朝着所谓光电离过程中的“完整测量”而努力.也就是通过光电子角分布实验,不仅要获得中间能态的信息,如电离截面等,而且要得到原子各电离通道的连续态波函数相位差及相对电离截面这些动力学参数.例如,对于线偏振光双光子电离过程的光电子角分布,可令式(1.2.1)中的 $N=2$,得到

$$\begin{aligned} I(\theta) &= \alpha_0(1 + \alpha_2 \cos^2 \theta + \alpha_4 \cos^4 \theta) \\ &= \alpha_0(1 + a_2 \cos 2\theta + a_4 \cos 4\theta) \end{aligned} \quad (1.2.3)$$

式中,系数 α_2, α_4 或 a_2, a_4 是表征光电子角分布的非对称参数,是原子微观参数的函数; α_0 或 a_0 只影响光电子流的总体强度,不影响角分布的形状.因此,一旦获得光电子角分布,就可以由光电子角分布数据与方程(1.2.3)的拟合获得系数 α_2 和 α_4 ,由此也就可以得到原子参数.以铷原子为例,双光子电离的跃迁过程为



三个原子参数就是两个不同角动量态 $l=0$ 和 $l=2$ 分波的相对相位 $\xi_s - \xi_d$ 、相对电离截面 σ_s/σ_d ,以及 $l=2$ 分波对应的连续态精细结构分量的相对电离截面 $\sigma_{5/2}/\sigma_{3/2}$ 等.问题是,在式(1.2.3)中只有两个拟合系数 α_2 和 α_4 ,因此必须要借助于理论结果或其他方法获得其中一个参数才可以确定另外两个.还有,对于相位差,所得到的是余弦值,但在 $0 \sim 2\pi$ 区间内一个余弦值同时与两个角度相对应,相位差还是不能唯一确定.因此,使用线偏振光的这种传统的测量方法不能完整地确定这些微观参数.

上面已经说明,光电子角分布也与光场的偏振态密切相关.作者与 Elliott 首次使用椭圆偏振光的双光子电离光电子角分布完全确定了这三个原子参数^[12].为

了简单起见,我们考虑在垂直于激光束传播的平面上任意偏振光双光子电离的角分布关系式

$$I(\theta) = a_0(1 + a_2 \cos 2\theta + a_4 \cos 4\theta + b_2 \sin 2\theta) \quad (1.2.4)$$

以此说明使用椭圆偏振光的优越性. 式(1.2.4)类似于式(1.2.3),但多了一项 $b_2 \sin 2\theta$. 系数 a_2, a_4 和 b_2 不仅包含待确定的三个原子参数,而且还包含光场偏振分量. 因此,不同的偏振光将产生不同的角分布. 对线偏振光, $b_2 = 0$, 式(1.2.4)就化为式(1.2.3)的形式;对圆偏振光, a_2, a_4, b_2 三个系数都变成 0, $I(\theta)$ 为常数,不随 θ 而变化,角分布是各向同性的;对椭圆偏振光,三个原子参数可以由三个拟合系数唯一确定. 同时在实验中使用了光电子成像装置获得 4π 立体角空间光电子角分布影像(也就是连续态电子云投影)来确定原子参数,这比在极化平面内角分布测量可获得更完整的信息.

1.3 多通道激发与光学跃迁量子干涉测量

经典光学中著名的杨氏双缝实验是两束光波的干涉实验. 当光通过两个狭缝时形成两个柱面光波,因两光波的干涉在观察屏幕上出现明暗相间的条纹,条纹的明暗取决于在屏幕上每一个点两波的相位是同相还是反相,即相长或相消干涉.

在原子或分子的双通道跃迁过程中,也会出现干涉效应. 具体地说就是使用两个不同频率的激光,通过不同通道将原子或分子从同一个初态激发到同一个末态的多通道跃迁过程. 通过改变光场的相位和振幅可以控制电离或离解产物(如光电子或离子等)的分布. 这种双通道跃迁过程的干涉效应属于量子干涉的范畴,也就是物质波的干涉. 与双缝干涉十分相似,双通道跃迁的每一个独立通道的跃迁几率为

$$P_n = |\langle \psi_f | \hat{A}_n | \psi_i \rangle|^2 \quad (1.3.1)$$

式中, ψ_i 和 ψ_f 分别是通道 n 的初态和末态波函数; $\hat{A}_n$ 是该通道的跃迁算符. 当有两个通道同时存在时,总的跃迁几率为

$$P = P_1 + P_2 + P_{12} \cos(\Delta\delta) \quad (1.3.2)$$

式中, P_1 和 P_2 分别是通道 1 和 2 的跃迁几率; $P_{12} \cos(\Delta\delta)$ 是两个通道的干涉项,其中 $\Delta\delta = \phi + \xi$ 为跃迁振幅间的相位差,它包含了两个光场的相对相位 ϕ 和两路激发的波函数的相对相位 ξ , 因此改变光场的相位就可以控制产物的分布.

1990 年,陈策、印义言等^[13]首次观察到光学跃迁过程中的干涉效应. 实验使用基频 554nm 和三倍频 185nm 的双色激光同时辐照 Hg 原子,经两个通道激发到电离态. 一个通道是基频波三光子共振激发 Hg 原子到中间态 $6p^1P$,再以双光子激发电离. 另一通道是三倍频波的单光子激发与基波的双光子过程. 因 $6s^1S_0 \rightarrow 6p^1P_1$ 跃迁过程中两个通道间的量子干涉,观测到跃迁几率随光场相位的变化而作

正弦变化,实验得到的结果反映在光电子信号的强度变化上.不久,朱朗池等^[14]又首次实现了利用分子光激发过程的通道量子干涉效应来控制光产物几率分布.实验使用的是波长 354.98nm 的紫外基频(ω_1)波与三倍频($\omega_3 = 3\omega_1$)118.33nm 真空紫外光同时激发 HI 分子使其离解.通过改变光场相位来控制光离子产物 HI^+ 和 I^+ 的相对产率.实验结果显示,两种离子的强度信号随着光场相位的变化而变化.二者之间的调制相位相差约 150° ,接近反向,即一种离子产率最大时另一种离子产率接近最小值.这两个实验都说明了 3 个光子和 1 个光子的双通道激发过程中的量子干涉效应,两光束频率满足 $3\omega_1 = \omega_3$ 的条件,一般情况表示为 $m\omega_n = n\omega_m$. 这两个例子中的产物几率变化的相位关系,按照式(1.3.2),其相位差是

$$\Delta\delta = \phi_3 - 3\phi_1 + \xi_{13} \quad (1.3.3)$$

式中, ϕ_3 和 ϕ_1 是两光场相位恒量; ξ_{13} 称为“原子相位”(对原子过程)或“分子相位”(对分子过程).由此可知改变激光相位 $\phi_3 - 3\phi_1$ 就可以控制光产物几率.

上述两个例子说明了原子分子双通道激发过程中两个通道之间的量子干涉使电离产物随光场相位的变化现象.在分子动力学的研究领域还观察到其他一些类似的量子干涉现象.例如,沙国河等^[15]首次在实验上探测到分子碰撞传能中的量子干涉效应.他们使用激光双共振电离光谱技术研究了 CO 分子单重/三重混合激发态碰撞传能过程.实验使用一束泵浦光产生双光子共振跃迁,将 CO 分子从基态激发到 $\text{A}^1\Pi$ 态($\text{A}^1\Pi \leftarrow \text{X}^1\Sigma^+$)某一个选定的振动-转动(振-转)能级(作为初态).CO 分子与碰撞伴气体(如 He、Ar 等)原子碰撞,通过传能过程产生不同的激发态分子.另一束探测光扫描波长,将初态以及因碰撞传能产生的分子态(如 $\text{e}^3\Sigma^-$)共振激发到较高的 $\text{B}^1\Sigma$ 态,再由泵浦光使分子电离.通过测量离子信号随光波长而变化的谱图,可以计算碰撞传能截面,并由此确定了碰撞传能过程的量子干涉效应.

上面关于 Hg 原子的实验是通过改变光场相位探测光电子产率的变化演示了双通道量子干涉效应.利用双通道跃迁的量子干涉可以控制光电子角分布,并可获得其他方法难以得到的原子参数信息.作者与 Elliott 使用相互垂直偏振的紫外和可见双色激光场使铷原子电离,得到了因量子干涉产生的非对称光电子角分布影像^[16],并由此影像确定了相反宇称原子相位差 $\xi_p - \xi_d$. 两个电离通道分别是:由基频光 ω_1 ($\lambda = 560\text{nm}$)激发的双光子跃迁通道 $5s^2S_{1/2} \rightarrow n^2P \rightarrow \epsilon d^2D_{3/2,5/2}, \epsilon s^2S_{1/2}$, 倍频光 ω_2 ($\lambda = 280\text{nm}$)激发的单光子跃迁通道 $5s^2S_{1/2} \rightarrow \epsilon p^2P_{1/2,3/2}$. 实验所得到的重要结果是,测量了不同角动量光电子波的干涉,证明了铷原子奇偶宇称连续态 ϵp^2P 和 ϵd^2D 光电子波的相位差符合相位关系式

$$\Delta\delta_{pd} = (\phi^{2\omega} - 2\phi^\omega) + (\xi_p - \xi_d) \quad (1.3.4)$$

两光场相位差 $\Delta\phi = \phi^{2\omega} - 2\phi^\omega$ 可以在实验过程中测量.所得到的原子相位差 $\xi_p - \xi_d$ 与根据量子亏损和库仑波函数计算值精确相符.我们将在第 5 章详细讨论这项研究的原理、实验方法和技术细节.