

# 双色场操控下氩原子单电离超快动力学研究

陈红梅\*, 吴凤润, 李整法, 汤清彬

(信阳师范大学 物理电子工程学院, 河南 信阳 464000)

**摘要:** 研究了双色激光场操控下原子单电离过程中光电子动量谱, 通过调节双色场的交叉角度和相对相位, 实现对光电子发射方向的有效控制。在实验方面, 采用冷靶反冲离子动量谱仪(COLTRIMS), 测量了800 nm + 400 nm线偏振双色场在不同交叉角度和相对相位下的光电子动量谱。结果显示, 随着交叉角度的增大, 动量谱的主轴方向发生倾斜, 其倾斜角度约为交叉角度的1/2; 而随着相对相位的变化, 动量分布在第二和第四象限之间出现显著的周期性波动。在理论方面, 基于海森堡势的经典系综模型对实验结果进行了模拟, 进一步揭示了光电子发射方向与电离时间延迟之间的关系。交叉角度的增大, 导致光电子发射更集中在单个光学周期内, 并且周期内干涉效应显著改变了光电子的运动路径。理论模拟与实验结果表明, 双色场的交叉角度和相对相位可以协同作用, 实现对光电子发射的角度分布和对称性的精确调控。

**关键词:** 超快光学; 隧穿电离; 双色激光场; 光电子动量谱; 电离操控

中图分类号: O437

文献标志码: A

开放科学(资源服务)标识码(OSID):



## Ultrafast dynamics of Argon single ionization driven by two-color laser fields

CHEN Hongmei\*, WU Fengrun, LI Zhengfa, TANG Qingbin

(College of Physics and Electronic Engineering, Xinyang Normal University, Xinyang 464000, China)

**Abstract:** The photoelectron momentum distribution resulting from the single ionization of atoms driven by two-color laser fields was investigated. By adjusting the crossing angle and relative phase of the two-color fields, the effective control over the emission direction of photoelectrons was achieved. Experimentally, photoelectron momentum distributions were measured using a cold target recoil ion momentum spectroscopy (cold target recoil ion momentum spectroscopy (COLTRIMS)) setup under linearly polarized 800 nm + 400 nm two-color laser fields with varying crossing angles and relative phases. The results showed that, with increasing crossing angle, the principal axis of the momentum distribution tilted, the tilt angle was approximately equal to half of the crossing angle. Moreover, periodic oscillations in the momentum distribution between the second and fourth quadrants were observed as the relative phase varied. Theoretically, a classical ensemble model incorporating the Heisenberg potential was employed to simulate the experimental results, revealing relationships between the emission direction of photoelectrons and the ionization time delay. It was found that increasing the crossing angle confined electron emission to within a single optical cycle, and that intracycle interference significantly altered photoelectron trajectories. These combined experimental and theoretical findings demonstrated that both the crossing angle and relative phase of the two-color fields could be used synergistically to precisely control the angular distribution and symmetry of photoelectron emission.

**Key words:** ultrafast optics; tunneling ionization; two-color laser fields; photoelectron momentum distribution; ionization control

收稿日期: 2025-06-24; 修回日期: 2025-07-03; \*通信联系人, E-mail: chen hong\_mei@126.com

基金项目: 国家自然科学基金项目(12074329); 河南省自然科学基金面上项目(252300420347); 信阳师范大学“南湖学者奖励计划”青年项目

作者简介: 陈红梅(1987—), 女, 河南新县人, 实验师, 硕士, 主要从事强激光场与物质相互作用研究。

引用格式: 陈红梅, 吴凤润, 李整法, 等. 双色场操控下氩原子单电离超快动力学研究[J]. 信阳师范大学学报(自然科学版), 2025, 38(4): 437-442.

CHEN Hongmei, WU Fengrun, LI Zhengfa, et al. Ultrafast dynamics of Argon single ionization driven by two-color laser fields[J]. Journal of Xinyang Normal University (Natural Science Edition), 2025, 38(4): 437-442.

## 0 引言

在强激光场作用下,原子核周围的库仑势垒会发生变形,激光电场可在某一瞬间降低势垒高度,从而使电子以隧穿的方式逃逸出原子束缚<sup>[1]</sup>。电离后的自由电子将在激光场与残余离子库仑势的共同作用下继续运动。因此,激光场的时空结构与库仑势场对电子的运动轨迹具有重要影响<sup>[2]</sup>。基于这一机制,展现出许多有趣的强场物理现象,例如非次序双电离(NSDI)<sup>[3-4]</sup>、光电子全息<sup>[5-8]</sup>和阿秒钟技术<sup>[9-10]</sup>等。相比之下,库仑势主要与原子分子种类相关,远不如激光场的形式多变。因此在实验和理论计算中各种不同的激光场被人们反复利用,并从中发现了许多不同的结果。

中红外少光周期激光场随着载波包络相位的增加,Xe 原子非次序双电离关联电子动量谱由第一、二、四象限的弧形结构逐渐向第三象限聚集。但在中红外激光场下,关联电子动量谱则由第一、三象限的 V 型结构转变为仅分布在第一象限的 V 型结构,这种动量分布的变化与激光场参数有着密切联系<sup>[11]</sup>。其中正交双色场通过引入另外一束垂直方向的激光来控制不同电子波包之间的干涉模式,从而影响电离产率变化<sup>[12-14]</sup>。而其他双色场的相对光强、相位、交叉角度、椭圆率和旋转方向等对电子在隧穿电离以后的动力学行为具有重要影响<sup>[15-17]</sup>,并且在操控原子、分子超快动力学的过程中发挥重要作用<sup>[18-21]</sup>。

在实验中,通过改变双色场的相对相位获得了许多重要结果:搭建时空干涉仪,通过强度相当的正交场下不同相对相位的光电子动量谱,揭示了隧穿电离的亚势垒相在光电子干涉中的重要作用<sup>[22]</sup>;利用 45°交叉双色场相对相位控制光电子动量谱,揭示了库仑效应对隧穿电子的影响<sup>[2]</sup>。事实上,对比平行和正交双色场,交叉角度的引入,使得电场在电子电离过程中的时空分布更加复杂,电子在电离后的运动轨迹更加多样化。通过控制平行极紫外阿秒脉冲(XUV-APT)和近红外(NIR)激光场之间的相对偏振角,可以观察到接近垂直于 NIR 偏振轴的光电发射方向的相移。量子 RMT 计算和半经典软光子近似模型证明了相移的角度变化源于磁性亚能级分辨部分波与残余离子态的不相干和之间的量子干涉<sup>[23]</sup>。

然而,目前强度相当的双色场交叉角度对光

电子动量谱影响的研究较少,这种配置不仅能够通过调节交叉角度改变电子的偏转方向,还可以在动量空间中引入额外的干涉条纹结构,从而揭示电子在交叉双色场下的量子干涉行为。更重要的是,交叉角度的变化可以调节激光场中电子的出射动量方向和归一化能量分布,使其能够在实验中精确探测和控制电离电子的最终状态。

本文分别从实验和理论两方面对氩原子在不同交叉角度和不同相对相位的双色场中光电子动量谱分布进行了详细的分析。实验方面,使用强度相当的 800 nm 基频场和 400 nm 倍频场叠加作用于氩原子,并通过冷靶反冲离子谱仪来记录光电子的动量分布情况。理论方面,使用海森堡势下的经典系综模型对实验结果进行模拟分析。研究结果发现,光电子动量谱的分布情况与双色场的交叉角度具有显著相关性;实验结果和理论模拟结果表明,这一现象主要依赖于光电子的电离时间,同时相对相位也对光电子动量谱分布有所影响。

## 1 实验方案

双色场使用共线倍频的方式获得:由钛蓝宝石(Ti:Sapphire)激光器产生中心波长为 800 nm 的飞秒脉冲,通过一系列平面镜进行准直后,射向一束 5:5 分束镜,其中透射光分别由光强计和 CCD 相机监视激光器的稳定性。反射光经 1/2 波片和线栅偏振片调整光强和偏振方向后通过偏硼酸钡(BBO)晶体实现倍频,获得复合激光场还需要通过方解石晶体进行补偿修正双色之间的色散现象,再经过一组 1/2 波片和线栅偏振片调整光强( $I_{400}=2\times I_{800}=9\times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>)。

双色激光的交叉角度由连接旋转位移台的 800 nm@1/2 波片进行调整,其中 400 nm 激光偏振方向固定为 z 轴方向,800 nm 激光从平行方向逆时针旋转至正交方向。相对相位通过一组连接高精度平行位移台的楔形镜调节,最后由一面凸透镜聚焦到冷靶反冲离子谱仪(Cold Target Recoil Ion Momentum Spectrum, COLTRIMS)超高真空度的反应腔体中的超音速氩原子束流上使其发生电离。实验光路原理如图 1 所示。电离产生的光电子与离子在复合电场和磁场的引导下飞向腔体两端与数据采集系统相连的微通道板(MCP)上,根据微通道板上的位置信息,结合粒子飞行时间,重



外加电场的情况下空场演化 200 a.u., 从而获得稳定的初始电子位置动量分布。所用交叉双色激光场在  $y$  轴和  $z$  轴方向的投影分别为:

$$E_y = f(t) [E_{400} \cos(\omega_{400}t + \varphi_{400}) + E_{800} \cos(\omega_{800}t + \varphi_{800}) \sin \theta],$$

$$E_z = f(t) [E_{800} \cos(\omega_{800}t + \varphi_{800}) \cos \theta], \quad (4)$$

式中:  $f(t)$  为激光场的包络, 使用 2+6+2 的梯形包络和 10 个空场周期让光电子得到充分的演化;  $E_{800/400}$ 、 $\omega_{800/400}$  和  $\varphi_{800/400}$  分别为 800 nm 与 400 nm 激光场的峰值强度、频率和相位;  $\theta$  为双色场的交叉角度。交叉角度为  $30^\circ$  时的双色场如图 4 所示。

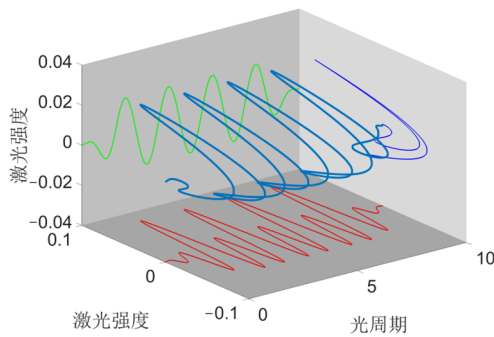


图 4 交叉角度为  $30^\circ$  时的双色场

Fig. 4 The two-color laser field with a crossing angle of  $30^\circ$

### 3.2 模拟结果与讨论

相对相位  $\varphi_{800/400}$  随电子的位置和动量随机给出, 主要结果如图 5 所示。对比实验结果可以发现, 海森堡势经典系综模型中光电子角度分布与实验基本一致。

当交叉角度为  $0^\circ$  即平行双色场下, 光电子动量谱的分布十分集中, 且主要在  $z$  轴双色激光场偏振方向, 随着双色场交叉角度的逐渐增大, 动量谱中的峰值明显变小, 可能与双色激光场相互叠加的峰值强度随交叉角度增大而变小有关。

光电子动量谱随着双色场交叉角度的增大, 产生了较为明显的逆时针旋转且旋转角度为交叉角度的  $1/2$ , 这是由于双色场中 800 nm 激光的水平方向分量给电子提供了水平偏转的作用力, 且随着双色场交叉角度的增大, 水平作用力也随之增大, 使光电子分布发生明显倾斜, 主轴分布在双色场交叉的正中间位置即交叉角度的一半。

随着双色激光之间的夹角增大干涉效应增强, 光电子分布出现明显的扩散现象, 尤其是在交叉角度为  $90^\circ$  时。对比实验结果表明: 由于两个激光场正交, 除了在激光主夹角二、四象限方向出现

峰值, 一、三象限也因正交激光场产生峰值, 且周围均出现不同程度的干涉条纹, 使干涉条纹近似呈一个圆环形状, 这种情况则与光电子的电离时间相关。

一般情况下光电子的电离时间取决于电子电离所需的能量大小, 并且与不同原子种类的电离能有着密切关系。电离能越大, 电子电离所需的光子能量也就越大, 但是双色场的引入也对其电离时间产生较大影响, 双色场的水平激光分量使电子的运动轨迹从一个方向扩展到两个方向, 也要求双色场同时到达峰值时刻才发生电离。

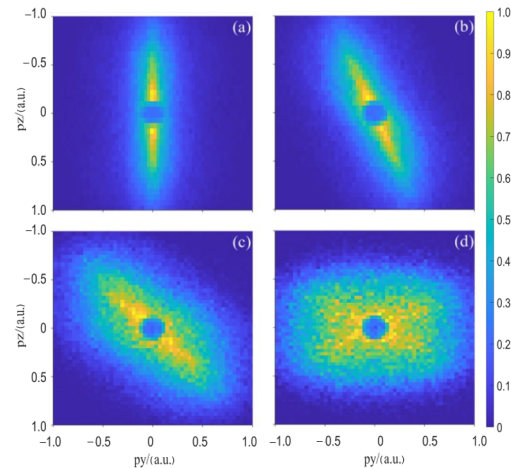


图 5 经典系综模型双色场不同交叉角度下光电子动量谱 (a)  $0^\circ$ ; (b)  $30^\circ$ ; (c)  $60^\circ$ ; (d)  $90^\circ$

Fig. 5 Photoelectron momentum distribution under the classical ensemble model for different crossing angles of the two-color laser field

(a)  $0^\circ$ ; (b)  $30^\circ$ ; (c)  $60^\circ$ ; (d)  $90^\circ$

不同交叉角度下, 光电子电离时间的分布情况如图 6 所示, 从电离时间分布图中可以看到, 光电子电离时间主要集中于第四光周期的双色激光场峰值之后; 随着交叉角度的增加, 位于第三光周期激光峰值位置的电离时间分布峰值逐渐减弱消失, 平行双色激光场次极大峰值位置电离的电子, 其电离时间延后; 在正交双色场中更多地集中在单个光学周期内发生电离, 这也与实验结果中同一阶次干涉条纹增多(即周期内干涉增强)相互对应。

通过电离时间分布图也能发现, 第三周期位置的电离峰值发生延后, 但并未使电离时间整体延后, 实验和理论中使用激光场的峰值功率足以使氩原子的核外电子发生电离。在实验和理论上, 单电离产率变低的原因也与电子在激光场中

的运动方向有关, 激光场峰值功率的降低并未影响单电离产率变化。

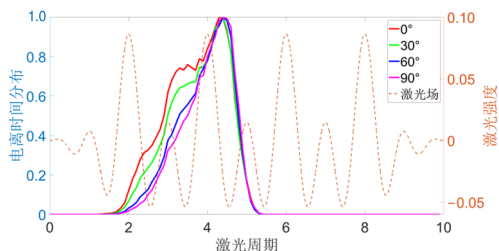


图6 相对相位为 $0\pi$ 时光电子电离时间的分布情况

Fig. 6 Distribution of photoelectron ionization times when the relative phase is  $0\pi$

当交叉角度为 $30^\circ$ 时, 不同激光相对相位使光电子动量谱分布产生较大的变化, 如图7所示。这种周期性波动源于双色场相对相位变化时激光峰值功率的相互偏移, 当相对相位为 $0\pi$ 时, 两种激光场的峰值在同一时间相互叠加, 进一步扭曲了原子核周围的势垒, 从而使光电子动量的分布更加集中。随着激光相对相位的增加, 激光峰值位置相互分离, 使光电子动量趋于平均分布; 随着相对相位进一步增加, 激光峰值在负方向上相遇, 因此电子动量谱在第四象限出现较为明显的峰值。

结合激光场的交叉角度和相对相位, 本实验方案可以实现对光电子动量角度分布与对称性的精准调控, 分布变化的根本原因从光电子电离时间方面给出详细分析。

## 4 结论

通过冷靶反冲离子动量谱仪测量氩原子在

### 参考文献:

- [1] TAN Jia, XU Shengliang, HAN Xu, et al. Resolving and weighing the quantum orbits in strong-field tunneling ionization[J]. *Advanced Photonics*, 2021, 3(3): 035001.
- [2] FANG Yiqi, HE Chaoxiong, HAN Meng, et al. Strong-field ionization of Ar atoms with a  $45^\circ$  cross-linearly-polarized two-color laser field[J]. *Physical Review A*, 2019, 100(1): 013414.
- [3] HUANG Cheng, ZHONG Mingmin, WU Zhengmao. Recollision dynamics in nonsequential double ionization of atoms by long-wavelength pulses[J]. *Optics Express*, 2016, 24(25): 28361-28371.
- [4] KANG Huipeng, CHEN Shi, WANG Yanlan, et al. Wavelength-dependent nonsequential double ionization of magnesium by intense femtosecond laser pulses[J]. *Physical Review A*, 2019, 100(3): 033403.
- [5] XIE Wenhai, YAN Jiaqing, LI Min, et al. Picometer-resolved photoemission position within the molecule by strong-field photoelectron holography[J]. *Physical Review Letters*, 2021, 127(26): 263202.
- [6] LI Yang, ZHOU Yueming, HE Mingrui, et al. Identifying backward-rescattering photoelectron hologram with orthogonal two-color laser fields[J]. *Optics Express*, 2016, 24(21): 23697-23706.
- [7] PORAT G, ALON G, ROZEN S, et al. Attosecond time-resolved photoelectron holography [J]. *Nature Communications*, 2018, 9(1): 2805.
- [8] LI Min, JIANG Weichao, XIE Hui, et al. Strong-field photoelectron holography of atoms by bicircular two-color laser pulses[J]. *Physical Review A*, 2018, 97(2): 023415.

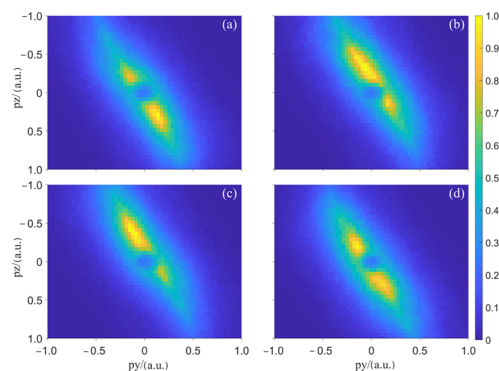


图7 双色场交叉角度为 $30^\circ$ 时不同相对相位下

光电子动量谱

(a) $0\pi$ ; (b) $0.4\pi$ ; (c) $0.8\pi$ ; (d) $1.2\pi$

Fig. 7 Photoelectron momentum distribution under the classical ensemble model for different relative phases when the crossing angle of the two-color laser field is  $30^\circ$

(a) $0\pi$ ; (b) $0.4\pi$ ; (c) $0.8\pi$ ; (d) $1.2\pi$

800 nm 和 400 nm 双色场不同交叉角度和相对相位下的光电子动量谱。实验结果表明, 随着激光角度的增大, 光电子动量谱有着较为明显的倾斜与干涉加强现象, 以及随着双色场相对相位的增大进一步使光电子动量谱在第二、四象限之间周期性波动。海森堡势经典系综模型的模拟结果与实验保持一致, 表明交叉角度通过改变激光场的时空分布影响电子的电离时间和轨迹, 干涉条纹的形成源于同一光周期内不同电离路径的量子相干叠加。研究结果可为原子隧穿电离超快动力学中的光电子运动控制提供新的思路。

- [ 9 ] HAN Meng, GE Peipei, WANG Jiguo, et al. Complete characterization of sub-coulomb-barrier tunnelling with phase-of-phase attoclock[J]. *Nature Photonics*, 2021, 15(10): 765-771.
- [10] GE Peipei, DOU Yankun, HAN Meng, et al. Spatiotemporal imaging and shaping of electron wave functions using novel attoclock interferometry[J]. *Nature Communications*, 2024, 15(1): 497.
- [11] 李盈侯, 张可, 陈红梅, 等. 少光周期的中红外激光脉冲驱动的 Xe 原子非次序双电离[J]. *信阳师范学院学报(自然科学版)*, 2023, 36(3): 420-427.  
LI Yingbin, ZHANG Ke, CHEN Hongmei, et al. Nonsequential double ionization of Xe atoms driven by a few-cycle mid-infrared laser pulse[J]. *Journal of Xinyang Normal University(Natural Science Edition)*, 2023, 36(3): 420-427.
- [12] LI Yingbin, XU Jingkun, CHEN Hongmei, et al. Manipulating frustrated double ionization by orthogonal two-color laser pulses[J]. *Optics Communications*, 2021, 493: 127019.
- [13] HE Mingrui, LI Yang, ZHOU Yueming, et al. Temporal and spatial manipulation of the recolliding wave packet in strong-field photoelectron holography[J]. *Physical Review A*, 2016, 93(3): 033406.
- [14] LUO Siqiang, LI Min, XIE Hui, et al. Angular-dependent asymmetries of above-threshold ionization in a two-color laser field[J]. *Physical Review A*, 2017, 96(2): 023417.
- [15] LU Chenhui, HE Tao, ZHANG Liqiang, et al. Effect of two-color laser pulse duration on intense terahertz generation at different laser intensities[J]. *Physical Review A*, 2015, 92(6): 063850.
- [16] ARBÓ D G, LEMELL C, NAGELE S, et al. Ionization of argon by two-color laser pulses with coherent phase control [J]. *Physical Review A*, 2015, 92(2): 023402.
- [17] HU Weihui, LIU Yong, LUO Sizuo, et al. Coherent interference of molecular electronic states in NO by two-color femtosecond laser pulses[J]. *Physical Review A*, 2019, 99(1): 011402.
- [18] 刘灿东, 贾正茂, 郑颖辉, 等. 双色场控制与测量原子分子超快电子动力学过程的研究进展[J]. *物流学报*, 2016, 65(22): 223206.  
LIU Candong, JIA Zhengmao, ZHENG Yinghui, et al. Research progress of the control and measurement of the atomic and molecular ultrafast electron dynamics using two-color field [J]. *Acta Physica Sinica*, 2016, 65(22): 223206.
- [19] MANCUSO C A, DORNEY K M, HICKSTEIN D D, et al. Controlling nonsequential double ionization in two-color circularly polarized femtosecond laser fields[J]. *Physical Review Letters*, 2016, 117(13): 133201.
- [20] MANCUSO C A, HICKSTEIN D D, DORNEY K M, et al. Controlling electron-ion rescattering in two-color circularly polarized femtosecond laser fields[J]. *Physical Review A*, 2016, 93(5): 053406.
- [21] ECKART S, RICHTER M, KUNITSKI M, et al. Nonsequential double ionization by counterrotating circularly polarized two-color laser fields[J]. *Physical Review Letters*, 2016, 117(13): 133202.
- [22] HAN Meng, GE Peipei, SHAO Yun, 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.
- [23] JIANG Wenyu, ARMSTRONG G S J, TONG Jihong, et al. Atomic partial wave meter by attosecond coincidence metrology[J]. *Nature Communications*, 2022, 13(1): 5072.

责任编辑:张伟博