

专题: 超快原子分子光物理

半经典响应时间理论在强场分子电离中的应用*

叶升^{1)2)#} 王赏^{3)#} 陈子玉²⁾ 李卫艳^{1)†} 申诗琪^{2)‡} 陈彦军^{2)††}

1) (河北地质大学数理学院, 河北省光电信息与地球探测技术重点实验室, 石家庄 050031)

2) (陕西师范大学物理学与信息技术学院, 量子材料与器件陕西省高等学校重点实验室, 西安 710119)

3) (河北师范大学物理学院, 河北省光物理研究与应用重点实验室, 石家庄 050024)

(2025年4月8日收到; 2025年5月8日收到修改稿)

阿秒钟技术为研究原子分子强场电离过程中电子超快动力学提供了强有力的工具. 该技术依赖定量理论模型从实验测量得到的光电子频谱反演电离过程中系统的超快时域信息, 而构建定量强场理论模型的关键问题之一是库仑效应的理论描述. 与原子相比, 分子具有多中心库仑势, 在外场中具有许多新的效应, 这为检验定量理论模型的适用性提供了更广阔平台. 本文针对拉伸到大核间距的分子的阿秒钟特征观测量, 比较了不同理论模型的预言, 指出最近提出的半经典响应时间理论预言与数值实验结果更一致. 该理论强调, 与具有经典性质的远核库仑效应相比, 具有量子性质的近核库仑效应对分子隧穿电离影响更显著. 本文进一步展望了该理论模型在具有电荷共振、固有偶极、取向效应以及复杂库仑势形式的分子强场电离中的应用.

关键词: 分子隧穿电离, 阿秒钟, 超快探测, 半经典理论**PACS:** 33.80.Rv, 31.70.Hq, 42.65.Ky**DOI:** 10.7498/aps.74.20250459**CSTR:** 32037.14.aps.74.20250459

1 引言

超强超短激光脉冲技术的快速发展为研究者们追踪原子分子以及固体内部电子的超快动力学^[1-5]提供了新的可能性. 隧穿是否需要时间是一个被长期争论的量子力学基本问题^[6-13]. 近年来研究者们提出了利用近圆偏振强激光脉冲中原子隧穿电离产生的光电子动量分布的特征偏移角来研究这一问题, 相关技术方案被称为阿秒钟^[14-22]. 阿秒钟假设偏移角包含库仑效应和电子隧穿时间信息, 通过构建描述原子分子隧穿电离的理论模型建立偏移

角和隧穿时间之间的映射关系, 即可通过实验测量得到的偏移角反演出隧穿时间^[15,20]. 从上述阿秒钟工作原理可知, 阿秒钟测量所得隧穿时间的精度取决于包含库仑效应的理论模型的精度, 不同的理论模型可能给出不同的隧穿时间, 而包含库仑效应的精确理论模型的构建一直是强场物理研究的难点^[23,24].

常用的包含库仑效应的强场理论模型基于量子轨道理论. 相关模型在隧穿过程利用不包含库仑效应的量子轨道描述电子隧穿动力学; 在隧穿出口处通过经典-量子对应, 利用量子轨道给出经典运动的初始条件; 然后在隧穿后的漂移过程中利用包

* 国家自然科学基金 (批准号: 12174239, 12347165, 12404330)、陕西省数学与物理学研究计划 (批准号: 23JSY022)、陕西省自然科学基金基础研究计划 (批准号: 2022JM-015)、河北省自然科学基金 (批准号: A2022205002) 和河北省教育厅科学技术研究项目 (批准号: QN2022143) 资助的课题.

同等贡献作者.

† 通信作者. E-mail: liwy157@126.com

‡ 通信作者. E-mail: shensqhn@163.com

†† 通信作者. E-mail: chenyljhb@gmail.com

含库仑力和电场力作用的牛顿方程来描述电子经典运动. 相关模型实际上强调了远核库仑效应对隧穿电离的影响, 并被应用于解释系列强场电离实验现象^[25-29]. 近期的研究提出了一个半经典强场响应时间理论^[30]来描述原子隧穿电离. 该理论认为由于库仑场的作用, 在隧穿出口处电子处于一个具有量子性质的过渡态, 且这一过渡态满足位力定理. 电子在激光场辅助下从这一过渡态演化为电离态需要一段有限的响应时间 τ , 该响应时间可通过冲量定理结合位力定理给出, 然后利用计算的响应时间可直接推演出阿秒钟实验观测量. 响应时间理论认为电离后库仑势作用可忽略, 因此强调了近核库仑效应对隧穿电离的影响. 利用响应时间理论可定量重现近年来的一系列关于原子的阿秒钟实验曲线^[18,22,31]. 因为整个隧穿电离过程中, 电子从近核处漂移到远核处, 直觉上库仑势场一直在起作用, 上述理论模型中关于近核和远核库仑效应的不同观点还有待进一步澄清.

与原子的单中心库仑势相比, 分子具有多中心库仑势, 这一基本几何结构特征导致分子在外场中会呈现许多新的效应, 如取向效应^[32,33]、电荷共振效应^[34-37]、固有偶极效应^[38]和振动效应^[39], 因此可以预期分子的隧穿电离过程包含比原子更丰富的现象, 值得在实验和理论上进行深入研究. 特别是对于拉伸的分子离子, 如 H_2^+ , 其在外场中具有电荷共振效应, 由于这一效应, 对近核和远核库仑效应的界定更加复杂^[40], 这为检验不同强场电离理论模型的适用性, 如库仑修正的强场近似^[25,29,41,42]和近期发展的强场响应时间理论^[30]提供了一个新的机会.

本文比较了不同理论模型对拉伸分子的阿秒钟特征偏移角的定量预期, 结果表明响应时间理论的结果与数值实验更接近, 因此可推断相较于远核库仑效应, 近核库仑效应对原子分子隧穿电离的影响具有主导作用; 响应时间理论在考虑分子特有的效应后有望成为描述分子复杂强场隧穿电离现象的理论工具. 对于具有中间核间距的分子离子, 电荷共振效应会诱导显著的电离增强作用^[34], 本文展示了相关数值实验的阿秒钟结果, 并展望了响应时间理论在其中的潜在应用. 此外还展望了响应时间理论在极性分子、多中心线性分子、平面和立体分子、以及取向分子强场隧穿电离过程中的潜在应用.

2 数值和分析方法

2.1 数值方法

本文选择最简单的双原子分子 H_2^+ 作为研究对象. 在长度规范中, 模型 H_2^+ 系统与强激光场相互作用的哈密顿量可以写为

$$H(t) = H_0 + \mathbf{E}(t) \cdot \mathbf{r}, \quad (1)$$

(考虑原子单位 $\hbar = e = m_e = 1$). $H_0 = \mathbf{p}^2/2 + V(\mathbf{r})$ 是无场哈密顿量. 这里 \mathbf{p} 是正则动量 (又称漂移动量); 势函数 $V(\mathbf{r})$ 的形式为 $V(\mathbf{r}) = -Z/\sqrt{r_1^2 + \xi} - Z/\sqrt{r_2^2 + \xi}$, 在二维情况下, $r_{1,2}^2 = (x \pm R/2 \cos \theta')^2 + (y \pm R/2 \sin \theta')^2$. $\xi = 0.5$ 是用于避免库仑奇点的软心参数. θ' 是椭圆偏振激光的主场偏振方向与分子轴之间的夹角, 本文考虑平行取向, 即 $\theta' = 0^\circ$. 本文构造氢分子离子的哈密顿量时固定了软化参数, 并通过调整有效电荷 Z 来使得不同核间距 R 下电子具有相同的电离能 (即 H_2^+ 在平衡核间距 $R = 2$ a.u. 时的电离能为 1.11 a.u.). 固定相同的基态电离能保证了不同核间距的模型对称分子的电离起始能量状态相一致, 这样一方面方便比较不同核间距对氢分子离子隧穿电离的影响, 另一方面也能实现在相同的激光参数下开展研究, 为分析和构建大核间距分子强场电离的物理图像提供便利. 对于真实的 H_2^+ 系统, 随着核间距的拉伸, 系统的电离能将降低, 直到核间距很大时电离能趋向 0.5 a.u. 此外, 拉伸过程中, 当核间距很大时, 还可能出现局域化现象, 即电荷并非等概率分布于两个核附近. 这些问题需要在实验研究中充分考虑.

本文中使用的椭圆偏振激光场的形式为 $\mathbf{E}(t) = f(t) [e_x E_x(t) + e_y E_y(t)]$, 其中 $E_x(t) = E_0 \sin(\omega t)$, $E_y(t) = E_1 \cos(\omega t)$, $E_0 = E_L/\sqrt{1 + \varepsilon^2}$, $E_1 = \varepsilon E_L/\sqrt{1 + \varepsilon^2}$. 这里 e_x (e_y) 是沿 x (y) 轴的单位矢量, E_L 是峰值强度 I 对应的最大激光振幅, $\varepsilon = 0.87$ 为椭偏率, ω 为激光频率, $f(t)$ 为包络函数. 在数值计算中, 本文研究采用 15 个周期的激光脉冲, 包含 3 个光学周期的上升下降沿, 其他光学周期保持不变. 本文采用谱方法^[43]求解含时薛定谔方程, 计算所用时间步长为 $\Delta t = 0.05$ a.u., 空间格点为 $L_x \times L_y = 409.6$ a.u. \times 409.6 a.u., 空间步长为 $\Delta x = \Delta y = 0.4$ a.u..

为了避免电子波包从边界反射并获得动量空

间波函数, 将坐标空间分成内部区域和外部区域 $\Psi(\mathbf{r}, t) = \Psi_{\text{in}}(\mathbf{r}, t) + \Psi_{\text{out}}(\mathbf{r}, t)$, 并乘以一个滤波函数, 当 $r_b \geq r_f$ 时, 其形式为 $F(\mathbf{r}) = F(x, y) = \cos^{1/2}[\pi(r_b - r_f)/(L_r - 2r_f)]$; 当 $r_b \leq r_f$ 时, 其形式为 $F(\mathbf{r}) = F(x, y) = 1$. 其中, $r_b = \sqrt{x^2 + y^2/\epsilon^2}$, $r_f = 2.1x_q$, $x_q = E_0/\omega^2$ 并且 $L_r/2 = r_f + 50 \text{ a.u.}$, $L_r \leq L_x$. 在内部区域, 波函数 $\Psi_{\text{in}}(\mathbf{r}, t)$ 以完全哈密顿量 $H(t)$ 传播. 在外部区域, 波函数 $\Psi_{\text{out}}(\mathbf{r}, t)$ 的时间演化是在动量空间中以激光场中自由电子的哈密顿量进行的. 每隔 0.5 a.u. 时间间隔滤波函数作用一次, 并将获得的外部波函数 $\Psi_{\text{out}}(\mathbf{r}, t)$ 的新成分叠加到动量空间波函数, 从而获得光电子动量分布 (photoelectron momentum distribution, PMD). 然后, 通过对动量分布的角分布进行高斯拟合得到偏移角 θ .

2.2 强场模型

常用于研究激光诱导的原子和分子电离的强场近似 (strong-field approximations, SFA)^[44] 假设: 除了基态外, 其他束缚态对电离的贡献可以忽略^[44,45]. 这一假设适用于原子和 R 较小的分子, 它们系统的基态和第一激发态之间的能量间隔通常远大于实验中使用的激光频率^[36]. 在文献^[46]中, SFA 模型给出的小 R 分子系统中电子轨迹 (\mathbf{p}, t_0) 对应的复振幅 $F(\mathbf{p}, t_0)$ 为

$$F(\mathbf{p}, t_0) \equiv F(\mathbf{p}, t_s) \propto \{\beta \mathbf{E}(t_s) \cdot \mathbf{d}_i[\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s)] e^{-iS}\}, \quad (2)$$

其中, $S \equiv S(\mathbf{p}, t_s) = \int_{t_s}^{\infty} \{[\mathbf{p} + \mathbf{A}(t'')] / 2 + I_p\} dt''$ 是准经典作用项, I_p 为电离势. $\beta \equiv [1/\det(t_s)]^{1/2}$, β 定义中的 $\det(t_s)$ 是作用量的二阶导数构成的矩阵的行列式^[44]. 通过鞍点方法^[44,47] 并求解方程 $[\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s)]^2 / 2 = -I_p$ 得到鞍点时间 $t_s = t_0 + it_x$, t_s 的实部 t_0 被认为是电子隧穿通过库仑势垒的时间. $\mathbf{A}(t_s) = -\int^{t_s} \mathbf{E}(t') dt'$ 是电场的矢势. 方程 (2) 中的偶极矩阵元 $\mathbf{d}_i(\mathbf{v}) = \cos(\mathbf{v} \cdot \mathbf{R}/2) \mathbf{d}_a(\mathbf{v})$, 其中 $\mathbf{v} = \mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s)$, $\mathbf{d}_a(\mathbf{v}) = \langle \mathbf{v} | \mathbf{r} | \phi_a(\mathbf{r}) \rangle$ 表示原子的偶极矩, $|\phi_a(\mathbf{r})\rangle$ 是原子的基态波函数. 通过鞍点方程可知 $v = p + A(t_s) \approx \pm i\sqrt{2I_p}$, 这个虚动量在偶极矩阵元 $\mathbf{d}_i(\mathbf{v})$ 中的 \cos 项中不会造成干涉^[48]. 对于与长程库仑势相关的 1s 轨道, 对于不同的 \mathbf{p} , 具有虚动量 \mathbf{v} 的偶极子 $\mathbf{d}_a(\mathbf{v})$ 可以被认为接近常数因

子. 然后, 方程 (2) 的振幅 $F(\mathbf{p}, t_0)$ 可以进一步近似为 $F(\mathbf{p}, t_0) \sim \cos\{[\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s)] \cdot \mathbf{R}/2\} e^{-iS}$ ^[46,49]. 本文用该表达式来评估 SFA 模拟中小 R 分子的振幅. 当 $R = 0 \text{ a.u.}$ 时, 方程 (2) 的振幅 $F(\mathbf{p}, t_0)$ 可以近似为 $F(\mathbf{p}, t_0) \sim e^{-iS}$, 用该表达式来评估 SFA 模拟中模型原子的振幅.

然而, 对于具有大 R 的对称分子离子, 如 H_2^+ , 情况有显著的差异. 相关研究结果表明, 在具有大 R 的系统中, 基态和第一激发态这两个最低态之间发生简并^[50], 并且它们与系统的高激发态间隔较远. 在强激光场中, 这两个简并态将强耦合在一起, 从而导致激发态对电离产生重要贡献^[34,50,51]. 在 SFA 的基础上通过考虑激发态效应构建了发展的强场近似 (developed strong-field approximations, DSFA) 模型^[40], 该模型给出电子轨迹 (\mathbf{p}, t_0) 对应的复振幅 $F(\mathbf{p}, t_0)$ 可以表示为

$$F(\mathbf{p}, t_0) \equiv F(\mathbf{p}, t_s) \propto \{\beta \mathbf{E}(t_s) \cdot \mathbf{d}_f[\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s)] e^{-iS}\}, \quad (3)$$

方程 (3) 中的偶极矩阵元 $\mathbf{d}_f(\mathbf{v}) = \cos(\mathbf{p} \cdot \mathbf{R}/2) \mathbf{d}_a(\mathbf{v})$, 不同于描述小 R 分子的偶极矩阵元 $\mathbf{d}_i(\mathbf{v})$, 在等式的 \cos 项中通过漂移动量 \mathbf{p} 代替瞬时速度 $\mathbf{v} = \mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s)$. 由于漂移动量 \mathbf{p} 是一个实数, $\mathbf{d}_f(\mathbf{v})$ 中的 $\cos(\mathbf{p} \cdot \mathbf{R}/2)$ 项将在隧穿电离过程中引起干涉. 在考虑干涉效应的基础上, 为进一步考虑库仑作用, 该模型引入有效动量 \mathbf{p}_k 替换漂移动量 \mathbf{p} , 方程 (3) 可以进一步近似为 $F(\mathbf{p}, t_0) \sim \cos(\mathbf{p}_k \cdot \mathbf{R}/2) e^{-iS}$, 其中 $\mathbf{p}_k / |\mathbf{p}_k| = \mathbf{p} / |\mathbf{p}|$, $p_k = |\mathbf{p}_k| = \sqrt{\mathbf{p}^2 + 2I_p}$ ^[52]. 本文使用 $\cos(\mathbf{p}_k \cdot \mathbf{R}/2) e^{-iS}$ 来计算 DSFA 模拟中模型分子的振幅. 此外, 考虑了第一激发态贡献的含时波函数^[40] 可以近似表达为

$$\begin{aligned} |\Psi(t)\rangle = & \frac{\sqrt{2}}{2} e^{i[I_p t + \mathbf{A}(t) \cdot (\mathbf{R}/2)]} |\phi_a(\mathbf{r} - \mathbf{R}/2)\rangle \\ & + \frac{\sqrt{2}}{2} e^{i[I_p t - \mathbf{A}(t) \cdot (\mathbf{R}/2)]} |\phi_a(\mathbf{r} + \mathbf{R}/2)\rangle \\ & + e^{iI_p t} \int d^3 p c(\mathbf{p}, t) |\mathbf{p}\rangle. \end{aligned} \quad (4)$$

方程 (4) 表明, 对于具有大 R 的拉伸系统, 束缚电子可以被认为位于 $|\phi_a(\mathbf{r} - \mathbf{R}/2)\rangle$ 和 $|\phi_a(\mathbf{r} + \mathbf{R}/2)\rangle$ 这两个激光缀饰态上. 它们对应于两个具有电离势 I_p 的原子态, 并且被放置在偏离坐标原点 $\pm \mathbf{R}/2$ 的位置. 这种偏离分别导致 $I_p t + \mathbf{A}(t) \cdot (\mathbf{R}/2)$ 和 $I_p t - \mathbf{A}(t) \cdot (\mathbf{R}/2)$ 的缀饰相位^[34,53]. 隧穿电离事件从这两种状态沿其各自的缀饰能量发生, 两个电离通道

相互干涉. 除了干涉, 这两个通道还可以通过库仑效应耦合在一起. 如下所述, 认为隧穿事件主要发生在激光主场的峰值时间 t_p 附近, $E_x(t_p) \approx E_0$. 在峰值时间 t_p 附近, 可以得到 $A_x(t) \approx -E_0 t$. 在本文中, 假设分子轴平行于椭圆偏振激光的主轴, 即 $\theta' = 0^\circ$. 缀饰的能量 E'_1 和 E'_2 可以表示为

$$E'_1 \approx -[I_p - E_0(R/2)], \quad (5)$$

$$E'_2 \approx -[I_p + E_0(R/2)]. \quad (6)$$

在图 1(b) 中, 通过使用方程 (5) 和 (6) 来分析与大 R 分子的缀饰态相关的隧穿电离机制. SFA 和 DSFA 的局限性忽略了库仑势. 下文将介绍考虑库仑效应的强场模型.

2.3 库仑修正强场模型

大量研究表明, 库仑势在强场电离过程中起着重要的作用, 显著地影响了光电子动量^[15]、角分布^[42]和能谱^[54]. 对于大 R 分子, 激发态和库仑势的相互作用会在强场电离过程中引起复杂的效应. 为了理解这些效应, 构建一个同时考虑激发态和库仑势影响的强场理论模型是必要的.

SFA 假设电子隧穿后将不再受库仑势的作用只在电场力的作用下运动, 因此在求解鞍点方程得到电子轨迹之后, 再通过求解牛顿方程:

$$\ddot{\mathbf{r}}(\mathbf{p}, t) = -\mathbf{E}(t) - \nabla_{\mathbf{r}} V(\mathbf{r}), \quad (7)$$

可以进一步描述电子在外场中演化的动力学过程. 在 SFA 中假设 $V(\mathbf{r}) \equiv 0$, 用于模拟隧穿电子的演化. 然而, 对于考虑库仑效应修正强场近似 (Coulomb-modified SFA, MSFA) 模型, (7) 式中 $V(\mathbf{r}) \neq 0$ ^[29]. 对于原子和小 R 分子, MSFA 模型能够较好地重现出这些情况下 TDSE 模拟得到 PMD 的主要特征并能预测 PMD 的偏移角. 如图 2(d), (h) 所示, 它们分别是由 MSFA 预言的模型原子和 $R = 2$ a.u. 的 H_2^+ 的动量分布结果. 通过比较可知, MSFA 预言的偏移角结果与图 2(a), (e) 中所示的 TDSE 结果存在 1.71° — 2.86° 的差异. 当研究大 R 分子的隧穿电离问题时, 基于 DSFA 模型, 并且在考虑激发态效应的同时也考虑库仑效应, 按照构建 MSFA 模型相同的方法我们构建了 MDSFA (Coulomb-modified DSFA, MDSFA) 模型, 稍后的讨论可以看到, 该模型并不能很好地预测拉伸分子隧穿电离

的 PMD 以及偏移角.

2.4 半经典响应时间理论

除 MSFA 和 MDSFA 模型外, 还有基于半经典响应时间理论, 构建的隧穿-响应-经典运动 (tunneling-response classical-motion, TRCM) 模型^[30]. 根据 TRCM 模型, 强场电离过程可分为隧穿、响应和经典运动 3 个步骤. 这些步骤可以分别用鞍点^[44,47]、半经典^[30]和三步模型理论^[55,56]来描述. 该模型源于 SFA^[44], 但考虑了库仑效应^[29,41,42]. SFA 中漂移动量 \mathbf{p} 与隧穿出射时间 t_0 之间的映射关系可以写为

$$\mathbf{p} \equiv \mathbf{p}(t_0) = \mathbf{v}(t_0) - \mathbf{A}(t_0), \quad (8)$$

其中, $\mathbf{v}(t_0) = \mathbf{p} + \mathbf{A}(t_0)$ 表示光电子在出口位置 $\mathbf{r}(t_0)$ ^[41] 的出射速度:

$$\mathbf{r}_0 \equiv \mathbf{r}(t_0) = \text{Re} \left(\int_{t_0 + it_x}^{t_0} [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t')] dt' \right). \quad (9)$$

为了考虑库仑势对电离的影响, TRCM 模型假设在隧穿出口 $\mathbf{r}(t_0)$ 处, 具有漂移动量 \mathbf{p} 的隧穿电子仍然处于准束缚态, 并且该准束缚态近似满足位力定理. 利用位力定理可以将电子在隧穿出点受到的主要库仑效应等效为一个指向核的速度 \mathbf{v}_i , 该速度方向与位置矢量方向相反. 此时, 电子的漂移动量 \mathbf{p}' 可以表示为: $\mathbf{p}' = \mathbf{v}(t_0) + \mathbf{v}_i - \mathbf{A}(t_0)$, 其中 t_0 代表隧穿时间, $\mathbf{v}(t_0)$ 是通过 SFA 计算得到的电子隧穿后的初速度, 其仅由激光场驱动, 库仑势可以忽略不计. 隧穿电子从准束缚态演化为电离态需要一段时间 τ . 然后, 在时间 $t_i = t_0 + \tau$ 时, 它成为自由粒子. 从隧穿出射时间 t_0 到时间 t_i , 结合冲量定理可得 $-\mathbf{A}(t_i) \simeq \mathbf{v}_i - \mathbf{A}(t_0)$, 这一时间 τ 可以理解为激光诱导的光电效应中电子对光的响应时间, 并表现为强场电离中库仑诱导的电离时间延迟^[29,37]. 在 TRCM 模型中, 漂移动量 \mathbf{p}' 与电离时间 t_i 之间的映射可以表示为

$$\mathbf{p}' \equiv \mathbf{p}'(t_i) = \mathbf{v}(t_0) - \mathbf{A}(t_i). \quad (10)$$

上述分析表明与假定速度 \mathbf{v}_i 相关的库仑效应导致电离时间 t_i 相对于隧穿出射时间 t_0 产生滞后 τ . 在时间 t_i 之后可近似忽略库仑效应, 隧穿电子以初始速度 $\mathbf{v}(t_i) \equiv \mathbf{v}(t_0 + \tau)$ 在激光场中自由运动.

下文将详细介绍原子和小 R 分子以及大 R 分子的延迟 τ 的表达式.

2.4.1 原子中 τ 的表达式

根据原子的 TRCM 模型, 在隧穿时间 t_0 时, 隧穿电子仍然处于一个准束缚态 ψ_b , 且近似满足位力定理^[30]. 该状态的平均势能为 $\langle V(\mathbf{r}) \rangle \approx V(\mathbf{r}(t_0))$, 平均动能为 $\langle v^2/2 \rangle = n_f \langle v_x^2/2 \rangle \approx -V(\mathbf{r}(t_0))/2$. 准束缚态的半经典处理给出了速度 $|\mathbf{v}_i| = \sqrt{\langle v_x^2 \rangle} \approx \sqrt{|V(\mathbf{r}(t_0))|/n_f}$, 其与位置矢量 $\mathbf{r}(t_0)$ 的方向相反, 反映了库仑势对电子束缚态基本对称性的要求, 其中 n_f 是所研究系统的维度, 对于二维的情况, 采用 $n_f = 2$. 这种状态是由一系列无场哈密顿量 H_0 的高能束缚本征态构成的束缚波包. 隧穿电子需要一段时间 τ 才能从激光场中积累冲量以获得相反速度 $-\mathbf{v}_i$ 打破这种对称性, 满足 $|\mathbf{E}(t_0)|\tau \approx |\mathbf{v}_i|$. 在椭圆偏振激光场中, 可以用以下表达式来计算延迟 τ :

$$\tau \approx \sqrt{|V_a(\mathbf{r}(t_0))|/n_f} / |\mathbf{E}(t_0)|, \quad (11)$$

式中, $|\mathbf{E}(t_0)| = \sqrt{(E_0 \sin \omega t_0)^2 + (E_1 \cos \omega t_0)^2}$ 是在时间 t_0 时激光场 $\mathbf{E}(t)$ 的振幅. 出口位置 $\mathbf{r}_0 \equiv \mathbf{r}(t_0)$ 可以使用 (9) 式进行计算. 在单活性电子近似中, 类氢原子在出口位置 \mathbf{r}_0 处的库仑势 $V(\mathbf{r})$ 可以被认为具有 $V_a(\mathbf{r}(t_0)) \equiv V_a(\mathbf{r}_0) = -Z'/r_0$ 的形式. 这里的 Z' 是有效电荷. 为了与 TDSE 模拟进行比较, 可以选择 TDSE 模拟中使用的有效电荷 Z' . 一旦获得了延迟 τ , 就可以使用 (10) 式, 得到包含库仑的漂移动量 $\mathbf{p}' = \mathbf{v}(t_0) - \mathbf{A}(t_i)$, 其中 $t_i = t_0 + \tau$. 假设包含库仑的电子轨迹 (\mathbf{p}', t_i) 的振幅 $F(\mathbf{p}', t_i)$ 等于 SFA 中电子轨迹 (\mathbf{p}, t_0) 对应的振幅 $F(\mathbf{p}, t_0)$, 则振幅 $F(\mathbf{p}', t_i)$ 可以写为

$$F(\mathbf{p}', t_i) \equiv F(\mathbf{p}, t_0) \propto \{\beta \mathbf{E}(t_s) \cdot \mathbf{d}_a [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s)] e^{-iS}\}, \quad (12)$$

其中 $S \equiv S(\mathbf{p}, t_s)$, $\beta \equiv [1/\det(t_s)]^{1/2}$. 方程 (12) 中的振幅 $F(\mathbf{p}', t_i)$ 可以进一步近似为 $F(\mathbf{p}', t_i) \sim e^{-iS}$. 在本文中, 使用 e^{-iS} 来评估 TRCM 模型预测的原子振幅. 这样, 可以直接从 SFA 中获得包含库仑的 PMD, 而无需求解包括电场力和库仑力的牛顿方程. 然后, 通过对动量分布的角分布进行高斯拟合得到偏移角 θ . 下文通过方程 (11) 计算得到延迟 τ 的模型称为 A-TRCM 模型.

2.4.2 小 R 分子 τ 的表达式

对于核间距较小的分子, 情况则不同. 图 1(a) 给出了 $R = 2$ a.u. 的 H_2^+ 和与 H_2^+ 具有相似 I_p 的模

型原子在激光场峰值时间 t_p 的激光缀饰和无激光势函数曲线. 从图 1(a) 可以看出, H_2^+ 的激光场和双中心库仑势所形成的势垒比原子单中心势垒更低更窄. 因此, 分子的隧穿出口比原子的隧穿出口更接近原子核, 分子中的隧穿电子感受到更强的库仑力. 为了克服这种更强的库仑力, 分子中隧穿电子需要更长的响应时间 τ 才能从激光场中获得足够的冲量^[57]. 接下来详细讨论小 R 分子延迟 τ 的表达式.

首先, 在隧穿出口处, 对于实验中常用的激光参数, 隧穿出口位置距离母核中心约 10 a.u., 可以认为分子中处在隧穿出口的电子仍然处于准束缚态, 该准束缚态由分子的高能束缚本征态组成, 并且近似满足位力定理. 这意味着表达式 $|\mathbf{E}(t_0)|\tau \approx |\mathbf{v}_i| \approx \sqrt{|V(\mathbf{r}(t_0))|/n_f}$ 仍然适用于分子. 第二, 确定分子的势 $V(\mathbf{r}(t_0))$ 的形式. 如图 1(a) 所示, 原子和分子具有不同形式的库仑势. 因此, 1) 原子和分子的出口位置彼此不同. $R = 2$ a.u. 时分子的出口位置比原子小约 0.75 a.u. (约 $R/2$). 2) 分子势的左半部分被激光场缀饰, 能量偏移为 $E_d = E_0(R/2)$. 原子核周围没有出现这种势能缀饰的现象. 这一现象表明, 具有缀饰电离势 $I_p' = I_p - E_d$ 的分子比原子更容易电离. 通过以上 1) 和 2) 讨论, 在峰值时间 t_p 时小 R 分子的出口位置可以近似为 $r_0' \approx I_p'/E_0 - R/2 \approx r_p - R$. 其中 $r_p \approx I_p/E_0$ 表示在激光主场 $E_x(t)$ 峰值时间 t_p 附近的时间区域原子内电离电子出射位置的经典估计. 假设对该出口位置的修正量 R 适用于任何时间 t_0 , 并且隧穿出口处分子的双中心库仑势也可以近似为模型原子的单中心库仑势. 对于小 R 分子延迟 τ 的表达式可以写为

$$\tau \approx \sqrt{|V_s(\mathbf{r}'(t_0))|/n_f} / |\mathbf{E}(t_0)|, \quad (13)$$

式中, $|\mathbf{r}'(t_0)| \equiv r_0' = |\mathbf{r}_0| - r_d$ 是在时间 t_0 时修正的出口位置, 修正量为 $r_d = R$, 其中 \mathbf{r}_0 是 SFA 预测的出口位置, 可以使用 (9) 式进行评估. R 较小的情况下, 在出口位置 $\mathbf{r}'(t_0)$ 处电势 $V(\mathbf{r})$ 的形式为 $V_s(\mathbf{r}'(t_0)) = -Z'/|\mathbf{r}'(t_0)|$, 其中 Z' 是分子的全部有效电荷. 为了与 TDSE 模拟进行比较, 可以选择 TDSE 模拟中使用的有效电荷 Z' . 例如, 对于在本文中研究的 $R = 2$ a.u. 的 H_2^+ , 选择 $Z' = 2$. 为方便起见, 在下文中具有由方程 (13) 计算的延迟 τ 的模型称为 S-TRCM 模型.

在 S-TRCM 模型中, 仍然认为包含库仑的电

子轨迹 (\mathbf{p}', t_i) 的振幅 $F(\mathbf{p}', t_i)$ 等于 SFA 中电子轨迹 (\mathbf{p}, t_0) 对应的振幅 $F(\mathbf{p}, t_0)$, 则振幅 $F(\mathbf{p}', t_i)$ 可以写为

$$F(\mathbf{p}', t_i) \equiv F(\mathbf{p}, t_0) \propto \left\{ \beta \mathbf{E}(t_s) \cdot \mathbf{d}_i [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s)] e^{-iS} \right\}, \quad (14)$$

方程 (14) 的振幅 $F(\mathbf{p}', t_i)$ 可进一步近似为 $F(\mathbf{p}', t_i) \sim \cos \{ [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s)] \cdot \mathbf{R}/2 \} e^{-iS}$, 其中, $\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s) \approx \pm i\sqrt{2I_p}$. 本文中, 使用 $\cos \{ [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s)] \cdot \mathbf{R}/2 \} e^{-iS}$ 来评估 S-TRCM 模型预测小 R 分子的振幅. 然后, 通过对动量分布的角分布进行高斯拟合得到偏移角 θ .

2.4.3 大 R 分子 τ 的表达式

图 1(b) 给出了激光场峰值时间 t_p 时 H_2^+ 在 $R = 16$ a.u. 情况下的无激光和激光缀饰势函数曲线. 可以观察到, 在这种情况下, 无激光库仑势显示出两个独立的势阱. 激光缀饰库仑势显示出两个独立的势垒: 一个在左核附近被向上缀饰, 另一个在右核附近被向下缀饰. 另一方面, 由于电荷共振,

大 R 分子的电离分别沿着能量 E'_1 和 E'_2 从激光缀饰态发生. 如图 1(b) 中的水平箭头所示, 这两个能量分别与被向上缀饰和被向下缀饰的势垒相关. 因为左侧向上缀饰的势垒受到右侧原子核的影响, 所以 E'_1 水平线上方的向上缀饰势垒部分比 E'_2 水平线上方的向下缀饰势垒部分更低更窄. 因此, 电子将倾向于以较小的出口位置从向上缀饰的势垒隧穿. 换句话说, 对于具有大 R 和电离能 I_p 的分子, 电离事件主要发生在向上缀饰势垒附近. 这种电离现象有点类似于具有相似 I_p 但出口位置较小的原子. 在这种情况下, 依然假设在隧穿出口处, 隧穿电子仍然位于准束缚态 ψ_b , 近似满足位力定理, 并且表达式 $|\mathbf{E}(t_0)|\tau \approx |\mathbf{v}_i| \approx \sqrt{|V(\mathbf{r}(t_0))|/n_f}$ 仍然适用于具有大 R 的分子. 然而, 对于当前大 R 的情况, 需要对上述表达式进行修正, 以便与 TDSE 结果进行定量比较. 接下来, 首先进一步讨论上述表达式中大 R 的分子势 $V(\mathbf{r}(t_0))$ 的形式.

对于 R 较小的分子, 根据第 2.4.2 节的讨论, 在相似 I_p 下, 出口位置 $r'_0 = |\mathbf{r}_0| - r_d (r_d = R)$ 小于

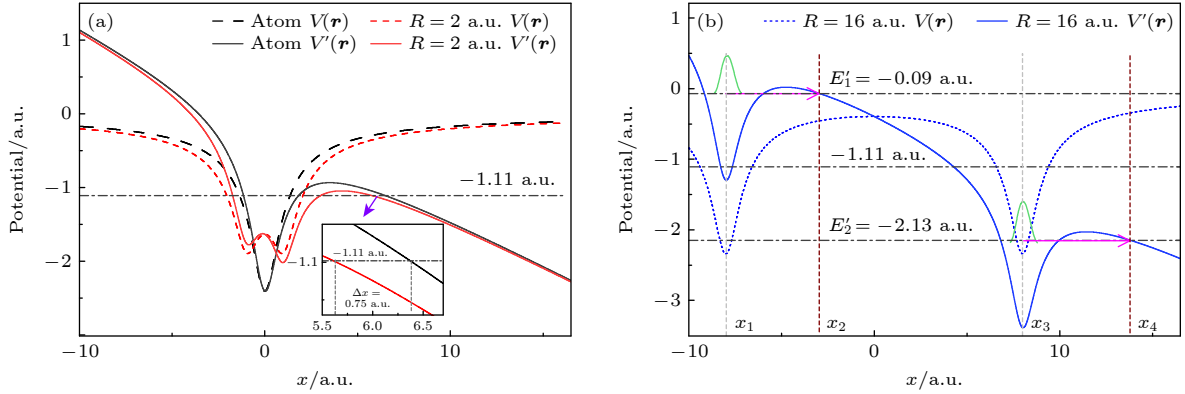


图 1 不同激光和分子参数下的势函数曲线^[40] (a) 在 $y = 0$ 处 $R = 2$ a.u. 的 H_2^+ (红线) 和模型原子 (黑线) 的激光缀饰势 $V'(\mathbf{r}) = V(\mathbf{r}) - E_0 x$ (实线) 和无激光势 $V(\mathbf{r})$ (虚线). 水平线表示 $-I_p = -1.11$ a.u. 的能量. 插图显示了分子和原子出口位置之间差异结果的放大图. (b) 在 $y = 0$ 处 $R = 16$ a.u. 的 H_2^+ 的激光缀饰势 $V'(\mathbf{r}) = V(\mathbf{r}) - E_0 x$ (实线) 和无激光势 $V(\mathbf{r})$ (虚线). 两条水平线分别表示 $E'_1 \approx -[I_p - E_0(R/2)] = -0.09$ a.u. 和 $E'_2 \approx -[I_p + E_0(R/2)] = -2.13$ a.u. 的能量. 坐标 x_2 (x_4) 对应于电子从左 (右) 核附近向上 (向下) 缀饰的势垒中隧穿的出口位置. 坐标 x_1 和 x_3 表示分子左边和右边原子核的位置. 水平的粉红色箭头表示隧穿的方向, $r'_0 = |x_2 - x_1|$ ($r''_0 = |x_4 - x_3|$) 表示出口位置相对于左 (右) 核位置的绝对值. 这里使用的激光振幅为 $E_0 = 0.13$ a.u.

Fig. 1. Potential function curves obtained at different laser and molecular parameters^[40]. (a) Sketch of the laser-dressed potential $V'(\mathbf{r}) = V(\mathbf{r}) - E_0 x$ (solid curves) and laser-free potential $V(\mathbf{r})$ (dash-dotted line) for H_2^+ with $R = 2$ a.u. (red curves) and the model atom (black curves) at $y = 0$. The horizontal line indicates the energy of $-I_p = -1.11$ a.u. The inset shows a close-up of the results for the difference in exit position between the molecule and the atom. (b) Sketch of the laser-dressed potential $V'(\mathbf{r}) = V(\mathbf{r}) - E_0 x$ (solid curves) and laser-free potential $V(\mathbf{r})$ (dash-dotted lines) H_2^+ with $R = 16$ a.u. at $y = 0$. Two horizontal lines represent the energy $E'_1 \approx -[I_p - E_0(R/2)] = -0.09$ a.u. and the energy $E'_2 \approx -[I_p + E_0(R/2)] = -2.13$ a.u., respectively. The coordinate x_2 (x_4) corresponds to the exit position of electrons tunneling out of the dressed-up (down) potential barrier neighboring the left (right) nucleus. The coordinates x_1 and x_3 represent the positions of the left and right nuclei of the molecule. The horizontal pink arrows indicate the direction of tunneling and $r'_0 = |x_2 - x_1|$ ($r''_0 = |x_4 - x_3|$) represents the absolute value of the exit position relative to the position of the left (right) nucleus. The laser amplitude used here is $E_0 = 0.13$ a.u.

原子的出口位置 $|\mathbf{r}_0|$. 对图 1(b) 的讨论表明, 这种情况也适用于具有大 R 的分子, 并且可直接从激光缀饰势确定大 R 情况下的出口位置 r_0'' , 如图 1(b) 所示. 具体而言, 当 $E_x(t) < 0$ 时, 可以使用以下公式近似计算左核附近的出口位置:

$$V(x, y_0) - E_0 x = -[I_p - E_0(R/2)]. \quad (15)$$

右核附近的出口位置可以用以下公式计算:

$$V(x, y_0) - E_0 x = -[I_p + E_0(R/2)]. \quad (16)$$

这里 $V(x, y) \equiv V(\mathbf{r})$ 是 TDSE 模拟中使用的库仑势, 并且 $y_0 = 0$. 图 1(b) 中的坐标 x_2 和 x_4 分别是方程 (15) 和 (16) 的解, 分别对应于向上缀饰和向下缀饰势垒的出口位置. 如上所述, 电子倾向于以较小的出口位置从向上缀饰的势垒隧穿. 这个较小的出口位置可以表示为 $r_0'' = |x_2 - x_1|$, 其中 x_1 与左核的位置有关. 当 $E_x(t) > 0$ 时, 情况是相似的. 该模型认为在峰值时间 t_p 时出口位置的修正为 $r_d = r_p - r_0''$, 其中 $r_p = I_p/E_0$, 并假设该修正对任何时间 t_0 都适用. 然后, 对于 R 较大的分子, 时间延迟 τ 可以表示为

$$\tau \approx k_f \sqrt{|V_1(\mathbf{r}'(t_0))|/n_f/|\mathbf{E}(t_0)|}, \quad (17)$$

式中 $|\mathbf{r}'(t_0)| \equiv r_0' = |\mathbf{r}_0| - r_d$ 是在时间 t_0 时修正的出口位置, 修正量为 $r_d = r_p - r_0''$, 其中 \mathbf{r}_0 可以使用 (9) 式进行评估. 与小 R 的情况类似, 在出口位置 $\mathbf{r}'(t_0)$ 处, 大 R 情况下的势能 $V(\mathbf{r})$ 可以被认为具有 $V_1(\mathbf{r}'(t_0)) = -Z'/|\mathbf{r}'(t_0)|$ 的形式. 这里 Z' 是分子的全部有效电荷. 为了与 TDSE 模拟进行比较, 可以选择 TDSE 模拟中使用的有效电荷 Z' . 方程 (17) 中的前置因子 $k_f = 1.14$, 关于这个数值的具体讨论, 可以参考相关文献 [40,58]. 在下文中具有由方程 (17) 计算的延迟 τ 的模型称为 L-TRCM 模型.

通过假设对于任意 DSFA 电子轨迹 (\mathbf{p}, t_0) , 库仑势不影响相应的复振幅 $F(\mathbf{p}, t_0)$, 因此能直接从 DSFA 模型中获得 L-TRCM 中电子轨迹 (\mathbf{p}', t_i) 的振幅 $F(\mathbf{p}', t_i)$. 振幅 $F(\mathbf{p}', t_i)$ 可以写为

$$F(\mathbf{p}', t_i) \equiv F(\mathbf{p}, t_0) \propto \{\beta \mathbf{E}(t_s) \cdot \mathbf{d}_f[\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s)] e^{-iS}\}. \quad (18)$$

(18) 式中 $F(\mathbf{p}', t_i)$ 可以进一步近似为 $F(\mathbf{p}', t_i) \sim \cos(\mathbf{p}'_k \cdot \mathbf{R}/2) e^{-iS}$, 其中, 考虑库仑修正 $\mathbf{p}_k/|\mathbf{p}_k| = \mathbf{p}/|\mathbf{p}|$, $p_k = |\mathbf{p}_k| = \sqrt{\mathbf{p}^2 + 2I_p}$ [52]. 本文中, 使用 $\cos(\mathbf{p}'_k \cdot \mathbf{R}/2) e^{-iS}$ 来评估 L-TRCM 模型预测大 R

分子的振幅. 然后通过对动量分布的角分布进行高斯拟合得到偏移角 θ . 在下文中将展示 L-TRCM 模型有能力重现大 R 分子光电子动量分布的主要特征.

3 结果与分析

3.1 激光缀饰电离图像

在比较 TDSE 和模型的结果之前, 对图 1 进行进一步的讨论, 其显示了原子和具有不同核间距的分子的激光缀饰势之间的基本差异. 这种差异与所研究系统的固有几何结构有关. 这是导致原子和具有不同 R 的分子的电离机制产生差异的重要原因. 当图 1(a) 中模型原子和 R 较小的分子的激光缀饰势能曲线显示单个势垒时, 图 1(b) 中大 R 分子的激光缀饰势能曲线显示了两个位于被拉伸原子核位置附近的两个势垒: 一个势垒被向上缀饰, 另一个势垒被向下缀饰. 由于第一激发态的贡献, 具有大 R 的分子将沿着能量 $E_1' \approx -[I_p - E_0(R/2)]$ 和 $E_2' \approx -[I_p + E_0(R/2)]$ 被电离, 如图 1(b) 中的两条水平线所示. 向上缀饰的势垒与能量 $E_1' = -0.09$ a.u. 有关, 向下缀饰的势垒与能量 $E_2' = -2.13$ a.u. 有关. 激光缀饰后的能量 E_1' 和 E_2' 不是鞍点方程 $[\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s)]^2/2 = -I_p$ 中出现的系统的实际电离能, 但反映了电离发生在原子中心附近, 而不是位于坐标原点 [53]. E_1' 水平线上方的向上缀饰的势垒比 E_2' 水平线上方向下缀饰的势垒的部分更低、更窄, 由水平线与激光缀饰的势函数曲线的交点所示. 因此, 对于拉伸分子的束缚电子来说, 更倾向于通过被向上缀饰的势垒隧穿从相邻的势阱中逃逸. 对于图 1(b) 中的情况, 可以得出, 向上缀饰势垒相对于相邻核 (即左核) 的出口位置为 $r_0'' = 5.22$ a.u., 向下缀饰势垒相对于相邻原子核 (即右核) 的出口位置为 $r_0'' = 5.84$ a.u. 因为左边势垒会受到右边原子核的影响, 所以左核附近势垒的出口位置更小. 向上缀饰势垒的出口位置 $r_0'' = 5.22$ a.u. 用于获得 L-TRCM 模型中出口位置的修正参数 r_d , 可以写为 $r_d = r_p - r_0''$, 其中 $r_p = I_p/E_0$. 如图 2 所示, L-TRCM 模型预测 PMD 的偏移角度与 TDSE 模型相似. 因此, L-TRCM 模型能够较好地描述大 R 分子的隧穿电离过程. 从图 1(a) 还可以看到, 模型原子和 $R = 2$ a.u. 的 H_2^+ 势垒的出口位置分别为 6.46 a.u. 和 5.71 a.u., 它们也大于 $r_0'' = 5.22$ a.u.

如图 1(b) 所示, 具有大 R 的分子位于左核附近的向上缀饰的势垒与原子和具有小 R 的分子相比, 其出口位置稍小. 因为较窄的势垒更容易发生隧穿

效应, 这也导致 PMD 中的偏移角更大, 因为对于具有较小出口位置的隧穿电子来说在出口处感受到的库仑力更强.

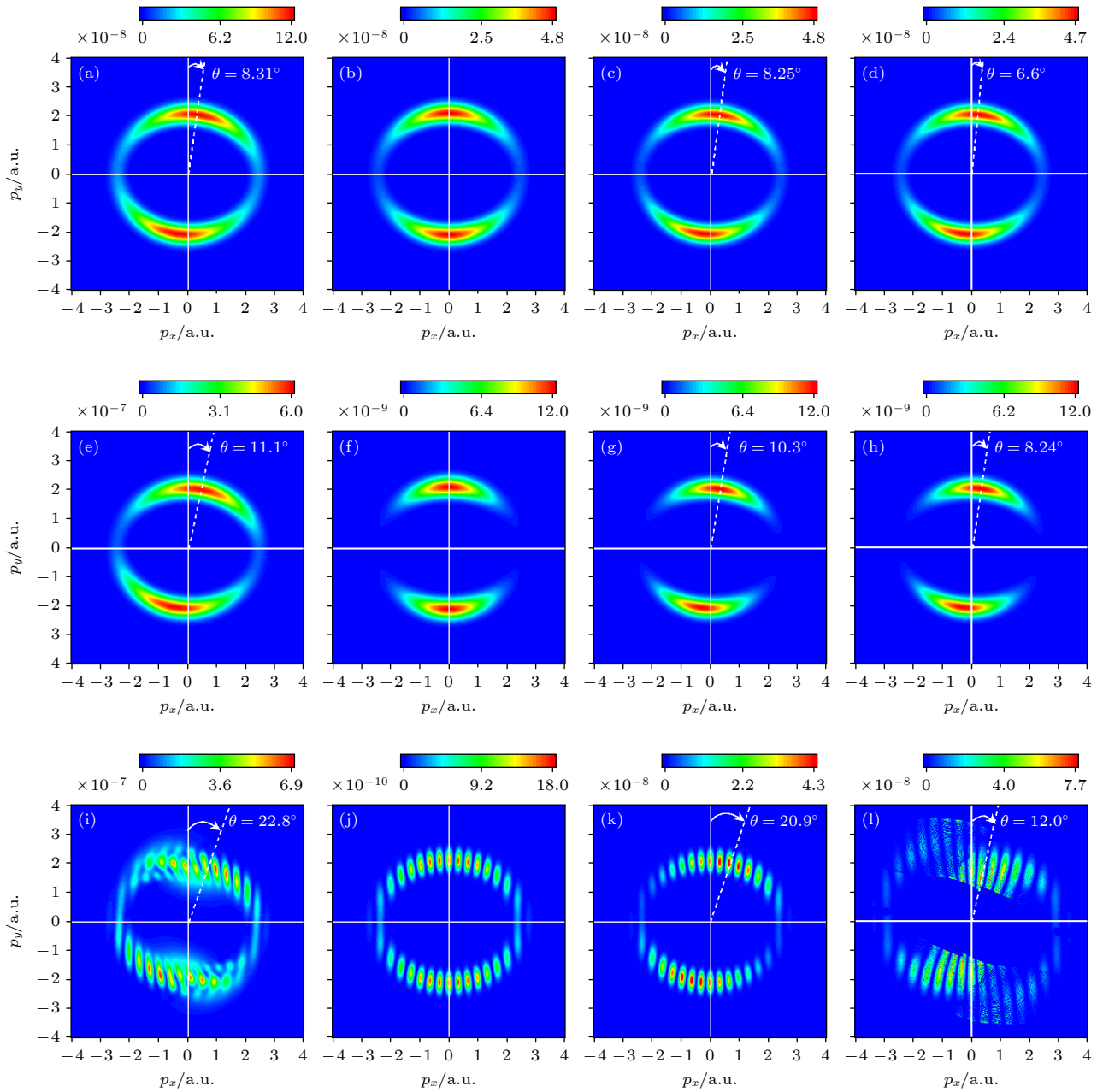


图 2 不同方法得到 (a)–(d) 模型原子、(e)–(h) $R = 2$ a.u. 的 H_2^+ 、以及 (i)–(l) $R = 16$ a.u. 的 H_2^+ 的光电子动量分布^[40] (a), (e), (i) TDSE; (b), (f) SFA; (j) DSFA; (c) A-TRCM 方法; (g) S-TRCM 方法; (k) L-TRCM 方法; (d), (h) MSFA; (l) U-MDSFA. 值得注意的是, (l) 中的 U-MDSFA 模型规定向上缀饰势垒附近原子核的位置为隧穿位置矢量的起点 (该矢量终点为隧穿出口位置), 并将电子隧穿后演化的初始位置修正为 $|\mathbf{r}'(t_0)| \equiv \mathbf{r}'_0 = |\mathbf{r}_0| - r_d$, 其中 $r_d = r_p - r''_0$, $r''_0 = |x_2 - x_1|$. PMD 的非零偏移角 θ 也在每个面板中表示. 激光参数为 $I = 1 \times 10^{15}$ W/cm², $\lambda = 800$ nm, $\varepsilon = 0.87$

Fig. 2. PMDs of (a)–(d) the model atom, (e)–(h) H_2^+ with $R = 2$ a.u., and (i)–(l) H_2^+ with $R = 16$ a.u., obtained with different methods^[40]: (a), (e), (i) The TDSE; (b), (f) the SFA; (j) the DSFA; (c) the A-TRCM method; (g) the S-TRCM method; (k) the L-TRCM method; (d), (h) the MSFA; (l) the U-MDSFA. It is noteworthy that the U-MDSFA simulation in (l) assumes taking the position of the atomic nucleus near the dressed-up potential barrier as the starting point of the tunneling position vector (the end-point of this vector is the position of the tunnel exit), and modifies the initial position for post-tunneling electron evolution to $|\mathbf{r}'(t_0)| \equiv \mathbf{r}'_0 = |\mathbf{r}_0| - r_d$, with $r_d = r_p - r''_0$ and $r''_0 = |x_2 - x_1|$. The nonzero offset angle θ of the PMD is also indicated in each panel. The laser parameters are $I = 1 \times 10^{15}$ W/cm², $\lambda = 800$ nm and $\varepsilon = 0.87$.

3.2 动量分布的比较

图 2 展示了通过不同方法得到的模型原子、 $R = 2$ a.u. 的 H_2^+ 以及 $R = 16$ a.u. 的 H_2^+ 的光电子动量分布. 首先, 图 2 左边第 1 列的 TDSE 结果显示在 I_p 相似的情况下, 具有大核间距分子的偏移角远远大于小核间距分子和模型原子的偏移角. 此外, 还可以观察到 $R = 16$ a.u. 的 H_2^+ 的 PMD 中显示的干涉条纹, 在 $R = 2$ a.u. 的情况下消失. 上述讨论的不同现象表明, 当原子和分子具有相似的 I_p 但是核间距不同时, 它们内部的电子对电离事件的反应不同.

其次, 图 2 第 2 列的 SFA 和 DSFA 模型预测的 PMD 可以重现通过 TDSE 计算所得相应 PMD 的一些主要特征. 如图 2(h), (e) 所示, $R = 16$ a.u. 的 H_2^+ 的 PMD 中存在明显的干涉条纹而在 $R = 2$ a.u. 的 H_2^+ 的 PMD 中消失. 接下来, 将进一步讨论具有大核间距的分子在 PMD 中干涉条纹的产生. 根据 DSFA 模型, 对于 R 值较大的分子, 偶极矩阵元可以写成 $\cos(\mathbf{p} \cdot \mathbf{R}/2)\mathbf{d}_a(\mathbf{v})$. 动量 \mathbf{p} 是漂移动量, 是实数. 因此, $\cos(\mathbf{p} \cdot \mathbf{R}/2)$ 项会在隧穿电离过程中产生干涉. 对于 R 值较小的分子, 情况则有所不同. 根据适用于小核间距分子的 SFA 模型, 偶极矩阵元可以写成 $\cos(\mathbf{v} \cdot \mathbf{R}/2)\mathbf{d}_a(\mathbf{v})$. 在鞍点近似下, 瞬时速度 $\mathbf{v} = \mathbf{p} + A(t_s) \approx \pm i\sqrt{2I_p}$ 为虚数, 不引起干涉. 这就是为什么在具有大 R 的分子的 PMD 中出现干涉条纹, 而在小 R 的情况下消失. 通过比较图 2 第 1 列和第 2 列的 PMD 结果可知, 不考虑库仑效应的 SFA 和 DSFA 模型不能重现由 TDSE 计算出的 PMD 的偏移角.

然后, 这些 TDSE 结果可以通过包含库仑效应的响应时间理论模型较好地重现, 如图 2 第 3 列所示. 例如图 2(c) 中的模型原子, A-TRCM 模型预测的偏移角 $\theta = 8.25^\circ$. 对于在图 2(f) 中 $R = 2$ a.u. 的 H_2^+ , S-TRCM 模型预测的偏移角 $\theta = 10.3^\circ$. 这些关于偏移角的模型结果与 TDSE 的结果很接近. L-TRCM 模型计算的 $R = 16$ a.u. 时 H_2^+ 的 PMD 如图 2(i) 所示. L-TRCM 模型预测的偏移角 $\theta = 20.9^\circ$, 与图 2(g) 中的 TDSE 结果接近. 因此, 模型结果重现了 TDSE 的结果, 即大 R 的 H_2^+ 的偏移角明显大于小 R 的 H_2^+ 和模型原子的偏移角. 对图 1 中的势函数曲线的分析, 解释了这一现象的潜在机理, 也就是说, 对具有大核间距的 H_2^+ , 基态和第一

激发态之间的强共振产生了两个激光缀饰态, 缀饰能量分别为 E_1' 和 E_2' . 拉伸系统的电离发生在这两种激光缀饰态上. 与能量 E_1' 的缀饰态相关的向上缀饰势垒比与能量 E_2' 的缀饰态相关的向下缀饰势垒更低更窄. 因此, 在系统的电离过程中, 由束缚电子从一个原子核附近的向上缀饰势垒中隧穿出来的电离通道占主导地位. 这个通道与一个原子核附近的向上缀饰态有关, 这有点类似于一个具有单中心库仑势的原子的电离. 不同之处在于, 这个靠近一个核的通道也受到另一个核的影响. 这种影响对于具有大 R 的 H_2^+ 是必不可少的, 其反映了激光、电子和被拉伸分子的这两个原子核之间的四体相互作用. 结果表明, 向上缀饰势垒的出口位置小于小 R 的 H_2^+ 和模型原子的出口位置. 因此, 在隧穿出口处, 大 R 的 H_2^+ 的隧穿电子比小 R 的 H_2^+ 和模型原子隧穿电子感受到更强的库仑力. 在大 R 的情况下, 这种更强的力进一步在 PMD 中诱导了一个更大的偏移角. 此外, 在 I_p 相似的情况下, 大 R 分子整体有效电荷 Z' 也较大. 核间距越大, Z' 值越大也会引起偏移角的增大. L-TRCM 模型能够简化复杂的四体相互作用, 并为拉伸系统的电离提供一个清晰的物理图像.

值得注意的是, L-TRCM 模型虽然较好地再现了 TDSE 结果的主要特征, 但对 PMD 精细结构的预言上二者存在一定的偏差. 潜在的原因可能是, 如图 1(b) 所示, 对于大 R 分子, 向上和向下缀饰势垒附近各存在一个电离通道, 由于向上缀饰的势垒比向下缀饰的势垒更低更窄, 在 L-TRCM 模型的构建中, 我们主要考虑从向上缀饰势垒附近的原子核隧穿电子的电离. 然而, 部分电子也会从向下缀饰势垒附近的原子核隧穿, 因此向下缀饰势垒附近的原子核也会对分子的隧穿电离过程有影响.

最后, 图 2 最右列中展示了 MSFA 模型预测的 PMD 结果. MSFA 模型通过数值求解包含库仑势的牛顿方程描述隧穿后电子的演化过程, 主要考虑库仑效应对电子隧穿之后动力学的影响. 对于原子和 R 较小的分子, MSFA 预测的 PMD 偏移角比 TDSE 预测的小. 例如图 2(d), (h) 中 MSFA 模型预测的模型原子和 $R = 2$ a.u. 时 H_2^+ 的偏移角分别为 $\theta = 6.6^\circ$ 和 $\theta = 8.24^\circ$. 与图 2(a), (e) 中 TDSE 结果比较可知, 两者之间存在 1.71° — 2.86° 的差异, 这个差异要大于 TDSE 与 A/S-TRCM 模型预测偏移角结果之间 0.06° — 0.8° 的差异. 然而, 对于

R 较大的分子, MDSFA 的局限性较为显著. 结合图 1(b) 中激光缀饰势函数曲线分析可知, 在 MDSFA 模拟中, 若仍认为电子的隧穿电离沿着 $-I_p = -1.11$ a.u. 的能量发生, 那么电子从一个原子核开始隧穿后将迅速进入第 2 个核的强库仑势作用区. 导致 PMD 中出现一些不易预测的结构, 例如图 3(a) 所示. 因此, 借鉴 L-TRCM 模型中的物理思想, 提出 U' -MDSFA 模型: 规定向上缀饰势垒附近原子核所在的位置为电子隧穿位置矢量的起点, 并将电子隧穿后演化的初始位置修正为 $|\mathbf{r}'(t_0)| \equiv r'_0 = |\mathbf{r}_0| - r_d$, 其中, $r_d = r_p - r''_0$, $r''_0 = |x_2 - x_1|$. 如图 2(l) 所示, U' -MDSFA 模型对 $R = 16$ a.u. 时 H_2^+ 预测的 PMD 可部分复现 TDSE 预测 PMD 的特征, 包括干涉条纹的出现和二、四象限中由于库仑散射导致的不规则分布. 但其偏移角 12.0° 仍显著低于图 2(i) 中相应的 TDSE 结果 $\theta = 22.8^\circ$, 表明这里对隧穿出口的修正不足以完全表征大核间距分子隧穿电离过程中的四体相互作用.

下文对 MSFA 模型和 TRCM 模型进行进一步的讨论. 首先, 两者都考虑了库仑效应在隧穿电离过程中的影响, 但两者着重考虑库仑效应对电离过程影响的范围不同. MSFA 模型强调电子隧穿后即电子离核较远处库仑效应对电子运动的影响, 而 TRCM 模型认为核附近库仑效应相较于远核库仑效应对电离过程起主导作用, 强调电子在隧穿电离前库仑势对电离的影响. 其次, 在对大 R 分子隧穿电离问题的研究中, 涉及电子、两个原子核和电场的四体强相互作用过程. 在 MDSFA 模型计算中无法将该四体相互作用简约化, 使我们很难构建出一个直观的拉伸系统隧穿电离的物理图像, 因此也难以确定电子隧穿后在同时包含库仑力和电场力的场中演化所需的初始条件. 图 3 展示了 MDSFA 以及不同修正 MDSFA 模型预测的 PMD 结果, 都与 TDSE 预测相应的 PMD 结果存在较大的差异. 稍后我们将结合图 3 对该点进行详细讨论. 对于用来研究拉伸分子隧穿电离的 L-TRCM 模型, 将大 R 分子隧穿电离过程中的强四体相互作用近似为准三体强相互作用, 将另一个核对电离的影响转变为对隧穿出口位置的修正. 具体来说, 通过结合势函数曲线充分考虑了大 R 分子势场的特征, 对大 R 分子中的隧穿电离给出了一个更小的隧穿位置, 因而可以结合位力定理通过库仑诱导速度对库仑

效应进行了解析的评估, 模型计算结果也能够与 TDSE 的结果较好地吻合.

为系统评估 MDSFA 模型中隧穿出口位置选取对强场电离模拟的影响, 图 3 展示了 $R = 16$ a.u. 时 H_2^+ 在 MDSFA 以及不同修正 MDSFA 模型下的 PMD 预测结果. 除了在图 2(l) 中以向上缀饰势垒附近原子核所在的位置为隧穿位置矢量的起点, 并参考 L-TRCM 模型中对隧穿位置的修正构建的 U' -MDSFA 模型之外, 这里进一步研究了其他隧穿位置矢量起点设定对 MDSFA 模型预测 PMD 的影响. 首先, 图 3(a) 中 MDSFA 模型以坐标原点为电子隧穿的起点, 以激光缀饰势函数曲线和 $-I_p = -1.11$ a.u. 等能线的交点近似为隧穿出口, 如图 1 中曲线所示, 此时电子从一个核隧穿出来后经过一段很小的演化距离就会感受到另一个原子核对它产生的很强的库仑力, 导致图 3(a) 的 PMD 中存在一些不易预测的结构, 结果显示 MDSFA 模型和 TDSE 对 PMD 的预测存在显著差异. 其次, 图 3(b) 展示的以向上缀饰势垒附近原子核所在的位置, 为隧穿位置的起点的 U -MDSFA 模型预测的 PMD 呈现出和图 2(l) 中由 U' -MDSFA 模型预测的 PMD 中相似的干涉图像, 但偏移角 $\theta = 6.6^\circ$ 小于 U' -MDSFA 模型预言 12.0° , 二者差异源于 U -MDSFA 模型使用了一个更小的隧穿出口位置. 图 3(b) 和图 2(l) 中 PMD 的二、四象限中显示的不规则分布可能是由于第 2 个核引起的库仑散射导致的. 此外第 2 个核的库仑效应也使电子有一定的概率会被第 2 个原子核重新捕获. 这种再捕获过程将导致具有最大能量 $E_0 R$ 的谐波的发射. 由于这一过程发生在库仑效应很强的这两个原子核周围, 因此在此过程中发射的谐波也具有非常高的强度, 形成所谓的分子高次谐波产生平台^[35].

图 3(c), (d) 分别展示了以向下缀饰势垒附近原子核所在的位置为隧穿位置的起点的 D -MDSFA 模型和以向下缀饰势垒附近原子核所在的位置为隧穿位置矢量的起点, 并将电子隧穿后演化的初始位置修正为 $|\mathbf{r}'(t_0)| \equiv r'_0 = |\mathbf{r}_0| - r_d$, 其中 $r_d = r_p - r''_0$, $r''_0 = |x_4 - x_3|$ 的 D' -MDSFA 模型预测的 PMD 结果. 在这两种情况下, 两个原子核的库仑效应在电子隧穿后的演化过程中一直对电子的运动起到阻碍作用, 此时, 系统在激发态效应下产生了和图 2(j) 中 DSFA 模型模拟相似的干涉条纹, 库仑效应导致了偏移角的产生. 这两个模型中所描

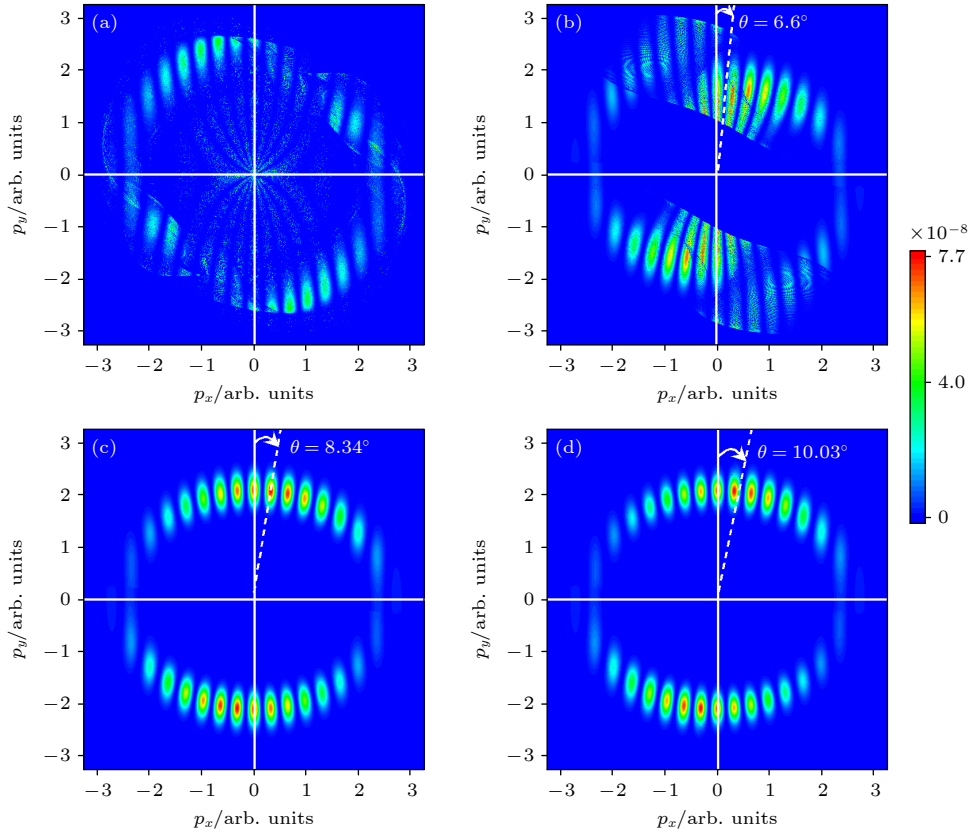


图3 MDSFA 以及不同修正 MDSFA 模型预测 $R = 16$ a.u. 的 H_2^+ 的光电子动量分布 (a) MDSFA 模型, 规定以坐标原点为隧穿位置矢量的起点 (该矢量终点为隧穿出口位置); (b), (c) U(D)-MDSFA 模型, 规定以向上 (向下) 缀饰势垒附近原子核所在的位置为隧穿位置矢量的起点; (d) D'-MDSFA 模型, 该模型在 D-MDSFA 基础上将电子隧穿后演化的初始位置修正为 $|\mathbf{r}'(t_0)| \equiv r'_0 = |\mathbf{r}_0| - r_d$, 其中 $r_d = r_p - r''_0$, $r''_0 = |x_4 - x_3|$. PMD 的非零偏移角 θ 也展示在每个面板中. 激光参数为 $I = 1 \times 10^{15}$ W/cm², $\lambda = 800$ nm, $\varepsilon = 0.87$

Fig. 3. The PMDs of H_2^+ with $R = 16$ a.u. calculated by MDSFA and different modified MDSFA models. (a) MDSFA model stipulates that the origin of the coordinate system is taken as the starting point of the tunneling position vector (the endpoint of this vector is the position of the tunnel exit). (b), (c) U(D)-MDSFA model stipulates that the position of the atomic nucleus near the dressed-up (dressed-down) barrier is defined as the starting point of the tunneling position vector. (d) D'-MDSFA model which modifies the initial position for post-tunneling electron evolution to $|\mathbf{r}'(t_0)| \equiv r'_0 = |\mathbf{r}_0| - r_d$, with $r_d = r_p - r''_0$ and $r''_0 = |x_4 - x_3|$, based on the D-MDSFA model. The nonzero offset angle θ of the PMD is also indicated in each panel. The laser parameters are $I = 1 \times 10^{15}$ W/cm², $\lambda = 800$ nm and $\varepsilon = 0.87$.

述隧穿过程的物理图像与 MSFA 模型对原子和小核间距分子的隧穿过程描述是相似的. 比较图 3(c), (d) 中的 PMD 结果可知, 两者仅在偏移角上存在相对较小的差异. 具体地, D'-MDSFA 模型考虑大核间距分子势函数特点, 给出一个更小的隧穿位置, 因此电子在出口位置处感受的库仑力越强, 导致了预测的偏移角 $\theta = 10.3^\circ$ 略大于没有对隧穿位置修正的 D-MDSFA 模型预测的偏移角 $\theta = 8.34^\circ$. 将图 3 中通过修正的 MDSFA 模型预测的 PMD 结果与图 2(i) 中 TDSE 对 $R = 16$ a.u. 时 H_2^+ 电离过程预测的 PMD 结果相比发现存在较大的差异.

为了进一步验证不同库仑修正强场模型的适用性, 我们将在图 4 中给出不同模型在不同分子参

数下计算的偏移角结果.

3.3 不同核间距下模型适用性验证

如图 4 所示, 在激光强度为 $I = 1 \times 10^{15}$ W/cm² 条件下, 系统对比了不同核间距 R (14—20 a.u.) 下 TDSE, L-TRCM 模型及 4 种修正 MDSFA 模型 (U/U'-MDSFA, D/D'-MDSFA) 对 H_2^+ 光电子动量分布偏移角的预测结果. 数值结果表明, 当核间距 R 从 14 a.u. 变化到 20 a.u. 时, 由 TDSE 预测的 H_2^+ 的偏移角位于 22.6° — 23.4° 的小范围内. L-TRCM 模型对不同 R 下的偏移角的预测也位于 20.5° — 21.1° 的小范围内. TDSE 模型和 L-TRCM 模型的结果之间差异为 1.3° — 2.3° , 验证了在大 R

情况下, L-TRCM 模型能较好地重现 TDSE 预测的偏移角结果.

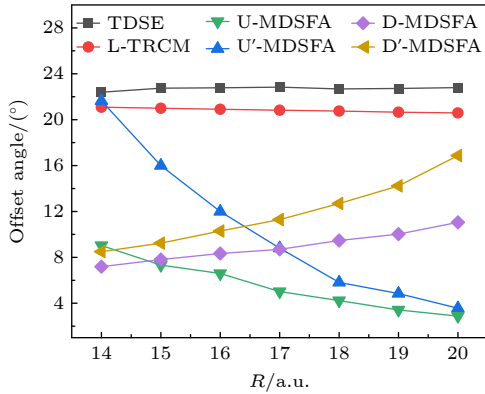


图 4 TDSE、L-TRCM 模型、U-MDSFA 模型、U'-MDSFA 模型、D-MDSFA 模型和 D'-MDSFA 模型对于不同 R 预测的 H_2^+ 的偏移角. 激光参数为 $I = 1 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$, $\lambda = 800 \text{ nm}$, $\varepsilon = 0.87$

Fig. 4. Offset angles of H_2^+ predicted by the TDSE, the L-TRCM model, the U-MDSFA model, the U'-MDSFA model, the D-MDSFA model, and the D'-MDSFA model for different R . The laser parameters are $I = 1 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$, $\lambda = 800 \text{ nm}$ and $\varepsilon = 0.87$.

值得注意的是, 4 种基于不同隧穿出口修正的 MDSFA 模型 (U/U'-MDSFA, D/D'-MDSFA) 的预测结果均显著偏离 TDSE 基准. 进一步分析发现, 隧穿起点的选择 (从向上/向下缀饰势垒隧穿) 显著影响修正的 MDSFA 模型预测偏移角对核间距的响应趋势: 1) 由于电子从向上缀饰势垒附近的原子核隧穿 (U/U'-MDSFA) 和从向下缀饰的势垒附近的原子核隧穿 (D/D'-MDSFA) 将经历不同的动力学过程. 当电子从向上缀饰势垒附近的原子核隧穿时, 向上缀饰势垒附近的原子核产生的库仑力将在电子隧穿后的演化过程中阻碍电子的运动, 而向下缀饰势垒附近的原子核产生的库仑力对电子的运动先起到促进作用后起阻碍作用. 而当电子从向下缀饰势垒附近的原子核隧穿时, 两个原子核在电子隧穿后的演化过程中一直阻碍电子的运动, 这不同的动力学过程是导致不同模型模拟结果展示出偏移角对核间距变化不同反应可能的原因. 2) U'/(D')-MDSFA 因采用较 U/(D)-MDSFA 模型更靠近母核的隧穿出口, 其预测偏移角整体偏高, 这是隧穿出口邻近区域电子会感受到更强的库仑力的结果. 通过上述的讨论, 可以看出 MDSFA 模型在描述大 R 分子电离过程中的局限性, 相比之下, 半经典响应时间理论在大核间距分子的隧穿

电离动力学研究上计算更简单、应用更灵活, 在提高计算效率的同时, 也提升了预测精度, 为强场分子动力学研究提供了新思路.

4 总 结

本工作围绕拉伸到大核间距分子阿秒钟数值实验结果, 分析了考虑近核库仑效应的半经典响应时间理论在解析描述分子超快电离动力学过程中的适用性. 近期提出的针对拉伸分子的强场电离理论模型 (L-TRCM) 以响应时间理论框架为基础, 整合了双中心库仑势修正与激发态贡献, 并将拉伸分子体系中电子、激光场与分子双核复杂的四体相互作用近似简化为电子-激光场-向上缀饰势垒邻近核的三体作用, 并将另一个核对该势垒的影响作为隧穿出口位置的修正项, 成功定量复现拉伸分子体系的主要电离特征. 对比分析表明: 同时考虑激发态效应和通过数值求解牛顿方程描述远核库仑效应的强场模型 (MDSFA), 无法充分描述上述四体相互作用, 进而难以定量呈现库仑与激发态共同作用下的复杂隧穿电离动力学图像. 此外, 响应时间理论 (L-TRCM) 给出了由基本激光和分子参数决定的响应时间公式, 然后通过计算的响应时间推演阿秒钟观测量的值, 允许明确讨论拉伸分子隧穿电离过程中的电离时间延迟问题, 并指出该延迟反映了激光、电子与分子双核间强四体相互作用的时间尺度; 而通过数值求解牛顿方程以包含库仑效应的强场模型 (MDSFA), 由于无法排他性地定义电离时间, 因而无法明确讨论相关电离时间延迟问题. 本文的分析和讨论表明, 响应时间理论不仅为研究拉伸到大核间距分子的时间分辨电离动力学提供了简洁方法, 同时也为研究其他更复杂分子的阿秒电离动力学提供了新思路.

5 展 望

基于响应时间理论的解析框架已成功应用于原子, 小核间距分子以及大核间距分子的隧穿电离问题研究. 针对大核间距体系该理论通过以下改进实现与 TDSE 结果的吻合: 1) 充分考虑大核间距分子由于基态和第一激发态简并特有的激发态效应, 2) 通过充分考虑大核间距情况下分子的特征势, 引入隧穿位置修正, 将四体强相互作用近似为

三体强相互作用, 3) 给出具有明确定义响应时间的解析计算公式, 定量表征电子-激光-双核强耦合动力学. 上述改进使得 L-TRCM 模型能够定量复现 TDSE 预测的 PMD 量子干涉特征, 为大核间距分子强场电离动力学研究提供了简洁解析工具. 当前研究多聚焦于原子、小核间距及大核间距分子体系, 而对中间核间距分子的隧穿电离机制尚未系统阐释. 此尺度下, 系统基态与第一激发态发生强耦合, 导致双电离通道共存: 基态电离通道和第一激发态电离通道 [34,59]. 图 5 展示了 $R = 4$ a.u. 和 $R = 6$ a.u. 的 H_2^+ 的无激光和激光缀饰势函数曲线以及 TDSE 计算所得动量分布结果. 图 5(b), (c) 中关于中间核间距对称分子 PMD 结果显示出动量分布偏移角的大角度特征、某种不对称性以及一些复杂的结构, 表明电荷共振效应和分子库仑效应共同主导电离过程. 中等核间距分子的隧穿电离过程中

存在与大核间距情况下相似的动力学性质, 其向上和向下缀饰势垒附近各存在一个电离通道, 由于向上缀饰的势垒比向下缀饰的势垒更低更窄, 因此在电离过程中向上缀饰势垒附近电离通道占据主导 [50]. 通过引入包含激发态贡献的强场近似模型 [34,59], 求解不同电离通道对应的鞍点方程, 得到相应的电子轨道, 并进一步考虑隧穿出口处近核库仑效应诱导的朝向核的速度, 有望将响应时间理论推广到描述中间核间距分子离子的多通道隧穿电离. 相比于对称分子, 不对称的极性分子还具有固有偶极 [60], 其对极性分子的隧穿电离具有重要影响 [34,61,62], 会导致一个激光周期的前后半个周期内不对称电离现象的发生 [37]. 通过在强场近似中考虑固有偶极效应, 求解包含固有偶极的鞍点方程 [40], 在隧穿出口处进一步考虑近核库仑效应, 有望将响应时间理论推广到描述极性分子的强场隧穿电离. 相比于双原

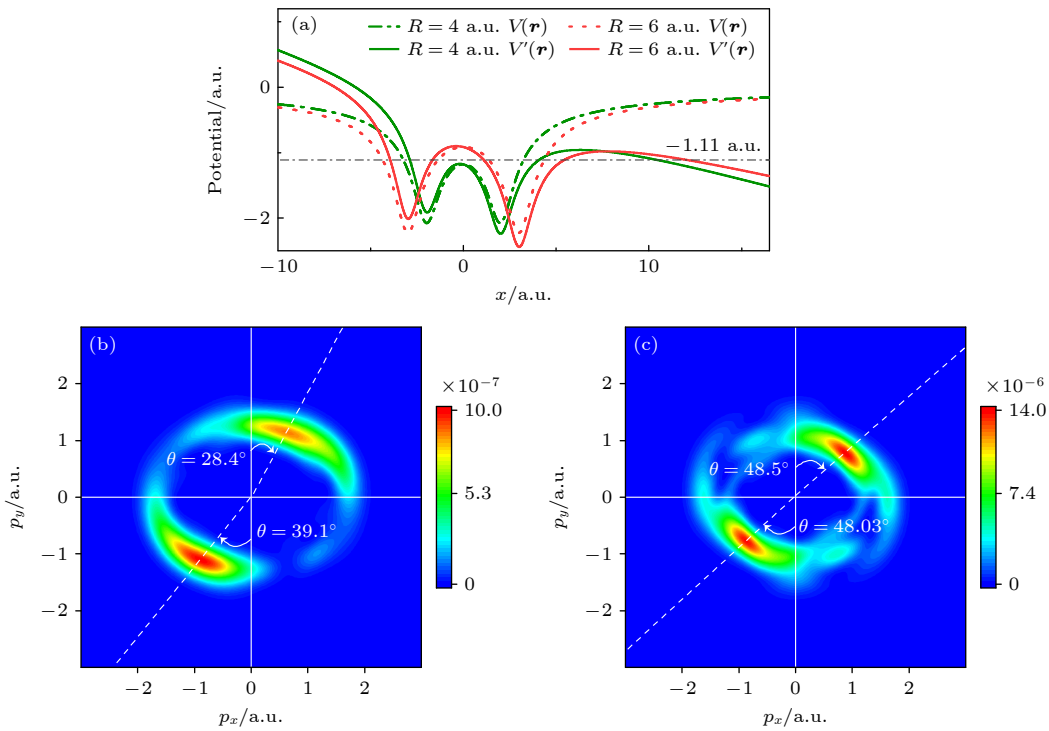


图 5 对中间核间距 H_2^+ 隧穿电离的研究 (a) 在 $y = 0$ 处 $R = 4$ a.u. (绿线) 和 $R = 6$ a.u. (红线) 的 H_2^+ 的激光缀饰势 $V'(\mathbf{r}) = V(\mathbf{r}) - E_0x$ (实线) 和无激光势 $V(\mathbf{r})$ (虚线). 水平线表示 $-I_p = -1.11$ a.u. 的能量. (b), (c) 分别是通过 TDSE 得到的 $R = 4$ a.u. 和 $R = 6$ a.u. 的 H_2^+ 的光电子动量分布. PMD 的非零偏移角 θ 也在每个面板中表示. 电离能均为 $I_p = 1.11$ a.u. 为满足不同系统对电离率的要求, (b) 中电场强度为 $I = 4 \times 10^{14}$ W/cm², (c) 中电场强度为 $I = 3 \times 10^{14}$ W/cm². 其他激光参数为 $\lambda = 800$ nm, $\varepsilon = 0.87$

Fig. 5. Research on tunneling ionization of H_2^+ with intermediate R . (a) Sketch of the laser-dressed potential $V'(\mathbf{r}) = V(\mathbf{r}) - E_0x$ (solid curves) and laser-free potential $V(\mathbf{r})$ (dash-dotted line) for H_2^+ with $R = 4$ a.u. at $y = 0$. The horizontal line indicates the energy of $-I_p = -1.11$ a.u. (b), (c) PMDs of H_2^+ with (b) $R = 4$ a.u. and (c) $R = 6$ a.u. The offset angle θ of the PMD is also indicated in each panel. The ionization energy are both $I_p = 1.11$ a.u. To satisfy the ionization rate requirements of different systems, the electric field strength used in (b) is $I = 4 \times 10^{14}$ W/cm² and in (c) is $I = 3 \times 10^{14}$ W/cm². Other laser parameters are $\lambda = 800$ nm, $\varepsilon = 0.87$.

子分子, 多中心线性分子^[63] 以及具有平面或者立体构型的陀螺分子^[64] 库仑势形式更加复杂, 这为进一步检验响应时间理论以及其他基于轨道的库仑修正的强场理论模型的适用性提供了新的机会. 此外, 研究取向分子的隧穿电离动力学是另一个有趣的主题, 取向分子隧穿电离过程中的多中心干涉^[48,49,65-67] 还会导致阿秒钟动量分布的偏转, 这一偏转与库仑诱导的偏转相互竞争^[46], 对这一复杂竞争机制的定量描述为检验包含库仑的强场理论模型的适用性提供了更丰富的情景. 对分子特别是拉伸分子隧穿电离过程中超快动力学的研究, 也为将来进一步研究固体的超快隧穿电离动力学, 进而制备具有超快光电响应时间的器件^[24] 提供必要的理论储备.

参考文献

- [1] Li W, Zhou X B, Lock R, Patchkovskii S, Stolow A, Kapteyn H C, Murnane M M 2008 *Science* **322** 1207
- [2] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [3] Lépine F, Ivanov M Y, Vrakking M J J 2014 *Nat. Photon* **8** 195
- [4] Garg M, Zhan M, Luu T T, Lakhotia H, Klostermann T, Guggenmos A, Goulielmakis E 2016 *Nature* **538** 359
- [5] Lakhotia H, Kim H Y, Zhan M, Hu S, Meng S, Goulielmakis E 2020 *Nature* **583** 55
- [6] MacColl L A 1932 *Phys. Rev.* **40** 621
- [7] Wigner E P 1955 *Phys. Rev.* **98** 145
- [8] Ranfagni A, Mugnai D, Fabeni P, Pazzi G P 1991 *Appl. Phys. Lett.* **58** 774
- [9] Enders A, Nitz G 1992 *J. Phys. I* **2** 1693
- [10] Steinberg A M, Kwiat P G, Chiao R Y 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 708
- [11] Spielmann C, Szpöcs R, Stingl A, Krausz F 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 2308
- [12] Muga J G, Sala Mayato R, Egusquiza I L (eds.) 2002 *Time in Quantum Mechanics* (Vol. 1) (Berlin, Heidelberg: Springer) pp5, 6
- [13] Ramos R, Spierings D, Racicot I, Steinberg A M 2020 *Nature* **583** 529
- [14] Eckle P, Smolarski M, Schlup P, Biegert J, Staudte A, Schöffler M, Müller H G, Dörner R, Keller U 2008 *Nat. Phys.* **4** 565
- [15] Eckle P, Pfeiffer A N, Cirelli C, Staudte A, Dörner R, Müller H G, Buttiker M, Keller U 2008 *Science* **322** 1525
- [16] Pfeiffer A N, Cirelli C, Smolarski M, Dimitrovski D, Abusamha M, Madsen L B, Keller U 2012 *Nat. Phys.* **8** 76
- [17] Pfeiffer A N, Cirelli C, Smolarski M, Keller U 2013 *Chem. Phys.* **414** 84
- [18] Landsman A S, Weger M, Maurer J, Boge R, Ludwig A, Heuser S, Cirelli C, Gallmann L, Keller U 2014 *Optica* **1** 343
- [19] Klaiber M, Hatsagortsyan K Z, Keitel C H 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 083001
- [20] Hofmann C, Landsman A S, Keller U 2019 *J. Mod. Optic.* **66** 1052
- [21] Serov V V, Bray A W, Kheifets A S 2019 *Phys. Rev. A* **99** 063428
- [22] Sainadh U S, Xu H, Wang X, Atia-Tul-Noor A, Wallace W C, Douguet N, Bray A W, Ivanov I, Bartschat K, Kheifets A, Sang R T, Litvinyuk I V 2019 *Nature* **568** 75
- [23] Chen C, Che J Y, Xie X J, Wang S, Xin G G, Chen Y J 2022 *Chin. Phys. B* **31** 033201
- [24] Che J Y, Chen C, Li W Y, Li W, Chen Y J 2023 *Acta Phys. Sin.* **72** 193301 (in Chinese) [车佳殷, 陈超, 李卫艳, 李维, 陈彦军 2023 *物理学报* **72** 193301]
- [25] Yan T M, Popruzhenko S V, Vrakking M J J, Bauer D 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 253002
- [26] Li M, Geng J, Liu H, Deng Y K, Wu C Y, Peng L Y, Gong Q H, Liu Y Q 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 113002
- [27] Lai X Y, Poli C, Schomerus H, Figueira de Morisson Faria C 2015 *Phys. Rev. A* **92** 043407
- [28] Shvetsov-Shilovski N I, Lein M, Madsen L B, Räsänen E, Lemell C, Burgdörfer J, Arbó D G, Tórkési K 2016 *Phys. Rev. A* **94** 013415
- [29] Xie X J, Chen C, Xin G G, Liu J, Chen Y J 2020 *Opt. Express* **28** 33228
- [30] Chen C, Che J Y, Li W Y, Wang S, Xie X J, Huang J Y, Peng Y G, Xin G G, Chen Y J 2022 *arXiv: 2111.08491 [physics.atom-ph]*
- [31] Camus N, Yakaboylu E, Fechner L, Klaiber M, Laux M, Mi Y, Hatsagortsyan K Z, Pfeifer T, Keitel C H, Moshhammer R 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 023201
- [32] Chen Y J, Liu J, Hu B 2009 *Phys. Rev. A* **79** 033405
- [33] Frumker E, Hebeisen C T, Kajumba N, Bertrand J B, Wörner H J, Spanner M, Villeneuve D M, Naumov A, Corkum P B 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 233904
- [34] Chen Y J, Zhang B 2012 *J. Phys. B* **45** 215601
- [35] Li W Y, Dong F L, Yu S J, Wang S, Yang S P, Chen Y J 2015 *Opt. Express* **23** 031010
- [36] Li W Y, Wang S, Shi Y Z, Yang S P, Chen Y J 2017 *J. Phys. B* **50** 085003
- [37] Wang S, Che J Y, Chen C, Xin G G, Chen Y J 2020 *Phys. Rev. A* **102** 053103
- [38] Etches A, Gaarde M B, Madsen L B 2012 *Phys. Rev. A* **86** 023818
- [39] Li W Y, Yu S J, Wang S, Chen Y J 2016 *Phys. Rev. A* **94** 053407
- [40] Shen S Q, Chen Z Y, Wang S, Che J Y, Chen Y J 2024 *Phys. Rev. A* **110** 033106
- [41] Brabec T, Ivanov M Yu, Corkum P B 1996 *Phys. Rev. A* **54** R2551
- [42] Goreslavski S P, Paulus G G, Popruzhenko S V, Shvetsov-Shilovski N I 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 233002
- [43] Feit M D, Fleck J A, Steiger A 1982 *J. Comput. Phys.* **47** 412
- [44] Lewenstein M, Kulander K C, Schafer K J, Bucksbaum P H 1995 *Phys. Rev. A* **51** 1495
- [45] Corkum P B, Krausz F 2007 *Nat. Phys.* **3** 381
- [46] Ren D X, Wang S, Chen C, Li X K, Yu X T, Zhao X N, Ma P, Wang C C, Luo S Z, Chen Y J, Ding D J 2022 *J. Phys. B* **55** 175101
- [47] Becker W, Grasbon F, Kopold R, Milošević D B, Paulus G G, Walther H 2002 *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **48** 35
- [48] Chen Y J, Hu B 2010 *Phys. Rev. A* **81** 013411
- [49] Sun F J, Chen C, Li W Y, Liu X, Li W, Chen Y J 2021 *Phys. Rev. A* **103** 053108
- [50] Zuo T, Bandrauk A D 1995 *Phys. Rev. A* **52** R2511
- [51] Becker W, Chen J, Chen S G, Milošević D B 2007 *Phys. Rev. A* **76** 033403

- [52] Che J Y, Zhang F B, Li W Y, Chen C, Chen Y J 2023 *New J. Phys.* **25** 083022
- [53] Chen J, Chen S G 2007 *Phys. Rev. A* **75** 041402(R)
- [54] Blaga C I, Catoire F, Colosimo P, Paulus G G, Muller H G, Agostini P, DiMauro L F 2009 *Nat. Phys.* **5** 335
- [55] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [56] Yang B, Schafer K J, Walker B, Kulander K C, Agostini P, DiMauro L F 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 3770
- [57] Peng Y G, Che J Y, Zhang F B, Xie X J, Xin G G, Chen Y J 2024 *Opt. Express* **32** 12734
- [58] Chen Z Y, Shen S Q, Li Y P, Yang Z Q, Che J Y, Chen Y J 2025 *Phys. Rev. A* **111** 053118
- [59] Chen Y J, Chen J, Liu J 2006 *Phys. Rev. A* **74** 063405
- [60] Kamta G L, Bandrauk A D 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 203003
- [61] Shi Y Z, Zhang B, Yu W Y, Chen Y J 2017 *Phys. Rev. A* **95** 033406
- [62] Wang S, Cai J, Chen Y J 2017 *Phys. Rev. A* **96** 043413
- [63] Su N, Yu S J, Li W Y, Yang S P, Chen Y J 2018 *Chin. Phys. B* **27** 054213
- [64] Yu S J, Li W Y, Li Y P, Chen Y J 2017 *Phys. Rev. A* **96** 013432
- [65] Chen Y J, Hu B 2009 *J. Chem. Phys.* **131** 244109
- [66] Gao F, Chen Y J, Xin G G, Liu J, Fu L B 2017 *Phys. Rev. A* **96** 063414
- [67] Chen C, Ren D X, Han X, Yang S P, Chen Y J 2018 *Phys. Rev. A* **98** 063425

SPECIAL TOPIC—Ultrafast physics in atomic, molecular and optical systems

Applications of semiclassical response time theory in strong-field molecular ionization*

YE Sheng^{1)2)#} WANG Shang^{3)#} CHEN Ziyu²⁾ LI Weiyan^{1)†}

SHEN Shiqi^{2)‡} CHEN Yanjun^{2)††}

1) (*Hebei Key Laboratory of Optoelectronic Information and Geo-detection Technology, School of Mathematics and Science, Hebei GEO University, Shijiazhuang 050031, China*)

2) (*Key Laboratory of Quantum Materials and Devices, Shaanxi Provincial Higher Education Institutions, College of Physics and Information Technology, Shaanxi Normal University, Xi'an 710119, China*)

3) (*College of Physics and Hebei Key Laboratory of Photophysics Research and Application, Hebei Normal University, Shijiazhuang 050024, China*)

(Received 8 April 2025; revised manuscript received 8 May 2025)

Abstract

The attosecond technology provides a powerful tool for studying the ultrafast dynamics of electrons during the strong-field ionization of atoms and molecules. This technology relies on quantitative theoretical models to invert the ultrafast time-domain information of the system in the ionization process from the photoelectron spectra obtained through experimental measurements. One of the key issues in constructing quantitative strong-field theoretical models is the theoretical description of the Coulomb effect. The Coulomb potential of molecules, compared with the single-center Coulomb potential of atoms, exhibits a multi-center distribution.

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12174239, 12347165, 12404330), the Fundamental Science Research Project for Mathematics and Physics of Shaanxi Province, China (Grant No. 23JSY022), the Natural Science Basic Research Program of Shaanxi Province, China (Grant No. 2022JM-015), the Natural Science Foundation of Hebei Province, China (Grant No. A2022205002), and the Science and Technology Project of Hebei Education Department, China (Grant No. QN2022143).

These authors contributed equally.

† Corresponding author. E-mail: liwy157@126.com

‡ Corresponding author. E-mail: shensqhn@163.com

†† Corresponding author. E-mail: chenyjhb@gmail.com

This fundamental geometric structure feature results in many new effects of molecules in the external field, such as orientation effect, charge resonance effect, intrinsic dipole effect, and vibration effect. Therefore, it can be expected that the tunneling ionization process of molecules contains more phenomena than that of atoms, which is worthy of in-depth study in experiment and theory. Especially for stretched molecular ions, such as H_2^+ , those exhibiting charge resonance effects in external fields, the difference between near-nucleus and far-nucleus Coulomb effects, which is of great significance for constructing quantitative theoretical models, becomes more complex, providing a platform for testing the applicability of quantitative theoretical models.

This work systematically compares the predictions of different theoretical models for the attoclock characteristic observables in molecular systems with large internuclear distances. Through comparative analysis, it is found that the recently proposed semiclassical response time theory, which incorporates near-nucleus Coulomb corrections, shows better agreement with numerical experimental results than the developed strong-field approximation models that consider far-nucleus Coulomb corrections. The semiclassical response time theory establishes a theoretical framework for describing strong-field ultrafast ionization dynamics of stretched molecular systems by considering dual-center Coulomb potential corrections and excited-state contributions. Specifically, it approximates the complex four-body interactions (electron-laser-dual nuclei) in stretched molecular systems to a three-body interaction (electron-laser-dressed-up barrier-proximal nucleus), while using the influence of the other nucleus on the potential barrier as a correction term for the tunnel-exit position. This framework highlights the significant influence of quantum-property-dominated near-nucleus Coulomb effects on molecular tunneling ionization. Furthermore, the theory provides an explicit formula for the response time determined by fundamental laser and molecular parameters. By calculating this response time, the values of attoclock observables are deduced from the theory, thus enabling a clear discussion of ionization time delays in stretched molecular tunneling ionization and revealing that such delays reflect the timescale of strong four-body interactions between the laser, electron, and molecular nucleus. In contrast, the developed strong-field approximation model that simultaneously considers excited-state effects and numerically solves Newton's equations to describe far-nucleus Coulomb effects cannot fully describe the above-mentioned four-body interaction, making it difficult to quantitatively describe the complex tunneling ionization dynamics under the combined action of coulomb and excited states. Additionally, since this model cannot clearly define the ionization time, the related ionization time delay issues cannot be well discussed. Computational results show that the semi-classical response time theoretical model has improved in terms of calculation accuracy and efficiency, thereby verifying the applicability of this theoretical model in the study of molecular ultrafast ionization dynamics.

Moreover, for H_2^+ with intermediate internuclear distances, the charge resonance effect induces a significant ionization enhancement effect. We present relevant numerical experimental attoclock results and explore the potential applications of the response time theory in such systems. We also envision the extension of this theory to strong-field tunneling ionization in polar molecules, multi-center linear molecules, planar and three-dimensional molecules, and oriented molecules, where interference and Coulomb-acceleration effects compete with each other.

Keywords: molecular tunneling ionization, attoclock, ultrafast detection, semiclassical theory

PACS: 33.80.Rv, 31.70.Hq, 42.65.Ky

DOI: [10.7498/aps.74.20250459](https://doi.org/10.7498/aps.74.20250459)

CSTR: [32037.14.aps.74.20250459](https://cstr.cn/32037.14.aps.74.20250459)

半经典响应时间理论在强场分子电离中的应用

叶升 王赏 陈子玉 李卫艳 申诗琪 陈彦军

Applications of semiclassical response time theory in strong-field molecular ionization

YE Sheng WANG Shang CHEN Ziyu LI Weiyan SHEN Shiqi CHEN Yanjun

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 74, 153303 (2025) DOI: 10.7498/aps.74.20250459

CSTR: 32037.14.aps.74.20250459

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250459>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

强激光场驱动Ar原子电离中的隧穿延时

Tunneling delay time in strong field ionization of atomic Ar

物理学报. 2022, 71(23): 233203 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221295>

强场原子电离响应时间的研究进展

Advances in response time of strong-field ionization of atoms

物理学报. 2023, 72(19): 193301 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230983>

强激光场原子电离光电子轨迹干涉全息理论及应用

Theory and application of photoelectron trajectory interference holography for atomic ionization in intense laser field

物理学报. 2022, 71(23): 233206 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221296>

椭圆偏振强激光场诱导分子电离过程中的缀饰态和非缀饰态

Dressed-state and undressed-state during molecular ionization induced by elliptically polarized laser field

物理学报. 2025, 74(9): 093202 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250064>

阿秒脉冲的发展及其在原子分子超快动力学中的应用

Development of attosecond pulses and their application to ultrafast dynamics of atoms and molecules

物理学报. 2023, 72(5): 053202 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222436>

基于强场层析成像方案的异核分子结构成像

Imaging of heteronuclear molecular structures based on strong-field tomographic scheme

物理学报. 2025, 74(9): 093201 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20241792>