

专题: 超快原子分子光物理

基于非绝热半经典模型对氦原子近阈值光电子干涉的研究*

陶建飞 金鑫 吴可非 刘小井†

(上海科技大学, 大科学中心, 上海 201210)

(2025 年 7 月 25 日收到; 2025 年 8 月 21 日收到修改稿)

结合实验与理论研究, 探索了在多光子区域 ($\gamma > 1$) 短脉冲激光作用下氦原子的光电离过程. 通过建立包含隧穿出口处电子初始纵向动量的半经典模型, 模拟了光电子动量分布. 该方法基于费曼路径积分理论框架, 为每条电子轨迹赋予动力学相位, 从而实现了量子干涉效应的研究. 模拟结果与含时薛定谔方程 (TDSE) 数值解高度符合, 同时发现, 初始纵向动量的引入对于精确重现电离阈值附近观测到的光电子干涉结构至关重要, 并揭示出离子实极化对低能谱影响甚微. 本文的研究结果强调了超短脉冲光电离中非绝热势垒下动力学的重要性, 并提供了基于量子轨道的清晰物理图像.

关键词: 非绝热隧穿动力学, 量子轨道干涉, 半经典方法, 近阈值光电子谱

PACS: 32.80.Rm, 42.50.Hz, 33.80.Rv

DOI: 10.7498/aps.74.20250999

CSTR: 32037.14.aps.74.20250999

1 引言

原子与超强超短激光脉冲的相互作用会引发一系列非线性、非微扰的物理现象, 例如阈上电离 (above-threshold ionization, ATI) 和高次谐波产生 (high-order harmonic generation, HHG) 等, 这些现象是阿秒科学的核心研究课题^[1-6]. 末态光电子动量谱 (photoelectron momentum distribution, PMD) 作为信息丰富的可观测量, 详细记录了电子从束缚态到连续态的整个量子过程. 通过解读光电子动量谱中复杂的干涉图样, 可以直接探测亚周期的电子动力学以及靶原子或分子的内在结构.

在光电子动量谱中, 人们已经观测并分析了多种复杂的干涉结构. 最典型的是分立的阈上电离 ATI 环, 它来源于不同激光光学周期内释放的电子

波包之间的干涉. 更为复杂的干涉图样则源于同一光学周期内发射的不同电子轨道间的干涉. 其中, 强场光电子全息 (strong field photoelectron holography, SFPH) 作为近年来发现的新现象具备潜在的应用价值^[7]. 在强场光电子全息中, 直接电离的参考电子波包与被母离子散射的信号电子波包发生干涉, 形成类似全息图的图样, 从而能够高精度地提取结构和动力学信息^[8-14]. 除了已被充分理解的全息“蜘蛛腿”结构外, 在电离阈值附近, 实验中研究人员可以观测到一个复杂的扇形干涉结构^[15]. 这种低能结构确切的物理起源, 尤其是在多光子机制区 (Keldysh 参数 $\gamma \gtrsim 1$), 至今仍是激烈讨论的课题. 该结构中干涉条纹的数量和角分布对激光参数和靶物质种类高度敏感, 这表明其背后存在着多种量子路径之间微妙的相互作用. 因此, 能否精确地模拟这一特征, 是对任何描述强场电离的理论模

* 国家自然科学基金 (批准号: 11574020)、上海市 202 科技创新行动计划国际科技合作项目 (批准号: 22560780300) 和上海科技大学“双一流”建设基金资助的课题.

† 通信作者. E-mail: liuxj@shanghaitech.edu.cn

型的严峻考验。

从理论上讲,描述这些现象的“金标准”是数值求解含时薛定谔方程 (time-dependent Schrödinger equation, TDSE)^[16]. 尽管含时薛定谔方程的结果非常精确,但其计算量巨大,并且常常像一个“黑箱”,难以提供关于背后物理机制的直观理解. 为了获得这种物理洞察,基于“量子轨迹”或“轨道”图像模型变得不可或缺. 例如,强场近似 (strong-field approximation, SFA) 提供了一个计算跃迁振幅的解析框架. 但标准的强场近似理论虽然内禀地包含了非绝热效应,却常常忽略了母离子的长程库仑势,而这对塑造近阈值电子动力学至关重要. 作为替代方案,半经典轨道模型将电离描述为一个两步过程:首先是量子隧穿,然后是光电子在外场以及库仑势作用下作经典演化. 这种模型提供了更直接、更直观的物理图像. 标准的经典轨道蒙特卡罗 (classical trajectory Monte Carlo, CTMC) 模拟虽然采用了这种图像,但由于是纯经典的,无法描述量子干涉^[17,18]. 更重要的是,许多这类基于轨迹的模型都依赖于准静态 (或绝热) 的隧穿模型,该模型假设电子在隧穿出口处瞬时释放,且沿电场方向的初速度为零. 这一近似忽略了电子在势垒下的非绝热演化,而该效应对低能光电子来说影响显著.

本文通过结合实验、含时薛定谔方程模拟以及一个发展并应用的改进半经典轨迹模型,给出了氩原子的近阈值扇形干涉结构在非绝热势垒下动力学的直接体现. 结果表明,在模型中引入隧穿出口处的初始纵向动量,作为这种非绝热演化的一个表征,是本文量子轨迹模拟能够定量地再现所观测干涉图样的关键因素. 通过系统地分解不同量子轨道的贡献,我们为这一现象提供了清晰的物理图像,并精确揭示了垒下相位是如何修正最终的干涉条件的.

2 实验方法

实验装置由钛宝石飞秒激光系统和复合速度成像谱仪 (composite velocity map imaging, CpVMI)^[19] 组成. 激光系统产生中心波长 798 nm、脉宽 35 fs、重复频率 1 kHz 的线偏振脉冲. 激光束经凸透镜 ($f = 30$ cm) 聚焦于 CpVMI 真空腔内的氩气超声束. 激光焦点产生的光电子经静电透镜系

统引导至荧光屏探测器. 记录的光电子图像对应三维动量分布在二维探测平面的投影,通过反阿贝尔变换重构完整三维动量分布^[20]. 实验测量光电子动量分布 (对应动能 ≤ 40 eV 的光电子) 的结果如图 1(a) 所示.

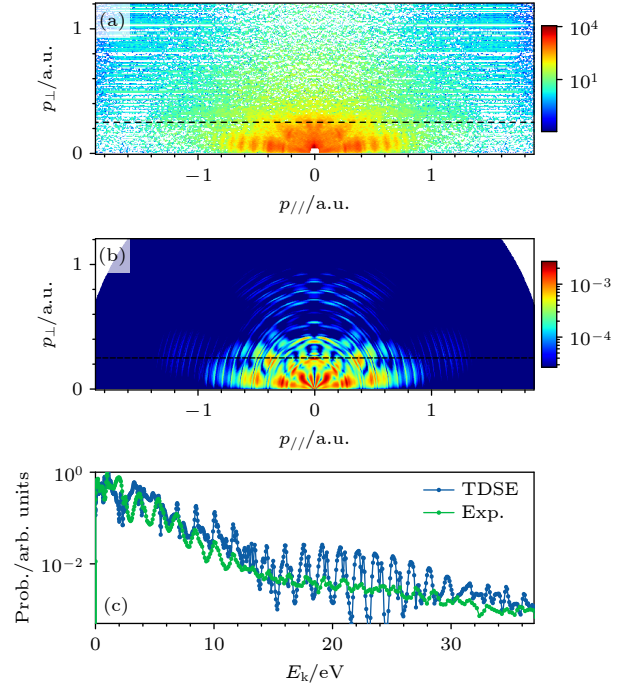


图 1 (a) 实验与 (b) 含时薛定谔方程模拟的氩原子光电子动量分布 (PMD) 对比 (激光参数: 798 nm, 35 fs, 强度 6.3×10^{13} W/cm², 激光偏振沿 $p_{//}$ 轴); (c) 对应光电子能谱 (全发射角积分): 实验 (绿线) 与含时薛定谔方程模拟 (蓝线). 含时薛定谔方程结果已作焦斑体积平均

Fig. 1. Comparison of (a) experimental and (b) TDSE-simulated photoelectron momentum distributions (PMDs) for argon ionized by a 798 nm, 35 fs laser pulse with a laser intensity of 6.3×10^{13} W/cm². The laser polarization is along the $p_{//}$ axis. (c) The corresponding photoelectron energy spectra, integrated over all emission angles, for experiment (green dotted line) and TDSE (blue dotted line). The TDSE results have been focal-volume averaged.

3 理论方法

在单活跃电子 (single active electron approximation, SAE) 近似下,原子在电场 $\mathbf{E}(t)$ 中的长度规范哈密顿量为

$$H(t) = \frac{\mathbf{p}^2}{2} + V(\mathbf{r}) + \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t), \quad (1)$$

式中 $V(\mathbf{r})$ 为活跃电子所受原子势. 其中原子部分 $H_0 = \mathbf{p}^2/2 + V(\mathbf{r})$ 的基态 $|\psi_0\rangle$ 能量为 $\varepsilon_0 = -I_p$ (I_p 为电离能). 本文采用两种理论方法计算光电子

动量分布: 含时薛定谔方程全数值解和带量子相位的经典轨迹蒙特卡罗模型 (CTMC-p). 如无特殊说明, 本文使用原子单位制.

3.1 含时薛定谔方程模拟

采用 QPROP 软件包求解含时薛定谔方程^[21]. 氩原子单活跃电子近似下, 采用文献^[22]的有效模型势:

$$V(r) = -\frac{Z_c + a_1 e^{-a_2 r} + a_3 r e^{-a_4 r} + a_5 e^{-a_6 r}}{r}, \quad (2)$$

其中 $Z_c = 1.0$ 为离子实渐近电荷. 参数 ($a_1 = 16.039$, $a_2 = 2.007$, $a_3 = -25.543$, $a_4 = 4.525$, $a_5 = 0.961$, $a_6 = 0.443$) 经优化可复现氩的 3p 壳层电离能 ($I_p = 0.58$ a.u.). 通过虚时传播获得初始 3p 基态, 随后在激光脉冲作用下进行实时波函数演化 (哈密顿量采用偶极近似). 采用含时表面流法 (t-SURFF)^[23] 从含时演化后的波函数计算最终光电子动量分布.

3.2 半经典模型 CTMC-p

本文的半经典模型是在广泛使用的量子轨道理论框架基础上进行改进和应用的^[24]. 其核心思想是将强场电离建模分为两步过程: 电子隧穿进入连续态, 随后在外场以及原子势共同作用下作经典运动. 受费曼路径积分启发, 我们为每条经典轨迹赋予相位以描述量子干涉. 本文的主要创新在于, 将非绝热隧穿效应 (通过初始纵向动量体现) 和离子实极化效应系统地整合进该模型, 以揭示近阈值干涉的物理起源.

值得注意的是, 虽然 TDSE 模拟依赖于一个经过精心优化的模型势来精确构建初始基态, 本文的半经典模型在描述电子隧穿后的经典演化时, 则采用了简化的长程势 (库仑势及感应偶极势). 这是一种物理上合理且被广泛接受的近似. 其合理性在于, 电离过程的核心量子特性 (如隧穿概率) 主要由系统的电离势 I_p 决定, 而电子一旦进入连续态并远离原子核, 其运动轨迹主要由长程库仑相互作用主导, 复杂的短程作用可以被忽略. 因此, 两个模型通过共享同一个关键物理参数 I_p 而紧密联系在一起, 确保了比较好的有效性.

在 CTMC-p 模型中, 电子 t_0 时刻穿越原子-激光联合势垒, 电离率由 Ammosov-Delone-Krainov (ADK) 公式 $w(t_0)$ 给出^[25]. 虽然 ADK 公式形式推导适用于隧穿区 ($\gamma \ll 1$), 但此处主要用作初始隧

穿时间 t_0 的物理重要性采样函数. 干涉图案的精细结构主要由量子轨道相位决定, 其对电离权重不敏感. 电子初始位置 \mathbf{r}_0 通过抛物坐标系下的势垒方程给出, 垂直偏振方向的动量分量 $\mathbf{v}_{0\perp}$ 服从高斯分布:

$$f(\mathbf{v}_{0\perp}) \propto \exp\left(-\frac{\kappa|\mathbf{v}_{0\perp}|^2}{\epsilon(t_0)}\right), \quad (3)$$

其中 $\kappa = \sqrt{2I_p}$, $\epsilon(t_0)$ 为瞬时激光场强. 已经确认, 虽然该分布的宽度会影响 PMD 的整体角展宽^[26,27], 但本文关于低能干涉瓣数的核心结论, 对该宽度的合理变化是稳健的. 隧穿后电子轨迹由牛顿运动方程主导:

$$\frac{d\mathbf{p}}{dt} = -\epsilon(t) - \nabla U(\mathbf{r}), \quad (4)$$

其中 $\epsilon(t) = -d\mathbf{A}(t)/dt$ 为激光电场, $U(\mathbf{r})$ 为离子实势. N 周期脉冲的矢势形式为 $\mathbf{A}(t) = -\frac{\epsilon_0}{\omega} \sin^2\left(\frac{\omega t}{2N}\right) \times \sin(\omega t + \phi) \mathbf{e}_{\parallel}$, 其中 ϵ_0, ω, ϕ 分别代表激光电场的最大场强、频率以及载波-包络相位. 势函数 $U = U_{\text{Col}} + U_{\text{ID}}$ 包含纯库仑项 $U_{\text{Col}} = -1/r$ 和感应偶极项 (induced dipole potential) $U_{\text{ID}} = -\alpha^I \epsilon(t) \cdot \mathbf{r}/r^3$ (α^I 为离子实极化率)^[28-30].

我们给每条轨迹 k 赋予复振幅 $e^{i\Phi_k}$. 总相位 Φ_k 包含原子初态贡献, 但因所有轨迹源于同一 3p 轨道, 该部分仅为固定相位因子 (计入计算且不影响相对相位差). 光电子轨迹干涉的关键因素是沿路径累积的动力学相位 Φ_d ^[24]:

$$\Phi_d = -\mathbf{v}_0 \cdot \mathbf{r}_0 + I_p(\epsilon(t_0))t_0 - \int_{t_0}^{t_f} \left[\frac{\mathbf{p}(t)^2}{2} + U(\mathbf{r}(t)) - \mathbf{r}(t) \cdot \nabla U(\mathbf{r}(t)) \right] dt + \Phi_{\text{asympt}}, \quad (5)$$

其中 t_f 为脉冲结束时刻. $I_p(\epsilon(t_0)) = I_p + (\alpha^N - \alpha^I) \times \epsilon^2(t_0)/2$ 为斯塔克位移 (Stark-shifted) 电离势 (考虑了中性原子 (α^N) 和离子 (α^I) 的极化率)^[31,32].

本文为描述非绝热势垒下动力学, 采用非零初始纵向速度 (“隧穿偏移速度”) 作为电子出口条件. 采用文献^[33] 中的物理模型: $\mathbf{v}_{0\parallel} = -\mathbf{A}(t_0) \times \left(\sqrt{1 + \gamma_{\text{eff}}^2} - 1\right)$, 其中有效 Keldysh 参数 $\gamma_{\text{eff}} = \omega \times \sqrt{2I_p(\epsilon(t_0)) + |\mathbf{v}_{0\perp}|^2/\epsilon(t_0)}$. 该速度的引入使 (5) 式首项非零, 是本工作的核心要素. 脉冲结束后累积的渐近相位 Φ_{asympt} 根据光电子末态位置以及动量由解析公式计算^[24].

总而言之,在蒙特卡罗模拟中,每一条光电子轨迹的初始条件 $(\mathbf{r}_0, \mathbf{v}_0)$ 是通过以下过程确定的:首先,根据ADK电离率对隧穿时刻 t_0 和初始位置 \mathbf{r}_0 进行概率抽样;其次,根据高斯分布对初始横向动量 $\mathbf{v}_{0\perp}$ 进行抽样;最后,基于已确定的 t_0 和 $\mathbf{v}_{0\perp}$,通过解析公式唯一地计算出初始纵向动量 $\mathbf{v}_{0\parallel}$.

最终动量分布由到达给定动量区间 j 的所有轨迹振幅相干叠加而得:

$$|M_j|^2 = \left| \sum_k e^{i\phi_k} \right|^2, \quad (6)$$

式中的求和覆盖所有终点在 j 区间的轨迹 k .值得注意的是,(6)式中的求和是对所有轨迹进行等权重的相干叠加.不同初始条件的物理权重,是通过在蒙特卡罗抽样过程中采用重要性采样(importance sampling)技术来实现的.即基于ADK电离率和横向动量分布对初始条件进行抽样,使得高概率的事件产生更高密度的轨迹.在本文的模拟中对应每个激光光强计算高达 10^9 条光电子轨迹.

为与聚焦激光束实验数据对比,对单强度模拟进行了焦斑体积平均(focal-volume averaging):

$$\mathcal{P}(\mathbf{p}) = \int_0^{I_{\max}} \frac{\sqrt{I_{\max} - I}(2I + I_{\max})|M_j|^2(I)}{I^{5/2}} dI, \quad (7)$$

其中 I_{\max} 为焦点峰值强度.该积分采用梯形法则数值计算.

4 结果与讨论

4.1 实验与含时薛定谔方程模拟对比

图1展示了激光强度 6.3×10^{13} W/cm²下实验测量(图1(a))、焦斑体积平均含时薛定谔方程模拟(图1(b))的氫原子光电子动量分布,以及对应能谱(图1(c))的对比.二者在关键物理特征上展现了良好的一致性:含时薛定谔方程成功复现了光电子动量谱的整体形状、ATI环位置、平台区特征及低能扇形干涉结构.尽管如此,两者也存在明显的定量差异.实验谱由于探测器的有限分辨率和背景噪声,其精细结构(如ATI环)较为模糊.此外,理论计算中理想化的焦斑体积平均模型也可能与真实的实验条件存在偏差.然而,这种定性及半定量上的一致性,足以验证单活跃电子近似和有效势的可靠性,确立了含时薛定谔方程作为本体系量子基准的地位.下文将采用单强度模拟($I = 5 \times 10^{13}$ W/cm²)以排除焦斑平均带来的模糊效应,

从而更清晰地揭示物理机制.

4.2 初始纵向动量的关键作用

图2通过对比含(图2(b))/不含(图2(c))初始动量的半经典模型低能光电子动量分布,体现了沿激光极化方向初速度的重要作用.激光强度同为 5×10^{13} W/cm²(对应Keldysh参数 $\gamma \approx 1.6$).在此区域($\gamma > 1$),电离通常被视为多光子过程,简单隧穿模型常被认为失效.但本文的模拟结果表明:只要考虑势垒下动力学,半经典模型可扩展至此区域.

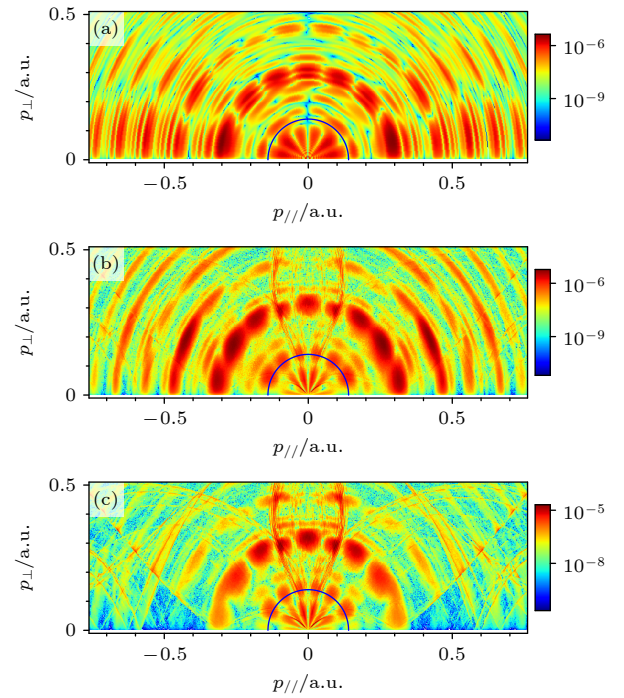


图2 初始纵向动量的关键作用 (a) 单强度含时薛定谔方程模拟基准PMD($I = 5 \times 10^{13}$ W/cm², $\gamma \approx 1.6$); (b), (c) 含与(c)不含隧穿出口初始纵向动量的半经典模拟低能PMD对比.含初始动量的模拟(b)正确复现了TDSE基准(a)的6瓣结构,而未包含的模拟(c)错误预测了8瓣
Fig. 2. The critical role of initial longitudinal momentum: (a) Benchmark PMD from a single-intensity TDSE simulation ($I = 5 \times 10^{13}$ W/cm², $\gamma \approx 1.6$); (b), (c) comparison of low-energy PMDs from semiclassical simulations with (b) and without (c) the inclusion of the initial longitudinal momentum at the tunnel exit. The simulation including the initial momentum (b) correctly reproduces the 6-lobe structure seen in the TDSE benchmark (a), while the simulation without it (c) incorrectly predicts 8 lobes.

从图2可看出,两模拟结果差异显著:含初始纵向动量的PMD(图2(b))呈现清晰的6瓣扇形干涉结构,精确复现含时薛定谔方程基准(图2(a)).相反,不含初始纵向动量的模拟(图2(c))虽定性

相似,但定量失效——预测了错误的瓣数(8瓣).这直接证明:初始纵向动量并非微扰修正,而是正确描述近阈值量子动力学的必要条件.这一显著差异的物理根源在于,初始纵向动量 $v_{0//}$ 通过(5)式中的首项 $-v_0 \cdot r_0$ 对每条轨迹的动力学相位进行了修正.由于不同类型的量子轨道(如4.3节讨论的直接与散射轨道)其初始隧穿位置 r_0 不同,这一相位修正量也不同.这直接改变了不同轨道间的相对相位差,从而重塑了最终的干涉图样,将干涉瓣数从错误的8瓣修正为正确的6瓣.可以看出,半经典模拟结果(图2(b)和图2(c))中布满了TDSE结果中所没有的精细“灯丝状”条纹.这些结构并非数值噪声,而是半经典方法的内在物理特征.其尖锐明亮的部分主要来源于经典焦散(classical caustics),即经典轨迹在动量空间中的汇聚线.在TDSE这样的全量子计算中,电子的波动性会自然地将这些经典奇点平滑成振幅有限的干涉结构.因此,两种方法在精细结构上的差异是符合物理预期的.重要的是,这些高频结构并不影响本文关注的低能区扇形干涉的宏观拓扑性质(即瓣数).

初始纵向动量的引入导致的低能区干涉结构的变化这一发现凸显了非绝热势垒下电子运动效应的重要性.在简单准静态图像中,电子在时空单点以零初始动量瞬时隧穿.实际上,隧穿是非瞬时过程:电子波包穿越势垒时在原子势和振荡激光场联合作用下演化.此非绝热演化使波包出口时具有动量展宽.模型中初始纵向动量正是有限隧穿时间的直接后果.通过引入该参量,考虑到了电子在势垒下运动所获取的关键相位信息.正是具有此初始动量的轨迹间的相干干涉,给出了正确的扇形结构,使该干涉结构成为非绝热隧穿动力学的直接证明.

然而,我们也注意到,尽管本文模型完美复现了决定物理核心的低能干涉瓣数,但随着动能增加,半经典模拟与TDSE在更高阶ATI环的强度分布上开始出现偏差(如图2所示).这种偏差主要源于本文半经典模型中对初始电离步骤的简化处理.例如,模型采用ADK公式作为电离率的重要采样函数,而TDSE则内禀地包含了从精确3p初态出发的完整量子电离过程,这导致两者对不同能量区域的电离概率权重有内在差异.尽管存在这种在较高能区的定量差异,本文模型成功捕捉了决定低能干涉结构拓扑性质(即瓣数)的关键相位关系,这清晰地证明了非绝热初始动量是理解该现象

的核心物理,而这正是本文的焦点.

4.3 非绝热相位修正的轨迹起源

基于轨迹的模型为理解干涉结构的物理起源提供直观框架.干涉源于相同末态动量的多条不可区分量子轨迹振幅的相干叠加.动力学相位 Φ_d ((5)式)是主导干涉的核心要素.

考虑库仑势存在条件下,轨迹可根据初末条件分为四类(基于极化轴初始隧穿坐标 z_0 , 沿极化轴平行方向末态动量 p_z^f 及初末横向动量 p_\perp^0, p_\perp^f):

I类(“直接”): $z_0 p_z^f > 0, p_\perp^0 \cdot p_\perp^f > 0$. 电子隧穿后直接抵达探测器,库仑作用微弱.

II类(前向散射): $z_0 p_z^f < 0, p_\perp^0 \cdot p_\perp^f > 0$. 电子被拉回离子实但向前散射.

III类(“glory”散射): $z_0 p_z^f < 0, p_\perp^0 \cdot p_\perp^f < 0$. 电子返回离子实经历前向散射事件,末态动量在离子坐标系中近乎与初态反向,导致 p_\perp 反转及振幅沿 $p_\perp \approx 0$ 轴的强聚焦.此为强场光电子全息中的信号(signal)轨道.该分类的名称来源于强场光电子全息的glory散射诠释^[34-36].

IV类(背散射): $z_0 p_z^f > 0, p_\perp^0 \cdot p_\perp^f < 0$. 电子被驱动越过离子实后拉回,以大角度散射.主要贡献于高能区.

前期工作表明II类与III类干涉产生强场光电子全息SFPH特征蜘蛛腿状图案.而近阈值扇形结构的起源更为复杂^[15].

为了定位引入初始纵向动量导致的光电子近阈值干涉结构变化的来源,本文选择性地绘制了不同光电子轨迹对相互干涉给出的光电子谱.图3展示了第I+II类轨道对(图3(a),图3(b))和第II+III类轨道对(图3(c),图3(d))之间的干涉.可以通过考虑干涉量子轨道间的相对相位来定性解释这些现象.总相位差可以表示为 $\Delta\Phi \approx \Delta\Phi_{\text{initial}} + \Delta\Phi_{\text{action}} + \Delta\Phi_{\text{Coulomb}}$, 其中由初始纵向动量引起的项为 $\Delta\Phi_{\text{initial}} \approx -2v_{0//} \cdot r_0$, $\Delta\Phi_{\text{action}}$ 表示未引入初始纵向动量对应的轨道相位差.对于第I类和第II类(直接和前向散射)轨迹的干涉,两条轨道的运动轨迹都未曾近距离接近离子实,因此库仑势对其轨迹的扰动很小,各自累积的库仑相位 Φ_{Coulomb} 都很小,从而使得它们之间的相位差 $\Delta\Phi_{\text{Coulomb}}$ 也相应很小.此外,由于隧穿最可能发生在电场峰值附近,此时矢量势 $\mathbf{A}(t_0)$ (以及 $v_{0//}$) 很小,因此 $\Delta\Phi_{\text{initial}}$

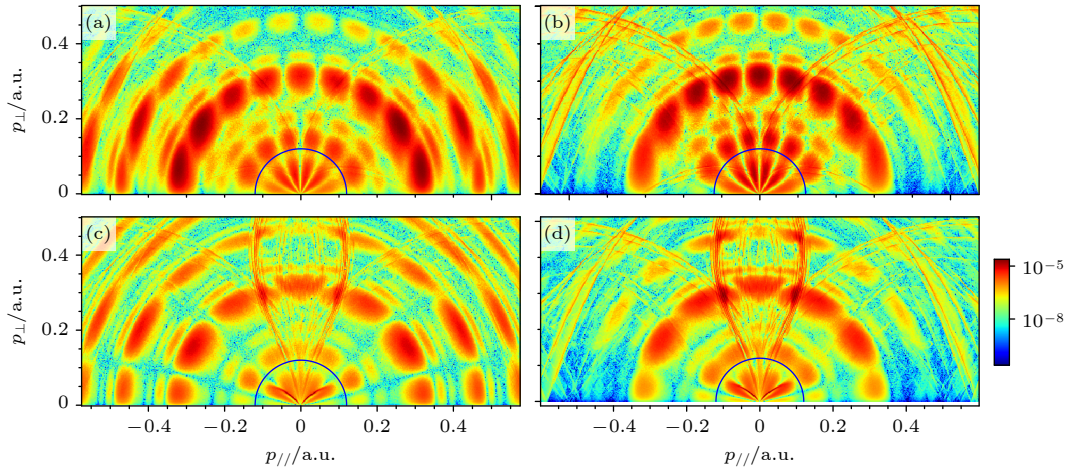


图 3 干涉机制解析. 仅 (a), (b) I + II 类 (“直接”与前向散射) 和 (c), (d) II + III 类 (全息对) 干涉的 PMD. 图 (a) 和 (c) 含初始纵向动量, 图 (b) 和 (d) 不含. I + II 类干涉的扇形结构基本不受初始动量影响, 而主导 SFPH 的 II + III 类干涉同样稳健

Fig. 3. Dissection of interference mechanisms. PMDs showing interference between only (a), (b) Categories I and II (“direct” and forward-scattered) and (c), (d) Categories II and III (holographic pair). Panels (a) and (c) include the initial longitudinal momentum, while (b) and (d) do not. The fanlike structure from I + II interference is largely unaffected by the initial momentum, whereas the II + III interference, responsible for SFPH, is also robust.

的贡献也很小. 所以, 最终的干涉图样受到是否包含 $v_{0//}$ 的影响不大, 如图 3(a) 和图 3(b) 所示.

再来看第 II 类和第 III 类轨迹之间的干涉. 这两条再散射轨道是众所周知的强场光电子全息 (SFPH) 蜘蛛腿图样的主要贡献者. 轨迹 III 是一条经典的 “glory 散射” 轨道, 它与前向散射轨道 II 的干涉产生了全息条纹, 在激光偏振方向 ($p_{\perp} \approx 0$) 上最为显著. 至关重要, 这两条轨道起始于同一光学半周期内几乎相同的时刻 ($t_{0,II} \approx t_{0,III}$) 和位置, 并且它们后续的动力学过程非常相似. 由于它们的隧穿位置以及时刻几乎相同, 由初始态引起的相位差 $\Delta\Phi_{\text{initial}}$ 可以忽略不计. 因此, 初始纵向动量对这两条轨道的作用是一个微小的扰动, 在其相位差中大部分被抵消了. 所以, 总相位差 $\Delta\Phi_{23}$ 主要由它们在最接近母核离子处获得的库仑散射相移之差决定. 因此最终的光电子全息结构对是否包含初始纵向动量表现出极强的稳健性, 我们的数值模拟也证实了这一点 (图 3(c), 图 3(d)).

而对于第 I 类 (直接) 和第 III 类 (“glory” 散射) 轨迹之间的干涉, 情况则截然不同. 这两条轨道差异巨大: 一条是直接电离轨迹, 经历微弱的库仑相互作用; 另一条则被原子势前向散射. 这导致了一个很大的、内禀的库仑相位差 $\Delta\Phi_{\text{Coulomb}}$, 它主要来源于两条迥异路径的经典作用量积分 $\int_{t_0}^{t_f} [p(t)^2/2 + U(r(t))]dt$ 的差异. 在这种情况下, 初始相位项不存在抵消, 即使引入一个很小的 $\Delta\Phi_{\text{initial}} =$

$-2v_{0//} \cdot \mathbf{r}_0$ 也会对总相位差 $\Delta\Phi_{13}$ 造成显著的扰动. 这一相移足以在某些角度将干涉条件从相长变为相消, 从而导致了图 4 中观察到的强烈变化. 这一分析精确地指出了, 直接轨道和 “glory” 散射轨道

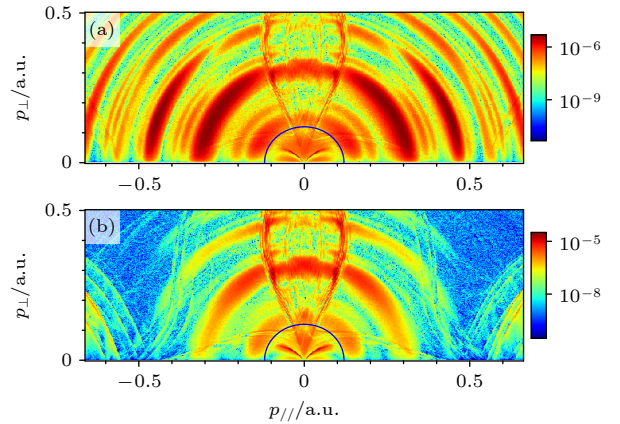


图 4 修正后干涉图案的物理起源, 仅 I 类 (“直接”) 与 III 类 (“glory” 散射) 轨迹干涉的 PMD (a) 含初始纵向动量; (b) 不含初始纵向动量. 可以看出显著不同: 含初始动量时 (图 (a)) 在约 30° 处正确产生干涉极小 (错误模型 (图 (b)) 在此形成明显凸瓣). 此特定修正改变了完整 PMD 的总瓣数

Fig. 4. Physical origin of the corrected interference pattern. PMDs arising from the interference of only Category I (“direct”) and Category III (“glory” scattered) trajectories, calculated (a) with and (b) without the initial longitudinal momentum. A dramatic change is visible: including the initial momentum (panel (a)) correctly creates an interference minimum along the angle where the incorrect model (panel (b)) produced a prominent lobe (approximate 30°). This specific change is what corrects the overall lobe count in the full PMD.

的干涉, 是让非绝热势垒下动力学效应在近阈值光电子动量分布中得以显现的关键机制.

4.4 感应偶极势的作用

在确定了非绝热隧穿动力学是理解近阈值附近光电子轨迹干涉的关键后, 接下来考察另一个可能影响电子轨迹的多体物理效应——离子实极化, 以评估其相对重要性. 在真实的原子中, 激光场会动态地极化离子实, 对出射电子产生一个额外的作用力. 在本文的半经典模型中, 这一效应可以通过感应偶极势 U_{ID} 来经典地描述. 值得注意的是, 本文用作基准的 SAE-TDSE 计算, 由于其固有的“冻结核”近似, 本身并未包含这一动态极化过程.

为了清晰地展示 U_{ID} 的影响, 图 5 聚焦于较高能再散射区域. 图 5(a) 和图 5(b) 分别展示了 TDSE

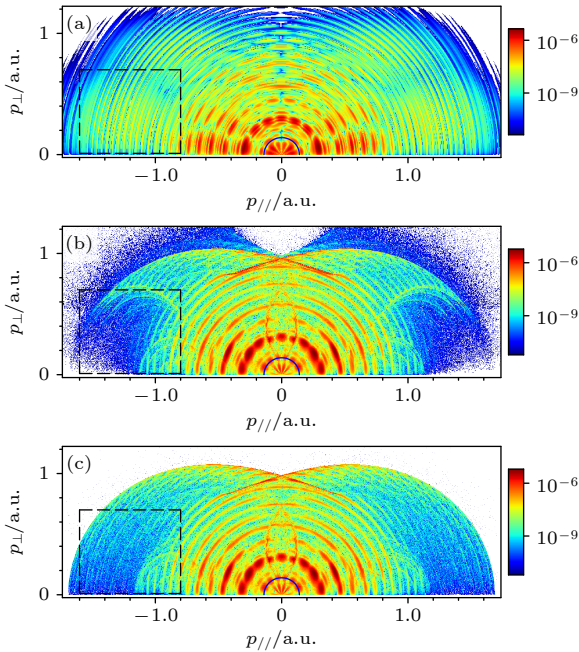


图 5 感应偶极势对较高能再散射结构的影响 (a) 含时薛定谔方程 (TDSE) 模拟 (图 2(a) 放大图); (b) 不含感应偶极势的半经典模拟 ($v_{0//} \neq 0, U_{ID} = 0$) (图 2(c) 放大图); (c) 包含感应偶极势的非绝热半经典模拟 ($v_{0//} \neq 0, U_{ID} \neq 0$). 对比可见, 引入 U_{ID} 显著抑制了纯库仑势导致的尖锐焦散结构, 使结果 (图 (c)) 在定性上更接近 TDSE 基准 (图 (a))

Fig. 5. Role of the induced dipole potential on high-energy rescattering structures: (a) The TDSE simulation (zoom-in of Fig. 2(a)); (b) the semiclassical simulation without induced dipole potential ($v_{0//} \neq 0, U_{ID} = 0$) (zoom-in of Fig. 2(c)); (c) results from the non-adiabatic semiclassical simulation including the induced dipole potential ($v_{0//} \neq 0, U_{ID} \neq 0$). The comparison shows that including U_{ID} significantly suppresses the sharp caustics caused by the pure Coulomb potential, making the result in panel (c) qualitatively closer to the TDSE benchmark in panel (a).

基准与纯库仑模型 ($v_{0//} \neq 0, U_{ID} = 0$) 的结果. 可以看到, 纯库仑模型 (图 5(b)) 产生了由硬库仑势导致的、非常尖锐的焦散 (caustics) 结构 (黑框)^[37], 这与 TDSE 基准 (图 5(a)) 明显不符. 然而, 当在完整的非绝热模型中加入感应偶极势 U_{ID} 后 (图 5(c)), 这些不符合物理的焦散结构被显著抑制, 使得结果在定性上更接近 TDSE 基准.

这并非偶然, 它揭示了一个深刻的物理事实: 对于较高能再散射电子, 纯粹的 $-1/r$ 势是一个不充分的描述. 本文的 CTMC-p 模型通过引入物理意义明确的动态极化项, SAE-TDSE 模型通过其复杂的、非库仑的短程有效势, 都各自从不同途径部分地描述了近核区相互作用的复杂性, 从而均得到了比纯库仑模型更物理的结果. 尽管如此, 对比完整的 PMD (如图 5 所示), 这一效应对我们关注的低能扇形干涉结构影响甚微. 这最终证实, 虽然离子实极化对于精确描述较高能电子至关重要, 但它并非近阈值扇形结构的决定性因素.

5 结论

本文通过综合实验与理论研究, 探索了氩原子在多光子区域的光电离过程. 通过发展并应用关联量子相位与经典电子轨迹的精密半经典模型, 揭示了近阈值扇形干涉结构的关键物理机制. 本文的主要发现是, 隧穿出口处光电子初始纵向动量的引入, 对精确复现实验和含时薛定谔方程模拟基准结果至关重要. 该初始动量源于非瞬时隧穿过程中的非绝热势垒下动力学, 修正了干涉瓣数预测值, 使半经典模型与全量子模拟定量符合. 相比之下, 离子实极化效应虽对高能电子重要, 但对低能干涉图案影响甚微.

基于轨道的模型为复杂的量子干涉现象提供了一个直观的物理图像. 通过将干涉分解为来自不同量子轨道的贡献, 精确指出了相位修正的来源, 即直接轨道和“glory”散射轨道之间的相位关系. 这项工作不仅为阈下动力学的重要性提供了直接证据, 也展示了当这些效应被恰当包括进来后, 半经典方法的预测能力可以得到极大的扩展. 本文获得的物理洞察为未来的研究奠定了坚实的基础, 包括将此模型扩展到更复杂的分子体系, 以及应用于从全息图中解析轨道信息等前沿课题.

感谢中国工程物理研究院研究生院刘杰教授富有启发性的学术讨论, 感谢上海科技大学高性能计算共享服务平台的支持.

参考文献

- [1] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [2] Pazourek R, Nagele S, Burgdörfer J 2015 *Rev. Mod. Phys.* **87** 765
- [3] Agostini P, Fabre F, Mainfray G, Petite G, Rahman N K 1979 *Phys. Rev. Lett.* **42** 1127
- [4] Paulus G G, Nicklich W, Xu H, Lambropoulos P, Walther H 1994 *Phys. Rev. Lett.* **72** 2851
- [5] Krause J L, Schafer K J, Kulander K C 1992 *Phys. Rev. Lett.* **68** 3535
- [6] Walker B, Sheehy B, DiMauro L F, Agostini P, Schafer K J, Kulander K C 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 1227
- [7] Huismans Y, Rouzée A, Gijsbertsen A, Jungmann J H, Smolkowska A S, Logman P S W M, Lépine F, Cauchy C, Zamith S, Marchenko T, Bakker J M, Berden G, Redlich B, van der Meer A F G, Muller H G, Vermin W, Schafer K J, Spanner M, Ivanov M Y, Smirnova O, Bauer D, Popruzhenko S V, Vrakking M J J 2011 *Science* **331** 61
- [8] He M, Li Y, Zhou Y, Li M, Cao W, Lu P 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 133204
- [9] Xie W, Yan J, Li M, Cao C, Guo K, Zhou Y, Lu P 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 263202
- [10] Li M, Xie H, Cao W, Luo S, Tan J, Feng Y, Du B, Zhang W, Li Y, Zhang Q, Lan P, Zhou Y, Lu P 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 183202
- [11] Tao J F, Cai J, Xia Q Z, Liu J 2020 *Phys. Rev. A* **101** 043416
- [12] Tao J F, Xia Q Z, Liao L G, Liu J, Liu X J 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 233206 (in Chinese) [陶建飞, 夏勤智, 廖临谷, 刘杰, 刘小井 2022 物理学报 **71** 233206]
- [13] Huang X F, Su J, Liao J Y, Li Y B, Huang C 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 093202 (in Chinese) [黄雪飞, 苏杰, 廖健颖, 李盈侯, 黄诚 2022 物理学报 **71** 093202]
- [14] He M, Fan Y, Zhou Y, Lu P 2021 *Chin. Phys. B* **30** 123202
- [15] Wang T, Dube Z, Mi Y, Vampa G, Villeneuve D M, Corkum P B, Liu X, Staudte A 2022 *Phys. Rev. A* **106** 013106
- [16] Muller H G 1999 *Phys. Rev. A* **60** 1341
- [17] Hu P B, Liu J, Chen S G 1997 *Phys. Lett. A* **236** 533
- [18] Liu J, Xia Q Z, Tao J F, Fu L B 2013 *Phys. Rev. A* **87** 041403
- [19] Ding B, Xu W, Wu R, Feng Y, Tian L, Li X, Huang J, Liu Z, Liu X 2021 *Appl. Sci.* **11** 10272
- [20] Hickstein D D, Gibson S T, Yurchak R, Das D D, Ryazanov M 2019 *Rev. Sci. Instrum.* **90** 065115
- [21] Tulskey V, Bauer D 2020 *Comput. Phys. Commun.* **251** 107098
- [22] Tong X M, Lin C D 2005 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **38** 2593
- [23] Tao L, Scrinzi A 2012 *New J. Phys.* **14** 013021
- [24] Shvetsov-Shilovski N I, Lein M, Madsen L B, Räsänen E, Lemell C, Burgdörfer J, Arbó D G, Tókesi K 2016 *Phys. Rev. A* **94** 013415
- [25] Delone N B, Krainov V P 1991 *J. Opt. Soc. Am. B* **8** 1207
- [26] Arissian L, Smeenk C, Turner F, Trallero C, Sokolov A V, Villeneuve D M, Staudte A, Corkum P B 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 133002
- [27] Dreissigacker I, Lein M 2013 *Chem. Phys.* **414** 69
- [28] Shvetsov-Shilovski N I, Dimitrovski D, Madsen L B 2012 *Phys. Rev. A* **85** 023428
- [29] Dimitrovski D, Maurer J, Stapelfeldt H, Madsen L B 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 103005
- [30] Kang H P, Xu S P, Wang Y L, Yu S G, Zhao X Y, Hao X L, Lai X Y, Pfeifer T, Liu X J, Chen J, Cheng Y, Xu Z Z 2018 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **51** 105601
- [31] Etches A, Madsen L B 2010 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **43** 155602
- [32] Bristow M P F, Glass I I 1972 *Phys. Fluids* **15** 2066
- [33] Li M, Geng J W, Han M, Liu M M, Peng L Y, Gong Q, Liu Y 2016 *Phys. Rev. A* **93** 013402
- [34] Tao J F, Xia Q Z, Cai J, Fu L B, Liu J 2017 *Phys. Rev. A* **95** 011402
- [35] Xia Q Z, Tao J F, Cai J, Fu L B, Liu J 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 143201
- [36] Liao L G, Xia Q Z, Cai J, Liu J 2022 *Phys. Rev. A* **105** 053115
- [37] Möller M, Meyer F, Saylor A M, Paulus G G, Kling M F, Schmidt B E, Becker W, Milošević D B 2014 *Phys. Rev. A* **90** 023412

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

Revisiting near-threshold photoelectron interference in argon with a non-adiabatic semiclassical model*

TAO Jianfei JIN Xin WU Kefei LIU Xiaojing[†]

(Center for Transformative Science, ShanghaiTech University, Shanghai 201210, China)

(Received 25 July 2025; revised manuscript received 21 August 2025)

Abstract

Purpose: The interaction of intense, ultrashort laser pulses with atoms gives rise to rich non-perturbative phenomena, which are encoded within the final-state photoelectron momentum distribution (PMD). A particularly enigmatic feature often observed in the multiphoton ionization regime (Keldysh parameter $\gamma \gtrsim 1$), is a complex, fan-like interference pattern in the near-threshold, low-energy region of the PMD. The physical origin of this structure has been a subject of extensive debate, with proposed mechanisms ranging from multipath interference in the Coulomb field to complex sub-barrier dynamics. This work aims to provide a physical explanation for this phenomenon. We hypothesize and demonstrate that this fan-like structure is not only the consequence of Coulomb focusing, but also a direct and sensitive signature of non-adiabatic dynamics occurring as an electron tunnels through the laser-dressed atomic potential barrier. Our goal is to clearly separate the key physical ingredients responsible for shaping this quantum interference.

Methodology: To achieve this, we employ a synergistic three-pronged approach that combines experiment, exact numerical simulation, and a sophisticated theoretical model.

1. **Experiment:** We perform velocity-map imaging measurements on argon atoms ionized by a 798-nm 35-fs laser pulse at a peak intensity of 6.3×10^{13} W/cm², and the experimental results clearly show the low-energy fan-like interference pattern.

2. **Quantum Benchmark:** We solve the time-dependent Schrödinger equation (TDSE) within the single-active-electron (SAE) approximation by using a well-established model potential for argon, which accurately reproduces its ionization potential and ground-state properties. After performing a focal-volume average to simulate experimental conditions, the TDSE results show excellent qualitative agreement with the measurements, establishing the TDSE as a reliable quantum benchmark for our investigation.

3. **Semiclassical Model (CTMC-p):** The core of our analysis relies on a custom-developed semiclassical trajectory model based on the Feynman path-integral formulation. In this framework, ionization process is divided into two steps: (i) an electron tunnels through the potential barrier at an initial time t_0 and position \mathbf{r}_0 , and (ii) it propagates classically in the combined laser and ionic fields according to Newton's equations. Crucially, each trajectory is endowed with a quantum phase accumulated along its path, Φ_k , allowing for the coherent summation of all trajectories ending with the same final momentum, $M_j = \sum_k e^{i\Phi_k}$. Our model combines two critical physical effects beyond standard treatments:

- **Non-Adiabatic Tunneling:** We introduce a non-zero initial longitudinal momentum, $v_{0//} = -A(t_0) \times (\sqrt{1 + \gamma_{\text{eff}}^2} - 1)$, acquired by the electron at the tunnel exit. This term accounts for the non-instantaneous nature of the tunneling process, a key non-adiabatic effect.

- **Core Polarization:** We include an induced dipole potential, $U_{\text{ID}} = -\alpha^1 \mathbf{E}(t) \cdot \mathbf{r}/r^3$, to model the dynamic polarization of the Ar⁺ ionic core, a multi-electron effect.

By selectively including or excluding these effects, we can clearly isolate their respective contributions to the final PMD.

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11574020), the STCSM Fund of Shanghai, China (Grant No. 22560780300), and the Double First-Class Initiative Fund of ShanghaiTech University, China.

[†] Corresponding author. E-mail: liuxj@shanghaitech.edu.cn

Results: Our central finding is that the non-adiabatic initial longitudinal momentum is the decisive factor for correctly describing the near-threshold interference. The benchmark TDSE calculation for a single intensity of 5×10^{13} W/cm² ($\gamma \approx 1.6$) reveals a distinct 6-lobe interference pattern. A traditional semiclassical simulation based on the quasi-static tunneling approximation (i.e., setting $v_{0//} = 0$) qualitatively fails, predicting an incorrect 8-lobe structure. However, upon including the non-zero initial longitudinal momentum ($v_{0//} \neq 0$), our non-adiabatic semiclassical model quantitatively reproduces the correct 6-lobe structure, showing that it is in excellent agreement with the TDSE benchmark.

To understand the underlying physics, we perform a quantum-orbit decomposition. This analysis reveals that the overall fan-like structure arises from the interference of multiple trajectory types, including “direct” (Category I), “forward-scattered” (Category II), and “glory-scattered” (Category III) orbits. Although the entire structure arises from the collective interference of these paths, we pinpoint the origin of the lobe-count correction. The initial longitudinal momentum contributes a phase term, $\Delta\Phi_{\text{initial}} \approx -\mathbf{v}_{0//} \cdot \mathbf{r}_0$, to the total accumulated action. We find that the relative phase between the “direct” and “glory” trajectories is exquisitely sensitive to this term due to their vastly different paths and birth conditions. It is this specific and dramatic change in the I - III interference channel that ultimately corrects the topology of the entire pattern, reducing the lobe count from 8 to 6. In contrast, other interference pairs, such as the holographic pair II - III, are largely robust against this effect as their nearly identical birth conditions cause the initial phase term to cancel out in their relative phase. In parallel, our simulations show that the ionic core polarization has a negligible effect on this low-energy structure, but is essential for accurately describing higher-energy rescattering features by smoothing unphysical caustics caused by a pure Coulomb potential.

Conclusion: We demonstrate clearly that the near-threshold fan-like interference pattern in the multiphoton regime is a direct manifestation of non-adiabatic dynamics during tunneling, specifically the acquisition of a longitudinal momentum component by the electron during its finite-time passage under the potential barrier. Our findings not only provide a clear, intuitive, and orbit-based physical picture for this complex quantum phenomenon but also highlight the predictive power of semiclassical methods when crucial non-adiabatic effects are properly incorporated. This understanding lays a foundation for future investigations, including the extension of this model to more complex molecular systems and its application in retrieving attosecond electron dynamics from holographic interference patterns.

Keywords: non-adiabatic tunneling dynamics, quantum orbit interference, semiclassical method, near-threshold photoelectron spectra

PACS: 32.80.Rm, 42.50.Hz, 33.80.Rv

DOI: [10.7498/aps.74.20250999](https://doi.org/10.7498/aps.74.20250999)

CSTR: [32037.14.aps.74.20250999](https://cstr.net.cn/detail/32037.14.aps.74.20250999)

基于非绝热半经典模型对氩原子近阈值光电子干涉的研究

陶建飞 金鑫 吴可非 刘小井

Revisiting near-threshold photoelectron interference in argon with a non-adiabatic semiclassical model

TAO Jianfei JIN Xin WU Kefei LIU Xiaojing

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 74, 213201 (2025) DOI: 10.7498/aps.74.20250999

CSTR: 32037.14.aps.74.20250999

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250999>

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

MoS₂中S原子空位形成的非绝热动力学研究

Non-adiabatic dynamic study of S vacancy formation in MoS₂

物理学报. 2023, 72(22): 226101 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230787>

Rice-Mele拓扑泵浦模型中的非绝热演化理论研究

Theoretical study of non-adiabatic evolution in Rice-Mele topological pumping model

物理学报. 2025, 74(14): 144201 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250485>

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>

绝热表象下非绝热分子动力学方法

Nonadiabatic molecular dynamics under adiabatic representation

物理学报. 2024, 73(14): 140201 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240401>

高能分辨光电子干涉仪研究进展

Research progress of high-energy-resolution photoelectron interferometer

物理学报. 2025, 74(15): 150702 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250534>

五氟吡啶激发态非绝热弛豫过程中的分子结构

Molecular structures in the non-adiabatic relaxation processes of excited states of pentafluoropyridine

物理学报. 2024, 73(4): 043101 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20231570>