

专题: 超快强激光驱动原子分子过程

编者按 利用光与物质相互作用是人类探索微观物质结构及运动规律的重要手段. 飞秒强激光技术的出现与发展为揭示极端强场条件下的原子物理新现象、新效应, 认识分子、原子及其内部电子的超快运动规律提供了强有力的技术手段和研究条件. 超快强激光驱动原子分子过程的研究进展还直接推动了新兴学科领域——阿秒科学的发展, 强激光驱动原子分子的高次谐波辐射已成为产生极紫外阿秒光源的重要途径, 利用强场电离及高次谐波产生过程可实现对分子结构及动力学的超快成像, 在原子级时间与空间尺度上的电子调控已成为可能.

“超快强激光驱动的原子分子过程”专题结合对超快强激光驱动的原子分子电离、高次谐波产生、中性里德堡态原子产生及分子解离等基本物理过程的研究, 介绍该领域的一些基本理论方法、实验技术以及研究成果, 以帮助读者了解该研究领域的最新进展, 推动对超快强激光与原子分子相互作用相关研究的进一步深入.

(客座编辑: 中国科学院武汉物理与数学研究所 柳晓军)

强激光场中原子单电离的半经典方法*

肖相如¹⁾ 王慕雪¹⁾ 黎敏²⁾ 耿基伟¹⁾ 刘运全¹⁾³⁾ 彭良友^{1)3)†}

1) (北京大学物理学院, 人工微结构和介观物理国家重点实验室, 北京 100871)

2) (华中科技大学, 武汉光电国家实验室和物理学院, 武汉 430074)

3) (量子物质科学协同创新中心, 北京 100871)

(2016年9月9日收到; 2016年10月25日收到修改稿)

随着激光器技术的发展, 实验室中可获得的激光场强度不断增大, 可以观测到各种高度非线性的实验现象, 比如原子分子中的电子可以从强激光场中吸收比克服电离能需要的光子数更多的光子而发生电离, 被称为阈上电离. 这些非线性现象向量子力学的微扰理论提出了挑战, 而精确求解含时薛定谔方程的方法只局限在少数的简单原子或分子, 并且计算复杂. 在这种情形下, 基于电子轨迹的半经典理论由于其物理过程清晰、计算简单等优点应运而生, 在强场光电离领域已经广泛应用. 本文从原子分子电离的经典描述出发, 介绍了半经典理论的发展. 半经典理论结合了量子力学隧穿效应、电子经典的轨道描述以及量子的相位信息, 能够很好地解释在强场隧穿区的各种实验现象. 文中重点介绍两种已经发展得较为成熟的半经典方法, 即量子轨道蒙特卡罗方法 (quantum trajectory Monte Carlo) 和库仑修正下的强场近似方法 (Coulomb-corrected strong field approximation). 这两种方法的优点在于同时考虑了电子轨迹的库仑势作用以及电子轨迹之间的干涉效应, 能够通过追踪电子的运动轨迹对电离电子动量谱中各种结构的形成给出直观清晰的解释.

关键词: 强激光场, 原子光电离, 半经典方法

PACS: 02.70.-c, 31.15.xg

DOI: 10.7498/aps.65.220203

* 国家自然科学基金 (批准号: 11574010, 11322437) 和国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2013CB922402, 2013CB922403) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: liangyou.peng@pku.edu.cn

1 引言

光电效应是最常见、最基础的光与物质相互作用过程之一。爱因斯坦因一个多世纪前成功解释了光电效应而获得诺贝尔物理学奖。爱因斯坦认为,光能量应该是一份一份的,每一份光能量被称之为一个光子。束缚在原子核中的电子只能吸收一个光子的能量发生跃迁,当光子的能量大于被束缚电子的能量时,电子将吸收一个光子而发生逃逸,即发生光电离。事实上,该理论并没有否认电子吸收多个光子的可能性,利用低阶微扰理论可以预言电子可吸收两个光子发生电离^[1,2]。只是就当时的实验条件而言,光源的光强普遍偏低,这种光强下的物理现象都呈线性,因此爱因斯坦所描述的电子一次吸收一个光子几乎无一例外都是成立的。自20世纪60年代第一台红宝石激光器诞生^[3]以来,激光光源的发展迅猛。光强很高是激光光源的特点之一,并且结合不同的技术,激光光强还在不断提高^[4]。由于光源光强的大大增强,其与物质相互作用产生了许多非线性的物理现象,Voronov等^[5,6]和Agostini等^[7]先后在实验上观察到了多光子电离现象(multi-photon ionization, MPI),发现被电离的电子产率与光强成指数关系。这些实验中采用的激光为红外光,其单个光子能量小于原子的电离能,然而实验中却观察到了电子被电离,这种现象可以沿用光量子理论唯像解释。在高光强下,光子数密度极大,使得电子不再仅仅只能吸收一个光子,而是有很大的概率能够同时吸收多个光子的能量而发生电离。随着实验室激光峰值功率进一步增加,1979年,Agostini等^[8]首次在Xe原子的电离实验中观测到了阈上电离现象(above threshold ionization, ATI),即电子吸收了比克服电离能需要的光子数更多的光子,从而在电子的能量谱上形成以光子能量为间隔的峰状结构,这些峰状结构也被称之为阈上电离峰。后续不断有实验观测电子的阈上电离,随着实验条件的改善,更高阶的阈上电离峰变得明显,甚至出现了更高阶阈上电离峰强度大于低阶峰的情况。然而唯像的光量子理论认为,同时吸收更多光子的概率总是会少于吸收少光子的概率,因此显然已不再适用于解释这些实验现象。

我们不得不摒弃简单光量子理论,从而寻求更精确的描述。光量子理论的提出,开拓了人们的

思维,让人们意识到世界可能不是连续的。不久之后,20世纪最伟大的理论之一——量子力学理论诞生。从现在看来,量子力学能够解释绝大多数原子分子尺度的微观物理现象,电子电离现象便是其中之一。量子力学中的电子状态用波函数描述,被束缚在原子中的电子稳定地处于原子哈密顿量的本征态上。若外加电磁场,系统哈密顿量会出现电子与电磁场相互作用项。随着时间的演化,电子波函数将偏离原子本征态,并包含束缚态和连续态成分,而处于连续态的电子则可看成被电离的自由电子。这样,量子力学提供了一套系统的方法,通过求解含时薛定谔方程得到电子波函数的演化,从而获得被电离电子的概率即电离率,又或者更细致地得到不同能量或动量的电子概率,即电子能量谱或动量谱。然而求解含时薛定谔方程并非一项简单的任务,方程本身没有精确的解析解,只能借助于计算机数值求解。事实上迄今为止,即使是借助计算机集群,也仅仅只能精确求解非常少的电子(两个左右)的原子分子系统的含时薛定谔方程,而对于多体系统,必须做或多或少的近似才能够进行数值计算。这也是人们不断建立简单模型的原因,简便快捷地得出有效结果的方法显然更受欢迎。

在没有计算机的年代,人们在使用量子力学理论进行计算时需要采取各种合理的近似才能得到在一定条件下适用的结果。对于强场下的电离现象,1964年,Keldysh^[9]提出了一个独到的想法。在计算初态到末态的跃迁矩阵元时,把末态用电磁场中的自由电子态近似,忽略末态库仑势的影响。这样做的理由是被电离的电子感受到的库仑力相比外电场可以忽略,因而此方法被后人称作强场近似。Keldysh理论不仅能给出强场下电子电离概率的规律,还能预测出非微扰电离现象,比如ATI峰。但由于当时激光器刚起步,激光光强不足以达到要求,无法在实验上观察到更多的现象,Keldysh理论的价值暂时被埋没了。直到1979年ATI现象才首次在实验上得以证实。在1973年和1980年,Faisal^[10]和Reiss^[11]分别依据相同的出发点,在速度规范下计算初态到末态的跃迁矩阵元,得到了用贝塞尔函数展开的跃迁矩阵元解析表达式。之后借助啁啾放大技术^[4],激光光强达到了Keldysh预言的透穿区,Keldysh,Faisal和Reiss的理论(KFR理论)开始被广泛用于解释这种激光条件下的实验现象。随着短激光脉冲、库仑势效应修正等多种

情形的考虑, KFR 理论日趋完善, 由此发展出来的方法可统一称为强场近似方法. 另一方面, 1966 年, Perelomov 等^[12]利用另外的方法, 计算了电子在短程势下任意束缚态的电离率 (PPT 率). 这个方法得到了与 Keldysh 相同的指数项, 并且给出了指数前因子的解析表达式. PPT 理论还得到了原子库仑势系统在非绝热条件下的电离率. 1986 年, Ammosov 等^[13]利用准静条件, 将 PPT 率的表达式化简, 得到在绝热近似下的原子电离率 (ADK 率). 这些早期的工作为后来的半经典理论打下了坚实的基础, 也成为强场领域不可或缺的根本.

本文着重介绍原子体系单电子电离的半经典方法. 此处的半经典是指用经典的图像描述电子运动, 并给经典粒子赋予非经典的相位信息. 被电离的电子可看作一个具有确定轨道的经典粒子, 在库仑势和外场作用下运动规律满足经典牛顿方程, 最后末态动量相同的电子之间会产生干涉而形成电子动量谱. 经典模型最初由 Corkum^[14,15]在处理长波长激光场的电离问题中使用, 在波长较长的强激光场下不再将光视为光子, 而是利用经典电磁场描述光场, 电子在外场作用下发生隧穿成为自由电子, 而后继续受到外场驱动进行经典运动. 该模型通过清晰的图像解释了强场中的许多物理现象, 之后被不同的理论具体量化而发展成为各种各样的半经典理论, 其中量子轨道蒙特卡罗方法 (quantum trajectory Monte Carlo, QTMC)^[16]和库仑修正的强场近似方法 (Coulomb corrected strong field approximation, CCSFA)^[17]占主导地位. 第二, 三部分将重点介绍 QTMC 和 CCSFA 两种方法, 从历史的发展脉络顺序给出该方法的关键元素, 并对理论推导和具体实现做出详细说明; 第四部分着重于半经典方法的举例应用, 比如用轨道分析动量谱结构的来源以及对非绝热效应的研究; 第五部分总结全文. 文中统一使用原子单位, 即令 $\hbar = e = m_e = 1$.

2 QTMC 方法

QTMC 方法^[16]属于成熟的半经典方法, 其原型是经典三步模型^[15]. 三步模型方法开创了用经典粒子描述强场中原子尺度下电子运动的研究时代. 1997 年, Hu 等^[18]将该方法加以拓展, 考虑电子隧穿的横向动量分布以及隧穿后的电子经

典运动受库仑力的影响, 成功地解释了高能电子的角分布结构, 经典轨道蒙特卡罗方法 (classical-trajectory Monte Carlo, CTMC) 由此产生. 在此基础上, Li 等^[16,19]在 2014 年提出的量子轨道蒙特卡罗方法, 利用费曼路径积分的思想, 考虑通过不同路径达到相同末态动量的电子之间的干涉效应, 对经典的粒子赋予相位信息, 能够很好地解释二维电子动量谱中丰富的干涉结构.

2.1 经典三步模型

在 19 世纪发现电子后的很长一段时间里, 人们普遍认为电子是体积相当小、质量不为零的带电粒子, 宏观尺度上应遵循经典运动规律, 在电磁场中的运动也可以完全预计, 运动轨迹可通过威尔逊云室观察. 许多设备和测量仪器都是基于电子经典的运动行为设计的, 例如电子加速器、电子速度选择器、电子离子速度谱仪 VMI (velocity map imaging)、冷靶反冲电子离子动量谱仪 COLTRIMS (cold target recoil ion momentum spectroscopy) 等. 这些仪器的设计都是基于对电子是带电粒子这一说法的认同, 电子在电磁场中受到电磁作用力, 其运动规律可以用牛顿第二定律描述从而具有确定的运动轨道. 量子力学的提出使得人们对电子有了新的认识, 普朗克的波粒二象性指出所有粒子都具有波动性, 而由于电子质量小从而其波动性更容易被观察到. 随后的电子衍射实验以及电子双缝干涉实验证实了这一点. 值得注意的是, 电子的经典行为和量子行为并不矛盾, 其量子行为必须在非常小的微观尺度下才能发生, 而宏观上的电子运动的确是经典的. 那么究竟在多大的尺度下经典的轨道描述不再适用, 而电子的波动性才会得以体现呢? 这一点可以用量子力学的不确定性原理粗略估计. 原子单位下有 $\Delta p \Delta x \approx 1$, 宏观下电子的热运动速度量级为 $c/1000$, 原子单位下光速 $c = 137$, 如果考虑电子有 0.1% 的速度误差, 那么可以估算出电子位置的误差范围大概为 10^4 a.u. ≈ 200 nm. 这个误差范围对于宏观测量几乎是一个很小的量, 也就是说宏观上可以认为电子具有足够精度的运动轨迹, 但它却远大于分子原子尺度或者晶格间距 (10 a.u. 量级), 这也是电子入射晶体会发生衍射的原因, 我们无法在分子原子尺度确定电子的位置. 原则上, 此时经典描述已经失效, 我们需要借助量子力学来描述原子分子系统, 电子

不再被当成粒子, 而是以概率波的形式存在. 量子力学的确能够解释几乎所有的原子尺度的物理现象, 包括本文研究的强场中的原子电离现象. 引言中提到, 量子力学描述虽然理论上是最正确的, 但实际使用却过于复杂甚至无法计算. 尤其是当激光场强度增大到发生高度非线性物理过程时, 无法再用量子力学的微扰理论进行计算, 需要发展其他方法求解薛定谔方程, 或者建立一个在此条件下成立的新模型.

Corkum 等^[14,15]创新性地提出了一个方法, 即重新用经典的图像来描述电子. 他认为在强激光场作用下, 原子中的电子发生了如下几个过程: 第一步, 足够强的激光场将库仑势垒压低, 使得电子隧穿出去成为自由电子, 隧穿概率由 Ammosov-Delone-Krainov (ADK) 率给出^[13]; 第二步, 电子成为自由电子之后可看作初始位置为0、在激光场中运动的经典粒子, 忽略核库仑力的作用, 电子的运动轨迹可以利用牛顿运动方程求解. 如果激光场是圆偏振光, 则会发现电子的运动轨迹不再返回原点, 即认为激光结束后电子会由于电场做功获得能量, 最后直接飞向探测器被探测到, 而不再与原子核发生作用. 最终探测到的电子电离率就是第一步中的电子隧穿概率, 所以人们常用圆偏振光来研究电子电离率或隧穿概率的问题^[20,21]. 线偏振光的情况下则会出现更丰富的物理现象, 比如第三步, 某些时刻出射的电子被光场驱动将在某一时刻返回原点, 即电子返回原子核. 这个过程需要考虑电子与核的相互作用, 可能出现三种物理过程: 第一种是电子与核发生弹性散射, 速度大小不变, 出射方向有偏转甚至反向, 之后电子继续受到激光场驱动最后将获得相当高的能量, 这个过程解释了电子谱高能平台区的产生; 第二种是电子返回核与残余核相互作用时, 将部分能量传递给另一个电子从而发生双电离过程; 第三种是返回核的电子被俘获, 电子能量转化成了光辐射, 释放出高次谐波. 用经典运动方程计算出电子返回核的最大能量是 $3.17U_p$, 即理论上辐射的光子能量最大应该为 $3.17U_p + I_p$, 其中有质动能 $U_p = F^2/4\omega^2$, 表示自由电子在激光场中做简谐运动一个周期可以获得的平均动能, F 为激光电场峰值大小, I_p 为电离势. 上述预测与实验中观测到的高次谐波截止频率相符.

上述模型将强场中的物理过程提炼成三个主

要步骤, 故称为三步模型. 由于第二步中电子被看成经典粒子, 该方法又被称作准经典方法. 三步模型的精髓在于大胆地在原子尺度将电子看作粒子, 我们在文章一开始就讨论过这种处理方式的局限性, 然而此处却能够定性甚至粗略地定量符合实验观测, 于是我们有理由相信这种处理在某些条件下是适用的. 那么在何种条件下, 电子又能多大程度地被看作粒子成为一个重要的问题. 前文提到对于宏观上相对低速的电子, 在对速度精度要求较高的情况下位置弥散程度达 200 nm, 这使得其在原子尺度是无论如何都不能被看作粒子. 然而强场中的情况并没有那么糟糕, 当激光波长为 2000 nm, 光强为 2×10^{14} W/cm² 时, 电子受到光场驱动能达到的最大速度可以用光场矢势估算 $A = F/\omega \approx 3.3$ a.u., 电子的运动范围大概为 $F/\omega^2 \approx 145$ a.u.. 我们假设电子速度的不确定度为 5%, 则有 $\Delta p = 0.165$ a.u., 根据不确定性原理估算出位置不确定的范围为 $\Delta x \approx 6$ a.u.. 可以看出这时的电子波包不确定范围相对于电子受电场驱动的运动范围的确是个小量, 因此在这个条件下将电子视为粒子是可行的. 这是强场中能够使用经典粒子图像描述电子运动的基础, 根本原因在于足够强的激光场能够将电子加速到足够大的速度, 其位置不确定范围相应较小, 另一方面电子在强场驱动下的运动范围较大, 因此能够近似使用轨迹描述电子的运动. 反之, 若激光场强太小, 位置不确定范围大于电子的运动范围, 经典图像也就失效了. 由此可见, 激光波长越长、光强越大, 经典图像就越能够准确地描述强场中的电子行为.

2.2 隧穿概率

三步模型的第一步电子隧穿出势垒成为自由电子是至为关键的一步, 隧穿概率以及初始动量分布直接影响到最终的动量谱结果. 电子隧穿过程在量子力学中早有研究, Landau 和 Lifshits^[22]给出了氢原子系统中电子在静电场下的隧穿概率, 该方法是求解准静条件下电离概率的基础, PPT 率以及 ADK 率均由此得来. 下文将简单叙述朗道推导隧穿概率的重要步骤. 设外电场强度为 F , 偏振方向沿 z 轴方向, 含外场氢原子系统的定态薛定谔方程写作

$$\left(\frac{1}{2}\nabla^2 + E + \frac{1}{r} - F \cdot z\right)\Psi = 0. \quad (1)$$

对于柱对称系统, 使用抛物坐标系更加方便, 定义直角坐标与抛物坐标间的变换

$$x = \sqrt{\xi\eta} \cos \varphi, \quad y = \sqrt{\xi\eta} \sin \varphi, \quad z = (\xi - \eta)/2. \quad (2)$$

将本征态写成如下形式:

$$\Psi = \frac{f_1(\xi)f_2(\eta)}{\sqrt{\xi\eta}} e^{im\varphi}, \quad (3)$$

其中 m 是磁量子数. 那么薛定谔方程可以分离变量为

$$\frac{d^2 f_1}{d\xi^2} + \left(\frac{E}{2} + \frac{\beta_1}{\xi} - \frac{m^2 - 1}{4\xi^2} - \frac{F}{4}\xi \right) f_1 = 0, \quad (4)$$

$$\frac{d^2 f_2}{d\eta^2} + \left(\frac{E}{2} + \frac{\beta_2}{\eta} - \frac{m^2 - 1}{4\eta^2} + \frac{F}{4}\xi \right) f_2 = 0, \quad (5)$$

$$\beta_1 + \beta_2 = 1.$$

分离变量后将得到两个方向的一维定态薛定谔方程, 对每个方程粒子总能量相当于 $E/4$, 等效势能为

$$U_1(\xi) = -\frac{\beta_1}{2\xi} + \frac{m^2 - 1}{8\xi^2} + \frac{F}{8}\xi,$$

$$U_2(\eta) = -\frac{\beta_2}{2\eta} + \frac{m^2 - 1}{8\eta^2} - \frac{F}{8}\eta.$$

这表明在 ξ 方向是一个无限深势阱, 电子在这个方向被约束. 而在 η 方向形成一个势垒, 电子有一定概率隧穿出去. 对于氢原子基态, 在无外场的情况下, 有 $E = -1/2, m = 0$, 基态电子波函数为

$$\Psi = e^{-(\xi+\eta)/2} / \sqrt{\pi}. \quad (6)$$

在有外场且场强较弱即 $F \ll 1$ 的情况下, 在 ξ 方向认为波函数依然为 (6) 式的关系. 对于 η 方向, 需要求解一维薛定谔方程 (5) 式. 求解过程使用 Wenzel-Kramer-Brillouin (WKB) 近似 [22] 方法, 在势垒中取一点满足 $1 \ll \eta_{\text{turn}} \ll 1/F$, 在 $\eta \leq \eta_{\text{turn}}$ 区域认为波函数为基态波函数 (6) 式, 而在 $\eta > \eta_{\text{turn}}$ 区域则将波函数看作准经典的, 并容易求得外区域的近似波函数. 最后, 电离概率定义为出射总概率流

$$W = \int_S \mathbf{j} \cdot d\mathbf{S}, \quad \mathbf{j} = \frac{i}{2}(\Psi \nabla \Psi^* - \Psi^* \nabla \Psi), \quad (7)$$

其中 S 取远处垂直于电场方向的平面. 该方法求得氢原子在静电场下从基态电离的概率为

$$W = \frac{4}{F} \exp\left(-\frac{2}{3F}\right). \quad (8)$$

该电离率可作为检验标准, 之后发展出来的各种电离率表达式必须满足在准静极限下的氢原子基态

结果与此式相符, 后文会多次使用此式对得到的各种电离概率加以验证.

值得一提的是, CTMC 以及 QTMC 方法在经典传播中用到的初始位置取自电子的隧穿出口. 常用的隧穿出口用抛物坐标方法给出, 在 η 方向隧穿出口定义为势能与总能量相等, 满足三次方程

$$\frac{E}{4} = U_2(\eta_{\text{out}}) = -\frac{\beta_2}{2\eta_{\text{out}}} + \frac{m^2 - 1}{8\eta_{\text{out}}^2} - \frac{F}{8}\eta_{\text{out}}. \quad (9)$$

在 ξ 方向由于波函数是中心在 0 点的高斯分布, 故认为电子出射位置 $\xi = 0$. 换算回直角坐标有 $x = 0, y = 0, z = -\eta_{\text{out}}/2$. 可以验证当 $F \ll 1$ 时, 有 $\eta_{\text{out}} \approx 2E/F = 2I_p/F$ 或 $z \approx -I_p/F$, 与预计相符.

随后 Smirnov 和 Chibisov [23] 用同样的方法计算了静电场下类氢原子任意束缚态的电离概率. 很快 Perelomov 等 [12] 将其结果直接运用到了简谐交变的光场中, 认为光场只要满足准静条件 $\gamma = \omega/\omega_T \ll 1$, 就可以认为在电子隧穿过程中电场不发生变化, 将每个时刻发生隧穿的电子在隧穿过程中受到的外电场近似为静电场, 从而直接使用静电场隧穿概率. 其中 ω 是光场圆频率, $1/\omega_T$ 是电子隧穿所需要的时间, 参数 γ 将在第三部分详细说明. 对于核电荷数为 Z 的类氢原子, 有效主量子数为 n^* 的能级能量为 $E = Z^2/(2n^{*2})$, 定义特征场强 $F_0 = (2E)^{3/2}$, 则在静电场下任意主量子数 n^* 、角量子数 l 、磁量子数 m 态的电离概率为

$$\begin{aligned} & W_{\text{stat}}(F) \\ &= EC_{n^*l}^2 \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|}(|m|)!(l-|m|)!} \\ &\quad \times \left(\frac{2F_0}{F}\right)^{2n^*-|m|-1} \exp\left(-\frac{2F_0}{3F}\right). \quad (10) \end{aligned}$$

上式成立还需满足弱场条件 $F \ll F_0$. 线偏振单色场下的电场强度随时间变化 $F(t) = F \cos \omega t$, 电离率应该在一个周期内取平均, 最后与静电场电离率公式相比多一个系数 $W_{\text{lin}} = (3F/\pi F_0)^{1/2} W_{\text{stat}}$. 而对于圆偏振光, 由于电场方向在不断变化, 磁量子数 m 并不为常数, 一般情况很复杂. 但是对于 s 态而言, 由于电场强度大小是一个常数, 故其电离率应该和静电场情况相同 $W_{\text{cir}} = W_{\text{stat}}$. 上式中的 C_{n^*l} 是各类原子相关的渐进系数, 部分可参看文献 [24,25]. 早在 1927 年 Hartree [26] 给出了一个适用于某些情况的解析表达式

$$C_{n^*l}^2 = \frac{2^{2n^*}}{n^*(n^*+l)!(n^*-l-1)!}. \quad (11)$$

上式对于氢原子是精确成立的, 对于类氢原子仅对主量子数做简单替换. 对于氢原子基态, $E = 1/2$, $n^* = 1$, $l = m = 0$, 容易得到 $C_{10} = 2$, 电离率转化成与 (8) 式相同的结果.

1986年, Ammosov等^[13]给出了准经典极限 $n^* \gg 1$ 下渐进系数较为简单的表达式

$$C_{n^*l} = \left(\frac{2e}{n^*}\right)^{n^*} \frac{1}{\sqrt{2\pi n^*}}. \quad (12)$$

或者可以从 (11) 式出发, 使用斯特林公式将其转化成

$$C_{n^*l}^2 = \left(\frac{4e^2}{n^{*2} - l^{*2}}\right)^{n^*} \left(\frac{n^* + l^*}{n^* - l^*}\right)^{l^* + 1/2} \frac{1}{2\pi n^*}. \quad (13)$$

当满足条件 $n^* \gg l^*$ 时, 上式可简化成 (12) 式, 在准经典极限下渐进系数仅是有效主量子数 n^* 的函数. 将化简的渐进系数代入 (10) 式, 可以得到

$$\begin{aligned} W_{\text{stat}}^{\text{adk}} &= \frac{F}{8\pi Z} \left(\frac{4eZ^3}{Fn^{*4}}\right)^{2n^*} \left(\frac{2Z^3}{Fn^{*3}}\right)^{-|m|} \\ &\times \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|}(|m|)!(l-|m|)!} \exp\left(-\frac{2Z^3}{3n^{*3}F}\right). \end{aligned} \quad (14)$$

上式在角量子数不大时符合得很好. 对于磁量子数更高的 $|m| + 1$ 态相比于磁量子数为 $|m|$ 的态的电离率存在比例因子 $Fn^{*3}/2Z^3 \ll 1$, 也就是说磁量子数 $m = 0$ 的态的电离率占主导地位. 对于氢原子的 s 态, 上式可简化为 (8) 式. 对于任意原子的 s 态, 线偏振光下的电离率为

$$W_{\text{lin}}^{\text{adk}} = \sqrt{\frac{3F}{\pi F_0}} \frac{FD^2}{8\pi Z} \exp\left(-\frac{2Z^3}{3n^{*3}F}\right), \quad (15)$$

其中定义常数 $D = \left(\frac{4eZ^3}{Fn^{*4}}\right)^{n^*}$, 上式即为我们通常用到的 ADK 电离率.

以上叙述的是原子总电离率, 另外还可以研究末态动量为 \mathbf{p} 的电子电离概率, 即得到隧穿后的电子动量分布. 针对线偏振光中基态为 s 态的原子, Delone 和 Krainov^[27] 利用 Landau-Dykhne 绝热近似的跃迁概率幅形式^[28], 求出了精确到指数项的电子动量分布. 之后 Krainov^[29] 从 KFR 理论 (将在下一章详细叙述) 出发, 得到了完全相同的结论并且给出了指数前因子:

$$\begin{aligned} W(p_{\perp}, p_{\parallel}) &= \frac{p\omega D^2}{8\pi^3 n^* F} \exp\left(-\frac{2Z^3}{3n^{*3}F}\right) \\ &\times \exp\left(-\frac{p_{\perp}^2 Z}{n^* F}\right) \exp\left(-\frac{p_{\parallel}^2 \gamma^3}{3\omega}\right). \end{aligned} \quad (16)$$

上式对动量进行积分则可得到 (15) 式.

上述表达式描述的是隧穿电子的末态动量分布, 一般认为在满足绝热条件且忽略库仑势作用的情况下, 末态动量在垂直电场方向的分布相比于隧穿出口处不发生改变. 于是可以认为刚隧穿出来的电子横向动量分布如同上式的高斯分布. CTMC 方法中^[18,30]认为电子在隧穿出口处的纵向动量为 $p_{\parallel} = 0$, 这一结论也将在下一章利用 KFR 理论给出. 如此可以确定三步模型中第一步隧穿过程中电子的隧穿概率以及动量分布:

$$\begin{aligned} W(F, p_{\perp}) &= W_0(F)W_1(p_{\perp}), \\ W_0(F) &= \frac{FD^2}{8\pi Z} \exp\left(-\frac{2(2I_p)^{3/2}}{3F}\right), \\ W_1(p_{\perp}) &= \frac{\sqrt{2I_p}}{\pi F} \exp\left(-\frac{p_{\perp}^2 \sqrt{2I_p}}{F}\right), \end{aligned} \quad (17)$$

其中电离势 $I_p = E = Z^2/2n^{*2}$. 垂直动量分布 W_1 的归一化因子是为了满足 $\int_0^{\infty} W_1 2\pi p_{\perp} dp_{\perp} = 1$, 即对动量积分后得到准静态 ADK 率 $W_0(F)$. 对于变化的光场, 电场强度是时间的函数 $F(t)$, 故每一时刻有相应的隧穿概率 $W(t, p_{\perp}) = W(F(t), p_{\perp})$. 尤其要注意的是 (16) 式与 (17) 式的区别, 避免混淆. (16) 式是最后探测到的末态的动量分布, 而 (17) 式是利用前者推导出的电子在隧穿出口处的初始分布; 前者是纵向动量与横向动量的函数, 后者由于隧穿出口处初始纵向动量为 0, 故只是横向动量的函数; 前者对两个方向动量积分后应该得到线偏光的 ADK 总电离率, 后者对横向动量积分后得到的是准静场下的 ADK 率.

2.3 经典传播与轨道相位

上一节讨论了三步模型中的第一步隧穿过程. 在准静条件下, 认为每一时刻发生隧穿的电子在隧穿过程中感受到的电场为恒定值, 电子在该电场压低的库仑势垒下发生隧穿. 隧穿出口位置、出口动量分布以及电离率都已经得到. 在初始位置和初始动量都确定之后, 电子开始做经典运动. 起初 Corkum 的模型在描述第二步经典传播时, 仅仅考虑外电场对电子的作用. 之后在 CTMC 模型中考虑了电子运动过程中也受到的库仑力的影响. 电子

运动满足牛顿运动方程

$$\frac{d^2 \mathbf{r}}{dt^2} = -\mathbf{F}(\mathbf{t}) - \frac{Z\mathbf{r}}{r^3}. \quad (18)$$

或者写成一阶微分方程组

$$\frac{d\mathbf{p}}{dt} = -\mathbf{F}(\mathbf{t}) - \frac{Z\mathbf{r}}{r^3}, \quad \frac{d\mathbf{r}}{dt} = \mathbf{p}. \quad (19)$$

在实际计算中, 外电场一般为有限长脉冲, 电子在某时刻发生隧穿, 求解上面的运动方程直到脉冲结束. 之后电子的运动仅在库仑力的作用下进行, 用开普勒轨道描述. 若能量小于零, 电子轨道应该为闭合的椭圆, 我们认为这部分电子最终被束缚到了里德堡态而未被电离^[31,32]. 能量大于零的电子为双曲线轨道, 通过解析得到的无穷远处的渐进动量作为探测器探测到的动量. 已知激光结束时的动量 \mathbf{p}_f 和位置 \mathbf{r}_f , 可以得到三个守恒量: 能量, 角动量, 和隆格楞次矢量,

$$\begin{aligned} \frac{p_\infty^2}{2} &= \frac{p_f^2}{2} - \frac{Z}{r}, \quad \mathbf{L} = \mathbf{r}_f \times \mathbf{p}_f, \\ \mathbf{a} &= \mathbf{p}_f \times \mathbf{L} - \frac{Z\mathbf{r}_f}{r_f}. \end{aligned} \quad (20)$$

末态动量则表示为^[32,33]

$$\mathbf{p}_\infty = p_\infty \frac{p_\infty(\mathbf{L} \times \mathbf{a}) - \mathbf{a}}{1 + p_\infty^2 L^2}. \quad (21)$$

如果忽略库仑势作用, 隧穿出来的电子能量一定大于零, 最终全部会到达探测器, 则可直接从运动方程出发解析得到末态电子动量

$$\mathbf{p}_\infty = \mathbf{p}_f = \mathbf{p}_0 - \int_{t_0}^{\infty} \mathbf{F}(\mathbf{t}) dt = \mathbf{p}_0 - \mathbf{A}(t_0), \quad (22)$$

其中 t_0 表示电子电离时刻, \mathbf{p}_0 为电离时刻初始动量, 电场矢势 \mathbf{A} 满足 $\mathbf{F} = -\partial\mathbf{A}/\partial t$, 物理上需要满足在光场开始前与结束后矢势大小为零, 即 $\mathbf{A}(\pm\infty) = 0$. 在考虑了库仑势之后, 一方面有一部分电子末态能量可能小于零, 另一方面末态动量也会偏离(22)式的结果, 甚至可能因为被库仑势散射而出现巨大偏差. 半经典方法认为末态动量相同的电子对该末态动量的电离率都有贡献. CTMC 方法简单地将末态动量相同的电子概率相加 $\sum_j W^j(t_0, p_\perp)$, 其中求和遍历末态动量相同的所有电子, 这样统计的结果呈现出来的是由于初始横向动量分布引起的末态角向分布结构. QTMC 方法在此基础上对每个电子赋予了相位信息, 将达到相同末态动量的电子的概率幅叠加, 会发生干涉, 末态动量为 \mathbf{p} 的概率为

$$M_{\mathbf{p}} = \sum_j \sqrt{W^j(t_0, p_\perp)} \exp(i\Phi_j). \quad (23)$$

上式基于费曼路径积分思想^[34], 后来被用到强场光领域中^[35,36].

接下来的重点在于如何得到每个电子的轨道相位 Φ . 在文献^[16]补充材料可以找到最先提出 QTMC 方法的原文中使用的轨道相位推导过程, 结果是

$$\Phi = - \int_{t_0}^{\infty} \left[\frac{v(t)^2}{2} - \frac{Z}{r(t)} + I_p \right] dt. \quad (24)$$

对于上面相位的表达式, 积分项实际上是电子总能量. 在激光结束之后电子总能量守恒, 末态动量相同的电子总能量相同, 因此对于末态动量相同的电子上式积分从激光结束到无穷远是相同的, 贡献相同的相因子可以略去, 因此上述积分只需要从电离时刻积分到激光场结束时刻. 实际计算中将上式写成微分式

$$\frac{d\Phi}{dt} = - \left[\frac{v(t)^2}{2} - \frac{Z}{r(t)} + I_p \right], \quad (25)$$

然后联立微分方程组(19)式共同求解.

最近, Shvetsov-Shilovski 等^[37]提出半经典两步模型 (semiclassical two-step (SCTS) model), 其本质上是本文所讨论的半经典方法. 该工作重新进行了轨道相位的推导, 文中对相位的推导过程与 QTMC 原文^[16]补充材料中的方法基本相同, 作者指出了原推导过程中的疏漏并做出了修正. 从坐标表象到动量表象的传播子对应的作用量可以表示为

$$\Phi = -\mathbf{v}_0 \cdot \mathbf{r}_0 + \int_{t_0}^{\infty} [-\mathbf{r}(t) \cdot \dot{\mathbf{v}}(t) - H] dt, \quad (26)$$

其中 $H = v^2/2 + \mathbf{F} \cdot \mathbf{r} - Z/r$ 是经典哈密顿量. 联立运动方程(18)式, 并考虑与初态相关的初始相位 $I_p t_0$, 轨道相位最后可以写成

$$\Phi = -\mathbf{v}_0 \cdot \mathbf{r}_0 + I_p t_0 - \int_{t_0}^{\infty} \left[\frac{v(t)^2}{2} - \frac{2Z}{r(t)} \right] dt. \quad (27)$$

该相位对比 QTMC 原文使用的(24)式有两点不同. 相比(24)式, 保留了第一项, 在 QTMC 原文里考虑准静情况, 初始纵向速度为零, 第一项无需考虑. 其次, 上式库仑项因子为2, 这个因子来源一部分是经典哈密顿量的库仑修正 $-Z/r$, 另外一部分来源运动方程中的库仑修正 $\mathbf{r} \cdot (-Z\mathbf{r}/r^3) = -Z/r$, 原 QTMC 的推导过程中疏漏了后者从而得到(24)式. 为了以示区别, 我们称使用上述修正相位的方法为 SCTS 方法.

由于多了一部分库仑修正项, 上述积分不可忽略激光结束到无穷远的过程. 将积分分为两部分, 从隧穿时刻 t_0 到激光结束时刻 t_f , 再从激光结束时刻到无穷远

$$\begin{aligned} & - \int_{t_0}^{\infty} \left[\frac{v(t)^2}{2} - \frac{2Z}{r(t)} \right] dt \\ &= - \int_{t_0}^{t_f} \left[\frac{v(t)^2}{2} - \frac{2Z}{r(t)} \right] dt \\ & - \int_{t_f}^{\infty} \left[\left(\frac{v(t)^2}{2} - \frac{Z}{r(t)} \right) - \frac{Z}{r(t)} \right] dt. \end{aligned}$$

这种情况下, 由于参与干涉的电子轨迹具有相同的末态能量, 因此上式中右边第二项的电子能量从激光场结束时刻 t_f 到无穷远的积分对于干涉电子相位的贡献是相同的. 故可以不考虑这一项的影响, 只需考虑多余的一项库仑项对电子轨迹相位的贡献. 定义渐进库仑修正项

$$\Phi_f^C(t_f) = \int_{t_f}^{\infty} \frac{Z dt}{r(t)}, \quad (28)$$

(27) 式可以写成

$$\begin{aligned} \Phi &= -\mathbf{v}_0 \cdot \mathbf{r}_0 + I_p t_0 - \int_{t_0}^{t_f} \left[\frac{v(t)^2}{2} - \frac{2Z}{r(t)} \right] dt \\ &+ \Phi_f^C(t_f). \end{aligned} \quad (29)$$

渐进库仑修正项可以用激光结束时电子的速度 \mathbf{p}_f ,

位置 \mathbf{r}_f 以及角动量 l 表示 (详细推导见文献 [37]):

$$\Phi_f^C(t_f) = -Z\sqrt{b} \left[\ln g + \operatorname{arcsinh} \left(\frac{\mathbf{r}_f \cdot \mathbf{p}_f}{g\sqrt{b}} \right) \right], \quad (30)$$

其中 $b = 1/\sqrt{2I_p}$, $g = \sqrt{1 + 2I_p l^2}$. 图 1 分别给出了三维 TDSE、二维 QTMC 和 SCTS 方法在相同激光条件下的电子动量谱在 p_x - p_z 平面的分布. 使用的激光场为高斯包络短脉冲, 矢势形状为

$$\mathbf{A}(t) = -\frac{F_0}{\omega} \exp \left[-\alpha \left(\frac{\omega t}{4} \right)^2 \right] \sin \omega t,$$

其中 F_0 为激光电场强度幅值, 激光光强 $I_0 = F_0^2 = 2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 波长 800 nm, 参数 $\alpha = 4.466$. 上式使用的激光是超短周期脉冲, 目的是为了突出瓣状结构而排除其他如周期间的干涉等结构. 从计算结果可以看到, SCTS 方法再对轨道相位进行修正后能够成功地重复出低能角向结构的瓣数. 此外, 图 1(b) 和图 1(c) 中出现了月牙形状的亮线, 这是这类轨道库仑修正半经典方法的缺点之一. 贡献这部分亮线的电子, 通过追踪轨迹可以发现它们在运动过程中返回到了离母核较小的距离而发生了大角度的散射. 而我们并没有考虑电子发生散射的截面或概率, 因此这部分电子的贡献是高估了的, 从而在散射电子对应末态动量处出现了亮线. 这反映了半经典方法不适用于解释硬散射电子的局限性.

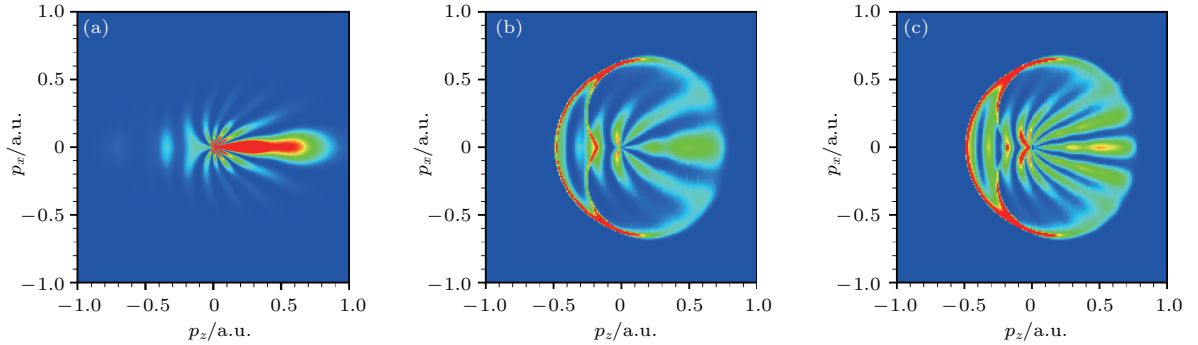


图 1 氢原子电离电子的二维动量谱分布. 系统由峰值光强为 $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 波长 800 nm 的单周期线偏振红外脉冲电离; (a) 由 TDSE 方法求得, (b) 由 QTMC 方法求得, (c) 由 SCTS 方法求得

Fig. 1. The 2D photoelectron momentum distributions of hydrogen atom, ionized by a single-cycle linearly polarized laser pulse at wavelength of 800 nm and peak intensity of $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. The results are shown from: (a) TDSE method, (b) QTMC method, (c) SCTS method.

2.4 半经典数值方法的步骤

在具体数值计算实现中, 半经典方法主要分成如下几个步骤.

1) 制备样本电子. 一个方法是从激光开始到

激光结束均匀取时间点, 每个时刻再对初始横向速度均匀采点, 对应每个时刻和每个初始横向速度有电离率 (17) 式, 其意义原本是在该时刻电离并具有该初速度的隧穿电子数目正比于该电离率, 但这里我们只用一个电子作为代表, 最后乘上 (17) 式作为

权重. 然而均匀采点取样有两个缺点, 一个是可能出现由均匀取点周期性造成的非物理干涉结构, 另一方面为了得到收敛的动量谱需要密集采点也就是需要更大量的样本点. 一个常用的改进方法是蒙特卡罗方法, 在时间空间和初始横向动量空间均匀随机采样, 利用计算机生成的均匀随机数计算样本电子的电离时刻与初始横向动量. 该方法能够使用更少的样本得到收敛的动量谱, 效率更高. 一般典型的样本数量级为 10^9 .

2) 上一步随机采点确定了电子的电离时刻、初始横向速度之后, 可以利用 (9) 式确定隧穿出口位置. 之后求解微分方程组 (19) 和 (25) 式, 可以得到激光结束时电子的位置和速度以及相位积累, 另外还可以记录求解微分方程的过程从而得到该电子在电场驱动下的运动轨迹. 最后利用开普勒公式 (21) 计算得到末态电子动量. 如果轨道相位使用的是 SCTS 方法中的表达式, 相位微分方程 (25) 式中库仑项的系数应该改成 2. 另外在激光场结束后, 需要在求得的相位积累上再加上相位的渐进库仑修正项 (30) 式.

3) 最后将达到相同末态动量的粒子收集起来, 利用 (23) 式计算具有该动量电子的电离概率. 实际操作时, 我们认为末态动量分布在小矩形区域 $[p_x - \Delta p_x/2 \sim p_x + \Delta p_x/2, p_z - \Delta p_z/2 \sim p_z + \Delta p_z/2]$ 内即达到了相同的末态动量 (p_x, p_z) , 这里我们以计算 xz 平面的电子谱为例. 需要注意的是, 统计区域 $\Delta p_x, \Delta p_z$ 不能取得太大, 如果太大, 那么落在区域内相隔较远的电子的动量不能近似认为相同, 这要求区域内间隔最大的点积累的相位差不能太大. 一般对于波长越大的激光, 电子相位随动量分布震荡越快, 或者说动量空间条纹更密集, 这时需要更小的统计区域. 一般可以取某激光参数下动量空间条纹间距的 $1/10$ 作为统计区域范围. 不过若统计区域过小, 则会导致落在该区域内的电子数目不够, 统计效果差. 对于长波长激光, 统计区域范围要小, 这时为了达到一定的统计效果, 需要更多的样本电子, 十分消耗资源.

3 库仑修正强场近似方法

第二部分讲述了 QTMC 半经典方法的发展过程, 该方法从经典模型出发, 量化每一步骤, 最后得到动量谱. 接下来要讲述 CCSFA 半经典方法,

基于 KFR 理论先给出了动量谱, 然后再通过数学手段给 KFR 理论赋予经典的物理图像, 使得能够用经典的两步模型描述该理论结果. 发展成熟的 CCSFA 方法也称为半经典方法, 它和 QTMC 物理图像完全相同, 整个物理过程也可被看作三步. 电子首先被电离成为自由电子, 然后在电场与库仑场共同作用下做经典运动, 最后到达相同末态动量的电子将发生干涉. 后面两步与 QTMC 方法完全相同, 区别仅在于第一步的隧穿过程, CCSFA 方法并不是从准静隧穿模型得到初始条件和电离概率, 而是从 KFR 理论出发由数学计算反推得到的. 接下来我们会详细叙述此方法的重要步骤.

3.1 KFR 理论及强场近似

引言中提到, 量子力学是一个成熟的理论, 它给出了一套非常系统地描述物理过程的方法, 即薛定谔方程. 然而使用薛定谔方程往往不能得到一个精确的解析解, 于是人们寻求各种近似方法来解析地得到一些在特定条件下适用的结果. 例如弱外场下的微扰理论就能解释很多的量子过程. 但是对于我们所考虑的较强的激光场, 微扰理论则不再适用. 这时如果考虑另一种极端的情况, 即激光场远大于库仑场, 利用这个条件的数学处理方法就是强场近似方法, 其中 KFR 理论就是强场近似的具体实现. KFR 是三篇论文^[9-11]作者 Keldysh, Faisal, Reiss 姓名的首字母. 这三篇文章从同一出发点进行了开拓性的推导计算, 后人将它们视为一系列强场近似方法的基础, 统称为 KFR 理论. 更多细节参见综述文献^[38]. 另外还有其他处理强场中电离问题的理论, 如含时有效程理论 (time dependent effective range, TDER)^[39-45], Floquet 理论^[46,47], 解析 R-matrix 理论^[48-50]等. 每种理论基于各自的出发点做出相应近似, 适用情景不尽相同, 细节参看文献. 本文着重介绍 KFR 理论.

根据量子力学原理, 系统在光场下的哈密顿量在速度规范与长度规范下分别写作

$$H^{\text{vol}} = \frac{1}{2} [-i\nabla + \mathbf{A}(t)]^2 + V_a(r),$$

$$H^{\text{len}} = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V_a(r) + \mathbf{F} \cdot \mathbf{r}, \quad (31)$$

其中 $V_a(r)$ 为原子势, 对于类氢原子有 $V_a(r) = -Z/r$, \mathbf{A} 为电场矢势, \mathbf{F} 为电场. 我们定义电子与光场的相互作用势

$$V_{\text{int}}^{\text{vol}} = -i\mathbf{A} \cdot \nabla + A^2/2, \quad V_{\text{int}}^{\text{len}} = \mathbf{F} \cdot \mathbf{r}. \quad (32)$$

系统哈密顿量可以写作

$$H = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V_a(r) + V_{\text{int}}. \quad (33)$$

系统的波函数演化满足薛定谔方程

$$i\frac{\partial}{\partial t}|\psi\rangle = H|\psi\rangle. \quad (34)$$

激光场作用下原子系统将从初态 $|\psi_0\rangle$ 演化到末态 $|\psi_f\rangle = U(t_f, t_0)|\psi_0\rangle$, 其中

$$U(t_f, t_0) = \exp\left(-i\int_{t_0}^{t_f} H dt\right)$$

为在系统哈密顿量 (33) 式作用下从初始时刻 t_0 到 t_f 时刻的演化算符. 由于指数项是对算符的积分, 因此这种表达形式虽简单紧凑却十分不易计算. 定义无外场情况下的哈密顿量

$$H_a = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V_a(r), \quad (35)$$

与其对应的演化算符记为 U_a . 无外场情况下的哈密顿量不含时, 求解定态薛定谔方程可以得到相应的本征态, 能量小于零的态称为束缚态, 一般认为初始电子处于能量最低的束缚态基态上. 激光作用后电子态将被激发到能量更高的束缚态, 或者能量大于零成为自由电子被探测器探测到. 能量大于零的自由电子态的能量是连续分布的, 故又称作连续态, 动量为 \mathbf{p} 的自由电子态记为 $|\psi_{\mathbf{p}}\rangle$. 实验中探测到的动量谱即为自由电子的动量分布, 探测到动量为 \mathbf{p} 的电子的概率应该正比于电子末态中自由态 $|\psi_{\mathbf{p}}\rangle$ 的成分, 即

$$M_{\mathbf{p}} = \langle\psi_{\mathbf{p}}|\psi_f\rangle = \langle\psi_{\mathbf{p}}|U(t_f, t_0)|\psi_0\rangle. \quad (36)$$

上式也是对电子电离概率的严格定义. 在进行精确计算时, 一般是直接求解含时薛定谔方程得到末态波函数 $|\psi_f\rangle$, 然后再用上式计算投影求得动量谱. 接下来我们将进行一些数学处理, 得到强场近似结果.

定义忽略库仑势的哈密顿量

$$H_f = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V_{\text{int}}(t), \quad (37)$$

它描述的是自由电子在外场中的运动, 对应的演化算符为 U_f , 本征态是 Volkov 态 $|\psi_{\mathbf{p}}^V\rangle$ [51-54], 在非相对论情况下由速度规范和长度规范分别得到不同的表达形式:

$$\begin{aligned} |\psi_{\mathbf{p}}^{V,\text{vol}}\rangle &= |\mathbf{p}\rangle \exp(-iS_{\mathbf{p}}(t)), \\ |\psi_{\mathbf{p}}^{V,\text{len}}\rangle &= |\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)\rangle \exp(-iS_{\mathbf{p}}(t)), \end{aligned} \quad (38)$$

其中

$$S_{\mathbf{p}}(t) = \int^t \frac{[\mathbf{p} + \mathbf{A}(\tau)]^2}{2} d\tau. \quad (39)$$

$|\mathbf{p}\rangle$ 表示动量为 \mathbf{p} 的平面波态, 在坐标表象下有

$$\langle\mathbf{r}|\mathbf{p}\rangle = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \exp(i\mathbf{p} \cdot \mathbf{r}).$$

利用 Dyson 方程 [55], 可以将总哈密顿量的演化算符表示成如下等价的对称形式:

$$U(t, t') = U_a(t, t') - i \int_{t'}^t U(t, \tau) V_{\text{int}}(\tau) U_a(\tau, t') d\tau, \quad (40)$$

$$U(t, t') = U_f(t, t') - i \int_{t'}^t U_f(t, \tau) V_a U(\tau, t') d\tau. \quad (41)$$

将 (40) 式代入电离概率 (36) 式, 可以得到电离概率的另一个精确表达式:

$$M_{\mathbf{p}} = -i \int_{t_0}^{t_f} \langle\psi_{\mathbf{p}}(t_f)|U(t_f, \tau)V_{\text{int}}(\tau)|\psi_0(\tau)\rangle d\tau. \quad (42)$$

强场近似的关键一步在于, 假设电子被电离后库仑势作用可以忽略, 电子仅在外电场驱动下运动, 这时可以将上式的演化算符替换成为无库仑势的演化算符, 并且将电子末态替换成为 Volkov 态. 这样上式将在强场近似下简化为

$$M_{\mathbf{p}} = -i \int_{t_0}^{t_f} \langle\psi_{\mathbf{p}}^V(\tau)|V_{\text{int}}(\tau)|\psi_0(\tau)\rangle d\tau. \quad (43)$$

(43) 式就是 KFR 理论的共同出发点, 三篇文章均从上式出发, 详细计算了单色光场下的电离概率. 其中, Keldysh 在长度规范下进行计算得到了著名的 Keldysh 电离率公式:

$$\begin{aligned} &W_{\text{Keldysh}} \\ &\sim \exp\left\{-\frac{2I_p}{\omega}\left[\left(1 + \frac{1}{2\gamma^2}\right)\text{arcsinh}\gamma - \frac{\sqrt{1+\gamma^2}}{2\gamma}\right]\right\}, \end{aligned} \quad (44)$$

Keldysh 参数定义为 $\gamma = \omega\sqrt{2I_p}/F$, 可以理解为电子隧穿时间与光场周期的比值. 指数项与 PPT 文中 [12] 在短程势情况下得到的结果完全一样. 此式的物理内涵在于不仅能够描述隧穿极限下的物理规律, 也能描述多光子过程. 对于隧穿极限即准静近似下, 有 $\gamma \ll 1$, 此时上式可以转化成与准静隧穿概率 (10) 式相同的指数形式. 而 $\gamma \gg 1$ 的情况称为多光子过程, 此时电离概率的可以化成 $W \sim \sigma_N I^N$, 其中 I 为光强, N 为吸收光子数 I_p/ω , σ_N 为多光子吸收截面.

Faisal 和 Reiss 两人均在速度规范下计算电离率 (43) 式, 其中 Faisal 的文章 [10] 中末态使用了任意态, 而 Reiss 的文章 [11] 从一开始就用 Volkov 态代替末态. 将 Faisal 文章结果中的末态取为平面波态即可得到和 Reiss 完全一样的结果 (对比文献 [10] 中的 (21), (22) 式与文献 [11] 中的 (26), (42) 式). 与长度规范下含有矢势的平面波态不同, 速度规范的好处在于 Volkov 态 (38) 式中的平面波态是一个不随时间变化的态. 这样在计算过程中可以利用傅里叶-贝塞尔变换

$$\exp(iz \sin \varphi) = \sum_{k=-\infty}^{+\infty} J_k(z) \exp(ik\varphi),$$

将电离率展开成贝塞尔函数的叠加, 最后写成如下形式:

$$M_{\mathbf{p}}^{\text{FR}} = \sum_n \delta\left(\frac{p^2}{2} + I_p + U_p - n\omega\right) M_{\mathbf{p}n}. \quad (45)$$

对于线偏振光有

$$M_{\mathbf{p}n} = 2\pi i \left(\frac{p^2}{2} + I_p\right) \langle \mathbf{p} | \Psi_0 \rangle \sum_{k=-\infty}^{+\infty} J_k\left(\frac{U_p}{2\omega}\right) \times J_{n+2k}\left(\frac{Fp}{\omega^2}\right), \quad (46)$$

对于圆偏振光有

$$M_{\mathbf{p}n} = 2\pi i \left(\frac{p^2}{2} + I_p\right) \langle \mathbf{p} | \Psi_0 \rangle J_n\left(\frac{Fp}{\omega^2}\right), \quad (47)$$

其中 $\langle \mathbf{p} | \Psi_0 \rangle$ 为初态在动表象下的函数. 从 FR 的结果 (45) 式可以很清楚地看到 ATI 结构, 吸收了 n 个光子的电子将在能量为 $p^2/2 = n\omega - I_p - U_p$ 处出现峰值. 每阶 ATI 峰的电离率大小取决于贝塞尔函数 (46), (47) 式. 同时, 由贝塞尔函数的性质可以预测 ATI 峰的平台结构, 即高阶 ATI 峰的电离率相比于低阶峰的电离率并没有明显下降, 这属于强场与原子相互作用产生的高度非线性现象.

3.2 鞍点方法

上一节讨论的 KFR 理论, 均从强场近似后的电离率分布 (43) 式出发, 严格对单色光场情况进行了深入计算, 结果成功给出了正确描述强场非微扰情况的总电离率, 并且预测了电子谱的 ATI 阈上电离峰结构. 事实上, (43) 式是一个理论上可以直接计算的式子, 在确定激光场的情况下, 被积函数是明确的, 主要任务是计算积分. 五十年前由于计算机刚刚诞生而无法进行复杂的计算, 人们更倾向于

使用解析手段处理数学问题. 如今发展成熟的计算机给我们提供了强大的计算手段, 对于具有明确表达式的函数可以数值积分, 于是强场近似下的 (43) 式开始被广泛应用于处理任意有限长包络光场下的原子电离问题. 接下来我们会介绍一种方法, 将 (43) 式中的积分转化为求和的形式进行近似处理, 并赋予其经典的物理图像. 此方法在数学上称作鞍点方法 (严格上对实数变量叫鞍点方法, 对于复数变量叫最速下降线围道方法), 相关数学内容详见文献 [56]. 早期已有文献 [57, 58] 利用此数学方法处理 (43) 式的积分, 之后文献 [55, 59, 60] 中对此方法进行了拓展与总结. 在长度规范下, 代入 Volkov 态和相互作用势, (43) 式可以写成

$$M_{\mathbf{p}} = -i \int_{t_0}^{t_f} e^{i\tilde{S}_{\mathbf{p}}(t')} \langle \mathbf{p} + \mathbf{A}(t') | \mathbf{r} \cdot \mathbf{F}(t') | \psi_0 \rangle dt', \quad (48)$$

其中

$$\tilde{S}_{\mathbf{p}}(t) = \int^t \left\{ \frac{[\mathbf{p} + \mathbf{A}(\tau)]^2}{2} + I_p \right\} d\tau. \quad (49)$$

积分下限本应从负无穷开始, 但是在光场出现前此相位积累是一个与时间无关的常数, 故上式积分可以从激光起始时刻进行. 若原子势为库仑势, 对初态为 s 态的情况, 偶极跃迁矩阵元可计算为

$$\langle \mathbf{p} + \mathbf{A}(t') | \mathbf{r} | \psi_0 \rangle \propto \frac{\mathbf{p} + \mathbf{A}}{[(\mathbf{p} + \mathbf{A})^2 + 2I_p]^3}, \quad (50)$$

在已知电场时, (48) 式可以直接进行数值积分求解. 值得注意的一点是, (48) 式不仅适用于长波长红外光场, 对 XUV 光同样可行, 文献 [61, 62] 中利用该式很好地描述了 XUV 光电离谱.

如果相位 $\tilde{S}_{\mathbf{p}}(t)$ 随时间的变化远快于函数 $\langle \mathbf{p} + \mathbf{A}(t') | \mathbf{r} \cdot \mathbf{F}(t') | \psi_0 \rangle$ 的变化, 则积分函数是一个高速振荡的函数, 对时间的积分在大多数地方相互抵消而使积分值接近零, 只有在相位变化十分缓慢的地方才对积分值有显著贡献. 相位稳定的点即稳相点, 由于其在复平面上的形状像马鞍又可称鞍点, 满足相位对时间的一阶导数为零

$$\left. \frac{\partial \tilde{S}_{\mathbf{p}}(t)}{\partial t} \right|_{t=t_s} = \frac{[\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s)]^2}{2} + I_p = 0. \quad (51)$$

上式即为鞍点方程. 鞍点方法的大致思路为, 将 (48) 式的积分近似表示成在各个鞍点附近的积分之和, 而鞍点附近的积分可表示为被积函数在鞍点处的函数值与某个系数的乘积, 经过计算可以将电

离率表示成求和形式:

$$M_{\mathbf{p}} \sim \sum_s \sqrt{\frac{2\pi i}{\tilde{S}_{\mathbf{p}}''(t_s)}} (\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s) | \mathbf{r} \cdot \mathbf{F}(t_s) | \Psi_0) \times e^{i\tilde{S}_{\mathbf{p}}(t_s)}, \quad (52)$$

其中求和遍历所有鞍点, 符号 \sim 表示两个函数具有相同行为. 使用鞍点方法的过程中有些近似条件往往不能被很好地满足, 近似步骤并不绝对严格, 因此最后得到的式子在数值上并不能和原式完全相符. 但是近似后的式子已经足够描述原函数的行为, 或者可以认为仅仅与原函数相差一个系数因子. 在考虑库仑势的情况下, 由于分母是相位的一阶导数, 在鞍点处为零, 偶极跃迁矩阵元(50)式在鞍点处的值是发散的, 这时(52)式失效. 文献[60]中给出了考虑库仑势情况下的电离率修正:

$$M_{\mathbf{p}} \sim \sum_s \frac{(2I_p)^{5/4}}{2^{1/2} \mathbf{F}(t_s) [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s)]} e^{i\tilde{S}_{\mathbf{p}}(t_s)}. \quad (53)$$

指数前因子简单记为 $P(t_s)$, 电离概率可表示成 $M_{\mathbf{p}} \sim \sum_s P(t_s) e^{i\tilde{S}_{\mathbf{p}}(t_s)}$. 上式已经和QTMC的电离率(23)式非常相似了, 不同之处在于相位因子. 从鞍点方程可以看出, 方程的解即鞍点 $t_s = t_r + it_i$ 是复数, 因此相位因子(49)式在鞍点方法下是复变函数的积分. 我们考虑的光场形式和相位的被积函数都是解析函数, 因此可以将积分路径取成两部分:

$$\int_{-\infty}^{t_s} = - \int_{t_s}^{\infty} = - \int_{t_s}^{t_r} - \int_{t_r}^{\infty}.$$

从鞍点直接积分到鞍点实部, 然后再从鞍点实部出发积分至无穷远, 则相位因子也分成两个部分:

$$\begin{aligned} \tilde{S}_{\mathbf{p}}(t) &= \Phi_s^t + \Phi_s, \\ \Phi_s^t &= - \int_{t_s}^{t_r} \left\{ \frac{[\mathbf{p} + \mathbf{A}(\tau)]^2}{2} + I_p \right\} d\tau, \\ \Phi_s &= - \int_{t_r}^{\infty} \left\{ \frac{[\mathbf{p} + \mathbf{A}(\tau)]^2}{2} + I_p \right\} d\tau. \end{aligned} \quad (54)$$

第二部分积分在时间实轴上进行, Φ_s 是纯实数, 可以发现这个相位与QTMC的轨道相位(24)式在不考虑库仑势的情况下完全一样. 第一部分 Φ_s^t 是从鞍点到鞍点实部的相位积累, 该过程物理上可以理解成电子在势垒中发生隧穿. Φ_s^t 为复数, 实部对应了隧穿的初始相位, 从虚部可以获得隧穿概率[63]. 电离率可以写成

$$M_{\mathbf{p}} \sim \sum_s P(t_s) \exp(i\Phi_s^t) \exp(i\Phi_s). \quad (55)$$

上式的确与(23)式相同, 这样我们就将强场近似理论与半经典理论联系起来. 惟一的区别在于QTMC的隧穿概率幅是实数, 而此处隧穿概率幅 $P(t_s) \exp(i\Phi_s^t)$ 是复数, 这意味着不同轨道的初始相位不一定相同. 现在我们可以给强场近似赋予一个经典的物理过程, 电子从 t_r 时刻隧穿成为自由电子, 然后在外场的作用下做经典运动, 忽略库仑势, 末态动量为 \mathbf{p} 的电子可以由(22)式反推出隧穿出口处的初始动量

$$\mathbf{p}_0 = \mathbf{p} + \mathbf{A}(t_r). \quad (56)$$

电子在电离时刻 t_r 的初始位置可以利用虚时理论[64]中的假设确定, 该理论认为电子在 t_s 到 t_r 期间是在势垒中运动, 轨迹遵循量子轨迹. 量子轨迹的定义满足如下两个边界条件: 1) 电子在隧穿起始的位置实部为零, 即 $\text{Re}(\mathbf{r}(t_s)) = 0$; 2) 电子在隧穿出口处的经典量应该为实数, 即 $\text{Im}(\mathbf{r}(t_r)) = \text{Im}(\mathbf{p}(t_r)) = 0$. 可以构造出满足以上条件的量子轨迹

$$\mathbf{r}_q(t) = \int^t \mathbf{A}(\tau) d\tau - \text{Re} \left[\int^{t_s} \mathbf{A}(\tau) d\tau \right],$$

那么隧穿出口的位置可以写成

$$\mathbf{r}_0 = \mathbf{r}_q(t_r) = \text{Re} \left[\int_{t_s}^{t_r} \mathbf{A}(\tau) d\tau \right]. \quad (57)$$

至此我们基本完成了将强场近似改造为半经典方法的工作. 从跃迁概率幅出发, 借助数学手段将其转化为求和形式, 对求和的每一项赋予经典物理意义, 可看作不同时刻发生隧穿最终能达到相同末态动量的电子对电离率的贡献, 并且求出电子在隧穿出口的初始位置、初始动量以及隧穿概率等经典物理量.

在准静极限下, 光场可看作静电场, 假设光场沿 z 方向, $A_z(t) = -Ft$, 代入鞍点方程(51)式有

$$\frac{1}{2} [(p_z - Ft_r - iFt_i)^2 + p_x^2] + I_p = 0.$$

在此仅考虑 xz 平面, 可以求得鞍点

$$t_r = \frac{p_z}{F}, \quad t_i = \frac{\sqrt{2I_p + p_x^2}}{F}.$$

代入(56)式可以得到初始动量

$$p_{0x} = p_x, \quad p_{0z} = p_z - Ft_r = 0.$$

从上式可看出, 在满足准静条件时, 初始纵向动量为零. 对于初始位置有

$$r_z = \text{Re} \left[\int_{t_s}^{t_r} -F\tau d\tau \right] = -\frac{Ft_i^2}{2} \approx -\frac{I_p}{F}.$$

与朗道给出的静电场中隧穿出口 (9) 式一致. 最后计算电离概率

$$W = |P(t_s) \exp(i\Phi_s^t)|^2 \propto \exp(-2\text{Im}\Phi_s^t),$$

其中隧穿相位的虚部

$$\begin{aligned} \text{Im}\Phi_s^t &= \text{Im} \int_{t_r}^{t_s} \left\{ \frac{(p_z - F\tau)^2 + p_x^2}{2} + I_p \right\} d\tau \\ &= \left(\frac{p_x^2}{2} + I_p \right) t_i - \frac{F^2 t_i^3}{6} \\ &= \frac{(p_x^2 + 2I_p)^{3/2}}{3F}. \end{aligned}$$

可以得到电离率为

$$\begin{aligned} W &\propto \exp\left(-\frac{2(p_x^2 + 2I_p)^{3/2}}{3F}\right) \\ &\approx \exp\left[-\frac{2(2I_p)^{3/2}}{3F} \left(1 + \frac{3}{2} \frac{p_x^2}{2I_p}\right)\right] \\ &\propto \exp\left(-\frac{2(2I_p)^{3/2}}{3F}\right) \exp\left(\frac{p_x^2 \sqrt{2I_p}}{F}\right). \end{aligned}$$

上述结果在指数因子上与 QTMC 模型采用的电离率完全一样, 这也证实了这几种方法的一致性与有效性. 以上推导只是强场近似方法的一种特殊情况, 事实上该方法的适用范围十分广泛. 原则上对于一般形式的光场都可用强场近似法, 只不过此时在隧穿出口处纵向初始速度一般不为零, 并且电离概率与初始横向速度的关系也不再是中心为零的高斯分布. 这些差异将导致在不满足准静条件的情况下强场近似结果与绝热 QTMC 方法不一致, 此处绝热即表示准静. 这种不一致的现象统称为非绝热现象, 将在第 4 部分举例说明.

3.3 数值实现与库仑势修正

上一节给出了正统的强场近似方法计算电子电离动量谱分布的步骤, 忽略电子电离后受到的库仑势影响, 初步实现了半经典化, 将积分形式的跃迁概率幅写成不同时刻电离的电子概率幅求和, 并得到了不同时刻电离的电子初始位置和初始动量. 半经典化后的强场近似用数值方法实现的步骤和 2.4 节基本相同, 该步骤是半经典方法的通用步骤, 区别在于第一步中的采样方式. 强场近似方法首先给定末态动量, 通过鞍点方程 (51) 式求出所有解, 这些解对应的电子就是采取的样本. 然后从初始条件 (57) 和 (56) 式出发, 求解不包含库仑势的运动方程, 得到的末态动量必然就是给定的末态动量, 最后将末态动量相同的电子收集起来, 对包含轨道

相位的电离概率求和, 得到的就是 (55) 式. 也就是说, 在不考虑库仑势的情况下, 对给定末态动量的所有鞍点采样, 就可以由半经典方法的步骤实现强场近似.

在强场近似方法中加入库仑效应有多种方法, 其中之一是从 (42) 式出发, 将 Dyson 方程的第二个形式 (41) 式代入 (42) 式, 近似取到一阶项得:

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}} &= -i \int_{t_0}^{t_f} \langle \psi_{\mathbf{p}}(t_f) | U_f(t_f, \tau) V_{\text{int}}(\tau) | \psi_0(\tau) \rangle d\tau \\ &\quad - \int_{t_0}^{t_f} \int_{\tau_1}^{\tau_2} \langle \psi_{\mathbf{p}}(t_f) | U_f(t_f, \tau_2) V_a U(\tau_2, \tau_1) \\ &\quad \times V_{\text{int}}(\tau_1) | \psi_0(\tau_1) \rangle d\tau_1 d\tau_2. \end{aligned}$$

第一项就是忽略库仑势的强场近似电离率, 也叫作直接电离项, 物理上该电子电离后不再与母核发生作用. 第二项被称为一次再散射项, 其物理意义是, 处于初态的电子在 τ_1 时刻被相互作用势 $V_{\text{int}}(\tau_1)$ 电离, 然后在库仑势和光场共同作用下经演化算符 $U(\tau_2, \tau_1)$ 传播到 τ_2 时刻, 在 τ_2 时刻与母核发生相互作用并发生散射, 最后电子在光场作用下经演化算符 $U_f(t_f, \tau_2)$ 传播到激光结束. 如果利用 (41) 式替换再散射项的 $U(\tau_2, \tau_1)$, 则可以写出更高阶的项, 表示多次散射. 此方法是量子方法, 具体工作参考文献 [55, 59, 60, 65, 66]. 如果考虑电离电子受库仑势的影响, 即末态不再取为忽略库仑势的自由电子本征态 Volkov 态, 而采用同时包含库仑势和光场的哈密顿量本征态 Coulomb-Volkov (CV) 态, 这就是常见的 CVA (Coulomb-Volkov approximation) 方法 [67–76].

本文主要介绍经典的考虑库仑效应的方法, 即库仑修正强场近似方法 [17, 77–79]. 该方法以半经典强场近似为出发点, 通过求解鞍点方程, 得到电离时刻和对应的初始位置、初始动量以及隧穿概率, 在电子受光场驱动做经典运动的过程中考虑库仑势, 运动方程同 (18) 式. 然而需要注意的是, 库仑势的影响会导致从运动方程求解出的电子末态动量不同于采样时给定的动量, 甚至当电子在运动过程中距离原子核太近时还会发生散射, 这样电子动量可能发生很大的偏转甚至反向. 也就是说, 由同一个鞍点方程得到的各个解对应的不同时刻出射的电子, 最后可能不再达到相同的末态动量, 这样电离率计算公式 (55) 是否依然有效值得商榷. 我们在此说明, 虽然轨道的库仑修正在数学上是不严谨的, 得到的结果在很大程度上却是有效的.

半经典方法中另外一个受到库仑势影响的是轨道相位, 文献 [17,79] 中使用的是和 QTMC 方法相同的 (24) 式, 此文献中对相位的库仑修正推导过程有同样疏漏 (见 2.3 节的讨论). 强场近似方法的传播子相位与 2.3 节的稍有不同, 从强场近似方法相位的来源 (见 (48) 式推导) 可以看出, 应该使用动量空间到动量空间的作用量. 文献 [77, 78] 中使用动量空间到动量空间的传播子相位:

$$\Phi = \int_{t_0}^{\infty} (L - I_p) dt - \mathbf{v}_{\infty} \cdot \mathbf{r}_{\infty} + \mathbf{v}_0 \cdot \mathbf{r}_0, \quad (58)$$

其中拉格朗日量为 $L = \mathbf{v} \cdot \dot{\mathbf{r}} - H$. 该表达式的库仑势修正也表现在哈密顿量的库仑势修正与运动方程修正项部分, 文献中进行了详细研究. 将上式进行分部积分, 可以得到与 2.3 小节中相同的形式:

$$\begin{aligned} \Phi &= I_p t_0 + \int_{t_0}^{\infty} [-\mathbf{r}(t) \cdot \dot{\mathbf{v}}(t) - H] dt \\ &= I_p t_0 - \int_{t_0}^{\infty} \left[\frac{v(t)^2}{2} - \frac{2Z}{r(t)} \right] dt. \end{aligned} \quad (59)$$

上式没有与初始纵向速度相关的初始相位, 并且正确的库仑修正项系数因子为 2. 理论上 (58) 和 (59) 式两种形式的库仑修正是完全相同的, 相比之下后者的形式较为简单, 易于程序实现.

在动量空间的采样策略同样有两种, 一种是直接在动量空间中取均匀格点, 遍历所有动量格点求解鞍点方程, 与每个解相对应的电子作为样本. 这种策略在不考虑库仑势作用时是可行的, 因为前面讨论过当没有库仑势时同一个鞍点方程得到的样本最后将回到相同的末态动量, 不存在统计上的收敛性. 当考虑了库仑势之后, 电子末态动量将无法预计, 最后需要收集末态动量相近的电子做统计. 为了达到一定的统计精度, 需要足够数量的电子, 动量格点要取得十分密集, 这时可以使用另外一种采样策略. 在动量空间中均匀随机地采点, 根据蒙特卡罗的思想, 可以降低采样数目达到相同的统计效果, 从而提高效率.

3.4 高效实现 CCSFA

以上两种半经典方法都具有鲜明的物理图像, 实现步骤与物理过程基本一致, 主要分为隧穿、传播和探测三步. 但在细节上两种方法各有优缺点. QTMC 方法直接对隧穿出口和初始横向动量两个参数进行采样, 然后直接计算得到电子的隧穿概率和初始条件. 第二步求解运动微分方程组是整个过

程中相对耗时的步骤. 对于目前计算机的并行计算速度而言, 对 10^9 量级的样本计算运动方程, 完成一个电子谱的计算只需要不到一个小时. 因此 QTMC 方法是一种高效的半经典方法. 然而该方法的局限性在于第一步的隧穿过程用到了准静条件, 电离率和初始条件都是从电子在准静场下的隧穿求解而来, 使得此方法适用范围比较小, 仅仅在满足绝热条件如激光波长较长的时候才能给出较好的结果. 相比而言, CCSFA 方法的出发点为强场近似, 推导过程只用到了强场条件而不需要绝热条件. 因此从强场近似半经典化后得到的初始动量分布和初始条件等可用于非绝热情况, 适用的范围更广, 在激光参数不满足绝热条件时也能很好地重复出非绝热现象 (第 4 部分将举例说明). 但 CCSFA 方法的缺点在于其采样过程不是直接的, 先在动量空间进行采样, 再对每个动量求解鞍点方程得到样本, 继而得到该样本的初始条件和电离率. 求解鞍点方程的过程相当耗时, 平均对每个样本而言, 求解鞍点方程的时间可能远大于传播的时间. 因此常规的在动量空间采点的 CCSFA 方法是一种非常耗时的半经典方法.

我们结合了 QTMC 方法和 CCSFA 方法的优点, 提出了一种高效实现 CCSFA 的方法 [80]. 该方法使用的是半经典强场近似的初始条件和电离率, 但采样过程和 QTMC 方法类似, 避免了求解鞍点方程的过程, 从而将效率提高到与 QTMC 方法同量级. 此方法的核心在于, 在复时间平面上随机采点, 首先得到鞍点值 $t_s = t_r + it_i$. 以时间为参数, 电子的初始位置、初始动量和电离率等都可以表示成时间的函数并直接求得. 假设考虑极化方向沿 z 方向的有限长线偏振光

$$\mathbf{A}(t) = A_z \hat{e}_z = A_0 \cos^2(\beta t) \sin(\omega t + \phi) \hat{e}_z, \quad (60)$$

其中 $\beta = \pi/T = \omega/(2N_c)$, 脉冲从 $-T/2$ 开始到 $T/2$ 结束, N_c 是脉冲总周期数. 电场矢势的函数延拓到复数域是解析函数. 仅考虑电子在 xz 平面的运动, 鞍点方程将化成代数方程

$$\begin{aligned} p_z + A_r(t_r, t_i) &= 0, \\ p_x^2 + 2I_p - A_i^2(t_r, t_i) &= 0. \end{aligned} \quad (61)$$

从上面的方程可以看出, 我们的采样方法的根本优势在于, 由已知时间来求解动量是一个相对简单的二次方程, 而如果按照传统采样方式, 由已知动量

通过鞍点方程求解时间则是一个复杂的非线性方程组. 在这里动量变量可以直接用采点时间表示:

$$\begin{aligned} p_z &= -A_r(t_r, t_i), \\ p_x &= [A_i^2(t_r, t_i) - 2I_p]^{1/2}. \end{aligned} \quad (62)$$

初始位置、初始动量可以由 (57) 和 (56) 式得到:

$$\begin{aligned} x_0 &= 0, \\ z_0 &= \text{Re} \int_{t_s}^{t_r} A_z(\tau) d\tau, \\ v_{0x} &= [A_i^2(t_r, t_i) - 2I_p]^{1/2}, \\ v_{0z} &= -A_r(t_r, t_i) + A_z(t_r, 0). \end{aligned}$$

(54) 式中的隧穿相位为

$$\begin{aligned} \Phi_s^t &= i \left(\frac{1}{2} p_x^2 + \frac{1}{2} p_z^2 + I_p \right) t_i \\ &\quad - p_z \int_{t_s}^{t_r} A_z(\tau) d\tau - \frac{1}{2} \int_{t_s}^{t_r} A_z^2(\tau) d\tau. \end{aligned}$$

上面各式均可以在已知时间 $t_s = t_r + it_i$ 的情况下直接计算得到, 其中涉及的几个积分, 对于 \cos^2 包络的光场可以得到解析表达式, 对于一般光场则需要做数值积分, 不过这个过程并不耗时.

最后一个关键点在于, 我们的这种采样方式, 在无库仑势时的结果必须和常规强场近似一样才能证实其有效性, 也就是需要保证在没有库仑势的情况下, 我们的采样方式得到的末态动量分布在动量空间是均匀的. 那么在时间平面采点就需要满足某种分布, 或者如果在时间平面均匀采点, 就需要对每个样本乘上一个权重因子. 可知此时我们需要考虑的权重因子为变换的雅克比矩阵

$$\mathbf{J}(t_s) = \mathbf{J}(t_r, t_i) = \begin{vmatrix} \frac{\partial p_x}{\partial t_r} & \frac{\partial p_x}{\partial t_i} \\ \frac{\partial p_z}{\partial t_r} & \frac{\partial p_z}{\partial t_i} \end{vmatrix}, \quad (63)$$

其中的每一项可由 (62) 式求出. 在我们的方案中, 对时间进行均匀采点, 样本的隧穿概率幅应该写成等效隧穿概率幅:

$$P_{\text{eff}}(t_s) = \mathbf{J}(t_s) P(t_s) \exp(i\Phi_s^t). \quad (64)$$

使用 2.4 节的步骤进行数值实现, 就可以具有 QTMC 相同的计算效率, 并得到与 CCSFA 相同的结果.

4 半经典方法的应用

半经典方法的优势在于能以清晰的物理图像研究强场中原子分子中电子的动力学过程, 在经

典轨道描述下, 更容易实现对电子运动的操控. 对电子运动的深入研究, 最大的功劳之一就是催生了利用高次谐波产生阿秒激光的技术 [81,82], 促进了阿秒技术的发展 [83,84]. 忽略库仑势的强场近似理论已经得到广泛使用, 例如描述负离子脱附过程 [85,86], 解释电子谱高能平台区 [87] 和高次谐波谱平台区 [58] 等典型的强场物理现象. 考虑库仑势的半经典方法, 可以描述椭圆光下动量谱的库仑不对称性 [88-90]; 解释受挫电离现象 [31,32,91,92] 以及各种二维谱结构的产生原因, 对不同的结构利用不同类型的电子轨道产生的贡献进行区分 [93-98]; 研究阈值附近的动量谱结构 [99-102]、长波长下的低能谱结构 [103-107]. 接下来我们举例使用半经典方法研究电子电离的物理过程, 首先我们利用半经典方法的优势, 分析不同轨道的电子对动量谱干涉结构的贡献; 其次我们对比使用绝热 QTMC 方法和非绝热 CCSFA 方法的结果, 研究电子隧穿非绝热效应.

4.1 电子谱干涉结构

随着实验精度的提高, 实验上能够得到更高分辨率的电子二维动量谱 [93], 该动量谱呈现出了丰富的结构, 蕴含着复杂的物理过程. 使用 TDSE 方法数值模拟得到的动量谱也可以几乎重复出全部的干涉结构. 就现在的计算能力而言, 数值模拟的动量谱分辨率高于目前实验所能达到的最高分辨率, 所以我们可以使用数值模拟来研究动量谱的干涉结构. 图 2(a) 给出的是一个典型的使用 TDSE 方法计算红外强激光作用下氢原子电离电子的二维动量谱, 选用峰值光强为 $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 波长为 1600 nm 的线偏振光 (具体波形见图 3). 这时的 Keldysh 参数为 $\gamma \approx 0.53$, 比较好地符合了绝热条件, 于是我们使用 QTMC 方法进行研究. 图 2(b) 是使用 QTMC 方法给出的在相同激光条件下的二维动量谱. 可以看出半经典方法能够基本重复出主要的干涉结构, 使用 TDSE 方法虽然能够给出更加精确的动量谱, 但是我们无法清楚地描述动量谱干涉结构背后的物理过程. 而半经典方法认为动量谱的结构是不同轨道的电子达到相同末态动量干涉产生的, 我们可以通过追踪电子轨迹, 从而区分出何种轨道的电子贡献哪种干涉条纹.

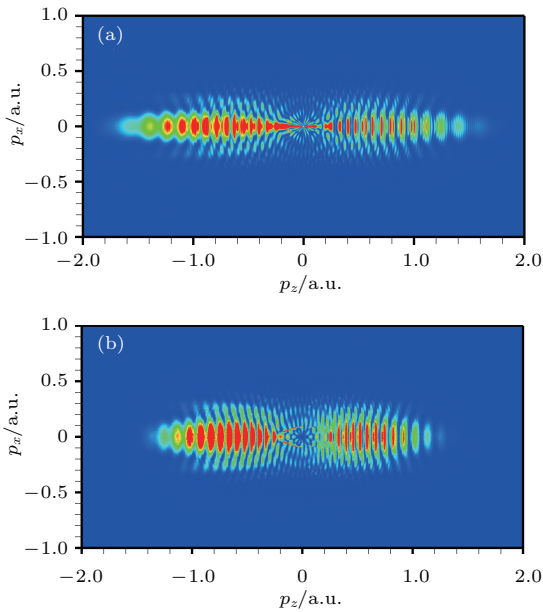


图2 氢原子电离电子的二维动量谱分布 系统由峰值光强为 $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 波长 1600 nm 的 4 周期, \sin^2 包络, 线偏振红外脉冲电离; (a) 由 TDSE 方法求得, (b) 由 QTMC 方法求得

Fig. 2. The 2D photoelectron momentum distributions of hydrogen atom, ionized by a 4-cycle \sin^2 envelope linearly polarized laser pulse at wavelength of 1600 nm and peak intensity of $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. The results are shown from: (a) TDSE method, (b) QTMC method.

我们从简单情况开始考虑, 在不考虑库仑势的情况下, 末态动量与电离时刻的电场矢量相关, 见 (22) 式. 对于偏振方向沿 z 轴的线偏光, 半个周期内出射的电子被电场驱动向 z 轴负方向出射, 贡献动量谱的负 z 轴半平面电子谱, 另外半个周期出射的电子贡献正半平面的电子谱. 在半个周期内, 有两个时刻对应的电场矢量相等, 这两个时刻出射的电子最终会达到相同的末态动量(若初始横向动量相同)而发生周期内的干涉. 如图 3 所示, 图 3(a) 黑色框中半个周期内电离的电子将沿 z 轴负方向出射, 其中电场峰值后(称之为下降沿)四分之一周期电离的电子记为 T2, 电场峰值前(称之为上升沿)四分之一周期电离的电子记为 T1. 从图 3(b) 可以看出, T1 轨道的电子隧穿出口在 z 轴负半轴, 之后电子的运动一直沿 z 轴负方向, 直到被探测器探测到, 这一类电子我们称之为直接电离电子; T2 轨道的电子隧穿出口位于 z 轴正半轴, 受到电场驱动将沿 z 轴负方向运动并通过 z 的零点, 最后从 z 轴负方向出射, 这类电子我们称之为前向散射电子. 需要注意的是, 这里我们忽略了库仑势作用, 电子在

返回核时自然不会被散射, 在考虑库仑势后, 电子接近母核时会受库仑力作用而发生偏转. 当偏转角度较小时, 比如接近母核的速度沿 z 轴负方向, 离开母核的速度依然沿 z 轴负方向的情况, 我们称之为前向散射. 如果电子返回母核距离核较近, 有可能发生大角度偏转, 对于速度反向出射离开母核的情况, 我们称之为背向散射. 这两种类型的电子动量谱干涉结构如图 3(c) 所示. 该干涉结构的特点是, 沿激光极化方向动量越大条纹间距越大, 在能量谱上亦是如此. 原因在于末态动量大的电子, 两种轨道对应电离时刻相距较近, 相位差积累变化较缓慢, 于是能量谱间距较大.

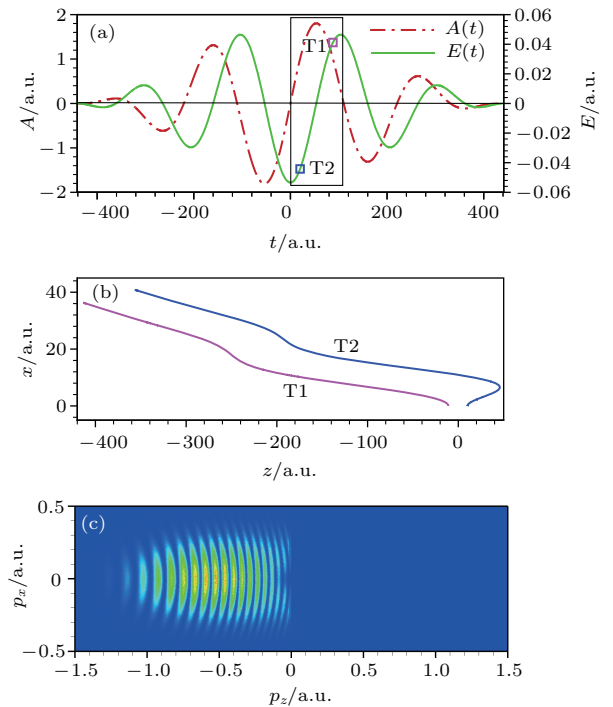


图3 (a) 激光电场与矢量势图, 其中将电离的电子限制在黑色框区域的时间范围内, T1 与 T2 标记的是能到达相同末态动量的两种电子; (b) T1 和 T2 两种电子的运动轨迹; (c) 限制电离后, T1 与 T2 两种轨道电子的动量谱干涉图样, 计算时忽略库仑势作用

Fig. 3. (a) The laser electrical field and vector potential, photoelectrons are restricted in the area of black box, T1 and T2 mark two kind of electrons reaching the same same final momentum; (b) the trajectories of T1 and T2 kinds electrons; (c) the interference structure of the photoelectrons momentum distribution by T1 and T2 electrons. The Coulomb effect is absent in this case.

准单色光场呈周期性结构, 相隔周期整数倍的时刻对应的电场和矢量相同, 于是出射时间间隔周期整数倍电子最终能够达到相同末态动量发生干涉. 我们将电离电子限制在间隔一个周期的

相邻两个半周期时间范围内, 见图 4(a) 的黑色框所示. 每个半周期内上升沿电离的电子 (T11 轨道以及 T12 轨道) 是前向散射电子, 贡献动量谱 z 方向负半平面; 下降沿电离的直接电离电子 (T21 和 T22 轨道) 贡献动量谱正半平面. 相同半个周期内出射的电子分布到动量空间的不同位置不会发生干涉, 而间隔一个周期电离的电子会发生干涉, 见图 4(c). 这种干涉的特点是, 来自相同电离类型的电子, 电离时刻相隔周期整数倍, 所以干涉条纹在能量谱上是等间距的同心圆环, 在动量谱上动量越大条纹越密, 这就是所谓的 ATI 环结构. 我们的例子中仅考虑了相邻一个周期的两个轨道电子, 对于长脉冲将有更多周期的电子干涉, 类比于光栅, 干涉环间距不变但是条纹变得锐利. 这里, 我们从经典角度出发解释了 ATI 环结构的来源, 这种结构来自于周期内电子的干涉, 结果出现间隔一个光子能量的相邻峰结构.

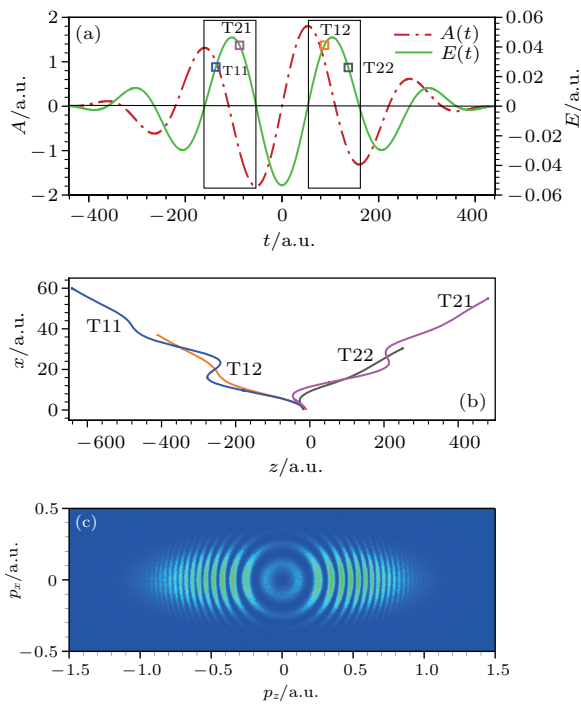


图 4 内容同图 3, 相隔一个周期电离电子的干涉图样, 每个周期内电子被限制在半周期的范围内

Fig. 4. The same as Fig. 3. In this case, the photoelectrons are restricted in a half of each cycle. The interference of inter-cycle electrons is shown.

最后我们考虑库仑势作用. 主要体现在两点: 一是电子运动受到库仑力作用轨迹将有改变, 特别是运动过程中离核较近的电子将可能受到库仑作用而使轨迹发生较大偏转; 二是库仑势对电子轨道的相位积累有贡献. 由于库仑力仅对离核距离

较近的电子作用较大, 对于直接电离电子没有显著影响, 区别主要体现在散射电子, 故我们将电离电子限制在下降沿的四分之一周期处, 见图 5(a). 记录到达某点的电子, 发现有两种前向散射轨道, 见图 5(b) 的 T2 及 T3. 其中 T2 轨道与没有库仑势作用的情况相同, T3 轨道是由于库仑势作用而产生的新的轨道. 从图中可以看到, 两种轨道电子的电离时刻几乎同时, T3 轨道初始的横向动量是一个沿 x 负方向的小量, 返回核时从核下方经过, 过程中受到核向上的作用力从而获得沿 x 正方向的动量. 两种轨道的相位差来源主要是 (24) 式或 (27) 式中的库仑修正项, 干涉条纹呈角向分布的瓣状结构, 见图 5(c). 这种结构对核的作用势敏感 (参看图 1 结果), 故可以作为一种探测母核结构的手段.

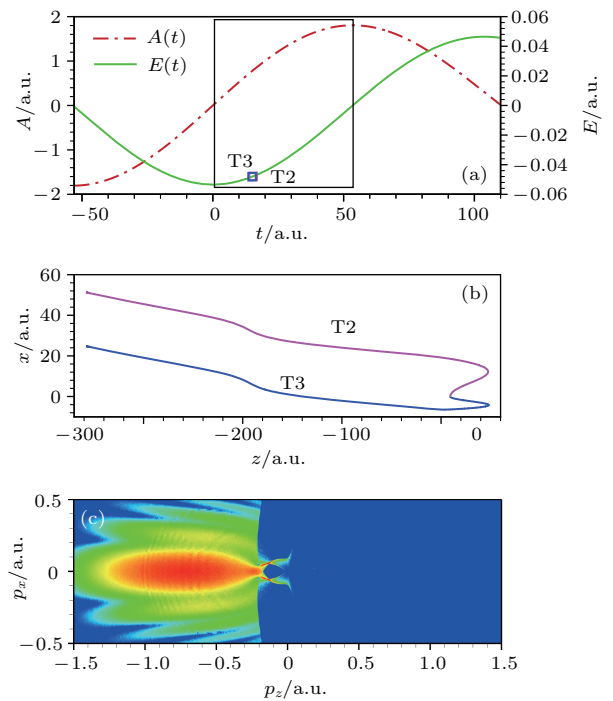


图 5 内容同图 3, 考虑库仑势作用后, 下降沿电离的两种前向散射电子的干涉

Fig. 5. The same as Fig. 3. In this case, the Coulomb effect is considered. Photoelectrons are restricted in the quarter of cycle after the peak of the electrical field. Two kinds of forward scattering electrons get interference.

上面的例子介绍了利用半经典方法研究电子动量谱干涉结构的形成原因, 例子中使用了简单的线偏振光并给出了最主要的三种干涉结构的来源. 在某些激光参数下, 除了上述的几种典型的轨道之外, 还存在许多复杂的散射轨道, 例如文献 [93] 中的多次返回核散射轨道, 和文献 [108,109] 中研究的

横向散射轨道等. 这些轨道和相应的干涉条纹均可以利用半经典方法的优势进行细致研究. 再者, 对于更复杂的光场, 半经典方法同样适用, 文献 [110] 中研究了垂直双色场下波包的干涉, 文献 [111,112] 中用半经典方法给出了双色圆偏光场下的动量谱.

4.2 非绝热效应

上一节我们在绝热条件近似成立的激光参数下进行了干涉结构的研究, 此时两种半经典方法得到的结果基本一样, 于是我们使用了直接的 QTMC 方法进行计算. 如果绝热条件不满足, 两种半经典方法所得到的结果则存在差异, 这种差异我们可以归结为非绝热效应, 因此只要使用两种半经典方法进行对比, 就可以对非绝热效应进行研究. 概括而言, 非绝热效应体现在隧穿概率、初始动量

和隧穿出口位置等方面. 部分文献对 QTMC 方法进行了非绝热修正, 例如文献 [113] 中使用了非绝热条件下的隧穿概率 [114], 在非绝热条件下能得到更佳的结果. 但是该方法并没有对非绝热初始动量进行修正, 考虑初始动量分布的非绝热隧穿率可以参考文献 [115]. 从强场近似出发的半经典方法是一种自然包含非绝热隧穿概率和非绝热初始动量以及隧穿出口的方法 [116,117], 用此方法能够得到较完整的非绝热结果. 非绝热效应研究的意义在于, 现在许多实验在非绝热条件下进行, 最典型的如阿秒钟实验 [118-120], 该实验使用圆偏振光电离, 在圆偏振光下非绝热效应尤其明显. 实验中为了校准光强必须考虑非绝热效应, 为此出现了许多关于圆偏振光下非绝热效应的隧穿出口处动量分布研究 [90,121-124].

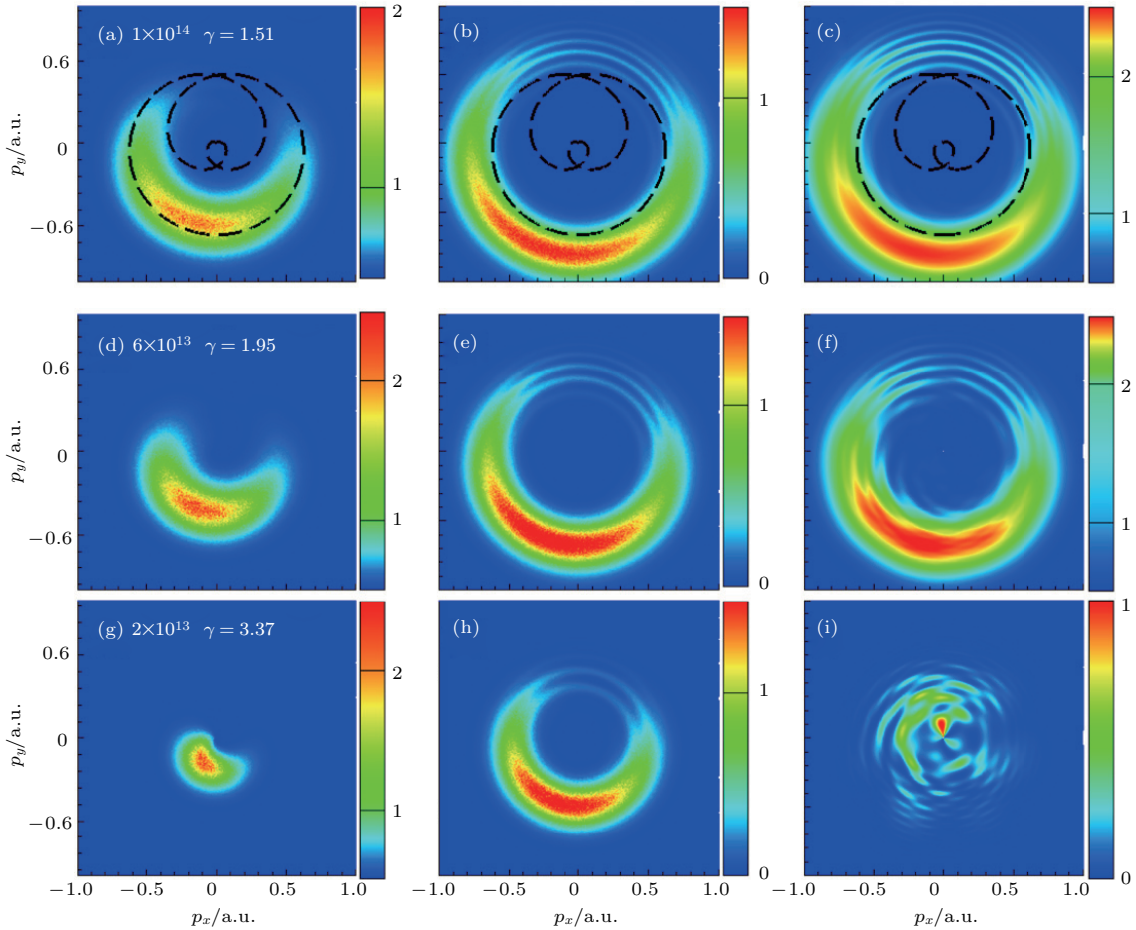


图6 3周期, 800 nm 圆偏振光下氢原子电离动量谱 三行分别在 1×10^{14} , 6×10^{13} , 2×10^{13} W/cm² 三个光强下进行计算. 三列从左到右依次使用 QTMC, CCSFA 和 TDSE 方法; 第一行中的黑色虚线表示激光矢势的负值 [19]

Fig. 6. The 2D photoelectron momentum distributions of hydrogen atom, ionized by a 3-cycle circularly polarized laser pulse at wavelength of 800 nm. The peak intensity of 1×10^{14} , 6×10^{13} , 2×10^{13} W/cm² are used in three line respectively. The results are calculated by QTMC (the left column), the CCSFA (the middle column), and the TDSE method (the right column) respectively. The negative value of laser vector potential is shown as the black dash line in the top line (adapted from Ref. [19]).

绝热也即准静近似认为电子在隧穿过程中电场不变, 隧穿后的电子初始动量分布沿电场方向为零, 垂直于电场方向是以零为中心的高斯分布. 在圆偏振光下, 电子在隧穿出口的初始横向动量分布(垂直于电场方向的动量)不再以零为中心^[125]. 利用两种半经典方法对比可以直接得到初始横向动量^[19]. 图6取自文献[19], 每一列对应不同的方法, 从左至右依次为QTMC, CCSFA 和 TDSE 的结果; 每一行对应不同的光强, 从上往下依次减小, 激光参数均不满足绝热条件, 即 $\gamma > 1$. 使用非绝热方法 CCSFA 计算的结果和 TDSE 方法能够很好地符合, 然而绝热方法 QTMC 计算得到的动量谱圆环的半径小了许多. 前面提到电子末态动量和电场矢势的关系(22)式, 对于初始动量为零的绝热情况, 末态动量大小就等于电离时刻的电场矢势, 图6第一行的黑色虚线给出了电场矢势. 可以看到绝热情况下的 QTMC 结果动量的确接近电场矢势, 比矢势略小是由于库仑聚焦作用; 而 TDSE 和 CCSFA 结果中的动量大于电场矢势. 直接分析可以知道 CCSFA 与 QTMC 两种方法得到的动量环半径的差值就是电子隧穿出口处的初始横向动量.

上面的例子简单地诠释了利用半经典方法研究非绝热初始动量的思路. 一般对于非一维的光场, 由于电场方向随时间变化, 非绝热效应都会显著. 半经典方法能够用于任意复杂的光场, 文献[117]中详细研究了双色垂直光场下的非绝热效应, 加深了对非绝热效应的理解.

5 结论与展望

本文重点介绍了强场物理中的半经典方法. 半经典方法有清晰简单的物理图像, 对计算资源消耗少, 已被广泛应用于解释强场中原子和分子领域的各种物理现象.

全文沿着历史发展的脉络, 详细地阐述了目前最主流的两种半经典方法的思路以及具体实现步骤. 以三步模型为出发点, 考虑电子在电场作用下从束缚态隧穿成为自由电子并量化隧穿概率, 然后用经典轨道描述电子在外场下的运动, 最后给电子赋予轨道相位信息从而发展成为 QTMC 方法. 另一方面, 以强场近似为出发点, 通过鞍点方法赋予电子轨道信息, 然后再考虑库仑修正, 最终形成 CCSFA 方法. 两种方法各有优缺点, 结合其本身

特点与具体问题, 介绍了两种方法的应用示例.

本文中方法的介绍和推导是基于简单的类氢原子单电子系统, 是半经典方法的基础. 半经典方法还可以拓展到复杂分子或者多电子系统, 研究多中心分子系统的电子电离动力学过程, 或者电子非序列双电离中的电子关联等. 对于更复杂的系统, 物理图像依然是简单的, 只不过可能涉及多体问题的求解. 在分子和多电子体系, 将会有更加丰富的物理过程等待探索, 因此我们需要继续发展有效的半经典方法来解释更多更复杂的现象.

参考文献

- [1] Göppert-Mayer M 1931 *Ann. Phys.* **9** 273
- [2] Breit G, Wheeler J A 1934 *Phys. Rev.* **46** 1087
- [3] Maiman T H 1960 *Nature* **187** 493
- [4] Brabec T, Krausz F 2000 *Rev. Mod. Phys.* **72** 545
- [5] Voronov G S, Delone N B 1965 *JETP Lett.* **1** 66
- [6] Voronov G S, Delone G A, Delone N B, Kudrevatova O V 1965 *JETP Lett.* **2** 377
- [7] Agostini P, Barjot G, Bonnal J, Mainfray G, Manus C, Morellec J 1968 *IEEE J. Quantum Electron.* **4** 667
- [8] Agostini P, Fabre F, Mainfray G, Petite G, Rahman N K 1979 *Phys. Rev. Lett.* **42** 1127
- [9] Keldysh L V 1964 *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **47** 1945 [Keldysh L V 1965 *Sov. Phys. -JETP* **20** 1307 (Engl. transl.)]
- [10] Faisal F H M 1973 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **6** L89
- [11] Reiss H R 1980 *Phys. Rev. A* **22** 1786
- [12] Perelomov A M, Popov V S, Terent'ev M V 1966 *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **50** 1393 [Perelomov A M, Popov V S, Terent'ev M V 1966 *Sov. Phys. -JETP* **23** 924 (Engl. transl.)]
- [13] Ammosov M V, Delone N B, Krainov V P 1986 *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **91** 2008 [Ammosov M V, Delone N B, Krainov V P 1986 *Sov. Phys. -JETP* **64** 1191 (Engl. transl.)]
- [14] Corkum P B, Burnett N H, Brunel F 1989 *Phys. Rev. Lett.* **62** 1259
- [15] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [16] Li M, Geng J W, Liu H, Deng Y, Wu C, Peng L Y, Gong Q, Liu Y 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 113002
- [17] Yan T M, Popruzhenko S V, Vrakking M J J, Bauer D 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 253002
- [18] Hu B, Liu J, Chen S 1997 *Phys. Lett. A* **236** 533
- [19] Geng J W, Qin L, Li M, Xiong W H, Liu Y, Gong Q, Peng L Y 2014 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **47** 204027
- [20] Mohideen U, Sher M H, Tom H W K, Aumiller G D, Wood O R, Freeman R R, Boker J, Bucksbaum P H 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 509
- [21] 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
- [22] Landau L D, Lifshits E M 1963 *Quantum Mechanics* (2nd Ed.) (Moscow: Fizmatlit)

- [23] Smirnov B M, Chibisov M I 1966 *Sov. Phys. JETP* **22** 585
- [24] Popov V S 2004 *Usp. Fiz. Nauk* **174** 921
- [25] Popov V S 2004 *Phys. Usp.* **47** 855
- [26] Hartree D R 1927 *Proc. Camb. Phil. Soc.* **24** 89
- [27] Delone N B, Krainov V P 1991 *J. Opt. Soc. Am. B* **8** 1207
- [28] Delone N B, Krainov V P 1985 *Atoms in Strong Light Fields* (Berlin, New York: Springer-Verlag)
- [29] Krainov V P 1997 *J. Opt. Soc. Am. B* **14** 425
- [30] Chen J, Liu J, Chen S G 2000 *Phys. Rev. A* **61** 033402
- [31] Nubbemeyer T, Gorling K, Saenz A, Eichmann U, Sandner W 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 233001
- [32] Shvetsov-Shilovski N I, Goreslavski S P, Popruzhenko S V, Becker W 2009 *Laser Phys.* **19** 1550
- [33] Shvetsov-Shilovski N I, Dimitrovski D, Madsen L B 2012 *Phys. Rev. A* **85** 023428
- [34] Feynman R P 1948 *Rev. Mod. Phys.* **20** 367
- [35] Milošević D B 2013 *J. Math. Phys.* **54** 042101
- [36] Salieres P, Carré B, Le Déroff L, Grasbon F, Paulus G G, Walther H, Kopold R, Becker W, Milošević D B, Sanpera A, Lewenstein M 2001 *Science* **292** 902
- [37] Shvetsov-Shilovski N I, Lein M, Madsen L B, Räsänen E, Lemell C, Burgdärfer J, Arbó D G, Tökési K 2016 *Phys. Rev. A* **94** 013415
- [38] Popruzhenko S V 2014 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **47** 204001
- [39] Frolov M V, Manakov N L, Silaev A A, Vvedenskii N V 2010 *Phys. Rev. A* **81** 063407
- [40] Frolov M V, Manakov N L, Sarantseva T S 2011 *Phys. Rev. A* **83** 043416
- [41] Frolov M V, Manakov N L, Silaev A A, Vvedenskii N V, Starace A F 2011 *Phys. Rev. A* **83** 021405
- [42] Frolov M V, Knyazeva D V, Manakov N L, Popov A M, Tikhonova O V, Volkova E A, Xu M H, Peng L Y, Pi L W, Starace A F 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 213002
- [43] Frolov M V, Manakov N L, Sarantseva T S, Starace A F 2012 *Phys. Rev. A* **86** 063406
- [44] Frolov M V, Manakov N L, Popov A M, Tikhonova O V, Volkova E A, Silaev A A, Vvedenskii N V, Starace A F 2012 *Phys. Rev. A* **85** 033416
- [45] Frolov M V, Knyazeva D V, Manakov N L, Geng J W, Peng L Y, Starace A F 2014 *Phys. Rev. A* **89** 063419
- [46] Shivaram N, Timmers H, Tong X M, Sandhu A 2011 *Phys. Rev. Lett.* **108** 193002
- [47] Chu S I, Telnov D A 2004 *Phys. Rep.* **390** 1
- [48] Kaushal J, Smirnova O 2013 *Phys. Rev. A* **88** 013412
- [49] Torlina L, Smirnova O 2012 *Phys. Rev. A* **86** 043408
- [50] Barth I, Friedland L, Gat O, Shagalov A G 2011 *Phys. Rev. A* **84** 013837
- [51] Gordon W 1926 *Z. Phys.* **40** 117
- [52] Wolkow D M 1935 *Z. Phys.* **94** 250
- [53] Volkov D M 1937 *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **7** 1286
- [54] Berestetskii V B, Lifshitz E M, Pitaevskii L P 1982 *Quantum Electrodynamics* (2nd Ed.) (Oxford: Pergamon)
- [55] Becker W, Grasbon F, Kopold R, Milošević D B, Paulus G G, Walther H 2002 *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **48** 35
- [56] Bleistein N, Handelsman R A 1986 *Asymptotic Expansions of Integrals* (New York: Dover Publications, Inc.)
- [57] Gribakin G F, Kuchiev M Y 1997 *Phys. Rev. A* **55** 3760
- [58] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, L'Huillier A, Corkum P B 1994 *Phys. Rev. A* **49** 2117
- [59] Figueira De Morrison Faria C, Schomerus H, Becker W 2002 *Phys. Rev. A* **66** 043413
- [60] Milošević D B, Paulus G G, Bauer D, Becker W 2006 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **39** R203
- [61] Kitzler M, Milosevic N, Scrinzi A, Krausz F, Brabec T 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 173904
- [62] Geng J W, Peng L Y, Song S N, Gong Q 2013 *Phys. Rev. A* **88** 053418
- [63] Popruzhenko S V, Mur V D, Popov V S, Bauer D 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 193003
- [64] Popov V S 2005 *Phys. At. Nucl.* **68** 686
- [65] Suárez N, Chacón A, Ciappina M F, Biegert J, Lewenstein M 2015 *Phys. Rev. A* **92** 063421
- [66] Guo L, Han S S, Liu X, Cheng Y, Xu Z Z, Fan J, Chen J, Chen S G, Becker W, Blaga C I, DiChiara A D, Sistrunk E, Agostini P, DiMauro L F 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 013001
- [67] Jain M, Tzoar N 1978 *Phys. Rev. A* **18** 538
- [68] Cavalieri P, Ferrante G, Leone C 1980 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **13** 4495
- [69] Dorr M, Shakeshaft R 1987 *Phys. Rev. A* **36** 421
- [70] Shakeshaft R, Potvlige 1987 *Phys. Rev. A* **36** 5478
- [71] Basile S, Trombetta F, Ferrante G 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 2435
- [72] Jaron A, Kaminski J Z, Ehlötzky F 1999 *Opt. Commun.* **163** 115
- [73] Paulus G G, Grasbon F, Dreischuh A, Walther H, Kopold R, Becker W 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 3791
- [74] Arbó D G, Miraglia J E, Gravielle M S, Schiessl K, Persson E, Burgdörfer J 2008 *Phys. Rev. A* **77** 013401
- [75] Kornev A S, Zon B A 2002 *Laser Phys.* **12** 795
- [76] Kornev A S, Zon B A 2002 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **35** 2451
- [77] Popruzhenko S V, Paulus G G, Bauer D 2008 *Phys. Rev. A* **77** 053409
- [78] Popruzhenko S V, Bauer D 2008 *J. Mod. Opt.* **55** 2573
- [79] Yan T M, Bauer D 2012 *Phys. Rev. A* **86** 053403
- [80] Xiao X R, Wang M X, Xiong W H, Peng L Y 2016 *Phys. Rev. E* (in press)
- [81] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, Reider G A, Milosevic N, Brabec T, Corkum P, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2001 *Nature* **414** 509
- [82] Paul P M, Toma E S, Breger P, Mullot G, Auge F, Balcou P, Muller H G, Agostini P 2001 *Science* **292** 1689
- [83] Peng L Y, Jiang W C, Geng J W, Xiong W H, Gong Q 2015 *Phys. Rep.* **575** 1
- [84] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [85] Gazibegović-Busuladžić A, Milošević D B, Becker W 2007 *Opt. Commun.* **275** 116
- [86] Korneev P A, Popruzhenko S V, Goreslavski S P, Becker W, Paulus G G, Fetić B, Milošević D B 2012 *New J. Phys.* **14** 055019

- [87] Lohr A, Kleber M, Kopold R, Becker W 1997 *Phys. Rev. A* **55** R4003
- [88] Goreslavski S P, Paulus G G, Popruzhenko S V, Shvetsov-Shilovski N I 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 233002
- [89] Chelkowski S, Bandrauk A D 2005 *Phys. Rev. A* **71** 053815
- [90] Li M, Liu Y, Liu H, Ning Q, Fu L, Liu J, Deng Y, Wu C, Peng L, Gong Q 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 023006
- [91] Liu H, Liu Y, Fu L, Xin G, Ye D, Liu J, He X T, Yang Y, Liu X, Deng Y, Wu C, Gong Q 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 093001
- [92] Li M, Qin L, Wu C, Peng L, Gong Q, Liu Y 2014 *Phys. Rev. A* **89** 013422
- [93] Huismans Y, Rouzee A, Gijsbertsen A, Jungmann J H, Smolkowska A S, Logman P S W M, Lepine 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
- [94] Huismans Y, Gijsbertsen A, Smolkowska A S, Jungmann J H, Rouzée A, 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, Ivanov M Y, Yan T M, Bauer D, Smirnova O, Vrakking M J J 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 013002
- [95] Bian X B, Huismans Y, Smirnova O, Yuan K J, Vrakking M J J, Bandrauk A D 2011 *Phys. Rev. A* **84** 043420
- [96] Bian X B, Bandrauk A D 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 263003
- [97] Bian X B, Bandrauk A D 2014 *Phys. Rev. A* **89** 033423
- [98] Li M, Sun X, Xie X, Shao Y, Deng Y, Wu C, Gong Q, Liu Y 2015 *Sci. Rep.* **5** 8519
- [99] Chen Z, Morishita T, Le A T, Wickenhauser M, Tong X M, Lin C D 2006 *Phys. Rev. A* **74** 053405
- [100] Arbó D G, Yoshida S, Persson E, Dimitriou K I, Burgdörfer J 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 143003
- [101] Arbó D G, Dimitriou K I, Persson E, Burgdörfer J 2008 *Phys. Rev. A* **78** 013406
- [102] Arbó D G, Ishikawa K L, Schiessl K, Persson E, Burgdörfer J 2010 *Phys. Rev. A* **81** 021403
- [103] Blaga C I, Catoire F, Colosimo P, Paulus G G, Muller H G, Agostini P, DiMauro L F 2009 *Nat. Phys.* **5** 335
- [104] Faisal F H M 2009 *Nat. Phys.* **5** 319
- [105] Quan W, Lin Z, Wu M, Kang H, Liu H, Liu X, Chen J, Liu J, He X T, Chen S G, Xiong H, Guo L, Xu H, Fu Y, Cheng Y, Xu Z Z 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 093001
- [106] Liu C, Hatsagortsyan K Z 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 113003
- [107] Wu C Y, Yang Y D, Liu Y Q, Gong Q H, Wu M, Liu X, Hao X L, Li W D, He X T, Chen J 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 043001
- [108] Song X, Liu P, Lin C, Sheng Z, Yu X, Yang W, Hu S, Chen J, Xu S, Chen Y, Quan W, Liu X 2016 *arxiv* 1602.05668v1
- [109] Möller M, Meyer F, Sayler A M, Paulus G G, Kling M F, Schmidt B E, Becker W, Milošević D B 2014 *Phys. Rev. A* **90** 023412
- [110] Li M, Geng J W, Liu M M, Zheng X, Peng L Y, Gong Q, Liu Y 2015 *Phys. Rev. A* **92** 013416
- [111] Mancuso C A, Hickstein D D, Grychtol P, Knut R, Kfir O, Tong X M, Dollar F, Zusin D, Gopalakrishnan M, Gentry C, Turgut E, Ellis J L, Chen M, Fleischer A, Cohen O, Kapteyn H C, Murnane M M 2015 *Phys. Rev. A* **91** 031402
- [112] Mancuso C A, Hickstein D D, Dorney K M, Ellis J L, Hasović E, Knut R, Grychtol P, Gentry C, Gopalakrishnan M, Zusin D, Dollar F J, Tong X M, Milošević D B, Becker W, Kapteyn H C, Murnane M M 2016 *Phys. Rev. A* **93** 053406
- [113] Song X, Lin C, Sheng Z, Liu P, Chen Z, Yang W, Hu S, Lin C D, Chen J 2016 *Sci. Rep.* **6** 28392
- [114] Yudin G L, Ivanov M Y 2001 *Phys. Rev. A* **64** 013409
- [115] Bondar D I 2008 *Phys. Rev. A* **78** 015405
- [116] Li M, Geng J W, Han M, Liu M M, Peng L Y, Gong Q, Liu Y 2016 *Phys. Rev. A* **93** 013402
- [117] Geng J W, Xiong W H, Xiao X R, Peng L Y, Gong Q 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 193001
- [118] Eckle P, Smolarski M, Schlup P, Biegert J, Staudte A, Schöffler M, Muller H G, Dörner R, Keller U 2008 *Nat. Phys.* **4** 565
- [119] Eckle P, Pfeiffer A N, Cirelli C, Staudte A, Dörner R, Muller H G, Buttiker M, Keller U 2008 *Science* **322** 1525
- [120] Pfeiffer A N, Cirelli C, Smolarski M, Dimitrovski D, Abu-samha M, Madsen L B, Keller U 2011 *Nat. Phys.* **8** 76
- [121] Pfeiffer A N, Cirelli C, Landsman A S, Smolarski M, Dimitrovski D, Madsen L B, Keller U 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 083002
- [122] Boge R, Cirelli C, Landsman A S, Heuser S, Ludwig A, Maurer J, Weger M, Gallmann L, Keller U 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 103003
- [123] Hofmann C, Landsman A S, Zielinski A, Cirelli C, Zimmermann T, Scrinzi A, Keller U 2014 *Phys. Rev. A* **90** 043406
- [124] Sun X, Li M, Yu J, Deng Y, Gong Q, Liu Y 2014 *Phys. Rev. A* **89** 045402
- [125] Mur V D, Popruzhenko S V, Popov V S 2001 *J. Exp. Theor. Phys.* **92** 777

SPECIAL TOPIC — Atomic and molecular processes driven by ultrafast intense laser fields

Semiclassical methods for strong field ionization of atoms*

Xiao Xiang-Ru¹⁾ Wang Mu-Xue¹⁾ Li Min²⁾ Geng Ji-Wei¹⁾
Liu Yun Quan¹⁾³⁾ Peng Liang-You^{1)3)†}

1) (State Key Laboratory for Mesoscopic Physics and School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China)

2) (Wuhan National Laboratory for Optoelectronics and School of Physics, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China)

3) (Collaborative Innovation Center of Quantum Matter, Beijing 100871, China)

(Received 9 September 2016; revised manuscript received 25 October 2016)

Abstract

As the advances of laser technology, more and more nonlinear phenomena are observed in the atoms and molecules driven by strong laser pulses. Systematic investigations on these findings, such as above threshold ionization and high-order harmonic generation, will lead us to understanding the mechanisms in the microscopic world. The most exact way to simulate the experimental measurements is to solve the time-dependent Schrödinger equation (TDSE) numerically, in which the system is described by the wave function and thus one cannot have an intuitive insight into the underlying process. Therefore, several semiclassical methods have been developed to understand the strong field ionization. In the classical point of view, the electrons tunnel out when the strong laser field suppresses the Coulomb potential. Then the electrons are driven by the laser electric field according to the Newtonian equations. Semiclassical methods take into account the tunnelling of the electron, the classical orbit of the electron, and the action as the phase of trajectory, which have successfully explained main structures in the ionization spectrum. Two of the most popular semiclassical methods are the quantum trajectory Monte Carlo method and the Coulomb-corrected strong field approximation method. In the present review, we will introduce these basic methods and show how they have been developed step by step, covering the most relevant and important works in the strong field physics. Finally we give two example of applications to show how these methods work. With the advantage of the classical picture, we can identify different kind of structures in the 2D photoelectron momentum distributions and tell how the structures are formed. Nonadiabatic effects can be studied by comparing the results of the two methods, together with accurate simulation from the numerical solution of TDSE. The current semiclassical methods can be further developed into advanced ones, which can be used in more complex molecular systems or multi-electron systems, and be widely used in the study of dynamics of molecule and atoms in strong laser fields.

Keywords: strong laser field, ionization of atoms, semiclassical

PACS: 02.70.-c, 31.15.xg

DOI: 10.7498/aps.65.220203

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11574010, 11322437) and the National Basic Research Program of China (Grant Nos. 2013CB922402, 2013CB922403).

† Corresponding author. E-mail: liangyou.peng@pku.edu.cn