

专题: 阿秒物理

## 超快强激光场中原子分子的里德伯态激发\*

沈星晨 刘洋 陈淇 吕航 徐海峰†

(吉林大学原子与分子物理研究所, 长春 130012)

(2022 年 6 月 28 日收到; 2022 年 7 月 24 日收到修改稿)

作为超快强激光场与原子分子相互作用的基本过程之一, 里德伯态激发被认为是强场隧穿电离诱导的物理过程的一个重要补充, 受到了研究者的广泛关注. 过去几十年来, 不断涌现了出色的理论和实验工作, 对超快强激光场下里德伯态激发的物理机制形成了更加深入的理解和更为系统的全新认识, 使得该研究课题逐步发展成为强场原子分子物理领域的一个重要研究方向. 本文系统地综述了超快强激光场中原子分子的里德伯态激发的研究进展, 着重介绍近年来在原子强场里德伯态激发的物理机制、分子强场里德伯态激发中的结构效应以及基于强场里德伯态激发的中性粒子加速和相干辐射研究等方面的研究工作, 在此基础上, 总结和展望了强场激发研究方向未来的发展趋势. 希望本文能够为强场激发相关研究提供较为详尽的文献综述, 为进一步开展深入的研究工作提供参考.

**关键词:** 超快强激光场, 里德伯态激发, 隧穿电离, 俘获**PACS:** 32.80.Ee, 32.80.Rm, 33.80.Rv, 34.80.Gs**DOI:** 10.7498/aps.71.20221258

## 1 引言

啁啾脉冲放大技术 (chirped pulse amplification, CPA) 的出现<sup>[1,2]</sup>, 极大地提升了超快脉冲激光的电场强度, 催生了强场物理科学研究领域的诞生. Donna Strickland 和 Gérard Mourou 也因 CPA 技术的发明获得了 2018 年诺贝尔物理学奖. 在强场物理通常使用的光场强度下 ( $10^{13}$ — $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> @ 800 nm), 原子分子与激光相互作用会产生很多高度非线性的物理过程, 低阶微扰理论已不适用于处理激光与原子分子的相互作用. 电离是这些非线性物理过程的基础, 通过 Keldysh 定义的绝热参数可以区分强场电离的机制<sup>[3]</sup>,  $\gamma = \sqrt{I_P/(2U_P)}$ , 其中  $I_P$  是原子电离势,  $U_P = e^2 E^2/(4m\omega^2)$  是有质动力势,  $e$  表示电子的电荷,  $E$  表示激光电场强度,  $m$  表示电子质量,  $\omega$  表示激光频率. 当原子处于高频低光强的激光场中, 强场电离以多光子电离机制 (multi-

photon ionization, MPI) 占主导, 此时  $\gamma \gg 1$ ; 而在低频高光强的激光场中, 则隧穿电离 (tunneling ionization, TI) 机制占主导, 此时  $\gamma \ll 1$ . 许多强场物理过程与隧穿电离后的电子在激光电场和分子库仑势共同作用下的运动密切相关. 得益于 1993 年 Corkum<sup>[4]</sup> 和 Schafer 等<sup>[5]</sup> 提出的三步重碰撞过程, 人们对原子强场物理过程有了非常清晰的物理图像: 束缚电子经由激光场和库仑势共同形成的势垒隧穿后, 在交变的激光电场作用下, 首先加速远离原子核, 随着激光电场方向的改变, 隧穿电子有一定的概率返回到母体原子核, 并与原子核发生相互作用, 产生不同的非线性物理过程. 如果返回电子与原子核发生弹性散射, 形成高能光电子, 这一现象称为高阶阈上电离 (high-order above-threshold ionization, HATI); 如果返回电子与母体离子复合, 产生高能光子, 这一现象称为高次谐波发射 (high-order harmonic generation, HHG); 如果返回电子通过碰撞将能量传递给其他电子并

\* 国家重点研发计划 (批准号: 2019YFA0307700) 和国家自然科学基金 (批准号: 12174148, 12074144, 11874179) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xuhf@jlu.edu.cn

使其电离, 则发生非序列双/多电离 (non-sequential double/multiple ionization, NSDI/NSMI). 过去几十年内, 这些隧穿电离诱导的重碰撞物理<sup>[6]</sup>过程一直备受关注, 同时极大地推动了诸如阿秒物理<sup>[7–9]</sup>、分子轨道成像<sup>[10–12]</sup>、超快电子衍射<sup>[13–15]</sup>和新型超短极紫外光源<sup>[16–18]</sup>等新兴研究领域的发展.

随着研究的不断深入, 人们发现隧穿电离的出射电子还能诱导一些其他新奇的物理现象, 其中包括本文将要论述的强场里德伯态激发 (Rydberg state excitation, RSE). 2006 年, Wang 等<sup>[19]</sup>通过数值求解含时薛定谔方程 (time-dependent Schrödinger equation, TDSE) 在理论上预言了隧穿电离的电子有一定的概率被母原子核重新俘获到高里德伯态, 形成高激发态的中性原子. 2008 年, Nubbemeyer 等<sup>[20]</sup>利用飞行时间质谱直接检测到强场产生的高激发态中性原子, 首次从实验上证实了在隧穿电离区域也有大量的中性里德伯 He 原子存活下来, 提出了强场受挫隧穿电离 (frustrated tunneling ionization, FTI) 机制来描述强场 RSE 过程, 并认为这是三步重碰撞模型的一个重要补充. 随后的大量研究工作表明, 强场 RSE 过程是一个非常普遍的强场物理现象. 在 800 nm 强激光场中, He 原子 RSE 产率约为总电离的 10%, 而 Ar 和 Xe 原子的激发概率可达到电离的约 15% 和 30%<sup>[21]</sup>, 甚至超过了相应原子的 NSDI 的概率. 除了中性惰性气体体系, 分子解离或库仑爆炸的碎片离子亦可以俘获隧穿电子, 形成高激发态的碎片原子<sup>[22–24]</sup>; 而分子本身通过强场 RSE 过程也可产生处于高激发态的中性分子<sup>[25–27]</sup>; 甚至是高价离子亦可以通过再俘获电子而产生激发态离子 (即: 受挫的双电离或多电离, frustrated double/multiple ionization)<sup>[28]</sup>. 正因如此, 在过去的十余年里, 强场 RSE 过程作为一种隧穿电离诱导的物理过程的一个重要补充, 被越来越多的研究者关注. 实验上, 研究者利用直接探测高能原子<sup>[29,30]</sup>、脉冲静电场场致电离高里德伯态<sup>[26,31]</sup>、冷靶反冲离子动量成像谱 (cold target recoil ion momentum spectroscopy, COLTRIMS) 符合测量<sup>[27,32]</sup>、以及激发态的辐射光谱<sup>[33]</sup>等手段, 研究不同体系的强场 RSE 过程, 探究了所产生的激发态原子或分子的产率和量子态分布, 以及其随着强激光场参数的变化趋势. 理论上, 人们发展了用于处理强场 RSE 过程的半经典模型 (semiclassical model)<sup>[34–37]</sup>、全经典系综<sup>[38,39]</sup>、TDSE 数值模

拟<sup>[40–42]</sup>、以及基于强场近似 (strong field approximation, SFA) 的量子模型<sup>[43]</sup>等方法, 结合实验观测结果, 探讨了强场 RSE 的物理机制, 分析了其中的量子效应和轨道结构效应. 研究发现, 强激光场中存活的中性激发态原子与其他强场物理现象, 包括域上电离 (above-threshold ionization, ATI) 中的极低能和近零能电子特征结构<sup>[44–46]</sup>、阈值下 HHG 产生<sup>[47,48]</sup>等现象都有着密切的关系. 通过中性里德伯态原子在激光强度梯度下受到的有质动力 (ponderomotive force), 强场 RSE 过程可以实现对中性原子加速, 加速度可达到地球重力加速度的  $10^{14}$  倍<sup>[49]</sup>. 理论研究预期原子通过强场 RSE 可制备布居可观的高激发态, 实现不同能级间的粒子数布居反转, 有望产生一定增益的波长可覆盖太赫兹到极紫外的激光辐射<sup>[50,51]</sup>. 最近, 研究者已经观测到基于强场 RSE 产生的相干极紫外辐射, 被认为是一种除 HHG 之外新的有应用潜质的超短 XUV 光源<sup>[33]</sup>.

纵观过去十余年的文献报道, 强场 RSE 已经发展成为强场原子分子物理领域的一个重要研究方向, 不仅具有重要的科学研究意义, 而且未来可能具有潜在的应用前景. 对于超快强激光场相关的物理过程, 诸如重碰撞物理<sup>[6,52]</sup>包括 HHG<sup>[35,48]</sup>、HATI<sup>[53,54]</sup>、NSDI<sup>[55,56]</sup>等, 以及在此基础上发展出来的超快电子成像<sup>[57,58]</sup>和阿秒物理<sup>[8,59,60]</sup>等研究方向, 目前已有许多非常出色的综述文献报道, 详细总结了近些年这些强场物理方向的研究进展. 但对于强场 RSE 过程而言, 目前仅有 2016 年 Zimmermann 和 Eichmann<sup>[61]</sup>概述了 FTI 机制及中性粒子加速方面的研究进展. 事实上, 最近几年来, 围绕强场 RSE 物理过程, 不断涌现大量理论和实验工作, 对其物理机制有了更加深入的理解, 对相关的物理过程形成了更为系统的全新认识. 因此, 本文将系统地总结近年来在强场 RSE 及其相关物理过程的研究进展, 首先简要介绍强场里德伯态激发过程的实验测量和理论模拟方法, 然后在第 3 节中着重讨论了强场中原子里德伯态激发的物理机制, 第 4 节中概述里德伯态量子态分布的研究, 第 5 节介绍分子强场里德伯态激发的结构效应, 第 6 节介绍基于强场 RSE 的中性粒子加速和相干辐射的研究, 最后在第 7 节中展望了该研究方向未来的发展趋势.

## 2 强场 RSE 过程的实验测量和理论模拟方法

与基态相比, 原子分子高里德伯态具有较为特殊的性质, 例如, 电子运动轨道周期长、电子轨道半径大以及电子束缚能低等, 其研究已有很悠久的历史. 针对弱光场作用下的频域测量范畴, 研究者发展了各种高精度的谱学方法, 用于探测里德伯态的光谱、碰撞及电子态间的相互作用<sup>[62,63]</sup>. 针对强场 RSE 过程, 目前实验测量里德伯态的方法主要有中性激发态直接测量、脉冲静电场场致电离、以及通过动量符合实现通道分辨测量等. 图 1 中汇总了目前研究强场 RSE 的实验测量方法的示意图<sup>[21,29,64]</sup>. 对于直接测量中性激发态方法, 强激光场作用后产生的高激发态原子随着气束自由飞行到探测器, 由于高激发态原子具有很高的内能, 能够直接被微通道板 (microchannel plate detector, MCP) 检测, 实现对强场 RSE 产率的测量 (图 1(a))<sup>[29]</sup>. 这种直接测量中性激发态的方法, 需要激发态的寿命足够长以到达 MCP 探测器 (飞行时间取决于原子束的速度和光作用区到探测器的距离, 通常在几十微秒或更长的时间量级). 由于原子一般具有长寿命的亚稳态, 这种方法非常适用于研究原子强场 RSE 过程. 但该方法不具有质量分辨, 且分子激发态寿命一般比较短, 因此不适于测量分子的强场 RSE 过程. 脉冲静电场场致电离方法利用了高里德伯态易于被外加电场下电离的特性, 结合飞行时间质谱 (time of flight mass spectrometer, TOF-MS), 使用延迟的静电场电离高里德伯态原子分子并测量电离后的离子信号, 这也是研究强场 RSE 过程行之有效的一种探测手段 (图 1(b))<sup>[21]</sup>. 荷电粒子检测灵敏度高且质谱具有很好的质量分辨, 因此可以用来研究强激光场中原子以及分子母体或碎片 RSE 过程, 但受限于通常 TOF-MS 装置中使用的静电场强度, 实验仅能测量一定主量子数  $n$  范围的 RSE 布居. 最近, 人们利用 COLTRIMS (图 1(c)) 实现了对强场 RSE 过程的检测<sup>[64]</sup>. 通过 COLTRIMS 中固有的微小静电场 (一般为 10 V/cm), 研究者检测到强场中可形成布居在极高  $n$  ( $n$  可达 100 以上) 的里德伯态<sup>[27,65,66]</sup>, 此外, 通过分析不同粒子的动量符合, COLTRIMS 方法还可以研究解离过程中的碎片 RSE 产生<sup>[67–73]</sup>.

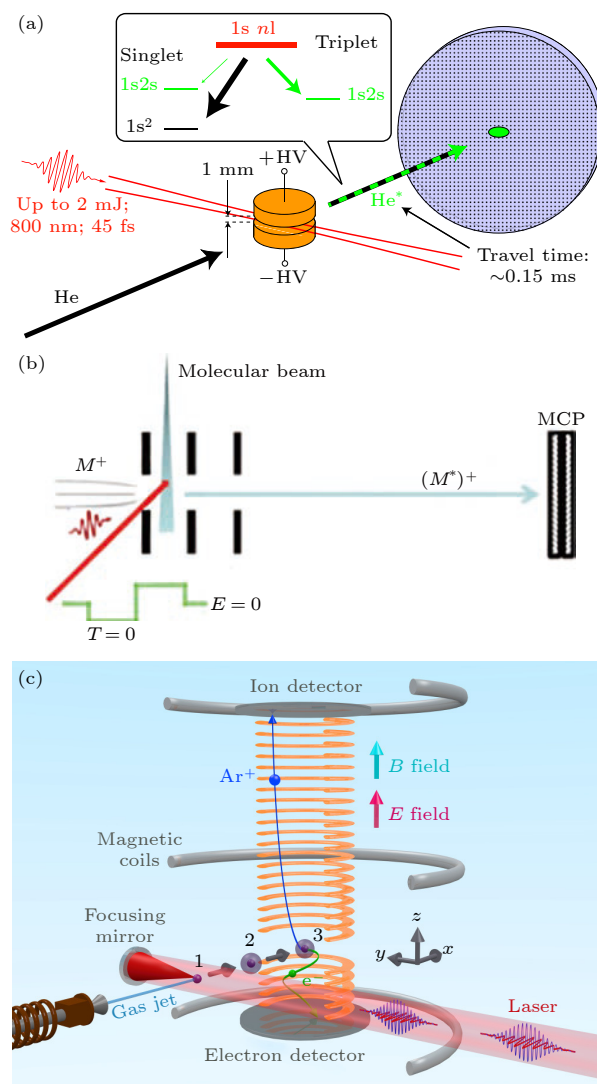


图 1 强场 RSE 的实验测量方法示意图 (a) 中性激发态直接测量方法<sup>[29]</sup>; (b) 脉冲静电场场致电离方法<sup>[21]</sup>; (c) COLTRIMS<sup>[64]</sup> 方法

Fig. 1. Schematic diagrams of experimental measurements of strong field RSE: (a) Direct measurement of neutral excited states<sup>[29]</sup>; (b) pulsed electric field ionization<sup>[21]</sup>; (c) COLTRIMS<sup>[64]</sup>.

理论上, 在隧穿电离图像的基础上, 研究者发展了半经典两步模型 (semiclassical two-step model) 研究强场 RSE 过程, 隧穿电离由绝热的 Ammosov-Delone-Krainov (ADK) 模型<sup>[74]</sup>描述, 隧穿后的电子在激光场与库仑势共同作用下的运动通过经典轨迹处理, 通过统计激光脉冲结束后末态电子能量为负值的轨迹从而计算电子被俘获到里德伯态的概率. 半经典模型很好地重现了一些实验观测现象, 如 RSE 产率对激光椭圆度的依赖<sup>[35,37]</sup>、量子态的分布<sup>[29,75]</sup>等, 印证了 FTI 物理机制中隧穿-俘获的过程. 数值求解 TDSE 方法也被用于研究强场



RSE 过程. 这种方法通常基于单活性电子模型势, 将激光作用结束后的波函数投影到里德伯态上, 得到 RSE 的产率 [41,42,76,77]. 最近, Hu 等 [43] 在强场近似 (strong field approximation, SFA) 的基础上建立了一种全量子模型处理强场 RSE 过程的方法, 给出了相干俘获这一强场 RSE 过程的全新物理图像. 关于强场 RSE 的产生机制及其中的量子效应, 我们将在下面章节中详细叙述.

### 3 原子强场 RSE 的物理机制

原子强场 RSE 的产生机制一直存在很大的争议, 这主要体现在多光子和隧穿两种图像之间的争议, 如图 2 所示. 一些研究者认为强场 RSE 的产生类似于 Freeman 共振或伴随 AC-Stark 移动的多光子共振激发 (图 2(a)), 而 FTI 机制认为 RSE 过程是电子隧穿电离后, 在激光场与库仑势共同作用下被俘获到里德伯态 (图 2(b)). 下面围绕不同激光参数下原子 RSE 过程的研究, 阐述两种图像对强场 RSE 物理机制的理解.

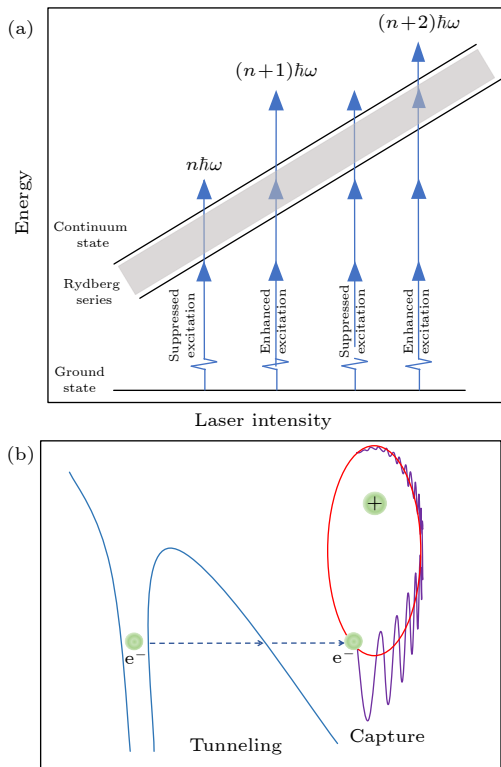


图 2 强场 RSE 过程示意图 (a) 多光子图像; (b) 隧穿后俘获图像的

Fig. 2. Schematic diagrams of multiphoton image (a) and tunneling plus capture image (b) of strong field RSE process.

Nubbemeyer 等 [20] 实验观测到中性 He 原子激发态 ( $\text{He}^*$ ) 产率强烈依赖于激光椭圆率 (图 3(a)), 这是重碰撞物理过程 (如 HATI, NSDI, HHG 等) 的一个特征现象. 同时他们研究发现 He 原子强场 RSE 最可几分布的主量子态在  $n = 8$  附近, 对应的里德伯轨道半径与重碰撞预期的 quiver 半径 ( $r_{\text{max}} = F/\omega^2$ , 其中  $F$  为激光电场强度,  $\omega$  为激光频率) 相符合. 据此, 他们提出强场 RSE 的 FTI 机制, 并指出其是重碰撞相关的物理过程的主要依据. 随后, Landsman 等 [35] 基于忽略库仑势的强场近似理论方法, 给出了在重碰撞框架下的  $\text{He}^*$  产率对激光椭圆率的数值关系, 这种依赖关系与 HHG 类似, 且很好地重现了 Nubbemeyer 等 [20] 对  $\text{He}^*$  的实验观测结果. 同时 Landsman 等将 He 原子 RSE 和 HHG 结果进行了对比, 指出其形成的不同之处在于隧穿电离的时刻不同, 导致隧穿电子返回时的动能不同, 而隧穿后电子的动力学是类似的, 因此导致相近的对激光椭圆率的依赖关系. 但同时他们也指出, 产生 RSE 的隧穿电子并不需要返回到隧穿出口附近 [35] (里德伯态的半径正比于  $n^2$ , 隧穿电子被俘获的位置事实上已远大于隧穿出口). 从这点来说, 强场 RSE 对激光椭圆率的依赖应该远不如 HHG 及 NSDI 等重碰撞物理过程强烈 (后者需要隧穿电子返回到母核附近, 因此椭圆光场带来的漂移动量会导致返回概率更为急剧地降低), 这显然与 He 原子的结果是不符合的 (He 的强场 RSE 与 HHG 对激光椭圆率有相同的依赖关系 [35]). Huang 等 [37] 研究发现只有当隧穿后的电子分布在某一特定的窗口 (称之为存活窗口), 才可以被俘获到里德伯态, 存活窗口由隧穿电子的初始场相位和横向速度决定, 不同的原子具有不同的存活窗口. 他们计算了不同电离限 ( $I_p$ ) 原子的 RSE 对激光椭圆率依赖的半高全宽 (图 3(b)), 指出对于  $I_p$  较小的原子, 考虑库仑势的 SFA 模型计算得到 RSE 产率对激光椭圆率依赖的结果更接近半经典计算的结果, 表明库仑势在强场 RSE 过程中有重要作用 [37]. 在 Nubbemeyer 等对 He 原子 RSE 研究的基础上, Zhao 等 [31] 进一步测量了不同原子 (He, Ar, Kr) 的 RSE 产率对激光椭圆率的依赖关系, 并与 NSDI 进行了对比研究. 对于不同原子, NSDI 对激光椭圆率的依赖很好地符合重碰撞物理模型的预期, 而 Ar 和 Kr 原子的强场 RSE 产率则展现比 NSDI 更弱的对激光椭圆率的依赖关系 (图 3(c)), 表明强场 RSE 不能

用隧穿+重碰撞的模型来理解. 他们使用三维半经典模型计算了不同原子隧穿后的光电子动能随激

光椭圆率的变化分布, 分析指出, RSE 产率强烈依赖激光椭圆率的物理机制是能够被库仑势俘获的低能电子在椭圆光场中产率降低导致的, 与 HHG 及 NSDI 等重碰撞物理过程是不同的 [31].

在数值求解 TDSE 的工作中, 研究者注意到原子强场 RSE 的产率随激光强度的变化呈现振荡结构 [40–42,75,77]. 图 4(a) 展现了 TDSE 数值模拟 H 原子在 800 nm 强激光场下电离和 RSE 随激光强度的变化关系, 可以看到两者产率随光强增加出现明显的位相相反的振荡结构 [77]. Volkova 等 [40] 认为, 造成这种振荡结构的原因是 AC-Stark 效应引起的能级移动和 Freeman 共振. 随后, Li 等 [41,77] 也使用 TDSE 求解 H 原子的光电子能谱和 RSE 布居, 指出原子 RSE 和低能 ATI 谱峰的移动都来自于多光子电离过程中通道关闭 (channel-closing) 效应, 周期振荡峰的间隔与通道关闭效应的预期是一致的 (根据  $n\hbar\omega = U_p + I_p$ , 800 nm 光场中  $n$  光子和  $(n+1)$  光子通道对应的光强间隔约为 26 TW/cm<sup>2</sup>), 而中性里德伯态原子在强激光场中有很高的存活率归因于这些里德伯态具有较大的角动量. 实验上, Zimmermann 等 [42] 观测到 400 nm 强激光场中 Ar 和 Ne 原子里德伯态激发产率存在阶梯状的跃变, 对应的光强为特定光子数电离的 channel-closing 对应的激光光强, 但在 800 nm 光场中他们没有观测到类似现象. 最近研究者通过更为精确地控制激光光强和检测条件, 以有效降低光强平均效应的影响, 观测到了 800 nm 强激光场中原子 RSE 产率随光强变化的振荡结构 [30,43]. Xu 等 [30] 比较了 400 和 800 nm 强激光场中 Ar 原子 RSE 的测量结果, 发现低光强 400 nm 光场产生的 Ar<sup>+</sup>和 Ar<sup>\*</sup>产率呈同步增强现象, 而在高光强 400 nm 光场及 800 nm 光场中, Ar<sup>\*</sup>和 Ar<sup>+</sup>产率呈现出明显的相位相反的振荡现象 (图 4(c)), 指出原子 RSE 的机制在不同光场下由多光子的图像转变为隧穿图像. Chetty 等 [78] 实验测量了不同脉宽下这种原子 RSE 产率随光强变化的振荡结构, 发现在少周期光场下, 特定光强下的增强效果明显降低, 他们认为这很大程度上归因于考虑了 AC-Stark 效应的共振态有效布居的选择性, 而不是电离通道的关闭. 此外, 数值求解 TDSE [75] 和最近的实验测量结果 [79], 都发现了在更长波长 (1800 nm) 下, 不同光强下原子 RSE 产率随光强变化趋势存在周期约为 50 TW/cm<sup>2</sup> 的振荡结构 (图 4(d)), 这显然与

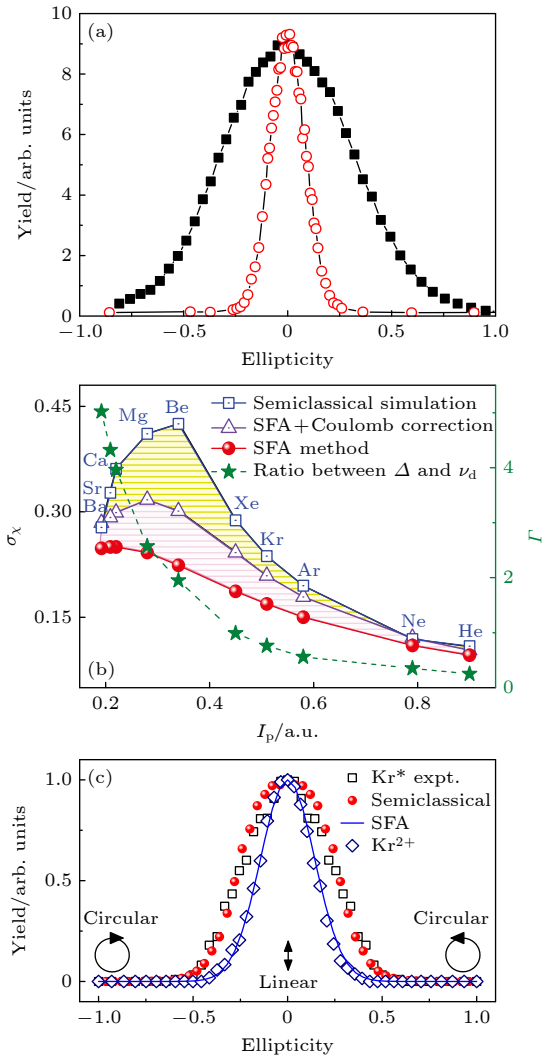


图 3 (a) 800 nm 飞秒强激光场中电离 (He<sup>+</sup>, 黑色方框) 和 RSE (He\*, 红色圆圈) 产率随激光椭圆率的变化关系 [20]; (b) 强激光场中不同  $I_p$  的原子里德伯态产率对激光椭圆率依赖的半高全宽 ( $\sigma_x$ ) 和相位窗口的宽度与横向速度的比值 ( $\Delta/v_d$ , 绿色星形) [37]; (c) 800 nm 飞秒强激光场 Kr 原子 RSE (Kr\*, 黑色方框) 及 NSDI (Kr<sup>2+</sup>, 蓝色菱形) 产率随激光椭圆率的变化关系. 红色圆圈为三维半经典计算结果, 蓝色实线为忽略库仑势的 SFA 模型计算结果 [31].

Fig. 3. (a) Dependence of ionization (He<sup>+</sup>, black squares) and RSE (He\*, red circles) yields on the ellipticity of the 800 nm strong laser fields [20]; (b) dependence of Rydberg state yields of atoms with different  $I_p$  on the ellipticity of strong laser fields ( $\sigma_x$ ) and the ratio between the width of phase window and the drift velocity  $v_d$  for different atoms ( $\Delta/v_d$ , green star) [37]; (c) yields of Kr RSE (Kr\*, black squares) and NSDI (Kr<sup>2+</sup>, blue diamonds) on the ellipticity of the strong 800 nm laser fields. Red circles are the results from 3D semiclassical calculations. Blue solid lines are the SFA model analytical results without considering the Coulomb potential [31].

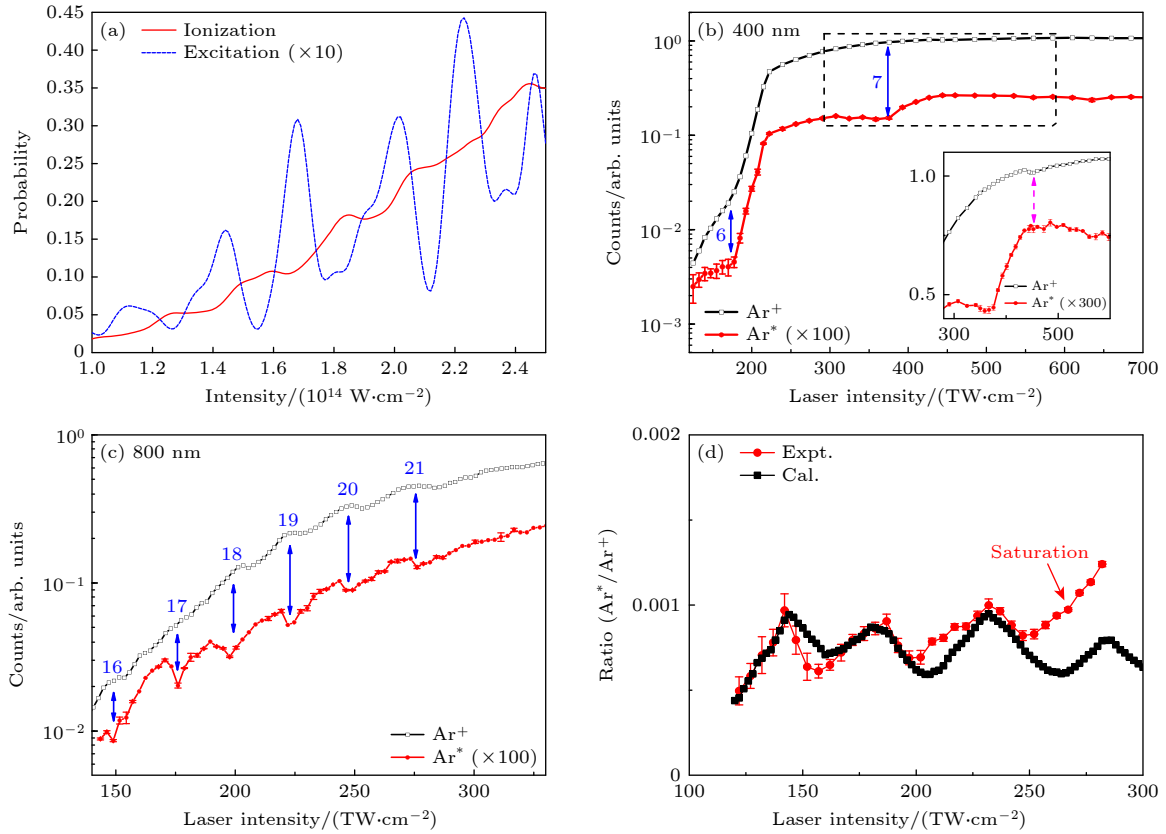


图 4 (a) H 原子在 800 nm 激光场下电离率 (红色实线) 和激发率 (蓝色虚线) 随激光光强变化的 TDSE 数值模拟结果 [77]; (b), (c) Ar 原子在 400 和 800 nm 强激光场下实验测量的电离率和激发率随激光光强变化 [30]; (d) Ar 原子在 1800 nm 激光场下激发率与电离率比值的测量和计算结果 [79]

Fig. 4. (a) Dependence of H ionization (red solid lines) and RSE (blue dotted lines) yields on the intensity of 800 nm strong laser fields based on TDSE numerical simulations [77]; (b), (c) experimentally measured Ar ionization and RSE yields in 400 and 800 nm strong laser fields [30]; (d) measured and calculated yield ratios of Ar ionization and RSE in 1800 nm strong laser fields [79].

通道关闭效应的预测是不一致的 (按照 channel-closing 的预期, 1800 nm 波长下对应的周期应该是  $2.2 \text{ TW}/\text{cm}^2$ , 远小于图 3(d) 中的  $50 \text{ TW}/\text{cm}^2$  周期) [75].

如上所述, 无论是多光子共振还是半经典 FTI 图像, 都不能完全解释实验观测的所有现象, 多光子共振图像不能解释图 3 中展现的原子 RSE 产率对激光椭圆偏率的强烈依赖, 而半经典 FTI 图像则不能解释图 4 中给出的 RSE 产率随激光强度变化的振荡结构. 如果仔细观察图 4(a) 中 TDSE 数值计算的结果, 可以看到原子 RSE 产率的峰值是高低交替出现的, 这种调制的特征是以上两种物理机制所不能解释的. 2019 年, Hu 等 [43] 在 SFA 的基础上建立了一个处理强场 RSE 的全量子模型, 给出了强场原子 RSE 产生的量子图像, 如图 5 所示. 按照该量子图像, 电子被电离到连续态后在激光场中运动, 一些自由电子被不同的轨道上的里德伯态俘获, 不同光学周期电离的电子轨道间的干涉导致

了里德伯态产率随光强变化的振荡结构, 同时俘获概率强烈依赖于里德伯态的空间位置和奇偶对称性, 从而导致了振荡峰值结构的调制. 量子模型的计算结果重现了实验观测的  $\text{He}^*$  的主量子数  $n$  的分布和 Xe 原子 RSE 产率对激光强度的依赖关系 [43]. 最近, Liu 等 [79] 利用量子模型成功地解释了 1800 nm 激光场中 Ar 原子 RSE 产率随光强变化的周期为  $50 \text{ TW}/\text{cm}^2$  的振荡结构, 指出其来源于不同返回次数的电子轨道之间的干涉.

从上述研究中可以看出, 强场 RSE 虽然是隧穿电离电子诱导的一种物理过程, 但电子并不需要返回母核发生“硬碰”, 而是在激光场作用下低能电子被离子核库仑势俘获, 形成高里德伯态. 虽然基于多光子共振的机制可以定性解释 800 nm 强激光场中 RSE 产率随光强变化而呈现的振荡结构, 但振荡峰强度的调制以及长波长下不符合“channel-closing”预期的振荡频率, 则是由于不同电子轨道间的干涉导致的. 从这点来说, 强场 RSE 既不是



与 HATI, HHG, NSDI 等类似的“隧穿+重碰撞”过程,也不是纯粹的多光子共振机制.基于量子轨道模型提出的图像(图 5),即伴随阈上电离的相干俘获过程,更好地诠释了原子强场 RSE 过程的物理机制[43].

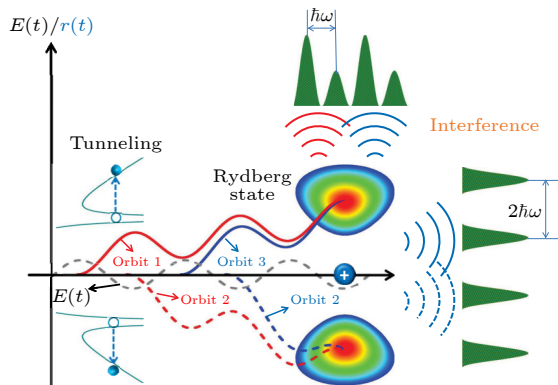


图 5 强场 RSE 的量子图像.在激光不同半周期内电离的隧穿电子被俘获到特定的里德伯态,不同轨道的干涉产生随激光强度变化的振荡峰结构[43]

Fig. 5. Quantum picture of strong field RSE process. The tunneling electrons ionized in different optical half cycles of the laser pulse are captured into a certain Rydberg state, and the interference of different orbits leads to the intensity dependence of peak structures[43].

#### 4 原子强场 RSE 的量子态分布

强场 RSE 过程形成的里德伯态的量子态分布最近几年也引起了研究者的关注,这部分工作主要集中在理论研究上. Eichmann 等[80] 计算得到了 800 nm 强激光场中 He\* 的主量子数  $n$  分布,同时,他们通过计算主量子数为  $n$  的里德伯态的激发概率和存活概率,指出  $n > 15$  的态几乎不受强场的影响,并保持稳定.他们还研究了不同激光参数下 Ar\* 的主量子数  $n$  的分布,发现在某一光强范围内的高里德伯态产率随激光强度增加而向低主量子数  $n$  移动[42]. Li 等[41,77] 通过 TDSE 数值模拟了 H 原子的电子能谱和激发态布居,计算表明里德伯态在强激光场中能够大量存活是因为强场 RSE 产生的里德伯态具有较大的角动量,从而导致里德伯态原子被光再次电离的概率非常低.他们还提出了用通道关闭效应来解释不同激光强度下在高  $n$  激发态和低  $n$  激发态之间的分布中出现的振荡结构[41,77]. Piraux 等[75] 通过数值求解 TDSE 计算了俘获概率随脉冲持续时间和激光波长的变化关系,对于长波长 1800 nm 强激光场中,他们发现在振荡的

最大值和最小值处,角动量分布向高值的偏移. Venzke 等[81] 发现强场 RSE 的角动量态布居的宇称符合多光子共振吸收的选择定则.

实验上,由于高里德伯量子态能量间隔小,实现量子态分辨的测量是一项有挑战性的工作. 2015 年, Zimmermann 等[29] 利用静电场电离结合中性粒子探测方法,通过调节静电场的电场强度,首次给出了强激光场中产生的里德伯态主量子数  $n$  的相对布居,如图 6(a) 所示, He 原子强场 RSE 主要分布在  $n = 8-10$  范围,这与 Nubbemeyer 等[20] 理论的预测是一致的.从 Eichmann 等的结果可以看出,俘获到  $n > 30$  以上里德伯态的概率几乎可以忽略.有趣的是,研究者利用 COLTRIMS 中的微小静电场电离(电场强度在 10 V/cm 量级),也观测到了明显的强场 RSE 信号,按照这样的静电场强度估计,所检测的里德伯态甚至可以达到  $n > 100$  或更高[27,65,66].有研究认为这种极高  $n$  的里德伯态布居与电子能谱中的极低能结构和近零能结构相关[44-46].最近, Zhao 等[66] 提出了一种提取强激光场下产生的里德伯态主量子数的布居(principal quantum number distribution, PQND)的方法,实验上通过改变 COLTRIMS 中的直流电场强度,改变对有效时间间隔有重要贡献的原子里德伯态的主量子数范围,提取主量子数  $n \geq 100$  极高里德伯激发态的信号,利用半经典公式拟合存活里德伯原子的直流场电离产率随时间的变化,获得了与直流电场强度密切相关的激发态的主量子数的布居,定性重现了实验中测量获得的结果(图 6(b)).

#### 5 分子强场 RSE 的结构效应

相比于原子,分子具有更复杂的电子轨道结构和额外的核运动自由度,强场分子物理过程呈现更多丰富的新奇现象,揭示这些现象背后的物理机制以及蕴含的分子结构效应,已成为近年来强场分子物理研究领域的前沿和热点课题.对于分子强场 RSE 而言,研究者首先是在分子的解离性电离或库仑爆炸过程中,观测到产生的高激发态中性碎片原子通道. Manschwetus 等[22] 观测到 800 nm 飞秒强激光场作用 H<sub>2</sub> 分子可产生激发态 H\* 碎片,其动能分布与离子碎片 H<sup>+</sup> 相近.他们结合经典轨迹分析,指出 H\* 碎片是由分子库仑爆炸或解离产生的离子碎片 H<sup>+</sup> 俘获电子形成的(图 7).研究者在

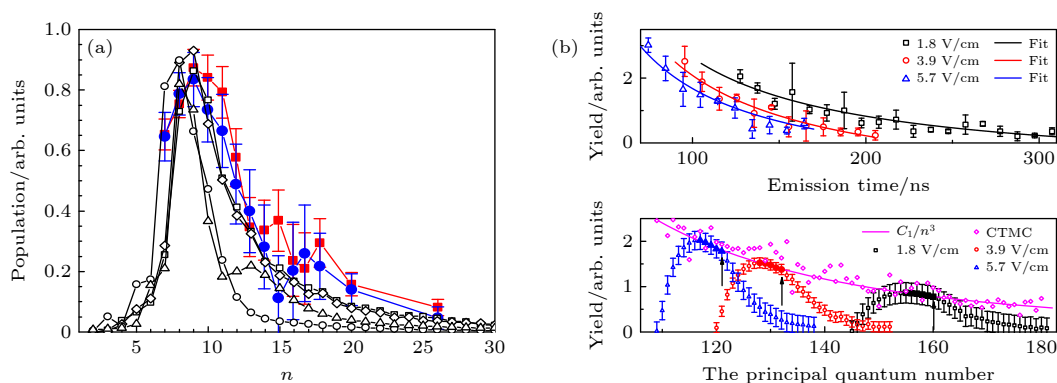


图 6 (a) 800 nm 强激光场中 He\* 的主量子数  $n$  的布居. 蓝色圆圈和红色方框分别代表  $1.8 \times 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> 和  $2.9 \times 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> 下实验测量结果. 空心菱形和空心方框分别代表  $1 \times 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> 和  $1.4 \times 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> 下半经典理论计算结果. 空心圆圈和空心三角形分别代表  $1.8 \times 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> 和  $2.9 \times 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> 下量子单电子近似理论结果<sup>[29]</sup>; (b) 上图为不同直流电场下 Ar\* 产率随时间的变化关系, 下图为提取的量子态分布. 黑色方框、红色圆圈和蓝色三角分别表示 COLTRIMS 中直流电场为 1.8, 3.9 和 5.7 V/cm 下的实验测量结果数据和分别在 1.8, 3.9 和 5.7 V/cm 处提取的主量子数的布居, 实线曲线是拟合结果以及在 800 nm 激光场下提取的 Ar\* 的主量子数的布居, 品红色菱形表示半经典模型计算的主量子数的布居结果<sup>[66]</sup>.

Fig. 6. (a) Measured  $n$ -distributions in 800 nm strong laser fields for a laser intensity  $1.8 \times 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> (blue circles) and  $2.9 \times 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> (red squares). Semiclassical calculations at a laser intensity  $1 \times 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> (open diamonds) and  $1.4 \times 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> (open squares), and quantum mechanical SAE calculations at  $1.8 \times 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> (open circles) and  $2.9 \times 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> (open triangles)<sup>[29]</sup>. (b) upper panel: time dependence of the yields of Ar\* at a series of dc electric fields. Lower panel: extracted PQNDs for the data presented in the above figure<sup>[66]</sup>. The black squares, red circles, and blue triangles indicate the experimental data and the extracted PQND at 1.8, 3.9, and 5.7 V/cm, respectively. The fitting results and the extracted PQNDs of Ar\* in 800 nm strong laser fields are depicted by solid curves. The magenta diamonds in the lower panel indicate the calculated PQND by the semiclassical model<sup>[66]</sup>.

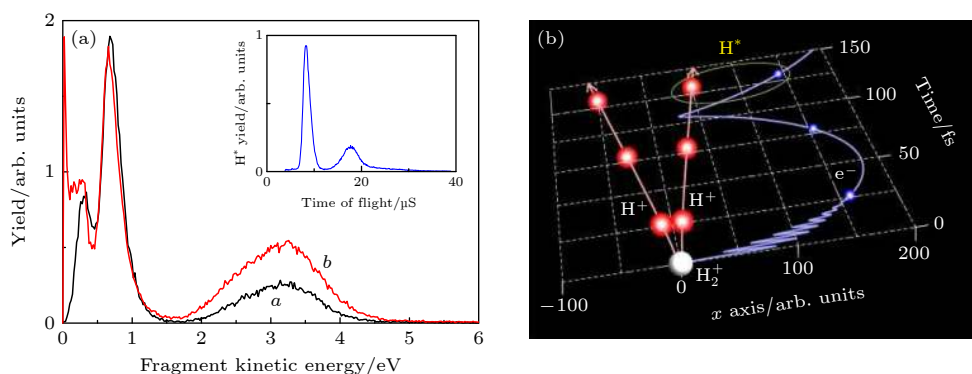


图 7 (a) 中性激发态 H\* 碎片 (黑色曲线) 和离子碎片 H<sup>+</sup> (红色曲线) 的动能分布<sup>[22]</sup>; (b) 分子碎片的里德伯态激发机制的示意图<sup>[22]</sup>  
Fig. 7. (a) Kinetic energy distribution of excited neutral fragments He\* (red curve) and ionic fragments H<sup>+</sup> (black curve)<sup>[22]</sup>; (b) schematic picture of Rydberg state excitation mechanism of molecular fragments<sup>[22]</sup>.

其他分子体系中, 如 N<sub>2</sub><sup>[23]</sup>, D<sub>2</sub><sup>[24,68]</sup>, CO<sup>[73]</sup>, O<sub>2</sub><sup>[71]</sup> 及二聚体<sup>[28,69,82]</sup> 等, 也观测到类似的激发态原子碎片通道. 有研究者称这种现象为受挫的解离性电离 (frustrated dissociative ionization)<sup>[83]</sup>. Zhang 等<sup>[68]</sup> 利用 COLTRIMS 技术测量了 D<sub>2</sub> 分子强场解离性双电离产生的 (D<sup>+</sup>, D<sup>+</sup>) 和 (D<sup>+</sup>, D<sup>\*</sup>) 通道的光电子-光离子符合光谱, 同时利用泵浦-探测方法研究了不同通道的动能释放的时间演化, 指出中性激发态碎片 D<sup>\*</sup> 的产生是一个序列过程, 即  $D_2 + n\hbar\omega \rightarrow D_2^+ + e_1 + m\hbar\omega \rightarrow D^+ + D^+ + e_2 \rightarrow D^+ + D^* + e$ , 也就是说第二步电离出射电子更易于在分子的解离性电

离中被离子碎片俘获而形成里德伯态. Ma 等<sup>[71]</sup> 指出 O<sub>2</sub> 分子不同的束缚态和排斥态影响解离和俘获的通道, 强激光场中产生的激发态碎片存在解离性里德伯激发和解离性单电离再俘获过程. 相比于同核双原子分子, 人们在异核双原子分子乃至多原子分子体系与强激光场的相互作用中, 亦观测到中性激发态碎片, 而其产生机制更为复杂. Zhang 等<sup>[73]</sup> 研究了在强激光场作用于 CO 分子形成的中性里德伯碎片 C\* 和 O\* (图 8(a)), 发现解离产生的不同原子离子俘获电子的概率不同, 电离电子更容易被 C<sup>+</sup> 俘获形成 C\*, 而被 O<sup>+</sup> 俘获形成 O\* 的概率相



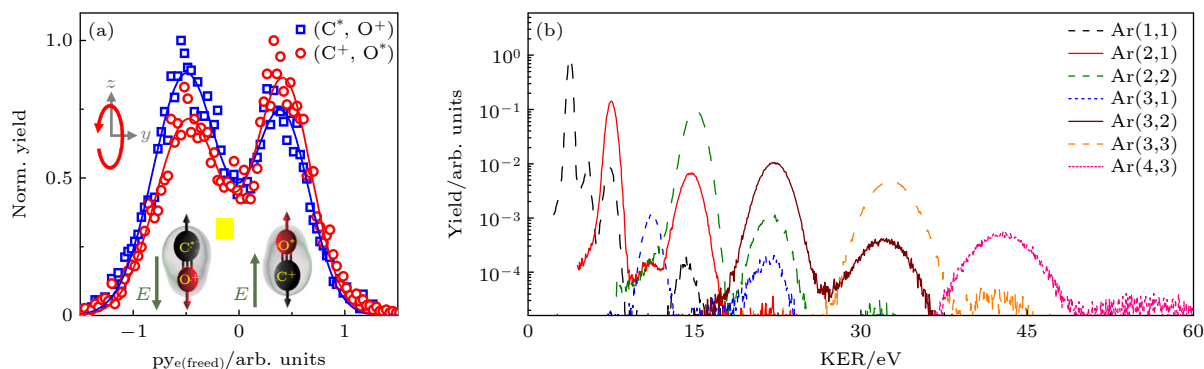


图 8 (a) 强激光场中 CO 分子形成的原子激发态碎片产率依赖于激光场方向和分子取向<sup>[73]</sup>; (b)  $\text{Ar}_2$  二聚体高阶库仑爆炸通道的平动能分布<sup>[28]</sup>

Fig. 8. (a) The yields of atomic excited fragments formed by CO molecules in strong laser fields depend on the direction of laser field and molecular orientation<sup>[73]</sup>; (b) kinetic energy release distribution of multiple ionization-induced Coulomb explosion channels of the Ar dimer<sup>[28]</sup>.

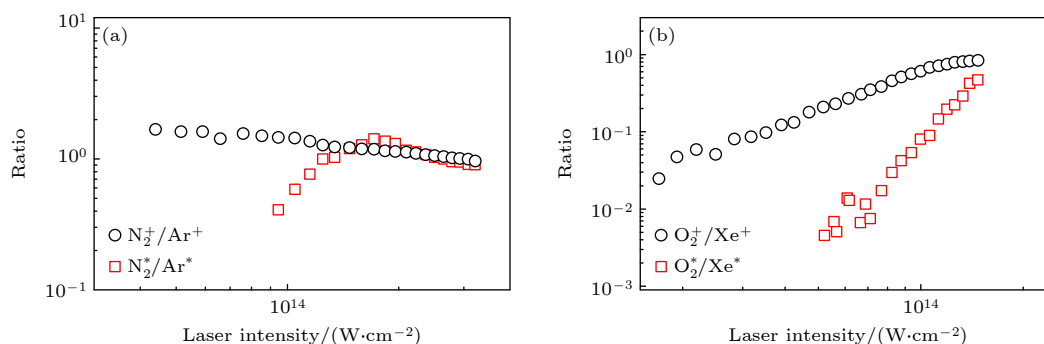


图 9 实验测量的 800 nm 强激光场下  $\text{N}_2$  vs. Ar 和  $\text{O}_2$  vs. Xe 的单电离 (黑色圆圈) 以及里德伯态激发 (红色方框) 的比值随激光强度的变化关系<sup>[26]</sup>

Fig. 9. Experimentally measured yield ratios of  $\text{N}_2$  vs. Ar and  $\text{O}_2$  vs. Xe for both single ionization and RSE as a function of intensity of 800 nm strong laser fields<sup>[26]</sup>.

对较小, 这可能与分子的取向及电子轨道结构相关. 类似的电离电子被选择性俘获的现象在二聚体  $\text{N}_2\text{Ar}$  分子的研究中也被观测到, 二聚体的结构在其中起到了重要作用<sup>[69,82]</sup>. 除了中性原子激发态的碎片, 研究者在二聚体  $\text{Ar}_2$  的研究中, 通过对于不同通道的平动能分布, 证实了更高价态的分子在库仑爆炸过程中存在多次俘获电子的现象, 从而产生原子离子的高里德伯态激发 (图 8(b))<sup>[28]</sup>.

相比而言, 中性分子本身在强激光场中 RSE 过程的研究仍不充分. 2016 年, Lv 等<sup>[26]</sup> 利用质量分辨的脉冲电场电离结合飞行时间质谱技术, 首次在实验上证实了超快强激光场中, 分子存在类似于原子的强场 RSE 现象. 他们对比研究了  $\text{N}_2/\text{O}_2$  分子和其电离限相近的 Ar/Xe 原子的强场 RSE 过程, 以揭示强场 RSE 的分子结构效应. 研究发现了具有不同电子轨道结构的  $\text{N}_2$  和  $\text{O}_2$  分子的强场 RSE 产率与相应的原子体系相比, 存在明显不同的抑制

现象,  $\text{N}_2$  表现得与原子类似, 而  $\text{O}_2$  分子 RSE 则明显低于 Xe 原子 (图 9), 这与分子强场电离的抑制现象是类似的. TDSE 的数值计算重现了实验观测的结果, 分析指出, 不同结构的分子电子出射方向和角分布不同, 导致被离子核俘获产生里德伯激发态的概率不同<sup>[26]</sup>. 同时理论预言了分子强场 RSE 的产率随光强变化呈现于原子类似的振荡结构, 其中蕴含的量子效应仍有待进一步研究. 最近, Sun 等<sup>[27]</sup> 利用 COLTRIMS 技术也观测到强激光场中高激发态的  $\text{O}_2^*$  和  $\text{N}_2^*$ , 并与相应原子的结果进行了比较 (图 10). 有意思的是, Sun 等<sup>[27]</sup> 发现  $\text{O}_2^*$  产率比  $\text{Xe}^*$  高几个数量级, 这与 Lu 等<sup>[26]</sup> 的研究结果是相反的. 需要指出的是, COLTRIMS 技术可测量的是极高  $n$  值的里德伯态 (在文献<sup>[27]</sup>中  $n > 74$ ). 上述两个工作的矛盾表明分子结构效应在不同主量子数的里德伯态产生中起到的作用是截然不同的, 因此其背后的物理机制也可能是不同的<sup>[27]</sup>.

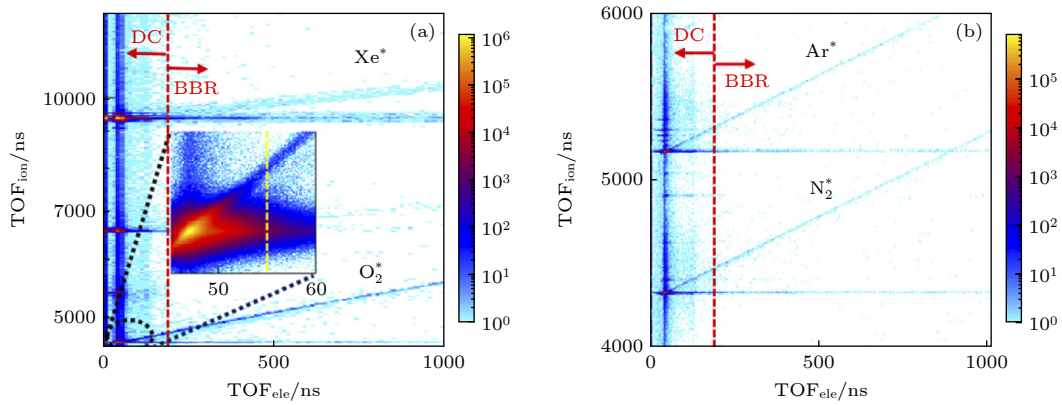


图 10 在线偏光下  $\text{O}_2/\text{Xe}$  (光强为  $8 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ) 和  $\text{N}_2/\text{Ar}$  (光强为  $1.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ) 的光电子-光离子符合光谱. 红色虚线表示由于原子分子激发态的黑体辐射导致光电离和直流电场电离之间的分界线<sup>[27]</sup>

Fig. 10. Photoelectron-photoion-coincidence spectra obtained in linearly polarized femtosecond laser pulses for  $\text{O}_2/\text{Xe}$  (at the intensity of  $8 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ) and for  $\text{N}_2/\text{Ar}$  (at the intensity of  $1.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ). The red dashed curves in both figures indicate the separation between DC electric field ionization and photon ionization due to black body radiation of the Rydberg atoms and molecules<sup>[27]</sup>.

分子强场物理研究中, 多轨道、多中心和多电子效应一直是研究者关注的重点, 在分子强场电离/多电离、HATI, HHG 等都有大量的研究工作<sup>[52,84–92]</sup>. 最近的一些理论工作也开始关注这些效应在分子强场 RSE 的重要作用. Shu 等<sup>[93]</sup>通过 TDSE 数值计算和量子轨道模型研究了具有相近电离能但轨道对称性不同 ( $1\pi_g$  和  $1\pi_u$ ) 的模型分子的强场 RSE 过程, 发现随着激光脉冲周期的增加, 里德伯态概率随激光强度变化的振荡结构变得明显, 归因于长脉冲光场的不同光周期出射电子波包的干涉效应更强. 他们发现对于分子不同的初始态 ( $1\pi_g$  和  $1\pi_u$ ), 具有相同宇称的里德伯态出现的概率与激光强度的变化趋势是反相的, 提出了分子强场 RSE 中不同对称性的轨道导致的双中心干涉效应<sup>[93]</sup>. Liu 等<sup>[94]</sup>进一步研究了在强激光场中双中心干涉对不同初态 ( $1s\sigma_g$  和  $1s\sigma_u$ ) 分子的电离和里德伯态激发过程的影响. 与  $1s\sigma_g$  态相比, 初态为  $1s\sigma_u$  的分子在低强度下电离的抑制要比里德伯态激发的抑制更明显, 他们指出相干俘获机制结合双中心干涉, 可以很好地解释不同初态的分子强场 RSE 过程的差异. 这些理论研究工作展现了强场 RSE 过程的不同分子结构、轨道以及多中心效应的影响, 接下来, 需要进一步开展更精密的实验测量, 同时研究强场 RSE 与其他强场物理过程的关联, 以深入理解复杂的分子体系与超快强激光场相互作用的物理机制.

## 6 基于强场 RSE 的中性粒子加速和相干辐射

作为一种新的强场物理现象, 原子分子强场

RSE 过程可以诱导产生一些有趣和重要的物理过程, 其中有代表性的是中性粒子加速<sup>[39,49,61,95–99]</sup>和相干辐射产生<sup>[33,50,51,100–102]</sup>. 2009 年, Eichmann 等<sup>[49]</sup>最早提出了基于原子强场 RSE 的中性粒子加速思想. 他们在实验上利用峰值强度约为  $10^{16} \text{ W/cm}^2$  的线偏光作用于中性 He 原子, 观测到俘获产生的里德伯激发态 He 原子在激光焦平面 ( $z = 0$ ) 中呈非常大的径向分布, 这是由于激光脉冲过程中的径向偏转力造成的, 在可达到的脉冲持续时间范围内, 偏转与作用在原子上的有质动力成正比, 这种作用力产生的加速度可以达到地球重力加速度的  $10^{14}$  倍<sup>[49]</sup>. 他们后续工作进一步表明强激光场中有质动力在激光光束的径向方向优先作用于原子使其加速, 这归因于聚焦的激光束沿径向方向的强度梯度要比沿传播方向强得多<sup>[61]</sup>. Chen 等<sup>[99]</sup>模拟了激发态中性原子在激光场中运动, 计算了中性原子与激光脉冲相互作用后的空间分布, 并分析了粒子空间分布与有质动力分布的关系, 结果展现了有质动力与激光强度分布是决定中性里德伯原子最终空间分布的两个重要因素. 基于强场 RSE 的中性原子加速的思想, 研究者探究了对中性原子进行选择操控 (推或拉) 的可能方法<sup>[95–98]</sup>.

强场 RSE 过程可以产生有效布居在高激发态的原子, 这种情况下可出现与低激发态能级间的粒子数反转, 从而有可能用于放大, 产生波长可覆盖太赫兹、红外、可见乃至紫外和极紫外范围的增益辐射<sup>[51]</sup>. Bredtmann 等<sup>[50]</sup>利用 *ab-initio* 方法模拟了氢原子在高次谐波产生的瞬态吸收过程, 指出原

子通过受挫隧穿电离布居激发态的同时, 迅速耗散初始基态, 从而产生粒子数反转, 可以造成极紫外辐射的放大. Matthews 等<sup>[100]</sup>利用整形激光证实能通过强场 RSE 过程形成的粒子数反转放大种子光. 2018 年, Yun 等<sup>[33]</sup>在 He 原子 HHG 光谱的研究中, 观测到新的来自强场 RSE 过程产生的里德伯激发态通过自由感应衰变 (free induced decay, FID) 发出极紫外相干辐射, 其产率依赖于激光椭圆偏率和载波包络相位, 而发散角略大于 HHG<sup>[33,101]</sup>. Ortmann 等<sup>[102]</sup>研究表明增加脉冲持续时间会耗散较低位里德伯态, 从而大大地降低这种极紫外相干辐射的产率. 这种基于强激光场中原子 RSE 过程可以产生增益放大或相干辐射, 为新型超快相干光源的发展提供了一种新的思路.

## 7 结论与展望

综上所述, 原子分子的强场里德伯态激发作为隧穿电离诱导的一个重要物理过程, 已经逐步发展成为强场原子分子物理领域的一个重要研究方向, 近十余年来受到研究者的广泛关注. 人们已经发展了中性/荷电粒子测量、符合测量、光谱测量等实验技术, 以及半经典、经典和量子等理论模拟方法, 对不同强激光场下不同原子分子体系的里德伯态激发过程进行了深入的研究. 从多光子共振激发到隧穿后再俘获, 再到相干俘获的量子图像, 人们对于原子强场 RSE 产生机制的认识不断深入. 对于分子体系而言, 母体分子及其解离的碎片都可以俘获电子而产生相应的里德伯态分子或原子, 而分子轨道结构对俘获几率有非常重要的影响. 此外, 在中性粒子加速和相干辐射方面的研究工作, 展现了强场 RSE 物理过程潜在的应用价值.

回顾近年来相关的研究工作, 可以看到研究者对强场 RSE 过程的理解不断深入, 提升了对超快强激光场与原子分子相互作用的认识, 也推动了强场物理理论的发展. 在此基础上, 针对该研究方向未来的发展, 我们认为可以从以下几个方面开展更深入的实验和理论研究. 首先, 发展量子态分辨的精密测量方法, 研究强场 RSE 过程产生的里德伯态的 ( $n, l$ ) 布居分布以及俘获到不同量子态的概率; 其次, 精确控制分子的初始状态 (如选择特定准直方向、特定轨道结构等), 分辨不同产物通道 (如母体分子里德伯态, 不同碎片的里德伯态等),

研究复杂分子体系的强场 RSE 过程, 深入理解强场 RSE 过程的分子结构效应; 再次, 强场 RSE 与其他强场物理过程 (如 ATI、阈值下谐波、双电离等) 的关联, 也是一个值得研究的课题; 最后, 通过精确控制超快强激光场, 实现对俘获动力学的调控, 将有助于更深入的理解其中的物理机制. 最近, 有实验和理论研究表明, 采用双色激光场并调节相对相位和强度, 可以有效地改变原子的俘获概率<sup>[67,73,103–109]</sup>, 这也为未来调控强场 RSE 和里德伯电子动力学过程提供了思路.

## 参考文献

- [1] Strickland D 2019 *Rev. Mod. Phys.* **91** 030502
- [2] Mourou G 2019 *Rev. Mod. Phys.* **91** 030501
- [3] Keldysh L V 1965 *Sov. Phys. JETP* **5** 1307
- [4] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [5] Schafer K J, Yang B, DiMauro L F, Kulander K C 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 1599
- [6] Corkum P B 2011 *Phys. Today* **64** 36
- [7] Tisch J W G 2008 *Nat. Phys.* **4** 350
- [8] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [9] Hassan M T, Luu T T, Moulet A, Raskazovskaya O, Zhokhov P, Garg M, Karpowicz N, Zheltikov A M, Pervak V, Krausz F, Goulielmakis E 2016 *Nature* **530** 66
- [10] Levesque J, Itatani J, Zeidler D, Pépin H, Kieffer J-C, Corkum P B, Villeneuve D M 2006 *J. Mod. Opt.* **53** 185
- [11] Haessler S, Caillat J, Boutu W, Giovanetti-Teixeira C, Ruchon T, Auguste T, Diveki Z, Breger P, Maquet A, Carré B, Taïeb R, Salières P 2010 *Nat. Phys.* **6** 200
- [12] Morales F, Richter M, Patchkovskii S, Smirnova O 2011 *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **108** 16906
- [13] Lein M, Marangos J P, Knight P L 2002 *Phys. Rev. A* **66** 051404(R)
- [14] Meckel M, Comtois D, Zeidler D, Staudte A, Pavičić D, Bandulet H C, Pépin H, Kieffer J C, Dörner R, Villeneuve D M, Corkum P B 2008 *Science* **320** 1478
- [15] Gertsvolf M, Jean-Ruel H, Rajeev P P, Klug D D, Rayner D M, Corkum P B 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 243001
- [16] Park I Y, Kim S, Choi J, Lee D H, Kim Y J, Kling M F, Stockman M I, Kim S W 2011 *Nat. Photonics* **5** 677
- [17] Gauthier D, Ribic P R, De Ninno G, Allaria E, Cinquegrana P, Danailov M B, Demidovich A, Ferrari E, Giannessi L, Mahieu B, Penco G 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 114801
- [18] Gauthier D, Allaria E, Coreno M, et al. 2016 *Nat. Commun.* **7** 13688
- [19] Wang B B, Li X F, Fu P M, Chen J, Liu J 2006 *Chin. Phys. Lett.* **23** 2729
- [20] Nubbemeyer T, Gorling K, Saenz A, Eichmann U, Sandner W 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 233001
- [21] Zhao L, Zhang Q, Dong J W, Lü H, Xu H F 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 223201 (in Chinese) [赵磊, 张琦, 董敬伟, 吕航, 徐海峰 2016 物理学报 **65** 223201]
- [22] Manschwetus B, Nubbemeyer T, Gorling K, Steinmeyer G, Eichmann U, Rottke H, Sandner W 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 113002
- [23] Nubbemeyer T, Eichmann U, Sandner W 2009 *J. Phys.*



- B:At. Mol. Opt. Phys.* **42** 134010
- [24] McKenna J, Zeng S, Hua J J, Sayler A M, Zohrabi M, Johnson N G, Gaire B, Carnes K D, Esry B D, Ben-Itzhak I 2011 *Phys. Rev. A* **84** 043425
  - [25] Lv H, Zhang J F, Zuo W L, Jin M X, Xu H F, Ding D J 2014 *J. Phys. Conf. Ser.* **488** 032036
  - [26] Lv H, Zuo W L, Zhao L, Xu H F, Jin M X, Ding D J, Hu S L, Chen J 2016 *Phys. Rev. A* **93** 033415
  - [27] Sun F H, Lu C X, Ma Y Z, Pan S Z, Wang J W, Zhang W B, Qiang J J, Chen F, Ni H C, Li H, Wu J 2021 *Opt. Express* **29** 31240
  - [28] Wu J, Vredenburg A, Ulrich B, Schmidt L P, Meckel M, Voss S, Sann H, Kim H, Jahnke T, Dömer R 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 043003
  - [29] Zimmermann H, Buller J, Eilzer S, Eichmann U 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 123003
  - [30] Xu S P, Liu M Q, Hu S L, Shu Z, Quan W, Xiao Z L, Zhou Y, Wei M Z, Zhao M, Sun R P, Wang Y L, Hua L Q, Gong C, Lai X Y, Chen J, Liu X J 2020 *Phys. Rev. A* **102** 043104
  - [31] Zhao L, Dong J W, Lv H, Yang T X, Lian Y, Jin M X, Xu H F, Ding D J, Hu S L, Chen J 2016 *Phys. Rev. A* **94** 053403
  - [32] Larimian S, Erattupuzha S, Lemell C, Yoshida S, Nagele S, Maurer R, Baltuška A, Burgdörfer J, Kitzler M, Xie X H 2016 *Phys. Rev. A* **94** 033401
  - [33] Yun H, Mun J H, Hwang S I, Park S B, Ivanov I A, Nam C H, Kim K T 2018 *Nat. Photonics* **12** 62
  - [34] Shvetsov-Shilovski N I, Goreslavski S P, Popruzhenko S V, Becker W 2009 *Laser Phys.* **19** 1550
  - [35] Landsman A S, Pfeiffer A N, Hofmann C, Smolarski M, Cirelli C, Keller U 2013 *New J. Phys.* **15** 013001
  - [36] Lin Y W, Williams S, Odom B C 2013 *Phys. Rev. A* **87** 011402
  - [37] Huang K Y, Xia Q Z, Fu L B 2013 *Phys. Rev. A* **87** 033415
  - [38] Shomsky K N, Smith Z S, Haan S L 2009 *Phys. Rev. A* **79** 061402(R)
  - [39] Xia Q Z, Fu L B, Liu J 2013 *Phys. Rev. A* **87** 033404
  - [40] Volkova E A, Popov A M, Tikhonova O V 2011 *J. Exp. Theor. Phys.* **113** 394
  - [41] Li Q G, Tong X-M, Morishita T, Wei H, Lin C D 2014 *Phys. Rev. A* **89** 023421
  - [42] Zimmermann H, Patchkovskii S, Ivanov M, Eichmann U 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 013003
  - [43] Hu S L, Hao X L, Lv H, Liu M Q, Yang T Q, Xu H F, Jin M X, Ding D J, Li Q G, Li W D, Becker W, Chen J 2019 *Opt. Express* **27** 31629
  - [44] Blaga C I, Catoire F, Colosimo P, Paulus G G, Muller H G, Agostini P, DiMauro L F 2009 *Nat. Phys.* **5** 335
  - [45] 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
  - [46] Dura J, Camus N, Thai A, Britz A, Hemmer M, Baudisch M, Senftleben A, Schroter C D, Ullrich J, Moshhammer R, Biegert J 2013 *Sci. Rep.* **3** 2675
  - [47] Chini M, Wang X W, Cheng Y, Wang H, Wu Y, Cunningham E, Li P C, Heslar J, Telnov D A, Chu S I, Chang Z H 2014 *Nat. Photonics* **8** 437
  - [48] Xiong W H, Peng L Y, Gong Q H 2017 *J. Phys. B:At. Mol. Opt. Phys.* **50** 032001
  - [49] Eichmann U, Nubbemeyer T, Rottke H, Sandner W 2009 *Nature* **461** 1261
  - [50] Bredtmann T, Patchkovskii S, Ivanov M Y 2017 *New J. Phys.* **19** 073011
  - [51] Bogatskaya A V, Volkova E A, Popov A M 2016 *Laser Phys.* **26** 015301
  - [52] Lin C D, Le A T, Chen Z J, Morishita T, Lucchese R 2010 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **43** 122001
  - [53] Becker W, Grasbon E, Kopold R, Milošević D B, Paulus G G, Walther H 2002 *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **48** 35
  - [54] Becker W, Goreslavski S P, Milošević D B, Paulus G G 2018 *J. Phys. B:At. Mol. Opt. Phys.* **51** 162002
  - [55] Becker W, Liu X J, Ho P J, Eberly J H 2012 *Rev. Mod. Phys.* **84** 1011
  - [56] Zhou Y M, Lu P X 2016 *Sci. Sin. -Phys. Mech. Astron.* **47** 033005
  - [57] Lein M 2007 *J. Phys. B:At. Mol. Opt. Phys.* **40** R135
  - [58] Anstötter C S, Bull J N, Verlet J R R 2016 *Int. Rev. Phys. Chem.* **35** 509
  - [59] Nisoli M, Sansone G 2009 *Prog. Quantum Electron.* **33** 17
  - [60] Landsman A S, Keller U 2015 *Phys. Rep.* **547** 1
  - [61] Zimmermann H, Eichmann U 2016 *Phys. Scr.* **91** 104002
  - [62] Gallagher T F 1988 *Rep. Prog. Phys.* **51** 143
  - [63] Softley T P 2007 *Int. Rev. Phys. Chem.* **23** 1
  - [64] Larimian S, Lemell C, Stummer V, Geng J W, Roither S, Kartashov D, Zhang L, Wang M X, Gong Q H, Peng L Y, Yoshida S, Burgdörfer J, Baltuška A, Kitzler M, Xie X H 2017 *Phys. Rev. A* **96** 021403(R)
  - [65] Larimian S, Erattupuzha S, Baltuška A, Kitzler-Zeiler M, Xie X H 2020 *Phys. Rev. Res.* **2** 013021
  - [66] Zhao M, Wang Y L, Quan W, Lai X Y, Liu H P, Lu J D, Liu X J 2021 *Phys. Rev. A* **104** 043115
  - [67] Zhang W B, Yu Z Q, Gong X C, Wang J P, Lu P F, Li H, Song Q Y, Ji Q Y, Lin K, Ma J Y, Li H X, Sun F H, Qiang J J, Zeng H P, He F, Wu J 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 253202
  - [68] Zhang W B, Li H, Gong X C, Lu P F, Song Q Y, Ji Q Y, Lin K, Ma J Y, Li H X, Sun F H, Qiang J J, Zeng H P, Wu J 2018 *Phys. Rev. A* **98** 013419
  - [69] Sun F H, Zhang W B, Lu P F, Song Q Y, Lin K, Ji Q Y, Ma J Y, Li H X, Qiang J J, Gong X C, Li H, Wu J 2019 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **53** 035601
  - [70] Ma J Y, Li H, Lin K, Ji Q Y, Zhang W B, Li H X, Sun F H, Qiang J J, Lu P F, Gong X C, Wu J 2019 *Phys. Rev. A* **99** 023414
  - [71] Ma J Y, Zhang W B, Lin K, Ji Q Y, Li H X, Sun F H, Qiang J J, Chen F, Tong J H, Lu P F, Li H, Gong X C, Wu J 2019 *Phys. Rev. A* **100** 063413
  - [72] Zhang W B, Gong X C, Li H, Lu P F, Sun F H, Ji Q Y, Lin K, Ma J Y, Li H X, Qiang J J, He F, Wu J 2019 *Nat. Commun.* **10** 757
  - [73] Zhang W B, Lu P F, Gong X C, Li H, Ji Q Y, Lin K, Ma J Y, Li H X, Sun F H, Qiang J J, Chen F, Tong J H, Wu J 2020 *Phys. Rev. A* **101** 033401
  - [74] Ammoso M V, Delone N B, Krainov V P 1986 *Eksp. Teor. Fiz.* **91** 2008
  - [75] Piraux B, Mota-Furtado F, O'Mahony P F, Galstyan A, Popov Y V 2017 *Phys. Rev. A* **96** 043403
  - [76] Chen Z J, Morishita T, Le A T, Wickenhauser M, Tong X M, Lin C D 2006 *Phys. Rev. A* **74** 053405
  - [77] Li Q G, Tong X M, Morishita T, Jin C, Wei H, Lin C D 2014 *J. Phys. B:At. Mol. Opt. Phys.* **47** 204019
  - [78] Chetty D, Glover R D, deHarak B A, Tong X M, Xu H, Pauly T, Smith N, Hamilton K R, Bartschat K, Ziegel J P, Douguet N, Luiten A N, Light P S, Litvinyuk I V, Sang R T 2020 *Phys. Rev. A* **101** 053402
  - [79] Liu M Q, Xu S P, Hu S L, Becker W, Quan W, Liu X J,

- Chen J 2021 *Optica* **8** 765
- [80] Eichmann U, Saenz A, Eilzer S, Nubbemeyer T, Sandner W 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 203002
- [81] Venzke J, Reiff R, Xue Z, Jaroń-Becker A, Becker A 2018 *Phys. Rev. A* **98** 043434
- [82] Xie X, Wu C, Liu H, Li M, Deng Y K, Liu Y Q, Gong Q H, Wu C Y 2013 *Phys. Rev. A* **88** 065401
- [83] Emmanouilidou A, Lazarou C, Staudte A, Eichmann U 2012 *Phys. Rev. A* **85** 011402(R)
- [84] Lein M, Hay N, Velotta R, Marangos J P, Knight P L 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 183903
- [85] Santra R, Gordon A 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 073906
- [86] Pavičić D, Lee K F, Rayner D M, Corkum P B, Villeneuve D M 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 243001
- [87] Doumy G, DiMauro L F 2008 *Science* **322** 1194
- [88] Busuladžić M, Hasović E, Becker W, Milošević D B 2012 *J. Chem. Phys.* **137** 134307
- [89] Lin Z Y, Jia X Y, Wang C L, Hu Z L, Kang H P, Quan W, Lai X Y, Liu X J, Chen J, Zeng B, Chu W, Yao J P, Cheng Y, Xu Z Z 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 223001
- [90] Yao J P, Li G H, Jia X Y, Hao X L, Zeng B, Jing C R, Chu W, Ni J L, Zhang H S, Xie H Q, Zhang C J, Zhao Z X, Chen J, Liu X J, Cheng Y, Xu Z Z 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 133001
- [91] Wang P Y, Jia X Y, Fan D H, Chen J 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 143201 (in Chinese) [王品懿, 贾欣燕, 樊代和, 陈京 2015 物理学报 **64** 143201]
- [92] Monfared M, Irani E, Sadighi-Bonabi R 2018 *J. Chem. Phys.* **148** 234303
- [93] Shu Z, Liu M, Hu S L, Chen J 2020 *Opt. Express* **28** 11165
- [94] Liu M Q, Shu Z, Hu S L, Chen J 2021 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **54** 095601
- [95] Maher-McWilliams C, Douglas P, Barker P F 2012 *Nat. Photonics* **6** 386
- [96] Cai X M, Zheng J, Lin Q 2013 *Phys. Rev. A* **87** 043401
- [97] Eilzer S, Eichmann U 2014 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **47** 204014
- [98] Wang P X, Wei Q, Cai P, Wang J X, Ho Y K 2016 *Opt. Lett.* **41** 230
- [99] Chen J H, Wang J F, Li X F, Yuan X Q, Wang P X 2017 *J. Appl. Phys.* **121** 103105
- [100] Matthews M, Morales F, Patas A, Lindinger A, Gateau J, Berti N, Hermelin S, Kasparian J, Richter M, Bredtmann T, Smirnova O, Wolf J P, Ivanov I A 2018 *Nat. Phys.* **14** 695
- [101] Mun J H, Ivanov I A, Yun H, Kim K T 2018 *Phys. Rev. A* **98** 063429
- [102] Ortman L, Hofmann C, Ivanov I A, Landsman A S 2021 *Phys. Rev. A* **103** 063112
- [103] Ge P P, Liu Y Q 2017 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **50** 125001
- [104] Chen A, Kling M F, Emmanouilidou A 2017 *Phys. Rev. A* **96** 033404
- [105] Vilà A, Katsoulis G P, Emmanouilidou A 2019 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **52** 015604
- [106] Xu T T, Gong W J, Zhang L L, Qi Y 2020 *Opt. Express* **28** 35168
- [107] Katsoulis G P, Sarkar R, Emmanouilidou A 2020 *Phys. Rev. A* **101** 033403
- [108] Cao C P, Li M, Liang J T, Guo K Y, Zhou Y M, Lu P X 2021 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **54** 035601
- [109] Li Y B, Xu J K, Chen H M, Li Y H, He J J, Qin L L, Shi L k, Zhao Y G, Tang Q B, Zhai C Y, Yu B H 2021 *Opt. Commun.* **493** 127019

## SPECIAL TOPIC—Attosecond physics

# Rydberg state excitation of atoms and molecules in ultrafast intense laser field\*

Shen Xing-Chen   Liu Yang   Chen Qi   Lü Hang   Xu Hai-Feng<sup>†</sup>*(Institute of Atomic and Molecular Physics, Jilin University, Changchun 130012, China)*

( Received 28 June 2022; revised manuscript received 24 July 2022 )

## Abstract

When atoms or molecules are irradiated by a strong laser field with pulse duration of tens of femtoseconds and intensity larger than  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>, they will generally undergo tunneling ionization, which will induce various non-perturbative and highly nonlinear phenomena. Investigations into the strong field physical processes is of significance in studying attosecond physics, molecular orbital imaging, ultrafast electron diffraction and advanced short ultraviolet light sources. While there is a relatively long history of the studies of tunneling ionization induced physics including high-order above threshold ionization (HATI), high-order harmonic generation (HHG) and non-sequential double ionization (NSDI), it is until recently to surprisingly find that in the tunneling ionization region, neutral atoms or molecules can survive in strong laser fields in highly excited Rydberg states. As a basic process of the interaction between ultrafast strong laser fields and atoms or molecules, such a Rydberg state excitation (RSE) has been viewed as an important supplement to the physical picture of the tunneling ionization. During the past several years, the extensive research attention has been paid to the RSE process in strong laser field. Various theoretical and experimental methods have been developed to investigate the strong field RSE of both atoms and molecules, to understand the underlying physical mechanism behind the recapture of the tunneling electrons and to reveal the quantum features and molecular structure effect in RSE. These advances have brought about an in-depth understanding and a systematic view of the atomic and molecular RSE in strong laser fields, as well as their relations to the other tunneling ionization induced physical processes such as ATI, HHG and NSDI. Here, we systematically review recent research progress of the atomic and molecular RSE in strong laser fields. We particularly focus on several aspects of this strong field process, i.e. the physical mechanism of the recapture, the quantum feature and the interference of different orbits, and the structure effect in molecular RSE. In addition, neutral particle acceleration and coherent radiation which can be induced by the strong field RSE, are also discussed. Finally, we provide a short summary and prospect of the future studies on the strong field RSE.

**Keywords:** ultrafast intense laser field, Rydberg state excitation, tunneling ionization, capture**PACS:** 32.80.Ee, 32.80.Rm, 33.80.Rv, 34.80.Gs**DOI:** 10.7498/aps.71.20221258

\* Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant No. 2019YFA0307700) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12174148, 12074144, 11874179).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [xuhf@jlu.edu.cn](mailto:xuhf@jlu.edu.cn)





## 超快强激光场中原子分子的里德伯态激发

沈星晨 刘洋 陈淇 吕航 徐海峰

## Rydberg state excitation of atoms and molecules in ultrafast intense laser field

Shen Xing-Chen Liu Yang Chen Qi Lü Hang Xu Hai-Feng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 233202 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20221258

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221258>

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

#### 反向旋转双色椭圆偏场中原子隧穿电离电子的全息干涉

Photoelectron holography in tunneling ionization of atoms by counter-rotating two-color elliptically polarized laser field

物理学报. 2022, 71(9): 093202 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212226>

#### 一价镧离子高 $n$ 里德伯态

The study on high  $n$  Rydberg state of La II

物理学报. 2019, 68(4): 043201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181980>

#### 铯原子 $nP_{3/2}$ ( $n = 70-94$ )里德伯态的紫外单光子激发及量子亏损测量

Measurement of quantum defect of cesium  $nP_{3/2}$  ( $n = 70-94$ ) Rydberg states by using ultraviolet single-photon Rydberg excitation

物理学报. 2019, 68(7): 073201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20182283>

#### 基于里德伯超级原子快速制备三粒子单重态

Fast generation of three-atom singlet state with Rydberg superatom

物理学报. 2021, 70(12): 120301 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201841>

#### 稀薄里德伯原子气体中的两体纠缠

Two-body entanglement in a dilute gas of Rydberg atoms

物理学报. 2018, 67(3): 034202 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172052>

#### 里德伯原子的射频脉冲响应特性

Response characteristics of radio frequency pulse of Rydberg atoms

物理学报. 2022, 71(20): 207402 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220972>