arXiv:2301.00619v1 [physics.atom-ph] 2 Jan 2023

强场电离中分子内电子对光的响应时间

J. Y. Che[1], †, Y. G. Peng[1], †, F. B. Zhang[1], X. J. Xie[2], *, G. G. Xin[3], 和 Y. J. Chen[1], ‡
1.College of Physics and Information Technology, Shaan'xi Normal University, Xi'an, China
2.College of Physics and Electronic Information, Luoyang Normal University, Luoyang, China
3.School of Physics, Northwest University, Xi'an, China（日期：2023年1月3日）

我们通过数值和解析方法研究了强椭圆偏振激光场中取向 H_2^+ 分子的电离。在不同激光参数下，计算得到的光电子动量分布偏移角对于该分子而言，比电离势相近的模型原子大数度。借助一种考虑多中心和单中心库仑势特性的强场模型，我们能够定量再现分子与原子之间的这一角度差。基于该模型的进一步分析表明，电子对光的响应时间编码在偏移角中，并体现为隧穿电离所用的时间；对于分子，这一时间比原子长约 15 阿秒。随着分子核间距增大，这一时间差还会进一步增大。

I. 引言

光电效应也称为光发射，与宇宙中电子和光子这两种基本粒子之间的能量交换有关。因此，这种效应在实践和理论上都具有基础性的重要意义 [1, 2]。它最初是在光照射金属靶材时观察到的电子发射现象，随后爱因斯坦用光量子假说对其作出解释，这极大地推动了量子力学的诞生。根据爱因斯坦的理论，只有当光频率（对应于光子能量）高于金属靶材中价电子的电离势时，才会触发这种效应；而这一触发过程与光强无关。

随着激光技术的发展，光强显著提高。如今已知，这种效应普遍存在于光与物质（包括所有固体、液体和气体靶材）的相互作用中[3–6]。对于气体，当光强足够高时，原子或分子中的活性电子可以通过吸收一个以上的光子而逸出 [7]。相关现象被称为多光子电离。当与光强相关的激光电场继续增强，并达到与靶材的库仑势电场相当的程度时，也会触发隧穿电离；此时，光强在原子或分子中活性电子的电离过程中起着重要作用 [8, 9]。

光电效应中一个尚未解决的问题是，光电子发射过程是否瞬时完成，还是电子在此过程中对光的响应需要有限时间[10, 11]。由于实验技术和量子力学原理的限制，直到最近这一问题才得到初步探索 [12–17]。例如，在弱高频激光场中氩和氦的单光子电离过程中，实验研究发现，价电子与芯层电子的电离之间存在数十阿秒的相对时间延迟 [18, 19],。这一延迟被解释为Eisenbud-Wigner时间 [20]。对于强低频激光场中的氦隧穿电离，实验也揭示了约 100 阿秒的延迟，这与隧穿电子在势垒下方所经历的时间有关 [21]。研究发现，这一延迟与拉莫尔时间 [22] 以及通过费曼路径积分方法得到的时间预测相符 [23, 24], ，尤其是后者。

最近，有研究提出了一种半经典理论，用于描述强激光诱导隧穿电离过程中原子内部电子对光的响应时间 [25]。该理论将响应时间定义为电子、原子核与光子之间发生强烈三体相互作用的时间。根据该理论预测的响应时间推导出的可观测量，与近期在不同激光和原子参数条件下开展的阿秒时钟实验结果相符 [26–30]。因此，该理论为理解原子强场隧穿电离的时间特性提供了新的视角 [31–33]。对于分子，可以预期，价电子、分子多中心库仑势与激光电场之间的相互作用不同于原子的单中心情形。

本文聚焦于分子内电子对强低频激光场的响应时间。通过数值求解含时薛定谔方程（TDSE），我们研究了强椭圆偏振激光场中取向排列的 H_2^+（最简单的双原子分子离子）的电离。随着激光强度和波长的变化，计算得到的光电子动量分布（PMD）偏移角比具有相近电离势的模型原子 I_p大数度。随着分子核间距增大，分子与原子之间的角度差异进一步扩大。考虑到隧穿过程中分子库仑势的多中心特性，我们将半经典响应时间理论推广到分子体系。该推广理论能够很好地再现分子的含时薛定谔方程计算结果。研究表明，分子在强场隧穿电离中的响应时间比原子体系长十多阿秒。

II. 理论方法

含时薛定谔方程。在长度规范下，强激光场与 H_2^+体系相互作用的哈密顿量可写为（以 $\hbar = e = m_e = 1$原子单位表示）

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

这里， $H_0 = \mathrm{p}^2/2 + V(\mathrm{r})$ 是无场哈密顿量，V(r) 是分子的库仑势。所用的势 V(r) 形式为 $V(\mathrm{r}) = -Z/\sqrt{\zeta + \mathrm{r}_1^2} - Z/\sqrt{\zeta + \mathrm{r}_2^2}$，二维情况下 $\mathrm{r}_{1(2)}^2 = (x \pm \frac{R}{2}\cos\theta')^2 + (y \pm \frac{R}{2}\sin\theta')^2$。这里， $\zeta = 0.5$ 是用于避免库仑奇点的平滑参数， θ' 是取向角。这里我们考虑平行取向的情况，其中 $\theta' = 0^o$。项$Z = 1$ 表示有效核电荷。对于平衡间距为 $R = 2$ a.u. 的情况，此处重现的模型分子的电离能为 $I_p = 1.11$ a.u.。对于其他核间距 $R = 1.8$ a.u. 和 $R = 2.2$ a.u.，重现的电离能分别为 $I_p = 1.146$ a.u. 和 $I_p = 1.078$ a.u.。为了解多中心库仑势在隧穿中的作用，我们将 H_2^+ 的电离与具有相似 I_p 的模型原子进行比较。原子情况下 V(r) 表达式中使用的参数为 $R = 0$ 和 $Z = 0.85$。

公式（1）中的 E(t) 表示激光的电场。在椭圆偏振情形下，本文采用的电场 E(t) 形式为 $\mathrm{E}(t) = f(t)[\vec{\mathrm{e}}_x E_x(t) + \vec{\mathrm{e}}_y E_y(t)]$, , 其中 $E_x(t) = E_0 \sin(\omega t)$, 且$E_y(t) = E_1 \cos(\omega t)$, $E_0 = E_L/\sqrt{1+\varepsilon^2}$ 以及 $E_1 = \varepsilon E_L/\sqrt{1+\varepsilon^2}$。这里， E_L 是对应于峰值强度 I 的最大激光振幅， $\varepsilon = 0.87$ 是椭圆率， ω 是激光频率， $f(t)$ 是包络函数。项 $\vec{\mathrm{e}}_x$($\vec{\mathrm{e}}_y$) 是沿x(y)轴方向的单位矢量。我们采用总持续时间为十五个光学周期的梯形激光脉冲，其中激光强度在线性偏振下用三个光学周期逐渐开启和关闭，随后在另外九个周期内保持恒定强度。利用谱方法 [34] ，对 $i\dot{\Psi}(\mathrm{r}\ t) = \mathrm{H}(t)\Psi(\mathrm{r}\ t)$ 的含时薛定谔方程进行数值求解，时间步长为 $\triangle t = 0.05$ 原子单位。我们采用网格尺寸为 $L_x \times L_y = 409.6 \times 409.6$ 原子单位、空间步长为 $\triangle x = \triangle y = 0.4$ 原子单位的网格。通过使用更精细的网格检查数值收敛性。

为避免电子波包在边界处发生反射并获得动量空间波函数，通过乘以掩模函数 $F(\mathrm{r})$，将坐标空间划分为内区和外区，其中 $\Psi(\mathrm{r}\ t) = \Psi_{in}(\mathrm{r}\ t) + \Psi_{out}(\mathrm{r}\ t)$ $F(\mathrm{r})$ 的形式为 $= F(x,y) = \cos^{1/2}[\pi(r_b - r_f)/(L_r - 2r_f)]$，适用于 $r_b \geq r_f$；而 $F(x,y) = 1$适用于 $r_b < r_f$。这里，$r_b = \sqrt{x^2 + y^2/\epsilon^2}$, $r_f = 2.1x_q$取 $x_q = E_0/\omega^2$，而 $L_r/2 = r_f + 50$ 为 $L_r \leq L_x$ a.u.。在内区，波函数 $\Psi_{in}(\mathrm{r}\ t)$ 使用完整的哈密顿量 $H(t)$ 进行传播。在外区，波函数 $\Psi_{out}(\mathrm{r}\ t)$ 的时间演化则在动量空间中通过激光场中的自由电子哈密顿量进行计算。掩模函数每隔 0.5 a.u. 应用一次，并将得到的外区波函数新部分加到动量空间波函数 $\tilde{\Psi}_{out}(\mathrm{r}\ t)$ 中，由此获得光电子动量分布。然后找出光电子动量分布的局部极大值，并通过对局部极大值的角分布进行高斯拟合，得到偏移角 θ。

TRCM。我们从 [25]提出的模型说起，该模型用于描述强场隧穿电离中原子内电子对光的响应时间。这个模型被称为隧穿响应经典运动（TRCM）模型。它源自强场近似（SFA） [35] ，但考虑了库仑效应 [36–38]。该模型首先求解强场近似鞍点方程

$$[\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s)]^2/2 = -I_p \tag{2}$$

以获得电子轨迹（p t_0）。这里，p 是光电子的漂移动量，不包含库仑效应。A(t) 是电场 E(t) 的矢势。 t_0 表示光电子的隧穿离开时间。它是满足式 (2) 鞍点方程的复时间 $t_s = t_0 + it_x$ 的实部。轨迹（p t_0）符合以下映射关系

$$\mathbf{p} \equiv \mathbf{p}(t_0) = \mathbf{v}(t_0) - \mathbf{A}(t_0). \tag{3}$$

项 $\mathrm{v}(t_0) = \mathrm{p} + \mathrm{A}(t_0)$ 表示光电子在出口位置（即隧穿出口） [38]处的出口速度

$$\mathbf{r}_0 \equiv \mathbf{r}(t_0) = Re(\int_{t_0+it_x}^{t_0} [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t')]dt'). \tag{4}$$

对应轨迹 (p t_0) 的复振幅可表示为 $c(\mathrm{p}\ t_0) \sim e^b$。其中，$b$ 是准经典作用量 $S(\mathrm{p}\ t_s) = \int_{t_s}\{[\mathrm{p} + \mathrm{A}(t')]^2/2 + I_p\}dt'$ 的虚部，且 $t_s = t_0 + it_x$ [35]。

然后，TRCM 假设在隧穿出口 r(t_0) 处，具有漂移动量 p 的隧穿电子仍处于准束缚态，且该状态近似符合维里定理。隧穿电子需要经过一小段时间τ，才能从准束缚态演化到电离态。随后，它在时刻 $t_i = t_0 + \tau$ 以包含库仑作用的漂移动量 p′自由运动。该时间 τ 可理解为激光诱导光电效应中原子内电子对光的响应时间，并在强场电离中表现为库仑诱导电离时间延迟 [39, 40]。TRCM 中漂移动量 p′ 与电离时间 t_i 之间的映射关系可表示为

$$\mathbf{p}' \equiv \mathbf{p}'(t_i) = \mathbf{v}(t_0) - \mathbf{A}(t_i). \tag{5}$$

光电子动量分布中的偏移角 θ 与最可能路径（MPR）有关，该路径对应于光电子动量分布中振幅最大的动量。对于 MPR，光电子的隧穿离开时间 t_0 与

激光场的峰值时刻一致。该偏移角 θ 满足以下关系

$$\tan\theta = p'_x/p'_y = A_x(t_i)/[A_y(t_i) - v_y(t_0)]. \quad (6)$$

上述表达式已考虑到 MPR $v_x(t_0) = 0$的因素。忽略 $v_y(t_0)$后，也可得到上述表达式的绝热版本。即

$$\tan\theta \approx A_x(t_i)/A_y(t_i). \quad (7)$$

绝热版本适用于 $\gamma \ll 1$。这里，$\gamma = w\sqrt{2I_p}/E_0$ 是凯尔迪什参数 [41]。它被称为库仑校准阿秒钟（CCAC）[42]。在 CCAC 中，考虑 MPR 的 $t_i = t_0 + \tau$ 和 $\omega t_0 = \pi/2$ 后，还可进一步得到以下关系

$$\tan\theta \approx \tan(\omega\tau)/\varepsilon \approx \theta \approx \omega\tau/\varepsilon \quad (8)$$

对于小角度 θ。利用上述表达式，当时滞 $\tau = t_i - t_0$ 以解析或数值方式求得时，可以进一步得到偏移角 θ。反过来，当实验或含时薛定谔方程模拟中测得角度 θ 时，也可以根据该角度推导出时滞 τ。

原子时间滞后。——根据原子的 TRCM，在t_0时，隧穿电子仍处于准束缚态 ψ_b，且大致符合维里定理。具体而言，该态的平均势能为 $\langle V(\mathbf{r})\rangle \approx V(\mathbf{r}(t_0))$，平均动能为 $\langle \mathbf{v}^2/2\rangle = n_f\langle v_x^2/2\rangle \approx -V(\mathbf{r}(t_0))/2$。该态还可近似视为一个准粒子，其速度为 $|\mathbf{v}_i| = \sqrt{\langle v_x^2\rangle} \approx \sqrt{|V(\mathbf{r}(t_0))|/n_f}$，方向与位置矢量 $\mathbf{r}(t_0)$相反，指向原子核。该速度体现了库仑势对电态的基本对称性要求。隧穿电子需要经过时间滞后 τ，才能从激光场获得冲量以打破这种对称性。因此，对于 MPR，可通过以下表达式计算时滞 τ

$$\tau \approx \sqrt{|V(\mathbf{r}(t_0))|/n_f}/E_0. \quad (9)$$

这里，$n_f = 2$，3是所研究系统的维数，式（4）中的出口位置 $\mathbf{r}_0 \equiv \mathbf{r}(t_0)$由式（2）的鞍点确定。实际计算中使用的 $V(\mathbf{r})$形式将在后文讨论。得到 τ 的值后，将其代入式（6），即可得到 TRCM 对偏移角 θ的预测。

分子时间滞后。接下来，我们将 TRCM 推广到分子。对于核间距相对较小的分子，其高能束缚态在远离原子核处具有较大的概率振幅，可视为与原子体系中的相应态相似，并且近似满足维里定理。在隧穿出口 r_0 处，对于实验中通常使用的激光参数，该位置的数量级为 $r_0 \sim 10$ a.u.。我们假设分子的隧穿电子仍处于准束缚态，该态由分子的无场哈密顿量 $\mathbf{H}_0$ 的高能本征态构成，并且近似

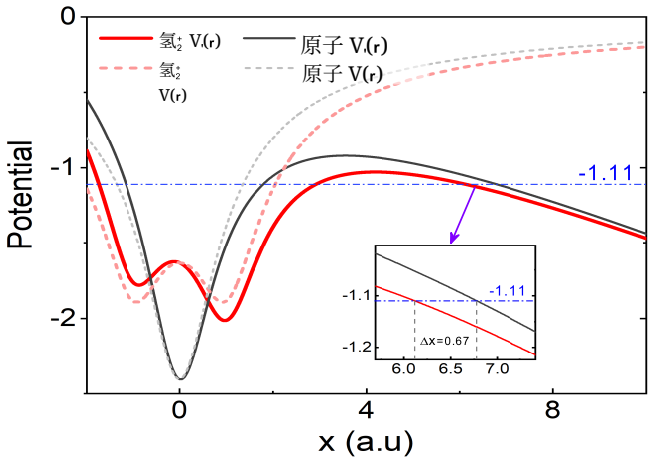

图1：氢$_2^+$（红色曲线）和模型原子（黑色）在 $y = 0$时的激光修饰势 $V'(\mathbf{r}) = V(\mathbf{r}) - E_0 x$（实线）与无激光势 $V(\mathbf{r})$（点划线）示意图。水平线表示 $-I_p = -1.11$ a.u.的能量。插图放大显示了分子与原子出口位置之差。此处使用的激光振幅 E_0 为 $E_0 = 0.13$ a.u.。

满足维里定理。为此，我们认为表达式 $E_0\tau = |\mathbf{v}_i| \approx \sqrt{|V(\mathbf{r}(t_0))|/n_f}$ 对分子仍然成立。原子与分子的主要区别在于，它们的库仑势形式不同，因此：1）原子与分子的出口位置彼此不同。如图 1 所示，分子的出口位置比原子的小约 0.7 a.u.（$\sim R/2$）。2）此外，分子双中心库仑势的左侧势能被 $E_d = E_0R/2$ 的能量抬高。原子核周围的这种势能抬高现象在原子中并不存在。这一现象表明，具有势能抬高后电离势 $I'_p = I_p - E_d$ 的分子在某种程度上比原子更容易电离。隧穿出口的数量级为$r_0 \approx I_p/E_0$。根据上述 1）和 2）的讨论，我们可以假设分子的出口位置为$r'_0 \approx I'_p/E_0 - R/2 \approx r_0 - R$。于是有

$$\tau \approx \sqrt{|V(\mathbf{r}'(t_0))|/n_f}/E_0. \quad (10)$$

这里，$r'(t_0) \equiv r'_0 = r_0 - R$，其值由方程（4）计算。在单活性电子近似下，出口位置 r_0 处的势能 $V(\mathbf{r})$ 可视为具有以下形式：$V(\mathbf{r}) \equiv V(r) = -Z'/r$。这里，$Z'$ 是总有效电荷。为了与含时薛定谔方程模拟进行比较，总有效电荷 Z' 可取为模拟中使用的值。为了与实验进行比较，Z' 的值可针对原子用$Z'_a \approx \sqrt{2I_p}$ 计算，针对核间距为 R的分子用 $Z'_m \approx I_p\sqrt{(R/2)^2 + Z'^2_a/I_p^2}$ 计算。假设伴随原子的 $I_p \approx Z'_a/\sqrt{\zeta_0^2}$以及分子的$I_p \approx Z'_m/\sqrt{(R/2)^2 + \zeta_0^2}$，即可得到 Z'_m 的表达式。

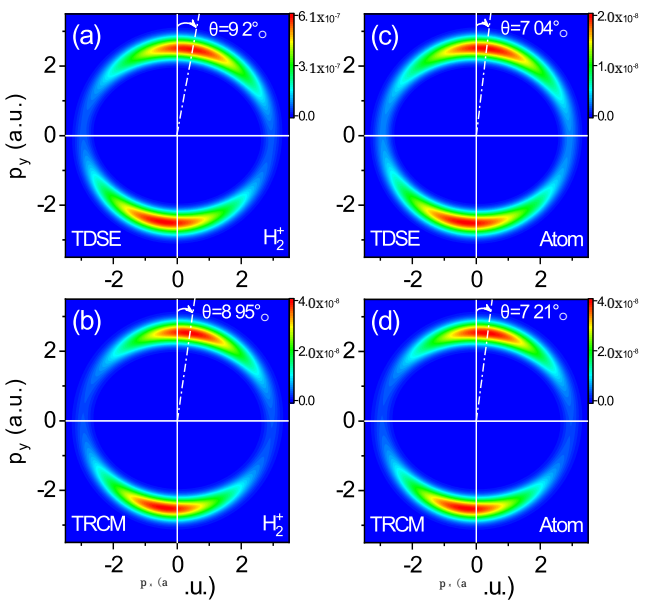

图2：在 $I = 1 \times 10^{15}$ W/cm^2 和 $\lambda = 1000$ nm条件下，使用含时薛定谔方程（第一行）和TRCM（第二行）得到的 H_2^+ （左列）与模型原子（右列）的光电子动量分布， $R = 2$ a.u.。每个图中还标出了光电子动量分布中最大振幅对应动量的偏移角 θ 。

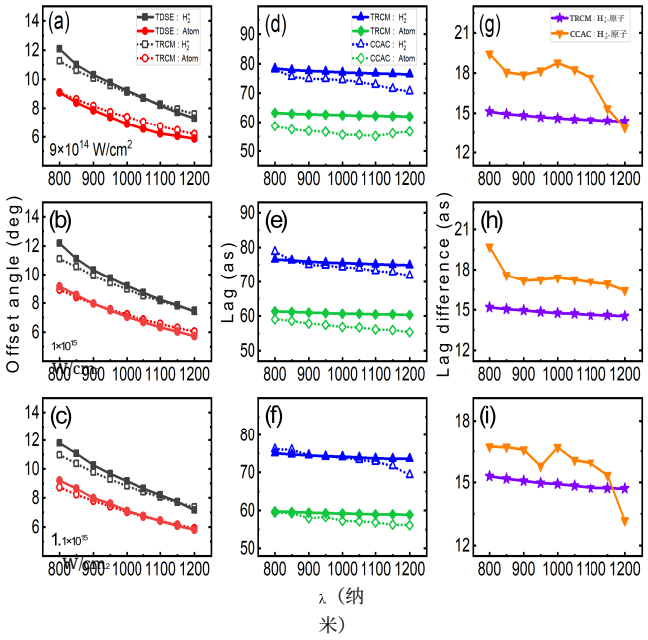

图3：对于不同激光波长 λ，H_2^+ （ $R = 2$ a.u.）和模型原子在 $I = 9 \times 10^{14}$W/cm^2 （第一行）、 $I = 1 \times 10^{15}$ W/cm^2 （第二行）和 $I = 1.1 \times 10^{15}$ W/cm^2 （第三行）下的偏移角（第一列）、时间滞后 τ （第二列）和时滞差（第三列）的比较。偏移角通过含时薛定谔方程和 TRCM 获得。时间滞后及相应的时滞差通过 TRCM 和 CCAC 获得。在 CCAC 中，使用关系式 $\tau = \varepsilon\theta/\omega$ 来评估该时滞，其中 θ 为含时薛定谔方程得到的偏移角。

该分子。这里， ζ_0 是一个常数因子。该表达式表明，在 I_p相近时，具有较大 R的分子，其 Z' 值更大。由于分子的出口位置小于原子的出口位置，且分子的总有效电荷 Z'_m 大于模型原子的 Z'_a ，因此分子的时滞 τ 也大于原子。相应地，考虑到 $\theta \approx \omega\tau/\varepsilon$，分子的偏移角也大于原子。下文将展示，通过将方程（10）代入方程（6）求得的 TRCM 对分子偏移角 θ的预测，与含时薛定谔方程模拟相符。

光电子动量分布。假设对于任意一条强场近似电子轨迹（p t_0），库仑势不会影响相应的复振幅c(p t_0)，那么对于包含库仑作用的电子轨迹（p′, t_i），我们可以直接利用强场近似轨迹及其 c(p′, t_i) ≡ c(p t_0)，在原子情况下的 $\tau \approx \sqrt{|V(\mathrm{r}(t_0))|}/n_f/|\mathrm{E}(t_0)|$ 以及分子情况下的$\tau \approx \sqrt{|V(\mathrm{r}'(t_0))|}/n_f/|\mathrm{E}(t_0)|$ ，得到TRCM振幅 c (p′, t_i)。因此，TRCM能够解析计算包含库仑作用的光电子动量分布。图2展示了TRCM对 H_2^+ 和模型原子的光电子动量分布的预测。

III. 结果与讨论

在图2中，我们展示了含时薛定谔方程和 TRCM 得到的 H_2^+ （ $R = 2$ 原子单位）以及模型原子的光电子动量分布。首先，含时薛定谔方程模拟表明，偏移角

图2(a)中 H_2^+ 分子的偏移角为 $\theta = 9.2^o$，而图2(c)中模型原子的偏移角为 $\theta = 7.04^o$。也就是说，在 I_p相近的情况下，分子的偏移角比原子体系大约高两度。如图2(b)和2(d)所示，分别与式（10）和式（9）相关的分子 TRCM 和原子体系 TRCM 很好地再现了分子和原子的这些含时薛定谔方程计算结果。模型预测的偏移角分别为分子$\theta = 8.95^o$ 和原子 $\theta = 7.21^o$ ，与含时薛定谔方程的结果非常接近。进一步分析表明，与原子相比，分子的有效电荷较大 Z'_m、分子的激光着装能量 $E_0R/2$以及分子较近的出口位置这三个因素对分子偏移角的增大贡献相近。需要说明的是，本文仅考虑分子轴与激光偏振长轴平行的情况。已有研究表明，在这种情况下，分子结构对偏移角的影响较小 [43]。

为了进一步探究图2所揭示的这些现象，我们针对范围广泛的激光参数进行了模拟，相关结果如图3所示。首先，从图3(a)可以看出，分子和原子的含时薛定谔方程偏移角均随激光波长的增加而减小，并且在不同激光波长下，分子的偏移角比相应的

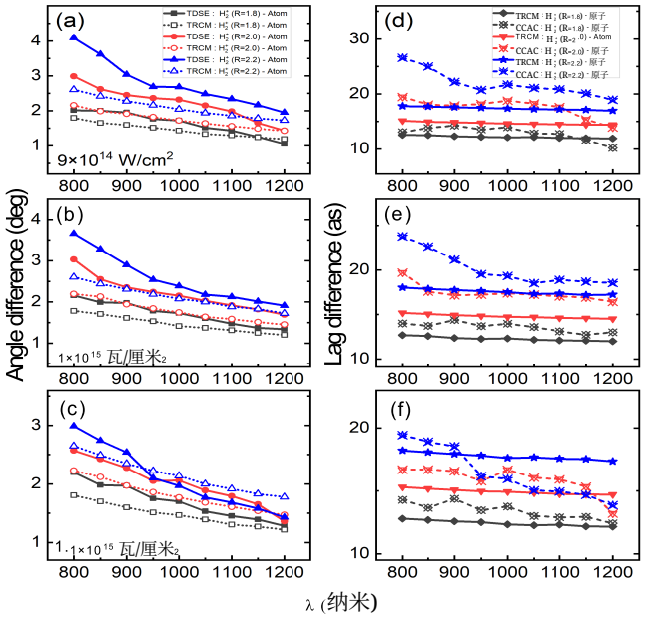

图4：比较具有不同核间距 R 的 H_2^+ 与模型原子在 $I=9\times10^{14}$瓦/厘米^2 （第一行）、 $I=1\times10^{15}$ 瓦/厘米^2 （第二行）和 $I=1.1\times10^{15}$ 瓦/厘米^2 （第三行）下，不同激光波长 λ 对应的角度差（第一列）和时滞差（第二列）。角度差由含时薛定谔方程（实线）和 TRCM（点线）计算，时滞差由 TRCM（实线）和 CCAC（虚线）计算。

原子体系偏移角大约高出2至3度。这些现象都能通过分子TRCM和原子体系很好地再现。如图3(b)和图3(c)所示，增大激光强度时，结果与图3(a)类似，但高强度下的偏移角略小于相应的低强度情况。

接下来，我们转而讨论时滞。图3的第二列展示了分别使用公式（10）和公式（9）计算的分子和原子的时滞。作为比较，这里还展示了 CCAC 对 $\tau=\varepsilon\theta/\omega$ 的时滞预测，其中 θ 为相应的含时薛定谔方程偏移角。首先，从图3(d)可以看出，在不同激光波长下，公式（10）给出的 TRCM 对分子的时滞预测约为 88 阿秒，而公式（9）给出的原子时滞约为 63 阿秒。CCAC 对分子和原子的时滞预测接近相应的 TRCM 结果，TRCM 与 CCAC 之间的差异小于 10 阿秒。图3(e)和图3(f)中较高激光强度下的结果与图3(d)所示结果相似，但时滞比低强度时小数阿秒。

为了突出分子与原子之间的时滞差异，我们在图3第三列中展示了第二列相应结果的时滞差。可以看到，TRCM 预测的差异约为 15 阿秒，且随着激光波长增加，呈现缓慢下降的趋势。此外，这一差异似乎对激光强度不敏感。CCAC 对时滞差的预测与 TRCM 的预测相近，整体而言，CCAC 的结果比 TRCM 的结果大约高 3 阿秒。

图4进一步展示了在不同激光强度和波长下，H_2^+ 与核间距为 $R=1.8$ a.u.和$R=2.2$ a.u.的分子以及模型原子的比较结果。图3中给出的 $R=2$ a.u.结果也在此绘出，作为基准。首先，从图4第一列可以看出，含时薛定谔方程（TDSE）得到的分子与原子之间的偏移角差异主要在约1.5度至3度范围内，但波长为 $\lambda<900$ nm、激光强度为$R=2.2$ a.u.的一些短波长情形除外。对于具有较大 R的分子，这种TDSE角度差异更大。此外，对于固定的R，随着激光波长和激光强度增加，角度差呈缓慢减小趋势。与式（10）和式（9）分别对应的分子和原子TRCM能够很好地再现TDSE结果。对于 R 较大且波长较短的情形，TDSE与TRCM预测结果之间的差异更大；总体而言，该差异小于0.5度。

TRCM和CCAC预测的分子与原子之间的时滞差显示在图4第二列中。对于 $R=1.8$ a.u.的情况，TRCM的时滞差对激光强度和波长不敏感，约为12.5阿秒，小于 $R=2$ a.u.时的15阿秒。对于$R=2.2$ a.u.，在不同激光参数下，TRCM预测的时滞差约为18阿秒。这些结果表明，随着 R的增加，时滞差呈增大趋势，这与角度差的变化一致。CCAC对时滞差的预测基本与TRCM一致，但图4(f)中 $R=2.2$a.u.、强度为 $I=1.1\times10^{15}$ W/cm^2 的高强度情形除外。在更高的激光强度下， $R=2.2$ a.u.时 H_2^+ 的电离也很强。当前的TRCM模型未考虑这一效应。

我们提到，由于电离概率也会对偏移角产生重要影响，而且基态耗尽程度较大时，会显著减小实际阿秒钟实验中分子及其伴随原子的偏移角，因此最好选择能使两个靶产生合适电离产率的激光参数。此外，本文将具有 $1s\sigma_g$ 对称性的 H_2^+ 的偏移角与具有 $1s$ 对称性的模型原子的偏移角进行比较。在我们的模拟中，分子与原子的对称性相近。而在实际实验中，具有相似 I_p 的分子与原子，其对称性可能存在显著差异。这种对称性差异也会影响分子与原子偏移角的比较。因此，在此类比较中，最好选取对称性相近的分子靶与原子靶。

IV. 结论

总之，我们研究了在强椭圆偏振激光场中，不同核间距 R 下定向 H_2^+ 的电离，并将其与电离势相近的参考原子 I_p 进行了比较。含时薛定谔方程模拟表明，H_2^+ 的光电子动量分布中的偏移角比原子体系大数度，而且分子与原子的角度差随 R 增大而增大。我们采用一种名为 TRCM 的改进强场模型，该模型考虑了分子和原子库仑势的双中心与单中心特征，能够定量再现这些含时薛定谔方程模拟结果。该模型揭示，对于库仑势形式不同但 I_p 相近的情形，分子内部的电子与原子内部的电子对强激光诱导的电离事件有不同响应。在隧穿电离过程中，激光场与分子双中心库仑势共同形成的势垒更低且更窄——比原子单中心体系更小，但分子的隧穿电子“感受到”更强的库仑力。这是因为在分子体系中，隧穿出口更靠近原子核，且总有效电荷也更大。与原子体系相比，为了克服隧穿出口处残留的更强库仑势，分子的隧穿电子必须花费更长时间，才能从激光场获得足够的冲量。这段时间被称为强场隧穿电离中分子或原子内电子对光的响应时间。对于本文研究的情况，分子的响应时间比原子体系长约 10 至 20 阿秒。我们的研究结果有助于深入开展强激光场中分子隧穿动力学的阿秒分辨研究。

本研究得到中国国家自然科学基金（项目编号：12174239）和中央高校基本科研业务费（项目编号：2021TS089）的资助。

[1] I. Adawi, 《单光子与双光子表面光电效应理论》, 《物理评论》134, A788（1964）。[2] J. F. Clauser, 《光电效应的量子场论预测与经典场论预测之间的实验区分》, 《物理评论》D 9, 853（1974）。[3] R. H. Pratt、A. Ron 和 H. K. Tseng, 《10 keV 以上的原子光电效应》, 《现代物理评论》45, 273（1973）。[4] T. E. Glover、R. W. Schoenlein、A. H. Chin 和 C. V. Shank, 《激光辅助光电效应与飞秒高次谐波辐射的观测》, 《物理评论快报》76, 2468（1996）。[5] L. Miaja-Avila、C. Lei、M. Aeschlimann、J. L. Gland、M. M. Murnane、H. C. Kapteyn 和 G. Saathoff, 《表面的激光辅助光电效应》, 《物理评论快报》97, 113604（2006）。[6] A. A. Sorokin、S. V. Bobashev、T. Feigl、K. Tiedtke、H. Wabnitz 和 M. Richter, 《超高强度下的光电效应》, 《物理评论快报》99, 213002（2007）。[7] M. Protopapas、C. H. Keitel 和 P. L. Knight, 《超高强度激光下的原子物理》, 《物理进展报告》60, 389–486（1997）。[8] B. Yang、K. J. Schafer、B. Walker、K. C. Kulander、P. Agostini 和 L. F. DiMauro, 《高次阈上电离中依赖于强度的散射环》, 《物理评论快报》71, 3770（1993）。[9] W. Becker、F. Grasbon、R. Kopold、D. B. Milo˘sevi´c、G. G. Paulus 和 H. Walther, 《阈上电离：从经典特征到量子效应》, 《原子、分子与光物理进展》48, 35（2002）。[10] E. O. Lawrence 和 J. W. Beams, 《光电效应中的时间因素》, 《物理评论》32, 478（1928）。[11] M. Ossiander、J. Riemensberger、S. Neppl、M. Mittermair、M. Sch¨affer、A. Duensing、M. S. Wagner、R. Heider、M. Wurzer、M. Gerl、M. Schnitzenbaumer、J. V. Barth、F. Libisch、C. Lemell、J. Burgd¨orfer、P. Feulner 和 R. Kienberger, 《光电效应的绝对计时》, 《自然》561, 374?C377 (2018). [12] P. B. Corkum 和 F. Krausz, 阿秒科学, 《自然·物理》3, 381 (2007). [13] F. Krausz 和 M. Ivanov, 阿秒物理学, 《现代物理评论》81, 163 (2009). [14] J. M. Dahlstr¨om、A. L’Huillier 和 A. Maquet, 《光电离中的阿秒延迟简介》, 《物理学杂志B》45, 183001 (2012). [15] F. L´epine、M. Y. Ivanov 和 M. J. J. Vrakking, 《阿秒分子动力学：事实还是虚构？》, 《自然·光子学》8, 195 (2014). [16] R. Pazourek、S. Nagele、J. Burgd¨orfer, 《光发射的阿秒计时》, 《现代物理评论》87, 765 (2015). [17] J. Vos、L. Cattaneo、S. Patchkovskii、T. Zimmermann、C. Cirelli、M. Lucchini、A. Kheifets、A. S. Landsman、U. Keller, 《小分子中取向相关的立体Wigner时间延迟与电子局域化》, 《科学》360, 1326 (2018). [18] M. Schultze、M. Fieß、N. Karpowicz、J. Gagnon、M. Korbman、M. Hofstetter、S. Neppl、A. L. Cavalieri、Y. Komninos、Th. Mercouris、C. A. Nicolaides、R. Pazourek、S. Nagele、J. Feist、J. Burgd¨orfer、A. M. Azzeer、R. Ern-storfer、R. Kienberger、U. Kleineberg、E. Goulielmakis、F. Krausz、V. S. Yakovlev, 《光发射延迟》, 《科学》328, 1658-1662 (2010). [19] K. Kl¨under、J. M. Dahlstr¨om、M. Gisselbrecht、T. Fordell、M. Swoboda、D. Guenot、P. Johnsson、J. Caillat、J. Mauritsson、A. Maquet、R. Ta¨ıeb 和 A. L’Huillier, 《在阿秒时间尺度上探测单光子电离》, 《物理评论快报》106, 143002 (2011). [20] E. P. Wigner, 《散射相移能量导数的下限》, 《物理评论》98, 145-147 (1955). [21] A. S. Landsman、M. Weger、J. Maurer、R. Boge、A. Ludwig、S. Heuser、C. Cirelli、L. Gallmann 和 U. Keller, 《隧穿延迟时间的超快分辨》, 《光学》1, 343 349 2014- ( ).

[22] M. B¨uttiker, 《拉莫尔进动与隧穿穿越时间》, 物理评论B 27, 6178-6188 (1983). [23] D. Sokolovski 和 L. M. Baskin, 《量子散射中的穿越时间》, 《物理评论A》36, 4604-4611 (1987). [24] N. Yamada, 《基于退相干泛函的隧穿时间统一推导》, 《物理评论快报》93, 170401 (2004). [25] J. Y. Che、C. Chen、W. Y. Li、S. Wang、X. J. Xie、J. Y. Huang、Y. G. Peng、G. G. Xin 和 Y. J. Chen, 《量子—经典边界处的光发射响应时间》, arXiv:2111.08491 (2021). [26] A. N. Pfeiffer、C. Cirelli、M. Smolarski、D. Dimitrovski、M. Abu-samha、L. B. Madsen 和 U. Keller, 《阿秒钟揭示原子中激光诱导隧穿电流流动的自然坐标》, 《自然·物理》8, 76-80 (2012). [27] R. Boge、C. Cirelli、A. S. Landsman、S. Heuser、A. Ludwig、J. Maurer、M. Weger、L. Gallmann 和 U. Keller, 《探测强场隧穿电离中的非绝热效应》, 《物理评论快报》111, 103003 (2013). [28] L. Torlina、F. Morales、J. Kaushal、I. Ivanov、A. Kheifets、A. Zielinski、A. Scrinzi、H. G. Muller、S. Sukiasyan、M. Ivanov 和 O. Smirnova, 《对隧穿时间阿秒钟测量结果的解读》, 《自然·物理》11, 503-508 (2015). [29] W. Quan、V. V. Serov、M. Z. Wei、M. Zhao、Y. Zhou、Y. L. Wang、X. Y. Lai、A. S. Kheifets 和 X. J. Liu, 《通过探测所有离子碎片实现阿秒分子角条纹》, 《物理评论快报》123, 223204 (2019). [30] U. S. Sainadh、H. Xu、X. Wang、A. Atia-Tul-Noor、W. C. Wallace、N. Douguet、A. Bray、I. Ivanov、K. Bartschat、A. Kheifets、R. T. Sang 和 I. V. Litvinyuk, 《原子氢中的阿秒角条纹与隧穿时间》, 《自然》（伦敦）568, 75-77 (2019). [31] P. Eckle、M. Smolarski、P. Schlup、J. Biegert、A. Staudte、M. Sch¨offler、H. G. Muller、R. D¨orner 和 U. Keller, 《阿秒角条纹》, 《自然·物理》4, 565-570 (2008). [32] P. Eckle、A. N. Pfeiffer、C. Cirelli、A. Staudte、R. D¨orner、H. G. Muller、M. B¨uttiker 和 U. Keller, 《氦中的阿秒电离与隧穿延迟时间测量氦, 《科学》322，1525-1529（2008）。[33] A. N. Pfeiffer、C. Cirelli、M. Smolarski 和 U. Keller, 《强场电离的近期阿秒钟测量》, 《化学物理》414，84-91（2013）。[34] M. D. Feit、J. A. Fleck, Jr. 和 A. Steiger, 《用谱方法求解薛定谔方程》, 《计算物理学杂志》47，412（1982）。[35] M. Lewenstein、K. C. Kulander、K. J. Schafer 和 P. H. Bucksbaum, 《阈上电离中的环：准经典分析》, 《物理评论A》51，1495（1995）。[36] T. Brabec、M. Yu. Ivanov 和 P. B. Corkum, 《强场原子过程中的库仑聚焦》, 《物理评论A》54，R2551（1996）。[37] S. P. Goreslavski、G. G. Paulus、S. V. Popruzhenko 和 N. I. Shvetsov-Shilovski, 《阈上电离中的库仑不对称性》, 《物理评论快报》93, 233002（2004）。[38] T. M. Yan、S. V. Popruzhenko、M. J. J. Vrakking 和 D. Bauer, 《量子轨道揭示强场电离中的低能结构》, 《物理评论快报》105，253002（2010）。[39] X. J. Xie、C. Chen、G. G. Xin、J. Liu 和 Y. J. Chen, 《电子隧穿离开势垒后的库仑诱导电离时间延迟》, 《光学快报》28，33228（2020）。[40] S. Wang、J. Y. Che、C. Chen、G. G. Xin 和 Y. J. Chen, 《追溯强线偏振激光场中极性分子不对称动量分布的起源》, 《物理评论A》102，053103（2020）。[41] L. V. Keldysh, 《强电磁波场中的电离》, 《苏联物理学-实验与理论物理学杂志》20，1307（1965）。[42] J. Y. Che、C. Chen、S. Wang、G. G. Xin 和 Y. J. Chen, 《利用校准阿秒钟测量库仑诱导电离时间延迟》, arXiv:2103.16876（2021）。[43] D. Ren、S. Wang、C. Chen、X. Li、X. Yu、X. Zhao、P. Ma、C. Wang、S. Luo、Y. Chen 和 D. Ding, 《强椭圆偏振激光场中双原子分子 N 的光电子动量分布的取向依赖性》, 《物理学杂志B》55, 175101（2022）。

[†] 这些作者对本文贡献相同。[*] xiexuejiaohn@163.com [‡] chenyjhb@gmail.com