arXiv:2302.03777v1 [physics.atom-ph] 7 Feb 2023

电子-原子核势的奇点：实现强驱动原子多电子电离谱精准计算的途径

A. Emmanouilidou,[1] M. B. Peters,[1] 和 G. P. Katsoulis[1]

[1]*Department of Physics and Astronomy, University College London, Gower Street, London WC1E 6BT, United Kingdom*（日期：2023年2月9日）

我们展示了一种通用的三维半经典模型，它是研究红外激光脉冲驱动的原子中关联多电子逃逸的有力工具，适用于电子-电子关联占主导地位的强度条件。我们以强驱动氖原子的三重电离为例进行研究。我们指出，当前其他量子力学模型和经典模型在描述三重电离时的一个缺陷是，它们软化了每个电子与原子核之间的库仑势。我们采用的模型充分考虑了再碰撞电子与原子核之间以及束缚电子与原子核之间库仑势的奇点，同时也考虑了再碰撞电子与束缚电子之间的相互作用。该模型仅通过使用有效势，对束缚电子之间的相互作用作近似处理。这些有效势确保充分处理电子-原子核势时不会发生人为的自电离。我们通过获得末态电子动量之和的三重电离分布来证明模型的准确性；我们发现，该分布与实验结果高度吻合。此外，我们根据氖原子中关联三电子逃逸的主要途径，解释了这些动量分布的主要特征。我们还表明，强驱动氖原子与氩原子中的三电子逃逸分别由不同的电离途径主导，因而这两种原子会呈现不同的动量分布。

在受到强红外激光脉冲驱动的原子中，非序列多电子电离（NSMI）是一种由电子—电子关联支配的基本过程 [1]。尽管非序列双电离（NSDI）已在理论和实验方面得到广泛研究 [2, 3], ，三维（3D）量子力学研究仍然颇具挑战 [4–6]。关于非序列三重电离（NSTI），目前只有少数理论研究，且大多基于偶极近似。对于NSTI，大多数研究采用较低维度的经典 [7, 8]和量子力学 [9, 10]模型，以降低复杂度和所需的计算资源。然而，较低维度会导致对三重电离过程中电子—电子相互作用的描述不准确。目前，关于NSTI仅有经典或半经典三维模型 [8, 11–14]。本文指出，现有NSTI经典和量子模型的主要缺陷在于，它们软化了每个电子与原子核之间的相互作用。这导致其电离谱与实验测得的结果不同，例如受驱动氖原子和氩原子的电离谱 [15–21]。

关于非序贯双电离，对于量子力学模型，将每个电子与原子核之间的库仑势软化，可以得到一个计算上可处理的问题。对于经典模型和半经典模型，原因则更为根本，涉及不符合物理实际的自电离。在经典情况下不存在更低的能量下界。因此，当一个束缚电子与原子核近距离相遇时，库仑势中的奇点会使该电子获得非常负的能量。这可能通过束缚电子之间的库仑相互作用，导致另一个束缚电子非人为地逸出。为避免这种情况，大多数非序贯双电离的经典模型和半经典模型都会将库仑势软化 [8, 11, 12] 或加入海森堡势 [22]（有效软化），以模拟海森堡不确定性原理，并防止每个电子与原子核近距离相遇 [13, 14]。

然而，软化库仑势无法准确描述电子从原子核散射的过程 [23, 24]。事实上，软核势的散射振幅与库仑势的散射振幅之比，会随着动量转移的增加而呈指数下降 [23, 24]。对于再碰撞 [25], ，这意味着软势在描述发生反向散射的高能再碰撞电子时相当不准确。因此，包含库仑电子-原子实势奇点的经典模型能够得到准确的双电离谱，也就不足为奇了。事实上，我们曾利用一个受驱动双电子原子的经典模型 [26], （即本文讨论的非序贯多重电离模型的前身）表明，再碰撞电子从原子核反向散射会在受驱动氦原子的双电子关联动量中形成指状结构 [4, 27, 28]。我们还获得了与受驱动氦原子的从头算量子力学计算[29] 以及近单周期激光脉冲驱动氩原子的实验结果 [30]高度吻合的双电离谱。我们还发现了引人注目的弹弓式非序贯双电离机制，在这一机制中，精确处理电子-原子核相互作用至关重要[31]。

在此，我们在非偶极框架下提出了一种通用的三维经典模型，用于描述非序贯多重电离。我们模型的主要前提是：在再碰撞过程中，有两种相互作用最为重要，因此对其进行精确处理。受上述研究启发 [23, 24, 26, 30, 31], ，我们考虑了每个电子（无论是束缚电子还是准自由电子）与原子核之间库仑势的奇异性。准自由电子是指再碰撞电子或逃逸到连续态中的电子。此外，每一对准自由电子

与束缚电子之间的库仑势，以及由准自由电子向束缚电子的能量传递，也都进行了精确处理。利用该模型，对于强驱动氖原子的非序列三重电离，我们获得了与实验高度一致的三重电离谱 [16]。

考虑电子与原子核相互作用中的奇点，可能会因束缚电子之间的能量转移而导致非物理的自电离。为避免这一问题，我们采用有效库仑势来描述束缚-束缚电子对之间的相互作用，即 ECBB。换言之，我们近似描述从一个束缚电子向另一个束缚电子的能量转移。因此，我们预计，对于这样一类激光脉冲参数：再碰撞后激发态电子之间的能量转移对多电子电离的影响较小，ECBB模型会更加准确。ECBB模型的一个精细之处在于，需要在时间传播过程中判断电子是准自由还是束缚状态。也就是说，我们需要实时判定一对电子之间的相互作用应由完整库仑势还是有效库仑势描述。为此，我们采用一组简单的判据，详述如下。

我们以强受驱动氖原子中的关联三电子逃逸为例，展示了ECBB模型的准确性。我们发现，末态电子动量之和的z 分量与实验结果高度吻合 [16]。这里，电场沿 z 轴线偏振。此前，ECBB模型已用于研究强受驱动氩原子的三重电离 [32]。然而，ECBB模型对强受驱动氖原子的实验结果表现出惊人的吻合，这表明它是研究受驱原子中关联多电子电离的有力方法。此外，我们根据受驱动氖原子和氩原子的主要再碰撞路径，对末态电子动量之和的z 分量特征作出了解释。研究发现，这两种原子的电离谱差异源于直接路径在氖原子三重电离过程中占主导地位。

我们采用ECBB模型 [32] 计算受驱动氖原子的三重电离和双电离观测量。下文中，TI指NSTI，DI指NSDI。一个电子在时间 t_0穿过场致降低的库仑势垒发生隧穿电离。在我们此前对双重电离的研究中[26, 31, 33, 34] ，隧穿发生的速率由量子力学的阿莫索夫–德洛涅–克拉伊诺夫公式 [35, 36]描述。这里，我们使用同一公式，因此称之为半经典模型，得到的速率还考虑了初始基态的耗尽，见 [37]。我们发现 t_0，在时间区间 [-2τ内采用重要性抽样 [38] ， 2τ] 此区间内电场不为零； τ为脉冲强度的半高全宽。再碰撞电子沿电场方向的逸出位置通过抛物坐标 [39]解析求得。电子沿电场方向的动量设为零，而横向动量服从高斯分布[36, 40, 41]。对于初始时处于束缚态的电子，我们采用微正则分布 [32]。

在 ECBB 模型中，我们充分考虑了激光脉冲的磁场，即洛伦兹力中的磁场分量，以及原子核和三个电子的运动。四体哈密顿量为

$$H = \sum_{i=1}^{4} \frac{[\tilde{\mathbf{p}}_i - Q_i\mathbf{A}(y,t)]^2}{2m_i} + \sum_{i=2}^{4} \frac{Q_iQ_1}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_i|} + \sum_{i=2}^{3}\sum_{j=i+1}^{4} [1 - c_{i,j}(t)] \frac{Q_iQ_j}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} + \sum_{i=2}^{3}\sum_{j=i+1}^{4} c_{i,j}(t) \Big[V_{\text{eff}}(\zeta_j(t), |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_i|) + V_{\text{eff}}(\zeta_i(t), |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_j|)\Big], \quad (1)$$

其中 Q_i 为电荷， m_i 为质量，$\mathbf{r}_i$ 为位置矢量， $\tilde{}\mathbf{p}_i$ 为粒子 i的正则动量矢量。机械动量 $\mathbf{p}_i$ 表示为

$$\mathbf{p}_i = \tilde{\mathbf{p}}_i - Q_i\mathbf{A}(y,t). \quad (2)$$

由于电子j 的电荷分布，电子 i 在距原子核（粒子 1，电荷为 $Q_1 = 3$） $|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_i|$ 处感受到的有效库仑势为

$$V_{\text{eff}}(\zeta_j, |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_i|) = \frac{1 - (1 + \zeta_j|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_i|)e^{-2\zeta_j|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_i|}}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_i|}, \quad (3)$$

其中 ζ_j 为粒子 j [32, 42]的有效电荷。当$\mathbf{r}_i \to \mathbf{r}_1$, 时，有效势等于 ζ_j。这确保了束缚电子i 与 j 之间能够有限地传递能量，因此不会发生人为的自电离。函数$c_{i,j}(t)$用于确定在传播过程中时刻 t ，电子 i 与 j [32]之间的相互作用由完整库仑势还是有效势 $V_{\text{eff}}(\zeta_i, |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_j|)$ 和 $V_{\text{eff}}(\zeta_j, |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_i|)$描述。只有当两个电子都处于束缚态时，才会启用有效势。

我们根据以下简单判据，实时判断电子是准自由还是束缚。准自由电子在再碰撞后可能转变为束缚态。具体而言，当准自由电子与原子核达到最近距离后，如果原子核对该电子沿 z 轴的位置的影响大于电场的影响，该电子便转变为束缚态。此外，束缚电子会因再碰撞期间的能量转移或激光场的作用而转变为准自由态。前一种情况下，若该束缚电子与原子核之间的势能持续降低，便会发生这种转变。后一种情况下，若束缚电子的能量变为正值并保持为正，该电子便转变为准自由态。相关判据将在 [37] 中详细讨论并加以说明。

关于我们如何准确处理库仑奇点，以及如何采用蛙跳法求解哈密顿运动方程，详见参考文献 [32]。当每个粒子的能量均收敛时，我们便停止传播。若三个或两个电子的能量为正，我们就分别将该轨迹标记为三重电离或双重电离，并据此计算所有事件中的 TI 和 DI 概率。

我们使用如下形式的矢势

$$\mathbf{A}(y,t) = -\frac{E_0}{\omega}\exp\left[-2\ln(2)\left(\frac{ct-y}{c\tau}\right)^2\right]\sin(\omega t - ky)\hat{\mathbf{z}}, \tag{4}$$

其中， $k = \omega/c$ 是激光场的波数。矢势和电场 $\mathbf{E}(y,t) = -\frac{\partial \mathbf{A}(y,t)}{\partial t}$ 的方向沿 z 轴，而光传播方向沿 y 轴。磁场 $\mathbf{B}(y,t) = \overline{\nabla \times \mathbf{A}}(y,t)$指向 x 轴。脉冲持续时间为 $\tau = 25$ fs，波长为 800 nm。对于氖，我们考察 1.0、1.3 和 1.6 PW/cm^2 的强度。对于氩，我们仅考察参考文献 [32],中先前研究过的 0.4 PW/cm^2。本文考察的最高强度，即氖的 1.6 PW/cm^2 和氩的 0.4 PW/cm^2，经过选择，使得第二个电子仅由激光场作用而发生隧穿电离的概率极低 [37]。因此，电子-电子关联在 TI 和 DI 中占主导地位，束缚电子仅因再碰撞而电离。氩所用的较低强度与其较低的第一电离势相符。

这里，我们将使用 ECBB模型得到的结果与实验结果以及采用海森堡势的半经典三维模型（H模型）的结果进行比较，见 [37]。该势取决于参数 α；参数值越大，电子在原子核周围可到达的相空间受到的限制越强 [32, 37]。因此，H模型会有效地软化电子-原子核势。我们不与那些明确软化库仑势的经典模型进行比较。原因是，先前对氩中 NSDI 的研究 [43] 表明，H模型以及包含库仑奇点的模型 [26, 29, 30] 与实验结果的吻合度更高。

图1中，对于受驱动氖原子，我们计算双重电离概率与三重电离概率之比，并将其与实验结果 [16] 以及 H模型进行比较。对于三种强度，我们发现，使用 ECBB模型（黑色圆圈）得到的概率比 $P_{\mathrm{DI}}/P_{\mathrm{TI}}$始终与实验结果（灰色方块）接近。相比之下，在 1.0 和 1。3PW/cm^{2}下，H模型在 $\alpha = 2$ 和 $\alpha = 4$ 时的结果与实验不符。此外，我们发现，受驱动氖原子的双重电离概率取决于 α 的取值 [37], ，这与我们此前对受驱动氩原子的研究结果相似 [32]。

接下来，我们计算最终电子动量之和的 z 分量的三重电离概率分布， p_z见图2中的黑线。我们将其与测量结果（灰线）进行比较 [16]，（已在图2中平滑处理），并与 $\alpha = 2$ H模型（绿线）进行比较。我们发现，ECBB分布在所有强度下都呈双峰状
强度增加时，峰值变得不那么明显， p_z 之和接近零的概率则不断增大。这些特征与实验结果吻合良好。此外，ECBB分布的电子动量之和峰值与实验结果大致相同。这种出色的一致性进一步说明了ECBB模型的准确性。相比之下，H模型分布中，动量之和处于较高概率区间的概率显著更高——

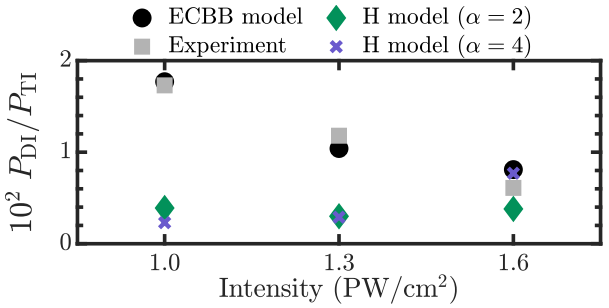


图1. 对于氖，使用ECBB模型（黑色圆点）、H模型和实验结果（灰色方块）得到的双电离概率与三重电离概率之比 [16]。

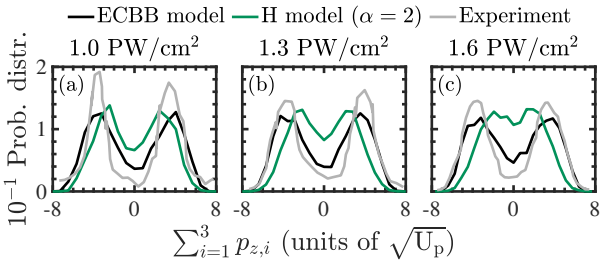


图2. 对于氖，使用ECBB模型（黑线）、H模型（绿线）得到的 p_z 之和的三重电离概率分布，以及实验测得的分布 [16] （灰线）。分布均归一化为1。 U_p 为有质动力能，其值为 $E_0^2/4\omega^2$。

末态电子动量之和接近零的概率更高。此外，与ECBB模型和实验分布相比，其分布范围更窄。在 1.6PW/cm^2, [图 2 (c)]处，这种差异更为明显：H模型分布的峰值出现在零附近，而另外两种分布则呈现双峰。这一差异表明，在H模型中，再碰撞电子与原子核之间相互作用的有效软化，使电子以较低能量逸出。这导致分布范围更窄，且电子动量之和接近 p_z 零的概率显著。

接下来，我们使用ECBB模型分析三重电离事件，并确定受驱动氖原子发生三电子逃逸时占主导的再碰撞路径。在补充材料中 [37], 我们概述了用于识别再碰撞路径的算法。如果再碰撞时间与电离时间之差小于 $t_{\mathrm{diff}} = T/8$，则认为电子在再碰撞后不久即发生电离，其中 T 是激光脉冲的周期。在此时间间隔内，再碰撞电子与一个束缚电子之间的相互势能会急剧变化。再碰撞时间根据再碰撞电子与各个束缚电子之间相互势能的极大值来确定 [37]。电子 i的电离时间定义为该电子的补偿能 $\{[\mathbf{p}_i - \mathbf{A}(y,t)]^2 + V(r_i)\}$ 变为正值并此后始终保持为正值的时刻 [44]。

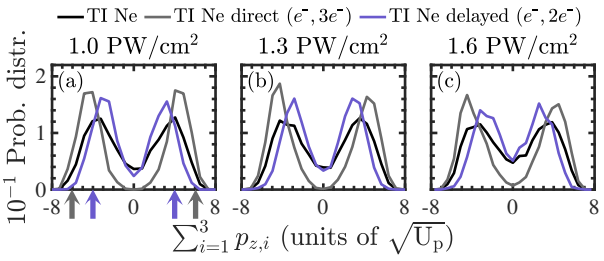


图3. 对于氖，使用ECBB模型得到的所有（三重电离事件，黑色）、直接（三重电离事件，深灰色）和延迟（三重电离事件，蓝色）的 p_z总和的概率分布。

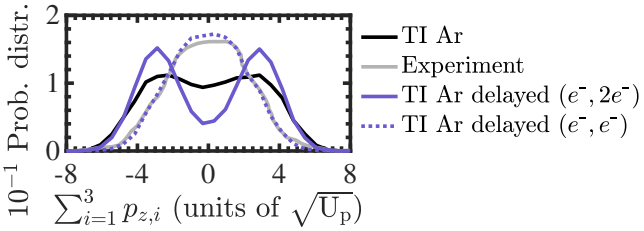


图 4. 对于氩，实验测得的 TI 中 p_z 之和的概率分布（灰色），以及 ECBB 模型对所有事件（黑色）和延迟（e^-，$2e^-$）（蓝色）与延迟（e^-，e^-）事件（蓝色虚线）所得的概率分布。

对于受驱动氖原子，我们发现，三重电离主要由两种再碰撞路径贡献：直接路径（$e^-, 3e^-$）和延迟路径（e^-, $2e^-$）。要发生再碰撞，电子必须隧穿穿过电场降低后的库仑势垒 [25]。随后，该电子可以返回母离子并发生再碰撞，将能量传递给剩余电子。在直接路径中，三个电子都在再碰撞后不久电离，即存在三个高度关联的电子对。在延迟路径（$e^-, 2e^-$）中，再碰撞电子传递的能量足以使两个电子在再碰撞后不久电离，而另一个电子则延迟电离。因此，只有一个高度关联的电子对。在三种强度下，我们都发现再碰撞发生在电场过零点附近，此时矢势达到最大值，从而产生大小为$E_0/\omega = 2\sqrt{U_p}$的较大最终电子动量。在直接路径中，三个电子都以较大动量逃逸p_z；而在延迟路径（$e^-, 2e^-$）中则有两个电子以较大动量逃逸；另见 [37]中的关联电子动量。

接下来，我们从直接和延迟（e^-、$2e^-$）路径的角度，解释实验和ECBB模型中所有三重电离事件的 p_z 总和分布特征（图2）。图3显示，在三种强度下，直接路径的 p_z总和分布延伸至约$\pm 3 \times 2\sqrt{U_p}$（图3(a)中的灰色箭头），而延迟（e^-、$2e^-$）路径则延伸至 $\pm 2 \times 2\sqrt{U_p}$（图3(a)中的蓝色箭头）。这是因为在直接路径中有三个电子、在延迟路径中有两个电子以较大的动量$2\sqrt{U_p}$逸出。这与所有三重电离事件的 p_z 总和分布延伸至 $\pm\beta \times 2\sqrt{U_p}$相一致，其中 $2 < \beta < 3$。此外，两种路径的分布都呈双峰，因此所有三重电离事件的 p_z 总和分布也出现双峰。而且，在直接路径中，当 p_z 总和为零时，分布大致为零。相比之下，在延迟路径中，随着强度增加，峰变得不那么明显，同时 p_z 总和接近零的概率增加。因此，所有三重电离事件的 p_z 总和分布中观察到的这一特征（图2）是由延迟路径造成的。对于

对于 H 模型，我们发现直接电离是次要途径，而延迟电离（$e^-, 2e^-$）对三重电离的贡献最大。这与软势无法准确描述再碰撞电子与原子核的散射相一致 [23]。

最后，对于氩，我们发现，在 0.4 PW/cm^2 下，延迟（e^-，$2e^-$）和（e^-，e^-）路径占主导地位。在后一条路径中，再碰撞电子具有足够的能量，能在再碰撞后不久仅电离一个电子。在（e^-，e^-）路径中，电子以极小的动量逃逸，见 [37] 中的关联电子动量。图 4 展示了这些路径对所有 TI 事件中 p_z 之和分布的贡献。与氖的 TI 情况一样，对于氩，（e^-，$2e^-$）路径对应的 p_z 之和分布呈双峰，在其和为零附近仍有非零值（图 4 中的蓝线）。（e^-，e^-）路径对应的分布（图 4 中的蓝色虚线）则在 p_z之和为零附近达到峰值。有趣的是，在 0.3 PW/cm^2，下，这一延迟（e^-，e^-）路径的分布与实验分布（灰线）非常吻合；而在 0.4 PW/cm^2 下没有可用的测量结果。ECBB 模型所得分布比实验分布更宽，但在 p_z 之和为零附近也有显著的分布值。因此，对于氩，ECBB 模型高估了关联性较强的延迟（e^-，$2e^-$）路径相对于关联性较弱的延迟（e^-，e^-）路径的贡献。由此可见，氩中的三电子逃逸明显不如氖中的关联性强。

总之，我们证明，ECBB三维半经典模型是研究受驱原子中关联多电子逃逸的有力工具。为此，我们研究了红外脉冲驱动氖原子中的三电子电离。我们发现，ECBB模型得到的末态电子动量总和的三重电离概率分布与实验结果高度吻合。这种吻合支持了ECBB模型的基本前提：为了获得准确的多电子电离谱，在再碰撞过程中，准确描述再碰撞电子与束缚电子之间的相互作用，以及束缚电子和再碰撞电子与原子核之间的相互作用，至关重要。ECBB模型全面考虑了库仑电子-原子核势中的奇点，这对强场科学中普遍采用软核势的做法提出了挑战。ECBB模型是在一个通用框架下发展起来的

，因此可以轻松扩展，用于研究受驱原子中三个以上电子的关联逃逸。它还可以扩展至受驱动分子。我们期待ECBB模型将用于研究目前尚无法解决的问题，从而发现新的超快现象，并推动强场科学领域开展更多实验。

致谢

A.E.和G.P.K.感谢EPSRC项目EP/W005352/1的资助。A. E谨向Paul Corkum致谢，感谢他提出了富有成效的讨论。作者感谢在完成这项工作过程中使用了UCL Myriad高通量计算设施（Myriad@UCL）及相关支持服务。

[1] A. l'Huillier、L. A. Lompre、G. Mainfray 和 C. Manus, 《物理评论A》27, 2503 (1983)。[2] W. Becker 和 H. Rottke, 《当代物理》49, 199 (2008)。[3] F. Krausz 和 M. Ivanov, 《现代物理评论》81, 163 (2009)。[4] J. S. Parker、B. J. S. Doherty、K. T. Taylor、K. D. Schultz、C. I. Blaga 和 L. F. DiMauro, 《物理评论快报》96, 133001 2006( )。[5] A. Zielinski、V. P. Majety 和 A. Scrinzi, 《物理评论A》93, 023406 (2016)。[6] J. Zhu 和 A. Scrinzi, 《物理评论A》101, 063407 (2020)。[7] K. Sacha 和 B. Eckhardt, 《物理评论A》64, 053401 (2001)。[8] P. J. Ho 和 J. H. Eberly, 《物理评论快报》97, 083001 (2006)。[9] J. H. Thiede、B. Eckhardt、D. K. Efimov、J. S. Prauzner- Bechcicki 和 J. Zakrzewski, 《物理评论A》98, 031401 2018(R) ( )。[10] D. K. Efimov、A. Maksymov、M. Ciappina、J. S. Prauzner-Bechcicki、M. Lewenstein 和 J. Zakrzewski, 《光学快报》29, 26526 (2021)。[11] Y. Zhou、Q. Liao 和 P. Lu, 《光学快报》18, 16025 (2010)。[12] Q. Tang、C. Huang、Y. Zhou 和 P. Lu, 《光学快报》21, 21433 (2013)。[13] H. Jiang 和 F. He, 《物理评论A》104, 023113 (2021)。[14] H. Jiang、D. Efimov、F. He 和 J. S. Prauzner- Bechcicki, 《物理评论A》105, 053119 (2022)。[15] R. Moshammer、B. Feuerstein、W. Schmitt、A. Dorn、C. D. Schr¨oter、J. Ullrich、H. Rottke、C. Trump、M. Wittmann、G. Korn、K. Hoffmann 和 W. Sand- ner, 《物理评论快报》84, 447 (2000)。[16] A. Rudenko、T. Ergler、K. Zrost、B. Feuerstein、V. L. B. de Jesus、C. D. Schr¨oter、R. Moshammer 和 J. Ullrich, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 41, 081006 (2008)。[17] N. Ekanayake、S. Luo、B. L. Wen、L. E. Howard、S. J. Wells、M. Videtto、C. Mancuso、T. Stanev、Z. Condon、S. LeMar、A. D. Camilo、R. Toth、W. B. Crosby、P. D. Grugan、M. F. Decamp 和 B. C. Walker, 《物理评论A》86, 043402 (2012)。[18] O. Herrwerth、A. Rudenko、M. Kremer、V. L. B. de Jesus、B. Fischer、G. Gademann、K. Simeonidis、A. Achtelik、T. Ergler、B. Feuerstein、C. D. Schr¨oter、R. Moshammer 和 J. Ullrich, 《新物理学杂志》10, 025007 (2008)。[19] K. Zrost、A. Rudenko、T. Ergler、B. Feuerstein、V. L. B. de Jesus, C. D. Schr¨oter, R. Moshammer, and J. Ullrich, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 39, S371 (2006). [20] A. Rudenko, K. Zrost, B. Feuerstein, V. L. B. de Jesus, C. D. Schr¨oter, R. Moshammer, and J. Ullrich, Phys. Rev. Lett. 93, 253001 (2004). [21] H. Shimada, Y. Nakai, H. Oyama, K. Ando, T. Kam- bara, A. Hatakeyama, and Y. Yamazaki, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 235, 221 (2005). [22] C. L. Kirschbaum and L. Wilets, Phys. Rev. A 21, 834 (1980). [23] R. R. Pandit, V. R. Becker, K. Barrington, J. Thurston, L. Ramunno, and E. Ackad, Phys. Plasmas 25, 043302 (2018). [24] R. R. Pandit, Y. Sentoku, V. R. Becker, K. Barrington, J. Thurston, J. Cheatham, L. Ramunno, and E. Ackad, Phys. Plasmas 24, 073303 (2017). [25] P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett. 71, 1994 (1993). [26] A. Emmanouilidou, Phys. Rev. A 78, 023411 (2008). [27] A. Staudte, C. Ruiz, M. Sch¨offler, S. Sch¨ossler, D. Zei- dler, T. Weber, M. Meckel, D. M. Villeneuve, P. B. Corkum, A. Becker, and R. D¨orner, Phys. Rev. Lett. 99, 263002 (2007). [28] A. Rudenko, V. L. B. de Jesus, T. Ergler, K. Zrost, B. Feuerstein, C. D. Schr¨oter, R. Moshammer, and J. Ullrich, Phys. Rev. Lett. 99, 263003 (2007). [29] A. Emmanouilidou, J. S. Parker, L. R. Moore, and K. T. Taylor, New J. Phys. 13, 043001 (2011). [30] A. Chen, M. K¨ubel, B. Bergues, M. F. Kling, and A. Em- manouilidou, Sci. Rep. 7, 7488 (2017). [31] G. P. Katsoulis, A. Hadjipittas, B. Bergues, M. F. Kling, and A. Emmanouilidou, Phys. Rev. Lett. 121, 263203 (2018). [32] M. B. Peters, G. P. Katsoulis, and A. Emmanouilidou, Phys. Rev. A 105, 043102 (2022). [33] A. Emmanouilidou and T. Meltzer, Phys. Rev. A 95, 033405 2017( ). [34] A. Emmanouilidou, T. Meltzer, and P. B. Corkum, J. Phys. B 50, 225602 (2017). [35] L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Quantum Mechanics: Non-Relativistic Theory* 2, nd ed. (Pergamon, Ox- ford, 1965). [36] N. B. Delone and V. P. Krainov, J. Opt. Soc. Am. B 8, 1207 1991( ). [37] 参见补充材料。[38] R. Y. Rubinstein and D. P. Froese, *Simulation and the*

Monte Carlo Method，第3版（Wiley，新泽西州，2016年）。[39] B. HuP, J.Liu, and S.-G. Chen，《物理学快报A》**236**，533 (1997)。[40] N. B. Delone and V. P. Krainov，《物理学-乌斯别基》**41**，469 (1998)。[41] L. Fechner, N. Camus, J. Ullrich, T. Pfeifer, and R. Moshammer，《物理评论快报》**112**，213001（2014）。[42] V. J. Montemayor 和 G. Schiwietz，《物理评论A》**40**，6223（1989）。[43] L. Sarkadi，《物理评论A》**103**，053113（2021）。[44] J. G. Leopold 和 I. C. Percival，《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》**12**，709（1979）。

arXiv:2302.03777v1 [physics.atom-ph] 7 Feb 2023

A. 速率方程

单电离和序贯双电离的描述可由速率方程这一简单模型给出

$$\begin{aligned}\frac{dN_0(t)}{dt} &= -w_{01}(t)N_0(t)\\ \frac{dN_1(t)}{dt} &= w_{01}(t)N_0(t) - w_{12}N_1(t)\\ \frac{dN_2(t)}{dt} &= w_{12}(t)N_1(t)\\ N_1(t_0) = N_2(t_0) &= 0, \quad N_0(t_0) = 1,\end{aligned} \tag{1}$$

其中 $N_0(t)$ $N_1(t)$ 和 $N_2(t)$ 分别是氖、氖$^+$ 和氖$^{2+}$ 的时间依赖布居数。Tong 和 Lin 提出的修正 Ammosov-Delone-Krainov (ADK) 速率 [1, 2] 描述了从离子态 i 到离子态 $i+1$ 的跃迁，其中 $i = 0$，1，具体如下

$$w_{i\,i+1}(t) = w_{\mathrm{ADK}}(t)\exp\left[-\beta\frac{Z_c^2 E(t)}{I_p\,(2I_p)^{3/2}}\right], \tag{2}$$

其中，Z_c 是隧穿电子从态 i隧穿时所感受到的渐近电荷，I_p 是电离势。数值因子 β 经过调整，使速率 $w_{i\,i+1}(t)$与薛定谔方程 [3]的数值解相符。对于每种跃迁 $i \to i+1$，我们采用参考文献 [3, 4]中列出的参数 Z_c，I_p，β 的取值。

对基态的速率方程进行积分，可得到氖处于基态的概率随时间的变化，即该态的布居数，

$$N_0(t) = \exp\left[-\int_{t_0}^{t} w_{01}(t')dt'\right], \tag{3}$$

其中我们采用初始条件 $N_0(t_0) = 1$。对另外两个方程进行数值求解后，我们得到渐近大时间下序贯双电离的概率 N_2。也就是说，我们得到两个电子分别因激光场降低库仑势垒而发生隧穿电离的概率。对于本研究所考虑的激光脉冲参数，在受驱动氖原子的强度为 1.6 PW/cm^2 、受驱动氩原子的强度为 0.4 PW/cm^{2}时，我们发现，与采用ECBB模型 [5]进行全尺度计算所得的双电离概率相比，N_2 非常小。

此外，考虑初态的耗尽后，从基态隧穿的速率可表示为 $w_{01}(t)$ 速率与处于基态的概率之积，即

$$w_{01}(t)\exp\left[-\int_{t_0}^{t} w_{01}(t')dt'\right]. \tag{4}$$

这是我们在全规模计算中采用的重要性抽样所用的概率分布速率

计算中采用 ECBB模型进行重要性抽样时所用的概率分布速率。鉴于此处考虑的强度较高，且氖和氩的电离势相对较小，我们将受驱动氖原子和氩原子的初始基态耗尽效应纳入考虑。 I_p

B. H模型四体系统的哈密顿量

H模型四体系统的哈密顿量为 [5]

$$H = \sum_{i=1}^{4}\frac{[\tilde{\mathbf{p}}_i - Q_i\mathbf{A}(\mathbf{r}_i,t)]^2}{2m_i} + \sum_{i=1}^{3}\sum_{j=i+1}^{4}\frac{Q_iQ_j}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} + \sum_{i=2}^{4}V_{H,i}. \tag{5}$$

Heisenberg 势最初由 Kirschbaum 和 Wilets 在文献 [6], 中提出，其形式为

$$V_{H,i} = \frac{\xi^2}{4\alpha\mu r_{i,1}^2}\exp\left\{\alpha\left[1 - \left(\frac{r_{i,1}p_{i,1}}{\xi}\right)^4\right]\right\}, \tag{6}$$

其中，$\mathbf{r}_{i,\,1} = \mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_i$ 是三个电子各自相对于原子核的相对位置 $i = 2$，3，4，$i = 1\mathbf{p}_{i,\,1}$ 是相应的相对动量

$$\mathbf{p}_{i,1} = \frac{m_i\mathbf{p}_1 - m_1\mathbf{p}_i}{m_1 + m_i}, \tag{7}$$

且 $\mu = m_1m_i/(m_i + m_1)$ 是电子-原子核系统的约化质量。该势根据以下关系限制电子 i 的相对位置和动量

$$r_{i,1}p_{i,1} \geq \xi. \tag{8}$$

参数 α 决定时间传播期间可访问的相空间，α 值越大，对相空间的限制越强。

C. 准自由电子和束缚电子的定义

在 ECBB 模型中，我们完整地考虑至少有一个电子为准自由态的电子对之间的库仑相互作用。然而，对于束缚-束缚电子对之间的相互作用，我们采用有效库仑势近似。所选用的有效势确保不会因我们完整考虑了电子-原子核势中的奇点而产生人为的自电离。因此，为了确定在时间传播过程中（即实时地）电子对之间的相互作用是由完整库仑势还是有效势描述，我们需要实时定义电子属于准自由态还是束缚态。在传播开始时，t_0，我们将隧穿电离电子（电子 2）标记为准自由态，将另外两个电子（电子 3 和 4）标记为束缚态。我们将原子核记为粒子 1。

在 $t > t_0$时，准自由电子 i 在满足以下条件时会转变为束缚电子：(i)

电子 i 与原子核之间的势V_{ic}大于阈值，即在 t_1时V_{i} $_{c} > V_{min}$ ，并且V_{ic} 持续增加，即 $^{dV_{i}}$ $_{c}(t_{n+5}$ $> {}^{dV_{i}}$ $_{dt}$ $_{c}$ $(t_{n})dt$ ，连续五次 t_n ，这五次之间相隔五个时间步，第一次位于时间 t_1，见图1(a)；(ii) 电子 i沿电场方向的位置，即这里的 z 轴，在小于激光场半个周期的时间间隔内至少有两个同类型的极值，即两个最大值或两个最小值。事实上，如果电子 i 的运动主要受电场影响，我们预计其沿 z 轴的位置在等于激光场半个周期的时间间隔内应只有一个极值。我们从时间 t_2开始检查条件(ii)是否满足，此时电子 i 最接近原子核，即V_{ic} 达到最大值。当时间 t_3 满足V_{ic} 小于阈值 V_{min} 且V_{ic} 持续减小时，我们停止检查条件(ii)是否满足，即 $^{dV_{i}}$ $_{c}$ $_{dt}$ t_{n} $< {}^{dV_{i}}$ $_{c}$ $()$，$_{c}(t_{n-5})$ $_{dt}$ ，连续五次 t_n ，这五次之间相隔五个时间步，最后一次位于时间 t_3，见图1(a)。这里，我们取 V_{min} 等于 3/15（其中3为原子核的电荷），即0.2原子单位。我们发现，在 V_{min}取一系列不同值时，结果大致保持不变。此外，在激光脉冲结束时，我们检查准自由电子的补偿能 [7] 是正还是负。如果为负，我们就将该电子标记为束缚电子。考虑电子 i与所有其他束缚电子之间的有效库仑势，电子 i 的补偿能形式为

$$\varepsilon_i^{\mathrm{comp}}(t) = \frac{\tilde{\mathbf{p}}_i^2}{2m_i} + \frac{Q_1 Q_i}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_i|} + \sum_{\substack{j=2 \\ j\neq i}}^{N} c_{i,j}(t) V_{\mathrm{eff}}(\zeta_j, |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_i|). \tag{9}$$

如果满足以下两个条件之一，束缚电子便会在时刻 $t > t_0$ 转变为准自由电子：(i) 在时刻 t，电子 i 的补偿能趋于一个正值；(ii) 在时刻 $t = t_3$、 $V_{i,\ c}$ 小于阈值 V_{min} ，且 $V_{i,\ c}$ 持续减小；也就是说，对于五个 t_n 彼此相隔五个时间步的时刻，最后一个时刻为 t_3，有 $^{dV_{i}}$ $_{.\ c}$ $_{dt}$ t_{n} $< {}^{dV_{i}()}$ $_{.\ c(t_{n-5})}$ $_{dt}$ 。

我们在图1(b)中展示上述判据。我们分别用红色、灰色和蓝色竖直虚线标出时刻 t_1、 t_2 和 t_3 。左栏绘出准自由电子转变为束缚电子时的位置 r_z 和势 $V_{i,\ c}$ 。右栏绘出束缚电子转变为准自由电子时的位置 r_z、势$V_{i,}$ $_{c}$ 以及补偿能。

蓝色虚线表示电子从束缚态转变为准自由态的时间 t_3 。对于这条特定轨迹，时间 t_3 早于补偿能收敛到正值的时间。

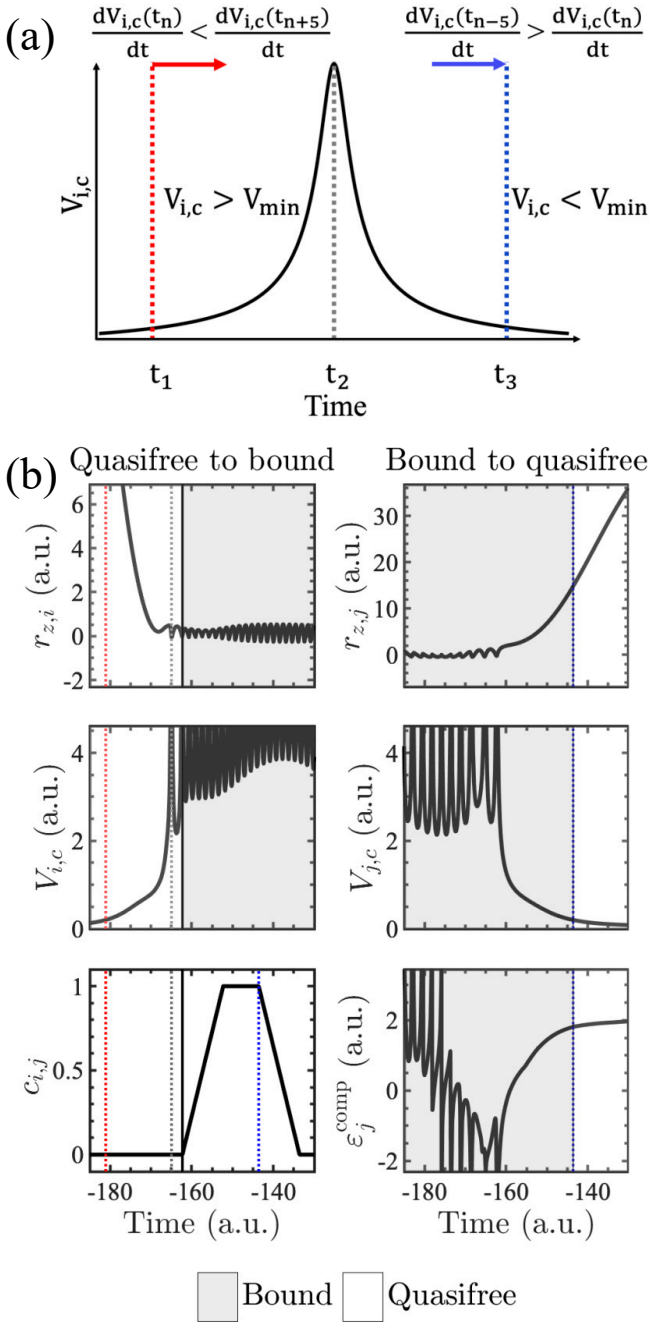


图1. 示意图说明了判定准自由电子何时变为束缚态（左列），以及束缚电子何时变为准自由态（右列）的标准。

D. 确定三重电离和双重电离事件的路径

我们使用一种纳入 ECBB模型描述的公式的代码，获得三重电离（TI）和双电离（DI）事件。该公式见 [5]，，我们在传播过程中实时判断电子是准自由还是束缚。获得这些事件后，我们

使用另一种代码进行详细分析，在该代码中，我们仍会实时判断电子是准自由还是束缚。如果三个或两个电子分别在再碰撞后不久电离，我们就将三重或双重电离事件判定为直接事件。如果一个电子在再碰撞后延迟电离，我们就将三重或双重电离事件判定为延迟事件。对于双电离，我们在以往的研究中也讨论过如何识别直接事件和延迟事件 [8]。对于三重电离，我们按以下方式识别直接事件和延迟事件：

1. 我们确定三重电离事件中每个电子的电离时间 $t^i_{\rm ion}$，以及双电离事件中两个电离电子的电离时间。2. 在每对电子之间，其中一个电子处于准自由态、另一个处于束缚态的时间区间内，我们记录电子对 $i,\ j$ 、 $i,\ k$ 和 $j,\ k$ 之间电子间势能随时间变化的极大值。接着，对每个电子 i，我们分别找出 $i,\ j$和 $i,\ k$ 势能的极大值中与时间 $t^i_{\rm ion}$. 最接近的那个。我们将这些时间记为 $t^{i,\ j}_{\rm rec}$ 和 $t^{i,\ k}_{\rm rec}$。三重电离事件最多可得到六个这样的时间，双电离事件最多可得到四个。

3. 对于每个时间 $t^{i,\ j}_{\rm rec}$ ，我们确定准自由电子（电子 i 或 j）最接近原子核的最近接近时刻 t_2 ，该时刻与 $t^{i,\ j}_{\rm rec}$ 最接近，并将其记为 $t^{i,\ j}_{\ 2}$ 。三重电离事件最多可得到六个这样的时间，双电离事件最多可得到四个。

若四个时间 $t^{i,\ j}_{\ 2}$ 相同，我们就将该事件标记为直接或延迟三重电离（TI），这对应于一个电子为准自由电子，而另外两个电子处于束缚态。也就是说，如果电子i 在最接近电离时间 $t^i_{\rm ion}$ 的再碰撞过程中为准自由电子，那么时间 $t^{i,\ j}_{\ 2}$ ，$t^{i,\ k}_{\ 2}$ ，$t^{j,\ i}_{\ 2}$ 和 $t^{k,\ i}_{\ 2}$ 应当相同。时间 $t^{j,\ i}_{\ 2}$ 和 $t^{k,\ i}_{\ 2}$ 分别对应于束缚电子 j 和 k 的再碰撞时间 $t^{j,\ i}_{\rm rec}$ 和 $t^{k,\ i}_{\rm rec}$ 。对于准自由电子，我们得到两个与电离时间 $t^i_{\rm ion}$相关的再碰撞时间 $t^{i,\ j}_{\rm rec}$ 和 $t^{i,\ k}_{\rm rec}$ 。我们选取与 $t^i_{\rm ion}$ 相差最大的那个，以确保直接三重电离事件的判据更严格。接下来，如果满足以下条件$\Delta t_1 = |t^{i,\ j}_{\rm rec} - t^i_{\rm ion}| < t_{\rm diff}$ 或 $(t^i_{\rm ion} < t^{i,\ j}_{\rm rec}$ 和 $t^i_{\rm ion} < t^{i,\ k}_{\rm rec})$，并且 $\Delta t_2 = |t^{j,\ i}_{\rm rec} - t^{j}$ ion $| < t_{\rm diff}$ 和 $\Delta t_3 = |t^{k,\ i}_{\rm rec} - t^k_{\rm ion}| < t_{\rm diff}$，我们就将该三重电离事件标记为直接电离。我们以往的研究中也采用了条件 $(t^i_{\rm ion} < t^{i,\ j}_{\rm rec}$ 和 $t^i_{\rm ion} < t^{i,\ k}_{\rm rec})$ [8, 9]，以考虑准自由电子在再碰撞之前很早就发生电离的情况。这种情况主要发生在高强度下。若三个时间 $\Delta t_1, \Delta t_2$ 和 Δt_3 中有两个大于 $t_{\rm diff}$ ，而一个小于 $t_{\rm diff}$，我们就将该事件标记为延迟路径三重电离，此时只有一个电子在再碰撞后不久发生电离。识别直接和延迟双电离事件的过程类似。时间 $t_{\rm diff}$ 由电子间势能因再碰撞而发生剧烈变化的时间区间确定。对于此处考虑的强度，我们发现 $t_{\rm diff} \approx T/8$，其中T 为激光场的周期。

E. H模型的双电离概率

双电离概率（%）		
强度（PW/cm^2）	$\alpha = 2$	$\alpha = 4$
1.0 0.7 0.4		
1.3	0.8	0.6
1.6	1.5	2.3

表I. 使用H模型计算氖在波长为800 nm、持续时间为25 fs的激光脉冲作用下的双电离概率，适用于 $\alpha = 2$ 和 $\alpha = 4$。

在表 I中，我们展示了在 800 nm 波长、持续时间为 25 fs 的激光脉冲驱动下，氖发生双电离的概率；激光强度分别为 1.0、1.3 和 1.6 PW/cm^2，使用 H 模型并取 $\alpha = 2$ 和 $\alpha = 4$. 我们发现，双电离概率取决于 α.

F. 关联动量

图2中，我们展示了受驱动氖原子在强度为1.0、1.3和1.6 PW/cm^{2}时发生三重电离过程中三对电子的关联动量。我们发现，三个电子均以较大的动量逃逸。这与直接路径是受驱动氖原子三重电离的两条主导路径之一相一致。

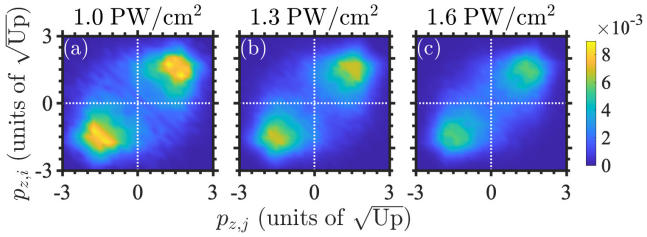


图2. 所考察的三种强度下，受驱动氖原子发生三重电离时三对逃逸电子的关联动量。

在图3中，我们展示了强度为 0.4 PW/cm^{2}时受驱动氩原子三重电离中所有三对电子的关联动量。我们发现，这三个电子逃逸时的动量比受驱动氖原子中的电子更小。这与延迟路径在受驱动氩原子的三重电离中占主导地位的情况一致。

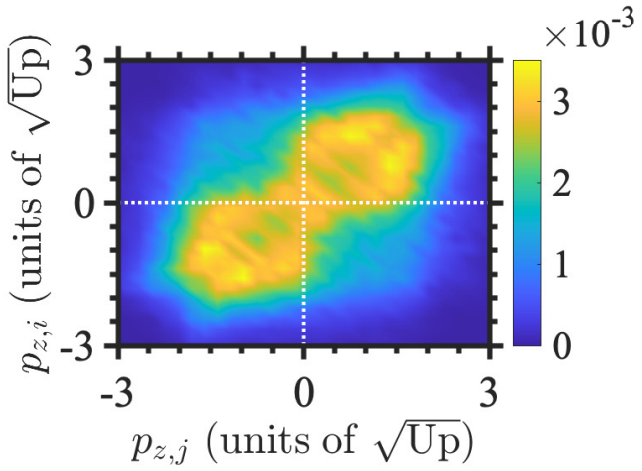


图3. 驱动氩发生三重电离时，三对逃逸电子的关联动量。

[1]L. D. Landau 和 E. M. Lifshitz, *Quantum Mechanics: Non-Relativistic Theory*, 第2版（Pergamon，牛津，1965）。

[2] N. B. Delone 和 V. P. Krainov, J.Opt.Soc.Am. B **8**, 1207（1991）。

[3] X. M. Tong 和 C. D. Lin, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys **38**, 2593（2005）。

[4] X. M. Tong、Z. X. Zhao 和 C.D. Lin, 《物理评论A》**66**, 033402 (2002)。

[5] M. B. Peters、G. P. Katsoulis, 和 A. Emmanouilidou, 《物理评论A》**105**, 043102 (2022)。

[6] C. L. Kirschbaum 和 L. Wilets, 《物理评论A》**21**, 834 (1980)。

[7] J. G. Leopold 和 I. C. Percival, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **12**, 709 (1979)。

[8] G. P. Katsoulis、A. Hadjipittas、B. Bergues、M. F. Kling 和 A. Emmanouilidou, 《物理评论快报》**121**, 263203 (2018)。

[9] A. Chen、M. K¨ubel、B. Bergues、M. F. Kling 和 A. Emmanouilidou, Sci. Rep. **7**, 7488 (2017)。