利用强场序贯双电离探测分子电荷迁移中的振电相干性

C. H. Yuen[1], * 和 C. D. Lin[1], †

[1] *J. R. Macdonald Laboratory, Department of Physics, Kansas State University, Manhattan, Kansas 66506, USA*

我们提出一种利用强场序贯双电离探测分子电荷迁移中振电相干性的新方案。为展示这一方法的可行性，我们针对 N_2 和 O_2，采用少周期强红外脉冲实施泵浦-探测方案，并进行了完整模拟。我们预测，泵浦态之间的振电相干性将直接反映在实验观测量中，例如解离双阳离子的动能释放谱和分支比。我们的模拟基于近期开发的 DM-SDI模型，该模型能够高效地考虑分子取向，并支持与实验结果直接比较。我们的研究结果有力地支持在未来的电荷迁移实验中采用这一探测方案。

arXiv:2302.05944v1 [physics.atom-ph] 12 Feb 2023

在研究分子动力学的泵浦-探测实验中，人们力求实现高时间分辨率和高信噪比。虽然利用孤立阿秒脉冲可以实现高时间分辨率，但台式光源的光子通量通常过低。使用强红外（IR）脉冲则可获得更高的计数率和更大的信噪比。若将红外脉冲用作探测脉冲，为提高计数率，理想情况下应增加其峰值强度。随着峰值强度增加，探测激光可能会使中性分子发生序贯双电离（SDI），从而导致分子碎裂。尽管用于产生强少周期红外激光脉冲以及对离子碎片进行符合测量的实验装置已广泛可用 [1–7], ，但由于缺乏理论支持，这种探测方案一直未受青睐。最近，我们为分子的序贯双电离提出了一种密度矩阵方法（DM-SDI） [8, 9], ，并通过实验验证了该方法对处于基态的 N_2 和 O_2 的适用性 [1, 3]。本快报的目标之一是证明利用 SDI 探测分子动力学的可行性。

我们关注的动力学过程是分子的电荷迁移。电荷迁移通常由移除一个电子引发，这会使分子离子处于电子态叠加态，随后电子云会沿着分子骨架迁移 [10, 11]。随着阿秒科学的发展，探测这一过程变得愈发重要 [12, 13], ；这有望实时观测分子中的电子运动，并最终控制分子动力学。电荷迁移研究中的一个关键问题是，几飞秒后核运动便会开始，并可能导致不同电子态之间发生退相干。这种退相干会妨碍对纯电子动力学的观测，但也可能使电荷永久转移到分子中的另一个位置，从而为控制其化学反应性提供机会 [14]。尽管核运动的影响对电荷迁移的影响已得到理论研究 [15–19], ，但实验上监测相干性仍然具有挑战性。

观测到相干性的必要条件是，态的叠加必须在探测过程后到达相同的终态。然而，这并非充分条件，因为干涉信号可能太弱而无法观测。这确实是探测电荷迁移的主要挑战之一：目前尚不清楚，对于何种类型的分子以及何种类型的探测过程，能够检测到此类干涉信号。已有一些成功的实验研究，例如采用阿秒极紫外（XUV）泵浦和红外探测 [20–22], 高次谐波光谱学 [23–25], 阿秒瞬态吸收光谱（ATAS） [26–28], 阿秒脉冲列泵浦-探测 [29, 30], 以及飞秒 X 射线泵浦-探测 [31, 32]。然而，这些实验所用的目标分子类型和探测机制差异很大，因此尚不确定某种特定探测方案能否适用于其他目标分子。一种有前景的方案是 ATAS [33, 34], ，其观测量可以通过模拟获得，但由于相干性的各向异性，干涉信号在对分子取向进行平均后可能会消失。因此，寻找一种适用于分子电荷迁移、普遍适用且实验上可行的探测方案至关重要。

SDI 可能是一种探测电荷迁移中相干性的绝佳过程，因为它由离子态之间的激光耦合驱动 [8, 9]。假设泵浦激光使中性分子单电离，并形成离子态的叠加态。那么，红外探测将产生初生离子态、耦合离子态，并进一步将其电离为双阳离子。泵浦态之间的相干性通过与初生离子态及激光耦合发生干涉，控制瞬态离子布居。由于双阳离子产率取决于瞬态离子布居，因此产率会随

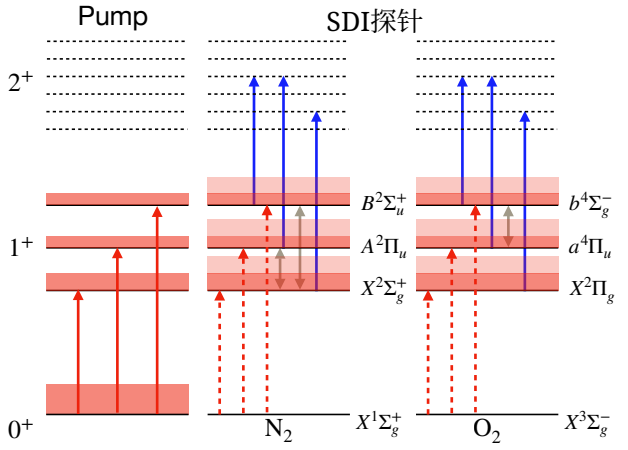


图 1. N_2 和 O_2电荷迁移泵浦-探测方案示意图。泵浦激光相干地布居最低的三个离子态（红色实线箭头），布居由阴影区域表示。稍后，强少周期红外探测脉冲电离剩余的中性态布居（红色虚线箭头），耦合离子态（灰色实线箭头），并通过隧穿电离形成双阳离子（蓝色实线箭头）。泵浦态之间的相干性通过与初生离子态（浅阴影区域）及激光耦合的干涉，影响双阳离子产率。

相干性而变化。因此，相干性可通过实验观测量揭示出来，例如双阳离子的动能释放（KER）谱或分支比；这些量在取向平均后始终保留。图 1 展示了 N_2和 O_2的这种泵浦-探测方案。由于 SDI 的机制应适用于任何分子，且所需的实验装置已广泛具备，因此 SDI过程可作为一种通用的电荷迁移探测方案。我们注意到，SDI探针可能类似于文献 [21, 22], 中使用的红外探测，其中测量了一些双阳离子产率。

在本快报中，我们提供了有力证据，证明 SDI过程可用于探测分子中的电荷迁移。这一结论得到图 1 所示 N_2 和 O_2 泵浦-探测方案的完整模拟支持；模拟采用 DM-SDI模型 [8, 9], , 并充分考虑分子取向，因此结果可直接与未来实验进行比较。我们发现，在不同的泵浦-探测延迟下，振电相干性显著地呈现在 $N^+ + N^+$ 和 $O^+ + O^+$ 的 KER 光谱和分支比中。本快报的研究结果强烈鼓励未来实验使用 SDI探针研究 N_2 和 O_2 以及其他分子中的电荷迁移。

DM-SDI模型基于密度矩阵方法，可同时描述激光耦合和隧穿电离导致的不同电荷态布居及相干性的演化 [8, 9]。为简化模型，我们假设分子核在少周期红外脉冲作用下保持冻结，并忽略电离电子，因此不同电荷态之间不具有相干性。由于模型未显式涉及多体电子波函数，且分子核保持冻结，其计算成本较低；在实验条件下，可以通过对分子取向和焦体积进行平均来比较计算结果。近期的参考文献 [8, 9]通过再现 N_2 和 O_2 [1, 3] 的序贯双电离实验中 KER 光谱的主要特征，充分展示了该模型的预测能力。模型的详细介绍请参阅我们此前发表的文章 [8, 9]。简而言之，密度矩阵的运动方程 $\rho^{(q)}$ 为

$$\frac{d\rho^{(q)}}{dt} = -\frac{i}{\hbar}[H^{(q)}, \rho^{(q)}] + \Gamma^{(q)}(t), \tag{1}$$

其中，$q = 0$，1，2 是分子的电荷，$H^{(q)} = H_0^{(q)} + \vec{d}\cdot\vec{E}$ 中，$H_0^{(q)}$ 是无场哈密顿量，d 是偶极矩，E 是电场。电离速率矩阵 $\Gamma^{(0)}(t) = -\sum_i \rho^{(0)}(t)W_i^{(0)}(t)$ 和 $\Gamma^{(2)}_{mn}(t) = \delta_{mn}\sum_i \rho_{ii}^{(1)}(t)W^{(1)}_{n\leftarrow i}(t)$ 描述了唯一中性态的布居减少，以及双阳离子第 n 个态的布居增加，其中 $W_{(0)i}$ 和 $W^{(1)}_{n\leftarrow i}$ 分别是分子轨道 Ammosov-Delone-Krainov（MO-ADK）电离速率 [35]，对应从中性态到第 i 个离子态，以及从第 i 个离子态到双阳离子的第 n 个态。为恰当考虑离子态之间的相干性，我们在先前模型 [8, 9] 的基础上，将强场电离相位 [36, 37] 以及离子布居减少引起的退相干纳入其中，如

$$\Gamma^{(1)}_{ij}(t) = \rho^{(0)}\sqrt{W_i^{(0)}W_j^{(0)}}\,\mathrm{sgn}(E)^{(2-P_i-P_j)/2} - \rho^{(1)}_{ij}\sqrt{\sum_n W^{(1)}_{n\leftarrow i}}\sqrt{\sum_n W^{(1)}_{n\leftarrow j}}, \tag{2}$$

其中，P_i 是到达第i个离子态的电离轨道的宇称。退相干项的建模基于 $|\rho^{(1)}_{ij}| \propto \sqrt{\rho^{(1)}_{ii}\rho^{(1)}_{jj}}$ 和 $d\rho^{(1)}_{ii}/dt \sim -\rho^{(1)}_{ii}\sum_n W^{(1)}_{n\leftarrow i}$，因此 $\rho^{(1)}_{ij}$ 应随布居数衰减。

泵浦-探测方案的模拟包括以下三个步骤：泵浦、自由传播和探测。为简化理论和实验，我们将泵浦脉冲和探测脉冲均视为少周期红外脉冲。原则上，为获得更高的时间分辨率，也可以使用阿秒极紫外泵浦脉冲。

(i) 对于泵浦过程，我们在中性分子的平衡构型下，对每个激光偏振与分子轴之间的夹角 θ，使用峰值强度为 3×10^{14} W/cm^2 、脉宽为 6 fs、波长为 800 nm 的线偏振高斯脉冲求解了方程 (1)。初始条件设为 $\rho^{(0)}(\theta, t_0) = 1$ 和$\rho^{(1)}(\theta, t_0) = \rho^{(2)}(\theta, t_0) = 0$，因此在泵浦脉冲到来之前只有中性分子布居。随后，分子的最高占据分子轨道（HOMO）、HOMO-1 和

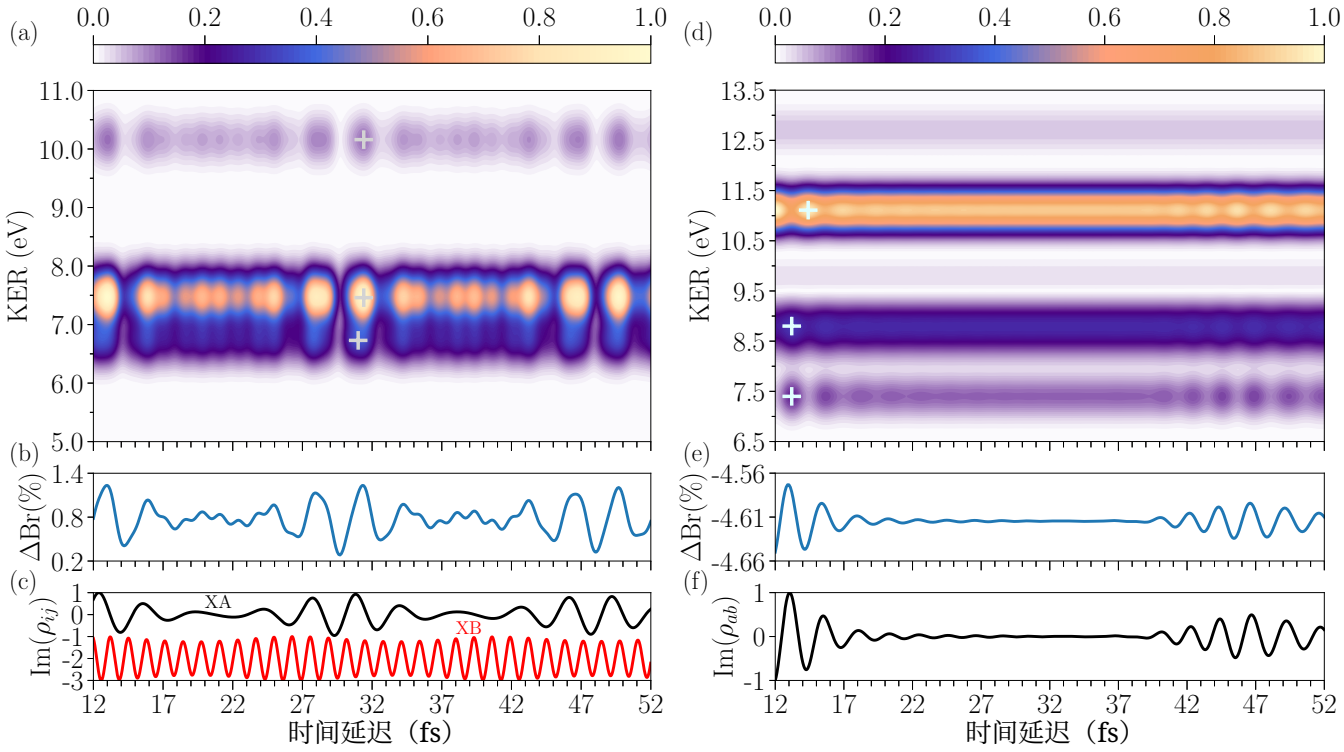


图2. 泵浦-探测延迟与动能释放（KER）光谱中的振电相干性依赖关系示例。(a) 和 (d)：$N^+ + N^+$ (a) 和 $O^+ + O^+$ (d) 的模拟 KER 光谱随泵浦-探测延迟的变化，并分别减去仅探测信号。标记表示不同 KER 峰之间拍频的相位差。请注意，在 (d) 中，数值越高，光谱越负。泵浦脉冲和探测脉冲均为线偏振，波长为 800 nm，脉冲持续时间为 6 fs。泵浦激光和探测激光的峰值强度分别为 3×10^{14} 和 $1.2 \times 10^{15}\,\mathrm{W/cm^2}$,。时间延迟定义为两个激光脉冲峰值之间的时间差，且泵浦激光先到达。泵浦激光同时电离 N_2 或 O_2的最高占据分子轨道、次高占据分子轨道和第三高占据分子轨道，从而启动动力学过程。经过一段时间延迟后，离子的振动运动会引起不同电子态之间相干性的变化。随后，探测激光引发离子的后续隧穿电离，以及剩余中性分子的序贯双电离，产生不同的双阳离子态。(b) 和 (e)：$N^+ + N^+$ 和 $O^+ + O^+$ 各自占双阳离子总产额的分支比随泵浦-探测延迟的变化，并减去仅探测脉冲比值。(c)：N_2^+ 的 $X^2\Sigma_g^+$态与 $A^2\Pi_u$ 态（黑色）以及 $X^2\Sigma_g^+$态与 $B^2\Sigma_u^+$ 态（红色）之间角度平均非对角密度矩阵元的虚部。为便于观察，红色曲线向下平移。(f)：与 (c) 相同，但针对 O_2^+ 的 $a^4\Pi_u$ 态与 $b^4\Sigma_g^-$态。由于双阳离子形成路径之间的干涉，(c) 和 (f) 中密度矩阵元的时间依赖性（代表离子态之间的振电相干性）分别反映在 (a–b) 和 (d–e) 中。

HOMO-2 被电离，形成离子态的叠加态（N_2^+的 $X^2\Sigma_g^+$、$A^2\Pi_u$ 和 $B^2\Sigma_u^+$ 态；O_2^+的 $X^2\Pi_g$、$a^4\Pi_u$ 和 $b^4\Sigma_g^-$ 态）；在泵浦激光结束时（$t = t_1$），得到密度矩阵 $\rho^{(0)}(\theta,\ t_1)$ 和 $\rho^{(1)}(\theta,\ t_1)$。由于峰值强度较弱，泵浦过程产生的双阳离子产率可以忽略，因此 $\rho^{(2)}(\theta,\ t_1) = 0$。我们将 $t = 0$ 设为泵浦脉冲峰值处，并令其为 $t_1 = 6$ fs。

(ii) 对于自由传播，我们假设泵浦脉冲之后，离子的振动态按照其弗兰克-康登（FC）因子布居。 ith 离子态 $|\chi_i(t)\rangle$ 的核波函数随后按 $|\chi_i(t)\rangle = \sum_v |c_{iv}|^2 |\phi_{iv}\rangle e^{-iE_{iv}t}$ 演化，其中 $|c_{iv}|^2$ 是从中性分子振电子基态到 v 能级的 ith 离子态的 FC 因子，$|\phi_{iv}\rangle$ 是振动波函数，E_{iv} 是振电子能量。为了在 FC 近似下模拟泵浦-探测延迟期间离子的核运动导致的相干性变化，我们将 $t > t_1$ 的非对角元 $\rho_{ij}^{(1)}(\theta,\ t)$ 建模为 [16]

$$\rho_{ij}^{(1)}(\theta, t) = C_{ij}(\theta)\langle\chi_j(t - t_1)|\chi_i(t - t_1)\rangle, \qquad (3)$$

其中，$C_{ij}(\theta)$ 是用于匹配 $t = t_1$ 处矩阵元的常数。注意，核重叠函数 $\langle\chi_j|\chi_i\rangle$ 与 θ 无关，因为核运动发生在分子坐标系中，不受分子取向影响。关于核重叠函数的详细信息，请参阅补充材料的 S1 节。

(iii) 对于探测过程，我们将探测脉冲设为与泵浦脉冲相同，但峰值强度为 $1.2 \times 10^{15}\,\mathrm{W/cm^2}$。为考虑较晚时刻 t 的振电相干性，我们针对每个

θ重新求解方程 (1)，但采用方程 (3) 中的初始条件 $\rho^{(0)}(\theta,t) = \rho^{(0)}(\theta,t_1)$,$\rho^{(1)}(\theta,t)$，以及 $\rho^{(2)}(\theta,t) = 0$。通过基于固定原子核和 FC 近似的严格推导，证明了在探测过程中使用方程 (1) 和 (3) 的有效性（参见补充材料的 S2 节）。最后，在探测脉冲之后，我们对每个双阳离子态的产额在 θ 上取平均，为每个态指定 KER 峰，并将这些峰与实验能量分辨率进行卷积，以模拟 KER 光谱，方法与文献 [8, 9] 相同。请注意，我们忽略了焦体积效应，因为它不会改变 KER 光谱的定性行为 [8, 9]。

本快报的主要结果如图2所示。时间延迟 τ 定义为两个激光脉冲峰值之间的时间差，且泵浦脉冲先到达。为尽量减小脉冲重叠，时间延迟从 12 fs 开始。图2a和d展示了 $N^+ + N^+$ 和 $O^+ + O^+$的模拟 KER 光谱随时间延迟的变化，并减去了各自的仅探测信号。双阳离子不同态对应的 KER 峰归属见参考文献 [8, 9]。可以看到，N_2 （7.5 eV）和 O_2 （11 eV）的光谱最高峰均呈现明显拍频。N_2 的拍频从 $\tau = 16$ fs 开始减弱（对应于泵浦脉冲到达后 4 fs），但在 τ =28 fs 时很快复现；从 $\tau = 30$ 到 46 fs 也出现类似的变化模式。与此同时，O_2 的拍频从 $\tau = 16$ fs 起减弱，并在 $\tau = 19$到 39 fs 期间几乎消失。在 $\tau > 40$fs 时，可以看到拍频复现。请注意，N_2 和 O_2 的较弱峰也呈现与主峰相似的拍频，但其中一些存在相位偏移（见图2a和d中的标记）。这些相位偏移是由双阳离子态的不同形成路径造成的。详细讨论见补充材料第 S3 节。

图2a和d中拍频的减弱与复现，是由于不同时间延迟下振电相干性的变化所致。如果忽略泵浦-探测延迟期间的振动运动，那么N_2和O_2 的拍频将仅仅由于无限长寿命的相干性而重复从 $\tau = 12$ 到14 fs的模式（见补充材料第S3节）。

为进一步理解振电相干性与KER光谱之间的联系，我们将图2b和e中解离双阳离子的分支比，与图2c和f中离子在不同时间延迟下的非对角密度矩阵元进行了比较。图中绘制的分支比是解离双

时间延迟τ时，阳离子产额占双阳离子总产额的比值减去仅探测脉冲比值。图中绘制的非对角元 $\rho_{ij}^{(1)}(\theta,t)$ 表示振电相干性，其经过角度平均并乘以 $t = \tau - t_1$ （见式 (3)）。可以看出，对于 N_2 和 O_2，分支比与 $\rho_{ij}^{(1)}$ 的虚部密切相关。这种关系源自方程 mo-

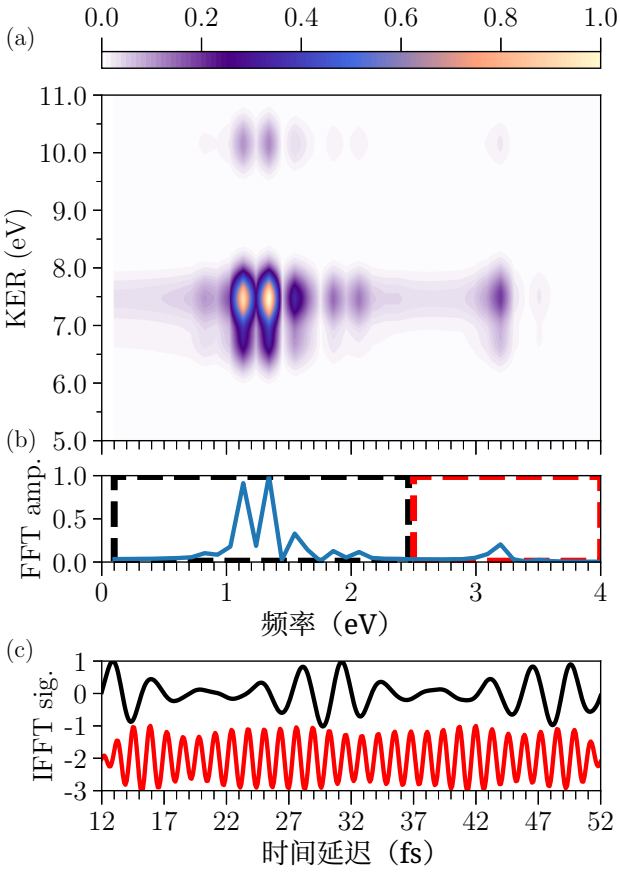


图3。（a–b）图2a和2b的快速傅里叶变换（FFT）光谱。为了提取不同态对之间的振电相干性，我们对（b）中黑色和红色方框内的信号（以及其负频率对应部分）进行了逆快速傅里叶变换（IFFT）；这些信号分别来自N_2^+ 的 $X^2\Sigma_g^+$–$A^2\Pi_u$ 态和 $X^2\Sigma_g^+$–$B^2\Sigma_u^+$ 态的振电拍频。（c）中的黑线和红线分别为相应的IFFT信号，其中红色曲线向下平移以便于观察。这两条曲线与图2c中的振电相干函数高度吻合。

离子布居的表达式（由公式推导得出 (1)），

$$\frac{d\rho_{ii}^{(1)}}{dt} = 2\sum_l \vec{d}_{il}\cdot\vec{E}(t)\,\mathrm{Im}\left(\rho_{li}^{(1)}(t)\right) + \Gamma_{ii}^{(1)}(t). \qquad (4)$$

从右侧第一项可以看出，振电相干性通过激光耦合调节离子态之间的布居转移。由于双阳离子产率与中间离子态的布居成正比，因此双阳离子产率也取决于振电相干性。

N_2 和 O_2中，分支比与振电相干性的关系截然不同。对于 N_2^+，由于有两对态与激光耦合，其分支比会以两组不同的振电频率拍频（见图2b）。由于 $X^2\Sigma_g^+$–$A^2\Pi_u$ 拍频（$\sim$ 1.35 eV）与

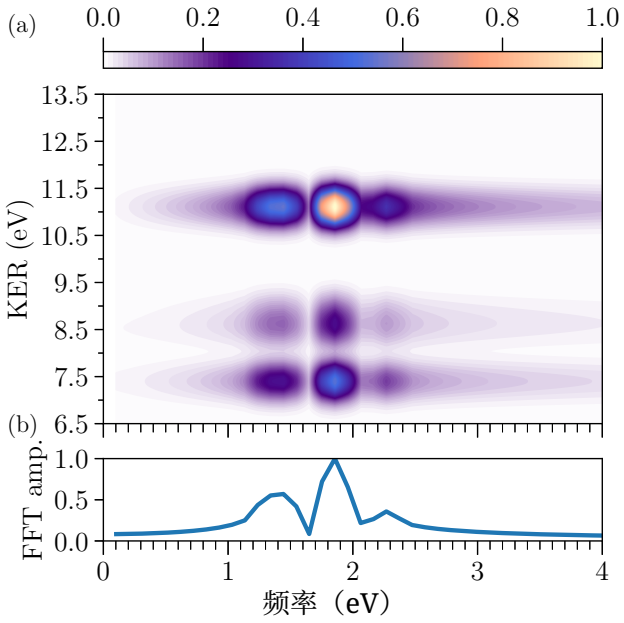


图4。（a–b）图2d和2e的快速傅里叶变换光谱。虽然 O_2^+ 的 $X^2\Pi_g$ 态仍与 $a^4\Pi_u$ 态和 $b^4\Sigma_g^-$ 态部分相干，但此处仅展示 $a^4\Pi_u$ 态与 $b^4\Sigma_g^-$ 态之间的拍频，因为只有这对态受激光耦合。

800纳米激光（1.55 eV）近共振，而 $X^2\Sigma_g^+$–$B^2\Sigma_u^+$拍频（$\sim$ 3.17 eV）处于非共振状态，因此分支比主要取决于 $X^2\Sigma_g^+$–$A^2\Pi_u$ 相干性。对于 O_2^+，由于只有 $a^4\Pi_u$ 和 $b^4\Sigma_g^-$态与激光耦合，它们的振电相干性会直接反映在分支比上（见图2e）。

另一个有趣的特征是，N_2^+ 两对态之间以及 O_2^+ 态对之间的相干性表现各不相同。N_2^+ 的 $X^2\Sigma_g^+$–$B^2\Sigma_u^+$ 相干性持续时间较长，而 N_2^+ 和 O_2^+ 中其他态对之间的相干性会迅速衰减，并在稍后恢复。从 N_2^+ 和 O_2^+ 的结果可以看出，退相干效应高度依赖于态和系统；即使在这样简单的分子中，也可能发生振动电子退相干与恢复 [28] 。由于 SDI 探针的机制应具有普适性，我们预计只要泵浦态在泵浦-探测延迟期间不发生解离，复杂分子中也会存在类似的关系。

这项工作的一个重要结果是，可以直接从实验中提取振电相干性。由于核重叠函数与分子取向无关，即使分子未经过取向排列，这种提取仍然是有意义的。这里我们展示了如何对图2中的光谱执行快速傅里叶变换（FFT）来完成提取。图3a和b显示了N_2的图2a和b对应的 FFT 光谱的归一化振幅。在图3b中可以看到两组拍频：一组对应$X^2\Sigma_g^+$–$A^2\Pi_u$ （黑框），另一组对应 $X^2\Sigma_g^+$–$B^2\Sigma_u^+$ （红框）。如近共振条件所预期， $X^2\Sigma_g^+$–$A^2\Pi_u$ 振电拍频的强度可能是 $X^2\Sigma_g^+$–$B^2\Sigma_u^+$ 拍频的四倍。由于两组拍频在频率上分离得很好，因此可以对黑框和红框中的光谱（以及负频率中相同范围的光谱）执行逆快速傅里叶变换（IFFT），从而提取两对态的振电相干性。图3c显示了N_2, 的提取结果 IFFT 信号，可以看到，两个信号都与图2c高度吻合。

类似地，图4a和图4b显示了 O_2^+ 中 $a^4\Pi_u$ 态与 $b^4\Sigma_g^-$ 态之间的振电拍频。但是，由于只有这两个态受到激光耦合，直接对图4b中的光谱进行逆快速傅里叶变换（IFFT）将仅仅重现图2e。我们注意到，Xue等人[37] 在一项理论研究中也报道了类似的振电拍频，该研究针对 O_2^+ 的强场解离，其中所使用的红外脉冲强度比我们的情况低三个数量级。

总之，我们已经证明，可以使用 SDI 作为探测分子动力学的探针。尽管众所周知，分子电荷迁移中的振电相干性很难探测，但我们证明了 SDI探针提供了一种简单且可行的解决方案，因为它由离子态之间的激光耦合驱动，因此对它们的相干性敏感。由于我们的模型考虑了实验条件，例如分子取向的各向同性分布，因此可以从我们的模拟中得出这些结论；而基于第一性原理方法的其他理论研究很少涉及这些条件。

我们模型的核心在于将激光-分子相互作用与原子核动力学分开处理。由于使用了少周期红外脉冲，前者可在固定原子核的条件下通过 DM-SDI模型 [8, 9] 处理，而后者则可通过量子化学方法建模，无需考虑激光场和分子取向 [15, 17]。因此，模拟的计算成本大幅降低，并且可以进行取向平均，直接将结果与实验进行比较。由此，当前方法有望推广至更复杂的分子。

DM-SDI模型的简洁性也使人们能够从实验观测量中提取分子动力学信息。如果在泵浦-探测延迟期间，泵浦态之间没有布居转移，也没有发生解离，该模型表明，可以通过对 KER 光谱或分支比进行傅里叶分析，直接提取振电相干性。

最后，我们强调，由于泵浦-探测方案中使用了超短脉冲，本快报中的理论得到了极大的简化。随着脉冲压缩技术的最新进展，如今已能够产生少周期乃至单周期红外脉冲 [38]。

这项理论和实验进展将为利用 SDI 过程和超短脉冲探测分子动力学开辟众多研究机会。

本研究得到美国能源部科学办公室基础能源科学办公室化学科学、地球科学与生物科学部资助，资助编号 DE-FG02-86ER13491。

* iyuen@phys.ksu.edu † cdlin@phys.ksu.edu

[1] S. Voss, A. S. Alnaser, X. M. Tong, C. Maharjan, P. Ran- itovic, B. Ulrich, B. Shan, Z. Chang, C. D. Lin, and C. L. Cocke, 《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》 37, 4239 (2004). [2] A. S. Alnaser, S. Voss, X.-M. Tong, C. M. Maharjan, P. Ranitovic, B. Ulrich, T. Osipov, B. Shan, Z. Chang, and C. L. Cocke, 《物理评论快报》 93, 113003 (2004). [3] Z. Wu, C. Wu, X. Liu, Y. Liu, Y. Deng, and Q. Gong, 《光学快报》 18, 10395 (2010). [4] S. De, I. A. Bocharova, M. Magrakvelidze, D. Ray, W. Cao, B. Bergues, U. Thumm, M. F. Kling, I. V. Litvinyuk, and C. L. Cocke, 《物理评论A辑》 82, 013408 (2010). [5] S. De, M. Magrakvelidze, I. A. Bocharova, D. Ray, W. Cao, I. Znakovskaya, H. Li, Z. Wang, G. Laurent, U. Thumm, M. F. Kling, I. V. Litvinyuk, I. Ben-Itzhak, and C. L. Cocke, 《物理评论A辑》 84, 043410 (2011). [6] X. Xie, K. Doblhoff-Dier, H. Xu, S. Roither, M. S. Sch¨offler, D. Kartashov, S. Erattupuzha, T. Rathje, G. G. Paulus, K. Yamanouchi, A. Baltuska, S. Grafe, and M. Kitzler, 《物理评论快报》 112, 163003 (2014). [7] C. Cheng, Z. L. Streeter, A. J. Howard, M. Spanner, R. R. Lucchese, C. W. McCurdy, T. Weinacht, P. H. Bucksbaum, and R. Forbes, 《物理评论A辑》 104, 023108 (2021). [8] C. H. Yuen and C. D. Lin, 《物理评论A辑》 106, 023120 (2022). [9] C. H. Yuen, P. Modak, Y. Song, S.-F. Zhao, and C. D. Lin, 《物理评论A辑》 107, 013112 (2023). [10] L. S. Cederbaum and J. Zobeley, 《化学物理快报》 307, 205 1999( ). [11] A. S. Folorunso, A. Bruner, F. Mauger, K. A. Hamer, S. Hernandez, R. R. Jones, L. F. DiMauro, M. B. Gaarde, K. J. Schafer, and K. Lopata, 《物理评论快报》 126, 133002 2021( ). [12] F. Krausz and M. Ivanov, 《现代物理学评论》 81, 163 (2009). [13] J. Biegert, F. Calegari, N. Dudovich, F. Qu´er´e, and M. Vrakking, 《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》 54, 070201 (2021). [14] F. L´epine, M. Y. Ivanov, and M. J. Vrakking, Nat. Pho- tonics 8, 195 (2014). [15] V. Despr´e, A. Marciniak, V. Loriot, M. Galbraith, A. Rouz´ee, M. Vrakking, F. L´epine, and A. Kuleff, 《物理化学快报》 6, 426 (2015). [16] C. Arnold, O. Vendrell, and R. Santra, 《物理评论A辑》 95, 033425 (2017). [17] N. V. Golubev, T. Begu˘si´c, and J. Van´ı˘cek, 《物理评论快报》 125, 083001 (2020).[18] D. Dey, A. I. Kuleff, and G. A. Worth, 《物理评论快报》 129, 173203 (2022). [19] A. Scheidegger, J. Van´ı˘cek, and N. V. Golubev, 《化学物理杂志》 156, 034104 (2022). [20] G. Sansone, F. Kelkensberg, J. P´erez-Torres, F. Morales, M. F. Kling, W. Siu, O. Ghafur, P. Johnsson, M. Swo- boda, E. Benedetti, *et al.*, 《自然》 465, 763 (2010). [21] F. Calegari, D. Ayuso, A. Trabattoni, L. Belshaw, S. De Camillis, S. Anumula, F. Frassetto, L. Poletto, A. Palacios, P. Decleva, J. B. Greenwood, F. Martin, and M. Nisoli, 《科学》 346, 336 (2014). [22] M. Lara-Astiaso, M. Galli, A. Trabattoni, A. Palacios, D. Ayuso, F. Frassetto, L. Poletto, S. De Camillis, J. Greenwood, P. Decleva, I. Tavernelli, F. Calegari, M. Nisoli, and F. Martin, 《物理化学快报》 9, 4570 (2018). [23] O. Smirnova, Y. Mairesse, S. Patchkovskii, N. Dudovich, D. Villeneuve, P. Corkum, and M. Y. Ivanov, 《自然》 460, 972 2009( ). [24] P. M. Kraus, B. Mignolet, D. Baykusheva, A. Rupenyan, L. Horn`y, E. F. Penka, G. Grassi, O. I. Tolstikhin, J. Schneider, F. Jensen, *et al.*, 《科学》 350, 790 (2015). [25] L. He, S. Sun, P. Lan, Y. He, B. Wang, P. Wang, X. Zhu, L. Li, W. Cao, P. Lu, and C. D. Lin, 《自然·通讯》 13, 1 2022( ). [26] Y. Kobayashi, K. F. Chang, S. M. Poullain, V. Scutelnic, T. Zeng, D. M. Neumark, and S. R. Leone, 《物理评论A辑》 101, 063414 (2020). [27] Y. Kobayashi, D. M. Neumark, and S. R. Leone, 《物理评论A辑》 102, 051102(R) (2020). [28] D. T. Matselyukh, V. Despr´e, N. V. Golubev, A. I. Kuleff, and H. J. W¨orner, 《自然·物理》 18, 1206 (2022). [29] T. Okino, Y. Furukawa, Y. Nabekawa, S. Miyabe, A. Amani Eilanlou, E. J. Takahashi, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa, 《科学进展》 1, e1500356 (2015). [30] S. Fukahori, T. Matsubara, Y. Nabekawa, K. Ya- manouchi, and K. Midorikawa, 《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》 53, 164001 (2020). [31] T. Barillot, O. Alexander, B. Cooper, T. Driver, D. Garratt, S. Li, A. Al Haddad, A. Sanchez-Gonzalez, M. Ag˚aker, C. Arrell, *et al.*, 《物理评论X》 11, 031048 (2021). [32] D. Schwickert, M. Ruberti, P. Koloren˘c, S. Usenko, A. Przystawik, K. Baev, I. Baev, M. Braune, L. Bocklage, M. K. Czwalinna, *et al.*, 《科学进展》 8, eabn6848 (2022). [33] R. Santra, V. S. Yakovlev, T. Pfeifer, and Z.-H. Loh, 《物理评论A辑》 83, 033405 (2011). [34] N. V. Golubev, J. Van´ı˘cek, and A. I. Kuleff, 《物理评论快报》 127, 123001 (2021). [35] X.-M. Tong, Z. X. Zhao, and C.-D. Lin, 《物理评论A辑》 66, 033402 (2002). [36] S. Pabst, M. Lein, a nd H. J. W¨orner, 《物理评论A辑》 **93**, 023412 2016( ). [37] S. Xue, S. Yue, H. Du, B. Hu, and A.-T. Le, 《物理评论A辑》 104, 013101 (2021). [38] M.-S. Tsai, A.-Y. Liang, C.-L. Tsai, P.-W. Lai, M.-W. Lin, and M.-C. Chen, 《科学进展》 8, eabo1945 (2022).