分子超转子的非线性动力学

C. Chandre*

法国国家科学研究中心，艾克斯-马赛大学，*I2M*，法国马赛 *13009*

J. Pablo Salas†

´*F*物理系 ´拉里奥哈大学，*26006* 洛格罗 ˜尼奥，拉里奥哈，西班牙

（日期：2023年3月1日）

arXiv:2303.05090v1 [nlin.CD] 9 Mar 2023

摘要

我们研究一个由线偏振激光脉冲驱动的双原子分子，其偏振轴以恒定加速度旋转。这种装置称为光学离心机，已知它会使分子获得高角动量（超旋转态），并可能导致解离。本文阐明了超旋转态形成及其解离背后的动力学机制。我们通过考察能够涵盖超旋转态形成不同阶段、并可能导致解离的约化哈密顿模型，揭示了激光场的各种参数在这些过程中的作用。

引言

物质与激光之间的相互作用，在以前所未有的时间和空间尺度探测物质方面发挥了重要作用，并揭示出比预期更复杂的动力学过程。例如，当原子受到强激光场作用时，电子-原子核库仑力与电场施加的力之间复杂的相互作用会导致单次乃至多次电子电离（参见例如文献 [1, 2] 及其中的参考文献），这凸显了电子-电子相互作用在强场过程中的关键作用。与此同时，对这些相互作用所产生动力学过程的识别，开辟了一个广泛的多学科研究领域，人们可以通过精细调节激光参数来操控物质。例如，当分子受到光波作用时，波的电场与分子的诱导偶极矩之间的相互作用，使得控制分子的转动（参见例如文献 [3, 4]）及其空间取向或定向（参见例如文献 [5–10]）成为可能。尤其是，分子定向对化学反应极为重要，因为在许多情况下，反应物之间初始的相对取向会对反应速率产生重大影响 [11]。

利用激光操控物质的另一个例子是用于分子的光学离心机。该技术在文献 [12]中提出，旨在控制分子并使其达到极端转动态。简而言之，光学离心机由一个红外线偏振激光脉冲构成，其偏振轴以恒定的角加速度旋转。

* cristel.chandre@法国国家科学研究中心.fr

† josepablo.salas@unirioja.es

由于分子在该场的作用下倾向于沿激光的偏振轴排列，因此分子也会被迫跟随激光转动。因此，光学离心机可以将分子激发至极高的转动态，最终使其解离 [13–16]。归根结底，光学离心机产生这些所谓超旋转态的能力已广泛应用于大量实验，例如分子光谱学 [17–19], 、分子动力学 [20–28]，或研究分子磁性质 [29–31]。

分子在光学离心机中的相互作用具有非线性特征。在很大程度上，这种相互作用的特点是哈密顿量中存在一个科里奥利项；当问题在随离心机所用激光的偏振轴旋转的参考系中表述时，该项便会显式出现。激光脉冲轮廓、激光偏振轴的角加速度以及激光电场强度等参数都会参与动力学过程，并可用于控制超旋转态的数量和类型。为区分这些参数在产生分子超转子过程中各自发挥的作用，已有多项研究采用了经典力学处理 [12, 15, 16]。这些研究提出了不同的理论方法，但均揭示了科里奥利项在使分子在光学离心机中获得高角加速度方面发挥的关键作用。

本文的主要目标是揭示激光的各个参数在超旋转态形成过程中的作用。我们还希望弄清楚为什么有些超旋转态最终会解离，而另一些则不会。通过运用非线性动力学，我们能够准确识别导致这些超旋转态生成和解离的动力学机制。通过识别并分析约化哈密顿模型，我们能够评估激光的各个参数在这些过程中所发挥的作用。更具体地说，我们采用与文献 [32, 33], 中类似的方案，研究光学离心机中双原子分子的经典动力学。我们以文献 [12, 15]中研究过的 Cl_2 分子为模型实例。除动能项和氯原子之间的势能外，该系统的转振哈密顿量还包括分子极化率与激光脉冲之间的相互作用。由此得到的光学离心机中分子动力学的哈密顿模型具有 $3 + 1/2$ 个自由度（即分子的 3 个自由度，以及激光场显含的时间依赖性）。需要指出的是，这种显含的时间依赖性有两个方面：一方面，

激光的偏振轴以恒定的角加速度旋转。另一方面，激光脉冲包络还带来了额外的时间依赖性，它由上升沿、平台段和下降沿组成。这两种显含的时间依赖性都不是周期性的。

我们在此探讨的问题是：为什么某些分子态会形成超转子，而某些相近的分子态却不会？为什么某些超旋转态最终会解离，而另一些却不会？激光参数在分子超转子的非线性动力学中扮演什么角色？

在第 I 节中，我们明确说明了所采用的激光脉冲与 Cl_2 分子相互作用模型。特别是，我们简要回顾了对一个激光周期内的动力学进行平均的方法。我们还构建了分子的极化率，这是模型中的关键要素。在第 II 节中，我们详细介绍了解离概率的计算，并重点讨论改变激光场振幅时出现的一些令人困惑的特征。本节最后列出一系列问题，探讨这些概率曲线背后的动力学机制。在第 III 节中，我们分析了两个约化哈密顿模型，以全面刻画这些动力学机制：一个模型用于刻画超旋转态的形成机制，另一个则用于研究这些态可能发生的解离。

I. 双原子分子的光学离心机：哈密顿量模型

A. 相互作用哈密顿量

在玻恩-奥本海默近似下，我们考虑一个处于强线偏振激光场$\mathbf{E}(t)$中的双原子分子，该激光场的振幅为 F_0、频率为 ω，脉冲轮廓为$f(t)$。若激光的偏振轴在 xy 平面内缓慢旋转，则电场$\mathbf{E}(t)$可写为 [12]

$$\mathbf{E}(t) = F_0 f(t)[\hat{\mathbf{x}}\cos\Phi(t) + \hat{\mathbf{y}}\sin\Phi(t)]\cos\omega t, \tag{1}$$

其中， $\Phi(t)$ 是激光的瞬时偏振角。我们考虑偏振轴以恒定角加速度 β 旋转的情况，因此 $\Phi(t) =$

$\beta t^2/2$。此后，我们假设激光脉冲轮廓 $f(t)$ 是一个正弦上升函数

$$f(t)=\begin{cases}\sin\left(\frac{\pi t}{2t_{\mathrm{u}}}\right) & \text{if} \quad 0\le t<t_{\mathrm{u}},\\ 1 & \text{if} \quad t_{\mathrm{u}}\le t\le t_{\mathrm{u}}+t_{\mathrm{p}},\\ \sin\left(\frac{\pi(t_{\mathrm{u}}+t_{\mathrm{p}}+t_{\mathrm{d}}-t)}{2t_{\mathrm{d}}}\right) & \text{if} \quad t_{\mathrm{u}}+t_{\mathrm{p}}<t\le t_{\mathrm{u}}+t_{\mathrm{p}}+t_{\mathrm{d}},\\ 0 & \text{otherwise},\end{cases}$$

其中， t_{u} 为激光场上升沿的持续时间， t_{p} 为其平台段的持续时间，t_{d} 为下降沿的持续时间。此前已有文献使用这种正弦上升包络（见参考文献 [32, 34], ），以模拟上升沿和下降沿较为平滑的实验激光脉冲 [35]。我们用电场 (1) 照射一个双原子分子。在笛卡尔坐标 $(x,\ y,\ z)$ 中，激光场与双原子分子相互作用所产生的动力学由哈密顿量描述

$$\mathcal{H}=\frac{p_x^2+p_y^2+p_z^2}{2\mu}+\varepsilon(r)-\mathbf{d}(r)\cdot\mathbf{E}(t)+\mathbf{E}(t)\cdot\alpha(x,y,z)\mathbf{E}(t), \tag{2}$$

其中， r 为原子间距 $r=(x^2+y^2+z^2)^{1/2}$， α 为双原子分子的极化率矩阵。这里， μ 为双原子分子的约化质量， $\varepsilon(r)$ 为其势能曲线。

如果激光频率 ω 远高于双原子分子的转动频率（通常， ω 处于红外波段），则可以对哈密顿量 (2) 在一个激光周期内取平均（例如，使用正则李变换）。所得平均哈密顿量为

$$\mathcal{H}=\frac{p_x^2+p_y^2+p_z^2}{2\mu}+\varepsilon(r)+V_L(x,y,z,t), \tag{3}$$

其中，分子与激光的相互作用势 V_L 由下式给出

$$V_L(x,y,z,t)=-\frac{1}{4}\ F_0^2\ f(t)^2[\Delta\alpha(r)\cos^2\theta_l+\alpha_\perp(r)].$$

在上述表达式中， $\Delta\alpha(r)=\alpha_\parallel(r)-\alpha_\perp(r)$，其中 $\alpha_\parallel(r)$ 和 $\alpha_\perp(r)$ 分别为极化率的平行分量和垂直分量，而 θ_l 是分子轴与电场 $\mathbf{E}(t)$ 之间的夹角。

当问题在以偏振轴频率 $\dot{\Omega}(t)=\Phi(t)=\beta t$ 旋转的参考系（通过进行正则坐标变换）x', y', z'中表述时，时间依赖性便简化为 $\Omega(t)$ 和脉冲轮廓 $f(t)$，从而

哈密顿量 (3) 变为

$$\mathcal{H}' = \frac{p_x'^2 + p_y'^2 + p_z'^2}{2\mu} - \Omega(t)(x'p_y' - y'p_x') + \varepsilon(r) - \frac{F_0^2}{4} f(t)^2[\Delta\alpha(r)\cos^2\theta_l + \alpha_\perp(r)]. \qquad (4)$$

在这个旋转坐标系中，x'轴表示电场偏振矢量的方向，角度 θ_l 满足 $\cos\theta_l = x'/r$。为简化表达，省略坐标和动量上的撇号后，哈密顿量 (4) 可写为

$$\mathcal{H} = \frac{p_x^2 + p_y^2 + p_z^2}{2\mu} - \Omega(t)(xp_y - yp_x) + \varepsilon(r) - \frac{F_0^2}{4} f(t)^2 \left[\Delta\alpha(r)\frac{x^2}{r^2} + \alpha_\perp(r)\right]. \qquad (5)$$

用球面（正则）坐标 $(r, \theta, \phi, p_r, p_\theta, p_\phi)$ 表述哈密顿量 (5) 很方便，其中 $\theta \in [0, \pi]$ 且 $\phi \in [-\pi, \pi[$。在这个坐标系中，哈密顿量 (5) 可写为

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2\mu}\left(p_r^2 + \frac{p_\theta^2}{r^2} + \frac{p_\phi^2}{r^2\sin^2\theta}\right) + \varepsilon(r) - \Omega(t)p_\phi - \frac{F_0^2}{4} f(t)^2[\Delta\alpha(r)\sin^2\theta\cos^2\phi + \alpha_\perp(r)].$$

我们注意到，由 $\theta = \pi/2$ 和 $p_\theta = 0$ 定义的流形在动力学作用下是不变的。在这个流形中，系统可约化为正则坐标 (r, ϕ, p_r, p_ϕ) 下的以下哈密顿系统，

$$\mathcal{H}_{2\mathrm{D}} = \frac{1}{2\mu}\left(p_r^2 + \frac{p_\phi^2}{r^2}\right) + \varepsilon(r) - \Omega(t)p_\phi - \frac{F_0^2}{4} f(t)^2[\Delta\alpha(r)\cos^2\phi + \alpha_\perp(r)]. \qquad (6)$$

在由 $\theta = \pi/2$ 和 $p_\theta = 0$定义的流形中，分子运动发生在 xy- 平面内，因此 p_ϕ 是分子的总角动量。为简化起见，我们将研究限制在流形 $\theta = \pi/2$ 和 $p_\theta = 0$上。

B. 案例研究：氯分子

为研究哈密顿量 (6) 所产生的动力学，我们以氯分子 Cl_2 ($\mu \approx 32548.53$ 原子单位)为模型示例。

1. 势能曲线

氯分子的电子势能曲线 $\varepsilon(r)$采用莫尔斯势建模

$$\varepsilon(r) = D_\mathrm{e}\left[1 - \exp(-\gamma(r - r_\mathrm{e}))\right]^2 - D_\mathrm{e},$$

其中，$r_\mathrm{e} \approx 3.7560$ 原子单位是平衡距离，$D_\mathrm{e} \approx 0.0915$ 原子单位是势阱深度，$\gamma \approx 1.0755$ 原子单位是宽度参数 [36]。

2. 平行与垂直极化率

我们遵循文献 [37, 38]，为 $\alpha_{\parallel}(r)$ 和 $\alpha_{\perp}(r)$ 构造解析函数。在较小 r 的范围内，Cl_2-极化率函数以原子单位表示，可写成如下形式的多项式

$$\alpha_{\parallel}^{\mathrm{SR}}(r) = 42.13 + 15.40(r - r_{\mathrm{e}}) + 5.40(r - r_{\mathrm{e}})^2 - 5.25(r - r_{\mathrm{e}})^3, \tag{7a}$$

$$\alpha_{\perp}^{\mathrm{SR}}(r) = 25.29 + 2.87(r - r_{\mathrm{e}}) - 0.09(r - r_{\mathrm{e}})^2 - 0.42(r - r_{\mathrm{e}})^3, \tag{7b}$$

其中，r 和 r_{e} 也以原子单位表示。另一方面，极化率的渐近行为可以由西尔伯斯坦表达式 [39, 40]很好地描述:

$$\alpha_{\parallel}^{\mathrm{LR}}(r) = \frac{\alpha_{\mathrm{Cl_2}} + 4\alpha_{\mathrm{Cl}}^2/r^3}{1 - 4\alpha_{\mathrm{Cl}}^2/r^6}, \tag{8a}$$

$$\alpha_{\perp}^{\mathrm{LR}}(r) = \frac{\alpha_{\mathrm{Cl_2}} - 2\alpha_{\mathrm{Cl}}^2/r^3}{1 - \alpha_{\mathrm{Cl}}^2/r^6}, \tag{8b}$$

其中，$\alpha_{\mathrm{Cl}} \approx 15.5421$ 原子单位是 Cl 原子的原子极化率，而$\alpha_{\mathrm{Cl_2}} = 2\alpha_{\mathrm{Cl}}$。在中间核间距范围内，我们采用$\alpha_{\parallel,\ \perp}$ 将分别由式（7a）–（7b）和（8a）–（8b）给出的小核间距和大核间距下的极化率函数连接起来]。作为连接函数，我们使用两个五次多项式,

$$\alpha_{\parallel}^{\mathrm{MR}}(r) = \sum_{k=0}^{5} a_k r^k,$$

$$\alpha_{\perp}^{\mathrm{MR}}(r) = \sum_{k=0}^{5} b_k r^k.$$

通过施加直至二阶导数的连续性条件 [38]，确定 a_k 和 b_k 系数。对于$\alpha_{\parallel}$（r），连接点取为 $r_1 = 5$ 原子单位和 $r_2 = 10$ 原子单位；对于 $\alpha_{\perp}$（r），连接点取为 $r_1 = 3$ 原子单位和 $r_2 = 6$ 原子单位。相应系数的数值列于表 I 中。图 1 展示了势能曲线 ε（r）和拟合曲线 $\alpha_{\parallel,\ \perp}$（$r$）。

II. 超旋转态与解离概率

哈密顿量 (6) 中的激光相互作用预计会驱动 Cl_2 分子，使其获得非常高的角动量态，并最终可能发生解离。在

表 I. 极化率曲线 $\alpha_{\parallel,\perp}(r)$ 中程行为参数的取值（单位为原子单位）。

$a_0 = -1599.0948$	$a_1 = 1064.7017$	$a_2 = -262.7959$	$a_3 = 31.2872$	$a_4 = -1.8165$	$a_5 = 0.0414$
$b_0 = 68.2895$	$b_1 = -56.3914$	$b_2 = 25.5238$	$b_3 = -5.3392$	$b_4 = 0.5409$	$b_5 = -0.0216$

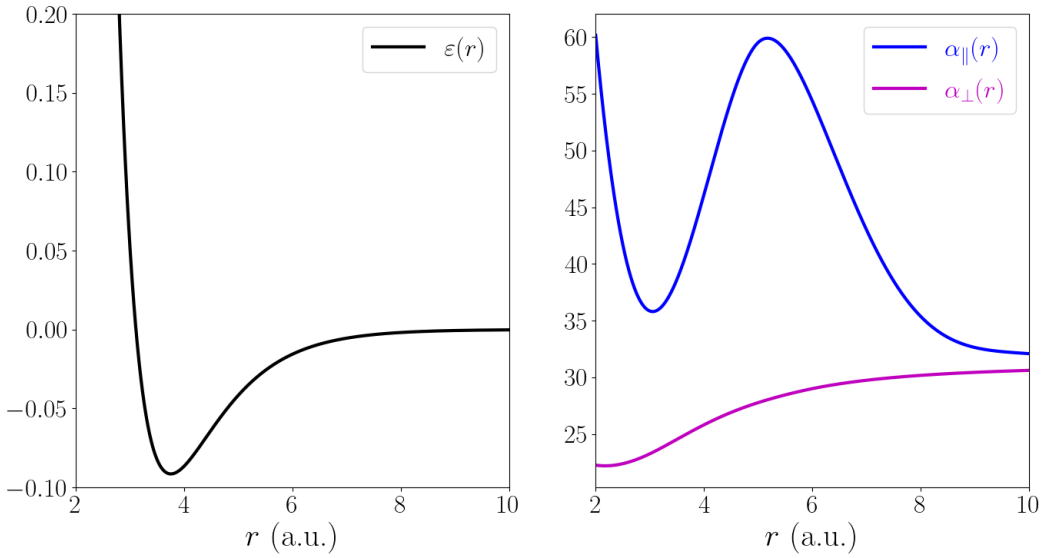

图 1. Cl_2 分子的电子势能曲线 $\varepsilon(r)$（左图），以及分子极化率的平行分量 $\alpha_{\parallel}(r)$ 和垂直分量$\alpha_{\perp}(r)$（右图）。数值的单位为原子单位。

因此，自然要计算解离概率随不同脉冲参数的变化，特别是电场强度 F_0 以及上升沿t_{u}、平台段 t_{p}和下降沿 t_{d}的持续时间。为了理解解离概率随激光参数变化的曲线形状，一种方法是考察与哈密顿量 (6) 相关的相空间结构，因为概率曲线的形状不过是底层动力学（即相空间结构）的 *average*，而这些结构在很大程度上受各种脉冲参数控制。由于哈密顿量 (6) 中显含时间所带来的额外半个自由度，使得我们无法方便地利用庞加莱截面，因此目前没有通用工具能够轻易揭示哈密顿量 (6) 的整体相空间结构。因此，我们首先分析样本轨迹，试图从中了解各种参数在

激光脉冲对解离概率曲线的塑造作用。通过检查单条轨迹，我们进而针对解离过程中的各个步骤提出一些假设，并为这一过程的每个步骤建立简化模型。

A. 解离概率的计算

我们对解离概率 $P(F_0)$ 进行数值计算，考察其随激光振幅 F_0 的变化，并研究 t_{u}、t_{p} 和 t_{d} 的不同取值。作为初始样本，我们考虑由大量 Cl_2 分子组成的系综，其动力学由无场哈密顿量决定

$$\mathcal{H}_0 = \frac{1}{2\mu}\left(p_r^2 + \frac{p_\phi^2}{r^2}\right) + \varepsilon(r). \tag{9}$$

考虑到分子的初始能量接近其基态，哈密顿量 (9) 可由其量子谐振近似替代，表示为

$$E_0 = \mathcal{H}_0 \approx -D_{\mathrm{e}} + \omega_{\mathrm{e}}\left(n + \frac{1}{2}\right) + J(J+1)B_{\mathrm{e}}, \qquad n = 0, 1, 2, ..., \qquad J = 1, 2, ..., \tag{10}$$

其中 $\omega_{\mathrm{e}} = 2.5502 \times 10^{-3}$ 原子单位，$B_{\mathrm{e}} = 1.1098 \times 10^{-6}$ 原子单位。一旦固定 n 和 J 的值，分子的所有初始条件（$r(0)$ $p_r(0)$ $\phi(0)$ $p_\phi(0) = \sqrt{J(J+1)}$）都对应于相同的能量 E_0。$r(0)$ 的取值在区间 $r(0) \in [r_m, r_M]$ 内随机选取，其中 r_m 和 r_M 分别是满足条件的 r 的最小值和最大值

$$E_0 = \frac{p_\phi^2}{2\mu r^2} + \varepsilon(r),$$

需要满足。对于 $r(0)$ 的每个取值，$p_r(0)$ 的初值由哈密顿量 (9) 给出。最后，在区间 $[0, 2\pi)$ 内随机选取 $\phi(0)$ 的值。随后，通过对与哈密顿量 (6) 对应的运动方程进行数值积分，将轨迹集合传播整个脉冲持续时间。通常，我们考虑包含 40000 条轨迹的集合。对轨迹进行数值积分时，我们使用文献 [41] 中的四阶辛积分器 BM_64，时间步长为 0.01 原子单位。数值代码（使用 Python 编写）可在 `https://github.com/cchandre/OCDM` 获取。

为了准确表征是否解离的轨迹，我们考虑激光脉冲结束后由哈密顿量（6）得到的解离判据，这等价于考虑

$$\mathcal{H} = \frac{p_r^2}{2\mu} + \frac{p_\phi^2}{2\mu r^2} + \varepsilon(r).$$

其动力学方程为 等价于一维粒子处于有效势中的情形 1

$$V_{\mathrm{eff}}(r) = \frac{p_\phi^2}{2\mu r^2} + \varepsilon(r),$$

其参数为 p_ϕ；在本节中，不失一般性地假设其为正值。对于 p_ϕ 的不同取值，有效势如图 2 所示。我们注意到，当 p_ϕ 较小时，存在一个局部极小值和一个局部极大值。这些极小值和极大值分别对应稳定平衡点和不稳定平衡点。当 $p_\phi = p_\phi^*$ 达到临界值（$p_\phi^* \approx 394.85$ 原子单位）时，会发生鞍结分岔；当 p_ϕ 更大时，不再存在局部极小值。

对于 $p_\phi > p_\phi^*$，由于不存在局部极值，所有轨迹都会解离。对于 $p_\phi \le p_\phi^*$，只要 r 的值小于局部极大值的位置，且其能量小于势垒高度，轨迹就有可能保持束缚。

如果最初有一些轨迹位于势阱中 $r \approx r_{\mathrm{e}}$ 附近的极小值附近，并且 p_ϕ 发生绝热变化，那么 r（t）会围绕位置 r^*（p_ϕ）经历越来越大的振荡；该位置从 $r = r_{\mathrm{e}}$ 增加到 $r = r^*$（p_ϕ^*）≈ 4.87 原子单位，前提是 $p_\phi < p_\phi^*$（见图 2 中的细黑线）。当 p_ϕ 取更大值时，所有轨迹都会解离。简而言之，解离判据如下：如果脉冲结束时的最终角动量 p_ϕ 的模大于 $p_\phi^* \approx 394.85$ 原子单位，则会发生解离，因为对于 $|p_\phi| > p_\phi^*$，分子键不可能存在；此时会发生解离。当 $|p_\phi| \le p_\phi^*$ 时，只要最终径向距离 r 足够小，即 [小于有效势 V_{eff}（r）的局部能垒位置，并且能量小于有效势的局部极大值，分子键就有可能存在。否则，分子会解离。

我们考虑电场振幅为 F_0 至 10^{-2} a.u. 的激光脉冲，对应的激光场最大强度为 3×10^{13} W/cm^2。首先值得注意的是，对于持续时间为 45 ps 或更短的脉冲，所有 F_0 的解离概率均为零。图 3 展示了相同初始条件系综在基态能量 $n = 0$ 且初始转动态为 $J = 30$ 时，解离概率 $P(F_0)$ 随电场振幅 F_0 的变化；其中 $\beta = 3 \times 10^{-10}$ a.u.，并采用了四个 $t_{\mathrm{u}} = t_{\mathrm{d}} = 5$ ps 相同、持续时间分别为 t_{p} =40、50、60 和 120 ps 的脉冲。

在图 3 所示的情形中，当 $F_0 \approx 0.013$ 低于原子单位时，解离概率为零；在区间 $0.013 \lesssim F_0 \lesssim 0.03$ （以原子单位计）内，解离概率从 0 急剧增至 1，呈现

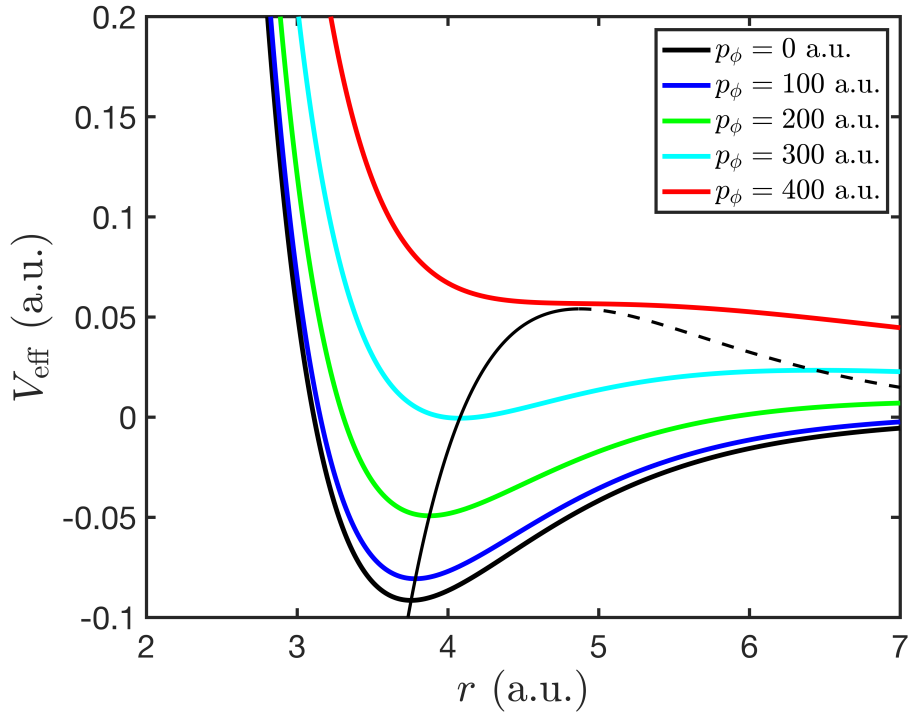

图 2. 五种不同 p_ϕ 值下的有效势 $V_{\rm eff}(r)$。细实线表示有效势局部极小值的位置 $r^*(p_\phi)$ 和能量。细虚线表示其局部极大值的位置和能量。

非单调变化，并伴有幅度较大的锯齿振荡。有趣的是，我们发现，对于所有大于 50 皮秒的平台段持续时间 $t_{\rm p}$ ， $P(F_0)$的取值都相同。

B. 单条轨迹

为分析解离概率曲线 $P(F_0)$，我们首先考察样本轨迹。图 4 展示了激光脉冲参数为 F_0 =0.015, $\beta = 3\times10^{-10}$ 原子单位、 $t_{\rm u} = t_{\rm d} = 5$ 皮秒和 $t_{\rm p} = 40$ 皮秒时的一些样本轨迹。我们关注典型轨迹中 $r(t)$ 和 $p_\phi(t)$ 随时间的演化。从图 4(a) 可以看出，在脉冲持续的大部分时间内，所有轨迹的径向距离 $r(t)$ 几乎保持不变；到脉冲结束时，部分轨迹开始解离 [即 $r(t)$ 急剧增大，见图 4(a) 中的红色曲线]。我们清楚地观察到三种主要类型的轨迹；对于其他参数值，也能观察到这一现象。我们用不同颜色表示这三类轨迹：红色轨迹是最终以.....告终的轨迹

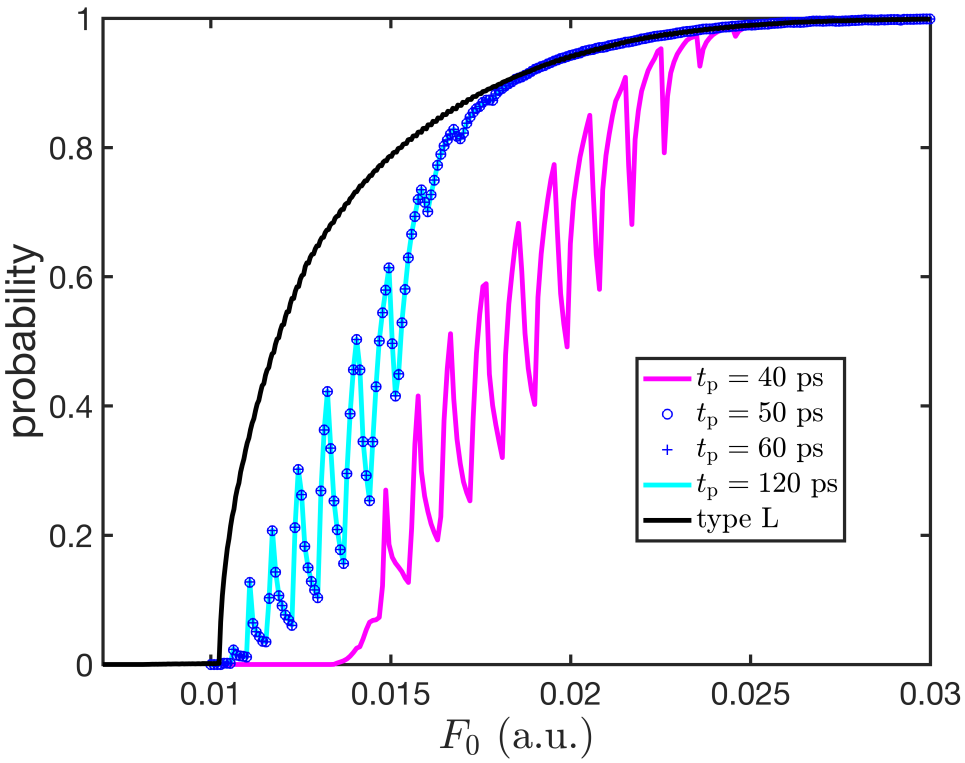

图 3. 对于 $\beta = 3 \times 10^{-10}$ 原子单位，采用哈密顿量 (6) 和能量由式 (10) 给出的初始条件系综，计算得到的解离概率 $P(F_0)$，其中 $n = 0$ 和 $J = 30$。脉冲参数为 $t_u = t_d = 5$ 皮秒，以及 50、60 和 120 皮秒的 t_p =40。黑色曲线表示 L型轨迹的概率（见第 II B 节）。

解离的轨迹，而黑色和蓝色轨迹则保持束缚。从图 4(b) 可以看出，大致在上升沿之后，轨迹呈现出两种性质不同的类型：一种轨迹的角动量 p_ϕ 线性增加（称为 L 型），另一种则不会（称为 C 型）。显然，C 型轨迹不会解离，因为在脉冲结束时，其径向距离 $r(t)$ 仍然保持束缚。图 4 中以黑色显示的是 C 型轨迹。有趣的是，尽管所有 L 型轨迹在脉冲期间的角动量都会线性增加，但并非所有 L 型轨迹最终都会解离（只有图 4 中的红色轨迹会解离）。我们指出，无论最终是否解离，所有 L 型轨迹最终都会获得非常大的角动量，且其数值分布范围相当窄——在所有情况下都呈现出所谓的超转子行为。我们已确认，所有解离轨迹都

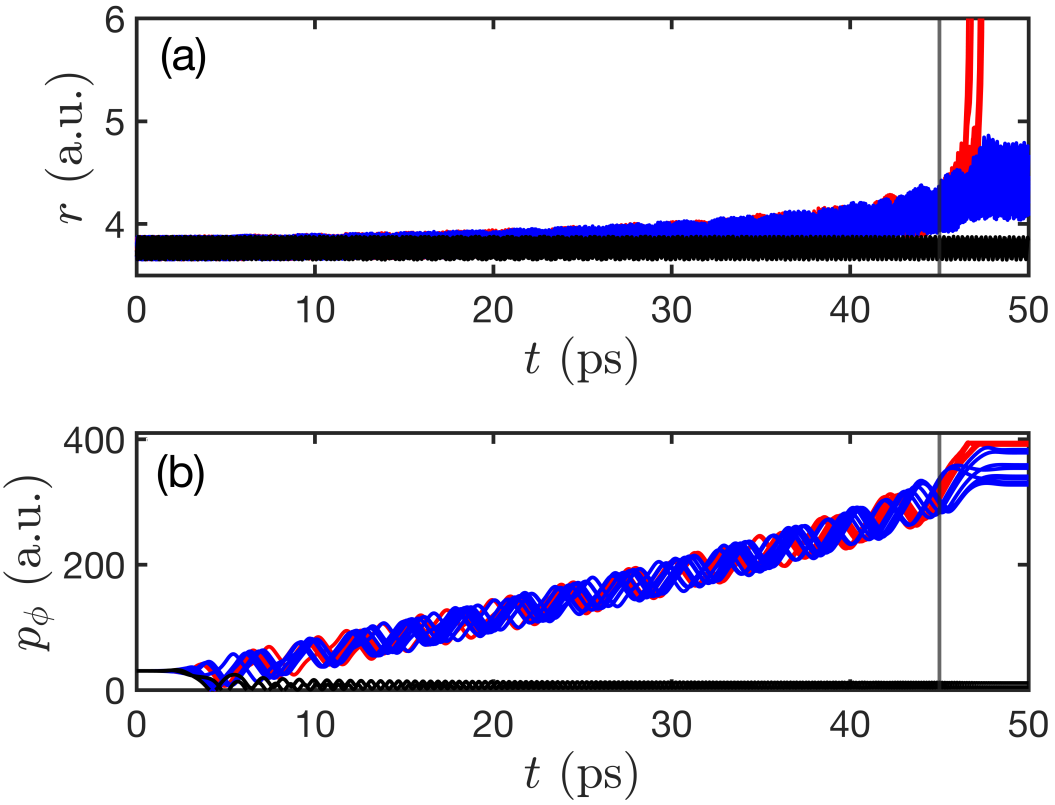

图 4. 当 $F_0 = 0.015$ 原子单位和 $\beta = 3 \times 10^{-10}$ 原子单位时，哈密顿量 (6) 的典型轨迹。上图显示 20 条轨迹的 $r(t)$，下图显示 $p_\phi(t)$。脉冲参数为 $t_\mathrm{u} = t_\mathrm{d} = 5$ 皮秒和 $t_\mathrm{p} = 40$ 皮秒。脉冲结束时，蓝色和黑色轨迹仍处于束缚状态，而红色轨迹正在解离。竖线表示激光脉冲平台段的结束位置。

L 型。

还可以在笛卡尔旋转坐标系（x, y）中绘制特定的 L 型和 C 型轨迹，从另一个角度观察动力学。我们发现，图 5(a) 所示的 C 型轨迹呈现出转动行为，这表明该场无法使 C 型轨迹定向。然而，图 5(b)–(c) 中的 L 型轨迹表明，经过短暂的瞬态过程后，分子大多在 x 轴附近运动，这说明分子沿场方向具有较高的定向程度。此外，无论是否解离，所有 L 型轨道都会获得这种定向。在图 3 中，我们绘出了 L 型轨迹的出现概率随振幅 F_0 变化的关系，适用于 $t_u = t_d = 5$

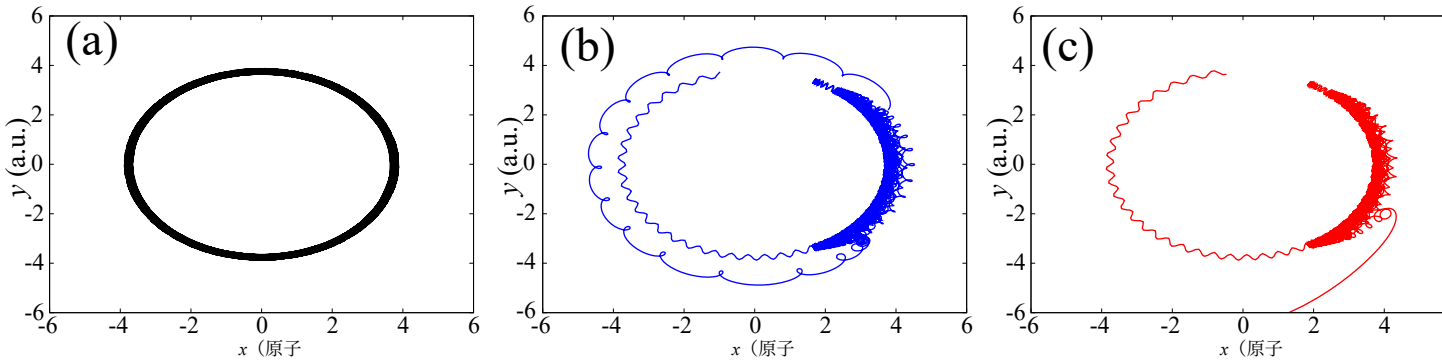

图 5. 对于 $F_0 = 0.015$ 原子单位和 $\beta = 3 \times 10^{-10}$ 原子单位，哈密顿量（6）的典型轨迹。(a) C 型轨迹；(b) 非解离的 L 型轨迹；(c) 解离的 L 型轨迹。脉冲参数为 $t_{\mathrm{u}} = t_{\mathrm{d}} = 5$ 皮秒和 $t_{\mathrm{p}} = 40$ 皮秒。

皮秒和 $t_p = 40$ 皮秒。我们注意到，该概率在约$F_0 \approx 0.01$ 原子单位处急剧且平滑地上升，随后在约 $F_0 \approx 0.03$ 原子单位处趋于饱和。特别是，该概率没有出现解离概率曲线中的锯齿振荡。此外，概率曲线始终低于 L 型轨迹的出现概率（这是预期的，因为所有解离轨迹都属于 L 型）。我们注意到，由于角动量在激光脉冲初期便开始增大，L 型与 C 型的区分也在脉冲初期形成，因此平台段持续时间增加时，该曲线保持不变。在图 3 中，对于较大的F_0 值，随着平台段长度增加，解离概率逐渐接近 L 型轨迹的出现概率。然而，对于中等大小的 F_0值，当平台段持续时间超过 50 皮秒后，解离概率不会显著变化。换言之，无论 F_0 的值在 0.01 原子单位至 0.017 原子单位之间如何变化，仍然存在一些不解离的 L 型轨迹。

如果场强 F_0 足够大（大于 0.017 原子单位），且平台段足够长（长于 50 皮秒），所有 L 型轨迹最终都会解离，概率曲线也会平滑。否则，一些 L 型轨迹虽然角动量线性增加，却永远不会解离，解离概率曲线会呈现锯齿振荡。

在这一阶段，我们排除一种可能的情形：从图 4 可以看出，L型轨迹是否发生解离，是在下降沿期间决定的。人们很容易

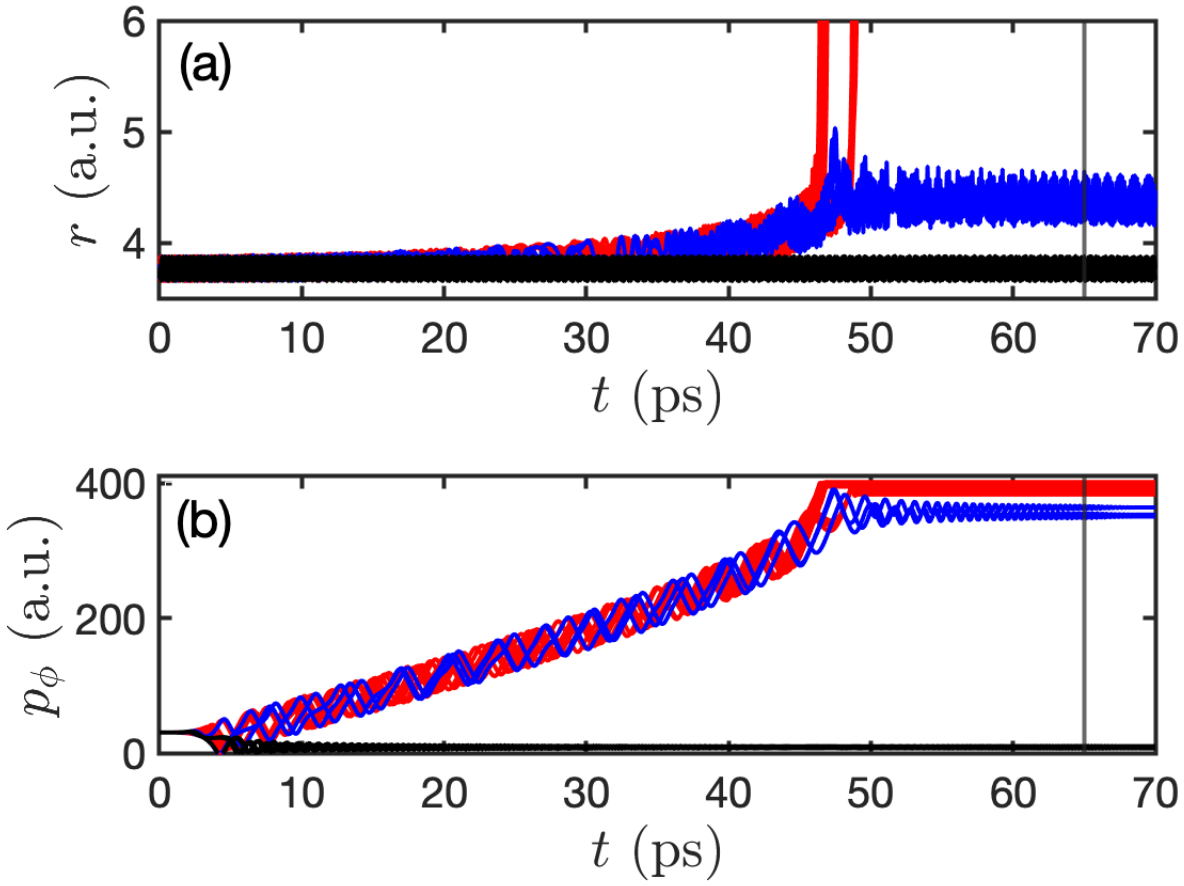

图 6. 对于 $F_0 = 0.015$ 原子单位和 $\beta = 3 \times 10^{-10}$ 原子单位，哈密顿量 (6) 的典型轨迹。上图显示 $r(t)$，下图显示 $p_\phi(t)$，共 20 条轨迹。脉冲参数为 $t_\mathrm{u} = t_\mathrm{d} = 5$ 皮秒和 $t_\mathrm{p} = 60$ 皮秒。脉冲结束时，蓝色和黑色轨迹仍处于束缚状态，而红色轨迹则正在解离。竖线表示激光脉冲平台段的结束位置。

将解离结果归因于下降沿。然而，下降沿并非造成这一结果的原因。我们在图 6 中计算了平台段长度为 $t_\mathrm{p} = 60$ 皮秒时的典型轨迹。对于更长的脉冲持续时间，我们发现仍然存在三种类型的轨迹，而且解离发生的时间仍大致相同，约在 45 到 50 皮秒之间，因此不再发生于下降沿期间。

关于典型轨迹的所有这些观察结果引出了两个主要问题：是什么导致某些轨迹的角动量线性增长，而另一些轨迹却不会？是什么导致 L 型轨迹发生解离或不发生解离？为了回答这些问题，我们研究了

利用约化模型描述的超转子的非线性动力学。这项研究将帮助我们更好地理解激光的各种参数在超转子动力学中的作用。

III. 超转子的非线性动力学与解离

A. 超转子的角向哈密顿量模型

首先，我们关注区分 L 型轨迹与 C 型轨迹的动力学机制。对于 C 型轨迹，我们注意到距离 r 始终接近势能面的极小值位置 $r_{\mathrm{e}} \approx 3.7560$ 原子单位。。上升沿结束后，L 型轨迹的角动量呈线性增长。然而，在这段线性增长阶段，两个原子之间的距离 r 变化并不显著，也同样保持在势能面的极小值附近，即 $r \approx r_{\mathrm{e}}$。

至少在脉冲的初始阶段，冻结径向自由度是一种很好的近似。哈密顿量 (6) 可简化为以下角向哈密顿量

$$\mathcal{H}_{2D,\mathrm{red}} = \frac{p_\phi^2}{2\mu r^2} - \Omega(t)p_\phi - \frac{F_0^2}{4}\Delta\alpha(r)\cos^2\phi, \tag{11}$$

由于 r 为常数，该系统具有一个半自由度。为分析其动力学，我们进行如下含时正则坐标变换:

$$\widetilde{\phi} = \phi, \tag{12a}$$

$$\widetilde{p}_\phi = p_\phi - \mu r^2\Omega(t) = p_\phi - \mu r^2\beta t. \tag{12b}$$

通过这种方式，哈密顿量（11）中的显式时间依赖性被消除，哈密顿量变为

$$\widetilde{\mathcal{H}}_{2D,\mathrm{red}} = \frac{\widetilde{p}_\phi^2}{2\mu r^2} - \frac{F_0^2}{4}\Delta\alpha(r)\cos^2\widetilde{\phi} + \mu r^2\dot{\Omega}(t)\widetilde{\phi}. \tag{13}$$

~ ˙哈密顿量 $\mathcal{H}_{2D,\ \mathrm{red}}$ 由于 $\Omega(t) = \beta$，与时间无关，因此它是可积的，因为它只有一个自由度。因此，哈密顿量（11）也是可积的，因为以下量是一个守恒量

$$C(\phi, p_\phi, t) = \frac{(p_\phi - \mu r^2\beta t)^2}{2\mu r^2} - \frac{F_0^2}{4}\Delta\alpha(r)\cos^2\phi + \mu r^2\beta\phi.$$

为了分析哈密顿量（13）的动力学，我们使用哈密顿量（11）的无量纲形式。实际上，我们分别将无量纲时间和动量定义为 $\tau = t\sqrt{\beta}$ 和$p = \widetilde{p}_\phi/\mu r^2\sqrt{\beta}$，于是哈密顿量（13）变为

$$H(x,p) = \frac{p^2}{2} + x - \eta^{-1}\cos^2 x, \tag{14}$$

其中 $\eta = 4\mu r^2\beta/(F_0^2\Delta\alpha(r))$，能量以 $\mu r^2\beta$ 为单位测量。这里， x 可以取任意值，而不仅限于 $-\pi$ 与 π 之间的值。从缩放变量到原始变量的变量变换为

$$p_\phi = \mu r^2\sqrt{\beta}p + \mu r^2\beta t, \tag{15a}$$

$$\phi = x, \tag{15b}$$

对于哈密顿量 (14)，演化参数 $\tau = t\sqrt{\beta}$ 是无量纲的。

这个非常简单的单自由度哈密顿量决定分子是否会进入分子超转子态，即 p_ϕ 是否会随时间线性增长。角动量显著增加的可能性取决于一个参数，即 $\eta = 4\mu r^2\beta/(F_0^2\Delta\alpha(r))$。对于 $r = r_\mathrm{e}$，图 7(a) 展示了 η 随 F_0 变化的情况。根据图 7(b) 中展示的 η 随 r 的变化情况（对应 $F_0 = 0.01$ 原子单位和 $F_0 = 0.03$ 原子单位），我们推断，在 $r = r_\mathrm{e}$ 附近改变 r 时， η 仅有轻微变化。哈密顿量 (14) 对应的运动方程为

$$\dot{x} = p, \tag{16a}$$

$$\dot{p} = -1 - \eta^{-1}\sin 2x. \tag{16b}$$

由运动方程 (16a)-(16b) 可推知，对于所有的 $\eta \leq 1$ ，存在无穷多个平衡点，由 $p^* = 0$ 和 x^* 给出，使得

$$\sin 2x^* = -\eta. \tag{17}$$

更明确地说，平衡点 (17) 位于 $x_\mathrm{s}(k) = -(\sin^{-1}\eta)/2 \pm k\pi$ ，其中稳定平衡点为 $x_\mathrm{u}(k) = (\sin^{-1}\eta)/2 \pm (k+1/2)\pi$，其中 $k \in \mathbb{Z}$。对于恒定的径向距离 r，当电场振幅足够大时，平衡点 (17) 才会存在，即 $F_0^2 \geq 4\mu r^2\beta/\Delta\alpha(r)$。特别是，对于 $r = r_\mathrm{e}$，当 $F_0 \gtrsim 0.0057$ a.u. 时，这些平衡点存在。稳定不动点与文献中所称的“安静”轨迹有关

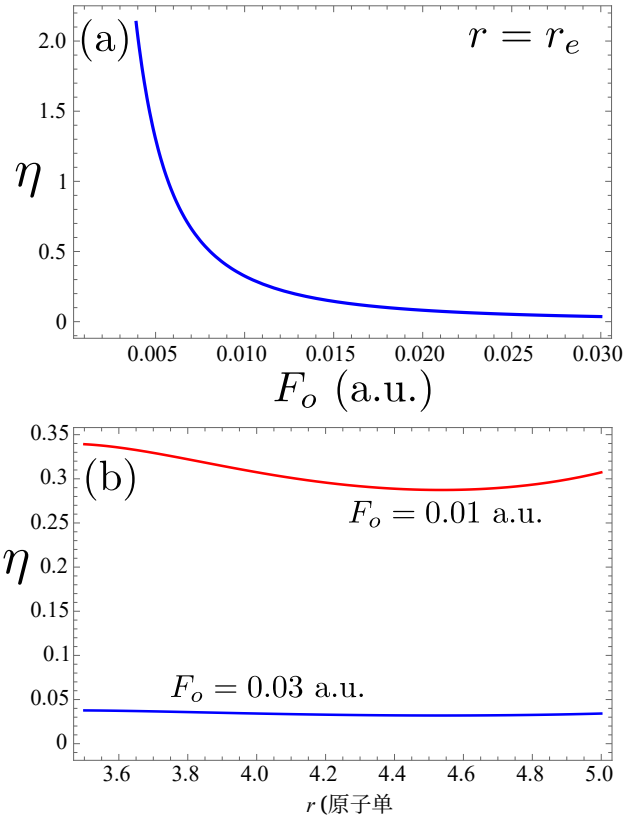

图7. (a) 平衡距离$r = r_e$处， $\eta = 4\mu r^2\beta/(F_0^2\Delta\alpha(r))$随 F_0 变化的数值。(b) 对于 $F_0 = 0.01$ 原子单位和 $F_0 = 0.03$ 原子单位， η 随 r 变化的数值。对于两个面板：$\beta = 3 \times 10^{-10}$ 原子单位。

Ref. [12]。原坐标系中的这条静轨道，其动量 p_ϕ 将线性增加。不过，我们注意到，这条静轨道，或者更准确地说，这些静轨道，并不位于 $\phi = 0$ ，而是略微偏移了 $-(\sin^{-1}\eta)/2$。换言之，随着分子的角动量线性增加，分子并未与电场严格对齐。正如预期的那样，电场振幅越大，分子就越趋于对齐（因为在这种情况下， η 趋于零）。这些静轨道的显式表达式为：

$$p_\phi(t) = \mu r^2 \beta t,$$
$$\phi(t) = -\frac{1}{2}\sin^{-1}\left(\frac{4\mu r^2\beta}{F_0^2\Delta\alpha(r)}\right) \pm k\pi.$$

图 8 和图 9 所示的哈密顿量 (14) 的相图展示了一系列势阱，其中 p 的值随着时间推移始终保持束缚。这些势阱的中心对应于静轨道。在中心附近，运动呈谐—

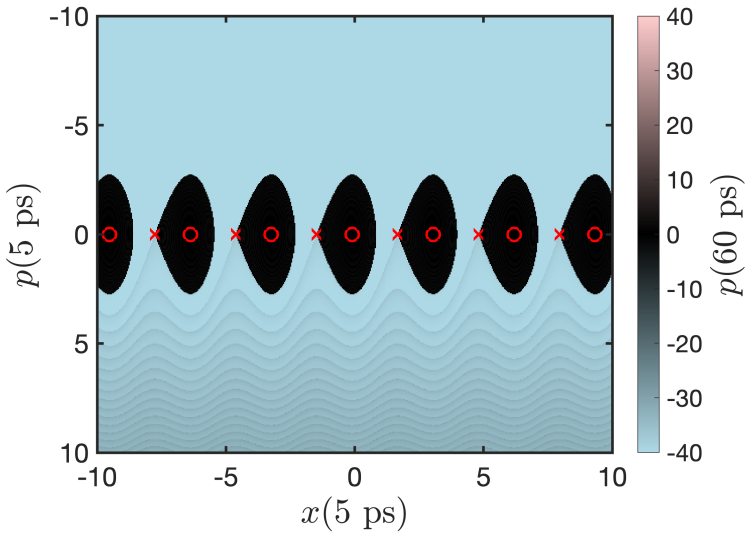

图 8. 在平台段开始时，对于哈密顿量 (14)，当 $F_0 = 0.013$ 原子单位、 $\beta = 3 \times 10^{-10}$ 原子单位以及$r = r_e$时， $t = 60$ 皮秒处的动量 p 随初始条件 (x, p) 的变化。红色标记表示部分稳定（○）和不稳定（×）不动点的位置。

—运动，频率为 $(1 - \eta^2)/(2\eta)$。由于 η 较小，该频率近似为$1/(2\eta)$，这意味着，随着电场振幅增大，绕偏振轴的运动频率也随之升高（并且随着 F_0^2增大）。这就是图 4 和图 10 中观察到的振荡频率。

这些势阱的大小取决于 η。考察对应于某个不稳定平衡点的等能曲线，可以证明这些势阱在动量方向上的范围为

$$\Delta p = 2\sqrt{2}\left[\frac{(1-\eta^2)^{1/2}}{\eta} - \sin^{-1}\left((1-\eta^2)^{1/2}\right)\right]^{1/2}.$$

随着 η 增大（或等价地，随着 F_0 减小），这些势阱的大小会缩小，因为 Δp是 η的单调递减函数。当 $\eta = 1$时，会发生鞍结分岔，而范围 Δp 会在 η 趋近于 1 时按 $(2(1-\eta))^{3/2}/3$ 趋于零。当 η 趋于零时，范围 Δp 按 $2\sqrt{2}/\eta$发散。需要指出的是， Δp 是 L型轨迹取值范围的跨度，因此与这些超旋转态的角动量分辨率相关。对于图 4 和图 6 的参数（其中 $\eta \approx 0.14$），角动量范围约为 $\Delta p_\phi \approx 57$原子单位。为了提高

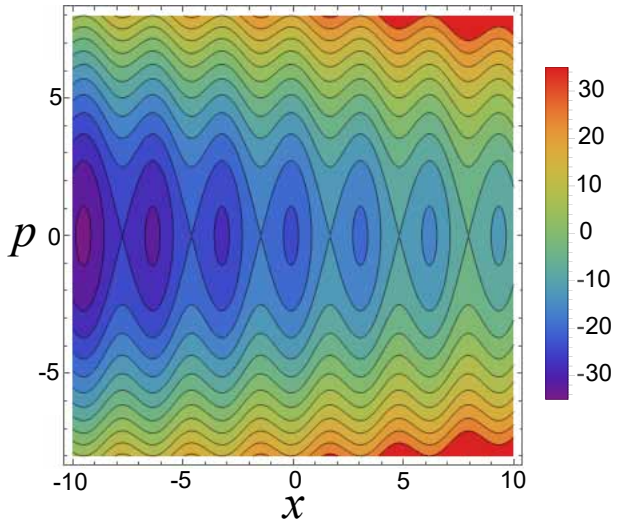

图 9. $F_0 = 0.013$ 原子单位、 $\beta = 3 \times 10^{-10}$ 原子单位且$r = r_e$时，哈密顿量 (14) 的相空间图。

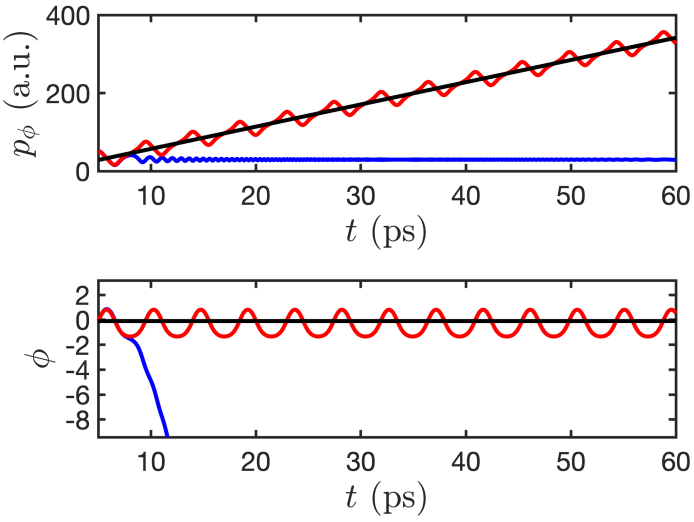

图 10. $F_0 = 0.013$ 原子单位、 $\beta = 3 \times 10^{-10}$ 原子单位且$r = r_e$时，哈密顿量 (13) 的样本轨迹。蓝色曲线对应 (x， p) =(x_s(0) 2。8)，红色曲线对应 (x， p) =(x_s(0) 2。7)，黑色曲线对应 (x， p) =(x_s(0)，0)。

角动量分辨率，即减小 Δp，需要增大参数 $\eta = 4\mu r^2\beta/(F_0^2\Delta\alpha(r))$，使其更接近 1，例如通过增大 β。

正如我们在图8和图9中所观察到的，哈密顿量（14）的相空间由有界运动和无界运动区域构成。有界（振动）相轨道围绕

稳定不动点展开，而无界（旋转）轨道则位于两条相邻分离曲线之间。事实上，如果给定的初始状态（$x,\ p$）对应于稳定不动点周围的一条振动相轨迹，那么变量替换（15a）显然表明，p_ϕ 将随时间线性增加，因此分子将获得超转子态，并且有可能最终解离。反之，如果初始状态对应于一条旋转相轨迹，那么由于 p 随时间增加，动力学最终将由哈密顿量（14）中的最后一项主导。因此，对于足够大的时间值，由运动方程（16b）可知

$$p \approx -\tau + \mathrm{cte} = -\sqrt{\beta}t + \mathrm{cte}.$$

因此，由方程 (15a)-(12b) 可直接得出，p_ϕ 将随时间近似保持不变，因此不可能发生解离。

角模型的相空间图像很好地描述了分子可能或不可能进入超转子状态的机制，也就是说，解释了为何在脉冲初期 L型轨迹与 C 型轨迹之间存在明显区别。事实上，轨迹的命运似乎在平台段开始时就基本已定：如果某条轨迹的初始条件 ($\phi,\ p_\phi$) 对应于某个势阱内的状态，那么该轨迹就是 L 型，因为其角动量将线性增加至极大值。反之，如果初始条件 ($\phi,\ p_\phi$) 对应于某个势阱外的状态，那么该轨迹就是 C 型，因为分子的角动量将大致保持不变，且不会发生解离（另见参考文献 [12]）。然而，角模型并未给出证据来解释为何某些 L 型轨道会解离，而另一些则不会。

在脉冲结束时，图11展示了L型轨迹的 p_ϕ 取值的概率分布函数（概率分布函数）（另见文献 [12]的图2）。我们注意到，解离轨迹与非解离轨迹之间存在明显区分；正如预期，解离轨迹在脉冲结束时具有更大的角动量。我们或许会认为，这是由于角动量持续增加的平台段持续时间所致；这可以解释为何某些轨迹没有足够时间达到发生解离所需的临界值。然而，随着平台段持续时间的增加，这些轨迹仍然保持非解离状态，从而排除了这一可能的解释（见图6）。

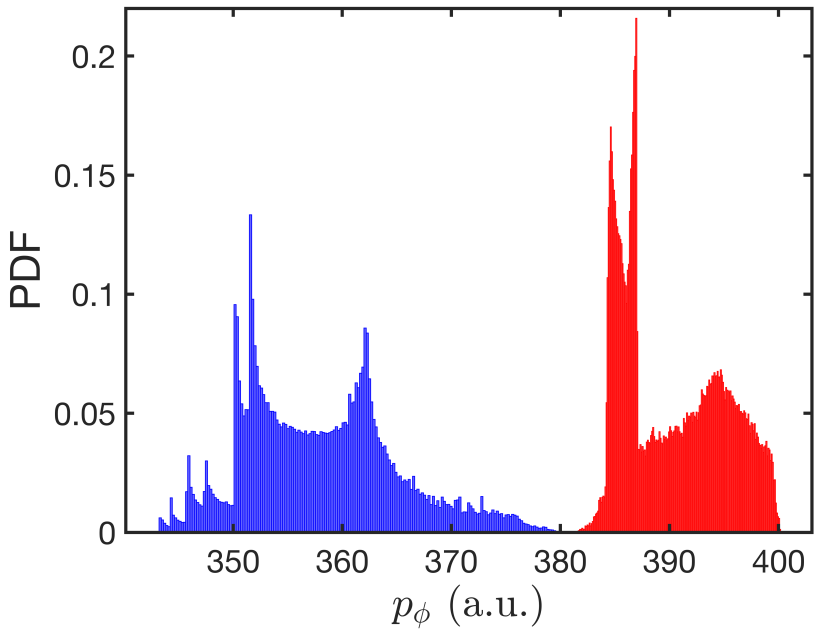

图 11. L型轨迹中p_ϕ 取值的概率分布函数（PDF）。直方图的蓝色部分对应非解离轨迹；红色部分对应解离轨迹。参数为 $\beta = 3 \times 10^{-10}$ 原子单位和 $F_0 = 0.013$ 原子单位。平台段持续时间为160皮秒。这些概率分布函数基于 10^6 条轨迹的样本计算得到。在该样本中，共有482278条L型非解离轨迹和169731条L型解离轨迹。

B. 解离的零速度面

如第III A节所述，角模型很好地描述了超转子L型态是如何形成的。然而，该模型无法解释为何一些L型轨迹发生解离，而另一些则不会。为探讨解离机制，我们首先回到图4(b) [另见图6(b)]，，其中展示了角动量p_ϕ 的时间演化。特别是，我们观察到L型轨道达到较大的 p_ϕ值，并且有趣的是，这些角动量在 $t \gtrsim 50$ 皮秒内几乎保持恒定。我们还从图4(b)和6(b)中观察到，在所有情况下，最终发生解离的L型轨道的 p_ϕ 值均大于保持束缚的那些L型轨迹的 p_ϕ 值。这一事实在图11的 p_ϕ 直方图中得到了清晰展示。

在 $t \gtrsim 50$ 皮秒内达到的常数 p_ϕ 值表明，第 III A 节中的角模型

不再适用，因此必须考虑径向动力学。不过，常数 p_ϕ 值也表明，在 $t \gtrsim 50$ 皮秒内， ϕ 角大致可视为循环变量，因此电场对动力学的影响可以忽略。在此假设下， $t \gtrsim 50$ 皮秒内的动力学将由以下哈密顿量支配

$$\mathcal{H}_{2\mathrm{D}} \approx \frac{1}{2\mu}\left(p_r^2 + \frac{p_\phi^2}{r^2}\right) + \varepsilon(r) - \Omega(t)p_\phi. \tag{18}$$

换言之，在 $t \gtrsim 50$ 皮秒内，动力学主要由激光场施加的离心力主导。根据式（18），在 $t \gtrsim 50$ 皮秒内，任意 L 型轨迹的角动量值几乎保持不变。因此，如果某一 L 型轨道在 $t \approx 50$ 皮秒时的角动量大于临界值 $p_\phi^* \approx 394.85$ 原子单位，该轨道就会解离。反之，如果其角动量在 $t \approx 50$ 皮秒时小于 p_ϕ^*，分子就会保持束缚，因为无论脉冲持续时间多长，相应轨迹的 p_ϕ 值都将保持不变，因而低于临界值 p_ϕ^*。为进一步检验从大约 $t \gtrsim 50$ 皮秒开始，哈密顿量（18）是否能够较好地描述动力学，我们采用与哈密顿量（6）相关的零速度面。零速度面对应的势定义为

$$U(r,\phi,t) = \mathcal{H}_{2\mathrm{D}} - \frac{1}{2}\mu\,(\dot{x}^2+\dot{y}^2) = -\frac{1}{2}\mu\,\Omega(t)^2\,r^2 + \varepsilon(r) - \frac{F_0^2}{4}f(t)^2[\Delta\alpha(r)\cos^2\phi + \alpha_\perp(r)]. \tag{19}$$

众所周知，哈密顿流的平衡点是有效势 $U(r,\phi,t)$ 的临界点。对于给定的场值 F_0，我们在不同时刻对有效势 $U(r,\phi,t)$ 进行频闪绘图。例如，图 12 展示了 $F_0 = 0.015$ 原子单位下，以及在 t =25、35、45 和 55 皮秒时， $U(r,\phi,t)$ 等高线图的典型频闪演化。脉冲参数为 $t_u = t_d = 5$ 皮秒和 $t_p = 50$ 皮秒。在 $t = 25$ 皮秒时，我们从图 12(a) 中观察到， $U(r,\phi,t)$ 在 $\phi = 0$, π 和 $r \approx 3.8230$ 原子单位处有两个等价的极小值。围绕这两个极小值的势阱由一条分界轨道隔开，该轨道经过位于 $\phi = \pi/2$, $3\pi/2$ 和 $r \approx 3.8230$ 原子单位处的两个鞍点。在较大的数值 $r \approx 5.8990$ 原子单位下，以及在 $\phi = \pi/2$, $3\pi/2$ 时，存在两个等价的极大值，它们由一条分界轨道隔开，该轨道经过位于 $\phi = 0$, π 和 $r \approx 5.8990$ 原子单位处的两个鞍点。在 $t = 35$ 皮秒时，我们从图 12(b) 中观察到，两个极大值向极小值靠近，而后者几乎保持在原来的位置。在 $t = 45$ 皮秒时，极大值区域和极小值区域彼此非常接近（见图 12(c)），因此在 $t \approx 47$ 皮秒时，极小值和鞍点

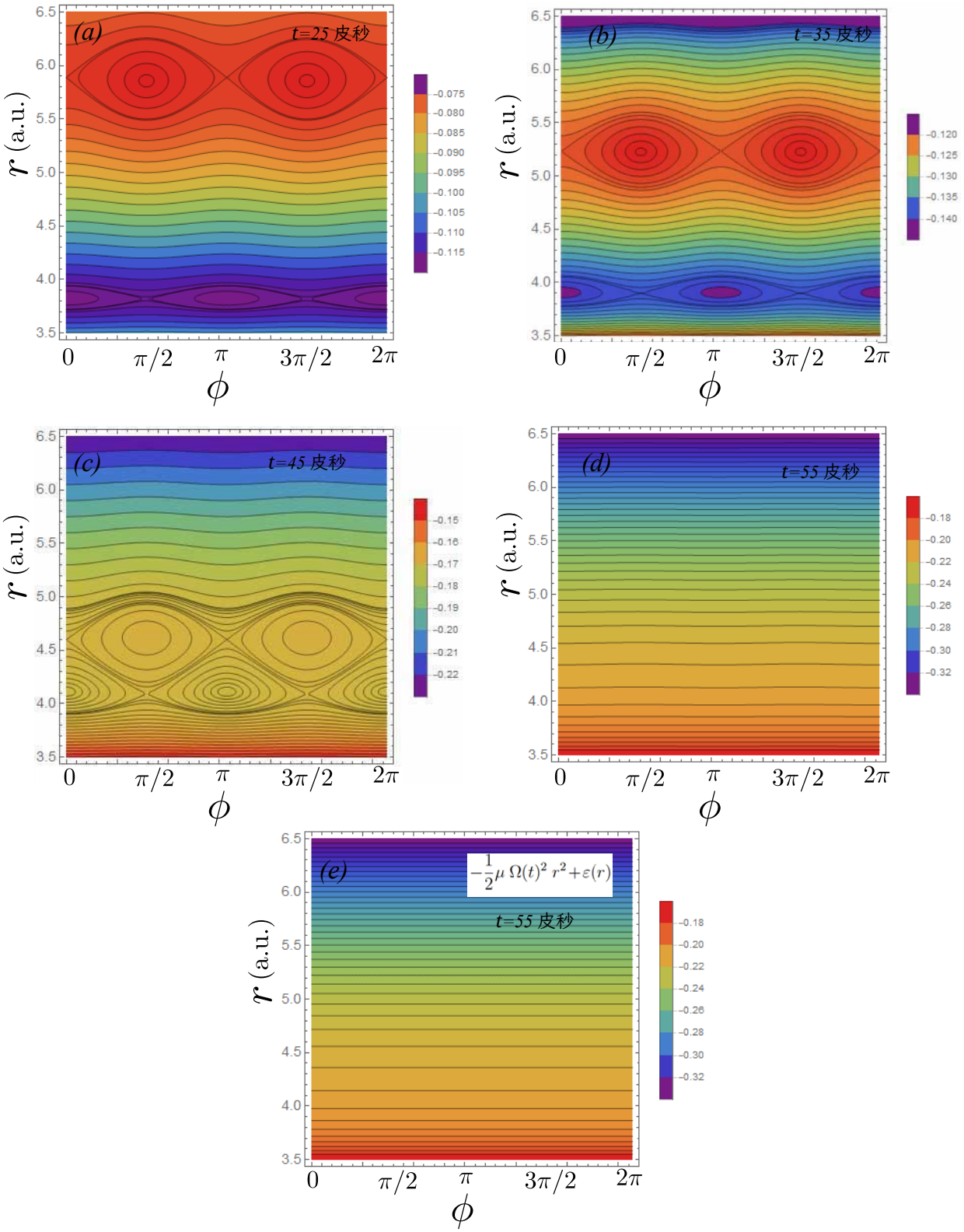

图 12。（a）至（d）：有效势（19）的等高线图（单位为原子单位）。（e）：哈密顿量（18）的有效势等高线图。参数为$\beta = 3 \times 10^{-10}$ 原子单位、 $F_0 = 0.015$ 原子单位、 $t_{\mathrm{u}} = t_{\mathrm{d}} = 5$ 皮秒和 $t_{\mathrm{p}} = 55$ 皮秒。

位于 $\phi = 0,\ \pi$ 的点与位于 $\phi = \pi/2,\ 3\pi/2$ 的极大值和鞍点相碰撞。对于 $t \gtrsim 47$ 皮秒，有效势 $U(r, \phi, t)$ 不存在临界点（见图 12(d) 中的 $t = 55$ 皮秒）。由于时间越长，旋转频率 $\Omega(t)$ 越大，图 12 所示的 $U(r, \phi, t)$ 的时间演化表明，对于 $t \gtrsim 47$ 皮秒，动力学主要由哈密顿量 (6) 中的旋转项 $\Omega(t)p_\phi$ 支配。此外，图 12(d) 中的等高线图与哈密顿量 (18) 的有效势等高线图没有显著差异，后者简单地等于 $\varepsilon(r) - \mu\Omega(t)^2 r^2/2$（见图 12(e)）。

表达　　式给出的分岔发生时间近似值为

$$t_\mathrm{b} = \frac{1}{\beta}\left(\frac{\gamma D_\mathrm{e}}{2\mu\left(r_\mathrm{e} + \frac{\log 2}{\gamma}\right)}\right)^{1/2}. \tag{20}$$

该近似通过考察 $\varepsilon(r) - \mu\Omega(t)^2 r^2/2$ 具有局部极值的条件获得，因为方程（19）中与 F_0^2 成正比的贡献很小。这些极值的时间和位置由条件 $\beta^2 t^2 = \varepsilon'(r)/(\mu r)$联系起来。通过研究函数 $\varepsilon'(r)/r$ 的行为，我们将其最大值的位置近似为 $r \approx r_\mathrm{e} + \log 2/\gamma$。综合这些因素，我们得到条件（20）。对于所选参数，我们有 $t_\mathrm{b} \approx 47.5$ 皮秒。对于 $t \geq t_\mathrm{b}$，势阱 U 不再存在最小值，因此运动可能变得无界，具体取决于该特定时刻的角动量值。

结论

本文研究了光学离心机中的双原子分子获得可能导致解离的超旋转态的机制和条件。为开展这项研究，我们以氯分子 Cl_2 为例。除了分子势能曲线之外，我们的哈密顿量模型还包括准确的径向函数，用于描述分子极化率的平行分量和垂直分量；光学离心机的激光场正是通过这些分量与分子发生相互作用的。

我们研究了超旋转态产生并可能导致分子解离的机制及其条件，考察了它们与激光参数的关系，即激光振幅、激光脉冲持续时间以及

偏振轴转动的加速度。角自由度决定了 L 型超转子轨迹的形成。L 型势态存在的条件为 $4\mu r_{\mathrm{e}}^{2}\beta/(F_{0}^{2}\Delta\alpha(r_{\mathrm{e}}))\leq 1$。在此条件下，稳定平衡点可确保分子轴在特定初始条件（位于势阱内）下与偏振轴准定向，从而使角动量线性增加。径向自由度主要决定解离动力学：零速度面的局部极小值和极大值确保原子间距 r 保持束缚，直到这些极值相遇，此后 r 可能不再有界。我们估算，临界时间 t_{b} 由式（20）给出。非线性动力学分析提供了一种方法，可通过调整激光场参数来控制激光脉冲结束时的不同状态。例如，为了抑制解离并使所有 L 型轨迹保持有界，脉冲持续时间必须短于 t_{b}，即

$$t_{\mathrm{u}}+t_{\mathrm{p}}+t_{\mathrm{d}}\leq t_{\mathrm{b}}.$$

致谢

JPS感谢西班牙项目编号MTM2017-88137-C2-2-P（西班牙经济与竞争力部）的经费支持，并感谢他在艾克斯-马赛大学逗留期间弗涅尔研究所提供的热情接待。

作者贡献

C. Chandre：概念化（同等）；形式分析（同等）；经费获取（同等）；研究（同等）；方法学（同等）；软件（同等）；撰写——初稿（同等）。**J.P. Salas**：概念化（同等）；形式分析（同等）；经费获取（同等）；研究（同等）；方法学（同等）；软件（同等）；撰写——初稿（同等）。

数据可用性

由于本研究未生成或分析任何新数据，因此本文不适用数据共享。

---

[1] W. Becker 和 H. Rottke, 《当代物理学》**49**, 199 (2008).[2] W. Becker、X. Liu、P. J. Ho 和 J. H. Eberly, 《现代物理评论》**84**, 1011 (2012).[3] Y. Ohshima 和 H. Hasegawa, 《国际物理化学评论》**29**, 619 (2010).[4] I. MacPhail-Bartley、W. W. Wasserman、A. A. Milner 和 V. Milner, 《科学仪器评论》**91**, 045122 (2020).[5] J. J. Larsen、K. Hald、N. Bjerre、H. Stapelfeldt 和 T. Seideman, 《物理评论快报》**85**, 2470 (2000).[6] E. P´eronne、M. D. Poulsen、C. Z. Bisgaard、H. Stapelfeldt 和 T. Seideman, 《物理评论快报》**91**, 043003 (2003).[7] H. Stapelfeldt 和 T. Seideman, 《现代物理评论》**75**, 543 (2003).[8] M. D. Poulsen、E. P´eronne、H. Stapelfeldt、C. Z. Bisgaard、S. S. Viftrup、E. Hamilton 和 T. Seideman, 《化学物理学杂志》**121**, 783 (2004).[9] D. Daems、S. Gu´erin、E. Hertz、H. R. Jauslin、B. Lavorel 和 O. Faucher, 《物理评论快报》**95**, 063005 (2005).[10] E. Hertz、D. Daems、S. Gu´erin、H. R. Jauslin、B. Lavorel 和 O. Faucher, 《物理评论A》**76**, 043423 (2007).[11] X.Xie、S. Roither、M. Sch¨offler、E. L¨otstedt、D. Kartashov、L. Zhang、G. G. Paulus、A. Iwasaki、A. Baltuˇska、K. Yamanouchi 和 M. Kitzler, 《物理评论X》**4**, 021005 (2014).[12] J. Karczmarek、J. Wright、P. Corkum 和 M. Ivanov, 《物理评论快报》**82**, 3420 (1999).[13] D. M. Villeneuve、S. A. Aseyev、P. Dietrich、M. Spanner、M. Y. Ivanov 和 P. B. Corkum, 《物理评论快报》**85**, 542 (2000).[14] M. Spanner 和 M. Y. Ivanov, 《化学物理学杂志》**114**, 3456 (2001).[15] M. Spanner、K. M. Davitt 和 M. Y. Ivanov, 《化学物理学杂志》**115**, 8403 (2001).

[16] R. Hasbani、B. Ostoji´c、P. R. Bunker 和 M. Y. Ivanov, 《化学物理学杂志》116, 10636 (2002).[17] L. Yuan、C. Toro、M. Bell 和 A. S. Mullin, 《法拉第讨论》150, 101 (2011).[18] A. Korobenko、A. A. Milner、J. W. Hepburn 和 V. Milner, 《物理化学化学物理》16, 4071 (2014).[19] A. A. Milner、A. Korobenko、J. W. Hepburn 和 V. Milner, 《化学物理学杂志》147, 124202 (2017).[20] C. Toro、Q. Liu、G. O. Echebiri 和 A. S. Mullin, 《分子物理学》111, 1892 (2013).[21] A. Korobenko、A. A. Milner 和 V. Milner, 《物理评论快报》112, 113004 (2014).[22] A. A. Milner、A. Korobenko、J. W. Hepburn 和 V. Milner, 《物理评论快报》113, 043005 (2014).[23] M. J. Murray、H. M. Ogden 和 A. S. Mullin, 《化学物理学杂志》148, 084310 (2018).[24] A. Korobenko、J. W. Hepburn 和 V. Milner, 《物理化学化学物理》17, 951 (2015).[25] A. Milner、A. Korobenko、K. Rezaiezadeh 和 V. Milner, 《物理评论X》5, 031041 (2015).[26] A. Korobenko 和 V. Milner, 《物理评论快报》116, 183001 (2016).[27] A. Korobenko 和 V. Milner, 《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》48, 164004 (2015).[28] A. Milner、A. Korobenko 和 V. Milner, 《物理评论快报》118, 243201 (2017).[29] A. Milner、A. Korobenko、J. Floß、I. S. Averbukh 和 V. Milner, 《物理评论快报》115, 033005 (2015).[30] O. Faucher、E. Prost、E. Hertz、F. Billard、B. Lavorel、A. A. Milner、V. A. Milner、J. Zyss 和 I. S. Averbukh, 《物理评论A》94, 051402 (2016).[31] J. Floß、C. Boulet、J.-M. Hartmann、A. A. Milner 和 V. Milner, 《物理评论A》98, 043401 (2018).[32] C. Chandre、J. Mahecha 和 J. P. Salas, 《物理评论A》95, 033424 (2017).[33] C. Chandre 和 J. P. Salas, 《物理评论A》99, 023402 (2019).[34] C. M. Dion、A. Keller、O. Atabek 和 A. D. Bandrauk, 《物理评论A》59, 1382 (1999).[35] S.Trippel、T.Mullins、N.L. M.M¨uller、J.S. Kienitz、J.J. Omiste、H.Stapelfeldt、R.Gonz´alez- F´erez 和 J. K¨upper, 《物理评论A》89, 051401 (2014).

[36] L. Hormain, M. Monnerville, C. Toubin, D. Duflot, B. Pouilly, S. Briquez, M. I. Bernal-Uruchurtu, and R. Hern´andez-Lamoneda, 《化学物理学杂志》 **142**, 144310 (2015年).[37] G. Maroulis, 《化学物理快报》 **199**, 244 (1992).[38] G. Maroulis, 《科学与工程计算方法杂志》 **4**, 235 (2004).[39] L. Silberstein, 《伦敦、爱丁堡和都柏林哲学杂志与科学杂志》 **33**, 521 (1917).[40] L. Jensen, P.-O. ˚Astrand, A. Osted, J. Kongsted, andK. V. Mikkelsen,《化学物理学杂志》**116**, 4001 (2002年).[41] S. Blanes and P. Moan, 《计算与应用数学杂志》 **142**, 313 (2002年).