arXiv:2304.06268v1 [physics.atom-ph] 13 Apr 2023

使用激光诱导电子隧穿光谱进行分子轨道成像

XuanYang Lai[1], RenPing Sun[1], ShaoGang Yu[1], YanLan Wang[1], Wei Quan[1], Andr´e Staudte[2],* 和 XiaoJun Liu[1]†

[1] *State Key Laboratory of Magnetic Resonance and Atomic and Molecular Physics, Wuhan Institute of Physics and Mathematics, Innovation Academy for Precision Measurement Science and Technology, Chinese Academy of Sciences, Wuhan 430071, China*[2] *Joint Attosecond Science Laboratory, National Research Council and University of Ottawa, Ottawa, Ontario K1A 0R6, Canada*（日期：2023年4月14日）

强激光场中的光电子能谱已被证明是深入了解分子结构的有力工具。然而，电离分子轨道尚未从光电子能谱中重构出来，主要是因为其相位信息很难提取。在本工作中，我们提出了一种利用激光诱导电子隧穿光谱提取电离分子轨道相位信息的方法。通过分析光电子能谱中的干涉图样，可以提取分子轨道中组成原子轨道的加权系数和相对相位。利用这些信息，我们重构了N_2的最高占据分子轨道。我们的工作为利用光电子能谱对分子轨道进行成像提供了一种可靠且通用的方法。

PACS 编号:

分子轨道理论旨在描述分子的电子结构 [1] ，并已在解释分子的化学和物理性质方面取得巨大成功。过去几十年来，人们在开发分子轨道实空间成像方法方面取得了长足进展，例如扫描隧道显微镜 [2, 3], ；同时，也发展了利用光电子能谱学在倒易空间进行成像的方法 [4–6]。高重复频率强飞秒激光器和单电子成像技术的进步，使一种替代成像方案成为可能 [7–12], ，该方案能够以亚飞秒分辨率追踪分子轨道的演化。在这一方案中，我们将其称为激光诱导电子隧穿光谱（LETS）：分子的最外层电子可通过隧穿穿过由分子势和激光电场形成的势垒而被电离 [13, 14]。电离后的电子携带分子轨道的信息，这些信息会体现在可观测的分子坐标系光电子角分布（PADs）中。利用这一方法，研究者已直接观测到 N_2 和 O_2 的最高占据分子轨道（ HOMO ）的对称性 [7]。通过将碎裂通道与光电子能谱相关联，这一方法还可扩展至分别成像多个有贡献的轨道 [15]。此外，光电子角分布中的各种周期内和周期间干涉图样如今已得到充分理解，并且可以彼此区分 [16], ，因而可用于重构电离轨道。最近，LETS 清晰展现了其成像价电子密度实时演化的内在能力 [8]。然而，迄今为止，尚未利用 LETS 重构分子轨道。主要原因在于，隧穿电离电子所携带的分子轨道波函数的相位信息在探测光电子振幅的过程中，波包会消失。

在本研究中，我们提出一种基于LETS的成像方法，通过提取组成原子轨道的加权系数和相对相位，完整重建分子轨道。根据分子轨道理论，分子轨道可以表示为原子轨道的线性组合（LCAO） [17, 18]。例如，对于分子N_2, ，其最高占据分子轨道可近似表示为 $2s$ 和 $2p$ 原子轨道的简单加权和。类似的方法也已用于更复杂的生物分子，例如DNA [19], ，采用的是正交化LCAO理论。在我们的成像方案中，不同组成原子轨道产生的隧穿电离电子波包

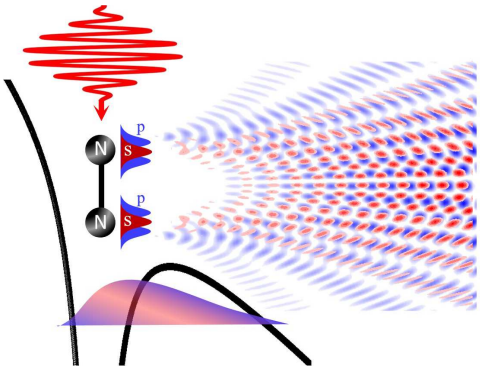


图 1：（在线彩色）LETS 示意图。分子最高占据分子轨道中的电子可通过隧穿穿过由分子势和激光电场形成的势垒而电离。根据 LCAO理论，N_2 的最高占据分子轨道可写为 $2s$ 和$2p$原子轨道的线性组合，每个原子轨道对应一个原子实。来自 $2s$ 和 $2p$ 原子轨道的隧穿电离电子波包相互干涉，从而导致光电子角分布发生调制。此外，来自不同原子实的电子波包还会呈现双中心干涉。

*电子邮箱：andre.staudte@nrc-cnrc.gc.ca
†电子邮箱：xjliu@wipm.ac.cn

在LCAO框架下相互干涉，导致光电子角分布出现如图1所示的调制。通过拟合光电子角分布中的干涉条纹，可以提取不同组成原子轨道的加权系数和相对相位，并根据LCAO理论，结合相应的原子轨道波函数，用于重建分子轨道。在此，我们通过实验和理论识别出光电子角分布中不同原子轨道的特征，并展示这些特征可用于以N_2为例重建分子轨道。

值得注意的是，我们的分子轨道成像方案不同于基于高次谐波产生（HHG）的断层轨道成像 [20–22]。断层成像方法需要测量高次谐波的振幅和相位 [20]。虽然 HHG 的振幅在实验中很容易测量，但相位则较难获取。实际中，高次谐波的相位信息是通过理论计算 [20] 或额外测量[22]获得的。相比之下，采用我们的成像方法，组成原子轨道之间的相对相位信息会体现在光电子角分布的干涉图样中，并可通过拟合干涉条纹提取。

实验采用冷靶反冲离子动量谱（COLTRIMS）[23, 24] 进行（装置详情请参阅我们之前的论文 [25–27]）。线偏振飞秒激光脉冲由钛宝石飞秒激光系统产生，重复频率为 5 kHz，脉冲持续时间约为 30 fs，中心波长为 800 nm。脉冲通过 β-BBO 晶体产生双色场，随后分成展宽的取向脉冲（800 nm，~80fs）和探测脉冲（400 nm，35 fs）。两束脉冲由轴上球面反射镜聚焦到 COLTRIMS 真空腔内的低温 N_2 分子超声速气体射流上。延迟一段时间后施加探测脉冲，使由预取向脉冲取向的分子电离。通过半波片 [28]旋转取向脉冲的偏振方向，可以实现分子相对于探测脉冲偏振方向的任意取向角。利用库仑爆炸法 [27, 29, 30] 根据离子的二维角分布估算，在 4.1 ps 的时间延迟下，取向度约为 0.79。我们测量产生的光电子与单电荷离子的符合三维动量。与电离脉冲相比，取向脉冲产生的电离背景较低（<0.5 %）。

图2(a)和(b)分别展示了测得的光电子角分布，其中分子 N_2 相对于激光偏振方向平行排列和垂直排列。对于大于 0.6 a.u. 的动量，光电子角分布呈现出调制，这是由众所周知的阈上电离 [14]所导致的周期间干涉图样造成的。这里，我们将重点关注

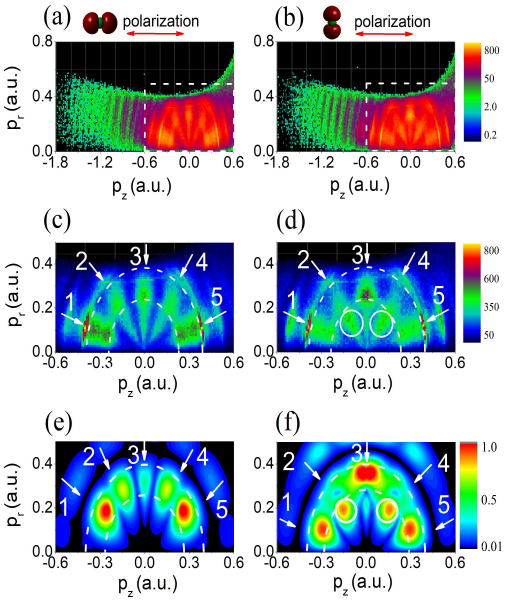


图 2：（在线彩色）(a) 和(b)分别为分子N_2 相对于激光偏振方向的平行排列和垂直排列的实验结果。上方示意图表示排列后的 N_2 的最高占据分子轨道以及激光偏振方向。 p_z 和 p_r （$p_r = \sqrt{p_x^2 + p_y^2}$）分别表示平行于和垂直于激光偏振轴的动量。带有 $p_r > 0.5$ a.u.的数据点因光谱仪磁场的影响而被移除。我们使用的激光强度为 $I = 2 \times 10^{14}$ W/cm^2 ，波长为 400 nm，处于隧穿电离区域。

(c)和(d)为(a)和(b)中矩形标记的低能区测得的光电子角分布的放大图。(e)和(f)为采用 M-CQSFA 理论模拟得到的光电子角分布。

低能量（$p < 0.6$ a.u.）、径向扇形图案，在图2(c)和(d)中放大显示。平行排列和垂直排列均有五条径向条纹。有趣的是，对于平行排列，每条条纹都在同一能量带达到最大值，如白色虚线半圆所示。相比之下，对于垂直排列，第二条和第四条条纹在更低能量处达到最大值。

为解释实验发现，我们对相应的光电子角分布进行建模。对于原子系统，我们发展了一种库仑修正的强场近似（SFA）理论，并将其命名为库仑量子轨道强场近似（CQSFA）理论 [31, 32], ，以再现光电子角分布中的扇形图样 [33, 34]。在此，我们扩展了此前的工作，发展出分子CQSFA（M-CQSFA），以帮助理解我们测量中依赖于取向的扇形结构。简而言之，M-CQSFA理论源自电子从分子的束缚态 $|\psi_0\rangle$ 跃迁到连续态 $|\psi_{\mathbf{p}}(t)\rangle$ 的精确跃迁振幅，其中漂移动量为p

[14]:

$$M(\mathbf{p}) = -i \lim_{t\to\infty} \int_{-\infty}^{t} dt' \, \langle \psi_{\mathbf{p}}(t)|U(t,t')H_I(t')|\psi_0(t')\rangle \tag{1}$$

其中， $H_I(t) = \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t)$表示激光场与电子的相互作用，而 $U(t,t')$是时间演化算符。在LCAO理论框架下，[17, 18], 初态 ψ_0 可写为各个原子核组成原子轨道的加权和。此外，通过采用费曼路径积分形式和鞍点近似，[31, 32], 跃迁振幅可写为：

$$\begin{aligned} M(\mathbf{p}) \propto & -i \lim_{t\to\infty} \sum_{s} \left\{ \det \left[\frac{\partial \mathbf{q}_s(t)}{\partial \mathbf{r}_s(t_{0,s})} \right] \right\}^{-1/2} e^{iS(\mathbf{q}_s,\mathbf{r}_s,t_{0,s},t))} \\ & \times \mathcal{C}(t_{0,s}) \sum_{a} \langle \mathbf{q}_s(t_{0,s}) + \mathbf{A}(t_{0,s}) \, |\mathbf{r}\cdot\mathbf{E}(t_{0,s})|\psi_a\rangle \\ & \times c_a \left[e^{i\mathbf{p}\cdot\mathbf{R}/2} + (-1)^{l_a} e^{-i\mathbf{p}\cdot\mathbf{R}/2} \right], \end{aligned} \tag{2}$$

其中，指标 a 表示不同的原子轨道，指标 s 表示不同的量子轨迹，其作用量为 $S(\mathbf{q}_s, \mathbf{r}_s, t_{0,s}, t)$，而 l_a 是原子轨道的轨道量子数。与原子的CQSFA理论 [31], 相比，这里多出一项： $e^{i\mathbf{p}\cdot\mathbf{R}/2} + (-1)^{l_a} e^{-i\mathbf{p}\cdot\mathbf{R}/2}$，对应于双中心干涉。实际上，分子轨道的系数通过量子化学代码 [35] 获得；我们只考虑N_2, 的最高占据分子轨道电离，因为其贡献通常远大于其他分子子轨道 [36]。此外，为了与实验数据比较，我们在模拟中考虑了激光场的焦点平均效应以及分子轴的取向程度。

图2(e)和(f)分别展示了平行排列和垂直排列下，M-CQSFA 模拟得到的 N_2 分子的光电子角分布。与实验结果一致，我们的模拟在平行排列和垂直排列下也都产生了五条径向条纹。此外，对于垂直排列，第二条和第四条径向条纹也向光电子角分布的低能带偏移 [（见图2(f)中的实心白圆）]。

接下来，我们用模拟来解释观测到的光电子角分布对排列方向的依赖性。图3展示了平行排列和垂直排列下，N_2 分子的最高占据分子轨道中 s 和 p 轨道产生的光电子角分布。我们发现，在图2(f)总光谱中显示的第二条和第四条径向条纹的低能偏移，在图3(b)或(d)中均不可见。这表明，径向条纹的低能偏移源于 s 和 p 轨道隧穿电流的干涉。

为进一步揭示径向条纹低能位移背后的物理机制，我们现在分析式（2）中s 和 p 轨道跃迁振幅之间的相对相位（详情请参阅补充材料）。通过比较与原子轨道相关的各项，我们发现，对于垂直排列，相对相位与

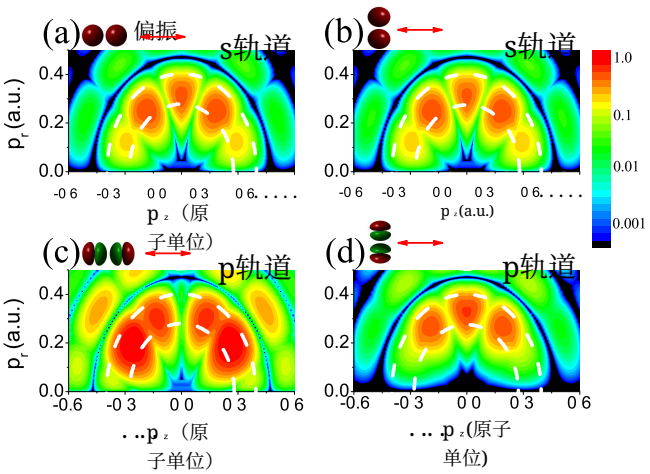


图3：M-CQSFA模拟的光电子角分布，分别来自N_2的最高占据分子轨道中的 s 轨道 [(a)和(b)]，以及 p 轨道 [(c)和(d)] 。左列：平行排列；右列：垂直排列。

LCAO理论中原子轨道的组合系数 c_a 密切相关。使用标准量子化学软件包 [35] 进行计算后发现， $2s$ 和 $2p$ 的组合系数符号相反，对应的相对相位为 π。因此，在总光谱中， s 和 p 轨道的贡献会发生相消干涉。

图3(b)和(d)显示，在两个白色虚线半圆之间， s 和 p轨道对应的第二和第四条径向条纹的振幅几乎相同。因此， π 的相对相位会导致总光电子角分布中相应区域出现显著的电离抑制。在第二和第四条径向条纹的低能部分， s 轨道的概率高于 p 轨道。因此，对来自 s轨道和p轨道的光电流振幅进行相干求和时，这两个径向极大值会移向较低能量。相比之下，对于第一、第三和第五条径向条纹， s 和 p 轨道的相关振幅差异显著，因而两者之间的干涉较弱。因此，这些径向条纹的极大值仍位于较高能量区域。

对于图 3(a) 和 (c) 中的平行排列，我们的分析表明，在 s 轨道的跃迁振幅中，存在一个与沿激光偏振方向的初始动量有关的附加项（更多详情请参阅补充材料）。根据鞍点方程 [14], ，沿激光偏振方向的初始光电子动量是纯虚数，因此 s 和 p 轨道的跃迁振幅之间的相对相位变为 $\pi/2$。在这种情况下，总谱近似等于图 3(a) 和 (c) 所示的 s 和 p 轨道贡献的直接求和。

接下来，我们将展示，由相消干涉导致的径向条纹特有的低能偏移，可提供一种基于 LETS 的成像方法，用于

在 LCAO 理论框架下重构分子轨道。根据 LCAO理论 [17, 18],分子轨道可以写成各原子核的组成原子轨道的加权和。对于氮原子，存在三个束缚原子轨道：$1s$、 $2s$ 和 $2p$。因此，N_2 的分子轨道通常可写为

$$\psi_0(\mathbf{r}) \approx \sum_{a=1s,2s,2p} |c_a| e^{i\theta_a} \left[\psi_a\left(\mathbf{r}+\mathbf{R}/2\right) + s_a \psi_a\left(\mathbf{r}-\mathbf{R}/2\right)\right], \tag{3}$$

其中， $|c_a|$ 是带有θ_a 相位的加权系数，而系数 s_a 与分子轨道的对称性有关。最近，我们提出并验证了一种断层成像方法，用于从测得的N_2 [27]的光电子动量谱中提取R的值。在本工作中，通过拟合光电子角分布中的干涉图样，提取出分子轨道的组合系数（$|c_a|$、 θ_a、 s_a），同时使用量子化学程序计算单个氮原子的波函数。

首先，需要从数据中获得系数 s_a。对于具有 g 对称性的分子轨道，系数 $s_a = (-1)^{l_a}$ ；而对于 u 对称性，系数 $s_a = (-1)^{l_a+1}$。如果分子轨道具有 u 对称性，两个原子核的 s 轨道电离时会产生一个双中心干涉项 $\sin(\mathbf{p}\cdot\mathbf{R}/2)$ [37]，，从而导致动量为 p ⊥ R 的光电子发生电离抑制。另一方面，对于沿分子轴的 p 轨道，由于其节点结构，动量为 p ⊥ R 的光电子电离也会受到抑制。因此，在总光电子角分布中，动量为 p ⊥R 的光电子的电离分布将消失。然而，我们在图 2(c) 和 (d) 中的测量显示，动量为 p ⊥ R 的光电子存在清晰的电离分布。这表明 N_2 的最高占据分子轨道应具有 g 对称性，因此，$s_a = (-1)^{l_a}$。

接下来，我们展示如何通过使用 M-CQSFA 理论拟合垂直排列的光电子角分布，从测量中提取不同原子轨道的加权系数$|c_a|$ 和相位 θ_a。通常，拟合多个系数的过程非常耗时。然而，根据 LCAO理论，组合系数是正或负实数，即相位 θ_a 为 0 或 π。这将大大简化我们的拟合过程。此外，由于$1s$ 原子轨道束缚很强，在本例中可以忽略其电离振幅。为简便起见，我们在计算中设定 $c_{1s} = 0$。因此，我们只考虑 $2s$ 和 $2p$ 原子轨道的线性组合，并在拟合过程中改变 $|c_{2s}|/|c_{2p}|$ 的比值及其相对相位。模拟结果表明，当相对相位为 π时，可以近似再现测量中第二和第四条径向条纹的低能偏移。为了得到$|c_{2s}|/|c_{2p}|$的最佳拟合比值，我们考察扇形图案中五条径向条纹的相对振幅。具体而言，我们计算第一条与第三条径向条纹之间的振幅比 $r_{1,3} = A_1/A_3$，以及第二条与第三条径向条纹之间的比值 $r_{2,3} = A_2/A_3$，其中

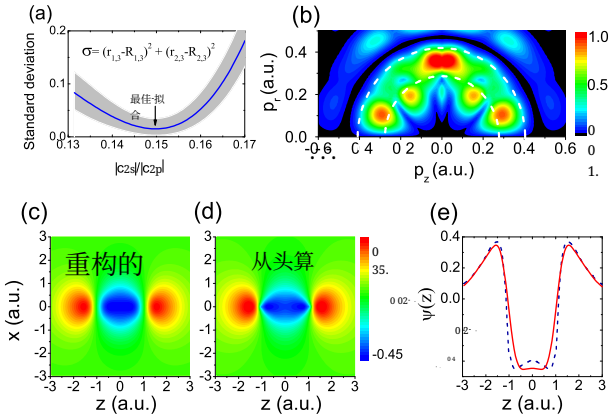


图4：（在线彩色）(a) 测量与模拟之间不同干涉条纹相对振幅的标准差随 $|c_{2s}|/|c_{2p}|$ 比值的变化。实验误差以实线周围的阴影区域表示。(b) 采用最佳拟合比值时垂直排列的 M-CQSFA 模拟光电子角分布。(c) 采用最佳拟合比值重构的 N_2 分子轨道波函数。(d) 通过 *ab initio* 计算得到的分子轨道形状。(e) 沿分子轴截取的重构波函数（实线）和从头算波函数（虚线）。

A_i (i = 1,2,和 3)表示不同径向条纹的积分电离振幅。通过将其与从测量分布中获得的相应比值 ($R_{1,3}$ 和 $R_{2,3}$) 进行比较，我们得到标准差： $\sigma = (r_{1,3} - R_{1,3})^2 + (r_{2,3} - R_{2,3})^2$。图4(a)展示了标准差随 $|c_{2s}|/|c_{2p}|$比值的变化。结果清楚表明，最佳拟合比值约为 0.1495。在图4(b)中，我们展示了采用最佳拟合比值时垂直排列的M-CQSFA模拟的光电子角分布，该结果与图2(d)中的测量结果以及图2(f)中的模拟结果吻合良好。

在图4(c)中，我们展示了根据公式（3）重构得到的 N_2 的最高占据分子轨道电子波函数，其最佳拟合比值为 0.1495， $2s$ 与 $2p$ 之间的相对相位为 π。可以看出，重构的波函数与图4(d)所示 N_2 的从头算轨道计算结果高度一致。两个原子核附近（$z = \pm R/2 \sim \pm 1$ 原子单位）的电子波函数存在细微差异[见图4(e)]，这是因为我们的拟合算法忽略了紧束缚的 $1s$ 原子轨道。通过高次谐波产生进行分子轨道层析时，也存在与 $1s$ 原子轨道相关的类似重构波函数差异[20]。

总之，我们提出并通过实验验证了一种基于激光诱导电子隧穿谱、在原子轨道线性组合框架下重构分子轨道的方法。以 N_2 分子为例，我们观察到，在垂直分子取向下，光电子角分布中出现了特定的干涉图样，并据此成功提取了 N_2 最高占据分子轨道中各组成原子轨道的加权系数和相对相位。

对于较大的分子，强场电离会使光电子角分布中出现更多相关的特殊特征（补充材料中有一例），这将有助于利用我们的成像方法准确重构更复杂的分子轨道。此外，若结合传统的泵浦-探测方案，便有望实时探测分子轨道的演变，并观察光化学反应过程中的电子重排。由此获得的组成原子轨道信息将有助于全面理解分子动力学。

本工作得到国家重点项-

国家重点研发计划（项目编号：2019YFA0307702）、国家自然科学基金（项目编号：11834015、11922413、12121004 和 12274420）、中国科学院战略性先导科技专项（项目编号：XDB21010400）、中国科学院基础研究青年科学家项目（项目编号：YSBR-055）、湖北省科学技术厅（项目编号：2020CFA029 和 2021CFA078）以及王宽诚教育基金会。

X.Y.L.、R.P.S. 和 S.G.Y. 对本研究贡献相同。

---

[1] L. Pauling, 《化学键的本质与分子和晶体的结构》（康奈尔大学出版社，伊萨卡，纽约，1960）。[2] F. Mohn、L. Gross、N. Moll 和 G. Meyer。单分子内部电荷分布的成像。 *Nature Nano.* **7** 227 2012 , ()。

[3] T. L. Cocker、D. Peller、P. Yu、J. Repp 和 R. Huber。通过飞秒轨道成像追踪单分子的超快运动。 *Nature* **539**, 263（2016）。[4] P. Puschnig, *et al.* 从光电子发射数据重建分子轨道密度。 *Science* **326**, 702（2009）。[5] B. Frietsch, *et al.* 用于时间分辨和角分辨光电子能谱的高次谐波产生装置。 *Rev. Sci. Instrum.* 84, 075106（2013）。[6] P. Puschnig, *et al*。轨道断层成像：解卷积有机分子的光电子发射光谱。 *Phys. Rev.* , ()。 *B* **84** 235427 2011

[7] M. Meckel, *et al.* 激光诱导电子隧穿与衍射。 *Science* **320**, 1478（2008）。[8] M. K¨ubel、Z. Dube、A. Yu. Naumov、D. M. Villeneuve、P. B. Corkum 和 A. Staudte。价电子运动的时空成像。 *Nat. Commu.* **10**, 1042（2019）。[9] R. Murray、M. Spanner、S. Patchkovskii 和 M. Yu. Ivanov。分子的隧穿电离与轨道成像。 *Phys. Rev. Lett.* **106**, 173001（2011）。[10] M. Wollenhaupt、V. Engel 和 T. Baumert。原子和小分子的飞秒激光光电子能谱：量子控制的原型研究。 *Annu.* , ()。 *Rev. Phys. Chem.* **56** 25 2005

[11] F. Grasbon, *et al.* 分子阈上电离光谱中观测到的对称性诱导的量子干涉效应特征。 *Phys. Rev. A* **63**, 041402 2001(R)()。[12] L. Holmegaard, *et al*。定向分子强场电离产生的光电子角分布。 *Nat.* , ()。 *Phys.* **6** 428 2010

[13] L. V. Keldysh，强电磁波场中的电离。 *J. Exp. Theor. Phys.* **47**, 1945（1964）。[14] 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。 *Adv. At. Mol.* , ()。 *Opt. Phys.* **48** 35 2002

[15] H. Akagi, *et al.* HCl 中多个轨道的激光隧穿电离。 *Science* **325**, 1364（2009）。[16] X. Xie，二维阿秒电子波-

波包干涉测量。 *Phys. Rev. Lett.* **114**, 173003（2015）。[17] E. H¨uckel，关于苯问题的量子理论贡献。 *Z. Physik* **70**, 204（1931）。[18] J. E. Lennard-Jones，若干双原子分子的电子结构。 *Trans. Faraday Soc.* **25**, 668（1929）。[19] L. Poudel、N. F. Steinmetz、R. H. French、V. A. Parsegian、R. Podgornik 和 W.-Y. Ching。溶剂效应、金属离子和拓扑结构对人类端粒 G-四链体 DNA 电子结构及氢键的影响。 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **18**, 21573 2016( )。[20] J. Itatani, *et al.* 分子轨道的断层成像。 *Nature* (London) 432,867 (2004)。[21] S. Haessler, *et al.* 分子电子波包的阿秒成像。 *Nat. Phys.* **6**, 200（2010）。[22] J. B. Bertrand、H. J. W¨orner、P. Sali`eres、D. M. Vil- l eneuve 和 P. B. Corkum。用于分子坐标系测量的关联阿秒相位干涉测量。 *Nat.* , *Phys.* **9** 174 2013

()。[23] D. R¨orner, *et al.* 冷靶反冲离子动量谱：观察原子碰撞动力学的“动量显微镜”。 *Phys. Rep.* **330**, 95（2000）。[24] J. Ullrich、R. Moshammer、A. Dorn、R. D¨orner、L. Ph H. Schmidt 和 H. Schmidt-B¨ocking。反冲离子与电子动量谱：反应显微镜。*Rep. Prog. Phys.* **66**, 1463（2003）。[25] Y. L. Wang, *et al.* 强中红外激光场中氩非顺序双电离的反冲离子动量分布。 *Phys. Rev. A* **94**, 053412（2016）。[26] W. Quan, *et al.*强场双电离中的激光诱导非弹性衍射。 *Phys. Rev. Lett.* **119**, 243203 2017( )。[27] R. P. Sun, *et al.* 基于定向双原子分子的双中心干涉断层提取核间距。 *Phys. Rev. Lett.* **122**, 193202 2019( )。[28] M. Meckel, *et al.* 分子强场光电子全息中的连续态电子相位特征。《自然·物理》10，549（2014）。[29] P. W. Dooley, *et al.* 双原子分子转动波包动力学的直接成像。 *Phys. Rev. A* **68**, 023406 2003( )。[30] D. Pavi˘ci´c、Kevin F. Lee、D. M. Rayner、P. B. Corkum 和 D. M. Villeneuve。直接测量 N_2, O_2，和 CO_2 电离的角度依赖性，在

强激光场。 *Phys. Rev. Lett.* **98**，243001（2007）。[31] X. Y. Lai、C. Poli、H. Schomerus 和 C. Figueira de Morisson Faria。库仑势对阈上电离的影响：强场近似之外的量子轨道分析。 *Phys. Rev. A* **92**，043407 2015( )。[32] C. Figueira de Morisson Faria 和 A. S. Maxwell，关键在于相位：超快全息光电子成像。 *Rep. Prog. Phys.* **83** 034401 (2020)。[33] C. M. Maharjan、A. S. Alnaser、I. Litvinyuk、P. Ranitovic 和 C L Cocke。高强度下短时强激光脉冲产生的低能电子动量空间图像的波长依赖性。

J. Phys. B **39** ( )。1955 2006

[34] N. I. Shvetsov-Shilovski， *et al.* 半经典两步强场电离模型。 *Phys. Rev. A* **94**，013415（2016）。[35] M. J. Frisch， *et al.* GAUSSIAN 09（D.01 修订版）（Gaussian 公司，美国康涅狄格州沃灵福德，2013）。[36] S. Petretti、Y. V. Vanne、A. Saenz、A. Castro 和 P. Decleva。强激光场中 N_2, O_2，和 CO_2 的取向依赖电离，*Phys. Rev. Lett.* **104**，223001（2010）。[37] M. Busuladˇzi´c、A. Gazibegovi´c-Busuladˇzi´c、D. B. Miloˇsevi´c 和 W. Becker。分子角分辨高阶阈上电离：分子表征的敏感工具，*Phys. Rev. Lett.* **100**，203003（2008）。