arXiv:2601.17164v1 [physics.atom-ph] 23 Jan 2026

用于高次谐波产生的高精度半经典强场Herman–Kluk传播子方法

Phi-Hung Tran、Hao Quan Truong、R. Esteban Goetz、Anh-Thu Le
Department of Physics, University of Connecticut, 196A Auditorium Road, Unit 3046, Storrs, CT 06269(日期：2026年1月27日)

我们将近期开发的半经典强场Herman-Kluk传播子（SFHK）方法拓展至计算强激光作用下原子的高次谐波产生（HHG）。我们表明，该方法结合了Herman-Kluk传播子与强场近似，能够对高次谐波产率和相位给出极为精确的结果，与含时薛定谔方程的精确数值解几乎完全一致。我们详细分析了该方法及其在高次谐波产生过程中的应用，尤其关注复合时刻。该方法的主要计算任务是求解活性电子在原子势与激光-电子相互作用共同作用下的经典牛顿方程。以相干态建模的电子波包中心沿彼此独立的经典轨迹运动，因此计算可以非常高效地并行化。

I. 引言

自 20 世纪 80 年代末发现以来，强激光作用下原子和分子的高次谐波产生（HHG）一直受到广泛的实验和理论研究。从概念上讲，高次谐波产生过程可以用三步模型[1, 2]来理解：首先，靶中的活性电子通过隧穿释放到连续态；其次，电子受到激光电场加速，并可能被驱回母离子；最后，电子与母离子复合，发射出高能光子。Lewenstein 等人[3]基于强场近似（SFA）给出了三步模型的半经典表述。Lewenstein 模型的一个主要问题是，它完全忽略了连续态电子与靶离子之间的相互作用。因此，在过去二十年中，人们尝试以各种不同方式将这种相互作用纳入模型，以改进该模型。然而，尽管做出了这些努力，与含时薛定谔方程（TDSE）精确数值解的符合程度仍大多停留在半定量层面，即使在单活性电子（SAE）近似下也是如此。

最简单的情况下，可以使用经典轨迹蒙特卡罗（CTMC）方法模拟高次谐波产生过程 [4–7]。为纳入相位信息，按照费曼路径积分方法的思路对该方法进行扩展，形成了量子轨迹蒙特卡罗（QTMC）模型 [8, 9]。QTMC 模型最初用于计算光电子动量分布（PMD）[10], ，与半经典两步模型 [11, 12] 密切相关。为在光电子动量分布中考虑库仑场的影响，人们还提出了强场近似的一种修正——库仑修正强场近似（CCSFA）[13, 14]，以及库仑量子轨道强场近似[15, 16] 。其他采用半经典方法的相关研究包括 [17–19]。

在许多情况下，使用半经典方法难以获得更准确结果，这可能与使用 Van Vleck–Gutzwiller（VVG）传播子 [15, 20–22] 有关。事实上，VVG 的缺点已有充分记载，包括根搜索问题、焦散处的奇点，以及计算莫尔斯（或马斯洛）指标的必要性 [22–24]。为简化问题，通常会忽略 VVG 传播子中的前指数因子，因此也忽略莫尔斯指标。正如 Brennecke 等人 [22] 所报告的，这会导致光电子动量分布出现显著误差。采用 VVG 方法时，他们将射击法与聚类算法相结合，成功解决了根搜索问题。他们以氦原子为例，展示了如何获得非常准确的二维光电子动量分布。遗憾的是，迄今为止，他们的演示仅限于这一简单靶标。用 Herman–Kluk（HK）传播子 [23, 25, 26]替代 VVG 传播子，可以在很大程度上克服与 VVG 传播子相关的困难。

最近，我们提出了半经典强场 Herman–Kluk 传播子方法（SFHK） [27]，用于计算强激光场中原子和分子的三维光电子动量分布。该方法结合了强场近似（用于计算在连续态中“诞生”的电子波包）和 HK 传播子（用于在完整势场中精确传播每个新产生的波包）。我们已证明，SFHK 确实能够在较宽的能量范围内（包括再散射区域），准确再现含时薛定谔方程所得的不同靶标的光电子动量分布 [27–29], 。本文旨在将 SFHK 扩展至高次谐波产生计算。下文将证明，SFHK 能够给出极为准确的高次谐波产率和相位，其结果与含时薛定谔方程的精确数值解几乎无法区分。

我们提到，文献 [20, 21]报道了首次使用 HK 传播子计算 HHG 的尝试，研究对象是一维模型原子。然而，这并不是真正的高次谐波产生过程，因为其中没有包含电离步骤。事实上，研究人员在远离原子的大距离处，预先在连续态中制备了一个自由波包。随后，文献 [30, 31], 在加入其他近似的情况下再次使用了同一模型，

文献 [32], 采用了类似的方法，但其中的轨迹并不相互独立。其他使用 HK 传播子处理强场电离的尝试包括文献 [33–35]。我们还提到定量再散射理论（QRS） [36–38]，它可被归类为三步模型的扩展，但使用了精确的无激光光场的光复合偶极矩（用于高次谐波产生）或电子-靶离子弹性散射微分截面（用于光电子动量分布）。

本文其余部分安排如下。第 II.1 节介绍我们用于高次谐波产生的 SFHK方法的关键要素。第 II.2 节给出含时薛定谔方程的数值解以及各种计算细节。第 III 节以不同激光参数下氢原子和氩的高次谐波产生为例，展示我们方法的准确性。在此，我们还讨论使用 ADK 隧穿理论 [39] 描述 SFHK 中电离步骤的可能性。最后，我们对本文作总结并展望未来。我们还在附录中详细介绍了相关理论。

II. 理论方法

II.1. 用于高次谐波产生的强场 Herman-Kluk（SFHK）方法

SFHK方法已在文献 [27] 中提出并加以阐述，用于计算强激光场中原子和分子的光电子动量分布。有关该方法的更多细节也可见文献 [28, 29]。在此前所有对 SFHK 的应用中，针对不同研究对象得到的光电子动量分布均与含时薛定谔方程的精确数值解高度吻合。这种高准确性可归因于 HK 传播子的准确性：在隧穿电离步骤之后，它完整地考虑了原子（或分子）势以及激光相互作用。但这也意味着，强场近似在描述电离后紧接着形成的连续态电子波包时也具有相当高的准确性。下面我们仅介绍将该方法扩展用于高次谐波产生计算时的关键要点。附录 A-D 还提供了更详细的信息。

高次谐波产生计算中的主要任务是计算含时诱导偶极矩 $D_z(t) = -\langle\, \Psi(t)|\, z\, |\Psi(t)\rangle$。除非另有说明，以下全文均采用原子单位。等价地，也可以计算偶极速度和/或偶极加速度 [36, 40, 41]。这里假设激光沿 z 轴线偏振，态矢量 $|\Psi(t)\rangle$通常假设从初始基态 $|\psi_0(t=0)\rangle$开始，在激光场中随时间演化。在微观层面上，高次谐波产率与感应偶极矩的傅里叶变换成正比。它也可以通过偶极速度或偶极加速度的傅里叶变换来表示。更具体地说，下面我们将重点讨论感应偶极矩 $D_z(t)$的计算，尽管在在 SFHK 中，我们通常同时计算偶极矩和偶极速度。

我们可以将态矢量形式上展开为

$$|\Psi(t)\rangle = a\,|\psi_0(t)\rangle + |\psi_e(t)\rangle + |\psi_c(t)\rangle \tag{1}$$

这里，$|\psi_e(t)\rangle$ 描述激发束缚态，而$|\psi_c(t)\rangle$ 描述电离到连续态的电子。参数 a 描述基态的耗尽。对于足够低的激光强度，可以采用近似 $a \approx 1$。请注意，在典型实验中，通常希望将激光强度保持在较低水平，使电离概率仅为百分之几以内，从而优化高次谐波产生的相位匹配条件 [42, 43]。

激发态可能对电离有一定作用。然而，在典型条件下的高次谐波产生过程中，研究发现，激发态对阈值以上光谱的整体形状影响甚微。在上述假设下，感应偶极矩的表达式可简化为

$$\begin{aligned} D_z(t) &= -\langle\, \Psi(t)|\, z\, |\Psi(t)\rangle \\ &\approx -\langle\, \psi_0(t) + \psi_c(t)|\, z\, |\psi_0(t) + \psi_c(t)\rangle \\ &\approx -\langle\, \psi_0 e^{iI_p t}\big|\, z\, |\psi_c(t)\rangle + c.c. \end{aligned} \tag{2}$$

因此，我们的任务归结为计算连续态部分的波函数。我们指出，在上式中，为简便起见，忽略了连续态间跃迁 $\langle\psi_c(t)|z|\psi_c(t)\rangle$ ，因为预期其贡献远小于电子从连续态再复合回基态的贡献。原则上，一旦得到连续态波函数，也可以将连续态间跃迁的贡献纳入考虑。

现在可以将 SFHK 方法的核心概括如下。首先，在激光脉冲期间的任意给定时刻 t_0 ，我们考虑波函数中一个新产生的连续态部分 $\Delta\psi_c$（$\mathbf{p}$ t），它“诞生”于紧接在 t_0 之前的时间窗口 Δt 。为方便起见，这里我们在动量空间中处理波函数。波函数的这一部分可以用强场近似 [15, 22, 44–47] 相当准确地描述。请注意，与“标准”强场近似不同，我们只在隧穿出口处使用鞍点近似（SPA），以准确获得波函数刚刚诞生于连续态时的这一部分——见附录 A。其次，电子随后在连续态中的传播，受原子势 V_a 与激光电场 V_L（t）相互作用形成的合势支配；这一过程由精确的量子传播子 K（$\mathbf{p}$ t；$\mathbf{k}$ t_0）描述，我们将其近似为半经典Herman-Kluk传播子 [23, 25, 48–50]，即

$$\begin{aligned} \Delta\psi_c(\mathbf{p},t) &= \int d\mathbf{k} K(\mathbf{p},t;\mathbf{k},t_0)\Delta\psi_c(\mathbf{k},t_0) \\ &\approx \int d\mathbf{k} K^{HK}(\mathbf{p},t;\mathbf{k},t_0)\Delta\psi_c(\mathbf{k},t_0) \end{aligned} \tag{3}$$

第三，我们将激光脉冲期间所有电离时刻产生的贡献相加。最终结果为（更多细节见附录 A）

$$\psi_c(\mathbf{p},t) \propto \sum_s \iint d\mathbf{p}_{t_0} d\mathbf{q}_{t_0} \, \langle \mathbf{p}|\mathbf{p}_t,\mathbf{q}_t,\gamma\rangle \, C(\mathbf{p}_{t_0},\mathbf{q}_{t_0},t) \times \exp\left[i(S_{\rightarrow}+S^0_{\downarrow}+\mathbf{p}_{t_0}\cdot\mathbf{q}_{t_0})\right] \times \frac{\langle\, \mathbf{p}_{t_0}+\mathbf{A}(t_s)-\mathbf{A}(t_0)|\,\mathbf{r}\cdot\mathbf{E}(t_s)\,|\psi_0\rangle}{\sqrt{\mathbf{E}(t_s)\cdot[\mathbf{p}_{t_0}+\mathbf{A}(t_s)-\mathbf{A}(t_0)]}}. \tag{4}$$

这里，**E**和**A**分别表示激光电场和矢势，而 $\langle\mathbf{p}|\mathbf{p}_t,\mathbf{q}_t,\gamma\rangle$ 是时刻t动量表象中的相干态基函数，其在相空间中的中心位于（$\mathbf{p}_t$,$\mathbf{q}_t$）。每条轨迹的演化用（$\mathbf{p}_t$,$\mathbf{q}_t$）表示，并由经典哈密顿运动方程支配。更多细节及其他符号说明请参见附录 A。

我们再次强调，在这种处理方法中，从隧穿出口处发生隧穿电离步骤之后，整个过程中始终包含完整的相互作用，并且对 HK 传播子不再作进一步近似。特别是，前指数因子 C（$\mathbf{p}^{t_0}$,$\mathbf{q}^{t_0},t$）被完整纳入。在 SFHK 中，无需像典型的基于 VVG传播子 [22]的方法那样显式计算莫尔斯指标。

请注意，由于 SPA方程施加的限制，隧穿后的初始动量积分实际上只有二维。此外，我们还在隧穿出口处施加条件$\mathbf{q}^{t_0} = \mathrm{Re}[\int_{t_s}^{t_0} \mathbf{A}(\tau)d\tau]$ [15, 22, 51]。在实际实现中，式 (4) 中对初始分布的积分可方便地使用标准蒙特卡罗方法进行，这也是基于半经典轨迹的方法中的常见做法。

为进一步简化计算，我们将初始波函数 ψ_0 展开为高斯型轨道（GTO）[52, 53], ，这与 Gaussian 和 *Gamess* [54, 55]等标准量子化学软件中的常见做法一致。为完整起见，附录 B 和 C 详细介绍了 SFHK 中所用典型偶极矩阵元的计算。

我们指出，对于氢原子，原则上可以使用修正SPA（例如参见 Milosevic等人 [46]的综述）来代替标准 SPA。这会使连续态中的总波函数对应的方程略有不同——见附录 B.2。实际上，我们发现，直接使用方程 (4)，并结合氢原子基态波函数在 GTO 基组中的近似展开，所得高次谐波产生结果与使用修正SPA得到的结果几乎相同。

II.2. 高次谐波产生的含时薛定谔方程数值求解

在本小节中，我们介绍针对多原子分子所开发的非相对论含时薛定谔方程（TDSE）积分理论框架，该方程采用单活性电子（SAE）近似 [56], ，此处将简要介绍这一框架，并将其应用于一个原子靶的具体情形。这套代码可在分布式和共享内存并行计算机上运行，可用于研究不同规范和偶极形式下多原子分子的强场电离与高次谐波产生。

在电偶极近似下，非相对论含时薛定谔方程为（全文采用原子单位），

$$i\frac{\partial}{\partial t}|\Psi(t)\rangle = \left[\hat{H}_0 + \hat{V}_L(t) + \hat{W}_C\right]|\Psi(t)\rangle\,, \tag{5}$$

其中，$\hat{H}_0 = -\frac{1}{2}\boldsymbol{\nabla}^2 + \hat{V}_a(\boldsymbol{r})$ 表示无场哈密顿量，$\boldsymbol{\nabla}^2$ 为拉普拉斯算符，$V_a(\boldsymbol{r})$ 是描述单个活性电子与母离子之间势能相互作用的模型。项 $V_L(t) = -\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{E}(t)$ 描述了非相对论电偶极近似和长度规范（LG）下的激光与物质相互作用，其中 $\boldsymbol{\mu} = -\boldsymbol{r}$ 为偶极矩。 $W_C = -i\,\gamma_C(r)$ 是一种复吸收势（CAP），用于避免时间传播过程中波函数在网格边界处发生反射。根据参考文献 [57], $\gamma_C(r) = \eta_C\,\Theta(r-r_C)\,(r-r_C)^2$, , 其中 η_C 为吸收势的强度，$\Theta(r-r_C)$ 为 Heaviside 阶跃函数。

为积分方程 (5)，将态矢量表示为无场哈密顿量 H_0 的本征函数 $|\Phi_n\rangle$ 的线性组合，即 $H_0|\Phi_n\rangle = \epsilon_n|\Phi_n\rangle$, 其本征能量为 ϵ_n,

$$|\Psi(t)\rangle = \sum_{i=1}^{N_E} e^{-i\,\epsilon_n\,(t-t_o)}\,C_n(t)|\Phi_n\rangle\,, \tag{6}$$

将方程 (6) 代入方程 (5)，得到时间依赖系数 $C_n(t)$ 所满足的耦合运动方程，

$$\frac{d}{dt}C_n(t) = i\sum_{m=1}^{N_E}\boldsymbol{E}(t)\cdot\boldsymbol{\mu}_{n,m}\,C_m(t) + \sum_{m=1}^{N_E}\gamma_{n,m}\,C_m(t), \tag{7}$$

其中 $\boldsymbol{\mu_{n,m}} = -\langle\Phi_n|\boldsymbol{r}|\Phi_m\rangle$ 表示在 H_0 的本征函数基组中的跃迁偶极矩矩阵元，而 $\gamma_{n,m} = \langle\Psi_n|\gamma_C(\boldsymbol{r})|\Phi_m\rangle$。方程 (7) 使用四阶显式龙格–库塔格式 [58] 求解，初始条件 $|\Phi(t_0)\rangle$ 对应于目标系统的电子基态。

为高效求得无场本征态，我们对本征函数的径向部分采用有限元离散变量表示法[59]，并将

角向部分表示为实球谐函数的线性组合，

$$\Phi_n(\boldsymbol{r}_i) = \sum_{l=0}^{L_{max}} \sum_{m=-l}^{+l} \frac{b_{l,m}^n(r_i)}{r_i\sqrt{w_i}} T_{l,m}(\theta,\phi)\,, \tag{8}$$

其中 $T_{l,\ m}$ 实球谐函数 [60]以及 w_i 与径向网格点 r_i相关联的高斯权重。对于分子系统，由于分子势 $V_a(\boldsymbol{r})$，不同基组之间在不同 l 和 m 上的耦合使得对角化计算量很大，甚至可能无法完成。然而，在有限元基组中，哈密顿量 H_0 是稀疏的。我们利用这种稀疏性，通过将所需本征函数的能量区间划分为 N个子区间并分别进行对角化，使用 FEAST 库软件包 [61] 求得 $\hat{}H_0$ 的本征值。对于以原点为中心并受线偏振电场作用的原子系统，由于原子势具有球对称性，式（8）中对 m 的求和可化简为 $m=0$，且可针对每个角动量 l 独立进行对角化。

电场 $E(t)$ 的参数化形式如下：

$$\boldsymbol{E}(t) = \sum_{i=1}^{3} E_i\, h_i(t-t_i)\, \cos(\omega_i(t-t_i)+\phi_i)\, \hat{\boldsymbol{e}}_i \tag{9}$$

其中，$\hat{}\boldsymbol{e}_i$ 为实验室参考系中的笛卡尔单位矢量，E_i 为峰值场振幅，ω_i 为中心角频率，ϕ_i 为载波包络相位（CEP），t_i 为时间延迟，$h_i\,(t-t_i)$ 为包络函数。

可观测量 — 得到态矢量 (6) 后，可对偶极矩、偶极速度和偶极加速度的含时期望值进行傅里叶变换，从而得到高次谐波产生谱 [62]。在长度规范下，偶极加速度为：

$$\langle \boldsymbol{a}(t)\rangle = -\langle\Psi(t)|\boldsymbol{\nabla}\hat{U}_M(\boldsymbol{r})|\Psi(t)\rangle\,, \tag{10a}$$

其中，$\boldsymbol{\nabla}\hat{}U_M\,(\boldsymbol{r}) = \boldsymbol{\nabla}\hat{}V_a\,(\boldsymbol{r}) - \boldsymbol{E}\,(t)$ 为分子（原子）总势能与激光诱导偶极相互作用的梯度。另外，也可以根据偶极速度计算高次谐波产生谱；在长度规范下，偶极速度为：

$$\langle \boldsymbol{p}(t)\rangle = \langle\Psi(t)|\boldsymbol{p}|\Psi(t)\rangle\,, \tag{10b}$$

其中，$\boldsymbol{p} = -i\boldsymbol{\nabla}$ 为动量算符，最后，场诱导偶极矩的期望值为：

$$\langle \boldsymbol{D}(t)\rangle = -\langle\Psi(t)|\boldsymbol{r}|\Psi(t)\rangle\,, \tag{10c}$$

与文献 [41], 一致，我们确认这三种偶极形式 (10a)、(10b) 和 (10c) 之间满足以下关系：

$$|\boldsymbol{a}(\omega)|^2 \approx |\boldsymbol{p}(\omega)|^2\,\omega^2 \approx |\boldsymbol{D}(\omega)|^2\,\omega^4\,, \tag{10d}$$

其中，$\boldsymbol{a}(\omega)$、$\boldsymbol{p}(\omega)$ 和 $\boldsymbol{D}(\omega)$分别是方程（10a）、（10b）和（10c）中偶极形式的傅里叶变换，

适用于电场强度较弱、因此电离概率较小的情况。我们还在傅里叶变换中使用了汉宁窗函数 [63] ，以便在激光脉冲结束时将偶极矩平滑地降至零——见附录 D。后者由复吸收势导致的范数损失来定义。

在本研究报告的模拟中，假设电场沿$\hat{}\boldsymbol{e}_z$方向线偏振，最大峰值强度为 $I_0 = [1, 1.2] \times 10^{14}$ $^{-2}$ Wcm，持续时间为数个周期，且谱相位平坦。电场包络函数为 $h_i(t-ti) = \sin^2((t-t_a)/(t_b-t_a))$，其中 $t_a = t_i - \Delta T$和 $t_b = t_i + \Delta T$，ΔT为脉冲持续时间；当 $t_a \le t \le t_b$时，$h_i(t-ti) =$，否则为 0。电场结束后，时间传播继续进行 5 个周期，以确保光电离电子的慢分量到达复吸收势（CAP）。复吸收势的强度设为 $\gamma_C = 0.005$a.u.，其位置设为 $r_C = 270$ bohr。对于无场本征态，径向网格设为 $r_{max} = 300$ bohr，径向坐标采用 $N_{\mathrm{DVR}} = 1000$个映射勒让德–高斯–洛巴托配置点，并设为 $L_{max} = 300$ ，固定 $m = 0$。最后，式（7）中对 H_0 本征函数的求和截断至 N_E，对应的能量截断为$\epsilon_{N_E} = 20$ a.u.，以确保高次谐波产生光谱关于 N_E的收敛性。式（7）采用四阶显式龙格–库塔格式积分，时间步长为 $\Delta t = 0.02$ a.u.

III. 结果与讨论

III.1. 氢原子的高次谐波产生

本小节将重点研究在不同激光参数下氢原子的高次谐波产生，并分析 SFHK 方法揭示的一些特征。

首先，在图1(a)中，我们比较了含时薛定谔方程与 SFHK 对波长为 1,600 nm、强度为10^{14} W/cm^2, 且载波包络相位（CEP）为 0 度的三周期激光脉冲所得到的高次谐波产生谱。在略高于阈值（13.6 eV，图中以垂直虚线标示）的整个谐波能量范围内，两种方法的结果吻合极佳。此外，在相同能量范围内，两种方法计算得到的高次谐波产生偶极相位也吻合良好；见图1(b)。据我们所知，任何近似半经典方法都未曾达到过如此高的精度。显然，若忽略库仑相互作用，SFHK 的结果将非常不准确。事实上，若忽略原子势（此处为库仑势），我们的方法便会得到 Lewenstein 模型 [3]。约 55 eV 附近高次谐波产率中阶梯状结构的成因，以及谐波偶极相位相应的快速变化，将在下文对图2中加博变换的分析中讨论。

阈值以下的差异很容易理解。这是因为在 SFHK 中，我们完全忽略了电离和再复合过程中束缚激发态的影响——

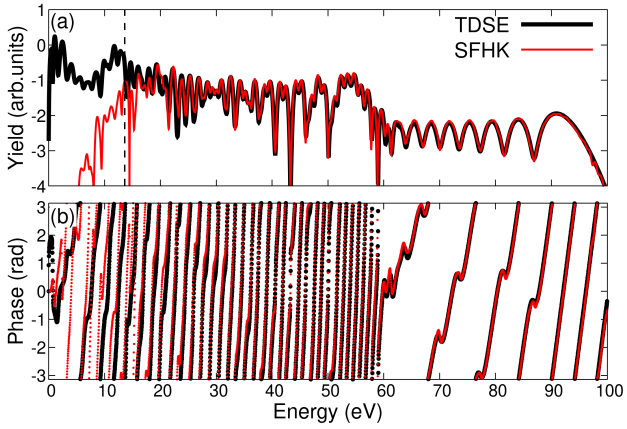

图1. 对氢原子，比较采用 SFHK 和含时薛定谔方程计算得到的高次谐波产率 (a) 和相位 (b) 随发射光子能量的变化。(a) 中的纵轴采用对数刻度。计算使用了波长为 1,600 nm、强度为 10^{14} W/cm^2, 、载波包络相位为 $\phi = 0$ 的三周期激光脉冲。

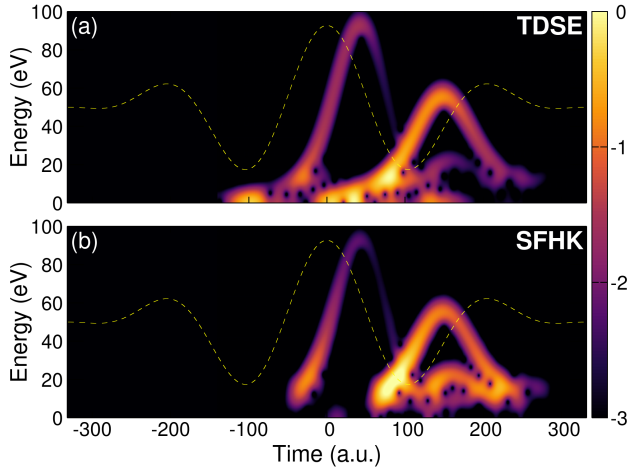

图2. 含时薛定谔方程 (a) 和 SFHK (b) 计算得到的感应偶极矩速度的 Gabor时频分析。颜色映射图采用对数刻度。图中还以虚线标出了激光脉冲的电场。激光参数与图1相同。

参见第 II.1 节的讨论。此外，我们也忽略了连续态-连续态跃迁的影响。两种方法之间的高度一致表明，对于高于阈值数 eV 以上的能量，这些影响并不明显。

需要指出的是，图1中的 SFHK 结果是以偶极矩的速度形式得到的。与速度形式的结果相比，直接使用感应偶极矩得到的产率和相位几乎无法区分（未显示）。此外，在电离步骤中，我们对强场近似使用了修正SPA（例如参见 [46] 以及附录 B.2）。我们发现，若使用标准SPA，并将初始基态波函数近似为 GTO 的线性组合，也能得到相当准确的结果。这意味着，实际应用中，对于任意原子或分子靶，可以使用通过 GTO 基组表示的波函数；这些基组可借助 Gaussian 或 Gamess 等标准量子化学软件方便地计算得到。

为进一步检验 SFHK 方法，我们在图2中比较了由含时薛定谔方程（上图）和 SFHK（下图）计算得到的感应偶极矩速度的 Gabor时频分析结果。两种方法再次表现出良好的一致性，只有在接近阈值及低于阈值的能量范围内存在差异。如图2所示，由于激光脉冲较短，大多数谐波仅由两到四个“脉冲串”产生。从图中可以看出，对于高于 60 eV 的能量，只有两条路径对发射有贡献，即所谓的短轨迹和长轨迹，其发射时间分别为 $t \lesssim 40$ a.u. 和$t \gtrsim 40$ a.u.。这两种贡献之间的干涉导致了图1(a)中观察到的 60 eV 以上高次谐波产率的缓慢振荡。低于 60 eV 时，还可以看到另外两种贡献。这些额外路径来自在脉冲峰值附近电离的电子，因此其信号显著更强。这使得图1(a)中 55 eV 附近的高次谐波产率呈现出更明显的阶梯状结构。这四种贡献之间的干涉，使得 55 eV 以下的振荡结构比 60 eV 以上的平台区快得多。相应地，60 eV 以下的偶极相位变化也比 60 eV 以上更快，如图1(b)所示。

为了进行更定量的比较，我们现在分析脉冲峰值附近（时间 $t = 0$ 附近）出现的第一个脉冲串。为此，我们计算了不同谐波能量下第一个脉冲串中心随时间的变化，结果如图3(a)所示。请注意，在高次谐波产生光谱中，该脉冲串的中心被解释为复合时间。由于含时薛定谔方程和 SFHK 两种方法得出的结果几乎相同，我们还在图3(b)中展示了放大后的对比。事实上，与含时薛定谔方程的结果相比，SFHK 得出的复合时间延迟了约 6 阿秒。

接下来，我们比较波长为 1,200 nm 时的 SFHK 结果与含时薛定谔方程的结果：图4(a、b)和(c、d)分别对应三周期脉冲和六周期脉冲。激光强度与图1中的相同，为 10^{14} W/cm^2。可以看到，对于这两种情况，两种方法在高次谐波产率和偶极相位方面都符合得非常好。波长降至 800 nm 时，SFHK 结果略有变差，但仍然相当不错——见图4(e、f)。在所有这些 SFHK 计算中，相干态的宽度均选为 $\gamma = 0.5$ a.u.。为减小高度不稳定轨迹的影响，我们采用了参考文献 [50] 提出的轨迹剔除技术。具体而言，我们对一个截断函数施加限制

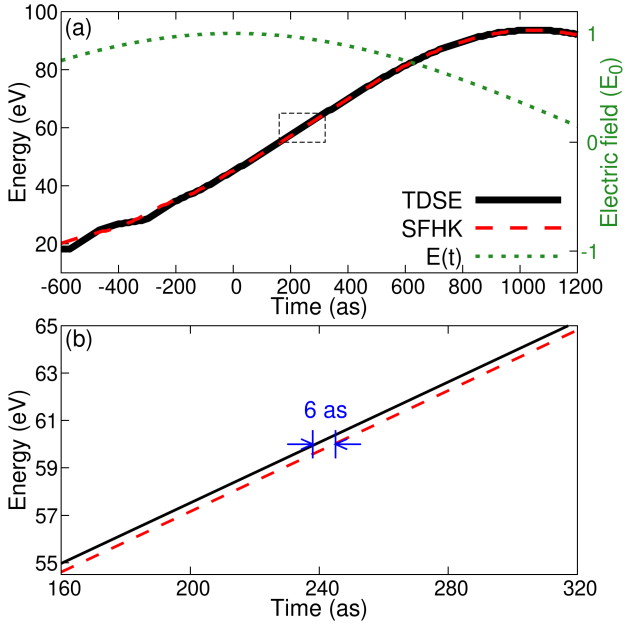

图3。（a）比较利用 SFHK 和含时薛定谔方程中偶极速度的加博变换计算得到的发射时间。更多细节见正文。激光脉冲的电场也以虚线表示。（b）将（a）放大，显示时间范围为 160 as 至 320 as。激光参数与图1中的相同。

D_t，作用于式(4)中 $|C(\mathbf{p}^{t_0}, \mathbf{q}^{t_0}, t)|^2$ 的取值，使得任何满足 $|C(\mathbf{p}^{t_0}, \mathbf{q}^{t_0}, t)|^2 > D_t$ 的轨迹都会被剔除。在本工作中，我们选取了 $D_t = 10^{30}$。值得注意的是，D_t 取值中的指数与李雅普诺夫数 [50]有关。我们检查了在 $\gamma = [0.1\text{: } 2]$ a.u. 和 $D_t = [10^{20} : 10^{35}]$ 的范围内，结果对这些参数相当稳定。为获得收敛的 SFHK 结果，我们通常使用约 200 万至 2000 万条轨迹。

根据三步模型和 QRS 理论，当较早释放到连续态中的电子在激光电场的驱动下返回并接近原子核，随后与母离子复合时，就会发生谐波发射。此外，我们可以预期，当电子足够接近原子核时，库仑相互作用相较于激光场占主导地位，因此电子角动量在该区域内可以认为近似保持不变。图5（a）、（b）和（c）分别展示了位于以原点为中心、半径为 $r < 3$ a.u. 区域内的“s-波”、“p-波”和“d-波”轨迹样本。这里，激光参数与图4（a）中的相同，且线偏振沿x轴。为便于研究，当电子在原子核附近的角动量满足条件 $l \in [0\text{: } 0.5)$、$l \in [0.5 : 1.5)$、$l \in [1.5 : 2.5)$ 时，我们分别将这些轨迹标记为 s-波、p-波和 d-波。请注意，这些图相对于重新

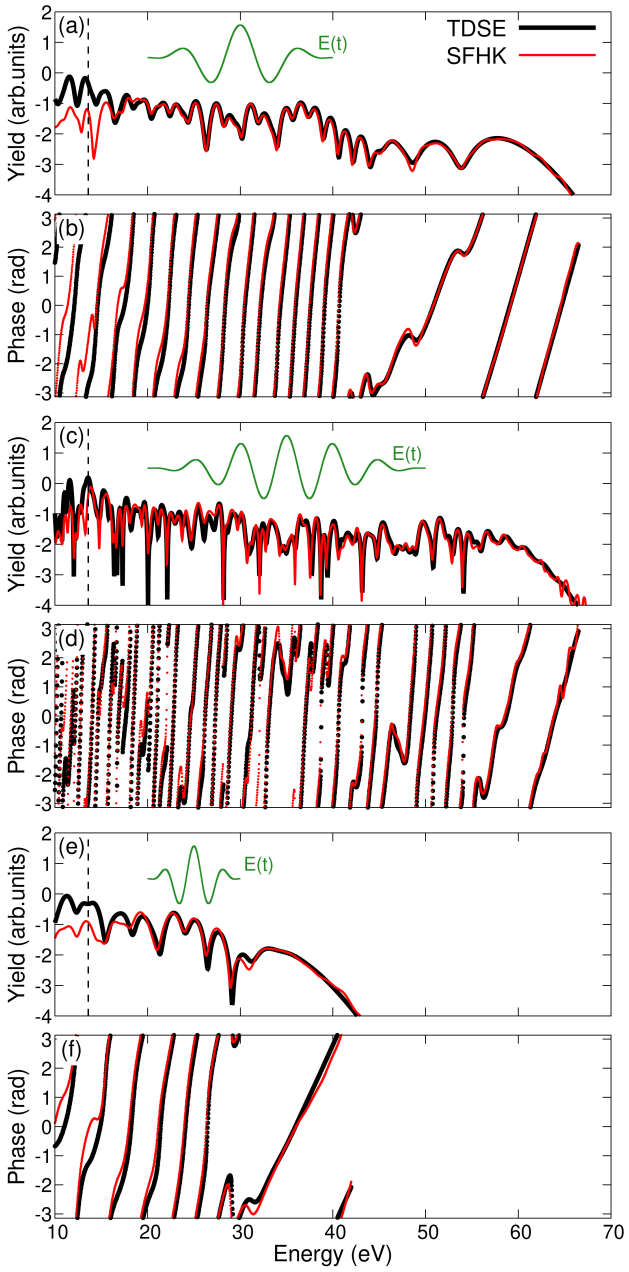

图4。（a）和（b）：与图1相同，但波长为1,200纳米。（c）和（d）：分别与（a）和（b）相同，但采用六周期激光脉冲。（e）和（f）：与（a）和（b）相同，但波长为800纳米。（a）、（c）和（e）的纵轴采用对数刻度。

在 $x = 0$ 处的反射。这是由于此处使用的三周期脉冲较短。根据选择定则，对于 SFHK方法中的高次谐波产生计算，我们可以预期只需纳入“p-波”轨迹，因为氢原子基态为 $1s$。图 5(d) 和 (e) 展示的结果确实如此。这里，我们展示了在 SFHK方法中仅纳入在 p-波轨迹后得到的高次谐波产率和相位

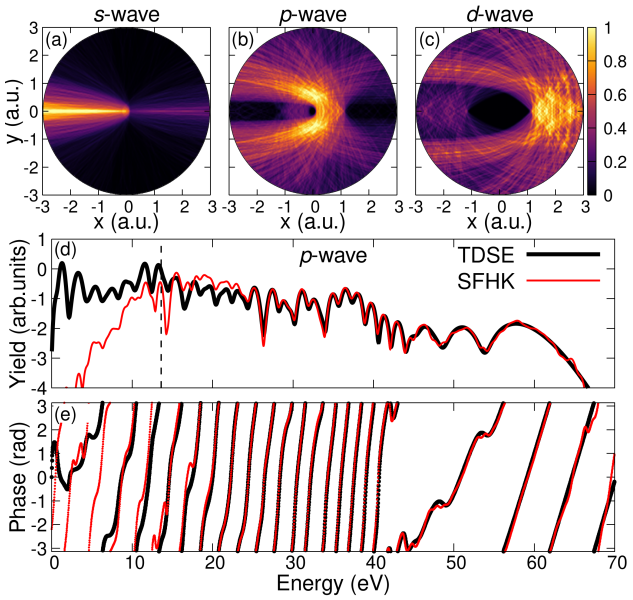

图 5。（a）、（b）和（c）：对于氢原子，分别对返回至距原子核 $r < 3$ 原子单位以内的轨迹进行分波分析，分析的分别是 s 波、 p 波和 d 波。详情请参见正文。（d）和（e）：比较含时薛定谔方程与 SFHK 计算得到的高次谐波产率和相位；但在 SFHK 计算中，只纳入了接近原子核至 $r < 3$ 原子单位以内的 p 波轨迹。（d）中的纵轴采用对数刻度。激光参数与图 4（a）和（b）相同。

这些轨迹在距原子核 $r < 3$ a.u. 以内经过。所得结果与含时薛定谔方程的结果确实非常吻合。除了提供物理直觉之外，这些结果还表明，在实际应用中，如果考虑对称性以及对经典轨迹的其他可能限制，就能显著改进 SFHK 的实现。这将作为未来的研究方向。

III.2. 氩的高次谐波产生与库珀极小值

在上一小节中，我们展示了 SFHK 在计算氢原子的高次谐波产生方面的准确性。本小节将通过一项更具挑战性的测试来检验 SFHK 方法。为此，我们选择氩作为靶原子，因为理论上 [36, 64]和实验上 [6, 65]均已发现，氩的高次谐波谱在 50 eV 附近有明显的库珀极小值。根据 QRS 理论 [36–38], ，高次谐波谱中这一库珀极小值的起因可追溯至光电离（或光复合）微分截面中的库珀极小值。因此，它对激光参数相当稳定。

在图 6(a) 和 (b) 中，我们将 SFHK 对高次谐波产率和相位的计算结果与含时薛定谔方程的结果进行了比较。这里，

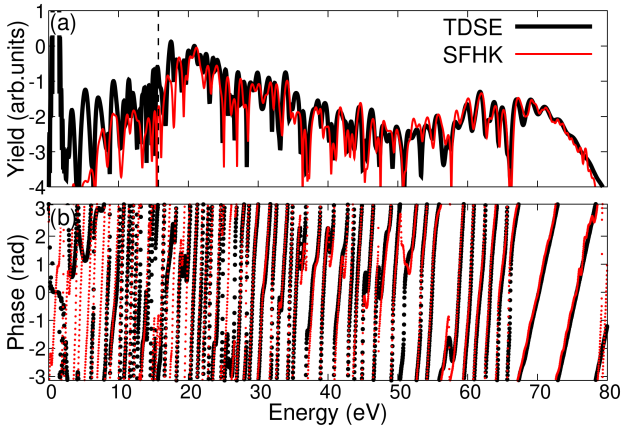

图 6. SFHK 与含时薛定谔方程计算得到的氩的高次谐波产率 (a) 和相位 (b) 随发射光子能量的变化对比。(a) 中的纵轴采用对数刻度。计算使用了一个波长为 1,200 nm、强度为 1.2×10^{14} W/cm^2, 、载波包络相位为 $\phi = 0$ 的六周期激光脉冲。

我们采用了六周期脉冲激光，其波长为 1,200 nm，强度为 1.2×10^{14}W/cm^2,，载波包络相位为$\phi = 0$。需要注意的是，在含时薛定谔方程和 SFHK 计算中，我们使用了 Muller [66], 提出的相同原子势。在略高于阈值的能量范围内（15.7 eV，图中的虚线所示），两种方法在高次谐波产率和相位方面均具有非常好的一致性。特别是，SFHK 很好地再现了 50 eV 附近的库珀极小值。对于氩，我们使用了约 2,000 万条轨迹，比氢的情况多得多。我们推测，这种较慢的收敛性可能是由于库珀极小值区域内高次谐波信号较弱，难以计算所致。需要注意的是，我们首先按照第 II.2 节所述，利用 Muller 势计算了 Ar($3p_0$) 的基态波函数。为方便实际计算，随后我们通过 GTO 基组表示该波函数，见附录 B 和 C。

为完整起见，我们还在图 7 中展示了氩情形的分波分析。在这种情况下，我们预计只有 s 波和 d 波轨迹会对高次谐波产生作出贡献，因为初始基态为 $3p$。事实上，仅包含 s 波和 d 波轨迹且这些轨迹最近接近原子核至 $r < 3$ a.u. 的 SFHK 计算与含时薛定谔方程的结果相当吻合——见图 7(d) 和 (e)。

III.3. SFHK 中利用隧穿理论描述电离

在确立了 SFHK 方法的准确性后，我们现在要探讨一个问题：在 SFHK 中，是否确实需要使用强场近似来描述电离步骤。众所周知，强场近似的适用范围相当广泛，

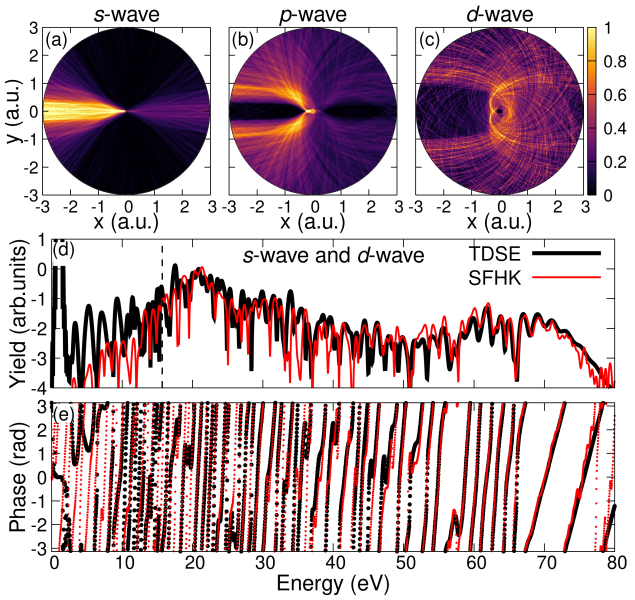

图 7。（a）、（b）和（c）：对于氩，分别针对 s 波、 p 波和 d 波，对返回至距原子核 $r < 3$ a.u. 以内的轨迹进行分波分析。详情请见正文。（d）和（e）：比较含时薛定谔方程与 SFHK 计算得到的高次谐波产率和相位；但在 SFHK 中仅纳入了接近至距原子核 $r < 3$ a.u. 以内的 s 波和 d 波轨迹。（d）中的纵轴采用对数刻度。激光参数与图 6 相同。

涵盖从多光子区间到隧穿区的范围 [44]。另一方面，在隧穿区，简单的准静态 ADK 理论 [39]适用于原子靶，而其针对分子靶的扩展理论（如 MO-ADK 理论 [67] 和弱场渐近理论（WFAT） [68, 69], ）已被证明足以描述电离。因此，值得探究能否在 SFHK 中用 ADK 取代强场近似来描述电离步骤。这对潜在应用尤为重要，特别是对分子而言。

具体而言，我们以氢原子为例，测试波长为 1,600 nm 的三周期激光脉冲，与图1中所用的脉冲相同。与图1中的计算相比，唯一的区别是此处电离步骤采用 ADK 模型，而非强场近似。图8(a)展示了此次计算得到的高次谐波产生谱，与含时薛定谔方程的结果存在明显差异。请注意，我们已将产率归一化，使其在约 90 eV 的高次谐波截止能量处与含时薛定谔方程的结果一致。为了解这些差异可能的成因，我们在图8(b)中比较了用 ADK 模型和强场近似计算得到的相对瞬时电离概率。显然，与强场近似的电离率相比，ADK 模型低估了接近 ± 110a.u.处亚周期峰附近的电离率。这并不意外，因为这两个亚峰处的“有效”瞬时激光强度

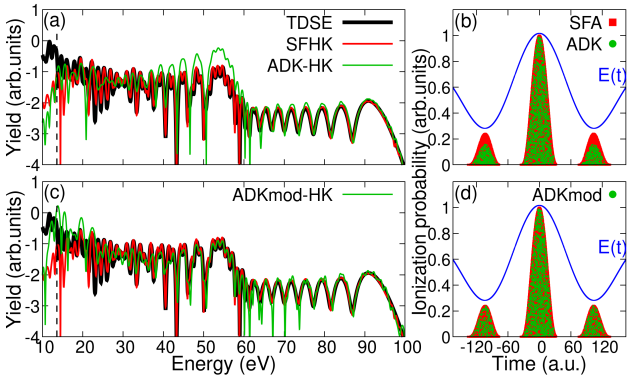

图 8。（a）：比较使用基于 ADK 的半经典费曼路径积分方法得到的高次谐波产率与氢原子的含时薛定谔方程结果。作为参考，同时给出了标准半经典费曼路径积分方法（使用强场近似电离率）得到的高次谐波产率。纵轴采用对数刻度。（b）：在激光脉冲峰值附近，ADK 和强场近似给出的瞬时电离概率。同时还显示了激光电场 $E(t)$。（c）与（a）相同，但使用了修正的 ADK 电离率。（d）与（b）相同，但使用了修正的 ADK 电离率。激光参数与图 1 相同。

几乎只有激光脉冲峰值处强度的一半，而众所周知，ADK 模型的适用范围相当有限。通过重新归一化 ADK 电离率，使其在这两个亚峰附近与强场近似的电离率相匹配 [见图8(d)], ，我们得到了与含时薛定谔方程结果更为吻合的结果——见图8(c)。这也表明，与强场近似相比，ADK 模型中采用的隧穿出口对高次谐波产率影响较小。根据这些结果，通常可以预期，在隧穿区，ADK 模型以及 WFAT 和 MO-ADK 也可用于在 SFHK 中模拟电离步骤，但可能需要进行适当调整，尤其是对于极短脉冲。

IV. 总结与展望

总之，我们展示了强场 Herman–Kluk传播子方法（SFHK）在计算高次谐波谱和诱导谐波相位方面的应用。我们证明，在隧穿区内相当宽泛的激光参数范围内，SFHK 对氢原子和氩的计算具有很高的准确性。

我们预计，将我们的方法扩展到分子（包括多原子分子）应该是直接而简单的。事实上，分子的HK传播步骤与原子靶标的情况不会有太大不同，因为其中最耗时的步骤本质上都是在求解具有不同初始条件的经典牛顿方程。剩下的任务是准确地处理电离步骤。幸运的是，对于原子而言，强场近似已经相当适用。至于它是否同样适用于分子，还有待观察。事实上，基于HK传播

器所展现出的精度，SFHK可用于对强场电离理论进行基准测试，包括高次谐波产生和光电子动量分布计算 [27]。

由于我们所采用的基于轨迹的方法具有半经典特性，SFHK 能够为高次谐波产生过程提供清晰直观的图像。从实践角度来看，SFHK 也颇具优势，因为可以轻松地为不同的独立轨迹实现基本的并行化。

致谢

本研究由美国能源部（DOE）科学办公室基础能源科学部（BES）通过项目编号 DE-SC0023192 资助。感谢 Richard Jones 和 Storrs 高性能计算设施提供宝贵的计算支持与资源。本研究使用了 OSG 联盟[70–73] 提供的服务。

附录 A：在 SFHK 框架内构造的连续态波函数

出射波函数 $\Delta\psi_c(\mathbf{p}\ t)$ 可表示为连续态波函数 $\Delta\psi_c(\mathbf{k}\ t_0)$ 经精确量子传播子 $K(\mathbf{p}\ t;\mathbf{k}\ t_0)$ 传播后的结果；该连续态波函数是在 t_0 时刻隧穿后立即计算得到的，

$$\Delta\psi_c(\mathbf{p},t)=\int d\mathbf{k}K(\mathbf{p},t;\mathbf{k},t_0)\Delta\psi_c(\mathbf{k},t_0). \tag{A.1}$$

这里，$\Delta\psi_c(\mathbf{k}\ t_0)$ 是活性电子在时间 t_0 之前紧邻的一小段时间内从基态 $|\psi_0\rangle$ 隧穿到连续态 $|\mathbf{k}\rangle$ 的概率振幅。根据强场近似理论[15, 22, 44, 46, 47], ，它可以表示为

$$\begin{aligned}\Delta\psi_c(\mathbf{k},t_0)&\propto -i\sqrt{\frac{2\pi i}{\partial^2 S^0_{\downarrow}(\mathbf{k},t_s)/\partial t_s^2}}\,\langle\,\mathbf{k}+\mathbf{A}(t_s)-\mathbf{A}(t_0)|\,\mathbf{r}\cdot\mathbf{E}(t_s)\,|\psi_0\rangle\,e^{iS^0_{\downarrow}(\mathbf{k},t_s)}\\&=-i\sqrt{\frac{2\pi i}{\mathbf{E}(t_s)\cdot[\mathbf{k}+\mathbf{A}(t_s)-\mathbf{A}(t_0)]}}\,\langle\,\mathbf{k}+\mathbf{A}(t_s)-\mathbf{A}(t_0)|\,\mathbf{r}\cdot\mathbf{E}(t_s)\,|\psi_0\rangle\,e^{iS^0_{\downarrow}(\mathbf{k},t_s)},\end{aligned} \tag{A.2}$$

其中，$\mathbf{A}(t)$ 是矢势，$\mathbf{E}(t)=-\partial_t\mathbf{A}(t)$ 是由式（9）定义的激光脉冲电场。 $t_s=t_0+it_t$ 是鞍点方程的复数解

$$\frac{[\mathbf{k}+\mathbf{A}(t_s)-\mathbf{A}(t_0)]^2}{2}+I_p=0. \tag{A.3}$$

注意，$|\mathbf{k}\rangle$ 构成平面波基，波函数 $\Delta\psi_c(\mathbf{k}\ t_0)$ 仅在穿过势垒发生隧穿时才近似为沃尔科夫态。式（A.2）中的相位是隧穿过程中的作用量，表示为 $S^0_{\downarrow}(\mathbf{k}\ t_s)=I_pt_s-\int_t^{t_0}$

在 SFHK 方法中，方程 (A.1) 中的精确传播子由 Herman-Kluk 传播子 [23, 25, 48–50], 近似表示为

$$K^{HK}(\mathbf{p},t;\mathbf{k},t_0)=\frac{1}{(2\pi)^3}\iint d\mathbf{p}_{t_0}d\mathbf{q}_{t_0}C(\mathbf{p}_{t_0},\mathbf{q}_{t_0},t)e^{iS_{\to}(\mathbf{p}_{t_0},\mathbf{q}_{t_0},t)}\,\langle\mathbf{p}|\mathbf{p}_t,\mathbf{q}_t,\gamma\rangle\,\langle\mathbf{p}_{t_0},\mathbf{q}_{t_0},\gamma|\mathbf{k}\rangle\,, \tag{A.4}$$

其中 $\langle\mathbf{p}|\mathbf{p}_t,\ \mathbf{q}_t,\ \gamma\rangle=(\frac{1}{2\pi\gamma})^{3/4}e^{-\frac{(\mathbf{p}-\mathbf{p}_t)^2}{4\gamma}-i\mathbf{p}\cdot\mathbf{q}^t}$ 是相干态波函数，其宽度为 γ，平均动量为 $\mathbf{p}_t$，平均位置为 $\mathbf{q}_t$，与时刻 t轨迹在相空间 $(\mathbf{p}_t,\ \mathbf{q}_t)$ 中的点相对应。单条轨迹从时刻 t_0 的初始条件 $(\mathbf{p}^{t_0},\ \mathbf{q}^{t_0})$ 出发，其演化由哈密顿运动方程控制

$$\dot{\mathbf{q}}_t=\frac{\partial H}{\partial\mathbf{p}_t},\ \dot{\mathbf{p}}_t=-\frac{\partial H}{\partial\mathbf{q}_t}. \tag{A.5}$$

这里，哈密顿量表示为 $H=\frac{\mathbf{p}_t^2}{2}+V_a(\mathbf{q}_t)\pm\mathbf{q}_t\cdot\mathbf{E}(t)$，其中 V_a 是单个活性电子与母离子之间的原子势，作用量写作 $S_{\to}(\mathbf{p}^{t_0},\mathbf{q}^{t_0},t)=\int_{t_0}^{t}(\mathbf{p}_{t'}\cdot\dot{\mathbf{q}}_{t'}-H)dt'$。Herman-Kluk 提出的复值前因子 [25, 48] 可写为

$$C(\mathbf{p}_{t_0},\mathbf{q}_{t_0},t)=\sqrt{\det\left[\frac{1}{2}\left(\frac{\partial\mathbf{p}_t}{\partial\mathbf{p}_{t_0}}+\frac{\partial\mathbf{q}_t}{\partial\mathbf{q}_{t_0}}-2i\gamma\frac{\partial\mathbf{q}_t}{\partial\mathbf{p}_{t_0}}-\frac{1}{2i\gamma}\frac{\partial\mathbf{p}_t}{\partial\mathbf{q}_{t_0}}\right)\right]}. \tag{A.6}$$

式 (A.6) 中出现的稳定性矩阵元满足方程 [50]

$$\begin{aligned}
&\frac{d}{dt}\left(\frac{\partial p_{ti}}{\partial z_j}\right) = -\sum_{k=1}^{3}\left(\frac{\partial^2 H}{\partial p_{tk}\partial q_{ti}}\frac{\partial p_{tk}}{\partial z_j} + \frac{\partial^2 H}{\partial q_{tk}\partial q_{ti}}\frac{\partial q_{tk}}{\partial z_j}\right),\\
&\frac{d}{dt}\left(\frac{\partial q_{ti}}{\partial z_j}\right) = \sum_{k=1}^{3}\left(\frac{\partial^2 H}{\partial p_{tk}\partial p_{ti}}\frac{\partial p_{tk}}{\partial z_j} + \frac{\partial^2 H}{\partial q_{tk}\partial p_{ti}}\frac{\partial q_{tk}}{\partial z_j}\right),\\
&z = p_{t_0} \text{ or } q_{t_0}.
\end{aligned} \tag{A.7}$$

将 (A.2) 和 (A.4) 代入方程 (A.1)，可得

$$\begin{aligned}
\Delta\psi_c(\mathbf{p},t) \propto -i\int d\mathbf{k}\frac{1}{(2\pi)^3}\iint d\mathbf{p}_{t_0}d\mathbf{q}_{t_0}C(\mathbf{p}_{t_0},\mathbf{q}_{t_0},t)e^{iS_{\to}(\mathbf{p}_{t_0},\mathbf{q}_{t_0},t)}\left\langle\mathbf{p}|\mathbf{p}_t,\mathbf{q}_t,\gamma\right\rangle\left\langle\mathbf{p}_{t_0},\mathbf{q}_{t_0},\gamma|\mathbf{k}\right\rangle\\
\times\sqrt{\frac{2\pi i}{\mathbf{E}(t_s)\cdot[\mathbf{k}+\mathbf{A}(t_s)-\mathbf{A}(t_0)]}}\left\langle\ \mathbf{k}+\mathbf{A}(t_s)-\mathbf{A}(t_0)\right|\mathbf{r}\cdot\mathbf{E}(t_s)\left|\psi_0\right\rangle e^{iS_{\downarrow}^0(\mathbf{k},t_s)}\\
\propto\iint d\mathbf{p}_{t_0}d\mathbf{q}_{t_0}C(\mathbf{p}_{t_0},\mathbf{q}_{t_0},t)e^{iS_{\to}(\mathbf{p}_{t_0},\mathbf{q}_{t_0},t)}\left\langle\mathbf{p}|\mathbf{p}_t,\mathbf{q}_t,\gamma\right\rangle\\
\times\int d\mathbf{k}\left\langle\mathbf{p}_{t_0},\mathbf{q}_{t_0},\gamma|\mathbf{k}\right\rangle\left\langle\ \mathbf{k}+\mathbf{A}(t_s)-\mathbf{A}(t_0)\right|\mathbf{r}\cdot\mathbf{E}(t_s)\left|\psi_0\right\rangle\frac{e^{iS_{\downarrow}^0(\mathbf{k},t_s)}}{\sqrt{\mathbf{E}(t_s)\cdot[\mathbf{k}+\mathbf{A}(t_s)-\mathbf{A}(t_0)]}}.
\end{aligned} \tag{A.8}$$

注意到 $\langle\mathbf{k}|\mathbf{p},\ \mathbf{q}\ \gamma\rangle = (\frac{1}{2\pi\gamma})^{3/4}e^{-\frac{(\mathbf{k}-\mathbf{p})^2}{4\gamma}-i_{\mathbf{k}\cdot\mathbf{q}}}$，并使用 $\lim\gamma\to0(\frac{1}{4\pi\gamma})^{3/2}e^{-\frac{(\mathbf{k}-\mathbf{p})^2}{4\gamma}} = \delta(\mathbf{k}-\mathbf{p})$ 的近似，即可对方程 (A.8) 中的 $\mathbf{k}$ 进行积分。于是，当 γ 较小时，可得

$$\begin{aligned}
I_0 &= \int d\mathbf{k}\left\langle\mathbf{p}_{t_0},\mathbf{q}_{t_0},\gamma|\mathbf{k}\right\rangle\left\langle\ \mathbf{k}+\mathbf{A}(t_s)-\mathbf{A}(t_0)\right|\mathbf{r}\cdot\mathbf{E}(t_s)\left|\psi_0\right\rangle\frac{e^{iS_{\downarrow}^0(\mathbf{k},t_s)}}{\sqrt{\mathbf{E}(t_s)\cdot[\mathbf{k}+\mathbf{A}(t_s)-\mathbf{A}(t_0)]}}\\
&\approx\int d\mathbf{k}\delta(\mathbf{k}-\mathbf{p}_{t_0})e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{q}_{t_0}}\left\langle\ \mathbf{k}+\mathbf{A}(t_s)-\mathbf{A}(t_0)\right|\mathbf{r}\cdot\mathbf{E}(t_s)\left|\psi_0\right\rangle\frac{e^{iS_{\downarrow}^0(\mathbf{k},t_s)}}{\sqrt{\mathbf{E}(t_s)\cdot[\mathbf{k}+\mathbf{A}(t_s)-\mathbf{A}(t_0)]}}\\
&= e^{i\mathbf{p}_{t_0}\cdot\mathbf{q}_{t_0}}\left\langle\ \mathbf{p}_{t_0}+\mathbf{A}(t_s)-\mathbf{A}(t_0)\right|\mathbf{r}\cdot\mathbf{E}(t_s)\left|\psi_0\right\rangle\frac{e^{iS_{\downarrow}^0(\mathbf{p}_{t_0},t_s)}}{\sqrt{\mathbf{E}(t_s)\cdot[\mathbf{p}_{t_0}+\mathbf{A}(t_s)-\mathbf{A}(t_0)]}}.
\end{aligned} \tag{A.9}$$

积分式 (A.9) 表明，隧穿后瞬间的初始动量为$\mathbf{p}_{t_0}=\mathbf{k}$，其中$\mathbf{k}$ 是隧穿出口处的动量，见方程 (A.3)。初始位置，也就是“隧穿出口”点，可写为$\mathbf{q}_{t_0}=\mathrm{Re}[\int_{t_s}^{t_0}\mathbf{A}(\tau)d\tau]$，如文献 [15, 22, 51] 所示。因此，当$\mathbf{k}$ 随机生成时，$(\mathbf{p}_{t_0},\ \mathbf{q}_{t_0})$ 由蒙特卡洛算法选取。满足鞍点方程 (A.3) 的$\mathbf{k}$ 提供权重 $\propto|I_0|$，用于在蒙特卡洛积分中实施重要性抽样。注意，I_0 是相干态表象中隧穿后瞬间的连续态波函数。换言之，$|I_0|^2$ 与隧穿出口时刻的 Husimi 分布成正比。

将（A.9）代入公式（A.8），并加上所有可能电离时刻的贡献，最终得到[27–29]

$$\begin{aligned}
\psi_c(\mathbf{p},t)\propto\sum_s\iint d\mathbf{p}_{t_0}d\mathbf{q}_{t_0}\left\langle\mathbf{p}|\mathbf{p}_t,\mathbf{q}_t,\gamma\right\rangle C(\mathbf{p}_{t_0},\mathbf{q}_{t_0},t)e^{i(S_{\to}+S_{\downarrow}^0+\mathbf{p}_{t_0}\cdot\mathbf{q}_{t_0})}\\
\times\frac{\left\langle\ \mathbf{p}_{t_0}+\mathbf{A}(t_s)-\mathbf{A}(t_0)\right|\mathbf{r}\cdot\mathbf{E}(t_s)\left|\psi_0\right\rangle}{\sqrt{\mathbf{E}(t_s)\cdot[\mathbf{p}_{t_0}+\mathbf{A}(t_s)-\mathbf{A}(t_0)]}}.
\end{aligned} \tag{A.10}$$

附录 B：关于隧穿矩阵元的计算

1. 隧穿矩阵元及其在 Gaussian 型轨道（GTO）中的展开

一般而言，原子或分子的初始基态可用高斯型轨道（GTO）基组 [52, 53]展开。本文将通过定态薛定谔方程获得的基态波函数拟合为 GTO 基组。

例如，在本研究中，我们分别选用 6-311G 和 cc-pV5Z 作为氢 $1s$ 和氩 $3p$的 GTO 基组。GTO 的指数保持不变，系数则通过线性回归获得。为简单起见，我们以 GTO 基组中仅包含 s-波的情况为例， $\psi_0(\mathbf{r}) = \sum c_j e^{-\alpha_j \mathbf{r}^2}$ （例如氢中的 6-311G），且激光脉冲沿jz 轴线性偏振。此时，SFHK 中使用的隧穿矩阵元可写为

$$\begin{aligned}
\langle\, \mathbf{k}|\, \mathbf{r}\cdot\mathbf{E}(t)\,|\psi_0\rangle &= E_z(t)\,\langle\, \mathbf{k}|\, z\,|\psi_0\rangle \\
&= E_z(t)\int d\mathbf{r}\ \langle \mathbf{k}|\mathbf{r}\rangle\, z\,\langle \mathbf{r}|\psi_0\rangle \\
&= E_z(t)\int d\mathbf{r} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} z \sum_j c_j e^{-\alpha_j \mathbf{r}^2} \\
&\propto E_z(t)\sum_j c_j \int e^{-\alpha_j x^2 - ik_x x}dx \int e^{-\alpha_j y^2 - ik_y y}dy \int z e^{-\alpha_j z^2 - ik_z z}dz \\
&\propto E_z(t) k_z \sum_j \frac{c_j}{\sqrt{\alpha_j^5}} e^{\frac{-\mathbf{k}^2}{4\alpha_j}}.
\end{aligned} \tag{B.1}$$

通过变量代换，可得

$$\langle\, \mathbf{p}_{t_0} + \mathbf{A}(t_s) - \mathbf{A}(t_0)|\, \mathbf{r}\cdot\mathbf{E}(t)\,|\psi_0\rangle \propto E_z(t)[p_{z_{t_0}} + A_z(t_s) - A_z(t_0)] \sum_j \frac{c_j}{\sqrt{\alpha_j^5}} e^{\frac{-[\mathbf{p}_{t_0}+\mathbf{A}(t_s)-\mathbf{A}(t_0)]^2}{4\alpha_j}}. \tag{B.2}$$

对于 p 波 GTO， $\psi_0(\mathbf{r}) = z\sum c_j e^{-\alpha_j \mathbf{r}^2}$, 隧穿矩阵元为$j$

$$\langle\, \mathbf{k}|\, \mathbf{r}\cdot\mathbf{E}(t)\,|\psi_0\rangle \propto E_z(t)\sum_j \frac{c_j}{\sqrt{\alpha_j^7}} e^{\frac{-\mathbf{k}^2}{4\alpha_j}}(-k_z^2 + 2\alpha_j). \tag{B.3}$$

2. 修正鞍点法

对于库仑势，式 (A.10) 中的隧穿矩阵元会变为奇异 [46]。在这种情况下，可采用参考文献 [46], 中的修正鞍点法，该方法给出了隧穿后的连续态波函数:

$$\psi(\mathbf{k}, t_0) \propto \sum_s \frac{e^{iS_\downarrow^0(\mathbf{k},t_s)}}{\mathbf{E}(t_s)\cdot[\mathbf{k} + \mathbf{A}(t_s) - \mathbf{A}(t_0)]}. \tag{B.4}$$

于是，SFHK波函数 (A.10) 可简化为 [27–29]

$$\psi(\mathbf{p}, t) \propto \sum_s \iint d\mathbf{p}_{t_0} d\mathbf{q}_{t_0}\, \langle \mathbf{p}|\mathbf{p}_t, \mathbf{q}_t, \gamma\rangle\, C(\mathbf{p}_{t_0}, \mathbf{q}_{t_0}, t) \frac{e^{i(S_\rightarrow + S_\downarrow^0 + \mathbf{p}_{t_0}\cdot\mathbf{q}_{t_0})}}{\mathbf{E}(t_s)\cdot[\mathbf{p}_{t_0} + \mathbf{A}(t_s) - \mathbf{A}(t_0)]}. \tag{B.5}$$

附录 C：GTO 基组中偶极矩与偶极速度的计算

1. 偶极矩

在 SFHK 中，沿激光偏振轴方向的偶极矩可表示为

$$
\begin{aligned}
D_z(t) &= -\langle\, \Psi(t)|\, z\,|\Psi(t)\rangle \\
&= -\left\langle\, \psi_0 e^{iI_p t} + \psi_c(t)\right|\, z\,\left|\psi_0 e^{iI_p t} + \psi_c(t)\right\rangle \\
&\approx -\left\langle\, \psi_0 e^{iI_p t}\right|\, z\,|\psi_c(t)\rangle + c.c. \\
&\propto -\sum_s \iint d\mathbf{p}_{t_0} d\mathbf{q}_{t_0} e^{iI_p t}\,\langle\, \psi_0|\, z\,|\mathbf{p}_t, \mathbf{q}_t, \gamma\rangle\, C(\mathbf{p}_{t_0}, \mathbf{q}_{t_0}, t) e^{i(S_{\rightarrow} + S^0_{\downarrow} + \mathbf{p}_{t_0}\cdot\mathbf{q}_{t_0})} \\
&\qquad \times \frac{\langle\, \mathbf{p}_{t_0} + \mathbf{A}(t_s) - \mathbf{A}(t_0)|\, \mathbf{r}\cdot\mathbf{E}(t_s)\,|\psi_0\rangle}{\sqrt{\mathbf{E}(t_s)\cdot[\mathbf{p}_{t_0} + \mathbf{A}(t_s) - \mathbf{A}(t_0)]}} + c.c.
\end{aligned}
\tag{C.1}
$$

对于 s 波，采用上述 GTO 展开的相同方法，公式 (C.1) 中的偶极矩矩阵元可写为

$$
\begin{aligned}
\langle\, \psi_0|\, z\,|\mathbf{p}_t, \mathbf{q}_t, \gamma\rangle &= \int d\mathbf{r}\,\langle\psi_0|\mathbf{r}\rangle\, z\,\langle\mathbf{r}|\mathbf{p}_t, \mathbf{q}_t, \gamma\rangle \\
&\propto \int d\mathbf{r} \sum_j c_j e^{-\alpha_j \mathbf{r}^2} z e^{-\gamma(\mathbf{r}-\mathbf{q}_t)^2 + i\mathbf{p}_t\cdot(\mathbf{r}-\mathbf{q}_t)} \\
&\propto \sum_j c_j e^{-\gamma\mathbf{q}_t^2 - i\mathbf{p}_t\cdot\mathbf{q}_t} \int e^{-(\gamma+\alpha_j)x^2 + (2\gamma q_x + ip_x)x} dx \\
&\qquad \times \int e^{-(\gamma+\alpha_j)y^2 + (2\gamma q_y + ip_y)y} dy \\
&\qquad \times \int z e^{-(\gamma+\alpha_j)z^2 + (2\gamma q_z + ip_z)z} dz \\
&\propto (2\gamma q_z + ip_z) \sum_j \frac{c_j}{\sqrt{(\gamma+\alpha_j)^5}} e^{\frac{-\mathbf{p}_t^2 - 4\alpha_j(\gamma\mathbf{q}_t^2 + i\mathbf{p}_t\cdot\mathbf{q}_t)}{4(\gamma+\alpha_j)}}.
\end{aligned}
\tag{C.2}
$$

对于 p 波 GTO，偶极矩变为

$$
\langle\, \psi_0|\, z\,|\mathbf{p}_t, \mathbf{q}_t, \gamma\rangle \propto \sum_j \frac{c_j}{\sqrt{(\gamma+\alpha_j)^7}} e^{\frac{-\mathbf{p}_t^2 - 4\alpha_j(\gamma\mathbf{q}_t^2 + i\mathbf{p}_t\cdot\mathbf{q}_t)}{4(\gamma+\alpha_j)}} [(2\gamma q_z + ip_z)^2 + 2(\gamma+\alpha_j)]. \tag{C.3}
$$

2. 偶极速度

与偶极矩的情况类似，SFHK 构造的偶极速度可写为

$$
\begin{aligned}
v_z(t) &= -\langle\, \Psi(t)|\, k_z\,|\Psi(t)\rangle \\
&\propto -\sum_s \iint d\mathbf{p}_{t_0} d\mathbf{q}_{t_0} e^{iI_p t}\,\langle\, \psi_0|\, k_z\,|\mathbf{p}_t, \mathbf{q}_t, \gamma\rangle\, C(\mathbf{p}_{t_0}, \mathbf{q}_{t_0}, t) e^{i(S_{\rightarrow} + S^0_{\downarrow} + \mathbf{p}_{t_0}\cdot\mathbf{q}_{t_0})} \\
&\qquad \times \frac{\langle\, \mathbf{p}_{t_0} + \mathbf{A}(t_s) - \mathbf{A}(t_0)|\, \mathbf{r}\cdot\mathbf{E}(t_s)\,|\psi_0\rangle}{\sqrt{\mathbf{E}(t_s)\cdot[\mathbf{p}_{t_0} + \mathbf{A}(t_s) - \mathbf{A}(t_0)]}} + c.c.
\end{aligned}
\tag{C.4}
$$

对于 s-波 Gaussian 基组，偶极速度矩阵元为

$$\begin{aligned}\langle\,\psi_0|\,k_z\,|\mathbf{p}_t,\mathbf{q}_t,\gamma\rangle &= \int d\mathbf{k}\,\langle\psi_0|\mathbf{k}\rangle\,k_z\,\langle\mathbf{k}|\mathbf{p}_t,\mathbf{q}_t,\gamma\rangle \\ &\propto \int d\mathbf{k}\sum_j \frac{c_j}{\sqrt{\alpha_j^3}} e^{-\frac{\mathbf{k}^2}{4\alpha_j}}\,k_z e^{-\frac{(\mathbf{k}-\mathbf{p}_t)^2}{4\gamma}-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{q}_t} \\ &\propto \sum_j \frac{c_j}{\sqrt{\alpha_j^3}} e^{-\frac{\mathbf{p}_t^2}{4\gamma}} \int e^{\frac{-(\gamma+\alpha_j)k_x^2+(2\alpha_j p_x-4i\gamma\alpha_j q_x)k_x}{4\gamma\alpha_j}}dk_x \\ &\qquad\times\int e^{\frac{-(\gamma+\alpha_j)k_y^2+(2\alpha_j p_y-4i\gamma\alpha_j q_y)k_y}{4\gamma\alpha_j}}dk_y \\ &\qquad\times\int k_z e^{\frac{-(\gamma+\alpha_j)k_z^2+(2\alpha_j p_z-4i\gamma\alpha_j q_z)k_z}{4\gamma\alpha_j}}dk_z \\ &\propto (p_z-2i\gamma q_z)\sum_j \frac{c_j\alpha_j}{\sqrt{(\gamma+\alpha_j)^5}} e^{\frac{-\mathbf{p}_t^2-4\alpha_j(\gamma\mathbf{q}_t^2+i\mathbf{p}_t\cdot\mathbf{q}_t)}{4(\gamma+\alpha_j)}}.\end{aligned} \tag{C.5}$$

对于 p-波基组，可得

$$\langle\,\psi_0|\,k_z\,|\mathbf{p}_t,\mathbf{q}_t,\gamma\rangle \propto \sum_j \frac{c_j\alpha_j}{\sqrt{(\gamma+\alpha_j)^7}} e^{\frac{-\mathbf{p}_t^2-4\alpha_j(\gamma\mathbf{q}_t^2+i\mathbf{p}_t\cdot\mathbf{q}_t)}{4(\gamma+\alpha_j)}}\left[\frac{(p_z-2i\gamma q_z)^2}{2\gamma}+\frac{\gamma+\alpha_j}{\alpha_j}\right]. \tag{C.6}$$

附录 D：高次谐波产生谱的计算

得到含时诱导偶极矩或偶极速度后，可利用傅里叶变换计算高次谐波产生谱

$$\begin{aligned} D_z(\omega) &= \int D_z(t)W_H(t)e^{i\omega t}dt, \\ v_z(\omega) &= \int v_z(t)W_H(t)e^{i\omega t}dt, \end{aligned} \tag{D.1}$$

其中，$W_H(t) = 0.5\left[1+\cos\left(\frac{\pi t}{\tau_H}\right)\right]$ 是汉宁窗函数，用于在激光脉冲 [63]结束时平滑地将偶极矩降至零。因此，窗函数的宽度 τ_H选择为使得激光脉冲结束时 $W_H(t) = 0$。我们确认，本文所示高次谐波谱的产额与 $|D_z(\omega)|^2\omega^4 \approx |v_z(\omega)|^2\omega^2$成正比，这与参考文献 [41]中的推导一致。需要指出的是，TDSE和SFHK的偶极矩或偶极速度均使用相同的汉宁窗。

---

[1] J. L. Krause、K. J. Schafer 和 K. C. Kulander，《强场强度区间内原子和离子的高次谐波产生》，《物理评论快报》**68**，3535（1992年）。[2] P. B. Corkum，《强场多光子电离的等离子体视角》，《物理评论快报》**71**，1994（1993年）。[3] M. Lewenstein、P. Balcou、M. Y. Ivanov、A. L 'Huillier 和 P. B. Corkum，《低频激光场驱动高次谐波产生的理论》，《物理评论A》**49**，2117（1994年）。[4] P. Botheron 和 B. Pons，《强短激光脉冲中的单电子原子：经典描述与量子描述的比较》，《物理评论A》**80**，023402（2009年）。[5] H. Soifer、P. Botheron、D. Shafir、A. Diner、O. Raz、B. D. Bruner、Y. Mairesse、B. Pons 和 N. Dudovich，《取向分子的近阈值高次谐波光谱学》，《物理评论快报》**105**，143904（2010年）。[6] J. Higuet、H. Ruf、N. Thir´e、R. Cireasa、E. Constant、E. Cormier、D. Descamps、E. M´evel、S. Petit、B. Pons、Y. Mairesse 和 B. Fabre，《氩中库珀极小值的高次谐波光谱学：实验与理论研究》，《物理评论A》**83**，053401（2011年）。[7] P. M. Abanador、F. Mauger、K. Lopata、M. B. Gaarde 和 K. J. Schafer，《椭圆偏振激光场驱动高次谐波产生的半经典建模：再碰撞周期轨道的作用》，《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》**50**，035601（2017年）。

[8] B. Wang, Y. Zhang, P. Lan, C. Zhai, M. Li, X. Zhu, J. Chen, P. Lu, and C. D. Lin, 稀有气体中近阈值谐波产生的椭圆率反常依赖性, 《物理评论A》103, 053119 (2021年)。[9] B. Wang, Y. Fu, K. Wang, Z. Guan, and C. Jin, 利用扩展量子轨迹蒙特卡罗模型分析不同原子和激光强度下近阈值谐波的波长依赖性, 《光学快报》32, 34034 (2024年)。[10] M. Li, J.-W. Geng, H. Liu, Y. Deng, C. Wu, L.-Y. Peng, Q. Gong, and Y. Liu, 阈上电离的经典-量子对应, 《物理评论快报》112, 113002 (2014年)。[11] N. I. Shvetsov-Shilovski, M. Lein, L. B. Madsen, E. R¨as¨anen, C. Lemell, J. Burgd¨orfer, D. G. Arb´o, and K. T¨okesi, 强场电离的半经典两步模型, 《物理评论A》94, 013415 (2016年)。[12] N. I. Shvetsov-Shilovski, 强场物理中的基于轨迹的模型, 《激光物理》35, 123001 (2025年)。[13] T.-M. Yan, S. V. Popruzhenko, M. J. J. Vrakking, and 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年)。[14] S. V. Popruzhenko, G. G. Paulus, and D. Bauer, 强场电离中的库仑修正量子轨迹, 《物理评论A》77, 053409 (2008年)。[15] X.-Y. Lai, C. Poli, H. Schomerus, and C. F. d. M. Faria, 库仑势对阈上电离的影响：超越强场近似的量子轨道分析, 《物理评论A》92, 043407 (2015年)。[16] C. F. de Morisson Faria and A. S. Maxwell, 一切皆关乎相位：超快全息光电子成像, 《物理学进展报告》83, 034401 (2020年)。[17] J. A. Hostetter, J. L. Tate, K. J. Schafer, and M. B. Gaarde, 阈下谐波的半经典方法, 《物理评论A》82, 023401 (2010年)。[18] F. Mauger, P. M. Abanador, K. Lopata, K. J. Schafer, and M. B. Gaarde, 高次谐波产生的半经典波函数视角, 《物理评论A》93, 043815 (2016年)。[19] W. Koch and D. J. Tannor, 利用复经典轨迹描述高次谐波产生的三步模型, 《物理学年鉴》 427, 168288 (2021 年)。[20] G. van de Sand and J. M. Rost, 不规则轨道产生更高次谐波, 《物理评论快报》83, 524 (1999年)。[21] G. van de Sand and J. M. Rost, 多光子过程的半经典描述, 《物理评论A》62, 053403 (2000年)。[22] S. Brennecke, N. Eicke, and M. Lein, 强场电离产生的电子波中的 Gouy 相位反常, 《物理评论快报》124, 153202 (2020年)。[23] K. G. Kay, 半经典含时传播子的积分表达式, J. Chem. Phys. 100, 4377 (1994)。[24] D. J. Tannor and S. Garashchuk, 通过波包关联函数对化学反应动力学进行半经典计算, 《物理化学年度评论》51, 553 (2000年)。[25] M. F. Herman and E. Kluk, 在动力学计算中使用不扩散波包的半经典依据, Chem. Phys. 91, 27 (1984年)。[26] F. Grossmann and A. L. Xavier, 从相干态路径积分到量子力学传播子的半经典初值表示, Physics Letters A 243, 243 (1998年)。[27] P.-H. Tran, V.-H. Hoang, and A.-T. Le, 半经典方法揭示激光诱导电子衍射中的量子路径干涉 (2024年), arXiv:2408.12721 [physics.atom-ph].[28] M. Hasan, P.-H. Tran, J. Gao, V.-H. Hoang, M.-S. Tsai, M.-C. Chen, U. Thumm, C. L. Cocke, C.-D. Lin, A.-T. Le, and M. Han, 利用近单周期镱激光进行强场光电子干涉测量, 《物理评论快报》135, 263001 (2025年)。[29] E. McManus, P.-H. Tran, M. Davino, T. Saule, V.-H. Hoang, T. Weinacht, G. Gibson, A.-T. Le, and C. A. Trallero-Herrero, 单个椭圆偏振激光脉冲通过多光子电离产生的电子涡旋态中的延迟 (2025年), arXiv:2509.22817 [physics.atom-ph].[30] C. Zagoya, C.-M. Goletz, F. Grossmann, and J.-M. Rost, 激光辅助碰撞中高次谐波产生的主导相互作用哈密顿量, 《物理评论A》85, 041401 (2012年)。[31] C. Zagoya, C.-M. Goletz, F. Grossmann, and J.-M. Rost, 一种高次谐波产生的解析方法, 《新物理学杂志》14, 093050 (2012年)。[32] C. Zagoya, J. Wu, M. Ronto, D. V. Shalashilin, and C. F. d. M. Faria, 利用初值表示研究强场中波包的量子与半经典相空间动力学, 《新物理学杂志》16, 103040 (2014年)。[33] M. Spanner, 通过实值经典轨迹描述强场隧穿电离, 《物理评论快报》90, 233005 (2003年)。[34] M. W. Walser and T. Brabec, 强激光场物理的半经典路径积分理论, J. Phys. B 36, 3025 (2003年)。[35] W. Xie, M. Li, Y. Zhou, and P. Lu, 强场电离的量子修正半经典理论, 《物理评论A》108, 063102 2023( )。[36] A.-T. Le, R. R. Lucchese, S. Tonzani, T. Morishita, and C. D. Lin, 分子高次谐波产生的定量再散射理论, 《物理评论A》80, 013401 (2009年)。[37] C. D. Lin, A.-T. Le, Z. Chen, T. Morishita, and R. Lucchese, 强场再散射物理：分子利用自身电子实现自成像, J. Phys. B 43, 122001 (2010年)。[38] C. D. Lin, A.-T. Le, C. Jin, and H. Wei, *Attosecond and Strong-Field Physics: Principles and Applications* (剑桥大学出版社, 2018年)。[39] M. Ammosov, N. Delone, and V. Krainov, 《苏联物理学报》64, 1191 (1986年)。[40] K. Burnett, V. C. Reed, J. Cooper, and P. L. Knight, 高次谐波产生期间辐射的背景的计算, 《物理评论A》45, 3347 (1992年)。[41] A. D. Bandrauk, S. Chelkowski, D. J. Diestler, J. Manz, and K.-J. Yuan, 氢原子高次谐波谱的量子模拟, 《物理评论A》79, 023403 (2009年)。

[42] M. B. Gaarde、J. L. Tate 和 K. J. Schafer，阿秒脉冲产生的宏观特性，《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》41，132001（2008年）。[43] T. Popmintchev、M.-C. Chen、D. Popmintchev、P. Arpin、S. Brown、S. Alisauskas、G. Andriukaitis、T. Balciunas、O. D. M¨ucke、A. Pugzlys、A. Baltuska、B. Shim、S. E. Schrauth、A. Gaeta、H.-G. Carlos、L. Plaja、A. Becker、A. Jaron-Becker、M. M. Murnane 和 H. C. Kapteyn，利用中红外飞秒激光器在千电子伏特X射线波段产生明亮的相干超高次谐波，《科学》336，1287（2012年）。[44] M. Y. Ivanov、M. Spanner 和 O. Smirnova，强场电离剖析，《现代光学杂志》52，165（2005）。[45] D. Bauer、D. B. Milo˘sevi´c 和 W. Becker，强激光—原子过程的强场近似：规范的选择，《物理评论A》72，023415（2005）。[46] D. B. Milosevic、G. G. Paulus、D. Bauer 和 W. Becker，少周期脉冲引发的阈上电离，《物理学杂志B》39，R203（2006）。[47] S. Brennecke 和 M. Lein，超越电偶极近似的强场光电子全息：半经典分析，《物理评论A》100，023413（2019）。[48] E. Kluk、M. F. Herman 和 H. L. Davis，比较半经典冻结高斯波函数传播与高度激发非谐振子的量子传播，《化学物理杂志》84，326（1986）。[49] K. G. Kay，动力学半经典初值方法的数值研究，《化学物理杂志》100，4432（1994）。[50] K. G. Kay，利用初值方法进行多维系统的半经典传播，《化学物理杂志》101，2250（1994）。[51] 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）。[52] W. J. Hehre、R. F. Stewart 和 J. A. Pople，自洽分子轨道方法。I. 使用斯莱特型原子轨道的高斯展开，《化学物理杂志》51，2657（1969）。[53] R. Ditchfield、W. J. Hehre 和 J. A. Pople，自洽分子轨道方法。IX. 用于有机分子分子轨道研究的扩展高斯型基组，《化学物理杂志》54，724（1971）。[54] M. J. Frisch、G. W. Trucks、H. B. Schlegel、G. E. Scuseria、M. A. Robb、J. R. Cheeseman、G. Scalmani、V. Barone、B. Mennucci、G. A. Petersson、H. Nakatsuji、M. Caricato、X. Li、H. P. Hratchian、A. F. Izmaylov、J. Bloino、G. Zheng、J. L. Sonnenberg、M. Hada、M. Ehara、K. Toyota、R. Fukuda、J. Hasegawa、M. Ishida、T. Nakajima、Y. Honda、O. Kitao、H. Nakai、T. Vreven、J. A. Montgomery, Jr.、J. E. Peralta、F. Ogliaro、M. Bearpark、J. J. Heyd、E. Brothers、K. N. Kudin、V. N. Staroverov、R. Kobayashi、J. Normand、K. Raghavachari、A. Rendell、J. C. Burant、S. S. Iyengar、J. Tomasi、M. Cossi、N. Rega、J. M. Millam、M. Klene、J. E. Knox、J. B. Cross、V. Bakken、C. Adamo、J. Jaramillo、R. Gomperts、R. E. Stratmann、O. Yazyev、A. J. Austin、R. Cammi、C. Pomelli、J. W. Ochterski、R. L. Martin、K. Morokuma、V. G. Zakrzewski、G. A. Voth、P. Salvador、J. J. Dannenberg、S. Dapprich、A. D. Daniels、Farkas、J. B. Foresman、J. V. Ortiz、J. Cioslowski 和 D. J. Fox，Gaussian09 修订版 E.01，Gaussian Inc.，美国康涅狄格州沃灵福德，2009年。[55] G. M. J. Barca、C. Bertoni、L. Carrington、D. Datta、N. De Silva、J. E. Deustua、D. G. Fedorov、J. R. Gour、A. O. Gunina、E. Guidez、T. Harville、S. Irle、J. Ivanic、K. Kowalski、S. S. Leang、H. Li、W. Li、J. J. Lutz、I. Magoulas、J. Mato、V. Mironov、H. Nakata、B. Q. Pham、P. Piecuch、D. Poole、S. R. Pruitt、A. P. Rendell、L. B. Roskop、K. Ruedenberg、T. Sattasathuchana、M. W. Schmidt、J. Shen、L. Slipchenko、M. Sosonkina、V. Sundriyal、A. Tiwari、J. L. Galvez Vallejo、B. Westheimer、M. Wloch、P. Xu、F. Zahariev 和 M. S. Gordon，通用原子与分子电子结构系统的最新进展，《化学物理杂志》152，154102（2020年）。[56] R. E. Goetz 和 A.-T. Le，准备中。[57] L. Greenman、P. J. Ho、S. Pabst、E. Kamarchik、D. A. Mazziotti 和 R. Santra，用于原子强场过程的含时组态相互作用单激发方法的实现，《物理评论A》82，023406（2010年）。[58] J. Butcher，龙格–库塔方法史，《应用数值数学》20，247（1996）。[59] T. N. Rescigno 和 C. W. McCurdy，量子力学散射问题的数值网格方法，《物理评论A》62，032706（2000）。[60] D. A. Varshalovich、A. N. Moskalev 和 V. K. Khersonskii，*Quantum Theory of Angular Momentum*（世界科学出版社，新加坡，1988年）。[61] E. Polizzi，用于求解特征值问题的基于密度矩阵的算法，《物理评论B》79，115112（2009）。[62] Y.-C. Han 和 L. B. Madsen，量子模拟中长度规范与速度规范在高次谐波产生方面的比较，《物理评论A》81，063430（2010年）。[63] S. Camp、S. Beaulieu、K. J. Schafer 和 M. B. Gaarde，共振激发量子轨迹及其在近阈值谐波产生中的作用，《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》51，064001（2018年）。[64] A.-T. Le、T. Morishita 和 C. D. Lin，从稀有气体原子的高次谐波谱中提取物种依赖的偶极振幅和相位，《物理评论A（原子、分子与光学物理）》78，023814（2008年）。[65] H. J. W¨orner、H. Niikura、J. B. Bertrand、P. B. Corkum 和 D. M. Villeneuve，高次谐波产生中的电子结构极小值观测，《物理评论快报》102，103901（2009年）。[66] H. G. Muller，氩中高次阈上电离增强的数值模拟，《物理评论A》60，1341（1999年）。[67] X. M. Tong、Z. X. Zhao 和 C. D. Lin，分子隧穿电离理论，《物理评论A》66，033402（2002年）。[68] O. I. Tolstikhin、T. Morishita 和 L. B. Madsen，分子隧穿电离理论：包含偶极效应的弱场渐近理论，《物理评论A》84，053423（2011年）。[69] I. S. Wahyutama、D. D. Jayasinghe、F. m. c. Mauger、K. Lopata、M. B. Gaarde 和 K. J. Schafer，绝热区间中角分辨隧穿电离的全电子密度泛函方法，《物理评论A》106，052211（2022年）。

[70] R. Pordes、D. Petravick、B. Kramer、D. Olson、M. Livny、A. Roy、P. Avery、K. Blackburn、T. Wenaus、F. W¨urthwein、I. Foster、R. Gardner、M. Wilde、A. Blatecky、J. McGee 和 R. Quick，开放科学网格，载于 *J. Phys. Conf. Ser.*，78，第78卷（2007年），第012057页。[71] I. Sfiligoi、D. C. Bradley、B. Holzman、P. Mhashilkar、S. Padhi 和 F. Wurthwein，使用glideinWMS获取网格资源的试点方法，载于 *2009 WRI World Congress on Computer Science and Information Engineering*，2，第2卷（2009年），第428–432页。[72] OSG，Ospool（2006年）。[73] OSG，开放科学数据联合会（2015年）。