arXiv:2602.14982v1 [physics.atom-ph] 16 Feb 2026

强红外激光脉冲驱动下 O_2^+ 中的多电子电离

G. P. Katsoulis[1] 和 A. Emmanouilidou[1]伦敦大学学院物理与天文学系，英国伦敦高尔街，*WC1E 6BT*（日期：2026年2月17日）

我们将近期开发的三维半经典模型 [Phys. Rev. **A**109, 033106(2024)] 推广用于研究强红外激光脉冲驱动下 O_2^+ 的多电子电离及高激发里德伯态的形成。我们的模型全面考虑了所有粒子间的库仑相互作用，但束缚电子之间的库仑斥力除外；后者由有效势取代。这种替代克服了人工自电离这一难题。此外，多电子运动与原子核运动被平等处理，也就是说，电子和原子核都可以同时运动。我们重点研究三重电离和双重电离，以及受挫三重电离和受挫双重电离。对于这些过程，我们识别并解释了 O_2^+ 解离后形成的最终离子碎片动能总和的主要特征。我们还描述了受挫三重电离背后的物理机制。

I. 引言

由强红外激光脉冲驱动的分子会呈现多种非线性过程，例如在阿秒科学中起核心作用的多电子电离 [1]。另一种重要过程是形成高度激发的里德伯态，其应用十分广泛，例如可用于加速中性粒子 [2] 以及通过长程相互作用形成分子 [3]。在强红外激光脉冲驱动的 H_2 中，研究表明里德伯态的形成是通过受挫电离实现的。在受挫电离过程中，电子在驱动激光场的作用下发生隧穿电离。然而，它并未逃逸，随后被驱动返回并被母离子重新俘获，从而占据一个里德伯态，即高度激发态 [6]。

大多数关于强驱动分子的研究（即由强红外激光脉冲驱动的分子）都关注双电子分子的双重电离和受挫双重电离[4, 5, 7–17]。尤其是双原子分子，为研究电子关联和原子核运动如何支配阿秒时间尺度上的电离动力学提供了独特平台。关于强驱动三活性电子分子中三电子电离的理论研究仍然很少 [18–20]。这是由于分子强场电离的复杂性所致。事实上，在分子中，原子核运动起着重要作用，因此必须与电子动力学同等对待。然而，在计算中同时考虑多电子效应和原子核运动是一项艰巨的任务。

计算上的挑战还体现在：针对强驱动原子中三个电子电离的理论研究数量有限。尽管与分子研究相比，这项任务较为简单，但仍极具挑战性。现有的大多数原子研究通常在偶极近似下进行，并依靠降维的经典 [21, 22] 或量子力学 [23, 24]模型来应对计算复杂性。然而，这种降维处理会使得对电子间排斥作用的描述不准确。因此，必须采用完整的三维处理。目前，用于研究强驱动原子中三重电离的三维模型仅有经典模型或半经典模型 [22, 25–28]。

对于强驱动分子中的三重电离，在可预见的未来，完全的从头算计算在计算上仍难以实现。目前，这类计算仅限于较简单的过程，例如研究 H_2 [29, 30] 中的双重电离。研究强激光场中多电子电离的另一种方法是采用蒙特卡洛半经典模型。与量子力学技术相比，这些方法的一大优势是计算成本显著降低。此外，半经典模型还能为强场过程背后的物理机制提供宝贵见解。然而，半经典模型面临一项难题：人工自电离。与量子力学不同，经典力学中不存在能量下限。因此，束缚电子可能非常接近原子核，并因库仑奇点而获得很大的负能量。随后，这部分能量可能通过库仑斥力传递给另一个束缚电子，从而可能导致后者发生人工电离。为解决这一问题，大多数经典和半经典模型会软化库仑势 [22, 25, 26] 或引入海森堡型势 [31]。后者通过模拟海森堡不确定性原理，防止电子与原子核过于接近，从而有效软化电子-原子核相互作用 [27, 28]。然而，软化库仑势无法准确描述电子与原子核的散射 [32, 33], , 因此得到的电离谱可能与实验结果存在显著偏差，例如在强驱动的 Ne 和 Ar 中观察到的情况 [34, 35]。

最近，我们开发了一种三维半经典模型，用于研究强激光场驱动下分子的多电子电离与碎裂，同时处理自电离问题 [19]。具体而言，该模型精确地考虑了所有粒子之间的库仑相互作用，但

不包括束缚电子之间的库仑相互作用。具体来说，我们采用有效库仑势取代库仑斥力，以描述束缚电子之间的相互作用，因此将该模型简称为 ECBB。在时间传播过程中，我们实时判断电子处于束缚态还是准自由态，并据此启用完整或有效的库仑相互作用 [19]。分子 ECBB 模型是我们此前为强驱动原子开发的 ECBB 模型的推广 [34–38]。利用 ECBB 模型，我们研究了强驱动三原子 HeH_2^+ [19]中的三重电离和双重电离，以及里德伯态的形成。

在此，我们将近期开发的用于分子的三维 ECBB 模型扩展到 O_2^+ 的强场多电子电离研究。具体而言，对于隧穿电离电子的初始条件，我们通过对束缚电子的电子密度积分，考虑该电子与束缚电子之间的库仑相互作用。在先前的研究中（见参考文献 [18, 19, 39], ），束缚电子的电子密度中的波函数以 s 对称性的高斯函数表示。为了考虑库仑相互作用，本研究采用更复杂的积分方法，使用由高于 s 对称性的波函数表示的电子密度，这与 O_2^+ 相关。此外，我们还修改了时间传播过程中的隧穿处理，以纳入用于描述束缚电子间相互作用的有效势。利用 ECBB 模型，我们研究了三重电离和双重电离，以及受挫三重电离和受挫双重电离。对于这些过程，我们获得了动能释放（KER），即离子碎片动能之和。我们发现，这些 KER 值高于实验结果 [40]。然而，在不考虑有效势导致的动量变化时，我们发现结果与实验符合良好。这使我们能够理解 ECBB 模型的局限性，并确定对于哪些分子，我们的 KER 结果会更接近实验值。最后，我们还发现了 TI、FDI 和 FTI 的主要机制。

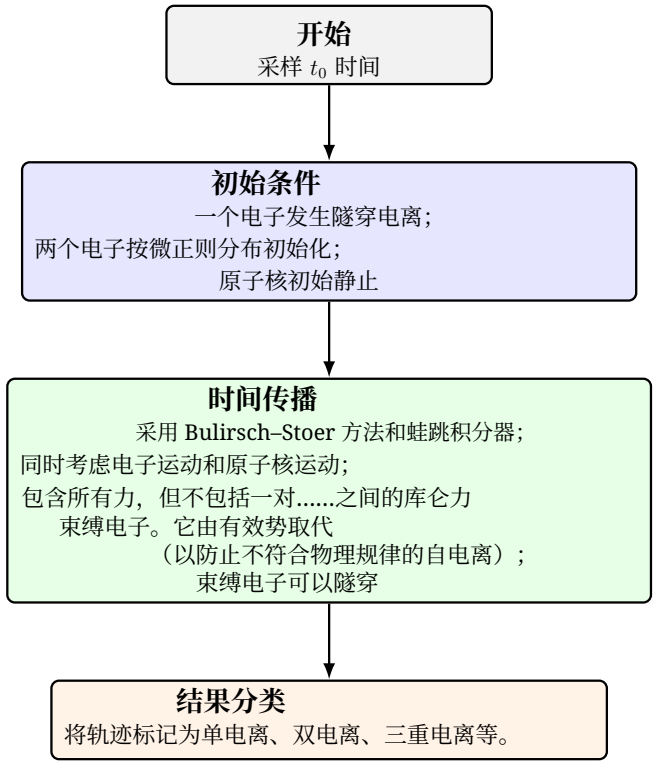

图 1. ECBB模型所涉及主要步骤的示意图。

II. 方法

下文中，我们简要介绍强激光驱动 O_2^+ 时采用的 ECBB 模型，其中 O_2^+ 被建模为一个三活性电子分子。ECBB模型理论框架的详细内容见文献 [19]。我们还将详细讨论如何扩展 ECBB 模型
文献 [19] 中所述，用于描述 O_2^+ 分子。

我们使用如下形式的矢量势来描述驱动激光场：$\mathbf{A}(y, t)$

$$\mathbf{A}(\mathrm{y},\mathrm{t}) = -\frac{E_0}{\omega}\exp\left[-2\ln(2)\left(\frac{\mathrm{ct}-\mathrm{y}}{\mathrm{c}\tau}\right)^2\right]\sin(\omega\mathrm{t}-\mathrm{ky})\hat{\mathbf{z}}, \tag{1}$$

其中 E_0 为场强，ω 为角频率，$\mathrm{k} = \omega/\mathrm{c}$ 为激光场的波数，而 τ 为脉冲持续时间强度的半高全宽。矢势和电场的方向，$\mathbf{E}(y,t) = -\frac{\partial}{\partial t}\mathbf{A}(y,t)$，均沿着 z 轴。我们设激光场的传播方向沿着 y 轴，因此磁场指向 x 轴。需要指出的是，ECBB模型充分考虑了激光场的磁场；然而，本研究不讨论磁场效应。

我们从时刻 t_0开始传播，该时刻通过在电场非零的时间区间$[-2\tau, 2\tau]$ 内进行重要性抽样 [41]确定。抽样分布为电离率，其计算方法详见附录 A。随后，我们指定所有粒子的初始条件。其中一个电子离开分子，方式为隧穿或越垒电离，见第 II B 1 节。其余两个束缚电子则采用微正则分布进行初始化，见第 II B 2 节。两个原子核分别置于 z 轴上，位置为 -$R(t_0)/2$ 和 $R(t_0)/2$，坐标系原点设为分子的质心。我们计算时刻 t_0的核间距 $R(t_0) = 2.114$ 原子单位，以及第一和第二电离能 I_{p1}，计算使用量子化学软件包 MOLPRO [42]。两个原子核的初始速度均为零。

随后采用蛙跳法 [39, 43, 44] 结合 Bulirsch-Stoer 方法 [45, 46]进行时间演化。详情请参见文献。

[19]。时间传播过程中，所有粒子都受到同等对待，也就是说，电子和原子核均按照非偶极哈密顿量的规定同时运动；该哈密顿量充分考虑了激光场的磁场分量。此外，除一对束缚电子之间的相互作用外，所有库仑相互作用都被显式纳入计算。为防止非物理的自电离，这对电子之间的相互作用由有效势取代，详见第 IIA 节。最后，除了隧穿速率之外，我们的模型还纳入了另一种量子效应。也就是说，在时间传播过程中，我们允许每个束缚电子发生隧穿，详见第 IIC 节。当每个粒子的能量都收敛时，我们便停止时间传播。随后，若三个或两个电子的能量为正，我们就分别将该轨迹标记为三重电离或双重电离。我们根据所有事件计算三重电离（TI）和双重电离（DI）的概率。图 1 展示了 ECBB 模型所涉及主要步骤的示意图。

A. 系统的哈密顿量

我们将O_2^+视为三活性电子分子。由2个原子核（指标1和2）和3个电子（指标3、4和5）组成的五体系统，在非偶极近似下的相关哈密顿量由下式给出

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

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

$$\mathbf{p}_i = \tilde{\mathbf{p}}_i - Q_i \mathbf{A}(\mathbf{r}_i,t). \tag{3}$$

电子 i 在距原子核 n的距离 $|\mathbf{r}_n - \mathbf{r}_i|$ 处，因电子 j 的电荷分布而感受到的有效库仑势由 [34, 47]给出

$$V_{\text{eff}}(\zeta_{j,n}(t), |\mathbf{r}_n - \mathbf{r}_i|) = \frac{1 - (1 + \zeta_{j,n}|\mathbf{r}_n - \mathbf{r}_i|)e^{-2\zeta_{j,n}|\mathbf{r}_n - \mathbf{r}_i|}}{|\mathbf{r}_n - \mathbf{r}_i|}, \tag{4}$$

其中$\zeta_{j,n}$ 为电子 j [34, 47]的有效电荷。我们注意到，当电子 i 与其中一个原子核发生近距离接近，即$\mathbf{r}_i \to \mathbf{r}_n$时，有效势等于$\zeta_{j,n}$，从而确保束缚电子 i与 j之间发生有限的能量转移。因此，不会发生人工自电离。

粒子 j 在 t 时的有效电荷 $\zeta_{j,n}(t)$ 为定义为

$$\zeta_{j,n}(t) = \begin{cases} Q_n & \mathcal{E}_j(t) \le \mathcal{E}_{1s} \\ (Q_n/\mathcal{E}_{1s})\,\mathcal{E}_j(t) & \mathcal{E}_{1s} < \mathcal{E}_j(t) < 0 \\ 0 & \mathcal{E}_j(t) \ge 0, \end{cases} \tag{5}$$

其中， Q_n 是原子核 n的电荷， $\mathcal{E}_{1s}$ 是核电荷为 Q_n的类氢原子的基态能量之和，即 $\mathcal{E}_{1s} = \sum_{n=1}^{2} -Q_n^2/2$，而 $\mathcal{E}_j(t)$ 是电子 j 的能量，定义为

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_j(t) = {} & \frac{[\tilde{\mathbf{p}}_j - Q_j \mathbf{A}(\mathbf{r}_j,t)]^2}{2m_j} + \sum_{n=1}^{2} \frac{Q_n Q_j}{|\mathbf{r}_n - \mathbf{r}_j|} \\ & + \sum_{n=1}^{2}\sum_{\substack{i=3 \\ i\neq j}}^{5} c_{i,j}(t) C_{i,n}(\mathcal{E}_i, |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_i|, |\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_i|) \\ & \times V_{\text{eff}}(\zeta_{i,n}(t), |\mathbf{r}_n - \mathbf{r}_j|) - Q_j \mathbf{r}_j \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}_j,t). \end{aligned} \tag{6}$$

将 $\mathcal{E}_{1s}$ 定义为类氢原子能量之和$\sum_{n=1}^{2} -Q_n^2/2$，源于 $\mathcal{E}_j(t)$是用涉及所有原子核的项表示的。事实上，尽管有效电荷$\zeta_{j,\ n}(t)$与原子核 n相关联，但电子 j 的能量包含一些无法在两个原子核之间划分的项，例如动能。

哈密顿量中的势$V_{i,\ j}$ （2）定义为以下有效势之和

$$\begin{aligned} V_{i,j} = \sum_{n=1}^{2} \Big[& C_{j,n}(\mathcal{E}_j, |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_j|, |\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_j|) V_{\text{eff}}(\zeta_{j,n}(t), |\mathbf{r}_n - \mathbf{r}_i|) \\ & + C_{i,n}(\mathcal{E}_i, |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_i|, |\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_i|) V_{\text{eff}}(\zeta_{i,n}(t), |\mathbf{r}_n - \mathbf{r}_j|) \Big], \end{aligned}$$

其中，$C_{i,\ n}(\mathcal{E}_i,\ |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_i|,\ |\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_i|)$是概率分布$\rho_{i,\ n}$ 表示在不存在其他原子核时，电子 i 出现在原子核n周围的概率，再除以所有不同原子核对应的此类分布之和

$$C_{i,n}(\mathcal{E}_i, |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_i|, |\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_i|) = \frac{\rho_{i,n}}{\sum_{n'=1}^{2} \rho_{i,n'}}, \tag{7}$$

with

$$\rho_{i,n}(t) = |\psi(\zeta_i, |\mathbf{r}_n - \mathbf{r}_i|)|^2 = \frac{\zeta_{i,n}^3}{\pi} e^{-2\zeta_{i,n}(t)|\mathbf{r}_n - \mathbf{r}_i|}, \tag{8}$$

其中，我们用 $1s$ 氢样波函数近似每个束缚电子的波函数 i 。

在传播过程中，每个时间步，函数 $c_{i,j}(t)$ 决定电子 i, j 之间的相互作用由完整的库仑势还是由有效势 $V_{\text{eff}}(\zeta_i, |\mathbf{r}_n - \mathbf{r}_j|)$ 和$V_{\text{eff}}(\zeta_j, |\mathbf{r}_n - \mathbf{r}_i|)$ 描述。$c_{i,j}(t)$ 的精确数学定义见参考文献 [19]，； $c_{i,j}(t) = 0$ 对应完整的库仑势，而 $c_{i,\ j}(t)\ = 1$ 对应有效势。仅当电子对 (i, j) 中的两个电子都被归类为束缚态时，才使用有效势。如果至少一个电子为准自由态，则使用完整的库仑势。我们确

定在时间传播过程中实时判断电子处于束缚态还是准自由态。为作出这一判断，我们采用以下标准。准自由电子在再碰撞后可能转变为束缚态。具体而言，当它到达与原子核最近的接近点后，若其随后沿 z 轴的运动主要受库仑引力势而非激光场支配，则将其标记为束缚态。反之，束缚电子可能通过再碰撞中的能量转移或经由激光场转变为准自由态。在前一种情况下，当电子相对于原子核的势能持续下降时，便发生这种转变。在后一种情况下，若电子的补偿能量 [48]变为正值并保持为正，则将其视为准自由态。参考文献 [34] 对这些标准作了详细讨论，并提供了示例。需要指出的是，在时间 t_0，即时间传播开始时，其中一个电子（编号 5）发生隧穿电离，而另外两个电子（编号 3 和 4）处于束缚态。因此，我们有 $c_{3,4}(t_0) = 1$ 以及 $c_{3,5}(t_0) = c_{4,5}(t_0) = 0$.

B. 电子的初始条件

1. 隧穿电离电子

在传播 t_0 开始时，一个电子（以指标 5 表示）通过被电场降低的库仑势垒发生隧穿电离。若场强处于势垒下电离区间，则属于这种情况。为求出出射点，我们使用如下方程

$$V(r_{5,\parallel},t) = -\frac{Q_1}{|\mathbf{r}_1-\mathbf{r}_5|} - \frac{Q_2}{|\mathbf{r}_2-\mathbf{r}_5|} + \sum_{i=3}^{4}\int \frac{|\Psi(\mathbf{r}_i)|^2}{|\mathbf{r}_5-\mathbf{r}_i|}\mathrm{d}\mathbf{r}_i + \mathbf{r}_5\cdot\mathbf{E}(t) = -I_{p1}, \tag{9}$$

其中 Q_1, Q_2 为两个原子核的电荷，在本研究中均为 2 a.u.，而 $\mathbf{r}_1$,$\mathbf{r}_2$ 为原子核的位置矢量。隧穿电离电子的位置矢量为 $\mathbf{r}_5$。我们在偶极近似下指定初始条件，即忽略电场的空间依赖性，$\mathbf{E}(t) \equiv \mathbf{E}(0,t)$。如引言中所述，在扩展ECBB模型中，波函数 $\Psi(\mathbf{r}_i)$ 在高于 s对称性的高斯函数基组中展开。相比之下，在我们先前的工作中（见文献 [18, 19, 39], ），仅考虑了最高为 s对称性的情况。我们针对 $r_{5,\parallel}$求解式（9），即 $\mathbf{r}_5$ 沿电场方向的分量，同时将 $\mathbf{r}_5$ 垂直于电场的分量设为零。积分 $\int |\Psi(\mathbf{r}_{5}-\mathbf{r}_{i}|^2)\,\mathbf{r}\,\mathbf{r}\,\mathrm{d}\mathbf{r}_i$，计入了束缚电子 i的电荷分布产生的隧穿电离电子势。本研究中，我们将 ~~O_2^+~~建模为一个三活性电子分子。

O_2 基态的电子组态为

$$\left(1\sigma_g^2, 1\sigma_u^2, 2\sigma_g^2, 2\sigma_u^2, 3\sigma_g^2, 1\pi_{ux}^2, 1\pi_{uy}^2, 1\pi_{gx}^1, 1\pi_{gy}^1\right), \tag{10}$$

两个最外层轨道是简并的。因此，就我们的半经典计算而言，一个电子是从 O_2 的 $1\pi_{gx}^1$ 轨道还是 $1\pi_{gy}^1$ 轨道缺失并无差别。我们选择了后者，从而使 O_2^+ 基态的电子组态为

$$\left(1\sigma_g^2, 1\sigma_u^2, 2\sigma_g^2, 2\sigma_u^2, 3\sigma_g^2, 1\pi_{ux}^2, 1\pi_{uy}^2, 1\pi_{gx}^1\right). \tag{11}$$

使用 MOLPRO，我们发现最外层轨道的能量 $1\pi_{gx}^1$ 更小，因此，一个电子从 $1\pi_{gx}^1$ 轨道隧穿而出，而两个束缚态电子占据 $1\pi_{uy}^2$ （O_2^{2+}）。我们注意到，剩余的两个电子本可占据 $1\pi_{ux}^2$ 轨道，但由于这两个轨道的简并，计算结果将是等价的。式（9）中的求和取如下形式

$$\sum_{i=3}^{4}\int \frac{|\Psi(\mathbf{r}_i)|^2}{|\mathbf{r}_5-\mathbf{r}_i|}\mathrm{d}\mathbf{r}_i = 2\int \frac{\left|\Psi^{1\pi_{uy}}(\mathbf{r})\right|^2}{|\mathbf{r}_5-\mathbf{r}|}\mathrm{d}\mathbf{r}, \tag{12}$$

为简便起见，我们去掉了电子 i 的位置矢量的下标 i，即 $\mathbf{r} \equiv \mathbf{r}_i$. 为计算该积分，我们将波函数 $\Psi^{1\pi_{uy}}(\mathbf{r})$ 用 N_{contr} 收缩高斯函数表示，即

$$\Psi^{1\pi_{uy}}(\mathbf{r}) = \sum_{j=1}^{2}\sum_{n=1}^{N_{\mathrm{contr}}} c_{j,n}\phi_{j,n}(\mathbf{r}-\mathbf{r}_j) \tag{13}$$

其中，位置矢量为 $\mathbf{r}_j$ 的 j 原子核的 n-收缩高斯函数为

$$\phi_{j,n}(\mathbf{r}-\mathbf{r}_j) = \sum_{i=1}^{m_n}\sum_{k=a}^{c} d_{j,n,i,k}G(\mathbf{r}-\mathbf{r}_j, \alpha_{j,n,i,k}), \tag{14}$$

其中 m_n 为 n收缩高斯函数的基函数数目，$d_{j,\,n,\,i,\,k}$ 为收缩系数。指标 k对 a、b、c在方程（15）中所有对应于同一基函数对称性的组合求和。高斯型基函数的形式为:

$$G(x,y,z;\alpha_{j,n,i,k}) = \mathcal{N}_{abc;\alpha_{j,n,i,k}} x^a y^b z^c e^{-\alpha_{j,n,i,k}\left(x^2+y^2+z^2\right)}, \tag{15}$$

with

$$\mathcal{N}_{abc;\alpha_{j,n,i,k}} = \left(\frac{2\alpha_{j,n,i,k}}{\pi}\right)^{3/4}\left[\frac{(8\alpha_{j,n,i,k})^{a+b+c}a!b!c!}{(2a)!(2b)!(2c)!}\right]^{1/2} \tag{16}$$

一个归一化常数。因此，方程中的积分形式为：

$$\int \frac{\left|\Psi^{1\pi_{uy}}(\mathbf{r})\right|^2}{|\mathbf{r}_5-\mathbf{r}|}\mathrm{d}\mathbf{r}=\sum_{j,j'}\sum_{n,n'}\sum_{i,i'}\sum_{k,k'}c_{j,n}c_{j',n'} \times d_{j,n,i,k}d_{j',n',i',k'}I\left(\mathbf{r}_5,\mathbf{r}_j,\mathbf{r}_{j'},\alpha_{j,n,i,k},\alpha_{j',n',i',k'}\right), \tag{17}$$

其中我们将积分设为

$$I\left(\mathbf{r}_5,\mathbf{r}_j,\mathbf{r}_{j'},\alpha_{j,n,i,k},\alpha_{j',n',i',k'}\right)= \int\frac{G\left(\mathbf{r}-\mathbf{r}_j,\alpha_{j,n,i,k}\right)G\left(\mathbf{r}-\mathbf{r}_{j'},\alpha_{j',n',i',k'}\right)}{|\mathbf{r}_5-\mathbf{r}|}\mathrm{d}\mathbf{r}. \tag{18}$$

我们通过使用 aug- cc-pVQZ 基组的 MOLPRO Hartree-Fock 计算得到系数$c_{j、n}$、 $d_{j、n、i、k}$ 和$\alpha_{j、n、i、k}$。如果高斯函数的对称性允许，则对式（18）中的积分进行解析计算；否则，我们对积分进行数值求解。具体而言，对 s 对称性高斯函数求和时，所得积分为[39]

$$I\left(\mathbf{r}_5,\mathbf{r}_j,\mathbf{r}_{j'},\alpha,\beta\right)=\frac{(4\alpha\beta)^{3/4}}{(\alpha+\beta)^{3/2}}\frac{\mathrm{erf}\left(\sqrt{\alpha+\beta}\,|\mathbf{r}_5-\tilde{\mathbf{r}}|\right)}{|\mathbf{r}_5-\tilde{\mathbf{r}}|} \times\exp\left[-\frac{\alpha\beta\left(\mathbf{r}_j-\mathbf{r}_{j'}\right)^2}{\alpha+\beta}\right] \tag{19}$$

其中 $\tilde{\mathbf{r}}=(\alpha\mathbf{r}_j+\beta\mathbf{r}_{j'})/(\alpha+\beta)$，且 erf($x$) 为误差函数[49]。此外，为简便起见，我们省略了下标 j,n,i,k 和 j',n',i',k'，即 $\alpha\equiv\alpha_{j,n,i,k}$ 和 $\beta\equiv\alpha_{j',n',i',k'}$。对于高斯函数其余的对称性，我们求得该积分为

$$\begin{aligned}
I\left(\mathbf{r}_5,\mathbf{r}_j,\mathbf{r}_{j'},\alpha,\beta\right)&=\frac{2\pi}{\alpha+\beta}N_kN_{k'}\\
&\times\exp\left[-\frac{\alpha\beta\left(\mathbf{r}_j-\mathbf{r}_{j'}\right)^2}{\alpha+\beta}\right]\sum_{k_a=0}^{a}\sum_{k'_a=0}^{a'}\sum_{k_b=0}^{b}\sum_{k'_b=0}^{b'}\sum_{k_c=0}^{c}\sum_{k'_c=0}^{c'}\\
&\times\binom{a}{k_a}\binom{a'}{k'_a}\binom{b}{k_b}\binom{b'}{k'_b}\binom{c}{k_c}\binom{c'}{k'_c}\left[(k_a+k'_a-1)!!\right]\\
&\times\left[(k_b+k'_b-1)!!\right]\left[(k_c+k'_c-1)!!\right]\int_0^1 e^{-(\alpha+\beta)t^2|\tilde{\mathbf{r}}-\mathbf{r}_5|^2}\\
&\times\left[\frac{1-t^2}{2(\alpha+\beta)}\right]^{\left(k_a+k'_a+k_b+k'_b+k_c+k'_c\right)/2}\\
&\times\left[\tilde{r}_x-t^2(\tilde{r}_x-x_5)-x_j\right]^{a-k_a}\\
&\times\left[\tilde{r}_x-t^2(\tilde{r}_x-x_5)-x_{j'}\right]^{a'-k'_a}\\
&\times\left[\tilde{r}_y-t^2(\tilde{r}_y-y_5)-y_j\right]^{b-k_b}\\
&\times\left[\tilde{r}_y-t^2(\tilde{r}_y-y_5)-y_{j'}\right]^{b'-k'_b}\\
&\times\left[\tilde{r}_z-t^2(\tilde{r}_z-z_5)-z_j\right]^{c-k_c}\\
&\times\left[\tilde{r}_z-t^2(\tilde{r}_z-z_5)-z_{j'}\right]^{c'-k'_c}\mathrm{d}t,
\end{aligned} \tag{20}$$

其中我们将相关位置矢量表示为各自的坐标。即 $\mathbf{r}_5=(x_5,y_5,z_5)$、$\mathbf{r}_j=(x_j,y_j,z_j)$、$\mathbf{r}'_j=(x_{j'},y_{j'},z_{j'})$ 和 $\tilde{\mathbf{r}}=(\tilde{r}_x,\tilde{r}_y,\tilde{r}_z)$。此外，归一化常数 N_k 和 $N_{k'}$ 中的下标 k, k' 表示不同的指数 a,b,c 和 a',b',c' [，见式 (15)]，分别对应于指数为 $\alpha\equiv\alpha_{j,n,i,k}$ 和 $\beta\equiv\alpha_{j',n',i',k'}$ 的高斯基函数。我们注意到，式 (20) 中积分的数值计算比计算式 (18) 中的积分容易得多。计算成本的降低源于我们所做的变换将该积分化为一维有限域 [0,1], 上的积分，而非无限区域上的三维积分。因此，尽管所得表达式并非解析形式，该积分仍可高效计算。

关于隧穿电离电子的动量，我们假设它沿电场方向以零动量离开场致降低的库仑势垒。电子横向动量服从高斯分布。后者源自标准隧穿理论 [50–52]，并表现为一个宽度随强度变化的高斯形滤波器。

如果时刻 t_0 的电场场强高于越垒电离的阈值强度，则将电子置于势垒顶端。电子沿电场的反方向，在距离 $r_{\max}$ 处离开，其中 $r_{\max}$ 是沿电场轴的坐标；场致降低的库仑势 $V\left(r_{5、\parallel}、t_0\right)$ 在该处达到最大值。随后，逃逸电子的初始动量大小取为

$$p_5=\sqrt{2\left[(-I_{p1})-V\left(r_{\max},t_0\right)\right]}. \tag{21}$$

$\mathbf{p}_5$ 的方向在空间中随机采样，唯一的限制是$\mathbf{p}_5\cdot\mathbf{E}(t_0)\leqslant 0$。这确保电子沿与瞬时场相反的方向运动。

2. 微正则分布

对于其余两个束缚电子，我们采用微正则分布的简化形式来获得它们的初始位置和动量；该分布在文献 [19] 中针对三原子分子HeH_2^+、以及在文献 [53] 中针对H_3^+有详细描述。具体而言，每个束缚电子 i （其中 $i=3,4$）在时刻 t_0 的能量等于

$$\mathcal{E}_i(t_0)=\frac{\mathbf{p}_i^2}{2m_i}+W_i, \tag{22}$$

其中

$$W_i = \sum_{n=1}^{2} \frac{Q_n Q_i}{|\mathbf{r}_n - \mathbf{r}_i|} + \sum_{n=1}^{2} \sum_{\substack{j=3 \\ i \neq j}}^{4} c_{i,j}(t_0) \times C_{j,n}(\mathcal{E}_j, |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_j|, |\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_j|) V_{\text{eff}}(\zeta_{j,n}(t_0), |\mathbf{r}_n - \mathbf{r}_i|). \tag{23}$$

我们注意到，式（23）中的求和仅针对束缚电子。也就是说，我们考虑的是O_2^{2+}分子中的微正则分布，因为电子5已在O_2^+分子中发生隧穿电离。我们将每个束缚电子的能量取为等于 $-I_{p2}$,其中 I_{p2} 为所考虑分子的第二电离势。我们求得束缚电子的有效电荷$\zeta_{j,n}(t_0)$, ，方法是利用式（5），并取 $\mathcal{E}_j(t_0) = -I_{p2}$。最后，我们注意到，由于函数$C_{j,n}(\mathcal{E}_j, |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_j|, |\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_j|)$，每个电子 i 的势能 W_i 取决于两个束缚电子的坐标。这使得两个束缚电子的微正则分布相互关联，如下所示

$$f(\mathbf{r}_3, \mathbf{p}_3, \mathbf{r}_4, \mathbf{p}_4) = \mathcal{N} \prod_{i=3}^{4} \delta \left[\frac{p_i^2}{2} + W_i - (-I_{p2}) \right], \tag{24}$$

其中 N 是一个归一化常数。

为构建微正则分布，我们将坐标系原点置于原子核 1 和 2 的中点，见图 2。此外， λ_i， μ_i 是电子的共焦椭圆坐标 i ，其定义是以两个原子核为椭圆焦点，且 $\lambda_i \in [1, \infty)$ 和

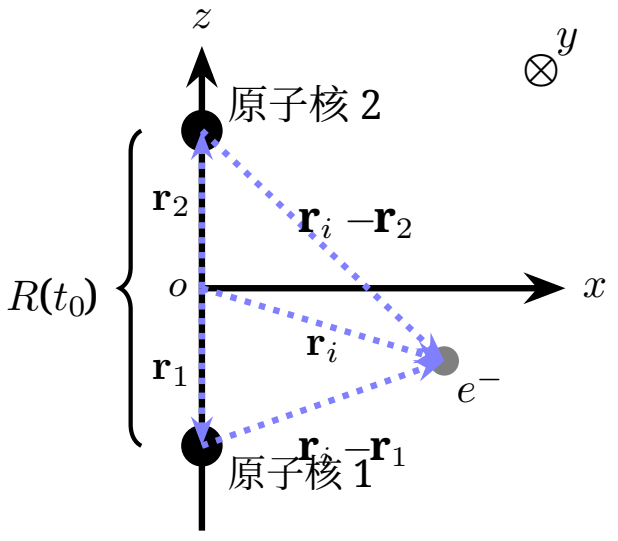

图 2. 用于构建微正则分布的双原子分子构型。坐标系的原点位于原子核 1 和 2 的中点。

$\mu_i \in [-1, 1]$ 且其表达式为

$$\lambda_i = \frac{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_1| + |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_2|}{R(t_0)}, \tag{25}$$

$$\mu_i = \frac{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_1| - |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_2|}{R(t_0)}, \tag{26}$$

其中， $|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_1|$ 和 $|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_2|$ 分别表示电子 i 与两个原子核之间相对位置的大小， $R(t_0)$表示两个原子核之间的距离，见图 2。坐标 ϕ 是束缚电子 i 的位置矢量 $\mathbf{r}_i$ 在 xy 平面上的投影与正 x 轴之间的夹角。 z 轴穿过定义椭圆坐标的两个原子核。因此，角度 ϕ 定义了绕 z 轴的旋转角，详情见 [8]。从笛卡尔坐标变换到椭圆坐标后，我们发现微正则分布具有以下形式

$$\rho(\lambda_3, \mu_3, \phi_3, \lambda_4, \mu_4, \phi_4) = \mathcal{N}' \left(\frac{R_{ab}^3}{8} \right)^2 \prod_{i=4}^{5} (\lambda_i^2 - \mu_i^2) \times \sqrt{2(E_i - W_i(\lambda_3, \mu_3, \phi_3, \lambda_4, \mu_4, \phi_4)} \delta(E_i + I_{p2}), \tag{27}$$

其中势能等于

$$W_i = \sum_{n=1}^{2} \frac{Q_i Q_n}{|\mathbf{r}_n - \mathbf{r}_i|} + \sum_{n=1}^{2} \sum_{\substack{j=3 \\ j \neq i}}^{4} c_{i,j}(t_0) \times C_{j,n}(\mathcal{E}_j, |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_j|, |\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_j|) V_{\text{eff}}(\zeta_{j,n}(t_0), |\mathbf{r}_n - \mathbf{r}_i|) \tag{28}$$

其中

$$|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_i| = \frac{R(t_0)(\lambda_i + \mu_i)}{2} \tag{29}$$

$$|\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_i| = \frac{R(t_0)(\lambda_i - \mu_i)}{2}. \tag{30}$$

要使束缚电子 i的初始条件具有物理意义，其动能必须非负。因此，我们要求 $P_i \geq 0$，其中

$$P_i = 2[-I_{p,2} - W_i(\lambda_3, \mu_3, \phi_3, \lambda_4, \mu_4, \phi_4)]. \tag{31}$$

因此，微正则分布的最终形式为

$$\tilde{\rho}(\lambda_3, \mu_3, \phi_3, \lambda_4, \mu_4, \phi_4) = \begin{cases} \prod_{i=3}^{4} (\lambda_i^2 - \mu_i^2) \sqrt{P_i} & \text{for all } P_i \geq 0 \\ 0 & \text{for any } P_i < 0. \end{cases} \tag{32}$$

接下来，为了生成 O_2^{2+}的初始条件，我们需要确定 λ_i, μ_i, ϕ_i 的取值范围，使得 $P_i \geq 0$对每个束缚电子 i都成立。我们发现，对于每个电子， $\mu_i \in [-1, 1]$且 $\phi_i \in [0, 2\pi]$ 。也就是说，在 ϕ_i 和 t_i. 的整个取值范围内， $P_i \geq 0$ 均成立。在此—

外，为使 $P_i \geq 0$ 成立，我们发现 λ_i 不能大于 $\lambda_{\max}$，即 $\lambda_i \in [1, \lambda_{\max}]$. 。两个束缚电子的 $\lambda_{\max}$值相同。因此，对于这一取值范围，我们求得式（32）中给出的微正则分布 $\tilde{\rho}(\lambda_3, \mu_3, \phi_3, \lambda_4, \mu_4, \phi_4)$ 的最大值 $\tilde{\rho}_{\max}$ 。接下来，我们为每个电子生成均匀随机数 $\lambda_i \in [1, \lambda_{\max}]$, $\mu_i \in [-1, 1]$, $\phi_i \in [0, 2\pi]$，并且 $\chi \in [0, \tilde{\rho}_{\max}]$。如果 $\tilde{\rho}(\lambda_3, \mu_3, \phi_3, \lambda_4, t_4, \phi_4) > \chi$，则接受生成的 λ_i, t_i 和 ϕ_i 值作为初始条件；否则将其拒绝，并重新开始抽样过程。

一旦求得 λ_i, μ_i 和 ϕ_i，，即可按如下方式得到每个电子 i 的位置矢量 $\mathbf{r}_i = (r_{x,i}, r_{y,i}, r_{z,i})$ 和动量矢量$\mathbf{p}_i = (p_{x,i}, p_{y,i}, p_{z,i})$

$$r_{x,i} = \frac{R(t_0)\cos(\phi_i)}{2}\sqrt{(\lambda_i^2 - 1)(1 - \mu_i^2)} \tag{33}$$

$$r_{y,i} = \frac{R(t_0)\sin(\phi_i)}{2}\sqrt{(\lambda_i^2 - 1)(1 - \mu_i^2)} \tag{34}$$

$$r_{z,i} = \frac{R(t_0)\lambda_i\mu_i}{2} \tag{35}$$

$$p_{x,i} = \sqrt{P_i}\cos(\phi_{\mathbf{p},i})\sqrt{1 - \nu_{\mathbf{p},i}^2} \tag{36}$$

$$p_{y,i} = \sqrt{P_i}\sin(\phi_{\mathbf{p},i})\sqrt{1 - \nu_{\mathbf{p},i}^2} \tag{37}$$

$$p_{z,i} = \sqrt{P_i}\nu_{\mathbf{p},i}, \tag{38}$$

其中，$\phi_{\mathbf{p},i} \in [0, 2\pi]$ 和 $\nu_{\mathbf{p},i} \in [-1, 1]$ 定义了球坐标下的动量 $\mathbf{p}_i$ 。

微正则分布中采用的势能不包含偶极相互作用项 $-Q_j\mathbf{r}^j \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}^j, t),$；该项出现在用于确定有效电荷的能量表达式中，参见式（6）。因此，在对两个束缚电子的初始条件进行抽样后，必须使用式（5）重新计算相应的有效电荷 $\zeta_{j,n}(t_0),$，因为该式包含偶极相互作用。电子的能量因该项$C_{j,n}(\mathcal{E}_j, |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_j|, |\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_j|)$而相互耦合。因此，我们通过迭代过程求得有效电荷。如果能量以及由此得到的有效电荷在 t_0 时仍未收敛，则舍弃这些初始条件并重新抽样。需要指出的是，对于本研究所考虑的激光强度，被舍弃轨迹的比例可以忽略不计。

C. 传播过程中的隧穿

在时间传播过程中，我们允许每个束缚电子沿电场轴在经典转折点处，使用 Wentzel-Kramers-Brillouin（WKB）近似发生隧穿 [54]。透射概率为 [54],

$$T \approx \exp\left(-2\int_{r_a}^{r_b}\left[2\left(V_{\text{tun}}(r, t_{\text{tun}}) - \epsilon_i\right)\right]^{1/2} dr\right), \tag{39}$$

其中， $V_{\text{tun}}(r, t_{\text{tun}})$ 是存在原子核和激光场时束缚电子 i 的势，其中还包括有效势项； r 是电子沿电场方向的距离 [19]。电子 i在隧穿时刻的能量 t_{tun}为 ϵ_i。经典转折点表示为 r_a 和 r_b。

在此，与文献[19]相比，我们为时间传播过程中发生隧穿增加了一个额外条件。具体而言，当一个电子隧穿时，其位置发生变化，进而导致其他束缚电子的能量和有效电荷发生变化。这又导致隧穿电子的能量发生变化，如此循环。因此，仅当隧穿电子的新位置使所有束缚电子的新能量收敛时，我们才允许传播过程中发生隧穿。计入时间传播过程中的隧穿，对于准确描述强驱动分子碎裂过程中与增强电离 [55–59] 相关的现象是必要的。

最后，我们指出，我们在起始时刻与时间传播过程中对隧穿的处理方式不同。原因在于，在起始阶段为了启动 t_0 时间，我们需要隧穿速率，因为作为ECBB模型一部分的蒙特卡洛方法会对激光脉冲中不同的 t_0 时间进行积分。然而，一旦传播开始，我们不再需要速率，而是需要隧穿概率。我们选择采用WKB 近似 [54]所给出的隧穿概率。

III. 结果

使用适用于分子的 ECBB 模型，我们研究三活性电子 O_2^+中的三重电离（TI）、受挫三重电离（FTI）、双重电离（DI）和受挫双重电离（FDI）。该分子受到波长为 800 nm、脉宽为 40 fs 的激光脉冲驱动，强度分别为两个较低值 0.5 和 1 PW/cm^2 ，以及两个较高值 5 和 7 PW/cm^2。我们考虑分子相对于激光脉冲的两种取向，即两个原子核平行或垂直于电场方向，分别沿 z 轴或 x 轴。

在三重电离中，三个电子逸出，并形成两个 O_2^{2+}离子。在受挫三重电离中，两个电子逸出，最终有一个电子仍束缚在两个离子碎片之一的里德伯态上。在双重电离中，两个电子逸出，并形成 O_2^{2+}和 O_2^+离子。在受挫双重电离中，只有一个电子逸出，该过程会形成两个 O_2^+ 离子，或形成一个 O_2^{2+}离子和一个中性氧原子。我们发现，前一种受挫双重电离通道的概率显著高于后一种，因此本文不讨论后一种通道。

最后，与我们先前的研究一样，例如参见文献[19], ，我们首先计算经典主量子数，以确定每个里德伯电子的主量子数 n。

主量子数

$$n_c = \frac{Q_c}{\sqrt{2|\epsilon_i(t_f)|}}, \tag{40}$$

其中 $\epsilon_i(t_f)$ 是时间传播结束时束缚电子的能量， Q_c 是电子仍处于束缚态的原子核的电荷。随后，我们赋予其一个量子数 n ，使其满足以下判据 [60],

$$\left[(n-1)\left(n-\frac{1}{2}\right)n\right]^{1/3} \leq n_c \leq \left[n\left(n+\frac{1}{2}\right)(n+1)\right]^{1/3}. \tag{41}$$

A. 概率

在图 3中，我们绘出了 O_2^+ 中主要电离过程的概率随强度和分子取向的变化。对于平行取向，随着强度增加，三重电离（TI）逐渐占据主导地位，其占比从 0.5 PW/cm^2 时的 34% 上升至约 74%

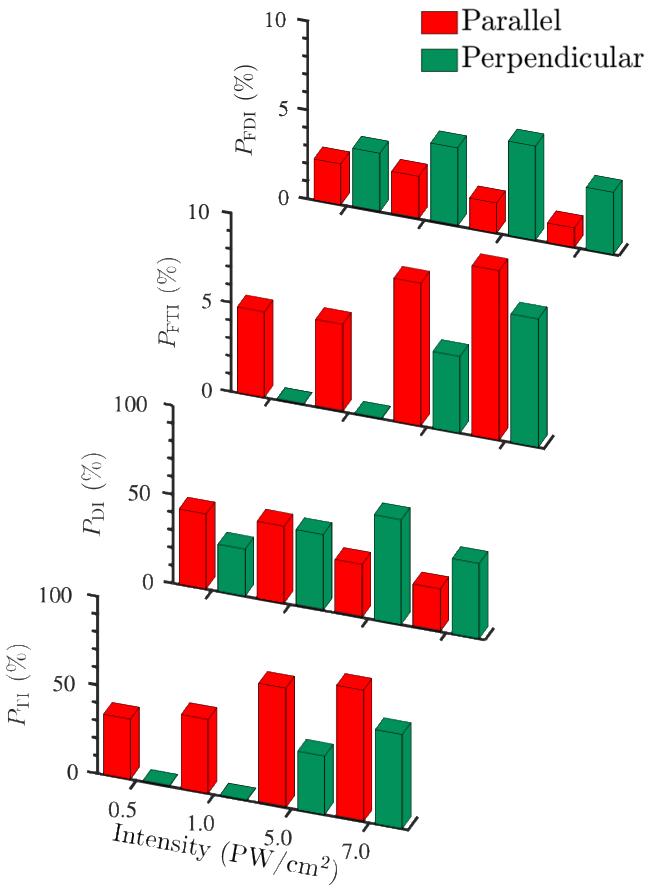

图 3. 对于本文所研究的四种强度和两种分子取向，O_2^+ 发生三重电离、带有 $n>2$ 的受挫三重电离、双重电离以及带有 $n>2$ 的受挫双重电离的概率。

在 7 PW/cm^2 时。相比之下，对于垂直取向，三个较低强度下的主要电离通道是双重电离（DI），在 5 PW/cm^2 时占比约为 60%。在最高强度下，垂直取向中的三重电离（TI）也超过了双重电离（DI）。此外，我们发现，双重电离（DI）对两种取向都有显著贡献，而在较低强度下，垂直取向中的三重电离（TI）受到强烈抑制。与相应的非受挫过程相比，受挫电离路径的概率显著较低。不过，它们随强度和取向的变化趋势相似。具体而言，在 0.5 和 1 PW/cm^2 下，垂直排列方向上的受挫三重电离（FTI）受到强烈抑制。相比之下，垂直排列方向上的受挫双重电离（FDI）有所增强，并且随着强度增加，其概率持续小幅上升，直至 5 PW/cm^2 ，随后在 7 PW/cm^2 时略有下降。

B. 动能释放分布

在图4中，我们绘制了 O_2^+在四种激光强度和两种分子取向下发生三重电离、双重电离、受挫三重电离和受挫双重电离时，最终离子碎片的动能释放（KER）分布。对于两种最低强度下的垂直取向，三重电离和受挫三重电离的概率可以忽略不计，因此，图4中未给出相应的 KER 分布。在所有情况下，我们发现三重电离和受挫三重电离的 KER 分布几乎相同。这一行为与受挫三重电离中的里德伯电子仍处于高度激发态并因此不会显著屏蔽原子核相一致。双重电离和受挫双重电离的分布相似，这种情况在较低强度下尤为明显；而在较高强度下，受挫双重电离的平均值较小。主要原因是，受挫三重电离也会被记录为双重电离，从而在较高强度下的较高能量处造成 KER 中的隆起。在受挫双重电离中，除里德伯电子外，还有一个电子深度束缚于一个 $n=1$ 态中，导致原子核受到更强的屏蔽，从而使离子碎片的最终动能更小。此外，如预期，我们发现（未显示）原子核的动能之和加上最后一个电子电离时原子核之间的库仑斥力，正好对应于最终 KER 分布的峰值。最后，在较高的两种强度 5 PW/cm^2 [图4（e）和4（f）]以及 7PW/cm^2 [图4（g）和4（h）]中，所有电离过程都向较高的 KER 移动。这与激光场强度增加导致原子核的库仑爆炸相一致；与较低强度相比，库仑爆炸会在更早的时刻开始。

在图5中，我们比较了在 7PW/cm^2 下，使用 ECBB模型计算得到的动能释放与实验结果 [40]。我们绘制了对两种取向取平均后的三重电离和双重电离的动能释放。我们发现，对于双重电离和三重电离，ECBB模型的结果始终高于实验结果。事实上，三重电离的理论 KER分布（灰色实线）峰值约为 32 电子伏特，

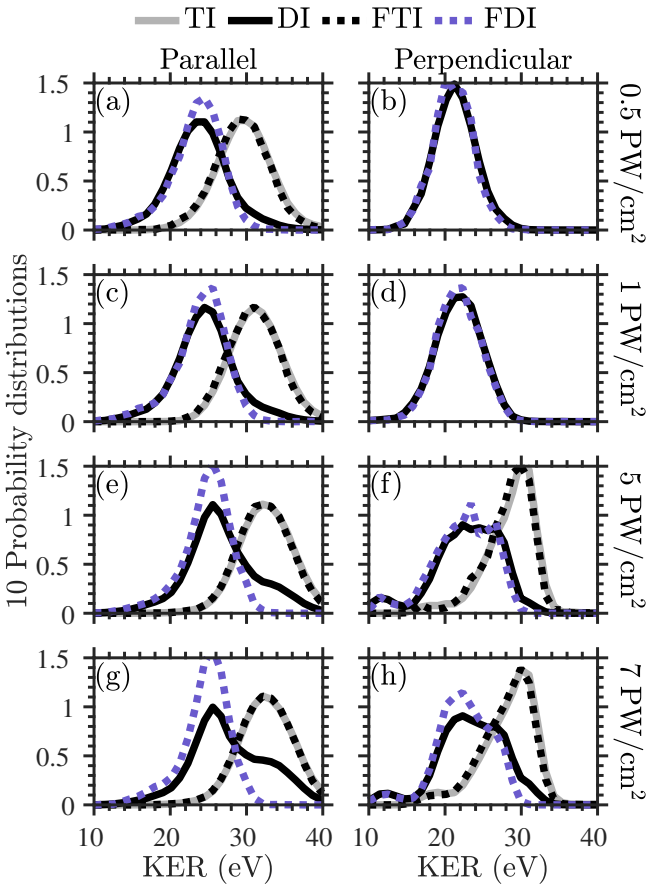

图4. O_2^+ 取向平行于（a）、（c）、（e）、（g）或垂直于（b）、（d）、（f）、（h）电场时，三重电离（灰色实线）、双重电离（黑色实线）、受挫三重电离（黑色虚线）和受挫双重电离（灰色虚线）所产生离子的最终动能之和的分布。所有分布均归一化为1。

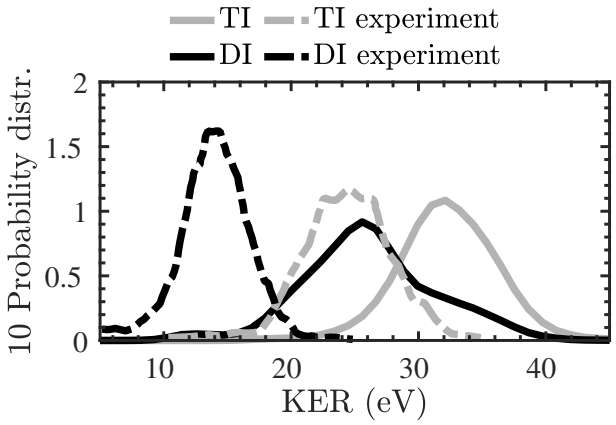

图5. 在 7 PW/cm^2 下，取向平均后的三重电离（灰色实线）和双重电离（黑色实线）所产生离子的最终动能之和的分布。我们还列出了参考文献 [40] 中的实验分布：三重电离（灰色虚线）和双重电离（黑色虚线）。所有分布均归一化为1。

而实验结果的峰值约为 24 电子伏特。对于双重电离，理论 KER分布（黑色实线）较宽，峰值为 25 电子伏特，而实验分布较窄，峰值为 14 电子伏特。

为理解这一差异，我们重点考察所有力对两个原子核动能的影响，也就是说，将每个原子核的最终动量分解为各个不同的力所造成的动量变化。

$$\mathbf{p}_i(t_f) = \mathbf{p}_i(t_0) + \Delta\mathbf{p}_i^{C,\mathrm{rep}}(t_0 \to t_f) + \Delta\mathbf{p}_i^{C,\mathrm{att}}(t_0 \to t_f) + \Delta\mathbf{p}_i^{\mathbf{E}}(t_0 \to t_f) + \Delta\mathbf{p}_i^{\mathbf{B}}(t_0 \to t_f) + \Delta\mathbf{p}_i^{V_{\mathrm{eff}}}(t_0 \to t_f), \tag{42}$$

其中 $i = 1, 2$。原子核初始时静止，因此，$\mathbf{p}_i(t_0) = 0$。此外，我们发现由电场和磁场导致的动量变化 $\Delta\mathbf{p}_i^{\mathbf{E}}$ 和 $\Delta\mathbf{p}_i^{\mathbf{B}}$ 分别可以忽略不计。因此，我们将重点关注其余项，即原子核之间库仑斥力以及原子核与.....之间库仑引力所导致的动量变化。

电子与原子核，以及在 ECBB模型所采用的近似中由原子核表示的有效势，分别记为 $\Delta\mathbf{p}_{,i}^{C\ \mathrm{rep}}$, $\Delta\mathbf{p}_i^{C\ \mathrm{att}}$,, $\Delta\mathbf{p}_i^{V_{\mathrm{eff}}}$。如预期所示，我们发现原子核的 z 动量分量对动能释放的贡献最大，因此仅关注这一分量。

对于所有电离过程，我们发现原子核沿 z 轴向相反方向运动，其中原子核 1 向左运动（$-z$ 轴向），原子核 2 向右运动+z 轴向。我们发现，分子碎裂过程中两个原子核之间的库仑斥力对原子核动量的贡献最大，即 $\Delta p_{,z\ 1}^{C\ \mathrm{rep}} < 0$和 $\Delta p_{,z\ 2}^{C\ \mathrm{rep}} > 0$ 在式（42）中取值最大。

每个原子核受到的束缚电子的库仑引力会产生相反的作用，即将每个原子核吸引向原点。事实上，在时刻 t_{frag} 发生库仑爆炸之前，束缚电子位于两个原子核之间。因此，库仑引力平均而言会将每个原子核拉向原点，从而使 $\Delta p_{,z\ 1}^{C\ \mathrm{att}}(t_0 \to t_{\mathrm{frag}})$ 为正，而 $\Delta p_{,z\ 2}^{C\ \mathrm{att}}(t_0 \to t_{\mathrm{frag}})$ 为负。碎裂之后，若电子仍束缚在某个原子核 n, $\Delta p_{,z\ n}^{C\ \mathrm{att}}(t_{\mathrm{frag}} \to t_f)$ 的平均值将为零。然而，若电子仍束缚在另一个原子核上，它便会将原子核 n 吸引向原点，使得 $\Delta p_{,z\ 1}^{C\ \mathrm{att}}(t_{\mathrm{frag}} \to t_f) > 0$ 和 $\Delta p_{,z\ 2}^{C\ \mathrm{att}}(t_{\mathrm{frag}} \to t_f) < 0$。此外，对于三重电离和双重电离，我们发现，对 $\Delta p_{,z\ n}^{C\ \mathrm{att}}(t_0 \to t_f)$ 贡献最大的是最后电离的电子，因为它与原子核相互作用的时间更长；贡献最小的则是最先电离的电子。

然而，在我们的模型中，由于我们用有效势替代完整的库仑势来描述相互作用，原子核受到了一种额外力。

束缚电子之间。由式（4）

$$V_{\rm eff}(\zeta_{i,n}(t),|\mathbf{r}_n-\mathbf{r}_j|)=\frac{1-(1+\zeta_{i,n}|\mathbf{r}_n-\mathbf{r}_j|)e^{-2\zeta_{i,n}|\mathbf{r}_n-\mathbf{r}_j|}}{|\mathbf{r}_n-\mathbf{r}_j|},$$

可以看出，电子 j 因电子 i 而感受到的势也取决于原子核的位置矢量，$\mathbf{r}_n$. 因此，当一对束缚电子（i,j）通过有效势相互作用时，原子核的动量会发生人为变化。为了更好地理解这种动量变化，我们计算了有效势 $V_{\rm eff}(\zeta_{i,n}(t)\ |\mathbf{r}_n-\mathbf{r}_j|)$ 作用于原子核的力。

$$\begin{aligned}\mathbf{F}(\zeta_{i,n},|\mathbf{r}_n-\mathbf{r}_j|)&=-\frac{\partial V_{\rm eff}(\zeta_{i,n},|\mathbf{r}_n-\mathbf{r}_j|)}{\partial\mathbf{r}_n}\\&=-\frac{-1+[1+2\zeta_{i,n}|\mathbf{r}_n-\mathbf{r}_j|(1+\zeta_{i,n}|\mathbf{r}_n-\mathbf{r}_j|)]}{|\mathbf{r}_n-\mathbf{r}_j|^3}\\&\times e^{-2\zeta_{i,n}|\mathbf{r}_n-\mathbf{r}_j|}(\mathbf{r}_n-\mathbf{r}_j).\end{aligned}\quad(43)$$

由式（43）可以很容易看出，若 $z_n-z_j<0$，则该力以及因此$\Delta p_z^{V_{\rm eff},\ n}$ 为正。同样，若$z_n-z_j>0$，则动量变化为负。如前所述，在碎裂之前，束缚电子平均在两个原子核之间运动，从而导致 $z_1-z_j<0$和 $z_2-z_j>0$。因此，由有效势引起的动量变化对原子核1为负，对原子核2为正，从而促进碎裂。我们预期，由有效势引起的原子核动量变化在双重电离中大于三重电离。事实上，在三重电离中没有电子保持束缚，我们发现由有效势引起的原子核动量变化很小。最大的贡献来自最后电离的两个束缚电子的有效势。相比之下，在双重电离中，有一个电子最终保持束缚。在双重电离中，我们发现对原子核 n 的动量变化贡献最大的有效势，来自束缚在另一个原子核上的电子 i 对束缚于原子核 n的电子 j 所施加的有效力，即来自项 $V_{\rm eff}(\zeta_{i,\ n}(t)\ |\mathbf{r}_n-\mathbf{r}_j|)$。同样，这对原子核1为正，因为 $z_1-z_j<0$，而对原子核2为负，因为 $z_2-z_j>0.$。因此，总体而言，有效力导致离子碎片具有更大的最终动量，从而具有更高的动能释放。对于至少有一个电子保持束缚的过程，这一点更为明显。

上述结果与采用 ECBB 模型得到的双重电离谱一致；与三重电离相比，其与实验结果的差异更大，见图 5。事实上，在图6中，我们绘出了不计入有效势导致的原子核动量变化时的动能释放。现在，ECBB 模型所得结果与实验结果吻合得更好，尤其是三重电离。

上述讨论还揭示了有效ECBB模型目前采用的势所得到的动能释放结果更接近实验值。我们预计，ECBB模型得到的动能释放会更加准确，因为原子核所受的力越小，这归因于

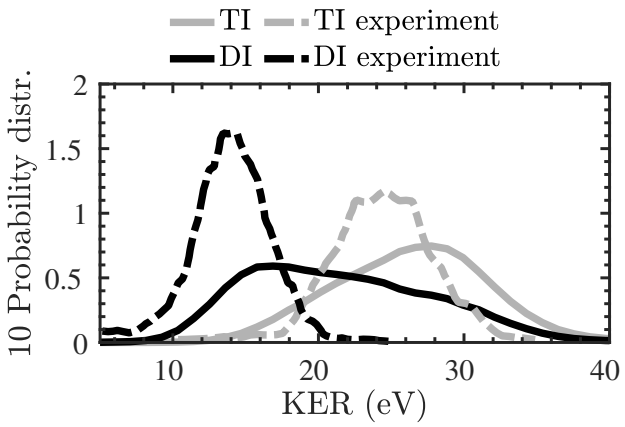

图 6. 三重电离（灰色实线）和双重电离（黑色实线）产生的离子最终动能之和的分布，激光强度为 7 PW/cm^2 ，对两种取向取平均，使用 $\Delta\mathbf{p}_i^{V_{\rm eff}}(t_0\to t_f)$ 在式（42）中被排除时计算。我们还纳入了文献 [40] 中的实验分布：三重电离（灰色虚线）和双重电离（黑色虚线）。所有分布均归一化为 1。

两个束缚电子之间的有效势。事实上，对于多中心分子，原子核没有束缚电子的概率会增加，进而减小有效势对该原子核施加的力。因此，在电子数相同的情况下，我们预计分子中的原子越多，动能释放结果就越接近实验值。此外，我们预计，当所有电子都逃逸的电离过程中，动能释放结果最接近实验值，因为在这一过程中，有效势的影响最小。

C. 电离时间与电离时核间距之间的关联

在图 7 中，我们绘出了 7 PW/cm^2 、平行取向下三重电离、双重电离和受挫三重电离过程中，电离时间 $t_{{\rm ion},\ i}$ 与电离时核间距 $R(t_{{\rm ion},\ i})$ 之间的关联。指标 i 的取值范围为 1 至 3，其中 1 对应最先电离的电子，3 对应最后电离的电子。对于双重电离，我们仅绘出剩余束缚电子占据 $n=1$，2 态的事件，因为这些事件未包含在受挫三重电离中。

对于三重电离 [图7(a)-7(c)], 我们发现第一个电子在较小的核间距处较早发生电离。第二个电子在更大的核间距处电离，但仍小于增强电离发生所需的临界距离。这表明两个最先电离的电子发生了关联电子逃逸。事实上，我们发现在约65%的三重电离事件中，第一个电离的电子与第二个电离的电子之间发生再碰撞，后者在此后不久逃逸。第三个电子在更晚的时间和更大的核间距处电离，这与主要由增强电离驱动的电离相一致。我们

发现双重电离具有类似的行为 [图7(d)-7(e)]。与三重电离相比，在双重电离中，第二个电子在更大的核间距处电离，但仍小于与增强电离相一致的核间距。

与双重电离相比，对于受挫三重电离 [图 7(f)-7(g)] 我们发现第二个电离的电子表现出不同的行为。实际上，将图 7(g) 与图 7(c) 对比可知，受挫三重电离中的第二次电离与三重电离中的第三次电离非常相似。这表明受挫三重电离按以下过程进行：第一个电子较早发生隧穿电离，随后返回分子离子并发生再碰撞，与双重电离和三重电离的情形相同。再碰撞后，返回电子被重新俘获至某个激发态，而一个束缚态电子获得能量并发生电离。这与受挫三重电离第一次电离中的电离时间随核间距的变化主要类似于三重电离第二次电离中的情形相符。关于这一点，第 IIID节的讨论可以帮助我们更好地理解；我们将在该节中说明，在最高强度下，受挫双重电离的路径 B 占主导。最后一个电离的电子则通过增强电离脱离，与三重电离的情况相同。

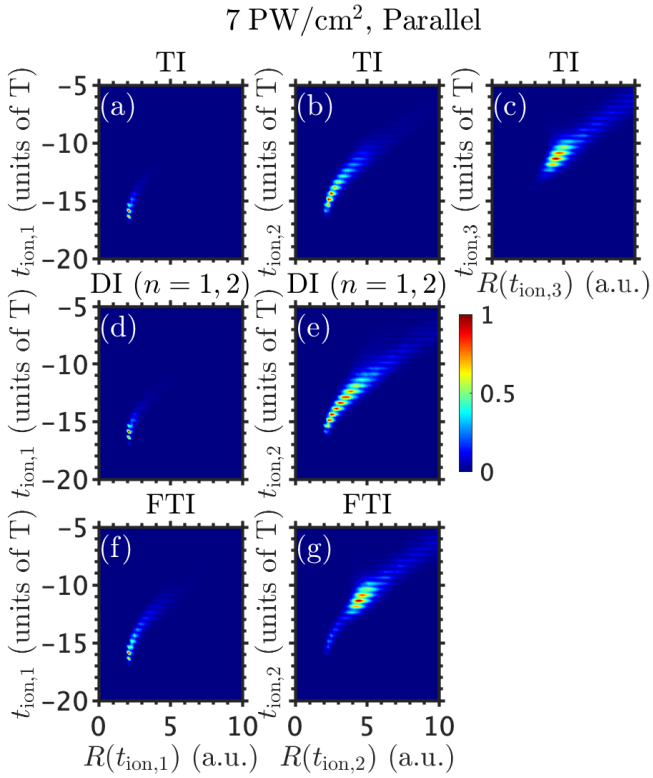

图7. 三重电离中每个电离电子的相关电离时间分布，以及电离时的核间距分布 (a)、(b)、(c)；含有 $n=1,2$ 的双重电离 (d)、(e)，以及含有 $n>2$ 的受挫三重电离 (f)、(g)。所有分布均归一化为 1。

D. 受挫电离路径

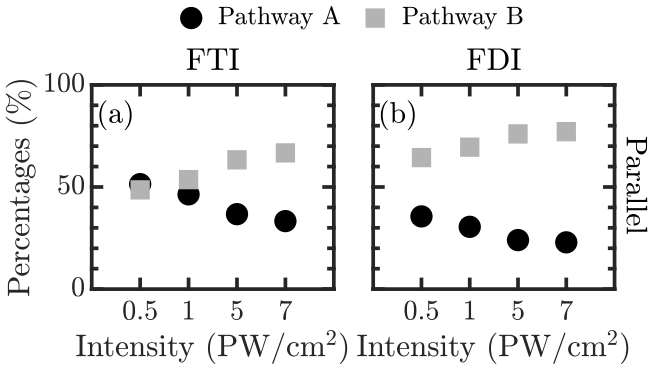

图8. 平行取向和垂直取向下，各种强度时受挫三重电离和受挫双重电离中路径A和路径B所占的百分比。

我们发现，受挫三重电离和受挫双重电离通过两条路径进行。这两条路径最初是在强驱动的双电子分子 H_2 [39]，的受挫双重电离中发现的，随后又在强驱动的三电子分子 HeH_2^+[19] 的受挫三重电离和受挫双重电离中得到确认。在两条路径中，最初发生隧穿的电子都会较早电离（第一步），而剩余束缚电子中的一个则会在之后电离（第二步）。若第二步（第一步）电离受挫，我们分别将这两条路径标记为 A 和 B。

在图8中，我们绘出了平行取向下，路径 A 和路径 B 对受挫三重电离及受挫双重电离形成的贡献百分比随激光强度的变化。我们发现，在较低强度下，两条路径对受挫三重电离形成的贡献大致相同；随着强度增加，路径 B 的重要性逐渐上升。事实上，在 7PW/cm^2 时，路径 B 的贡献百分比约为路径 A 的两倍。对于受挫双重电离，这一趋势更为明显：即使在较低强度下，路径 B 也占主导地位，而且其贡献会随强度增加而上升。

在高强度下，路径 B 是 FTI 中占主导的路径，这与我们在上一节中的发现一致。具体而言，在图7(f) 中，FTI 中第一电离电子的电离时间随核间距的变化，与图 7(b) 中 TI 的第二个电离电子相似。确实，由于路径 B 在 FTI 中占主导，这意味着隧穿电离后返回并再次碰撞的电子最终被俘获在里德伯态中，同时将足够的能量传递给一个束缚电子，使其最终逃逸。图7(f) 中绘出的主要是后者，它与图 7(b) 中 TI 的第二个电离电子相似；区别在于，返回电子在 TI 中使另一个电子电离，而在 FTI 中则不会。图 9进一步清楚地展示了这一点，其中分别给出了 FTI 中路径 A 和路径 B 下各电子的电离时间随核间距的变化。我们清楚地看到，图 9(a) 中 FTI 路径 A 下第一个电离电子的表现，与图 7(a) 中第一个电离电子的表现相似

在三重电离中。然而，图 9（c）中受挫三重电离路径 B 的第一个电离电子，与图 7（b）中三重电离的第二个电离电子相似。

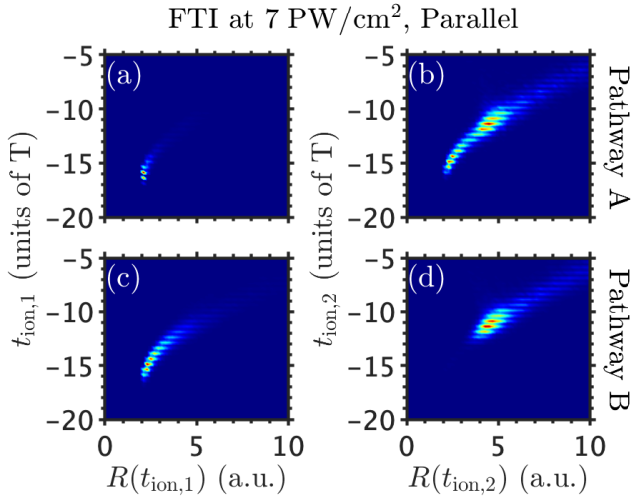

图 9. 受挫三重电离中路径 A [（a）、（b）] 和路径 B [（c）、（d）] 下，各电离电子的相关电离时间以及电离时核间距的分布，其中 $n > 2$ 。所有分布均归一化为 1。

最后，在图 10 中，我们考察了以下条件下 FTI 和 FDI 的主 n 量子数分布：强度为 7 PW/cm^2 ，且取向为平行取向。其他强度和取向下也得到类似结果。我们发现，两种分布相似，峰值均在 $n \approx 20$ 附近，同时都有延伸至较大量子数的长尾；其中 FTI 的分布延伸到略高的 n 量子数。这是意料之中的。与 FDI 不同，FTI 中仅有一个电子仍处于束缚态，因此核电荷更高。假设 FDI 中里德伯电子的能量相同

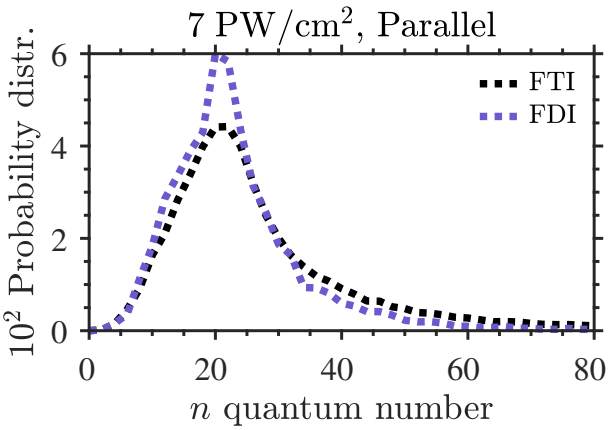

图 10. 受挫三重电离（黑色点线）和受挫双重电离（紫色点线）中里德伯电子主量子数 n的分布。两个分布均归一化为 1。

而受挫三重电离中的核电荷较高，因此其 n 数值也较高。我们发现（未展示），路径 A 和路径 B 的 n 数值分布大致相同。

IV. 结论

我们将近期开发的三维半经典模型加以扩展，用于研究在强红外激光脉冲驱动下，O_2^+碎裂过程中发生的相关多电子电离；研究涵盖多种强度，以及双原子分子相对于电场的两种取向。我们重点考察了主要电离过程，即三重电离、双重电离、受挫三重电离和受挫双重电离。我们计算了所有离子碎片最终动能之和，并将其与 7 PW/cm^2. 下可获得的实验结果进行了比较。我们发现，模型高估了动能释放，尤其是双重电离的动能释放。理论与实验之间的这一差异主要源于原子实最终动量的人为增加，这是用于描述束缚电子间相互作用的有效势造成的。这些结果既体现了 ECBB模型当前的局限性，也为今后的改进提供了起点。此外，它们还表明，对于给定数量的电子，分子所含原子中心越多，ECBB模型得到的动能释放就越准确。我们还研究了电离和受挫过程中多电子逃逸的动力学。在三重电离和双重电离中，最先电离的两个电子彼此相关，并经历软再碰撞；而在三重电离中，最后一个电子主要因增强电离而电离。在高强度下发生受挫三重电离时，最终仍束缚在里德伯态中的电子主要是返回并发生再碰撞的电子。第一个电离的电子主要是从返回电子处获得能量的束缚电子，而最后一个电子则像三重电离中那样通过增强电离而电离。我们的研究结果表明，ECBB模型是理解强红外激光脉冲驱动下分子中多电子逃逸的有力工具。

V. 致谢

作者感谢在完成本研究过程中使用伦敦大学学院 Myriad高性能计算设施（Myriad@UCL）和伦敦大学学院 Kathleen 高性能计算设施（Kathleen@UCL），以及相关支持服务。

附录 A：电离率

我们发现， t_0 采用参考文献 [61] 中推导的隧道电离率作为采样分布

$$\Gamma = 2\pi\kappa^2 C_\kappa^2 \left(\frac{2\kappa^3}{E(t_0)}\right)^{\frac{2Q}{\kappa}-1} \exp\left(-\frac{2\kappa^3}{3E(t_0)}\right) R(\theta_L), \tag{A1}$$

其中， $E(t_0)$为瞬时场强， θ_L 是实验室坐标系中激光场与 z 轴之间的夹角， $\kappa = \sqrt{2I_{p1}}$， Q 是渐近电荷；对于 O_2^+.，其值为 2。我们通过将戴森轨道 [62] 拟合到以下波函数渐近形式 [61]，求得系数 C_κ

$$\Psi(\mathbf{r}) \approx C_\kappa \kappa^{3/2} (r_M \kappa)^{Q/\kappa-1} e^{-\kappa r_M} F(\theta_M, \phi_M), \tag{A2}$$

其中， r_M, θ_M和 ϕ_M是分子坐标系中的球坐标。戴森轨道 [62] 是 O_2^+基态波函数的重叠积分

$$\left(1\sigma_g^2, 1\sigma_u^2, 2\sigma_g^2, 2\sigma_u^2, 3\sigma_g^2, 1\pi_{ux}^2, 1\pi_{uy}^2, 1\pi_{gx}^1\right) \tag{A3}$$

与 O_2^{2+}的基态波函数；后者是在 O_2^+的平衡距离下计算得到的

$$\left(1\sigma_g^2, 1\sigma_u^2, 2\sigma_g^2, 2\sigma_u^2, 3\sigma_g^2, 1\pi_{ux}^2, 1\pi_{uy}^2\right). \tag{A4}$$

两个波函数均使用 MOLPRO [42]并采用 Hartree-Fock 方法求得。

函数 $F(\theta_M, \phi_M)$ 取决于电子在传播开始时发生隧穿电离之前所占据的外价分子轨道。其表达式 F 的表达式见 [61, 63]

$$F(\theta_M, \phi_M) = \cosh\left(\frac{\kappa R(t_0)}{2}\cos\theta_M\right)\left(1+\alpha\cos^2\theta_M\right) \times \cos\theta_M \sin\theta_M \cos\phi_M. \tag{A5}$$

我们在区间 $r_{\min} \le r_M \le r_{\max}$、 $0 \le \theta_M \le \pi$ 和 $0 \le \phi_M \le 2\pi$ 内拟合戴森轨道，以求得参数 C_κ 和 α。r_M 的区间经过选择，使得当 $r_M > r_{\min}$ 时，与 O_2^{2+}对应的库仑势实际上具有单中心库仑势的形式，即 $-Q/r$；上限的选取则确保当 $r_M > r_{\max}$ 时，戴森轨道实际上为零。

如 [61] 中所述（为完整起见亦在此给出），函数 $R(\theta_L)$由下式给出

$$R(\theta_L) = \left[F_0(\theta_L) - \frac{4E(t_0)}{3\kappa^3}F_2(\theta_L) + \frac{2E(t_0)}{3\kappa^3}F_3(\theta_L)\right]^2 + \frac{2E(t_0)}{9\kappa^3}F_1^2(\theta_L) \tag{A6}$$

其中函数 $F_j(\theta_L)$由以下公式 [61]得到

$$\begin{aligned} F_0(\theta_L) &= F(u,v), \\ F_1(\theta_L) &= F_v\cos\theta_L - F_u\sin\theta_L, \\ F_2(\theta_L) &= F_u\cos\theta_L + F_v\sin\theta_L, \\ F_3(\theta_L) &= F_{vv}\cos^2\theta_L + F_{uu}\sin^2\theta_L - F_{uv}\sin 2\theta_L, \end{aligned} \tag{A7}$$

其中我们令 $u = \cos\theta_M$ 以及 $v = \sin\theta_M \cos\phi_M$. F_u, F_v、F_{uu}、 F_{vv}和 F_{uv} 是 $F(u,v)$对 u和 v的一阶和二阶偏导数，在 $u = \cos\theta_L$和 $v = \sin\theta_L$处计算。

[1] F. Krausz和M. Ivanov，“阿秒物理”，《现代物理学评论》81, 163–234 (2009)。[2] U. Eichmann、T. Nubbemeyer、H. Rottke和W. Sandner，“中性原子在强短脉冲激光场中的加速”，《自然》461, 1261 (2009)。[3] V. Bendkowsky、B. Butscher、J. Nipper、J. P. Shaffer、R. Löw和T. Pfau，“超长程里德伯分子的观测”，《自然》458, 1005 (2009)。[4] B. Manschwetus、T. Nubbemeyer、K. Gorling、G. Steinmeyer、U. Eichmann、H. Rottke和W. Sandner，“H_2的强激光场碎裂：无双重电离的库仑爆炸”，《物理评论快报》102, 113002 (2009)。[5] A. Emmanouilidou、C. Lazarou、A. Staudte和U. Eichmann，“强驱动H_2,碎裂中高激发中性原子的形成途径”，《物理评论A》85, 011402(R) (2012)。[6] T. Nubbemeyer、K. Gorling、A. Saenz、U. Eichmann和W. Sandner，“无电离的强场隧穿”，《物理评论快报》101, 233001 (2008)。

[7] A. Chen、H. Price、A. Staudte 和 A. Emmanouilidou，《双电子三原子分子中的受挫双重电离》，《物理评论A》**94**，043408（2016）。[8] A. Chen、C. Lazarou、H. Price 和 A. Emmanouilidou，《双电子三原子分子 H_3^+ 中的受挫双电离与单电离》，《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》**49**，235001（2016）。[9] A. Chen、M. F. Kling 和 A. Emmanouilidou，《利用正交偏振双色激光场控制三原子分子受挫双重电离中的电子-电子关联》，《物理评论A》**96**，033404（2017）。[10] G. P. Katsoulis、R. Sarkar 和 A. Emmanouilidou，《利用反向旋转双色圆偏振激光场增强无电子关联的三原子分子受挫双重电离》，《物理评论A》**101**，033403（2020）。[11] T. Sun、L. Zhao、Y. Liu、J. Guo、H. Lv 和 H. Xu，《强激光场诱导的 H_2 高激发中性分子和碎片原子》，《物理评论A》**108**，

013120（2023）。[12] W. Zhang、Y. Ma、C. Lu、F. Chen、S. Pan、P. Lu、H. Ni 和 J. Wu，《双圆偏振双色激光脉冲操控分子中的里德伯态激发》，Adv. Photonics 5，016002（2023）。[13] W. Zhang、H. Li、X. Gong、P. Lu、Q. Song、Q. Ji、K. Lin、J. Ma、H. Li、F. Sun、J. Qiang、H. Zeng 和 J. Wu，《追踪 D_2 解离性受挫双电离中的电子再捕获》，《物理评论A》98，013419（2018）。[14] J. McKenna、A. M. Sayler、B. Gaire、N. G. Johnson、K. D. Carnes、B. D. Esry 和 I. Ben-Itzhak，《强超短激光脉冲中 H_3^+ 非线性动力学的基准测量》，《物理评论快报》103，103004（2009）。[15] J. McKenna、A. M. Sayler、B. Gaire、N. G. Kling、B. D. Esry、K. D. Carnes 和 I. Ben-Itzhak，《D_3^+强场解离过程中的受挫隧穿电离》，New J. Phys. 14，103029（2012）。[16] A. M. Sayler、J. McKenna、B. Gaire、N. G. Kling、K. D. Carnes 和 I. Ben-Itzhak，《强超快激光驱动的 D_3^+ 碎裂动力学测量》，《物理评论A》86，033425（2012）。[17] G. Pandey、S. Ghosh 和 A. K. Tiwari，《强椭圆偏振激光场下 H_2 分子的解离电离：载波包络相位与取向效应》，Phys. Chem. Chem. Phys. 24，24582（2022）。[18] M. B. Peters、V. P. Majety 和 A. Emmanouilidou，《强激光场驱动三原子分子中的三重电离与受挫三重电离》，《物理评论A》103，043109（2021）。[19] G. P. Katsoulis、M. B. Peters 和 A. Emmanouilidou，《强驱动分子中三个或更多电子电离的通用模型和工具包：采用有效库仑势描述束缚电子间的相互作用》，《物理评论A》109，033106（2024）。[20] Y-W. Jia、H-H. Wang、C. H. Yuen、C. D. Lin 和 S-F. Zhao，《利用强超短红外激光脉冲模拟氮分子的解离性顺序三重电离》，《物理评论A》112，L031101（2025）。[21] K. Sacha 和 B. Eckhardt，《强场中的非顺序三重电离》，《物理评论A》64，053401（2001）。[22] P. J. Ho 和 J. H. Eberly，《非顺序三重电离的平面内理论》，《物理评论快报》97，083001（2006）。[23] J. H. Thiede、B. Eckhardt、D. K. Efimov、J. S. Prauzner-Bechcicki 和 J. Zakrzewski，《强场三重电离时间依赖动力学的第一性原理研究》，《物理评论A》98，031401（2018）。[24] D. K. Efimov、A. Maksymov、M. Ciappina、J. S. Prauzner-Bechcicki、M. Lewenstein 和 J. Zakrzewski，《强激光场电离中的三电子关联》，Opt. Express 29，26526（2021）。[25] Y. Zhou、Q. Liao 和 P. Lu，《强场非顺序三重电离中的复杂亚激光周期电子动力学》，Opt. Express 18，16025（2010）。[26] Q. Tang、C. Huang、Y. Zhou 和 P. Lu，《中红外激光脉冲与氖原子相互作用中的关联多电子动力学》，Opt. Express 21，21433（2013）。[27] H. Jiang 和 F. He，《强激光场中 Ar 非顺序三重电离的半经典研究》，《物理评论A》104，023113（2021）。[28] H. Jiang、D. Efimov、F. He 和 J. S. Prauzner-Bechcicki，《达利茨图作为解析非顺序……的工具强场三重电离中的路径”，《物理评论A》105，053119（2022）。[29] A. Palacios、H. Bachau 和 F. Martín，“飞秒真空紫外激光脉冲增强和控制分子解离电离”，《物理评论快报》96，143001（2006）。[30] J. Förster、Y. V. Vanne 和 A. Saenz，“强激光场中分子氢的电离行为：分子振动和排列方向的影响”，《物理评论A》90，053424（2014）。[31] C. L. Kirschbaum 和 L. Wilets，“纳入海森堡原理和泡利原理的原子碰撞经典多体模型”，《物理评论A》21，834（1980）。[32] R. R. Pandit、V. R. Becker、K. Barrington、J. Thurston、L. Ramunno 和 E. Ackad，“比较软核势与库仑势对激光-物质相互作用过程中韧致辐射的影响”，《等离子体物理》25，043302（2018）。[33] R. R. Pandit、Y. Sentoku、V. R. Becker、K. Barrington、J. Thurston、J. Cheatham、L. Ramunno 和 E. Ackad，“软核势对激光-物质相互作用过程中逆韧致辐射加热的影响”，《等离子体物理》24，073303（2017）。[34] M. B. Peters、G. P. Katsoulis 和 A. Emmanouilidou，“采用有效库仑势描述束缚电子间相互作用的强驱动原子中三个或更多电子电离通用模型和工具包”，《物理评论A》105，043102（2022）。[35] A. E mmanouilidou、M. B. Peters 和 G. P. Katsoulis，“电子-原子核势中的奇点：实现强驱动原子多电子电离谱精确计算的途径”，《物理评论A》107，L041101（2023）。[36] G. P. Katsoulis、M. B. Peters 和 A. Emmanouilidou，“非偶极电子动量偏移：探测强驱动原子中关联三电子电离的手段”，《物理评论A》108，043111（2023）。[37] D. K. Efimov、G. P. Katsoulis、T. Rozpętkowski、S. Chwałowski、A. Emmanouilidou 和 J. S. Prauzner-Bechcicki，“达利茨图中关联三重电离的量子与半经典特征”，《物理评论A》112，013111（2025）。[38] S. J. Praill、G. P. Katsoulis 和 A. Emmanouilidou，“高强度下强驱动 Ne 中的三电子逃逸”，《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》59，025601（2026）。[39] H. Price、C. Lazarou 和 A. Emmanouilidou，“强驱动分子半经典计算工具包：椭圆偏振激光场驱动的 H 受挫电离”，《物理评论A》90，053419（2014）。[40] B. Gaire、J. McKenna、Nora G. Johnson、A. M. Sayler、E. Parke、K. D. Carnes 和 I. Ben-Itzhak，“激光诱导分子离子束多重电离：N、CO、NO 和 O”，《物理评论A》79，063414（2009）。[41] R. Y. Rubinstein 和 D. P. Froese，《模拟与蒙特卡洛方法》，第3版（Wiley，新泽西州，2016）。[42] H.-J. Werner、P. J. Knowles 等，“MOLPRO，2018.1版：从头算程序软件包”。[43] P. Pihajoki，“不可分哈密顿问题在扩展相空间中的显式方法”，《天体力学与动力学天文学》121，211（2015）。[44] G. P. Katsoulis、M. B. Peters、A. Staudte、R. Bhardwaj 和 A. Emmanouilidou，“非顺序双电离中磁场效应的特征：分子中的背向散射与原子中的前向散射

”，《物理评论A》**103**，033115 (2021)。

[45] W. H. Press、S. A. Teukolsky、W. T. Vetterling 和 B. P. Flannery，《数值方法：科学计算的艺术》，第3版（剑桥大学出版社，剑桥，2007）。[46] R. Bulirsch 和 J. Stoer，“用外推法数值求解常微分方程”，《数值数学》8，1（1966）。[47] V. J. Montemayor 和 G. Schiwietz，“H^++He碰撞中双活性电子经典轨迹蒙特卡洛计算的动态靶屏蔽”，《物理评论A》40，6223（1989）。[48] J. G. Leopold 和 I. C. Percival，“电场对高激发原子的电离。III. 微波电离与激发”，《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》12，709（1979）。[49] M. Abramowitz 和 I. A Stegun，《数学函数手册：公式、图表和数学表》，第55卷（美国政府印刷局，1948）。[50] N. B. Delone 和 V. P. Krainov，“强低频辐射使原子发生隧穿电离时的能量谱和电子角分布谱”，《美国光学学会杂志B辑》8，1207 1991( )。[51] N. B. Delone 和 V. P. Krainov，“激光辐射场中原子和离子的隧穿电离与势垒抑制电离”，《物理学进展》41，469（1998）。[52] L. Fechner、N. Camus、J. Ullrich、T. Pfeifer 和 R. Moshammer，“电子态相干叠加中的强场隧穿”，《物理评论快报》112，213001（2014）。[53] A. Chen、C. Lazarou、H. Price 和 A. Emmanouilidou，“双电子三原子分子中的受挫双电离与单电离 H_3^+ ”，《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》49，235001（2016）。[54] E. Merzbacher，《量子力学》，第3版（Wiley，New 约克，1998）。[55] H. Niikura、F. Légaré、R. Hasbani、A. D. Bandrauk、M. Y. Ivanov、D. M. Villeneuve 和 P. B. Corkum，“用于探测分子动力学的亚激光周期电子脉冲”，《自然》（伦敦）417，917（2002）。[56] T. Zuo 和 A. D. Bandrauk，“强激光诱导双原子分子离子的电荷共振增强电离”，《物理评论A》52，2511(R)（1995）。[57] Tamar Seideman、M. Y. Ivanov 和 P. B. Corkum，“电子局域化在强场分子电离中的作用”，《物理评论快报》75，2819（1995）。[58] D. M. Villeneuve、M. Y. Ivanov 和 P. B. Corkum，“强激光场中双原子分子的增强电离：经典模型”，《物理评论A》54，736（1996）。[59] E. Dehghanian、A. D. Bandrauk 和 G. Lagmago Kamta，“强超短激光脉冲驱动的 h_2 分子增强电离”，《物理评论A》81，061403 2010(R)（）。[60] D. Comtois、D. Zeidler、H. Pépin、J. C. Kieffer、D. M. Villeneuve 和 P. B. Corkum，“稀有气体隧穿电离中的库仑聚焦观测”，《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》38，1923（2005）。[61] R. Murray、M. Spanner、S. Patchkovskii 和 M. Yu. Ivanov，“分子的隧穿电离与轨道成像”，《物理评论快报》106，173001（2011）。[62] S. Patchkovskii、Z. Zhao、T. Brabec 和 D. M. Villeneuve，“多电子体系中的高次谐波产生与分子轨道层析成像”，《化学物理学杂志》126，114306（2007），
h
t
t
p
s://
pubs.aip.org/aip/jcp/article-pdf/doi/10.1063/1.2711809/15398566/
114306_1_online.p
df.
[63] A.A. Radzig 和 B.M. Smirnov，原子、分子和离子参考数据，第 1 版，施普林格化学物理丛书，第 31 卷（Springer Berlin Heidelberg，柏林，海德堡，1985）。