

# 光学学报

## 强激光场原子隧道电离的研究新进展

刘运全<sup>1,2,3\*</sup>, 韩猛<sup>1</sup>

<sup>1</sup>北京大学物理学院人工微结构与介观物理国家重点实验室, 北京 100871;

<sup>2</sup>量子物质协同创新中心, 北京 100871;

<sup>3</sup>极端光学协同创新中心, 山西 太原 030006

**摘要** 光与物质的相互作用一直是科学的主旋律之一。随着超强超短激光技术的快速发展,如今人们可以研究单个原子的内部世界,并调控光与电子的相互作用,从而实现对原子内电子的超快动力学过程的探索。强激光诱导的原子隧道电离是众多强场物理现象的基石,具有重要的研究意义,也是研究前沿的热点之一。综述了强场原子隧道电离的最新研究进展,基于隧道电离在自然坐标系(即抛物坐标系)中的非绝热隧穿理论,得到电子隧穿后的坐标分布和动量分布。介绍了电子在隧穿过程中获得的初始相位(即势垒下相位)的理论描述和实验测量方法。基于势垒下相位揭示出电子隧穿的量子动力学信息。综述了强激光场原子隧道电离过程中光电子自旋极化的研究进展,利用正交双色光场可以在时间和空间两个维度上精确地调控光电子的自旋自由度。最后进行了总结并展望了未来的研究前沿。

**关键词** 原子和分子物理学; 强场光物理; 隧道电离; 光电子势垒下相位; 光电子自旋极化

中图分类号 O436

文献标志码 A

doi: 10.3788/AOS202141.0102001

## Recent Research Advances in Strong-Field Atomic Tunneling Ionization

Liu Yunquan<sup>1,2,3\*</sup>, Han Meng<sup>1</sup>

<sup>1</sup>State Key Laboratory of Artificial Microstructure and Mesoscopic Physics, School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China;

<sup>2</sup>Collaborative Innovation Center of Quantum Matter, Beijing 100871, China;

<sup>3</sup>Collaborative Innovation Center of Extreme Optics, Taiyuan, Shanxi 030006, China

**Abstract** Light-matter interaction is always one of the themes of science. With the rapid development of ultra-short and ultra-strong laser techniques, nowadays we can research the internal world in a single atom and control the light-electron interactions to explore the ultrafast dynamics of intra-atomic electrons. Laser-induced tunneling ionization of atoms, as the footstone of many strong-field physical phenomena, has important research significance and is also one of the hot frontier topics. In this paper, we review the recent research advances in strong-field atomic tunneling ionization. The coordinate and momentum distributions of electrons after tunneling process are obtained based on the non-adiabatic tunneling ionization in the natural coordinates (i. e., the parabolic coordinates). We introduce the theoretical description and experimental measurement methods for the initial phase (i. e., the sub-barrier phase) of electrons obtained in the tunneling process. Based on the sub-barrier phase, we can reveal the quantum dynamical information of the tunneling process. We introduce the recent advances in photoelectron spin polarization during the strong-field tunneling ionization. On the basis of the orthogonal two-color fields, the degrees of freedom of photoelectrons in the time and space dimensions can be accurately controlled. Finally, we summarize this paper and predict future research advances.

**Key words** atomic and molecular physics; strong-field optical physics; tunneling ionization; photoelectron sub-barrier phase; photoelectron spin polarization

收稿日期: 2020-08-20; 修回日期: 2020-09-04; 录用日期: 2020-09-08

基金项目: 国家自然科学基金(11774013, 11434002)

\* E-mail: yunquan.liu@pku.edu.cn

# 1 引言

一束光照射到原子或分子上,它们内部的电子会以一定的概率逃逸出来,这个现象就是著名的光电效应。光电效应的物理解释是频率图像中的能量守恒。关于电子是如何吸收光子并摆脱母体离子的束缚这样的时域动力学信息,人们并不清楚。当脉冲激光问世后,入射光的光强得到了极大的增强,这时人们发现低频光子也可以触发光电离,原子分子内部的电子可以同时吸收多个光子,从而实现电离,即多光子电离<sup>[1-2]</sup>。在 20 世纪 60 年代,Keldysh<sup>[3]</sup>意识到当光场的频率远小于电子的运动频率时,可以把光场看作一个静电场,该静电场会把原子内部的库仑场压弯,从而形成一个有限厚度的势垒,基态电子可以通过量子隧穿的机制摆脱母核的束缚,实现电离。这个观点极具开创性,第一次提出了光致电离在时域中的机制,即隧道电离。随后,飞秒激光技术得到了迅猛发展<sup>[4]</sup>,脉冲激光聚焦后的电场强度可以达到甚至超过原子内部的库仑场(氢原子的基态电子所感受到的库仑场的等效光强为  $3.51 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$ ),各种基于隧道电离的物理现象层出不穷,比如高次谐波<sup>[5-6]</sup>、分子电离解离<sup>[7-9]</sup>、阿秒钟<sup>[10-14]</sup>、光电子全息<sup>[15-16]</sup>等。1993 年 Corkum 在 Keldysh 研究的基础上进一步简化、凝练,提出了强场电离的三步模型,即隧穿、经典传播和再散射(或称再复合)。三步模型也被称为 Simple-man 模型,它在时域上统一了强场电离和高次谐波这两个极其重要的物理现象,因此三步模型所构建的物理图像成为了强场物理中最简单同时也是最重要的综合时域图像。

人们对于隧道电离本身的研究也始终未曾停止,Keldysh 曾给出了一个参数  $\gamma$ (后被称为 Keldysh 参数)用以判定多光子机制和隧穿机制的适用范围, $\gamma = \omega \sqrt{2I_p} / E$ ,其中  $\omega$  为激光频率, $I_p$  为原子的电离势, $E$  为激光场强的大小。当  $\gamma \gg 1$  时(对应于高频弱光强的光场),多光子电离机制占主导;当  $\gamma \ll 1$  时(对应于低频强光强的光场),隧道电离机制占主导。值得一提的是,本领域绝大部分实验均在  $\gamma \approx 1$  附近进行,两种图像可以共存,该现象被称为非绝热隧道电离<sup>[17-22]</sup>。在非绝热隧穿中,需要将激光场看作含时变化的电场,在电子波包在势垒下的运动过程中,其能量是含时变化的。相反地,对于静电场诱导的绝热隧穿而言,电子在隧穿时其能量不发生变化。图 1 展示

了这两种隧穿机制,并对其进行了对比区分。

通过隧穿理论可以获得电子波包在隧穿出口处的动量分布,再求解经典轨迹的牛顿方程。让电子在激光场和库仑场的共同作用下进行含时演化,可以得到激光脉冲结束后的电子动量分布,该动量谱对应于强场电离实验中直接观测到的信号,这种方法被称为经典轨迹蒙特卡罗模拟(CTMC)<sup>[23-24]</sup>。如果考虑电子轨迹的相位因素,则可以重复出更多的量子干涉方面的实验现象,这种包含轨迹相位的模拟方法被称为量子轨迹蒙特卡罗模拟(QTMC)<sup>[25]</sup>。这些经典、半经典的轨迹模型在物理上是非常透明的,对理解各种各样的强场物理现象发挥着重要作用。然而,这种轨迹模拟的理论方法非常依赖于轨迹的初始坐标分布,即初始位置分布和初始动量分布。因此,为了更加精确地刻画电子波包的初始坐标分布,需要一种全面而自洽的非绝热理论来精确刻画隧道电离。

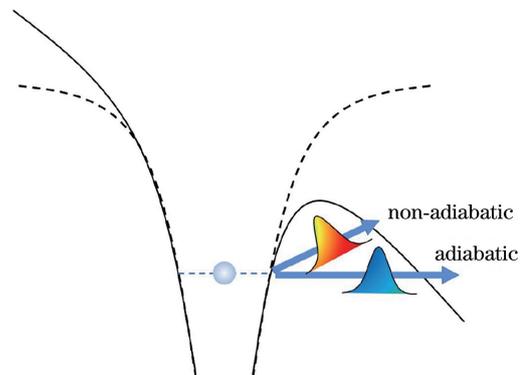


图 1 隧道电离的物理图像。水平通道为绝热隧穿,倾斜向上通道为非绝热隧穿

Fig. 1 Physical picture of tunneling ionization. Horizontal channel represents adiabatic tunneling, and upwards tilted channel represents non-adiabatic tunneling

## 2 隧道电离在自然坐标系中的刻画

### 2.1 理论模型

根据 Landau-Dykhne 跃迁理论,在一个低频光场中,电子从束缚态  $|b\rangle$  跃迁到末态  $|f\rangle$  的跃迁矩阵元可以表示为  $A_{bf} \approx \exp\left\{\int_0^{t_0} [\epsilon_f(t) - \epsilon_b(t)] dt\right\}$ ,其中  $\epsilon_b(t)$  和  $\epsilon_f(t)$  分别是初态和末态的能量, $t_0$  为观测时刻。在笛卡儿坐标系中,理论上很难把上述隧穿问题看作一个一维问题,因为无法从三维薛定谔方程中单独分离出一个一维的隧穿方程。然而,物理

学家发现借助于抛物坐标系能够实现这一目标,因此抛物坐标系正是处理隧穿问题的自然坐标系<sup>[26]</sup>。

在抛物坐标系中,三个坐标轴分别是  $\xi=r+z$ ,  $\eta=r-z$  和  $\phi=\arctan(y/x)$ ,其中  $z$  轴是瞬时电场的所在方向, $y$  和  $x$  为剩余的两个笛卡儿坐标轴, $r=\sqrt{x^2+y^2}$ 。对三维的定态薛定谔方程在抛物坐标系中分离变量后,可以得到关于坐标  $\eta$  的隧穿方程,即  $\frac{d^2 g_2(\eta)}{d\eta^2} + 2 \left[ -\frac{1}{4} I_p(F) - V(\eta, F) \right] g_2(\eta) = 0$ ,其中  $g_2(\eta)$  代表沿  $\eta$  方向的电子波函数, $I_p(F) = I_p + \frac{1}{2}(\alpha^N - \alpha^1)F^2$  是包含交流斯塔克效应(AC-Stark effect)的原子电离势, $\alpha^N$  和  $\alpha^1$  分别是中性原子和母核离子的极化率, $F$  为瞬时的激光电场强度, $V(\eta, F) = -\frac{z_2}{2\eta} + \frac{m^2-1}{8\eta^2} - \frac{1}{8}F\eta + \alpha^1 F/\eta$  是沿  $\eta$  方向电子所感受到的束缚势,它包含了母核极化的因子  $\alpha^1$ ,  $z_2 = 1 - \frac{(1+|m|)\sqrt{2I_p}}{2}$  是分离变量后的常量,依赖于电子基态的磁量子数  $m$ 。束缚势能曲线  $V(\eta, F)$  呈现为一个有限厚度的势垒,可以

允许电子隧穿出去,因此抛物坐标系中的  $\eta$  方向就是隧穿的自然方向。

考虑母核极化效应和交流斯塔克效应,电子隧穿后的末态能量可以表示为  $\epsilon_f = \frac{1}{2}[\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)]^2 + U_{\text{eff}}$ ,其中  $\mathbf{p}$  为光电子的末态动量, $\mathbf{A}(t)$  为激光矢势, $U_{\text{eff}}$  为电子有效势,可表示为

$$U_{\text{eff}} = -\frac{2z_2}{\eta} + \frac{m^2-1}{2\eta^2} - \frac{1}{2}F\eta + \frac{4\alpha^1 F}{\eta} + \frac{1}{2}(\alpha^N - \alpha^1)F^2. \quad (1)$$

(1)式中最后两项分别是母核极化效应和交流斯塔克效应的贡献。相应地,包含  $\eta$  的鞍点方程可以表示为  $\frac{1}{2}[\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)]^2 + U_{\text{eff}} + I_p = 0$ 。电离率  $\Gamma$  正比于跃迁概率幅度  $A_{\text{bf}}$  的平方,即  $\Gamma \propto |A_{\text{bf}}|^2 \propto |\exp[-iS(t_f, \eta)] dt d(\eta + \xi)|^2$ ,其中作用量  $S(t_f, \eta) = \int_{t_i}^{t_f} \left\{ \frac{1}{2}[\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)]^2 + I_p + U_{\text{eff}}(\eta, t) \right\} dt$  (其中  $t_i$  为电离时刻, $t_f$  为末态观察时刻)可以进一步分为对时间的积分和对空间的积分,即

$$S = -\int_{t_0}^{\infty} \left\{ \frac{1}{2}[\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)]^2 + I_p(F) \right\} dt - \int_{\eta_0}^{\infty} \left( -\frac{2z_2}{\eta} + \frac{m^2-1}{2\eta^2} - \frac{\eta F}{2} + \frac{4\alpha^1 F}{\eta^2} \right) \eta' d\eta, \quad (2)$$

式中: $\eta'$  为  $d\eta/dt$ 。求解鞍点方程时,可以获得两个鞍点(时间鞍点  $t_0 = t_r + it_i$  和空间鞍点  $\eta_0 = \eta_r + i\eta_i$ ,其中  $\eta_r$  为空间鞍点的实部, $\eta_i$  为空间鞍点的虚部),因此可以将势垒下的积分路径选为从鞍点到它

们的实部,将势垒外的积分路径选为从鞍点实部出发沿实轴到激光脉冲的结束时刻。对于研究的氢原子 1s 基态电离而言,参数满足  $m=0$  和  $z_2=1/2$ 。因此,电离率可以表示为

$$\Gamma = \exp \left\{ -2[p^2/2 + I_p(F) + U_p]t_i + 2p_z \frac{F}{\omega^2} \sin(\omega t_r) \sinh(\omega t_i) - 2p_x \frac{\epsilon F}{\omega^2} \cos(\omega t_r) \sinh(\omega t_i) + \frac{1-\epsilon^2}{4\omega^3} \cos(2\omega t_r) \sinh(2\omega t_i) \right\} \times \exp \left\{ \text{Im} \left[ \ln \frac{2\eta_r}{\eta_r + \eta_i i} + (1 - 8\alpha^1 F) \frac{2\eta_r + \eta_i i}{\eta_r^2 + \eta_i \eta_r i} + \frac{F}{2}(\eta_i^2 - \eta_0^2) \right] \right\}, \quad (3)$$

式中: $p_x$  和  $p_z$  分别为光电子沿激光短轴和长轴方向的末态动量分量; $\epsilon$  为激光的椭圆偏率。空间鞍点的实部代表着在抛物坐标系中隧穿出口的位置,将它的坐标变换到直角坐标系中:

$$z_{\text{exit}} = -\frac{\eta_r}{2} \cdot \frac{\cos(\omega t_r)}{\sqrt{[\cos(\omega t_r)]^2 + [\epsilon \sin(\omega t_r)]^2}}, \quad x_{\text{exit}} = -\frac{\eta_r}{2} \cdot \frac{\epsilon \sin(\omega t_r)}{\sqrt{[\cos(\omega t_r)]^2 + [\epsilon \sin(\omega t_r)]^2}}$$

和  $y_{\text{exit}}=0$ 。将末态动量减去光场的漂移动量后,可以得到隧穿出口的动量分量,即  $p_{\text{exit}}^{(z)} = p^{(z)} - \frac{F_z \sin(\omega t_r)}{\omega}$ ,  $p_{\text{exit}}^{(x)} = p^{(x)} + \frac{\epsilon F_x \cos(\omega t_r)}{\omega}$  和  $p_{\text{exit}}^{(y)} = p^{(y)}$ 。

## 2.2 初始电子波包的坐标分布和动量分布

基于这种抛物坐标系的隧穿模型,首先计算了在一束椭圆偏光作用下的隧穿出口的分布,如图 2 所示。激光的强度选为  $1.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , 波长为 800 nm, 椭圆率为 0.6。基于这种隧穿模型得到的

隧穿出口分布的最主要特征就是在任意电离时刻的隧穿出口都不是一个固定的数值。在椭圆偏光场中,隧穿出口的位置分布沿长轴[图 2(a)]和短轴[图 2(b)]都呈现含时变化的特征,在合成光场达到极大值的时刻,隧穿出口的位置沿长轴和短轴方向都取极小值。

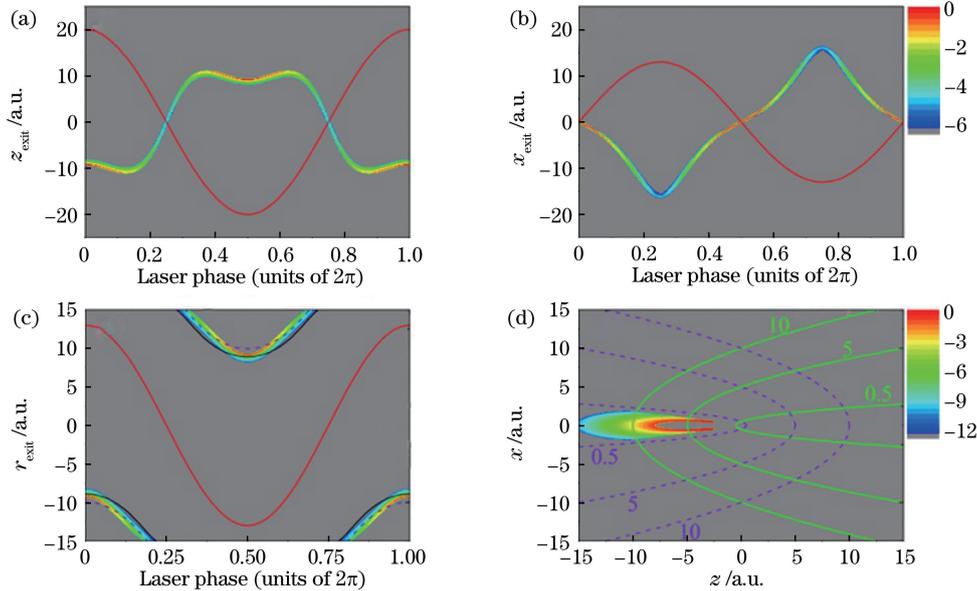


图 2 电子波包隧穿出口的空间分布<sup>[26]</sup>。(a)波包隧穿出口沿  $z$  轴的分布;(b)波包隧穿出口沿  $x$  轴的分布;(c)波包隧穿出口的绝对距离的分布。红色曲线为相应方向的电场,紫色虚线表示零程势的结果,黑色实线表示 TIPIS 模型的结果,色坐标值代表电子波包隧穿概率;(d)半周期波包隧穿出口在二维偏振平面内的分布,图中绿色实线和紫色虚线分别代表抛物坐标系的坐标  $\eta$  和  $\xi$

Fig. 2 Spatial distributions of the tunneling exit of electron wave packets<sup>[26]</sup>. (a) Distribution of the tunneling exit of electron wave packets along the  $z$  axis; (b) distribution of the tunneling exit of electron wave packets along the  $x$  axis; (c) absolute distance distribution of the tunneling exit of electron wave packets. The red line shows the laser field in corresponding direction, the violet dashed line and the black line depict the positions of the tunneling exit predicted with the zero-range potential and TIPIS models, respectively, and the value of color coordinate represents probability of tunneling of electron wave packets; (d) distribution of the tunneling exit of wave packets in half cycle at two-dimensional polarization plane. The green line and the violet dashed line represent parabolic coordinates  $\eta$  and  $\xi$ , respectively

为了突出非绝热隧穿的特征,将其与两种基于绝热隧穿理论预测的出口位置进行了定量比较。图 2(c)展示了短程势模型中的隧穿出口位置  $r_{\text{exit}} = -I_p/E$  (紫色虚线)和 TIPIS(tunneling ionization in parabolic coordinates with induced dipole and Stark shift)模型<sup>[27-28]</sup>中的隧穿出口位置(黑色实线)。抛物坐标系隧穿模型的计算结果表明,在同一电离时刻,波包的位置分布在一个较宽的范围内,而非是一个确定值,这也体现了位置和速度的不确定性关系。与短程势模型的结果相比,TIPIS 模型考虑了库仑势的贡献,计算出的隧穿出口位置更加靠近母核,在激光峰值时刻二者非常接近。图 2(d)中展示了抛物坐标系中的半周期积分的跃迁概率分布。在所模拟的激光条件下,可以发现电子波包的

隧穿出口分布在抛物线  $\xi < 0.5$  以内且  $\eta = 10 \text{ a.u.}$  附近。利用这种模型可以很好地定量描述隧穿概率流的分布特征。图 3(c)中  $T$  为光学周期。

接下来分析初始横向动量分布和初始纵向动量分布,如图 3 所示。图 3(a)展示了电离时间分辨的初始横向动量分布,每个时刻的初始横向动量都呈现为一个高斯分布,其分布中心和分布宽度随着电离时间的变化而发生变化[图 3(c)]。因为在椭圆偏光场中电子在势垒下感受到一个旋转的光场作用力,因此电子波包的初始横向动量中心会发生偏移,不再是零,这一现象也正是非绝热隧穿的重要特征之一。图 3(b)展示了电离时间分辨的初始纵向动量分布,该模型呈现出的非零的初始纵向动量依赖于电离时刻。绝大部分电子在电场峰值处发生隧

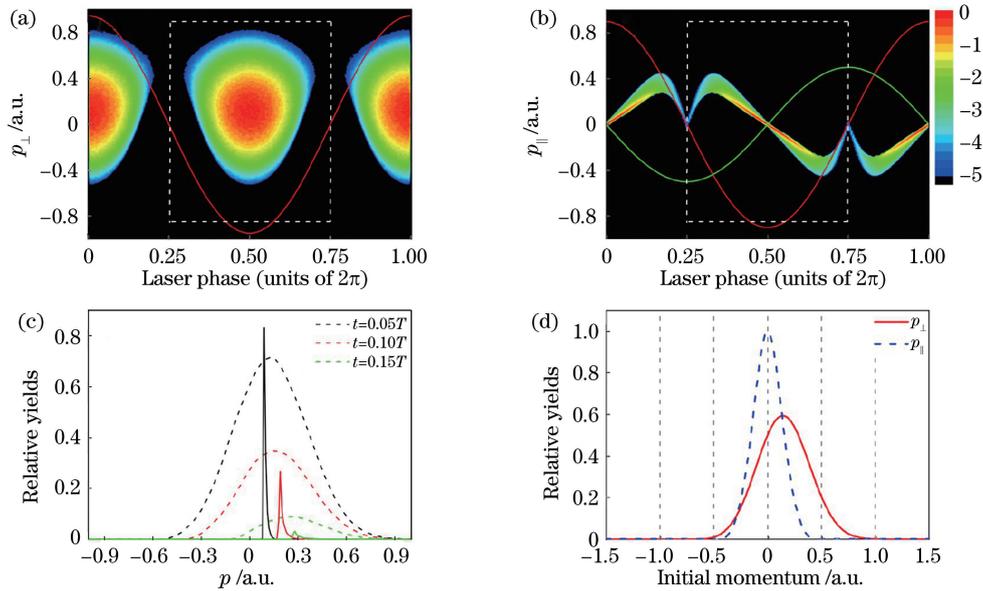


图 3 隧穿电子波包的初始动量分布<sup>[26]</sup>。(a)电子波包的初始横向动量分布;(b)电子波包的初始纵向动量分布;(c)不同电离时刻( $t=0.05T, 0.10T, 0.15T$ )的初始波包的横向(虚线)和纵向(实线)动量分布;(d)半周期积分后的初始横向(实线)和初始纵向(虚线)的动量分布

Fig. 3 Initial momentum distributions of tunneling electron wave packets<sup>[26]</sup>. (a) Initial transverse momentum distributions of electron wave packets; (b) initial longitudinal momentum distributions of electron wave packets; (c) transverse (dashed line) and longitudinal (solid line) momentum distributions when  $t=0.05T, 0.10T$ , and  $0.15T$ ; (d) initial transverse (solid line) and longitudinal (dashed line) momentum distributions after half period integral

穿,计算结果表明电场峰值处的隧穿电子波包的初始纵向动量几乎聚集于零点,因此传统的绝热模型假定初始纵向动量为零。偏离激光电场峰值时,初始纵向动量呈现为偏离零点的不对称分布,此时传统的绝热模型失效。

### 2.3 末态光电子动量分布

得到初始位置和初始动量分布后,利用量子轨迹蒙特卡罗的方法,求解同时包含激光场和库仑场的牛顿方程,演化到激光结束后,便可以统计出光电子的末态动量分布。为了验证这个模型的可靠性,采用了两种理论模型,即数值求解含时薛定谔方程(TDSE)模型和经典轨迹的 TIPIS 模型。TDSE 模型是一种更加精确的理论方法,其结果可以作为检验标准。TIPIS 模型是一种绝热近似模型,通过对比 TIPIS 模型结果可以看出非绝热效应在末态动量谱中的贡献。

图 4 中展示了三种模型在椭圆率为 0.4, 0.6, 0.8 下的末态光电子动量分布。因为抛物坐标系隧穿模型包含了时间依赖的隧穿势垒和隧穿概率流,所以得到的隧穿位置和隧穿动量也更加精确,计算得到的末态光电子动量分布与 TDSE 结果符合得非常好。TDSE 模型和抛物坐标系隧穿模型结果中

的最概然动量和截止动量都比 TIPIS 模型的结果大一些,这表明了非绝热效应的贡献。绝热的 TIPIS 模型中不包括初始纵向动量并且初始横向动量的中心始终为零,这些都是导致末态动量不准确的原因。通过对比可知,进一步改进绝热的隧穿模型才能很好地描述椭圆光场下的非绝热隧穿特征。

## 3 电子波包的势垒下相位

### 3.1 势垒下相位的理论描述

根据强场近似理论<sup>[3,29-30]</sup>和鞍点近似方法<sup>[31-32]</sup>,电离电子波包可以表示为  $P(t_s) \exp[i \cdot S_p(t_s)]$ ,指前因子和指数因子都会有相位的贡献,如果再考虑电离后的库仑修正相位  $\Phi_{cc}$ ,总体上电子波包的相位可以表示为  $\Phi = \Phi_{pre} + \Phi_{sub} + \Phi_{light} + \Phi_{cc}$ 。 $\Phi_{pre}$  为指前因子的相位,是偶极跃迁矩阵元的相位,体现着基态原子轨道的相位,对于环流电子态而言, $\Phi_{pre} = \exp(im\varphi)$ ,其中  $\varphi$  为空间方位角, $m$  为基态原子轨道的磁量子数。对于非环流电子态( $m=0$ )而言,这一相位一般可以忽略不计。 $\Phi_{sub}$  是电子在势垒下积累的相位, $\Phi_{sub} = \text{Re} \left\{ -\int_{t_s}^t \left\{ \frac{[p + A(\tau)]^2}{2} + I_p \right\} d\tau \right\}$ ,它是势垒下电子作

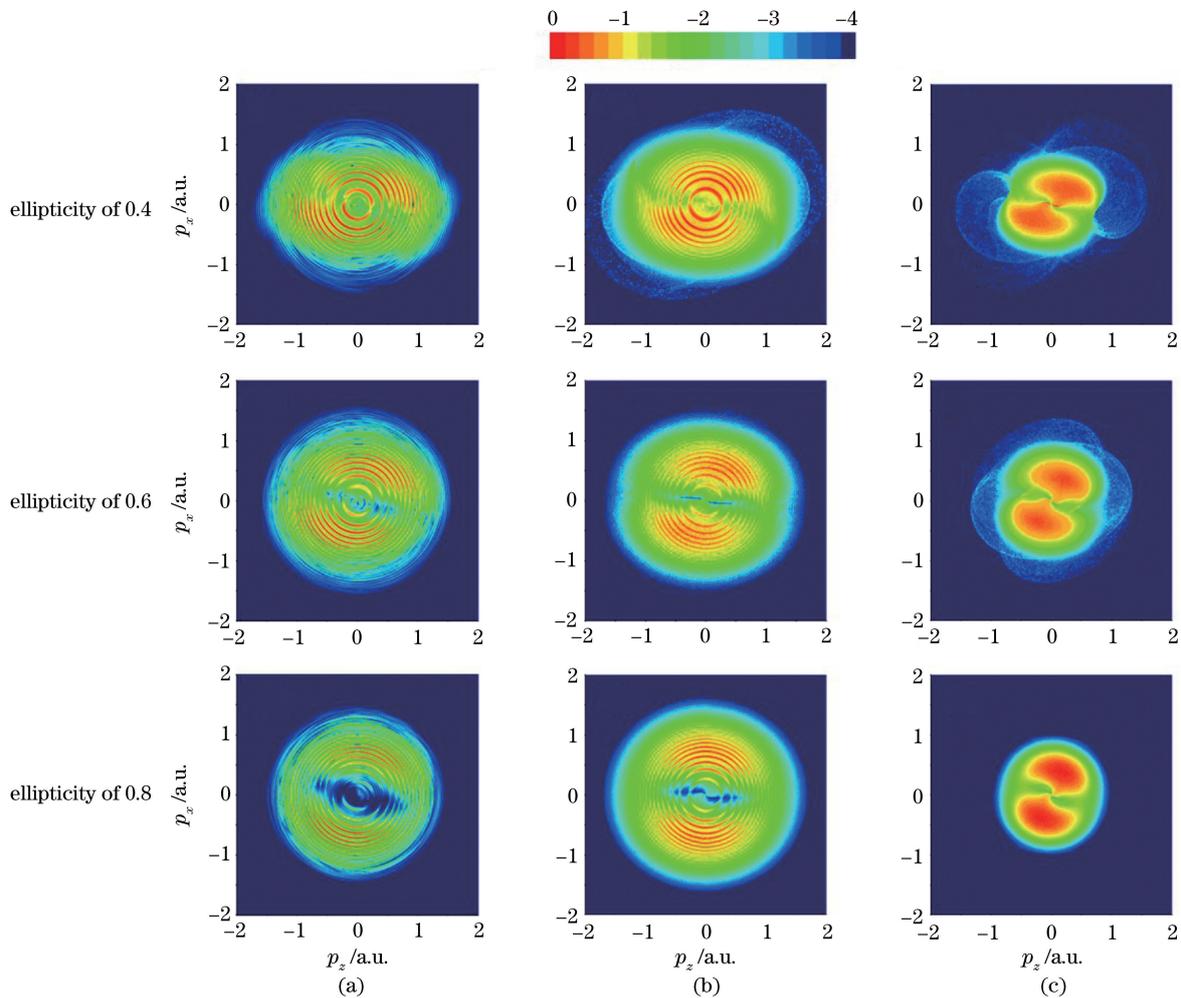


图 4 光电子在偏振平面内的末态动量分布<sup>[26]</sup>。(a) TDSE 模型；(b) 抛物坐标系隧穿模型；(c) TIPIS 模型

Fig. 4 Photoelectron momentum distributions of final state in polarization plane<sup>[26]</sup>. (a) TDSE model; (b) parabolic coordinate tunneling model; (c) TIPIS model

用量的实部,包含着电子的隧穿动力学信息,其具体表达形式依赖于光场的形状。 $\Phi_{\text{light}}$  包含电离后的光场赋予电子的相位,下文将统一称为电子波包的光致相位, $\Phi_{\text{light}} = -\int_{t_r}^{\infty} \left\{ \frac{[p + A(\tau)]^2}{2} + I_p \right\} d\tau$ ,它依赖于波包的电离时刻、原子的种类和光场的形状,包含着电子的经典动力学信息。 $\Phi_{\text{cc}} = -\int_{t_r}^{\infty} \frac{1}{r(\tau)} d\tau$ 。

大多数刻画电子干涉动力学的理论模型,如 QTMC 模型等,都假定隧穿之后的电子波包不携带任何初始相位,即不考虑电子波包的势垒下相位,只考虑经典传播的两项相位  $\Phi_{\text{cc}}$  和  $\Phi_{\text{light}}$ ,便可以取得与实验结果符合的结果。然而,基于自洽完整的强场近似理论,电子波包又似乎具有这个初始的势垒下相位  $\Phi_{\text{sub}}$ 。因此,问题的核心是人们在描述光电子干涉时是否需要这个势垒下相位,以及在哪些光场条件下能明显地看到势垒下相位对实验结果起着

不可缺少的作用。

### 3.2 势垒下相位的实验探测

利用等强度的正交双色 (OTC) 光场可以揭示势垒下相位的影响,在该光场中,等强度的正交的两个电场可以最大限度地避免电子在两个维度上发生库仑聚焦现象,从而可以进一步提高周期内干涉条纹的分辨率,产生更加丰富的周期内干涉条纹。因此,选取等强度正交双色光场作为探测方案<sup>[33-34]</sup>。

图 5 给出了等强度正交偏振双色光场在不同相对相位下的光电子二维动量谱。将激光电场表示为  $E(t) = E_{800} \cos(\omega t) \hat{x} + E_{400} \cos(2\omega t + \Delta\phi) \hat{z}$ ,其中  $E_{800}$  和  $E_{400}$  分别为 800 nm 和 400 nm 激光场的场强大小, $\hat{x}$  为基频光的偏振方向, $\hat{z}$  为倍频光的偏振方向, $\Delta\phi$  为两束光的相对相位。实验中将基频光偏振方向的激光强度校准为  $0.72 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ,将倍频光的偏振方向的激光强度校准为

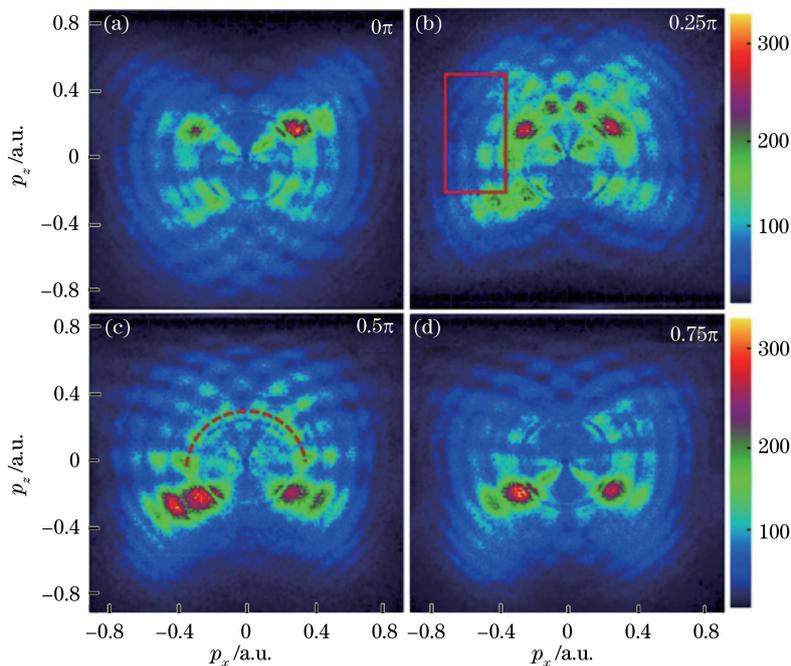


图 5 实验测量得到的等强度正交偏振双色光场作用下的光电子动量谱<sup>[33]</sup>。右上角标注着两束光的相对相位  
 Fig. 5 Measured photoelectron momentum spectra in orthogonal polarization two-color fields with comparable intensities<sup>[33]</sup>. Numbers in right-upper corner represent the relative phase

$0.87 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , 基于单色光场中获得的阈上电离 (ATI) 峰值的位置对两束光的激光强度进行校准, 采集数据时两束光的相对相位  $\Delta\phi$  通过扫描楔形镜的位置来连续控制。分析离线数据时, 通过限定载有楔形镜的平移台的位置就可以选取出每个相对相位下的实验结果, 双色光场相对相位的校准是通过将实验结果与 TDSE 的模拟结果进行对比完成的。

从实验结果中可以发现, 等强度的正交双色光场将会产生更加丰富的光电子干涉结构, 这些干涉结构显著地依赖于双色光场的相对相位。动量谱的整体形状与任何一种单色光场的结果都截然不同, 也不是两种单色动量谱的机械叠加, 这也是在实验上判断两个光脉冲是否时空重合的判据之一。光电子动量谱中的环形结构为 ATI 结构, 对应于周期内干涉, 动量谱中的径向条纹对应于周期内干涉条纹。

这里关注光电子的干涉现象, 而不是这些强场近似失效的库仑散射现象。从实验结果可以看出, 在相对相位为  $0.5\pi$  时, 周期内干涉条纹 (径向条纹) 在动量谱的上半平面最为清晰, 因此接下来主要讨论相对相位为  $0.5\pi$  时的电子动力学过程。值得注意的是, 在此相位下, 动量谱下半平面中产率极高的结构为电子的再散射结构<sup>[35]</sup>。

### 3.3 势垒下相位对周期内干涉图案的影响

图 6(a)、(b) 给出了激光电场在相对相位为

$0.5\pi$  时的时域信息和空间形状。从图 6(a) 中可以发现, 在 800 nm 周期内, 合成光场的电场会出现 4 次等强度的峰值, 这意味着会有 4 个等振幅的亚周期电子波包被相继地发射出去, 根据电离时刻的两个维度的激光负矢势方向, 可以判断第 1 个波包 (WP1) 和第 2 个波包 (WP2) 会在动量谱的右半平面内重合, 第 3 个波包 (WP3) 和第 4 个波包 (WP4) 会在动量谱的左半平面内重合。动量空间重合的两个波包会发生干涉, 从而形成清晰的径向干涉条纹。图 6(b) 中的绿色箭头就表示了波包的出射方向 (即末态动量方向), 蓝色箭头和红色箭头分别表示了隧穿时刻 400 nm 和 800 nm 光场的方向, 从图 6(b) 可以清晰地看出整个干涉原理类似于一个时空调控的干涉仪, 利用此干涉仪, 可以使具有不同初始相位的亚周期电子波包发生干涉, 从而得到初始相位 (即势垒下相位) 的影响。借助强场近似理论并结合鞍点的方法, 给出这些波包的干涉图样。结果表明, 当计算中包含势垒下相位时, 干涉条纹会变得更加密集。图 6(c)、(d) 分别是不包含势垒下相位的计算结果和包含势垒下相位的计算结果, 沿第一阶 ATI 的位置画一个半圆弧线, 可以发现, 包含势垒下相位的计算结果比不包含该相位的计算结果多出两个峰值, 因此可以根据第一阶 ATI 环上斑点的个数来定量地比较实验和理论结果, 从而揭示出势垒下相位

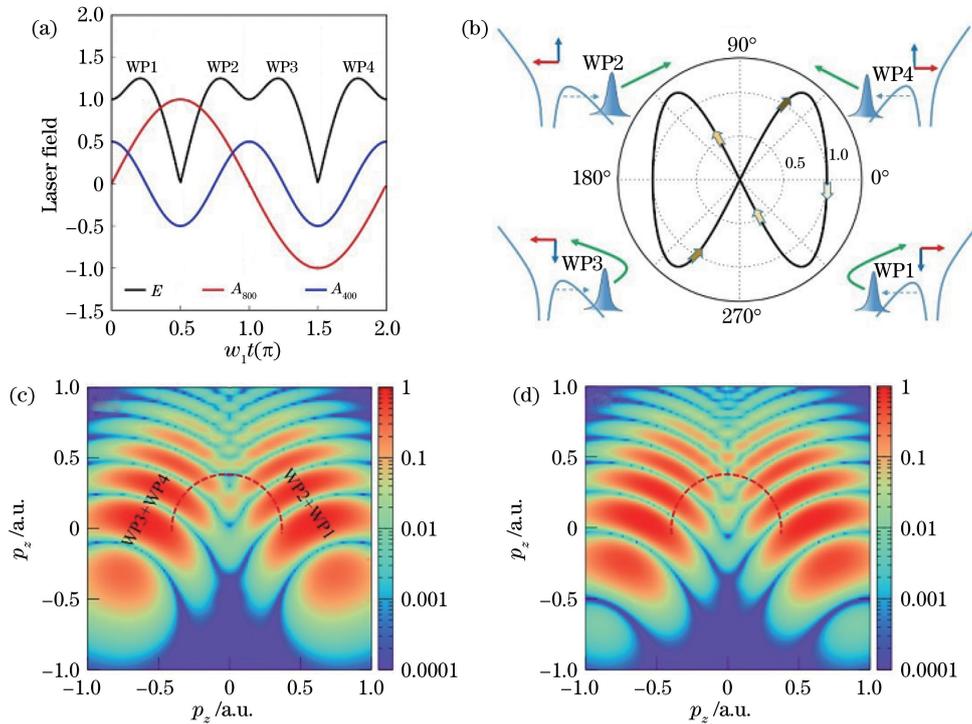


图 6 相对相位为  $0.5\pi$  时的等强度双色光场及其电子干涉动力学<sup>[33]</sup>。(a)光场的时域信息,其中黑色曲线代表合成电场的振幅随时间的变化,红色和蓝色曲线则分别代表 800 nm 和 400 nm 的负的激光矢量势;(b)光场的空间信息。黄色箭头颜色加深表示时间的延长,4 个子图为激光电场两个维度的分量,其中绿色箭头代表隧穿波包离开势垒之后的运动轨迹;(c)强场近似 SFA 模型不考虑势垒下相位时计算的电子波包干涉图案;(d)强场近似模型考虑势垒下相位时计算的电子波包干涉图案

Fig. 6 Two-color light fields with comparable intensities and electron interference dynamics at the relative phase of  $0.5\pi$ <sup>[33]</sup>. (a) Temporal sketch of the light field. The black line, red line, and blue line indicate the synthesized electric field versus time, negative vector potentials of 800 nm light, and negative vector potentials of 400 nm light, respectively; (b) spatial view of the light field. The deepening of yellow arrows represents the increase of time. The four subplots depict the components of laser electric fields in two dimensions (the green arrow displays the motions of tunneling wave packets after leaving barrier); (c) interferogram of electron wave packets calculated by SFA model without plain sub-barrier phase; (d) interferogram of electron wave packets calculated by SFA model with plain sub-barrier phase

在动量谱中的贡献。

如果将理论和实验进行定量比较,就必须在强场近似理论的基础上考虑库仑场的影响,因此在计算最终的光电子动量谱时主要采用了库仑修正的强场近似(CCSFA)模型和数值求解含时薛定谔方程的方法,这两种理论方法都可以包含库仑势的作用,其中在 CCSFA 模型中可以人为地添加或屏蔽电子的势垒下相位,以便于独立观察它在最终动量谱上的影响。在数值计算中,采用的激光场为  $\sin^2$  型包络,基频光和倍频光的场强分别为 0.04 a. u. 和 0.045 a. u.,激光脉冲的长度为基频光的 8 个周期(即倍频光的 16 个周期)。

图 7 展示了 4 种理论模型计算的光电子动量谱,并将其与实验结果进行了比较,图中虚线标注了

第一阶 ATI 的位置。从图中可以发现,CCSFA 模型包含势垒下相位时能够重复出第一阶 ATI 上的 8 个斑点,这与实验结果一致。当 CCSFA 模型不包含势垒下相位时,计算出的周期内干涉条纹的间距较宽,因此第一阶 ATI 上只呈现出 6 个斑点,这与实验结果不符。另外,对于第一阶 ATI 环以内的电子结构,同样可得考虑势垒下相位时的 CCSFA 模型结果与实验结果相一致。图 7(c)展示了数值求解 SFA 模型的结果,这种方法没有应用鞍点近似也没有采用电子轨迹的概念。将 CCSFA 模型与数值 SFA 模型的计算结果进行比较,能够判断出势垒外的库仑修正相位不会明显影响第一阶 ATI 环上的斑点数目,由库仑势造成的影响主要体现在动量谱的下半平面中的散射结构<sup>[35]</sup>。图 7(d)展示的是通

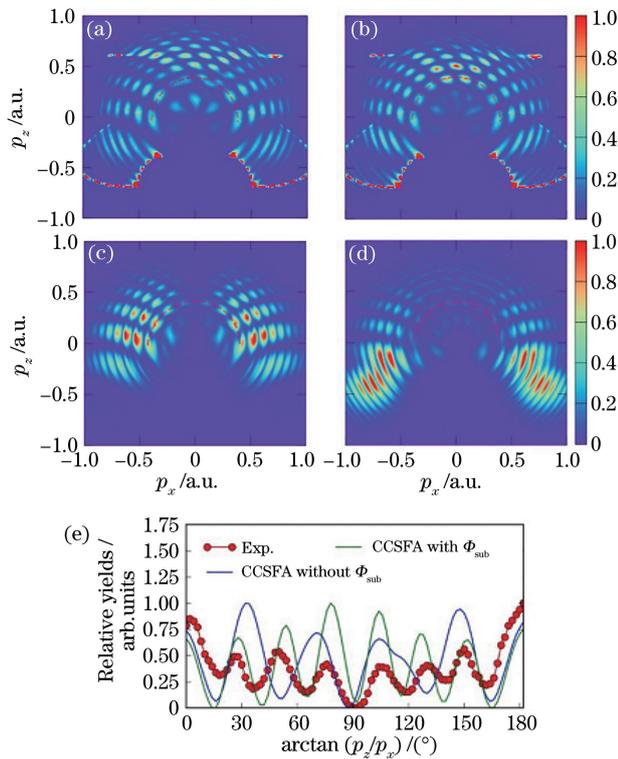


图 7 相对相位为  $0.5\pi$  时计算的光电子动量谱<sup>[33]</sup>。(a) CCSFA 模型不考虑势垒下相位时的计算结果；(b) CCSFA 模型考虑势垒下相位时的计算结果；(c)数值求解 SFA 模型的结果；(d)数值求解 TDSE 模型的结果；(e)实验与 CCSFA 模型得到的关于第一阶 ATI 的角分布

Fig. 7 Simulated electron momentum distributions at relative phase of  $0.5\pi$ <sup>[33]</sup>. (a) Result calculated by CCSFA model without plain sub-barrier phase; (b) result calculated by CCSFA model with plain sub-barrier phase; (c) result obtained by solving SFA model; (d) result obtained by solving TDSE model; (e) angular distributions of first-order ATI obtained by experiment and CCSFA model

过数值求解薛定谔方程得到的动量谱，TDSE 模型同时包含了势垒下相位和势垒外的库仑势的影响，其计算结果与实验测量结果符合得很好，从而更加证实实验结果与结论的可靠性。

## 4 光电子的自旋极化

### 4.1 光电子自旋极化的研究背景

在圆偏振激光场作用下，环流轨道(磁量子数  $m$  不为零的轨道，常见的环流轨道为  $p_+$  和  $p_-$  轨道)的强场电离中的非绝热效应引发了人们极大的研究兴趣<sup>[36-40]</sup>，非绝热效应的一个自然的表现是圆偏振

光更倾向于电离反向旋转的环流轨道，如果考虑原子分子内部的自旋轨道耦合现象，则可以利用这种圆偏光场中的非绝热效应产生自旋极化的光电子<sup>[41-44]</sup>。

目前所有产生自旋极化光电子的方案都局限于使用圆偏振的激光。在多周期圆偏振光场中，光场的偏振矢量旋转速度相同且强度基本不发生变化，所以光电子的自旋极化率也是不随时间变化。如今利用脉冲整形技术，人们可以产生瞬时任意偏振的激光脉冲，因此，研究任意偏振光场作用下的亚周期的光电子自旋极化率是一个非常重要的课题。

### 4.2 正交双色光场对光电子自旋极化的空间调控

本小节中提出利用正交双色光场来产生自旋极化的光电子<sup>[45]</sup>，并且在时间和空间两个维度上调控光电子的自旋极化。

不失一般性，在模拟中使用氩原子。氩原子最外层为 6 个 p 价电子，当其中一个电子被激发或者电离后，剩下的 5 个 p 电子会发生自旋轨道耦合效应，使得氩离子有两个状态，分别是基态( $^2P_{3/2}$ )和激发态( $^2P_{1/2}$ )。每个离子态都对应 3 种电子态，即  $p_+$  (顺时针旋转,  $m_l = 1$ ,  $m_l$  是轨道角动量的  $z$  方向分量),  $p_-$  (逆时针旋转,  $m_l = -1$ ) 和  $p_0$ , 其中  $p_0$  垂直于激光偏振平面, 它的电离贡献可以忽略不计。考虑自旋轨道耦合效应,  $^2P_{3/2}$  离子态又可以分为 4 个子态, 即  $m_j = 3/2, 1/2, -1/2, -3/2$ ,  $m_j$  是总角动量的  $z$  方向分量;  $^2P_{1/2}$  离子态又可以分为 2 个子态, 即  $m_j = 1/2, -1/2$ 。这些电子轨道子态的自旋方向(即  $m_s$ )可以根据角动量守恒  $m_j = m_l + m_s$  确定出来(其中  $m_s$  是自旋角动量的  $z$  方向分量,  $z$  方向为选定的量子轴方向, 在圆偏光场中,  $z$  方向选为激光的传播方向), 这些态的相对权重由 Clebsch-Gordan (CG) 系数决定, 结果如图 8(c) 所示。值得一提的是, 对于  $^2P_{1/2}$  离子态而言,  $p_+$  轨道的自旋方向向下,  $p_-$  轨道的自旋方向向上。下面主要针对  $^2P_{1/2}$  离子态进行讨论。

在一束相对相位为零的正交光场中，激光的电场矢量在半个周期内呈现出左旋状态，在另外半个周期内会呈现出右旋状态，如图 8(a) 所示，相邻两个半周期的光场的形状和大小是完全相同的，唯一的差别就是光场的旋向或者手性。根据环流轨道的非绝热电离特性，左旋光场更容易电离右旋电子轨道，而右旋光场则更容易电离左旋电子轨道，因此，在这种正交双色光场下， $p_+$  轨道和  $p_-$  轨道被光场

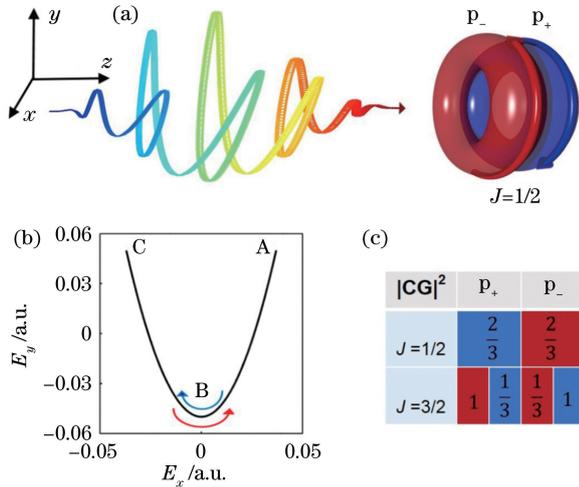


图 8 使用相对相位为零的正交双色光场产生空间分离的自旋极化光电子的机制<sup>[45]</sup>。(a)正交双色光场和环流轨道的示意图;(b)合成激光电场的示意图,在半个周期内,电场矢量将顺时针地沿着 A-B-C 旋转,在下半个周期内,电场矢量将逆时针地沿着 C-B-A 返回;(c)CG 系数的分布。对于 $^2P_{1/2}$  离子态,从左到右分别表示  $m_j = 1/2, -1/2$ ;对于 $^2P_{3/2}$  离子态,从左到右分别表示  $m_j = 3/2, 1/2, -1/2, -3/2$ 。自旋向上用红色表示,自旋向下用蓝色表示

Fig. 8 Mechanism of producing spatially separated spin polarization photoelectrons using OTC light field at relative phase of zero<sup>[45]</sup>. (a) Illustrations of OTC light field and circular orbitals; (b) synthesized laser electric field. During a half of laser cycle, electric field is clockwise rotating along the path of A-B-C, and in another half cycle, electric field is anticlockwise rotating along the path of C-B-A; (c) distribution of CG coefficients. From left to right,  $m_j = 1/2, -1/2$  for  $^2P_{1/2}$ , and  $m_j = 3/2, 1/2, -1/2, -3/2$  for  $^2P_{3/2}$ . The electron spin states are illustrated with red (up-polarized) and blue (down-polarized) colors

交替优先电离,从而在时间上可看出相邻半个周期出射的光电子的自旋方向是相反的。更重要的是,由于相邻两个半周期光场的矢势的方向是相反的,因此这些不同发射时刻的光电子将会被光场映射到不同方向的末态动量,从而实现了自旋向上的光电子和自旋向下的光电子在空间上的分离。

为验证这一想法,借助轨道分辨的强场近似模型将跃迁矩阵元表示为  $M(\mathbf{p}) = -i \int_0^{t_f} d\tau \langle \mathbf{p} + \mathbf{A}(\tau) | \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(\tau) | \psi_{nlm_l}(\mathbf{r}) \rangle \exp\left\{ \int_0^{\tau} [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t')]^2 / 2 + I_p dt' \right\}$ , 其中

$\mathbf{p}$  是光电子的末态动量,  $\mathbf{A}$  是激光的矢势,  $t_f$  是激光脉冲的结束时刻,  $\psi_{nlm_l}$  是初始的原子轨道波函数;  $t'$  和  $\tau$  为时间积分变量;  $\mathbf{r}$  为坐标矢量。计算中采取了类氢原子的轨道波函数  $\psi_{nlm_l} = \exp(-\kappa r) Y_{1m_l}(\theta, \varphi) / r$  作为 Kr 原子的环流轨道波函数,其中  $\kappa = \sqrt{2I_p}$ ,  $m_l = +1$  和  $m_l = -1$  分别代表  $p_+$  轨道和  $p_-$  轨道。跃迁矩阵元的积分可以通过鞍点近似的方法求解,这个方法的核心思想是寻找出少数几条最概然电子的轨迹来代替整个脉冲积分的贡献。一般地,这些鞍点是复数,其实部代表着电子的出射时刻,其虚部决定着电子轨迹的权重。使用鞍点近似后,跃迁矩阵元可以表示为  $M_{\pm}(\mathbf{p}) = \sum_{t_s} c_{CG} \sqrt{\frac{3}{8\pi\kappa}} \frac{[p_x + A_x(t_s)] \pm i[p_y + A_y(t_s)]}{\sqrt{\mathbf{E}(t_s) \cdot [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s)]}} \exp(iS_s)$ , 其中  $c_{CG}$  为 CG 系数,  $p_+$  轨道和  $p_-$  轨道分别由“+”和“-”决定。每个电子波包的作用量  $S_s = \int_{t_s}^{t_f} \{ [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)]^2 / 2 + I_p \} dt$ , 其中鞍点  $t_s$  通过数值求解鞍点方程  $[\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s)]^2 / 2 + I_p = 0$  获得。利用每一个末态动量,在一个光周期内可以求解出 4 个鞍点,分别对应于合成电场的 4 个亚周期峰值。

图 9 中展示了  $p_+$  轨道和  $p_-$  轨道电离出的光电子的末态动量分布,分别代表着自旋向下电子和自

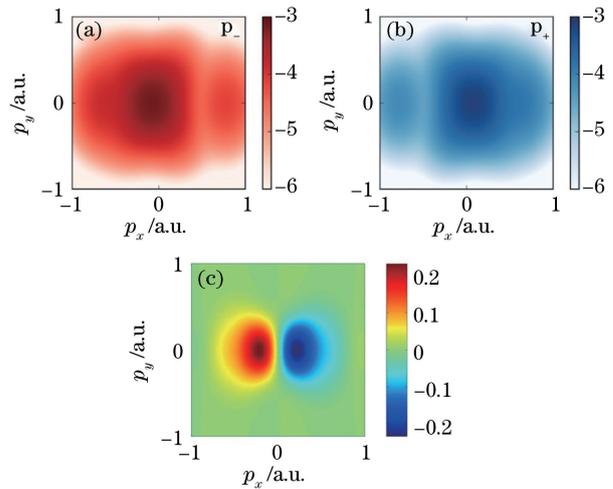


图 9 基于轨道分辨的 SFA 模型的计算结果<sup>[45]</sup>。 $^2P_{1/2}$  离子态的(a)  $p_-$  和(b)  $p_+$  轨道的亚周期光电子动量分布;(c)动量分辨的归一化产率的不对称度

Fig. 9 Results calculated by orbital-resolved SFA model<sup>[45]</sup>. Calculated photoelectron subcycle momentum distributions of (a)  $p_-$  and (b)  $p_+$  orbitals of  $^2P_{1/2}$ , respectively; (c) asymmetry of momentum-resolved normalized yield

旋向上电子的末态动量分布。为了更加清晰地看出二者的差异,采用归一化自旋极化率  $S_{\text{norm}}$  来衡量,  $S_{\text{norm}} = (Y_{\text{up}} - Y_{\text{down}}) / \max(Y_{\text{up}} + Y_{\text{down}})$ , 其中  $Y_{\text{up}}$  和  $Y_{\text{down}}$  分别是动量分辨的自旋向上电子产率和自旋向下电子产率。计算的归一化自旋极化率展示在图 9(c)中,可以看出,在这种正交双色光场中,自旋向上电子和自旋向下电子分别位于动量平面的两侧,这就意味着可以在空间上将自旋不同的电子分离开来。

### 4.3 正交双色光场对光电子自旋极化的时间调控

在之前的研究中,人们一般采用圆偏振激光来产生自旋极化的光电子,对于偏振是亚周期变化的一般光场而言,瞬时的光电子的自旋极化度依赖于光场的哪些物理量? 这个问题的解答将会帮助人们更加灵活地使用光场对光电子自旋极化进行亚周期量级的超快调控。

根据强场近似跃迁矩阵元,  $p_+$  轨道和  $p_-$  轨道的电离率的差异来自于指前因子  $[p_x + A_x(t_s)] \pm i[p_y + A_y(t_s)]$ , 它也导致了光电子的自旋极化。

如果引入电子进入势垒时的动量分量  $v_{x,y}(t_s) = p_{x,y} + A_{x,y}(t_s)$ , 基于极坐标系将指前因子表示为  $e^{\pm i\varphi(t_s)}$ , 其中  $\varphi(t_s) = \arctan[v_y(t_s)/v_x(t_s)]$  可以被定义为电子的隧穿角。因为隧穿角  $\varphi(t_s)$  是一个复数,所以指前因子对电离率起着关键的调制作用。在一般的非线偏振光场中,这个隧穿角不为零,因此会造成自旋极化。隧穿角依赖于末态动量  $\mathbf{p}$  和电离时刻鞍点  $t_s$ , 隧穿时刻的实部  $\text{Re}[t_s]$  代表着电子离开势垒的时刻,而隧穿时刻的虚部  $\text{Im}[t_s]$  则近似反比于瞬时电离电场的强度。一般地,隧穿角无法通过解析求得,可以采用一些近似法来定性分析它所依赖的物理量。隧穿角可以表示为在隧穿过程中偏振矢量角速度对时间的积分,即  $\varphi(t_s) \approx \int_{t_s}^{\text{Re}[t_s]} \Omega(t) dt \approx \Omega(\text{Re}[t_s]) \text{Im}[t_s]$ , 其中  $\Omega(t)$  为角速度,因此,隧穿角正比于激光偏振矢量瞬时的角速度,反比于激光偏振矢量的瞬时大小。对于线偏振光而言,偏振矢量的角速度为零,所以不会产生自旋极化的光电子。对于圆偏振光而言,这两个决定变量蜕变为激光的频率和强度,因此,高频低光强的圆偏光场中光电子的自旋极化率更高。

使用上述介绍的鞍点法和强场近似可以追溯到任意光场的瞬时的自旋极化率。这里以相对相位为零的正交双色光场为例加以说明。在末态动量平面(即  $p_x = [-2, 2]$  和  $p_z = [-2, 2]$  构成的平面)均匀采样,找到每一个末态动量对应的所有发射时刻,即

$\text{Re}[t_s]$ 。然后采用强场近似跃迁矩阵元计算各自的电离率,之后按电离时刻的维度分别统计自旋向上电子产率和自旋向下电子产率,也可以采用不区分自旋状态而区分子态的方式进行统计。图 10(a)展示了两个离子态的产率随电离时刻的变化规律,且图中添加了合成电场大小的变化规律,从图中可以看出,当激光电场从 0 演化到  $\pi$  时,出现了三次峰值(即图中 A、B、C),这三次峰值也正好对应三个发射的光电子波包。

这种正交双色光场的角速度可以定义为  $\Omega(t) = d[\arctan(E_y/E_x)]/dt = E'_y E_x - E'_x E_y / (E_x^2 + E_y^2)$  [其中  $E'_x$  为  $E_x(t)$  对时间的导数,  $E'_y$  为  $E_y(t)$  对时间的导数], 如图 10(b)所示。可以发现,角速度在  $t=0$  时刻和  $t=\pi$  时刻发生了符号变化,代表着光场的旋向发生了变化。大约在  $t=0.25\pi$  和  $t=0.75\pi$  时刻,尽管合成光场为极小值,但是它的角速度却取得了极值,可以超过  $0.2 \text{ a.u.}$ 。在  $t=0.5\pi$  时,角速度是极小值,接近  $800 \text{ nm}$  圆偏光场的角速度,即  $0.057 \text{ a.u.}$ 。

图 10(c)、(d)分别展示了瞬时的自旋极化率和归一化不对称度。因为在合成光场的最小值附近没有对应的鞍点,所以无法获得这些时刻的自旋极化率。时间分辨的自旋极化率的形状与角速度的变化规律非常相似。当激光相位为 0 或者  $1.0\pi$  时,计算的自旋极化率为零,这是因为光场偏振矢量的角速度为零,光场瞬时回归到线偏振。在激光相位为  $0.5\pi$  时,自旋极化率为极小值,这也与角速度的变化规律一致。根据 CG 系数的大小[图 8(c)], 即  $^2P_{1/2}$  离子态的权重是  $^2P_{3/2}$  离子态的两倍,所以  $^2P_{1/2}$  离子态的自旋极化是  $^2P_{3/2}$  离子态的两倍,这一规律在亚周期的时间尺度内也是成立的。自旋极化的电子脉冲的宽度可以从归一化产率的不对称度中提取出来,其中在  $0.5\pi$  时刻附近电离的波包脉冲宽度为  $10 \times 10^{-16} \text{ s}$  左右,可以通过控制两束光的光强比来调控自旋极化电子波包的脉冲宽度。

## 5 结 论

从三个方面综述了强激光场原子隧道电离研究的新进展。首先,电子波包的隧穿坐标(即位置和动量)的精确描述是理解众多强场现象的重要基石,在半经典模型中扮演着重要角色,基于隧穿的自然坐标系(即抛物坐标系)的理论描述会极大地提高初始动量分布和初始位置分布的精度,从而可以更好地帮助人们理解和调控强场物理现象。其次,在势垒

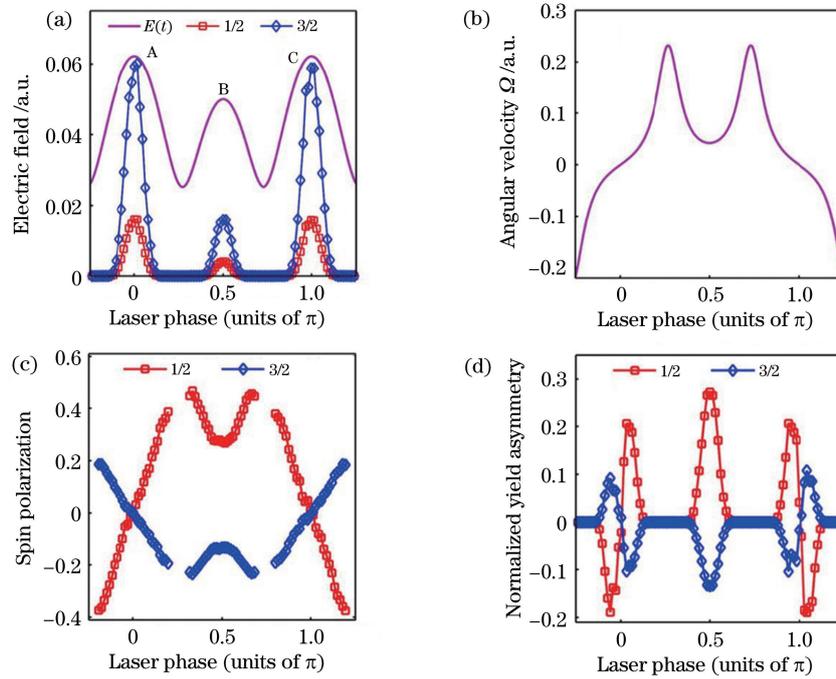


图 10 时间分辨的自旋极化动力学<sup>[45]</sup>。(a)合成电场和电子波包在激光峰值时刻 A-C 的产率;(b)激光偏振矢量的瞬时角速度;(c) $^2P_{1/2}$  和  $^2P_{3/2}$  两个离子态的瞬时自旋极化度;(d) $^2P_{1/2}$  和  $^2P_{3/2}$  两个离子态的瞬时归一化产率不对称度

Fig. 10 Time-resolved spin-polarization dynamics<sup>[45]</sup>. (a) Synthesized electric field and yield of electron wave packets at laser crests of A-C; (b) instantaneous angular velocity of light polarization vector; (c) instantaneous spin-polarization degree of  $^2P_{1/2}$  and  $^2P_{3/2}$  ionic states; (d) instantaneous normalized yield asymmetry of  $^2P_{1/2}$  and  $^2P_{3/2}$  ionic states

下电子隧穿过程中获得的相位(即势垒下相位)能够反映出电子的非经典动力学信息,这具有重要研究意义。基于等强度的正交双色光场,人们可以从光电子周期内干涉图样中揭示出势垒下相位的贡献,提供一种研究电子隧穿动力学的重要方法。最后,在强场领域中,光电子的自旋自由度得到了越来越多的关注,研究发现可以通过正交双色光场在时间和空间两个维度上调控光电子的自旋极化,该方法具有广阔的应用前景。

在之前的研究中,人们大都关注激光峰值时刻的隧穿事件,而对于偏离激光峰值时刻的非平衡态隧穿过程则很少研究,随着双色光场的应用与发展,时间分辨光学隧穿成为未来一个重要的研究课题。另外,对双色光场乃至多色光场中的光电子自旋极化的实验研究也具有重要的意义,可以为自旋极化的光电子的产生和调控提供一些重要手段。

### 参 考 文 献

[1] Agostini P, Fabre F, Mainfray G, et al. Free-free transitions following six-photon ionization of xenon atoms[J]. Physical Review Letters, 1979, 42(17): 1127-1130.

[2] Voronov G S, Delone G A, Delone N B, et al. Multiphoton ionization of the hydrogen molecule in the strong electric field of ruby laser emission[J]. JETP Letters, 1965, 2(5): 237-239.

[3] Keldysh L V. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave[J]. Soviet Physics JETP, 1965, 20(5): 1307-1314.

[4] Brabec T, Krausz F. Intense few-cycle laser fields: frontiers of nonlinear optics[J]. Reviews of Modern Physics, 2000, 72(2): 545-591.

[5] McPherson A, Gibson G, Jara H, et al. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases[J]. Journal of the Optical Society of America B, 1987, 4(4): 595-601.

[6] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, et al. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields[J]. Physical Review A, 1994, 49(3): 2117-2132.

[7] Chelkowski S, Foisy C, Bandrauk A D. Electron-nuclear dynamics of multiphoton  $H_2^+$  dissociative ionization in intense laser fields[J]. Physical Review A, 1998, 57(2): 1176-1185.

[8] Cornaggia C, Lavancier J, Normand D, et al. Multi-electron dissociative ionization of diatomic molecules in an intense femtosecond laser field[J]. Physical Re-

- view A, 1991, 44(7): 4499-4505.
- [9] Gong X C, Song Q Y, Ji Q Y, et al. Strong-field dissociative double ionization of acetylene [J]. *Physical Review Letters*, 2014, 112(24): 243001.
- [10] Eckle P, Pfeiffer A N, Cirelli C, et al. Attosecond ionization and tunneling delay time measurements in helium [J]. *Science*, 2008, 322(5907): 1525-1529.
- [11] Eckle P, Smolarski M, Schlup P, et al. Attosecond angular streaking [J]. *Nature Physics*, 2008, 4(7): 565-570.
- [12] Han M, Ge P P, Shao Y, et al. Attoclock photoelectron interferometry with two-color corotating circular fields to probe the phase and the amplitude of emitting wave packets [J]. *Physical Review Letters*, 2018, 120(7): 073202.
- [13] Ge P P, Han M, Deng Y K, et al. Universal description of the attoclock with two-color corotating circular fields [J]. *Physical Review Letters*, 2019, 122(1): 013201.
- [14] Han M, Ge P P, Fang Y Q, et al. Unifying tunneling pictures of strong-field ionization with an improved attoclock [J]. *Physical Review Letters*, 2019, 123(7): 073201.
- [15] Huismans Y, Rouzée A, Gijbetsen A, et al. Time-resolved holography with photoelectrons [J]. *Science*, 2011, 331(6013): 61-64.
- [16] Bian X B, Bandrauk A D. Attosecond time-resolved imaging of molecular structure by photoelectron holography [J]. *Physical Review Letters*, 2012, 108(26): 263003.
- [17] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization [J]. *Physical Review Letters*, 1993, 71(13): 1994-1997.
- [18] Ivanov M Y, Spanner M, Smirnova O. Anatomy of strong field ionization [J]. *Journal of Modern Optics*, 2005, 52(2/3): 165-184.
- [19] Geng J W, Qin L, Li M, et al. Nonadiabatic tunneling ionization of atoms in elliptically polarized laser fields [J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2014, 47(20): 204027.
- [20] Geng J W, Xiong W H, Xiao X R, et al. Nonadiabatic electron dynamics in orthogonal two-color laser fields with comparable intensities [J]. *Physical Review Letters*, 2015, 115(19): 193001.
- [21] Li M, Geng J W, Han M, et al. Subcycle nonadiabatic strong-field tunneling ionization [J]. *Physical Review A*, 2016, 93(1): 013402.
- [22] Li M, Liu M M, Geng J W, et al. Experimental verification of the nonadiabatic effect in strong-field ionization with elliptical polarization [J]. *Physical Review A*, 2017, 95(5): 053425.
- [23] Hu P B, Liu J, Chen S G. Plateau in above-threshold-ionization spectra and chaotic behavior in rescattering processes [J]. *Physics Letters A*, 1997, 236(5/6): 533-542.
- [24] Li M, Liu Y Q, Liu H, et al. Subcycle dynamics of Coulomb asymmetry in strong elliptical laser fields [J]. *Physical Review Letters*, 2013, 111(2): 023006.
- [25] Li M, Geng J W, Liu H, et al. Classical-quantum correspondence for above-threshold ionization [J]. *Physical Review Letters*, 2014, 112(11): 113002.
- [26] Han M, Li M, Liu M M, et al. Tunneling wave packets of atoms from intense elliptically polarized fields in natural geometry [J]. *Physical Review A*, 2017, 95(2): 023406.
- [27] Pfeiffer A N, Cirelli C, Smolarski M, et al. Attoclock reveals natural coordinates of the laser-induced tunnelling current flow in atoms [J]. *Nature Physics*, 2012, 8(1): 76-80.
- [28] Shvetsov-Shilovski N, Dimitrovski D, Madsen L B. Ionization in elliptically polarized pulses: multielectron polarization effects and asymmetry of photoelectron momentum distributions [J]. *Physical Review A*, 2012, 85(2): 023428.
- [29] Faisal F M. Multiple absorption of laser photons by atoms [J]. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, 1973, 6(4): L89-L92.
- [30] Reiss H R. Effect of an intense electromagnetic field on a weakly bound system [J]. *Physical Review A*, 1980, 22(5): 1786-1813.
- [31] Milošević D B, Paulus G G, Bauer D, et al. Above-threshold ionization by few-cycle pulses [J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2006, 39(14): R203-R262.
- [32] Yan T, Bauer D. Sub-barrier Coulomb effects on the interference pattern in tunneling-ionization photoelectron spectra [J]. *Physical Review A*, 2012, 86(5): 053403.
- [33] Han M, Ge P P, Shao Y, et al. Revealing the sub-barrier phase using a spatiotemporal interferometer with orthogonal two-color laser fields of comparable intensity [J]. *Physical Review Letters*, 2017, 119(7): 073201.
- [34] Chen J H, Han M, Xiao X R, et al. Atomic-orbital-dependent photoelectron momentum distributions for  $F^-$  ions by orthogonal two-color laser fields [J]. *Physical Review A*, 2018, 98(3): 033403.
- [35] Han M, Ge P P, Fang Y Q, et al. Quantum effect of laser-induced rescattering from the tunneling barrier [J]. *Physical Review A*, 2019, 99(2): 023418.
- [36] Barth I, Smirnova O. Nonadiabatic tunneling in cir-

- cularly polarized laser fields: physical picture and calculations [J]. *Physical Review A*, 2011, 84(6): 063415.
- [37] Barth I, Smirnova O. Nonadiabatic tunneling in circularly polarized laser fields. II. Derivation of formulas[J]. *Physical Review A*, 2013, 87(1): 013433.
- [38] Liu M M, Li M, Shao Y, et al. Effects of orbital and Coulomb potential in strong-field nonadiabatic tunneling ionization of atoms [J]. *Physical Review A*, 2017, 96(4): 043410.
- [39] Barth I, Lein M. Numerical verification of the theory of nonadiabatic tunneling ionization in strong circularly polarized laser fields[J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2014, 47(20): 204016.
- [40] Herath T, Yan L, Lee S K, et al. Strong-field ionization rate depends on the sign of the magnetic quantum number[J]. *Physical Review Letters*, 2012, 109(4): 043004.
- [41] Barth I, Smirnova O. Spin-polarized electrons produced by strong-field ionization[J]. *Physical Review A*, 2013, 88(1): 013401.
- [42] Hartung A, Morales F, Kunitski M, et al. Electron spin polarization in strong-field ionization of xenon atoms[J]. *Nature Photonics*, 2016, 10(8): 526-528.
- [43] Liu M M, Shao Y, Han M, et al. Energy- and momentum-resolved photoelectron spin polarization in multiphoton ionization of Xe by circularly polarized fields[J]. *Physical Review Letters*, 2018, 120(4): 043201.
- [44] Trabert D, Hartung A, Eckart S, et al. Spin and angular momentum in strong-field ionization[J]. *Physical Review Letters*, 2018, 120(4): 043202.
- [45] Han M, Ge P, Liu M M, et al. Spatially and temporally controlling electron spin polarization in strong-field ionization using orthogonal two-color laser fields [J]. *Physical Review A*, 2019, 99(5): 023404.